

チタン合金製陽子加速器ビーム窓の脆化原因を解明 ～RaDIATE 国際コラボレーションによる加速器標的・ビーム窓材料の開発～

石田 卓*^{1,2}
Ishida Taku

若井 栄一*^{1,3}
Wakai Eiichi

1. はじめに

茨城県東海村の J-PARC センターや米国イリノイ州のフェルミ国立加速器研究所 (FNAL) をはじめとする大強度陽子加速器施設では、光速近くまで加速した陽子ビームを標的に照射し、発生するニュートリノ・ミューオン・ハドロン・中性子等の二次粒子を利用した素粒子原子核物理学や物質生命科学の実験が進められている。2020 年、J-PARC で生成したニュートリノを 295 km 離れた検出器スーパーカミオカンデで測定した結果、粒子と反粒子の対称性 (CP 対称性) の大きな破れを示す兆候があると報告された。宇宙が誕生した時、どうして物質が反物質より多く存在するようになったのかという、根源的な謎の解明につながる発見である。ニュートリノの観測数を大幅に増やしてこれを立証するために、スーパーカミオカンデの 8 倍の有効体積を持つハイパーカミオカンデの建設が進んでいる¹⁾。米国でも FNAL から 1,300 km 離れたサウスダコタ州でニュートリノを検出する Deep Underground Neutrino Experiment (DUNE) プロジェクトが進行中である。2027 年頃始まるこれらの実験に向けて、ニュートリノを生み出す陽子加速器を現状の 2~3 倍に大強度化する必要がある。

2. 加速器ビーム窓と照射損傷

ニュートリノ等の二次粒子を生み出す標的は多くの場合、ヘリウムや窒素等のガスで満たされた標的ステーションの中に設置され、加速器真空と標的ス

テーションは「ビーム窓」と呼ばれる金属の薄板により仕切られる (図 1)。ビーム窓をパルス状の陽子ビームが通過するたび、エネルギー損失から材料の温度が瞬間的に上昇し、熱衝撃が発生する。エネルギー損失は通過する材料の密度と厚さに比例するので、ビーム窓の材料は、密度が小さく、薄くても高い強度があり、熱衝撃の繰返しに耐えるため十分伸びて柔らかい、すなわち延性を持つ必要がある。J-PARC ニュートリノ施設のビーム窓には、チタン

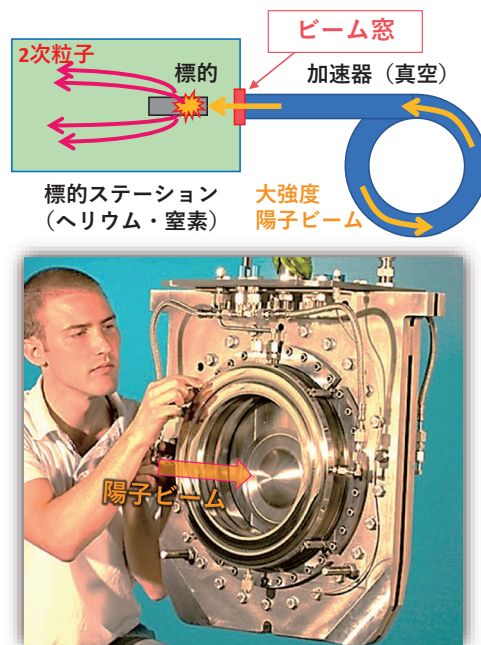


図 1 加速器ビーム窓の概念図 (上) と J-PARC ニュートリノ施設のビーム窓 (提供: 英 STFC) (下)

厚さ 0.3 mm のドーム状に加工された 2 枚の高強度 64 チタン合金の隙間にヘリウムガスを流しビームによる熱を冷却する。遠隔着脱のため圧力で伸縮する特殊なフランジに囲まれている

