

J-PARC 3 GeV シンクロトロン入射ダンプの中性子によるサンプル放射化評価 EVALUATION OF THE SAMPLE ACTIVATION AT THE INJECTION DUMP OF J-PARC 3 GeV RAPID CYCLING SYNCHROTRON

山本風海^{#,A)}, 中野秀仁^{A)}, 松本哲郎^{B)}

Kazami Yamamoto^{#,A)}, Hideto Nakano^{A)}, Tetsuro Matsumoto^{B)}

^{A)} Accelerator Division, J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

^{B)} National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Abstract

To accumulate a high-intensity beam in the Rapid Cycling Synchrotron(RCS), the H⁻ beams from the linac converted into protons and injected into the RCS. In this process, a certain amount of the beam is not converted, and it leads to the injection dump. Since the secondary particles are constantly produced inside the dump due to this waste beam, we have studied if those secondary particles can be used as an irradiation test. In this report, we compare the results of calculations using PHITS/DCHAIN codes and measurements using a germanium-semiconductor detector after activating a bismuth-209 sample.

1. はじめに

J-PARC 3 GeV シンクロトロン(3 GeV Rapid Cycling Synchrotron, RCS)は物質生命科学実験施設(materials and life science experimental facility, MLF)および主リング(Main Ring, MR)に最大 1 MW 相当のビームを供給する目的で建設された[1]。RCS において 1 MW のビーム出力を達成するためには、リニアックからの入射ビームを RCS の RF バケツ内に多重入射しビーム粒子を溜める必要があり、RCS では荷電変換入射手法を用いてビームを蓄積している[2]。荷電変換入射手法では、入射点に設置した薄膜等に電子を纏った入射イオンビームを通過させ、ビームが薄膜を通過した際のクーロン相互作用によってイオンから電子をはぎ取りイオンの電荷状態を変えることで、周回ビームの位相空間分布上の同一点に重ねて入射することができる。また入射ビームに対して周回軌道をずらしていくことで、位相空間内で任意の分布を作ることができ、ビームの密度をある程度制御することができる[3]。J-PARC リニアックでは、陽子に電子が 2 個付随した負水素イオン(H⁻)を加速しており、RCS への入射点に設置した炭素を主成分とした 1 ミクロン程度の薄膜[4]を通過させ、陽子に変換している。この手法を用いることで、入射ビームの空間電化効果を抑制し大強度ビームを加速することが可能となっているが、一方で薄膜を通過する際の変換効率は有限であり、一定数の粒子は変換されずに中性水素原子(H⁰)あるいは H⁻のまま残ってしまう。1 MW ビームを加速する際には、例え 10⁻⁶ 程度のビームロスであっても 1 W という無視できないロス量となるため、この変換しきれなかった粒子も制御して適切に処理しなければならない。このため RCS の入射部にはダンプが設置されており、入射ビームオプティクスもこれら H⁰ および H⁻ 粒子が入射ダンプに導かれるように設計されている。図 1 に入射部の機器配置と入射、周回ビーム及び荷電変換されなかった H⁰、H⁻ の軌道を示す。

上記事情により、入射ダンプには運転中継続的にある程度のビームが定常的に廃棄され続けることになる。そ

の量を概算すると、RCS における平均的な荷電変換効率はおよそ 99.5%であることから、1 MW 運転時は入射ビームエネルギー133 kW x 0.005 = 0.665 kW 程度となり、これだけのビームが常にダンプに廃棄され続ける。ダンプに廃棄される正確な量は、ダンプの容量を超えないよう担保するため、1 ショット毎に電流モニタ(CT)を用いて測定し、記録を残している。

現在は、この入射ダンプへの廃棄ビームはただ廃棄しているだけである。しかし、このビームによって中性子、ガンマ線等が生成され続けているため、これら二次粒子を照射試験等に用いることができれば、RCS の定常運転に寄生する形で試験を行うことができ効率的である。その可能性を探るために、入射ダンプで発生している二次粒子に関して、PHITS[5]および DCHAIN[6]を用いたシミュレーション評価、および Bi サンプルを用いた放射化測定を行い、それらの比較を行った。

