

SiC 複合材料を用いた陽子加速器標的の開発

DEVELOPMENT OF SiC COMPOSITE MATERIAL FOR ACCELERATOR TARGET

牧村俊助^{#,A)}, 佐藤朗^{B)}, 朴峻秀^{C)}, 的場史朗^{A)}, 二宮和彦^{B)}, 嶋達志^{B)}, 鈴木智和^{B)}, 河村成肇^{A)}, 下村浩一郎^{A)}, 三原智^{A)}, 青木正治^{B)}, 中平武^{A)}

Shunsuke Makimura^{#,A)}, Akira Sato^{B)}, Joon-Soo Park^{C)}, Shiro Matoba^{A)}, Kazuhiko Ninomiya^{B)}, Tatsushi Shima^{B)}, Tomokazu Suzuki^{B)}, Naritoshi Kawamura^{A)}, Koichiro Shimomura^{A)}, Satoshi Mihara^{A)}, Masaharu Aoki^{B)}, Takeshi Nakadaira^{A)}

^{A)} J-PARC center, High Energy Accelerator Research Organization, KEK

^{B)} Osaka University

^{C)} Muroran Institute of Technology

Abstract

Polycrystalline graphite is a principal target material for muon production under high power proton beam irradiation, because the graphite has extremely high performance for these applications. However, the graphite is easily oxidized at high temperature. In the case where air is unexpectedly introduced into the primary beam line during high power beam operation, a robust closed area is required to enclose the consequent contamination. Recently, we started to investigate a new target material with higher performance. Silicon carbide (SiC) is an excellent candidate. But a monolithic SiC cannot be used as a structural material under the pulsed heating cycle, because it is brittle. So, NITE-SiC composite material, developed for fusion and fission reactor at OASIS group, Muroran Institute of Technology, is investigated. Brittleness of SiC is improved in this composite material. We are planning to have a proton irradiation of the samples at N0 beam line at . The purpose of this pro-proposal is to obtain the information for produced amount and emission of the radionuclides of the SiC composite material through high energy proton irradiation. Some of the produced radionuclides, especially tritium, are emitted into vacuum. The emission rate strongly depends on the temperature. So, after the irradiation, the temperature dependences of the emission are measured with heating of the irradiated samples at a range from room temperature to 1300 Kelvins. Actually-obtained datum of production of the radionuclides by the experiments will be compared with the results through Monte-Carlo code, PHITS. In the simulation, after 1day from the irradiation, the samples can be handled by hands-on maintenance at the radioisotope (RI) building in RCNP. They can be transported with an appropriate packaging from N0 beamline to the RI building. The amount of gamma-ray emitters will be determined by gamma-ray spectroscopy using high-purity germanium detectors. After the gamma-ray measurement, the sample will be set into a vacuum vessel with a heating oven. Then after heating, the residual tritium inside the sample is precisely measured by LS1800; liquid scintillation counter (LSC) system at the RI building. When the material properties of the SiC composite material under the proton beam irradiation are understood, it will be one of the most valuable material to accomplish more stable and safer beam operation.

1. はじめに

1.1 従来のミュオン標的材料～等方性黒鉛

基礎物理、物質生命科学の解明を迫る陽子加速器は、精度の高い実験を実施する要請から大強度化が望まれている。加速器で加速された陽子は標的材料に衝突し、ミュオン、パイオン、中性子、ケイオン等の様々な二次粒子を生成する。標の上で発生した二次粒子を実験エリアに効率的に輸送するためには二次粒子発生源の空間的広がりを、なるべく小さくすることが望ましく、その観点からは標的材料の密度は大きいほうが良い。しかしながら、原子番号の大きな金属材料を標的材料として採用した場合、標の上で散乱した陽子ビームは標的周辺機器に大きな熱と放射化を発生させる。更に、標的上のビームによる発熱密度が高くなることによって標的材料の耐熱温度を超えてしまうので、発熱密度を分散さ

