

■研究紹介

メガワット大強度陽子ビーム運転に向けた二次粒子生成標的・ビーム窓開発の現状と動向

KEK 物質構造科学研究所

牧村 俊助

shunsuke.makimura@kek.jp

KEK 素粒子原子核研究所

石田 卓

taku.ishida@kek.jp

2017年11月9日

1 はじめに

素粒子物理においては従来の加速器では達成できなかった稀有な現象の発見のため、物質生命科学においては高压物性や過渡現象の解明などのために、より大強度な高エネルギー陽子加速器が求められている。例えば、長基線ニュートリノ振動実験で CP 対称性の破れの観測を実現するためには 1 MW から数 MW が必要とされ、欧州核破砕中性子源 (ESS) では 5 MW を目指し建設が進んでいる。加速器の大強度化と呼応して、加速されたビームを輸送する一次ビームライン、およびビームを受け入れ、物理観測に供する二次粒子を生成する二次ビームラインを増強し、運転における裕度を十分確保することが併せて求められる。そこで大きな問題となるのが、標的やビーム窓といったビームの直撃を受ける機器の耐用性能評価であり、特に用いられる材料の耐放射線損傷性能については、核融合炉用材料並みに、あるいはそれを遥かに凌駕する機能まで求められ、原子力材料工学の知識が欠かせない状況となっている。大強度陽子ビームによる損傷では、熱衝撃による繰返し疲労が発生する・核反応により生成された水素・ヘリウムが吸蔵され材質劣化を引き起こすなど、原子炉材料開発のために研究されてきた低エネルギー中性子によるそれとは違いがあり、独自の調査研究が必要である。本稿では、主に著者らが開発に参画する J-PARC のミュオン施設やニュートリノ施設などを例に、早い取り出しに対応した固体標的・ビーム窓の現状と技術的課題、および将来展望について解説する。

1.1 高エネルギー陽子加速器における標的

一般に、高いエネルギーに加速された陽子ビームを一次ビームライン上で標的材料に衝突させることによって二次粒子は生成される。生成された二次粒子は二次ビームラインによって実験エリアに輸送され、目的の実験に利用される。陽子ビーム照射によって、標的材料上では目的とする二次粒子だけではなく、熱が発生すると同時に様々な放射線が発生する。熱は標的の温度を上昇させ、パルスビームにおいては熱衝撃を標的材料に与える。更に、標的材料や周辺機器の放射化を招き、保守作業を困難にすると同時に、標的材料に損傷を与え、熱特性や機械特性を劣化させるという放射線に起因する問題を引き起こす。



図1 J-PARC MLF 中性子水銀標的。ステンレス多重容器内を水銀、ヘリウム、冷却水が流れる。

このように、大強度陽子加速器において標的が抱える技術的な課題の多くは、これら熱と放射線とに起因している。

1.1.1 J-PARCにおける二次粒子生成標的

1 MW (RCS) / 1.3 MW (MR) を目標とする J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) においても、多種多様な二次粒子を利用した物理実験が展開されている。J-PARC は、その名前に含まれる「Complex」が示すように、多目的施設として中性子水銀標的、ミュオン黒鉛標的、ハドロン金標的、ニュートリノ黒鉛標的、COMET 標的(建設中)、ADS 鉛ビスマス標的(建設中)と多くの標的を有する。物理実験の観点から目標とする二次粒子の生成断面積が最大になるように、陽子ビームエネルギーと標的材を選ぶことは大前提であるが、加速器の実現可能なビーム強度、標的エンジニアリングや二次粒子輸送効率など様々な観点から標的は製作される。おおざっぱに言えば、陽子ビームのエネルギーが低い方が、また標的材料の密度が高い方が、標的上の発熱密度は大きくなり、より効率的な冷却が要求され、標的材にも耐熱、機械強度、耐熱衝撃性が要求される。一方で単位体積当たりの二次粒子発生量は増え、二次粒子発生源の空間的広がりを抑制できるため、二次粒子の実験エリアへの輸送効率は上がる。ただし、生成された二次粒子が標的材中から離脱する確率も考えると、標的材の密度が高ければ必ずしも二次粒子の強度が上がるわけではない。標的設計には、その材質や大きさだけでなく、標的で発生した二次粒子のエネルギーや輸送方式も影響を与える。例えば J-PARC