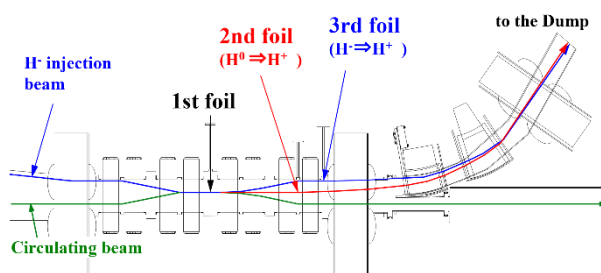


Figure 1: Beam orbits in the injection line.

2. シミュレーション

2.1 モデル

図2にシミュレーションモデルを作成した入射ダンプ周辺の写真を示す。この入射ダンプは 400 MeV, 4 kW の陽子ビームを廃棄できるように設計されており、ビーム入射により大量に発生する中性子による放射化を抑制するため、加速器トンネル躯体内に埋め込む構造になっている。図1に示した通り、荷電変換されなかった H⁰、H⁻ 粒子は入射点下流に置かれた第二、第三荷電変換薄膜によ

[#] kazami@post.j-parc.jp

って陽子に変換され、周回ビームと切り離されて入射ダンプまで輸送される。

図3にPHITSを用いて作成したモデル(上図:廃棄ビームを横から見た断面図、下図:ビームが紙面に向かって入射する向きから見たサンプル位置周辺での断面図)

The injection H0 dump inside the accelerator tunnel wall

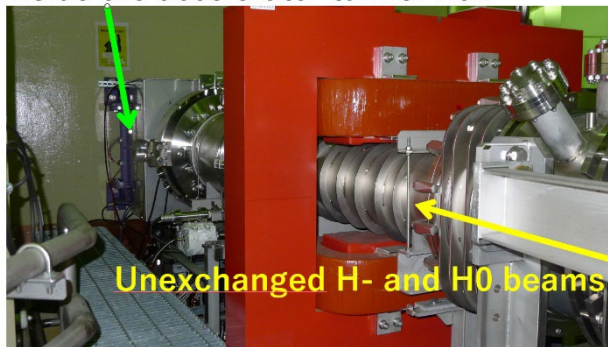


Figure 2: Picture of the injection dump.

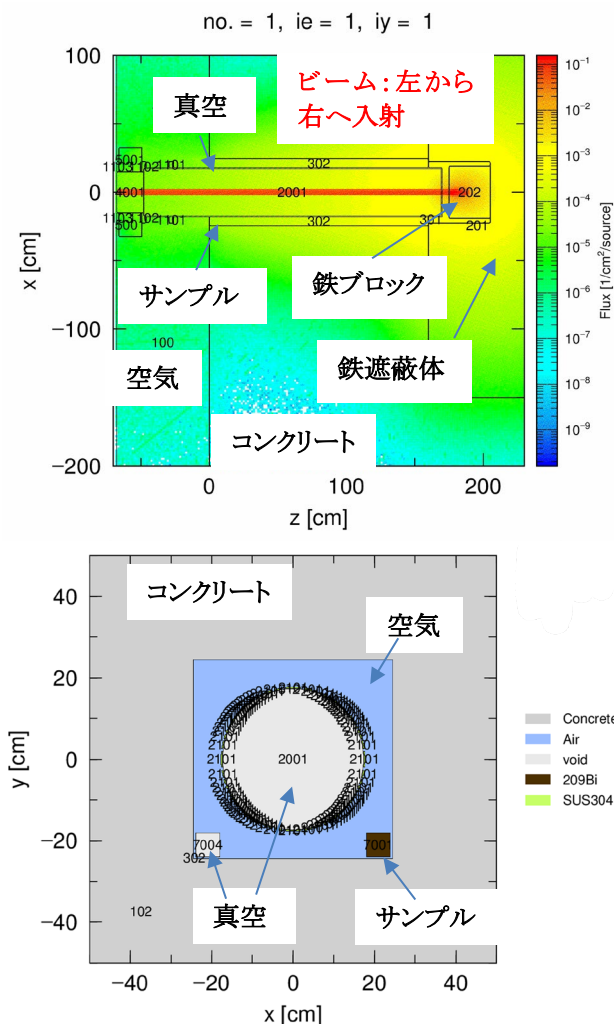


Figure 3: Calculation model of the injection dump.