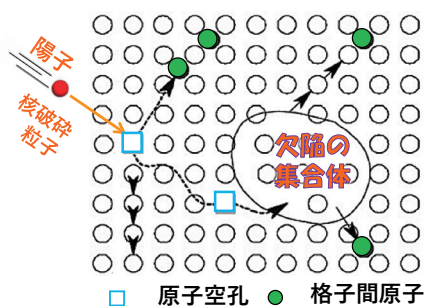


図2 金属材料中の照射損傷の概念図

合金が用いられている。

標的やビーム窓に用いられた材料が陽子ビームを受けると、材料中では原子レベルでのダメージ「照射損傷」が起こり、原子や原子の塊が結晶格子のものと位置から蹴り出される(図2)。入射粒子との衝突によって、原子1つ当たり正規の格子点位置から弾き出された回数の平均を「原子当たりの弾き出し数」(Displacements Per Atom: dpa)で表す。チタン合金製ビーム窓での損傷量は年間に数dpaに及ぶ、つまり、材料を構成する原子のすべてが平均して数回はじき出されると評価されている。この照射損傷により機械特性が著しく劣化することが、加速器の大強度化を阻む深刻な問題となっている。

3. RaDIATEによる大強度陽子ビーム照射試験

大強度陽子ビームが標的やビーム窓材料に与える照射損傷の影響の正確な評価と、より強い照射損傷や熱衝撃に耐える材料の開発は、世界の先端加速器施設にとって共通の重要課題であり、その解決には原子炉・核融合炉材料工学の知識が欠かせない。標的ビーム窓材料の試験片に大強度陽子ビームを照射できる機会は限定的で、放射化試料を扱うマニピュレータを備えたホットセル設備も必要である。このため国際コラボレーション Radiation Damage In Accelerator Target Environments (RaDIATE) が設立され、日米欧の加速器と原子力分野、13機関の研究者と技術者が分野横断的な連携研究を行っている。高エネルギー加速器研究機構(KEK)と日本原子力研究開発機構(JAEA)が共同で運営するJ-PARCセンターは、その活動に大きく貢献してきた²⁾。

2017~2018年、米国ブルックヘブン国立研究所の陽子線形加速器を用いた医療用アイソトープ生成

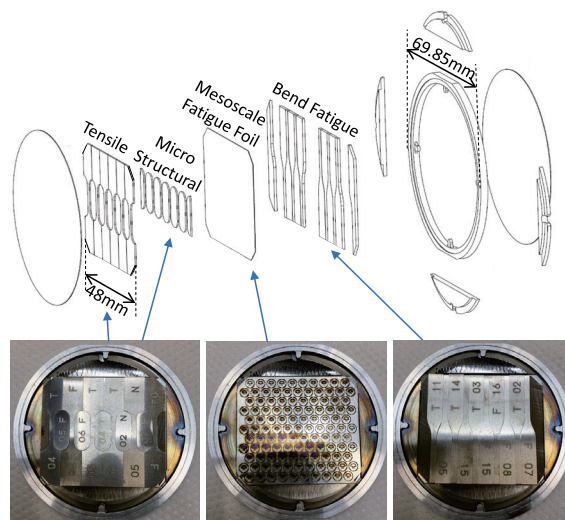


図3 チタン合金カプセル

直径約70mmステンレス容器の中に、引張試験と電子顕微鏡観察用試験片(左)微小疲労試験片を加工したフォイル(中)曲げ疲労試験片(右)が組み込まれた

施設 Brookhaven Linac Isotope Producer (BLIP) で、RaDIATEによる大強度陽子ビーム照射試験を実施した³⁾。ベリリウム・グラファイト・アルミ合金・チタン合金等、各加速器機関で利用中か利用を計画する標的・ビーム窓・コリメータ・ビームダンプ材料試験片をカプセルに組み込み(図3)、アイソトープ生成標的の上流に設置、運動エネルギー180 MeV・ビームカレント165 μ Aの大強度陽子ビームを8週間照射した。チタン合金については、最大0.95 dpaの照射を受けた試験片が得られた⁴⁾。カプセルは冷却期間の後、米国ワシントン州の原子力総合研究機関パシフィックノースウエスト国立研究所(PNNL)に輸送され、ホットセル内での引張試験や、電子顕微鏡観察等の照射後材料試験を実施した。

