

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01863

研究課題名（和文）陽子・中性子による低エネルギー軽イオン生成と物質・生体内輸送に関する研究

研究課題名（英文）Study on production of Low-energy light ions in proton- and neutron-induced reactions and their transport in material and biological body

研究代表者

渡辺 幸信（Watanabe, Yukinobu）

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：30210959

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：陽子・中性子の物質・生体内輸送中に、構成原子核との核反応により軽イオン（HイオンやHeイオン）が放出される物理過程に着目し、先行研究の中で実験データが欠乏している低エネルギー軽イオン成分の二重微分面積測定用検出器システムを新規開発した。nTD-Si検出器とパルス波形粒子識別データ解析法を用いることで、数MeV領域までの低エネルギー軽イオン計測の可能性を示した。また、E-E法で使用するE検出器の厚さ不均一性が粒子識別へ与える影響を調査した。炭素とアルミニウム標的に対する陽子入射反応計算を行い、残留核の離散的励起準位からの粒子放出の重要性や 2^- 放出反応の入射エネルギー依存性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

陽子・中性子核反応による生成軽イオン（HイオンやHeイオン）のエネルギー分布測定を、先行研究に比べより低エネルギー領域まで拡張することで、核反応メカニズムの理解の深化に寄与するばかりでなく、核反応理論モデルの改良や核データ評価に反映させることで、癌の粒子線治療や半導体ソフトエラー等の応用分野で用いられる物質・生体内の粒子輸送シミュレーションの予測精度向上に貢献できる。

研究成果の概要（英文）：Focusing on the physical processes of light ions (H and He ions) emitted by nuclear reactions with their constituent nuclei during proton and neutron transport in matter and living organisms, we have developed a new detector system for double-differential cross section measurement of low-energy light ion components, for which experimental data are lacking in previous studies. By using nTD-Si detector and pulse waveform particle identification method, the possibility of low-energy light-ion measurements down to the several MeV region was demonstrated. The effect of thickness non-uniformity of the E detector used in the E-E method on particle identification was also investigated. Proton-induced reaction calculations for carbon and aluminum targets were performed to clarify the importance of particle emission from discrete excited levels of residual nuclei and the incident energy dependence of the 2^- emission reaction.

研究分野：原子核物理・核データ

キーワード：陽子入射核反応 中性子入射核反応 軽イオン生成 物質内粒子輸送 nTD-Si検出器 パルス波形粒子識別 核反応モデル解析 核データ

1. 研究開始当初の背景

粒子加速器の進展に伴い、原子力、宇宙開発、医療などにおいて多彩なビーム応用分野が広がっている。代表的な例として、高レベル放射性廃棄物の有害度低減化のための加速器駆動核変換システムの開発研究、宇宙環境を模擬した放射線照射場を用いた宇宙機搭載用電子機器(半導体デバイス等)の照射試験、癌に対する陽子・重粒子線ビームによる粒子線治療やホウ素中性子補足療法(BNCT)がある。

物質・生体内の粒子ビーム輸送現象をシミュレーションするためには、原子核反応に関する基礎データ(核データ)が不可欠となり、その精度が輸送計算それ自体の精度を決める主要因となる。各種粒子輸送計算コードが開発されて、上述の応用分野等で広く使用されている。例えば、国産コードとして粒子・重イオン輸送計算コード PHITS、海外で代表的なコードとして Geant4 や FLUKA、MCNPX 等がある。これらのコードにおける核反応計算には、評価済み核データ(JENDL や ENDF/B 等の断面積データベース)や核反応理論モデルが使われている。

陽子や中性子入射反応の研究は、その反応機構を研究する原子核物理分野や粒子線応用分野で行われてきた。広い質量数範囲に亘る標的に対して、放射化断面積や放出粒子の角度分布やエネルギー分布、また両者の相関データである二重微分断面積(DDX)の測定データが取得されて、核反応データを幅広く収集したデータベース EXFOR[1]に収録されている。特に、DDX データは 1980-2000 年代にかけて、主に前平衡反応機構(入射粒子と標的核で形成される複合系が平衡状態になる前に起こる粒子放出機構)の研究のために系統的な測定がなされたが、この反応過程で放出される粒子は比較的高いエネルギーを持つため、低放出エネルギー領域まで含むデータは必ずしも多くない。また、評価済み核データ JENDL-4.0/HE[2]や CCONE コード[3]による理論モデル計算結果にも、低放出エネルギー領域での差異が見られる場合があり、実験による検証が必要である。以上の背景を踏まえて、物質・生体内粒子輸送シミュレーションの精度を決定づける“核データ”の信頼性の向上のために、核反応による生成軽イオン(H イオンや He イオン)のエネルギー分布測定を先行研究に比べ低エネルギー領域まで拡張すること、また実験データに基づいて核反応理論モデルに含まれる各種物理パラメータを決定することが当該分野における課題であった。