を示す。図中の赤線がダンプに入射する陽子ビームを表している。廃棄ビームラインダクトはコンクリート内 160 cm の深さまで挿入されており、その先に奥行き 30 cm の鉄のブロックが置かれている。その外側には躯体と一体構造の鉄遮蔽体が埋め込まれているが、400 MeV 陽子の鉄の飛程は 12 cm 程度であり、陽子ビーム自体は鉄遮蔽体の前に置かれた鉄ブロックで止まるため、躯体が直接発熱しない設計となっている。

入射ビームは半径 2 cm の円形を仮定し、角度分布は持たず全ての粒子が図の Z 方向にのみ運動量を持つと仮定した。今回の評価では、統計をためるため入射粒子数 10000 個 x 20000 バッチの計算を行った。放射化測定を行う ^{209}Bi サンプルは、作成時にベンダーより提出された成分表を基に不純物との混合物として定義し、コンクリート入口にサンプルの縁が一致するように配置した。ただし、実際のサンプルは縦横 20 mm、厚み 5 mm の直方体であるが、統計をためるために計算上は直径を 60 mm、厚みを 60 mm の円柱とした。また、体系はビーム中心を原点として上下左右対称な配置となっていることから、サンプルと同じ形状のボイド(真空)領域を x 座標の符号を反転させた位置に設定し、そこに入射した粒子のスペクトルをサンプルが吸収したスペクトルとした。

2.2 計算結果

図4に、モデル中のボイド領域に入射した二次粒子のスペクトルを示す。サンプルはダンプ遮蔽体入口に置かれているため、サンプル位置に入射する二次粒子はダンプ入射陽子に対してほぼ 180 度反跳したものとなる。このため、二次粒子は入射陽子の運動エネルギー 400 MeV と比して低いエネルギーを持つことになり、サンプルが吸収する二次粒子は 100 MeV 以下となる。特に中性子は、1 MeV 付近がピークの非常に幅広なエネルギー分布をもって入射していることが分かる。

この様な中性子の入射により ^{209}Bi サンプル内に生成される放射性核種を、PHITSの結果をDCHAINコードに接続することで求めた。DCHAINの計算では、ビーム照射期間は6日間で、1秒あたりおよそ 10^{13} 個の粒子がダンプに入射すると設定した。これは、1 MW のビーム出力運転で 99.5% の荷電変換効率(すなわち、0.5% がダンプに廃棄される)を仮定している。表1に、ビーム停止一日後のサンプル中の放射性核種のうち、ガンマ線線量が

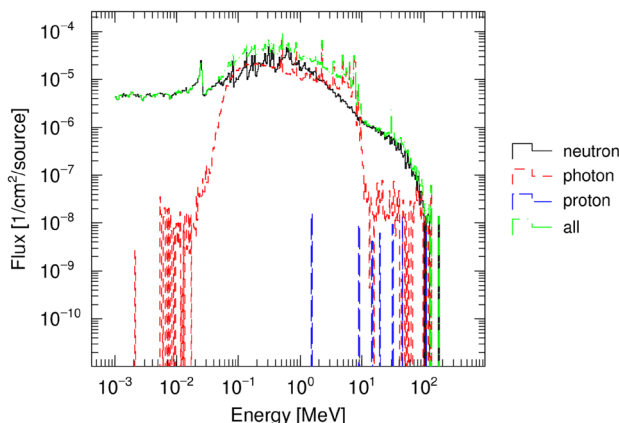


Figure 4: Energy spectra of the secondary particles.