せるために回転標的方式や液体金属標的を採用する必要がある [1]。そのためミュオンやパイオンの生成においては、標的システムや保守を容易にするために原子番号の小さな等方性黒鉛が大強度陽子加速器の主要標的材料として採用されている。事実、国内における J-PARC 計画、英国ラザフォード研究所のミュオン生成標的 [2]、スイス PSI 研究所のメソン標的、J-PARC 計画、米国フェルミ研究所、欧州セルレン研究所のニュートリノ標的には等方性黒鉛が採用されている。等方性黒鉛は、極めて優れた耐熱性能、機械特性、化学安定性を備えているため、標的材料として採用されるが、高温において容易に酸化される問題点を抱えている。真空を保持した陽子ビーム運転中に、予期せぬ大気導入が発生した場合、陽子ビームの照射によって高温になった黒鉛材料は急激に酸化される事となる [3]。そのため酸化によって飛散した放射性物質を加速器トンネル内に留めるために堅牢な気密システムを構成する必要がある。しか

[#] shunsuke.makimura@kek.jp

し、損傷した黒鉛標的は交換される必要がある上に、放射性汚染物のために、これらの保守には時間と労力が要求される。上記を考慮し、陽子ビーム照射によって破損しない程度に耐熱性能を備える必要はあるが、等方性黒鉛よりも密度が高く、更に耐酸化性能の高い標的材料の開発が望まれている。

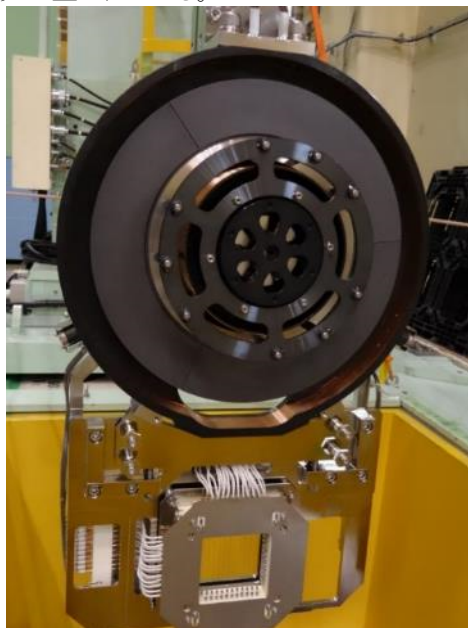


Figure 1: Muon Target at J-PARC.

1.2 今回提案するミュオン標的材料～SiC 複合材料

上記の課題を解決するべく新たな材料の検討を始めた。炭化ケイ素 (SiC) は、耐熱性も機械強度も高く、良好な候補として考えられる。等方性黒鉛の密度が 1.82 g/cc であるのに対して SiC の密度は 3.2 g/cc である。SiC は高温では、その雰囲気酸素分圧に依存してパッシブ酸化とアクティブ酸化という二種類のプロセスで酸化される。酸素分圧が低い時にはアクティブ酸化が支配的でガス状の酸化ケイ素が形成される事により質量が減少していき、この場合、SiC 表面に耐酸化被膜の形成は期待できない。この領域の酸素分圧では、質量減少させるために高真空内で SiC を使用する必要がある。一方で、酸素分圧が高い場合にはパッシブ酸化によって強固な酸化皮膜が SiC 表面に形成され、わずかに質量増加する [4]。この時は、SiC 表面上の耐酸化被膜として機能し、例えば、ビーム運転中に予期せぬ大気導入が発生した場合にも、余計な放射性物質の飛散が発生しない。しかしながら、通常モノリシック SiC は脆性材料であるため、熱疲労環境においては構造材料として使用することが出来ない。そのため、室蘭工業大学 OASIS グループにおいて原子力・核融合材料として開発されてきた NITE-SiC 複合材料を採用する可能性の検討を始めている [5]。