4. 64チタン合金が照射脆化する原因を解明

J-PARCニュートリノ施設では64チタン合金(Ti-6Al-4V、チタンに6wt%のAlと4wt%のVを加えたもの、以下Ti-64)をビーム窓に用いている。純チタンは885℃まで加熱すると、固体のまま結晶が低温側の構造(α 相:六方最密晶)から高温側の構造(β 相:体心立方晶)に変態するが、AlとVにはそれぞれ α 相と β 相を安定化させる性質がある。Ti-64は α 相と β 相を混在させ機械特性を高めた「 α + β 相型」と呼ばれる高強度チタン合金の代表で

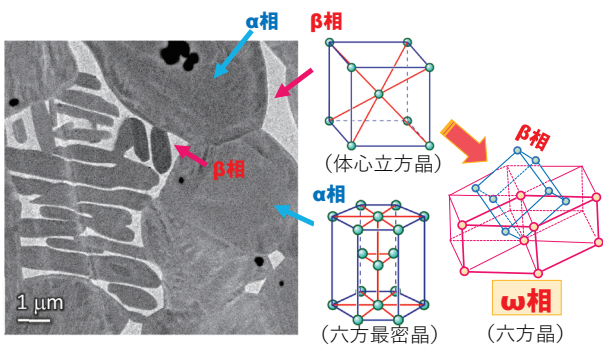


図4 Ti-64の電子顕微鏡観察画像

α 相の結晶とは異なる構造の β 相が混在している。後述する ω 相は β 相の結晶中に β 相と特定の配位関係を持った異なる結晶構造が微細に析出したもの

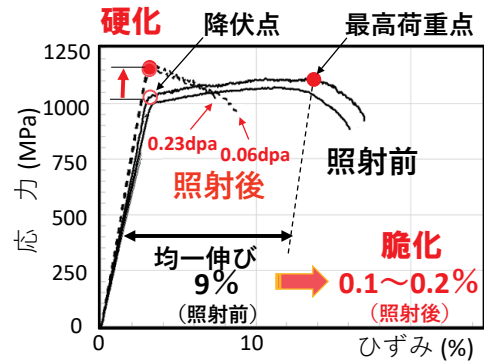


図5 Ti-64の照射前(実線)後(破線)の応力ひずみ線図

照射後には均一伸びをほぼ失ってしまう(降伏点を超えた直後にグラフが下降してしまう)

