電子加速器を用いた中性子源

木野 幸一，加美山 隆*
(産業技術総合研究所，北海道大学*)

Electron Accelerator Driven Neutron Source

Koichi Kino and Takashi Kamiyama*
AIST and Hokkaido Univ.*

ABSTRACT

Neutron sources driven by electron accelerators have opened up the possibilities of pulsed-neutron beam experiments for material science. Neutrons are generated by a heavy metal-target with the pulsed electron beam. In the target, γ -rays of electromagnetic showers excite nuclei of the metal and fast neutrons are generated through the evaporation process. The fast neutrons are slowed down in a moderator, which is made of ambient water, polyethylene, or solid methane or mesitylene at about 20 K and pulsed thermal or cold neutron beam is extracted. Hokkaido University neutron source (HUNS) is one of the earliest electron accelerator driven neutron sources, that was used to develop various cold and thermal neutron sources and still actively used for material science.

Keywords: *neutron source, electron accelerator, pulsed neutron beam*

1. はじめに

J-PARC に代表される近年の世界の高強度中性子源では、パルス中性子源が多く採用されている。これはパルス中性子ビームの有用性が認められていることの表れである。パルス中性子源としては、陽子加速器による核破砕中性子源が現在主流になっているが、その他に本稿で解説する小型電子加速器を用いたものや、小型陽子加速器を用いたものなどがある。

さて、歴史的に見ると中性子回折に最初に用いられたパルス中性子ビームは、ソ連のパルス炉 IBR-1 を用いたものであり、実験が行われたのは 1960 年代後半のことであった[1]。同時期に電子加速器によるパルス中性子ビームは、米国 Rensselaer Polytechnic Institute (RPI)において既に作られていたが、中性子回折による物質研究ではなく、原子力に関連する研究に用いられていた[1]。RPI のホームページ[2]にリストアップされている最初の論文は、2~100 eV のパルス中性子入射での ^{241}Pu の核分裂反応断面積の測定である。この時代背景の中で木村一治先生らは中性子散乱におけるパルス中性子ビームの将来性を予測し、1969 年に東北大核理研の 300 MeV 電子加速器を使った粉末試料 (Al, Si, ZnO) のパルス中性子回折実験の成果が論文発表された[3]。この発表の 1 年前に RPI において NiO 粉末試料の電子加速器パルス中性子ビ

ームを使った回折データが発表された[4]。しかしながら、RPI から後続のデータは出されなかった[5]。一方で東北大核理研ではその後に“木村スプートニック”の愛称で知られる中性子粉末回折装置や、“トーチカ”の愛称で知られるターゲットステーションへと発展してゆく。これらの成果は、KENS さらには J-PARC へと繋がってゆくことになる。この東北大核理研でのパルス中性子ビームの始まりについては、渡辺昇先生や富吉昇先生の波紋記事[1,5]に詳細に書かれている。未開拓分野への挑戦が現場目線で記述されており大変興味深く、本稿の読者にも一読を勧めたい。また、波紋本号の特集記事「パルス中性子 50 周年記念」も参考にされたい。

以上のように電子加速器による中性子源は、現在花咲いている陽子加速器による核破砕中性子源とその利用の礎となっている。本稿では、電子加速器中性子源の基本原理解説するとともに、建設から 40 年以上経った現在も中性子科学に貢献している電子加速器中性子源である HUNS (Hokkaido University Neutron Source) を紹介する。最後に、現在世界で稼働または調整中の小型電子加速器中性子源についてまとめる。

2. 中性子発生原理

中性子の発生は、電子加速器からの数十～数百 MeV の電子ビームによる高エネルギーガンマ線の生成、そのガンマ線と原子核との光核反応による蒸発中性子の生成という 2 段階を経てなされる。これら 2 段階は、一般に重金属でできた 1 つの電子ビームターゲット内でなされる。高エネルギー電子ビームが物質に照射されると、電磁シャワーが発生する (Fig. 1 参照)。電磁シャワーは、電子、陽電子、ガンマ線が最初の電子の入射方向にシャワーのように発生したものである。最初の電子が制動放射によりガンマ線を生む。このガンマ線は、電子対生成により電子と陽電子の対を生む。電子や陽電子は、制動放射によりガンマ線を生む。このような反応はガンマ線が電子対生成の閾値 (1.02 MeV) を下回るまで続き、電子、陽電子、ガンマ線が急激に増える。制動放射の断面積は原子核の原子番号の 2 乗に比例するので、ガンマ線を効率よく発生させるには、原子番号の大きな物質をターゲットに選ぶことが有効である。

Fig. 1. Electromagnetic shower.