MLF の核破砕中性子源標的の場合、中性子の強度を高めるためには高密度な材料が望ましいが、同時に高い発熱密度を引き起こす。それを分散するために液体金属である水銀を標的材として選定している。流動する水銀上で生成された広いエネルギー幅の中性子は、上下に配置された反射材と三種類の減速材で減速し高強度化される。中性子を輸送する二次ビームラインは減速材を直視しているため、水銀を格納する標的容器の形状には水平方向の制限は少なくなり、水銀の水平方向の流路を確保できる。(図 1)。後述する J-PARC ミュオン黒鉛標的等で採用される固体回転標的方式も、発熱密度や放射線損傷を分散させることが出来るが、標的材を静止させたままで運転する固定標的方式と比較すれば、標的自体は大型化することになる。他方、ニュートリノ黒鉛標的はヘリウム冷却用のチタン合金製の鞘の中に格納されているが、生成された荷電パイオン(ニュートリノの親)を 295 km 先のスーパーカミオカンデの方向に収束するため、電磁ホーンの中に、交換可能なように片持ちで設置される。そのため標的の形状はホーンのそれによって制限され、冷却経路も制約を受ける(図 2)。このように、J-PARC の標的はそれぞれの目的と用途に応じた要求を満たすように設計されている。

1.1.2 ミュオン・パイオン生成標的の等方性黒鉛材料

ミュオン・パイオン生成においては、標的材の密度が高くても、標的材中でミュオン・パイオンが生成された後に標的材から出てくる粒子数という観点からは期待するほど得をしない。そのため、軽元素標的材料である等方性黒鉛(グラファイト)が多く使用されている。黒鉛はよく知られるように異方性の高い材料であり、照射を受けた際の寸法変化も異方性を示すため、標的材料には微小な黒鉛粉末を焼結した等方性黒鉛が用いられる。等方性黒鉛は高い耐熱性を示し、酸素の存在しない真空中では 1500 °C を超える温度でも使用可能である。密度が小さいためにビーム強度あたりの発熱密度は小さく、同時にヤング率や熱膨張係数も小さいため、耐熱衝撃に関しては比類なき性能を示す。等方性黒鉛は原子炉の減速材として使用されるため、中性子照射が物性値に与える影響は研究用照射炉において過去に幅広く調査されてきた[1]。特に IG-110 (東洋炭素[2]) に関しては、多くの物性値が温度依存性を含めて系統的に得られており、標的の設計に役立てることが出来る。照射時の物性値の変化は照射温度に大きく依存する。等方性黒鉛の熱伝導率は、非照射時は金属に相当するほど高いが (130 W/m/K)、照射によって大きく低下する (10 W/m/K 以下)。ただし、照射時の温度が高ければ、劣化は抑制されることもわかっている (20~30 W/m/K 程度)。また、照射に伴い、体積(寸法)も変化する。多結晶である等方性黒鉛においては、異方性を持つ黒鉛結晶の異方的な寸法変化とポイドの収縮は、それぞれが照射温度に依存するため、寸法変化率は照射温度に伴い複雑な挙動を示す。陽子加速器標的での使用範囲では 800 °C あたりで使用す



図 2 J-PARC ニュートリノ標的。チタン合金製の鞘の中に等方性黒鉛が格納される。

ると照射による影響を抑制することが出来る。このためニュートリノ黒鉛標的では、ビーム強度が低い時には意図的にヘリウム流量を抑制する事により標的材の照射温度を高めている[3]。黒鉛自体の照射による残留放射性核種は ^3H (トリチウム) と ^7Be であり、通常は周辺のステンレス等で構成される機器からの残留線量の方が大きく支配的である。黒鉛は水素吸蔵材料であるため、室温ではトリチウムは黒鉛中に吸蔵されるが、温度上昇と共に標的材料から放出されるため注意が必要である。