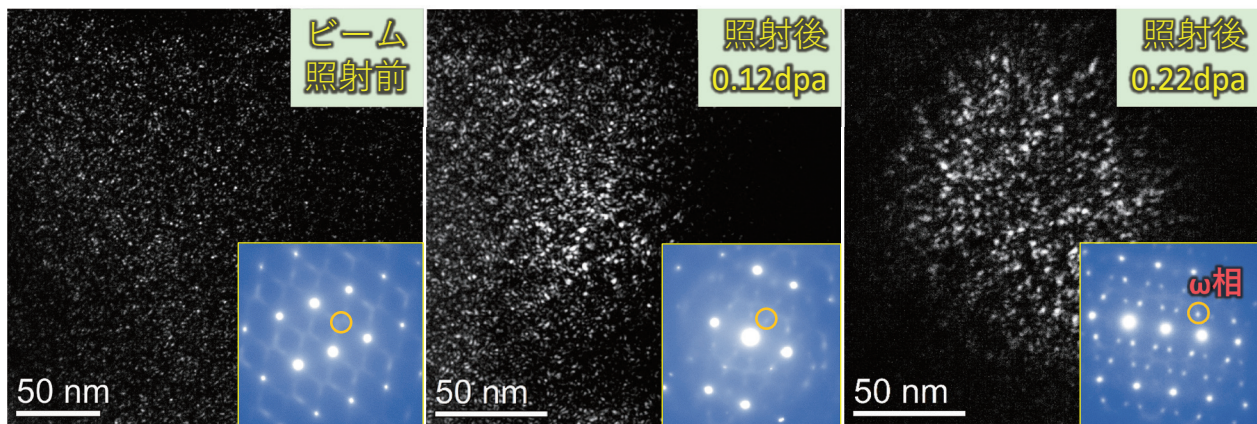


図6 Ti-64合金の β 相の透過型電子顕微鏡観察画像

各画面右上に示す回折画像では、 β 母相に相当するスポットの間の散漫散乱がビーム照射量の増加にともなって弱くなり、代わりに明確なスポットが新たに形成される。そのひとつ(○で示す)を選び出した透過像には、高密度に分布する ω 相の析出が成長していく様子が見てとれる

ある(図4)。

図5にBLIPで照射したTi-64の照射前後の引張試験結果の比較を示す。初め材料は加えた応力に比例してひずんだ後、未照射材では降伏応力を超えると塑性変形が始まり、グラフは曲線を描く。曲線が上昇している領域では材料が均一に伸びており、最高荷重点までの伸びを「均一伸び」と呼ぶ。薄いビーム窓の破壊に直結する亀裂の発生や進展を抑止するためには、十分な均一伸びを有することが重要である。通常、照射によって材料内に形成される照射損傷により材料は硬くなり、降伏応力は上昇するが、均一伸びは小さくなり、材料はもろくなる。これを「照射硬化・脆化」と呼ぶ。Ti-64は、図に示すとおりわずか0.06 dpaの照射量で硬化し、均一伸びをほぼ失い脆化する。他方、同じ $\alpha + \beta$ 相型合金でも、 β 相の割合が少ないTi-3Al-2.5Vは、3倍の照射を受けても、数%の均一伸びを保つことが分かった。

照射を受けたTi-64を、透過型電子顕微鏡(TEM)で調査したところ、主要な α 相の結晶に、原子欠陥のループからなる欠陥クラスターが高密度で観測されただけでなく、その β 相の中に、「 ω 相」と呼ばれる母相と特定の配位関係をもつ六方晶(図4)がビーム照射量の増加に伴い析出する過程が、初めて鮮明に捉えられた(図6)。 ω 相は通常、材料の製造過程で誤って低温で熱処理をすると β 相中に生成して、延性を著しく損なわせることが知られている。陽子ビーム照射によって ω 相の析出が誘起され、材料を著しく脆化させた可能性が考えられる⁵⁾。

5. β チタン合金による耐照射損傷性能の向上

チタン合金は、その結晶構造から大きく α 相型・ $\alpha + \beta$ 相型・ β 相型の3種類に分類される。原子力分野では、酸化雰囲気への高い耐食性を有するため、

純チタンが原子炉の復水器に使用されるが、広く流通するチタン合金である Ti-64 は照射脆化のため、高線量場での使用が制限されてきた。核融合分野でも、チタン合金は燃料となる水素同位体を吸蔵するため、照射損傷の研究はこれまで十分進んでいなかった。加速器ビーム窓としても、Ti-64 以外のチタン合金には注意を払ってこなかった。

ところが筆者らが J-PARC ニュートリノ施設でビームモニタに利用された β チタン合金 Ti-15-3 (Ti-15V-3Cr-3Sn-3Al) の薄膜を解析したところ、0.1 dpa の損傷に対して、照射前後で硬さが変化せず、電子顕微鏡で欠陥クラスターが観察されないことを発見した⁶⁾。 α 相の結晶粒界に β 相が分布する $\alpha + \beta$ 相型の Ti-64 に対して、 β チタン合金は、 β 相を安定させる V 等の元素を多量に溶かした状態で急冷して高温相である β 相単相の状態を準安定に保ち、その後の熱処理で極微細な α 相を母相内に高密度で析出させて高強度化したものである。この高密度な析出相と β 母相の界面や、析出相内の格子の乱れ等が、照射損傷による原子レベルの欠陥を効率良く吸収したため、照射損傷が大きく抑制された結果と考えられる。原子力材料分野では、「逃げ場 (sink site)」として知られた効果であり、今回 β チタン合金のナノサイズの析出相に、その効果が強く期待されることが分かった。