1.3 陽子ビーム照射による生成放射能の実測

ミュオン生成標的の交換、保管のための関連機器の設計のためには高エネルギー陽子ビーム照射によって SiC 上に生成される放射性物質の量を計測する事は、非

常に重要である。これらの生成量はモンテカルロ計算において評価可能であるが、実際の生成量との比較は行われていない。近年、このような陽子ビーム照射による放射性物質の生成断面積の評価値と実測値の比較は、解明が期待されている分野である。ミュオン生成標的や陽子ビームラインを実際に保守する際には、ガス状の放射性物質、特にトリチウムが、どの程度、生成され放出されるかも重要となる。

1.4 波及効果

更なる陽子ビームの大強度化に向けた標的材料の開発が期待されており [7]、国内においても J-PARC における MLF ミュオン標的 [8]、COMET 標的、T2K 標的、大阪大学 RCNP 施設における MuSIC 標的などの等方性黒鉛材料を標的として採用している施設の協力体制が構築されつつある。SiC 複合材料の陽子ビームによる照射効果の理解が進めば、より安全で安定なビーム運転を達成する標的材料として、幅広い研究分野へ貢献することが出来ると期待されている。

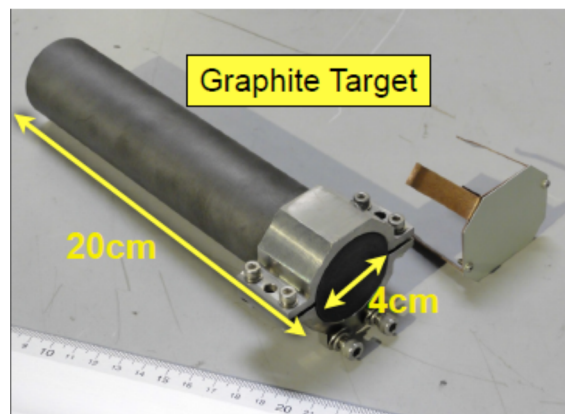


Figure 2: MuSIC target at RCNP, Osaka university.

2. RCNP 施設における SiC 複合材料の照射計画

2.1 照射計画

高エネルギー陽子ビームによって SiC 複合材料に生成され、放出される放射性物質の量を実測するために大阪大学 RCNP 施設の N0 ビームラインにおいて照射試験を実施することを計画している。従来、等方性黒鉛はミュオン生成標的材料としての主要材料であったので、比較のために、等方性黒鉛の照射試験も実施する。また、SiC 複合材料は、アルミ、イットリウム等の添加剤を含んでいるため、添加剤の影響を計測するために、純 SiC 材料の照射試験も計画している。生成された放射性物質の内、特にトリチウムは真空中に放出されるが、その放出量は温度に強く依存する。陽子ビーム照射後に照射試料を昇温することによって、放出量の室温から 1000 °C までの温度依存性を計測する。実測された放射性物質の生成量をモンテカルロ法 PHITS から得られた評価値と比較する。

- 計画している照射試料
 - 直径:10 mm、厚み:0.75 mm
 - 予定している試料の数:21 個
 - 試料の種類:NITE-SiC 複合材料、純 SiC、等方性黒鉛(IG-430U:東洋炭素)
 - 温度測定点:室温から 1000℃

照射時間を短縮するために、二個の試料(厚み:0.5 mm)を 1 スロットに同時に設置して照射する。試料厚みは、過去の実績から RCNP 施設の管理区域境界に対する遮蔽効果によって決定されている(0.5 g/cm²)。

- 計画している照射条件
 - ビームのエネルギー:392 MeV
 - ビーム強度:1 μA
 - ビーム径:2 mm(1 σ)
 - 各試料の照射時間:30 分
 - 照射時の試料温度:470 °C(SiC)、370 °C(黒鉛)