2. 研究の目的

上述の背景で述べた課題である、『粒子線治療や半導体ソフトエラー等のビーム応用分野で必要となる物質・生体中の粒子輸送シミュレーションの精度向上』を達成するための研究目的を以下のように設定した。

- (1) 入射ビームと物質・生体構成原子核との反応で放出される二次軽イオンの低エネルギー成分(10 MeV 以下)の計測手法(検出器システム・データ解析法)の開発
- (2) 物質・生体構成元素の代表である炭素、アルミニウム、シリコン標的に対する陽子・中性子入射反応から放出される二次軽イオン二重微分断面積データの系統的な測定
- (3) 評価済み核データ(JENDL-4/HE、TENDL-2019、ENDF/B-VIII)の検証や軽イオン生成反応を記述する理論モデルに含まれる各種物理パラメータの決定

3. 研究の方法

(1) 検出器システムとデータ解析手法の開発

原子核反応からの同時に放出される軽荷電粒子を識別して、それらのエネルギー分布を測定することが要求される。そこで、本研究では、以下の二種類の粒子識別手法の適用を検討する。

ΔE-E 法：1 枚目の薄い全空乏層型シリコン検出器でエネルギー損失(ΔE)を測定し、次に通過した粒子のエネルギーを 2 枚目の E 検出器で測定し、ΔE-E の相関から粒子識別する。検出器限界を低減するには ΔE 検出器を十分薄くする必要があり、その厚さ非一様性が粒子識別能の劣化を引き起こす可能性がある。

パルス波形識別法：原子炉で発生させた中性子を Si 単結晶に照射して半導体化する中性子ドーピング(nTD)法で製造された高品質の Si 半導体(nTD-Si)検出器を用いる。抵抗値の均一性が非常に優れているため、検出器のパルス信号波形の違いから粒子識別を行う計測技術(パルス波形識別法)が進展し、実験核物理の最先端分野で本格的に応用されつつある[4]。本研究では、nTD-Si 検出器を用いた計測システムの開発を目指し、検出器内で止まる低エネルギー二次軽イオンに対して高い粒子識別能力を有するデジタル波形分析法を開発する。

研究室所有の α 線源や九州大学加速器・ビーム応用科学研究センターのタンデム加速器施設を活用した検出器の性能評価実験を行い、その結果を軽イオン放出二重微分断面積測定用の軽イオンエネルギー分布測定用検出器システムの設計・開発に生かすことにした。

(2) 軽イオン生成 DDX 測定

研究計画立案当初、陽子入射反応実験については、九州大学加速器・ビーム応用科学研究センター(10数eV領域)、大阪大学核物理研究センター(50~200MeV領域)の加速器施設の利用を検討していた。また、中性子反応については、GANIL 研究所 NFS 施設(フランス)で実施予定の国際共同実験(スウェーデン・フランス等)に参加する計画であった。

(3) 核反応理論モデル解析

JENDL-5[5]の開発に使用された CCONE コード[3]に組み込まれている理論モデルを対象にして、新規測定データを含む実験データを用いた理論モデル解析を行う。CCONE コードには、前平衡過程の Exciton モデルと蒸発過程を記述する Hauser-Feshbach モデルが使われている。これらのモデルには様々な物理パラメータが含まれており、実測データを再現する最適なパラメータセットを調査する。標的核が炭素のような軽核の場合、陽子・中性子反応で生成される残留核の離散的準位からもさらに粒子放出が起こることがある。注目する低エネルギー領域への粒子生成に關与するため、残留核の離散的準位からの粒子放出の効果について調査を行う。また、 $p+^{27}\text{Al}$ 反応で形成される複合核 $^{28}\text{Si}^*$ から複数の α 粒子放出が期待されるため、入射エネルギーの関数としてその寄与を調べる。