次にガンマ線はターゲット中の原子核と光核反応を起こす。中性子発生に用いる光核反応は、原子核が双極子巨大共鳴状態に励起される現象を利用している。双極子巨大共鳴は、ガンマ線の電場により原子核中の陽子の集団と中性子の集団が双極的に相対振動する現象である。この励起した原子核は直ちに陽子、中性子、ガンマ線などを放出して基底状態に遷移する。遷移時に中性子放出を伴う双極子巨大共鳴の反応断面積を、幾つかの原子核について Fig. 2 に示す。原子番号の大きな原子核ほど断面積が大きくなっていることが分かる。核子数が増えると集団運動が強くなること、原子番号が大きくなるとクーロンポテンシャルも大きくなり陽子やアルファ粒子などの荷電粒子が放出されにくくなり、相対的に中性子放出の割合が増えることに起因している。このように原子番号の大きい物質は、ガンマ線から中性子への変換の点でも優れている。また、双極子巨大共鳴のピークエネルギーは、原子番号が大きくなるほど低くなる傾向にあり、 ^{208}Pb では Fig. 2 のように 13~14 MeV 程度である。

Fig. 2. Cross sections of the dipole giant resonances that emit neutron [6].

Fig. 3 に電子ビームを幾つかの金属に照射したときの単位電子ビームパワーあたりの中性子収量を、電子エネルギーの関数で表したグラフを示す。上に解説した理由により、原子番号の大きい物質ほど収量が多くなっている。ただし、密度の高いタングステンやタンタルでの収量は鉛のそれに比べて大きくなっている。ウラン (U) では、核分裂反応による中性子放出の寄与も加わるため、中性子の収量はより多くなる。また、電子エネルギーが増加するにつれて収量は増えるが、20~30 MeV でほぼ飽和する。これは、Fig. 2 で示した双極子巨大共鳴の反応断面積がピークをもつ形状をしていることに起因する。

Fig. 3. Neutron yield of the photonuclear reaction as a function of the electron energy [7].

励起された原子核は複合核となり、中重核では主に蒸発中性子が放出される。蒸発中性子のエネルギースペクトルは、マクスウェル分布を示す [8]。この分布のピークは 1 MeV 程度であり、中性子散乱による物質研究に使うにはエネルギーが高すぎる。適切なエネルギーの中性子への変換につ

いては、4 節にて HUNS を例に解説する。

また、軽い元素であるベリリウムに低エネルギーガンマ線を照射して中性子を発生する手法も研究されている[9]。ベリリウムの天然同位体は ${}^9\text{Be}$ のみであるが、 ${}^9\text{Be}$ の中性子放出閾値は 1.66 MeV であり、例えば ${}^{208}\text{Pb}$ の 7.37 MeV に比べて大変低い。このため、低エネルギーの電子加速器でも中性子を発生させることができる。ただし、この閾値付近での反応断面積は 1.5 mbarn 程度[10]と小さいためベリリウムの体積を大きくする必要がある。

3. 電子ターゲット

電子ターゲットには、取り扱いが困難な核燃料物質を避け、一般にはタングステン、タンタル、鉛が用いられている。

電子ビームパワーが約 1 kW の HUNS では、固体のタングステンと鉛が用いられており、簡便な経路で冷却水が流されている。

パワーが 5 kW 程度である京都大学原子炉実験所の KURRI-LINAC では、1~5 mm の厚さのタンタル板 12 枚が 1.5 mm 間隔で積層された電子ターゲットが用いられている [11]。タンタル板の間には、冷却水が流されている。タンタルは、冷却水との親和性の点から選択されている。タングステンやタンタルの融点はそれぞれ 3387°C、2996°C と高く、固体ターゲットに向いている。しかしながら、例えば 40 MeV の高エネルギー電子でもタンタル中の飛程は約 8 mm であり大変短い。すなわち電子ターゲットへのエネルギー付与が小さな範囲に集中するため、冷却水が沸騰して冷却効果が下がらないようにするためには、KURRI-LINAC のような工夫が必要になってくる。また、タングステンやタンタルでは放射化に注意を払う必要がある。