1.2 高エネルギー陽子加速器のビーム窓材料

加速器真空と標的ステーション間の隔壁であり、入射ビームが貫通するビーム窓の設計条件は、標的のそれとは異なる。ビーム窓では、熱衝撃の元となるビームロスを極力減らしたいため、密度は小さく、薄い方が好ましい。一方で、標的周辺の環境(通常はヘリウムや冷却水)と真空の圧力差に耐えねばならないため強度も要求される。すなわち材料の密度当たりの強度である比強度が高い事が望まれる。真空と冷媒間の気密性が必要であるが、冷媒側は冷却されるため標的材料ほどの耐熱性は要求されない。以上の条件を満たす代表的な材料として、ベリリウムとチタン合金があげられるであろう。ベリリウムは原子量 9.0 の軽元素材料であり、常温常圧で稠密六方晶 (HCP) を持つ。密度がグラファイト並み (1.85 g/cm³) に小さいことから、X線源の透過窓としても用いられる。融点が比較的高く (1287 °C)、熱伝導率が大きい (216 W/m/K)。線膨張率 (11.3 $\mu\text{m}/\text{m}/\text{K}$) は他構造材との相性がよく、引張強度は 370 MPa (破断伸び 3%) で、常温では脆いが高温で延性を示す。ベリリウムは核融合炉のブランケットの中性子増幅器として、耐放射線性能などの研究が進んできた。他方、人体の細胞組織に対し毒性があり、粉塵を吸引すると致死性の慢性疾患を引き起こす。このため工業的な利用は限定的であり、加工メーカが世界に数社しかない等、その入手性・加工性に やや困難が伴う。

チタン合金材料は、主にその機械的特性の改良のため、純チタンに様々な合金元素を添加して得られる。航空機材料として密度が高くならない範囲での高強度化や、ジェットエンジンの

タービン等への用途のため、高温での強度低下が小さい材料の開発を目的として、主に米国で開発が行われてきた。1954年に実用化された64チタンTi-6Al-4Vは、最も一般的で広く使われる、従って入手性の良いチタン合金材であって、常温常圧でHCP (α 相)と体心立方晶BCC (β 相)を併せ持つ α - β 合金である。その特徴は、密度が比較的小さく(4.54 g/cm³), 線膨張係数も小さい(8.8 ppm/K)。一方で、引張強度が大変高く(1 GPa), 300℃まで強度があり、疲労強度にも優れるなど、多くの望ましい特徴を持っている。このためJ-PARCニュートリノ施設・ハドロン施設のビーム窓に用いられており、FNALのLong-Baseline Neutrino Facility (LBNF)の標的外鞘容器として利用が検討されている。ただし、チタン合金全般の放射線損傷に関するデータは非常に限られており、機能材料として受け入れ可能なビーム強度や寿命の評価が困難である。

また一般に、二次粒子としてエネルギーの低い(4 MeV)表面ミュオンを利用するミュオン標的では、窓による減衰が大きいため金属性のビーム窓を使うことを避け、標的を加速器と同じ真空中に設置する場合が多い。また、陽子ビームラインと二次粒子輸送ビームラインの隔壁にはポリイミド製の窓が採用されるが、この窓を陽子ビームは通過せず、二次粒子のみが通過する。

2 標的とビーム窓の開発例と現状

2.1 J-PARC MLF MUSEにおけるミュオン生成標的

真空中で使用するミュオン生成用の黒鉛標的としては、英国ラザフォード研究所の固定標的方式(陽子ビーム強度200 kW)、スイス Paul Scherrer Institute (PSI)の回転標的方式(1.3 MW)が採用されている。固体標的方式の方が単純な構造で、安定した運転を期待できるが、黒鉛材の照射損傷が寿命を制限してしまう。一般に標的・窓材料への照射損傷は、原子炉材料の方法に従い、照射により材料内の原子全てが弾き出される照射量(Displacement Per Atom = DPA)を基準に評価を行っている。固定標的の場合1 DPAで黒鉛の寸法変化