4. 研究成果

3年間の研究期間中、検出器システムとデータ解析手法の開発に注力し、九州大学加速器・ビーム応用科学研究センターのタンデム加速器施設において、主に選定した検出器の性能評価試験を実施した。しかし、当初計画していた陽子・中性子入射軽イオン生成 DDX 測定までには至らなかった。検出器開発と並行して、CCONE を用いた核反応理論モデル解析を既存の実験データが揃った ^{12}C に対する陽子入射反応からの荷電粒子放出スペクトルに着目して実施した。また、Al 標的に対する陽子入射軽イオン生成 DDX 測定に向けて、予備計算を行い、入射エネルギー領域の選定を行った。以下に、それぞれの成果を要約する。

(1) 検出器システムとデータ解析手法の開発

(1-1) 検出器システム

放出荷電粒子の広範なエネルギー領域をカバーするために、二種類のカウンターテレスコープを開発した[6]。

1台は、パルス波形識別法を適用する nTD-Si 検出器(厚さ:500 μm)と通常の Si 検出器(厚さ:500 μm)で構成されたカウンターテレスコープ(以下、テレスコープ TL)である。Si 検出器は、nTD-Si 検出器後方に設置し、nTD-Si 検出器を貫通した粒子の検出を行う Veto 検出器として使用した。もう1台は、325 μm 厚または500 μm 厚の Si 検出器(ΔE 検出器)と最大47mm厚の CsI 検出器(E検出器)からなる通常の ΔE -E カウンターテレスコープ(以下、テレスコープ TH)である。CsI 検出器は直方体と四角錐台を合わせた形の CsI 結晶とフォトダイオード(S3584-08)を接着し製作した。いずれも、検出器出力電気信号は前置増幅器(FUJI DIAMOND 0380-16)で増幅した後、デジタイザ(CAEN V1730SB)経由でPCに記録した。

(1-2) 性能試験の結果

粒子識別に着目した性能テスト実験を九州大学加速器・ビーム応用科学センターのタンデム加速器を用いて実施した。タンデム加速器で加速された24 MeV の ^7Li ビームを Al 箔(11 μm 厚)に照射し、核反応によって生成した陽子、重陽子、三重陽子、 α 粒子のエネルギースペクトルをテレスコープ TL 及び TH を用いて測定した。

まず、テレスコープ TL に対する試験結果を示す。nTD-Si 検出器の信号波形データの解析から粒子の運動エネルギー E と信号の最大電流値 I_{max} を導出し、その相関から粒子識別を行った。その結果を図1(左図)に示す。横軸が E 、縦軸が I_{max} を表す。陽子、重陽子、三重陽子、 α 粒子の識別に成功しており、 α 粒子の同位体である ^6He 、ビームに使用した ^7Li とその同位体である ^6Li も確認できた。なお、nTD-Si 検出器に対する性能試験結果は文献[7]に公表済みである。

次に、テレスコープ TH に対し、 ΔE -E 法を適用して粒子識別を行った結果を図1(右図)に示す。横軸が CsI 検出器への付与エネルギー、縦軸が Si 検出器への付与エネルギーを表す。こちらも陽子、重陽子、三重陽子、 α 粒子を明確に識別できている。

(1-3) 薄い Si 検出器の厚さの不均一性評価

ΔE -E 検出器を用いて、より低エネルギーの荷電粒子を識別して計測するためには薄い ΔE 検出器を使用する必要がある。もし検出器の厚さの均一性が不十分な場合、粒子が入射する位置によって ΔE 検出器に付与されるエネルギーが変化し、粒子識別能が劣化する可能性がある。そこで、低エネルギー領域の軽荷電粒子の核データ取得のために使用する予定の厚さ20 μm の Si 検出器の厚さの不均一性を評価した[8]。

ΔE 検出器として20 μm 厚の Si 検出器、E 検出器として500 μm 厚の nTD-Si 検出器を使用した。また ΔE 検出器前方に厚さ6 μm 、孔の直径5 μm のアルミニウム製コリメータを設置し、 α 線が検出器に入射する位置を絞った。 α 線源は ^{241}Am (5485.6 keV)と ^{244}Cm (5804.8 keV) を使用し