多い上位 5 種を示す。運転停止直後は、 ^{206}Bi の存在量が多く、全放出ガンマ線のうち線量換算で 86%が ^{206}Bi によるものである。次いで ^{205}Bi の寄与が 8%超、 $^{203,204}\text{Bi}$ が 1%超で、 $^{205\text{m}}\text{Pb}$ 以下の各種は 1%以下である。

Table 1: Residual Nuclides after 1-day Cooling

Nuclides	Photon Dose [uSv*m ² /h]	Radioactivity [Bq]	Harf Life
^{206}Bi	3.4035E+00	6.5588E+05	6.24 d
^{205}Bi	3.2932E-01	1.4598E+05	15.3 d
^{203}Bi	6.4824E-02	1.8019E+04	11.76 h
^{204}Bi	5.2060E-02	1.1217E+04	11.22 h
$^{205\text{m}}\text{Pb}$	3.0797E-02	1.9708E+04	5 d

3. サンプル放射化測定

3.1 実験条件

計算モデルで設定したサンプル位置に、実際に ^{209}Bi サンプルを設置し、1 週間ビーム運転を行った。照射期間は 2024/3/6(水) 17:30 より 2024/3/13(水) 9:00 までで、MLF は利用運転、MR は 3/6 より 3/8 までビーム調整を行っていた。MLF の利用運転条件としては、粒子数として平均 7.8×10^{13} 個/パルス、パルス当たりのビームパワーではおよそ 940 kW 相当で運転を行った。この期間に、MLF および MR に向けたビーム加速のために RCS に入射した粒子数の総計は 1.06×10^{21} 個であった。シミュレーションでは 1 MW で 6 日間連続照射であり、その場合 RCS で加速する総粒子数は 1.08×10^{21} 個となった。実際の運転期間は半日少ないが、一方でビームパワーの方は若干少なく、MR はスタディもしくはビーム運転停止状態で MR 行きのショット分は MLF 行きに比較して無視できる程度の粒子しか入射していないことから、実際の粒子数と計算で使用した粒子数の差は 2%程度であった。

ビーム照射によって放射化したサンプルについて、Ge 半導体検出器を用いてガンマ線スペクトルの測定を行った。使用した Ge 半導体検出器はセイコーEG&G 社製 GEM-30-70 で、検出器は加速器トンネルに隣接する 1 種管理区域内に設置されている。測定の前に、ガンマ線源を用いて検出器のキャリブレーションを行った。その際の測定データを図 5 に示す。キャリブレーションには ^{22}Na の 0.511 MeV、1.276 MeV とその和信号、および ^{60}Co の 1.17 MeV、1.33 MeV とその和信号を用い、これらデータの線形フィットから横軸をエネルギーに換算した。

測定の際には、照射を行った加速器トンネル内入射ダンプからサンプルを回収し Ge 半導体検出器内に移動させる必要があるが、運転停止直後は空気中の酸素、窒素等から生成された短寿命放射性同位体核種の減衰を待つ必要があり、停止後すぐにはトンネルへ入ることができない。J-PARC の場合、ビーム停止後 2 時間はトンネル内の空気を閉じ込めておく必要があり、さらにその後 2 時間換気を行い、トンネル内の空気の入替えを行ってから入域可能となる。さらに、被ばく管理のためにサーベイを行いながらトンネルを進む必要があることから、実際に

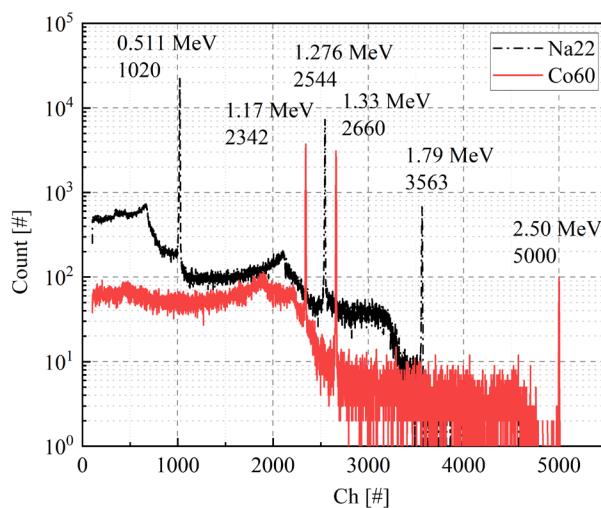


Figure 5: Calibration data.