ドイツ Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf にある ELBE (Electron Linear accelerator with high Brilliance and low Emittance) では、より高いパワーの電子ビームを用いて中性子を発生させており、1 cm³ あたりのパワー付与は 25 kW にも達する。このため電子ターゲットとして、循環する液体の鉛を用いている[12]。

4. HUNS を例とした熱・冷中性子ビームへの変換と利用

中性子利用上の重要な要素の一つに、電子ターゲットで発生した中性子を適切なエネルギーまで減速させる減速材が挙げられる。物性研究では、波長 0.1~1 nm 程度、エネルギー数 meV~1 eV 程度の中性子を供給することが一つの目安になるため、加速器中性子源でも最初期の頃から減速材の利用とそれに並行した開発が進められてきた。特に小型加速器中性子源では、線源の放射化が少なく、体系の組み替えがハンズオンでできるため、このような開発に最適である。即ち、ターゲットそのものや減速材等、用途に合わせた設計の自由度が高く、放射化の問題も小さいため安価に取り換え

やすい。この利点を活かすことで、北海道大学の小型加速器中性子源 HUNS は加速器線源用中性子減速材開発の拠点として世界的に認められている。HUNS で開発された技術は、加速器用冷中性子源を始めとして、結合型減速材やプリモデレータ、パラ水素モデレータ等々、全ての大型加速器中性子源に活用されるに至っている。減速材そのものについては本講座の第 9, 10 回を参照いただくこととし、ここでは小型加速器中性子源で利用されている減速材体系の実装について HUNS の例を中心に紹介する。

HUNS では以前から、減速材として室温の軽水あるいはポリエチレン (PE) を用いた熱中性子源および、20 K 以下まで冷却した固体メタンあるいはメシチレン (C₉H₁₂, 1,3,5-トリメチルベンゼン) を用いた冷中性子源の 2 種類の減速材を設置している。熱中性子源は手軽なことから、HUNS に限らず加速器中性子源利用の極初期から研究用に用いられている。東北大学の核理研では、初期の Pb から後の W ターゲットまで、その周りを囲むように硼酸水や軽水を入れた円筒を減速材として利用していた[1,13]。HUNS でも熱減速材として、縦 10 cm×横 10 cm×奥行 5 cm 程度の Al 製の容器に軽水を入れ、熱中性子ビームライン (BL) 上に設置していた。小型加速器中性子源のように BL の本数が限られている場合には、BL で最適な中性子強度や分解能が得られるように減速材形状や位置をある一つの装置に最適化することが可能である。減速材の設置に際しては、中性子検出器から減速材周囲や背後の反射体が見えないように配置することにも気を付けなければならない。軽水減速材は液体で取り扱いが面倒なため、現在 HUNS では固体である PE が利用されている。しかしながら、これもターゲットの直近で強い放射線を浴びて茶色への変色が進むため、適当な時期に新しいものに交換を行っている。

一方の加速器冷中性子源に関しては、HUNS で始められた研究が嚆矢である。最初は加速器線源の高い瞬間強度の中性子を冷やして大量の超冷中性子を作ることが一つの目的であったようで、HUNS の冷中性子源の前に、京大原子炉実験所の KURRI-LINAC と協力してそこに冷凍機を持ち込んだ実験が報告されている [14,15]。これと並行して HUNS の冷中性子源設置も進められており、1973 年から試験が始まっている [16]。この後、減速材物質には水素密度が高く中性子特性が最も良いとされるメタンが選択された [17]。メタンは融点 91 K、沸点 112 K の可燃性ガスで、空気に対する爆発限界が 5~15 % とされる。HUNS ではその減速材容器を、熱中性子源と同じ縦 10 cm×横 10 cm×奥行 5 cm 程度となるように厚い Al 板で製作していた。Fig. 4 (a)に、HUNS のメタン冷中性子源の模式図を示す。冷凍機に接続された真空断熱槽内の減速材容器は、バッファタンクを持つ配管系と直に接続されている。バッファタンクの容量は、減速材内の凝集メタンがすべて気化した時に全体