モンテカルロ計算から得られた予想放射能を分析できる検出範囲と試料を取り扱う際の作業員の予想被ばく線量から照射時間を決定している。

試料の発熱はモンテカルロ計算より評価しているが、温度解析は保守的な計算条件で評価している。

- 照射時の状況

21 個の試料は可動ラダー試料ホルダーの 11 個のスロットに 2 個ずつ一度に取り付けられる。ビームを停止させた後に、それぞれのスロットは線形導入機で正確に照射位置に位置決めすることが出来る。結果として、真空を開放することなく全ての試料を照射する事が出来、我々の利用するビームタイムを短縮する事が可能である。

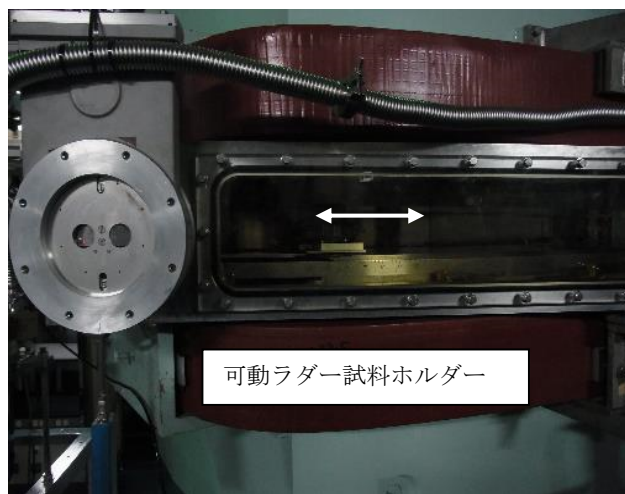


Figure 3: N0 ビームラインにおける可動ラダー試料ホルダーの設置構造図。

2.2 残留放射能の分析

- 残留放射能の評価

モンテカルロ法 PHITS によって評価された照射試料の線量と試料中の残留放射能の時間推移を下記に示す。

Table 1: 照射試料の 5 cm の距離での線量(mSv/h)

	Pure SiC	SiC composite material SiC+Al 数%+Y 数%	Graphite
Fresh	3.65	3.80	1.35
After 1 day	0.0417	0.104	0.00104
After 3 days	0.00625	0.0318	0.000938
After 7 days	0.00208	0.0104	0.000833

Table 2: 照射試料中の残留放射能(Bq)の時間推移

	Pure SiC		SiC composite material SiC+Al数%+Y数%		Graphite	
	Total		Total		Total	
Fresh	Total	4.11E+07	Total	4.11E+07	Total	1.98E+07
	Si27	1.20E+07	Si27	1.25E+07	C11	1.77E+07
	C11	9.90E+06	C11	8.33E+06	C10	1.09E+06
	Al26m	5.73E+06	Al26m	5.73E+06	Be7	2.71E+05
After 1 day	Total	4.01E+05	Total	9.90E+05	Total	2.76E+05
	Na24	1.98E+05	Be7	1.88E+05	Be7	2.66E+05
	Be7	1.82E+05	Sr83	1.82E+05	H3	6.77E+03
After 3 days	Total	2.19E+05	Total	5.21E+05	Total	2.71E+05
	Be7	1.82E+05	Be7	1.82E+05	Be7	2.60E+05
	Na24	2.14E+04	Sr83	6.77E+04	H3	6.77E+03
After 7 days	Total	1.88E+05	Total	3.39E+05	Total	2.55E+05
	Be7	1.72E+05	Be7	1.72E+05	Be7	2.50E+05
	Na22	9.90E+03	Ge71	2.92E+04	H3	6.77E+03
	H3	7.29E+03	Sr87m	1.61E+04		

照射一日後には試料は RCNP 施設の RI 棟にてハンズオンで取り扱うことが出来る。試料は適切な梱包を行った後に、放射線管理区域内のみを通して NO ビームラインから RI 棟に輸送することが出来る。

□ 残留放射能の分析

(ガンマ線放出核種の分析)