サンプルを検出器にセットして測定ができたのはビーム停止より 4 時間半後であった。

3.2 測定結果

今回の測定で使用したサンプルは、事前に入射部近傍で予備照射試験を実施した物で、その際にすでに放射化している。事前予備試験は 2023 年 3 月 1 日より 1 週間実施しており、照射から 1 年以上が経過しているが、どのような残留核種が残っているか、今回の照射試験前にスペクトルの測定を行った。また、それに合わせて、バックグラウンド評価用にサンプル無しの状態でオープン測定も実施した。照射前及びオープン測定は、検出レートが低いことからそれぞれ 1 週間ずつ連続測定を行った。図 6 にそれらの結果を示す。ただし、サンプル測定の結果は 10 倍にして、冷却後サンプルのデータと重ならないようにしてある。サンプル無しのオープン測定との比較から、バックグラウンドでないサンプル由来と考えられるピークは 0.57 MeV、1.06 MeV、1.63 MeV、1.77 MeV、

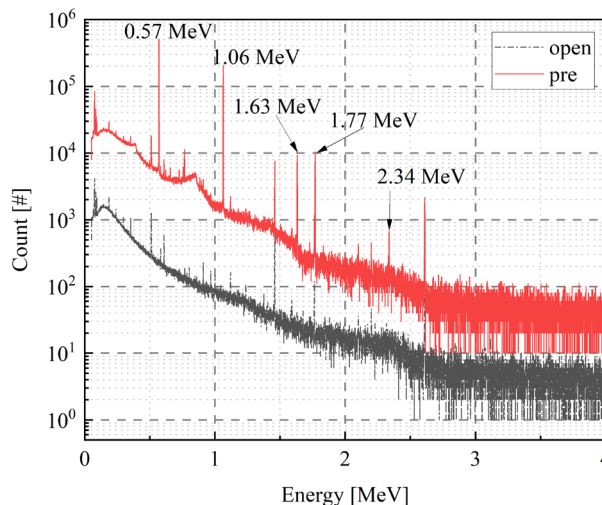


Figure 6: Gamma-ray spectra of Open and sample measurements.

2.34 MeVである。

図7に、今回の照射1日経過後のGe検出器測定データを示す。1日後は短寿命核の影響で検出レートが高いことから、1時間で各ピークを識別できる程度の統計を貯めることができた。図を見れば明らかなように、多数のピークが存在することが分かる。

4. 考察

まず、図6のバックグラウンド評価用サンプルで検出された5つのピークについて、入射部近傍で予備照射試験した際の生成核種を別途PHITSおよびDCHAINを用いて評価した。表2に計算で得られた照射1年後のサンプル中の放射性核種のうち、ガンマ線線量が多い上位5種を示す。照射から1年が経過すると、寿命1月以下の短寿命核種は全て崩壊してしまい、それ以上の比

較的長寿命の核種のみ生き残ることになる。PHITSの評価上は ^{207m}Pb が最も強いガンマ線源で、それ自体は0.8秒と非常に短い半減期であるが、その親核である ^{207}Bi の比較的長い半減期31.5年により、数か月经過以降はこれら2種が主たるガンマ線源となる。 $(^{210}\text{Po}$ は803.1 keVのガンマ線崩壊モードを持つが、分岐比は0.0012%と非常に小さくほぼ全て α 崩壊するため、崩壊数は多いがガンマ線スペクトルには表れない。)

Lund大学の核データライブラリ[7]によると、0.57 MeV、1.06 MeV、1.77 MeVについては $^{207}\text{Bi} \rightarrow ^{207m}\text{Pb}$ の崩壊に由来するガンマ線ピークであると判断できる。また、残りの1.63 MeV、2.34 MeVについては、それぞれ $0.57 + 1.06 = 1.63$ 、 $0.57 + 1.77 = 2.34$ と、 $^{207}\text{Bi} \rightarrow ^{207m}\text{Pb}$ 崩壊由来のガンマ線の和信号であると考えられ、観測された全てのピークをPHITS/DCHAINの計算結果で説明できた。