として1気圧を超えないものを選択すればよい。メタンガスは、真空排気系とガス供給系を兼ねるラインで全体を真空中に排気した後、1気圧以下でこの系統に導入される。この状態で減速材容器を冷却すると、メタンの液化温度以下になった減速材容器内でガスが凝集し容器内に溜まって最終的に固化する。実験終了後冷凍機を停止すれば、配管から流入する熱で自然にメタンが気体に戻り、バッファタンクを含む配管系内で元の1気圧以下の状態で安定する。実験毎に冷凍と気化を繰り返すことが可能で、ガスが高圧にならないという利点がある。このように洗練されたシステムであるが、運用上最も危険性が高いのは、固化したメタンによる減速材容器のガス導入孔の閉塞である。閉塞されたまま気化する温度になるとメタン容器の内圧が高くなり、その変形、破壊につながりかねない。このため、導入孔付近の配管にヒーターを設置し、メタンが凝固しないようにする必要がある。また、減速材容器はターゲット近傍に置かれるので、メタンの放射線損傷により生成した単体のH、CH₃などが固体メタン中で移動できずそのまま蓄積する。固体メタンの場合、KENS級の大線源になるとバンプと呼ばれるガスの急激な温度・圧力上昇を伴う再結合現象となって現れることがある。このため、これを防ぐために定期的に再結合が起きる温度まで上昇させたり、ガス化する必要があるが、小型線源ではそこまでの損傷の蓄積はないとされる[18]。しかし、ガスの劣化は蓄積していくので、必要に応じてガスの入れ替

えを行うことになる。なお、上記の通り、このような体系ではメタンガスの圧力が1気圧を超えないが、ガスを液化する時点で高圧ガス保安法の対象となる。

メタンの利用は冷中性子源強度を確保する観点からは望ましいが、可燃性ガスであり、爆発限界範囲内の酸素が共存する場合には爆発する可能性があることから運用に細心の注意を払う必要がある。そのため人数の限られる小規模施設ではやはりなかなか導入が難しい。HUNSでは初期に導入したメタン用冷凍機の故障に伴い、2015年から一時的にメタンの利用を保留し、メシチレンを減速材物質とした冷中性子源を運用している。メシチレンは融点228 K、沸点438 Kと常温で液体の物質であり、可燃性ではあるが爆発するようなことはなく、放射線損傷にも強いといわれている物質である[19]。液体なので減速材容器に流し込みそのまま冷却することで、20 K以下の冷中性子源として利用することが可能である。Fig. 4 (b)にこの模式図を示したが、メタン減速材体系から気体関連部を除いたシステムとなり、シンプルで安全面からも扱いやすいため運用面では利点があると考えられる。ただし、Maxwell分布の特性エネルギーがメタンよりも1.5倍程度高く、また配置によるが中性子強度も20 Kメタンの1/3程度となってしまう。

また、冷中性子源では、減速材の温度の安定性や減速の効率化を図るため、冷減速材周囲にプリモデレータと呼ばれる前置減速材を置く場合がある[20]。HUNSでは、これを厚さ1 cm前後の軽水又はPEとし、ビーム取り出し口を除いた冷減速材周りの真空槽に貼り付けている。

5. 世界の小型電子加速器中性子源

稼働中または開発中の世界の小型電子加速器中性子源をTable 1に示す。多くの中性子源は、パルス中性子の飛行時間法を利用して、核データの一つである、中性子と原子核の反応断面積を測定するのに用いられている。