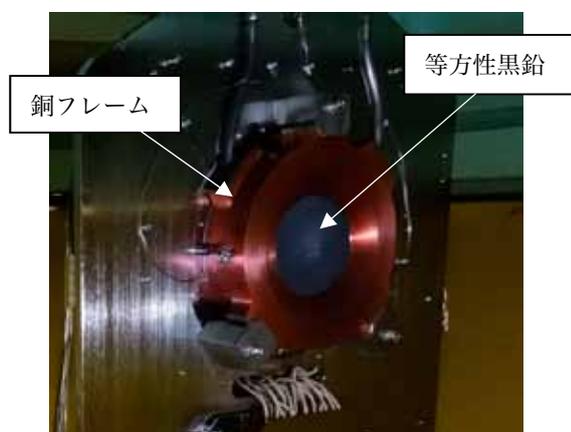


図3 J-PARCミュオン固定標的。等方性黒鉛標的がチタン層と銅フレームに接合されている。2008年9月より運転を開始。2014年9月に撮影(回転標的交換前)。

により寿命に達すると予想されるが、これはMLFの陽子ビーム強度1 MWで1年程度運転した照射損傷に相当する。回転標的は黒鉛材の照射損傷を広い領域に分散する事が出来るが、黒鉛材の照射損傷の問題を軸受の寿命の問題にすり替えるとも言える。軸受は直接ビームに晒されるわけではないので、寿命は主に温度、荷重、回転数と固体潤滑材に依存する。2008年9月にJ-PARC物質生命科学実験施設(MLF)のビーム運転開始時には、ビーム強度が上昇するまで固定標的を採用した。ただし、将来回転標的への交換が可能になるように、あらかじめその概念設計を行い、ビーム運転開始後は放射化によって交換の難しい標的格納容器などは、回転標的が導入できるような大きさとし、内面には輻射冷却の効率を上げるために黒体化処理を施した。こうして、固定標的での運転を継続しながら、回転標的の実機開発を行った。

2.1.1 ミュオン固定標的

固定標的は、直径70 mm、厚さ20 mmの等方性黒鉛製(東洋炭素IG-430U)の円板で、1 MWの陽子ビームによる4 kWの発熱を、周囲に配置した銅フレームへの熱伝導で冷却する構造である。IG-430UはIG-110よりも熱伝導や強度が高く、粒径が小さく緻密であるため、耐照射性能もより高いと推測されているが、系統的なデータの利便性と安全性を考慮して、設計における照射後の物性値はIG-110のデータを採用している。黒鉛の円板を支持する銅フレームには、冷却水を通すためのSUS316L製の配管が熱間等方圧加圧法(HIP法)で埋め込まれている。銅と黒鉛は熱膨張係数に大きな差があるので、高温になった時に熱応力で破損するであろうことが、解析から予測された。そのため、銅と黒鉛の中間の熱膨張係数を持ち、ヤング率も比較的小さい純チタンを応力吸収材として挿入した。チタン層と黒鉛円板は銅フレーム中に焼嵌めのように銀ロウ付けで接合されているが、黒鉛材は濡れ性が悪く、市販の銀ロウ材では接合する事ができなかった。そのため、チタンを少量添加した銀ロウ材を塗布し、一度、真空炉で加熱し金属化した後に、ロウ付けを行いチタン層・銅フレームと接合した。固定標的が受け入れたビーム強度は最大で300 kW、積算入射陽子数は 1.9×10^{22} 個であった。固定標的は導入時の2008年から2014年7月まで破損することなく使用され、回転標的に交換された。黒鉛と銅材の接合部での破損によって約1年で交換される英国ラザフォード研究所の固定標的と比較しても圧倒的に長寿命なミュオン固定標的の運用を実現できた(図3)[4,5,6]。

2.1.2 ミュオン回転標的

黒鉛材の照射損傷を分散し長寿命を実現する回転標的の開発を2008年に開始、2014年に陽子ビームラインへの導入を行った。黒鉛回転体(図4)は外径336 mm、内径180 mm、厚み20 mmの円板であるが、回転によって生じる温度差から引き起こされる熱歪みで破損しないように3分割されている。標的の