^7Be や ^{24}Na といったガンマ線放出核種は高純度ゲルマニウム検出器において定量化する。

(トリチウムの分析)

ガンマ線放出核種の計測後、試料は電気炉(石英管と管状炉)を備えた真空容器中に設置される。試料温度は室温から 1000 °C までの任意の温度(温度測定点: 200、400、600、800、1000 °C)で加熱される。このときの圧力変化を計測する事によってガス放出率を相対的に測定することが出来る。十分にガス放出が行われた後に、試料中に残留するトリチウム量を破壊試験により正確に定量化する。純 SiC と SiC 複合材料は化学的に溶解させることが出来る(JIS R6124 または R1616)。等方性黒鉛は高温で酸化させ、ガス状の一酸化炭素と二酸化炭素として全量回収する。トリチウムは水分子 HTO としてコールドトラップで回収する。HTO を含有した試料溶液中にシンチレーション溶液を加えたのちに、RCNP 施設の RI 棟保有の液体シンチレーションシステム(日立アロカ製 LSC-7200)にてベータ線を計測する。本装置にお

けるトリチウムの検出効率は 50%で、検出下限は 1 Bq である。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 16H03994 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] M. Futakawa *et al.*, JPS Conf. Proc., 001002 (2015), Proc. 2nd Int. Symp. Science at J-PARC, "Tar-getry overview".
- [2] S. Makimura *et al.*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (2015)305 811-815.
- [3] M. Takahashi *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 31[12], pp1275-1286.
- [4] T. Narushima *et al.*, J. Am. Ceram. Soc., 72 [8] 1386-90 (1989).
- [5] <http://oasis.muroran-it.ac.jp/english/index.html>
- [6] A. Boudard *et al.*, PHYSICAL REVIEW C 87, 014606 (2013).
- [7] For instance, The 6th High Power Targetry Workshop at Oxford
- [8] S. Makimura *et al.*, Proc. 2nd Int. Symp. Science at J-PARC — Unlocking the Mysteries of Life, Matter and the Universe —, JPS Conf. Proc., 051002 (2015).

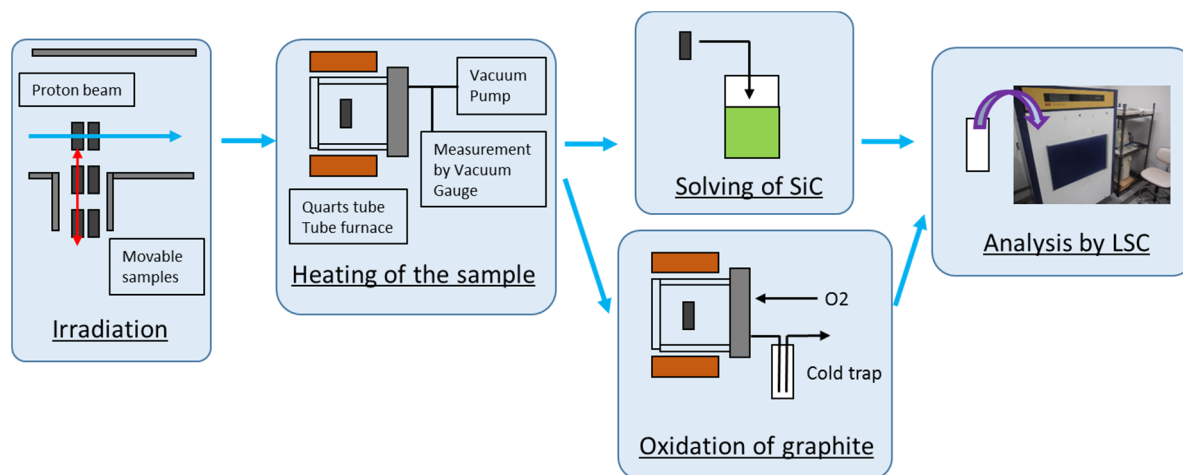


Figure 4: 分析プロセスの概念図.