照射1日後のサンプルでは非常に多数のピークが観測されている。PHITS/DCHAINの計算結果では、1日経過後では ^{206}Bi 、 ^{205}Bi 、 ^{203}Bi 、 ^{204}Bi がガンマ線を放出する主要な核種という評価であり、特に崩壊数の多い ^{206}Bi に関しては、非常に多数の崩壊モードによって様々なエネルギーのガンマ線を放出する。図8に図7中の0-

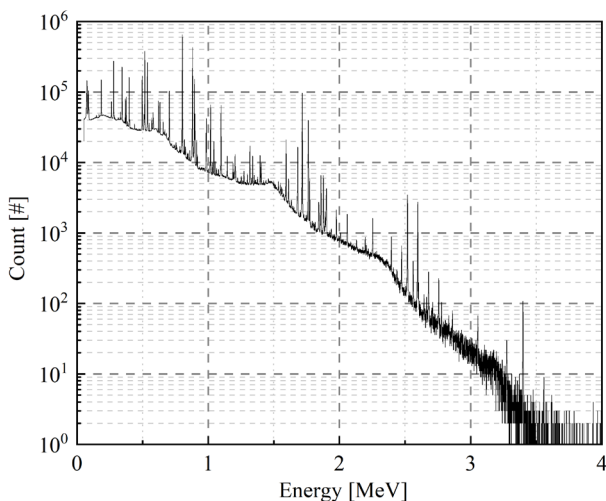


Figure 7: Gamma-ray spectrum of irradiated sample.

Table 2: Residual Nuclides after 1-year Cooling

Nuclides	Photon Dose [uSv*m^2/h]	Radioactivity [Bq]	Half Life
^{207m}Pb	3.3957E-06	1.3681E+00	0.8 s
^{207}Bi	5.9480E-07	1.6286E+00	31.5 y
^{208}Bi	6.9250E-08	2.1617E-02	3.6E5 y
^{210}Po	3.3645E-08	2.4247E+03	138 d
^{206}Bi	4.9570E-10	9.5526E-05	6.24 d

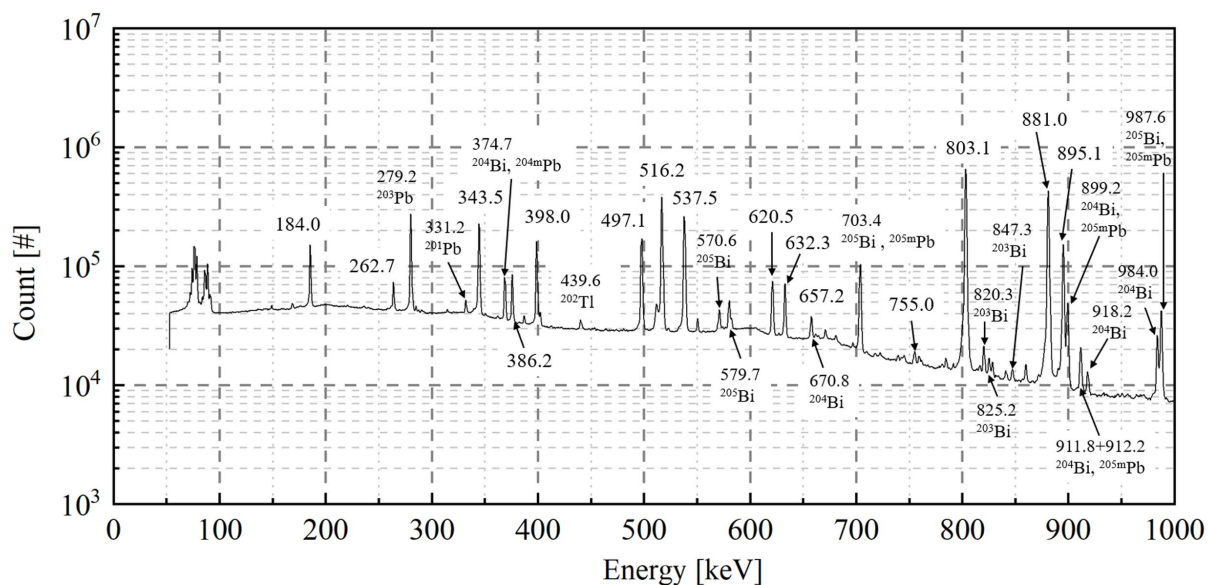


Figure 8: Gamma-ray spectrum of irradiated sample and identified nuclides. In the figure, the peaks with only numbers indicated ^{206}Bi .