チタン合金規格や組織の違いが耐照射損傷性能へ与える影響を更に詳細に調査するため、東京大学の重イオン照射施設 (HIT) で試験を行っている。エネルギー数 MeV のイオンビームは陽子ビームとは異なり、照射損傷を与える領域が試料表面近傍 1~数 μm 深さに集中するため、半日程度で大強度陽子ビームの数分分に相当する照射損傷を与えられる上、試料が放射化しない利点がある。Ti-64 や Ti-15-3 等の試験片にイオンビームで局所的に 10 dpa の照射損傷を付加し、微小押し込み試験器 (ナノインデント) で計測したところ、Ti-15-3 は、大変優れた耐照射特性を有することが確認された⁷⁾。これは大強度陽子加速器の 5 年以上もの運転期間に相当する損傷量である。

β チタン合金は、強度を上げるために施す熱処理の温度、時間や回数で析出組織が変化するため、機械特性は大きく影響を受ける。照射損傷の欠陥を吸収する逃げ場強度を高めるには、より高密度な析出

を促す熱処理が望ましいが、あまり高密度化すると延性が低下する。今後、相状態の解析等に基づいて析出相をナノサイズで制御し、耐照射損傷性と機械特性を最適化した熱処理方法を確立する。また航空宇宙用途に開発された、各種のチタン合金材料の耐照射損傷性についても調査及び材料改質を実施して、選定した候補材を 2023~2024 年頃の次期 RaDIATE 陽子ビーム照射試験に提供、次世代加速器ビーム窓材料としての耐用性能を検証する予定である。

6. まとめ

Ti-64 が陽子ビーム照射によって顕著に硬化・脆化する原因は、 α 相の結晶に微細な欠陥クラスターが高密度で生成すると共に、 α 相の粒界に存在する β 相の中に、脆化の原因となる ω 相が生成し、成長していくためであることが明らかとなった。他方 β チタン合金は、材料を強化する微細な析出相が欠陥を吸収する逃げ場としても効率的に働くため、陽子加速器の大強度運転にも耐えうるビーム窓材料の有力な候補であることが明らかとなった。

チタン合金はミシガン州立大の稀イオンビーム施設 (FRIB) や国際リニアコライダー (ILC) のビームダンプに採用予定であり、他施設ビーム窓の高性能化にも適用できる。原子炉の水・水蒸気・ガス配管、宇宙科学の探査機向け材料、核融合炉の酸化雰囲気用構造材料等、広く他分野に波及効果があると期待される。

本研究は、日米科学技術協力事業 (高エネルギー物理学分野) および科研費 (21H04480・21H04668) の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) 石田卓, *CROSS T&T*, **65-66**, 24-28 (2020)
- 2) 牧村俊助, 石田卓, *高エネルギーニュース*, **36-3**, 109-117 (2017)
- 3) Ammigan, K., *et al.*, *Proc. IPAC2017*, WEPVA138.
- 4) Ishida, T., *et al.*, *JPS Conf. Proc.*, **28**, 041001 (2020)
- 5) Ishida, T., *et al.*, *J. Nucl. Mat.*, **541**, 152413 (2020)
- 6) Ishida, T., *et al.*, *Nucl. Mat. En.*, **15**, 169-174 (2018)
- 7) Kano, S., *et al.*, *To be published* (2021)

(*1 J-PARC センター, *2 高エネルギー加速器研究機構 (KEK), *3 日本原子力研究開発機構 (JAEA))