例えばGELINAでは、10 mから最長400 mの各種飛行距離で測定ができるようになっており、高いエネルギー分解能での核データ測定を可能にしている。一方nELBEは、飛行距離は3.9 mと短い。しかし、パルス幅の短い電子ビームを幅の短い電子ターゲットに照射してパルス中性子を発生させ、減速材を使わずにそのまま用いる事により、4.5 MeV以下において1%以下のエネルギー分解能を得ている[12]。核データ測定以外の利用は、特にHUNS、KURRI-LINAC、Bariloche Linacにて活発になされている。HUNSでは、中性子源や中性子検出器開発の他、近年、パルス中性子透過イメージングや小角散乱を用いての材料研究が盛んである。KURRI-LINACでは、核データ測定の他に、近年では核物質を対象としたパルス中性子分析の研究も行われている。Bariloche Linacでは、パルス中性子透過法による物質の全断面積測定が

Fig. 4. Schematic diagrams of cold neutron source systems. (a) Methane moderator system. (b) Mesitylene moderator system.

行われている。また、中性子源の研究にも盛んに利用されている。

Table 1. Compact electron-accelerator driven neutron-sources in the world [21].

名称	国名
HUNS the Hokkaido University Neutron Source	日本
KURRI-LINAC Kyoto University Research Reactor Institute, Electron Linear Accelerator	日本
UTCANS University of Tokyo	日本
Gaerttner linear accelerator at Rensselaer Polytechnic Institute	アメリカ
GELINA Geel Electron Linear Accelerator Facility	ベルギー
nELBE Time-of-flight facility at the Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR)	ドイツ
n@BTF The Frascati electron-driven source	イタリア
Bariloche Linac	アルゼンチン

6. 最後に

以上のように、電子加速器を用いた中性子源はパルス中性子ビームの発生と利用の発展に貢献し、現在も世界で利用されている。今後も、電子加速器で得られる電子ビームの特性を生かした中性子ビーム生成に役立てられるものと期待される。

参考文献

- [1] 渡辺昇, 波紋 **10**, 30 (2000).
- [2] http://www.linac.rpi.edu/public_html/publications.html#Journal
- [3] M. Kimura, *et al.*, Nucl. Instr. Methods **71**, 102 (1969).
- [4] M. J. Moore, J. S. Kasper, Nature **219**, 848 (1968).
- [5] 富吉昇一, 波紋 **10**, 36 (2000).
- [6] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR), <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>
- [7] W. P. Swanson, Health Physics **35**, 353 (1978).
- [8] 八木浩輔, 原子核物理学(基礎物理科学シリーズ 4)(朝倉書店, 東京, 1971), 第9章 p270.
- [9] L. Auditore, *et al.*, Nucl. Instr. Methods, Phys. Res. B **229**, 137 (2005).
- [10] C. W. Arnold, *et al.*, Phys. Rev. C **85**, 044605 (2012).
- [11] K. Kobayashi, *et al.*, Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ. **22**, 142 (1989).
- [12] E. Altstadt, *et al.*, Annals Nuclear Energy **34**, 36 (2007).
- [13] 石川 義和, 日本原子力学会誌 **18**, 401 (1976).

- [14] 井上和彦, 北海道大學工学部研究報告 = Bulletin of the Faculty of Engineering, Hokkaido University **55**, 49 (1970).
- [15] 井上和彦ら, 北海道大學工学部研究報告 = Bulletin of the Faculty of Engineering, Hokkaido University **63**, 91 (1972).
- [16] 井上和彦ら, 北海道大學工学部研究報告 = Bulletin of the Faculty of Engineering, Hokkaido University **66**, 75 (1973).
- [17] 井上 和彦, 渡辺 昇, 日本原子力学会誌 **18**, 129 (1976).
- [18] 渡辺 昇, 核破砕中性子源工学概論, JAERI-Review 2000-031 (2001).
- [19] K. Nunighof, *et al.*, Eur. Phys. J. A **38**, 115 (2008).
- [20] Y. Kiyanagi, N. Watanabe and H. Iwasa, Nucl. Instr. Methods, Phys. Res. A **312**, 561 (1992).
- [21] I.S. Anderson, *et al.*, Physics Reports **654**, 1 (2016).