1 MeV のエネルギー範囲を拡大した図と、ピークエネルギーから同定された核種を示す。大きなピークについては ^{206}Bi 由来であることが確認できた。また、 ^{206}Bi より小さいものの、 ^{205}Bi 、 ^{203}Bi 、 ^{204}B 、 $^{207\text{m}}\text{Pb}$ といった核種、あるいは生成量はそれらより少ないものの分岐比が 100% に近いもの (^{203}Pb 、 ^{201}Pb 、 ^{202}Tl) などのガンマ線ピークを同定することができた。

PHITS/DCHAIN での生成量の評価と実測を比較するため、同定できたピークのうち、 ^{206}Bi に由来する 803.1 keV (分岐比 99%) と ^{205}Bi に由来する 703.4 keV (分岐比 31%) の面積を求め、分岐比で割った値を比較したところ、 ^{206}Bi : ^{205}Bi の値は 2.52:1 となった。一方、PHITS/DCHAIN で評価した崩壊数の比は 4.49:1 で、およそ 2 倍の違いが出た。この違いについては、① Ge 半導体検出器の検出効率のエネルギー依存性、② 統計数をためるため計算ではサンプル形状を大幅に大きくしたこと、の 2 つが考えられる。① に関しては、今後崩壊数既知の ^{22}Na と ^{60}Co を用いて検出効率曲線を評価する予定である。② については、照射サンプル形状を大きくし、モデルも実際の照射条件に合わせることで改善を試みる予定である。

5. まとめ

RCS の入射ダンプの照射場としての利用可能性を評価する目的で、PHITS、DCHAIN によるシミュレーションと Ge 半導体検出器によるガンマ線測定を用い、 ^{209}Bi の放射化の評価を行った。Ge 半導体検出器による測定結果から、PHITS および DCHAIN の計算は実際の測定結果を定性的に再現することが確認できた。特に、相対的な生成量の比は現時点での粗い評価でもファクター 2 程

度で一致しており、測定系および計算モデルを改良することでさらに改善すると思われる。今後はそれを進めるとともに、崩壊数既知の ^{22}Na と ^{60}Co を用いた検出効率評価の結果を用いて、崩壊数の絶対値についても評価を行う予定である。また、金やアルミなど他のサンプルについても計算及び実測を行い、それらの結果を用いてアンフォールディングを行うことで、スペクトルの評価を目指す。

参考文献

- [1] K. Yamamoto *et al.*, “Design and actual performance of J-PARC 3 GeV rapid cycling synchrotron for high-intensity operation”, *J. Nucl. Sci. Technol.* 59, 9, 2022, pp. 1174-1205. doi:10.1080/00223131.2022.2038301
- [2] H. Harada, “H. Painting-injection study using a virtual accelerator in a high-intensity proton accelerator”, KEK Report No. 2009-7, 2009.
- [3] P. K. Saha *et al.*, “Direct observation of the phase space footprint of a painting injection in the Rapid Cycling Synchrotron at the Japan Proton Accelerator Research Complex”, *Phys. Rev. ST-AB.* 12, 040403, 2009.
- [4] M. Yoshimoto *et al.*, “Progress status in fabrication of HBC stripper foil for 3-GeV RCS at J-PARC in Tokai site”, *Proc. INTDS2018*, EPJ Web of Conferences. 229, 01001, 2020.
- [5] T. Sato *et al.*, “Recent improvements of the Particle and Heavy Ion Transport code System - PHITS version 3.33”, *J. Nucl. Sci. Technol.* 61, 127-135, 2024.
- [6] H. N. Ratliff *et al.*, “Modernization of the DCHAIN-PHITS activation code with new features and updated data libraries”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B*, 484, pp. 29-41, 2020. doi:10.1016/j.nimb.2020.10.005
- [7] <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>