た。ΔE 検出器と E 検出器の有効面積はともに 20 mm x 20 mm、バイアス電圧として E 検出器に 1.5 V、E 検出器に 300 V を印加した。検出器は水平方向に 6 mm 間隔で、コリメータの位置は鉛直方向に 6 mm 間隔でそれぞれ 3 箇所変更させ、ΔE 検出器の計 9 箇所の位置を貫通するα線のエネルギー計測から ΔE 検出器の厚さの不均一性を求めた。その結果、約 2.5 μm の厚さのバラつきがあることが判明した。

次に、粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を用いて、³He と ⁴He の粒子弁別性能評価を行った。2.5 μm の厚さのバラつき(相対的不均一性 12.5%)を考慮した ΔE 検出器(平均厚さ 20 μm)を想定して、³He と ⁴He の生成数の比が異なる混合ビームを照射し、E 検出器と E 検出器へのエネルギー付与量を計算した。この場合、³He と ⁴He の生成数の比が 10:1 程度までであれば、それぞれのピークは独立したガウス関数でフィッティングでき、³He と ⁴He の生成量を算出できるという結論を得た。

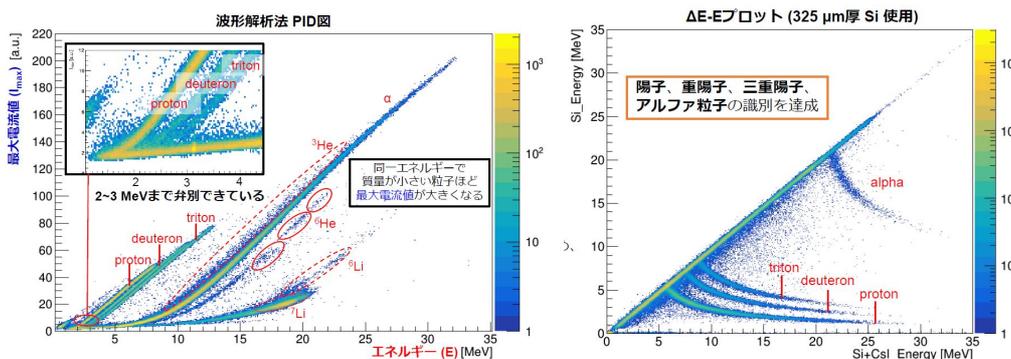


図1 テレスコープ TL (左) と TH (右) に対する粒子識別結果

(2) 核反応理論モデル解析

(2-1) ¹²C に対する陽子入射反応

残留核の離散状態からの粒子放出の計算には、軽核 (^{6,7}Li, ⁹Be, ^{12,13}C) に対する重陽子核反応データベース JENDL/DEU-2020[9] の評価に向け CCONE 内に新たに実装されたモデルを使用した。本モデルでは、RIPL-3 データベース[10]内の崩壊モードや分岐比のデータに基づいて各離散状態を崩壊させている。また、計算コスト削減のため、複合核の反跳速度分布はガウス分布で近似している。

計算結果と実験値との比較例として、入射エネルギー 14, 18 MeV における ¹²C(p,xp),(p,xα)反応の二重微分断面積[11] に対する結果を図2 と図3 に示す。離散状態の崩壊を考慮しない計算(青破線)では、¹²C(p,p')¹²C 反応の残留核 ¹²C、また ¹²C(p,α)⁹B 反応の残留核 ⁹B の励起エネルギーに対応したピーク成分のみが現れる。一方で、離散状態の崩壊を考慮した計算(赤実線)では、¹²C+p → ¹²C*+p → p+3α 及び ¹²C+p → ⁹B(*)+α → p+3α の順次 2 体崩壊による連続的なスペクトル成分が加わることで、実験値の再現性が大幅に改善している。18MeV の場合、若干の過小評価が見られるが、これは三体直接分解 (¹²C+p → ⁸Be*+α+p) を考慮していないためと考えられる。以上の解析結果から、軽核に対する核反応からの粒子放出スペクトルの計算には、残留核の離散状態からの粒子放出を適切に考慮することが重要であることを明らかにした。

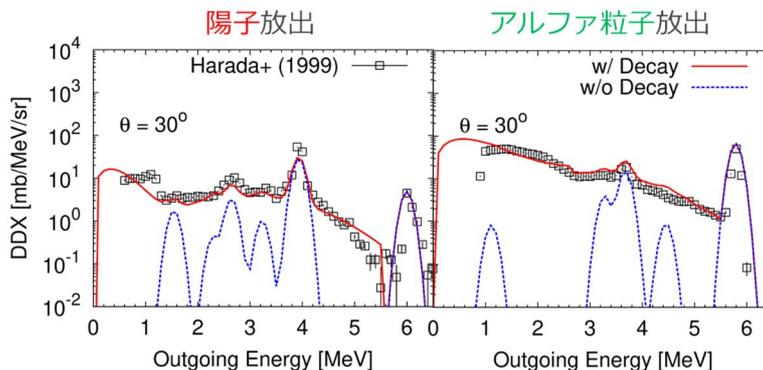


図2 14MeV 陽子入射反応からの放出粒子スペクトル (30 度放出)

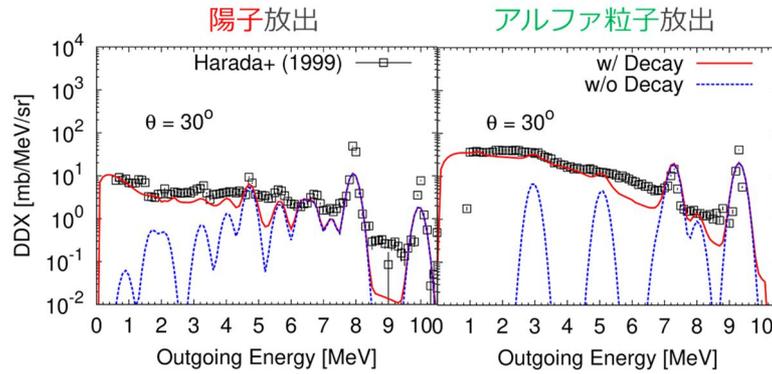


図3 18MeV陽子入射反応からの放出粒子スペクトル(30度放出)

(2-2) ^{27}Al に対する陽子入射反応

次に、九州大学加速器・ビーム応用科学研究センターのタンデム加速器施設における10数MeV陽子入射 α 粒子生成に関する実験(AI標的を予定)に向けて、事前に上記のCCONEによる予備計算を行った。入射陽子エネルギーを10~14MeVの範囲で変化させて、放出 α 粒子の二重微分断面積を5MeVまでの放出エネルギー帯に着目して調査した結果、3MeV以下の連続スペクトル部で強い入射エネルギー依存性を示すことがわかった。

次に、入射エネルギー14MeVに対して、放出 α 成分を3成分チャンネル - (p, α) , $(p, p\alpha)$, 及び $(p, 2\alpha)$ - に分離して比較を行った。この結果から注目する放出エネルギー領域での主要な反応チャンネルは、 2α 放出であることを見出した。これは、陽子を吸収して形成される複合核 $^{28}\text{Si}^*$ から α 粒子を1個放出後、励起状態にある残留核 $^{24}\text{Mg}^*$ の中性子や陽子の結合エネルギーが比較的高く、エネルギー的に2個目の α 粒子放出遷移を起こしやすいことによる。残留核 ^{24}Mg からの粒子崩壊チャンネルと分離エネルギーを比較することで、 ^{24}Mg の励起エネルギー7.7MeV~10.1MeVの範囲にある場合に放出可能な粒子は α 粒子のみになる。 ^{28}Si 核は α クラスター構造を持つことが知られている。このため、 $^{27}\text{Al}(p, 2\alpha)$ 反応に着目してDDXデータを取得し、複合核 ^{28}Si の励起状態の α クラスター構造と α 粒子生成の関連性を調査していくことは核物理的にも興味ある今後の研究課題である。

<引用文献>

- [1] EXFOR <https://www-nds.iaea.org/exfor/>; V.V. Zerkin and B. Pritychenoko, "The experimental nuclear reaction data (EXFOR): Extended computer database and Web retrieval system", NIM A 888, 31-43 (2018).
- [2] S. Kunieda et al., "Overview of JENDL-4.0/HE and benchmark calculation" JAEA-Conf 2016-004, pp. 41-46 (2016).
- [3] O. Iwamoto et al., "The CCONE Code System and its Application to Nuclear Data Evaluation for Fission and Other Reactions", Nuclear Data Sheets, 131, 259-288 (2016).
- [4] M. Assie' et al., "Characterization of light particles ($Z \leq 2$) discrimination performances by pulse shape analysis techniques with high-granularity silicon detector", Eur. Phys. J A (2015) 51:11, DOI 10.1140/epja/i2015-15011-6.
- [5] O. Iwamoto et al., "Japanese evaluated nuclear data library version 5: JENDL-5", J. Nucl. Sci. Technol., 60(1), 1-60 (2023).
- [6] 大石将也, "粒子識別可能な荷電粒子エネルギースペクトル測定系の開発", 九州大学大学院総合理工学府総合理工学専攻修士論文 (2022年度).
- [7] S. Kawase et al., "Effect of large-angle incidence on particle identification performance for light-charged ($Z \leq 2$) particles by pulse shape analysis with a pad-type nTD silicon detector", Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A, 1059, 168984 (2024).
- [8] 平尾純一, "低エネルギー荷電粒子の識別に向けた薄いSi検出器の厚さの不均一性評価", 九州大学工学部エネルギー科学科卒業論文 (2023年度).
- [9] S. Nakayama, O. Iwamoto, Y. Watanabe, and K. Ogata, "JENDL/DEU-2020: deuteron nuclear data library for design studies of accelerator-based neutron sources" J. Nucl. Sci. Technol., 58(7), 805-821 (2021).
- [10] R. Capote et al., "RIPL - Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations", Nuclear Data Sheets 110, Issue 12, 3107-3214 (2009).
- [11] M. Harada et al., "The $^{12}\text{C}(p, p'3\alpha)$ Breakup Reaction Induced by 14, 18 and 26 MeV Protons", Journal of Nuclear Science and Technology, 36, 313-325 (1999).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Shoichiro Kawase, Takuya Murota, Hiroya Fukuda, Masaya Oishi, Teppei Kawata, Kentaro Kitafuji, Seiya Manabe, Yukinobu Watanabe, Hiroki Nishibata, Shintaro Go, Tamito Kai, Yuto Nagata, Taiga Muto, Yuichi Ishibashi, Megumi Niikura, Daisuke Suzuki, Teiichiro Matsuzaki, Katsuhiko Ishida, Rurie Mizuno, Noritaka Kitamura	4. 巻 1059
2. 論文標題 Effect of large-angle incidence on particle identification performance for light-charged ($Z < 2$) particles by pulse shape analysis with a pad-type nTD silicon detector	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A	6. 最初と最後の頁 168984
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2023.168984	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Seiya Manabe, Yukinobu Watanabe, Megumi Niikura, Keita Nakano, Keita Nakano, Takeshi Y. Saito, Daisuke Suzuki, Yoshitaka Kawashima, Dai Tomono, Akira Sato, and Hideki Harano	4. 巻 284
2. 論文標題 Emissions of Hydrogen Isotopes from the Nuclear Muon Capture Reaction in natSi	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 EPJ Web of Conferences	6. 最初と最後の頁 1029
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1051/epjconf/202328401029	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hiroya FUKUDA, Shoichiro KAWASE, Yukinobu WATANABE, Masaya OISHI, Teppei KAWATA, Hiroki NISHIBATA, Shintaro GO, Megumi NIIKURA, Daisuke SUZUKI, and Seiya MANABE	4. 巻 2022-001
2. 論文標題 Development of a counter telescope for light charged particles emitted from muon capture reaction in Si	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 JAEA-Conf	6. 最初と最後の頁 163-168
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11484/jaea-conf-2022-001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 北藤 健太郎、川瀬 頌一郎、渡辺 幸信、福田 宏哉、大石 将也、川田 哲平、西畑 洸希、新倉 潤、鈴木 大介、郷 慎太郎
2. 発表標題 nTD-Si検出器を用いた荷電粒子識別のデータ解析手法の改良
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第41回研究発表講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 川瀬 頌一郎、福田 宏哉、大石 将也、川田 哲平、渡辺 幸信、西畑 洸希、新倉 潤、郷 慎太郎、鈴木 大介、松崎 禎市郎
2. 発表標題 nTD-Si検出器を用いた波形解析法による軽荷電粒子弁別能評価
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中山 梓介, 渡辺 幸信
2. 発表標題 12C+p 反応からの荷電粒子放出スペクトルの理論モデル解析
3. 学会等名 日本原子力学会 2023年秋の大会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	川瀬 頌一郎 (Kawase Shoichiro) (10817133)	九州大学・総合理工学研究院・助教 (17102)	
研究 分担者	中山 梓介 (Nakayama Shinsuke) (30758610)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研 究職 (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------