寿命は、回転体を保持する軸受の寿命で決定される。軸受は外輪、内輪と両者を連結する複数のボールで構成されるが、ミュオン回転標的では、軸受の内輪と取り合う回転体の材質と同じ金属とするためにステンレス材の軸受を採用している。それぞれの接触面には潤滑材が必要で、潤滑材の供給が無くなると軸受は破損する。真空内 (10^{-5} Pa 程度)、高放射線 (100 MGy / 年)、高温 (140 °C) で使用されるので無機材質の固体潤滑材を用いる必要があり、一般的には PSI を先例として、二硫化モリブデンまたは銀が用いられる。しかし、これらは外輪、内輪、ボールにコーティングされるので、量に限りがあり、寿命も限定される。PSI では実際に一年以下の寿命で運転されており、ミュオン回転標的でもこれらを採用した場合の寿命は一年程度と見積もられていた。そこで、ミュオン回転標的には比較的新しい二硫化タングステンをバインダー金属と焼結してペレット状にした固体潤滑材を用いた軸受 (型式 WS 軸受 : JTEKT Co. LTD [7]) を世界で初めて採用した。真空中に設置される標的の回転体は、輻射で冷却されるので黒鉛材と黒鉛材を支持するインコネルやステンレスなどの耐熱材料で構成されるが、軸受の温度を低減するため黒鉛材から軸受までの伝熱の経路を長くすると同時に、温度差による熱応力を吸収しつつも回転による遠心力や自重で破損しないような設計を行った。回転標的は高度に放射化する陽子ビームラインに設置されるので、駆動用モータ (大気中) と真空内への回転導入機は 2.4 m 離れたメンテナンスエリアに設置され、回転は長尺のステンレスのシャフトで伝達される。標的に散乱した 2 次粒子により発熱する長尺シャフトの熱伸びを吸収するために、THK 製スプラインナットを採用した [8]。回転導入機は、無機材質のみで構成された市販品を購入し、軸受に耐放射線性の高いグリス (松村石油研究所 : GK-1 [9]) を詰めなおした。駆動用モータには、角度検出器にレゾルバ方式を採用し、絶縁材としてポリイミド材、潤滑材として前述の耐放射線性グリスを用いた AC サーボモータ (核融合分野で開発。ワコー技研 : BNR II シリーズ [10]) を採用した。軸受の損耗を検出するために、モータトルクは常時、

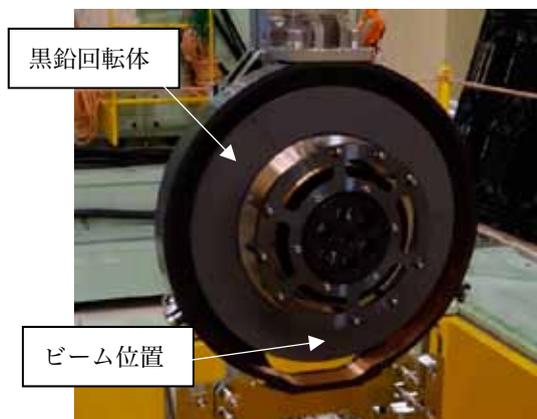


図4 J-PARC ミュオン回転標的 (2014年9月導入前に撮影)。

監視されている [11]。2014年9月に運転を開始したミュオン回転標的は、2017年11月現在も安定して運転を継続しており、受け入れた最大ビーム強度は 500 kW、積算入射陽子数 1.2×10^{22} 個である。標的の総回転数は 8×10^8 回に到達した。回転導入機と駆動用モータは、機械的な寿命から2年に一度、交換している [12]。



図5 J-PARC ニュートリノ実験施設のビーム窓。

2.2 J-PARCニュートリノ施設の標的とビーム窓

ニュートリノ実験施設の生成標的とビーム窓は、KEK、英国 Science and Technology Facilities Council (STFC) 技術部、京都大学などが連携し開発した。ニュートリノ施設の全般や標的について、過去の高エネルギーニュースに詳しい記事があるので参照してほしい [13,14]。図5にチタン合金製ビーム窓を示す [15]。部分球面状の 64 チタン合金薄膜 (0.3 mm 厚) 2 枚を 2 mm 間隔で同心に配置して、間にヘリウムガス (1.1 g/s, 平均流速約 150 m/s) を流すことで強制冷却・除熱する構造になっている。上流側のビームモニター収納チェンバ・下流側のターゲットステーション間の気密は、遠隔メンテナンスのため伸縮するベローを用いた特殊なシール (ピローシール) で保たれている。

2017年現在、J-PARC ニュートリノ施設は、MR から 2.48 秒周期でパルス当たり 2.4×10^{14} 個の陽子を受け入れ、470 kW のビーム強度を達成している。2013年には電子型ニュートリノ出現事象の発見を成し遂げ、この結果、シンクロトロンからの早い取り出しと電磁ホーンを用いる従来型のニュートリノビーム生成技術 (いわゆるスーパービーム) と、巨大な遠方検出器の組み合わせで、CP 非保存の探索が可能であることが明らかとなった。ニュートリノビームの大強度化は、必要となる遠方ニュートリノ検出器体積の (したがって多額の建設コストの) 削減に直結する。現実的なシナリオとして、施設の運転パワーを設計値である 750 kW から高繰り返しにより 1.3 MW 程度に増強することは、現有の標的やビーム窓の設計 (耐熱衝撃性能) を大きく変更することなく達成できるのではないかと考えられている (表 1 参照)。

表 1: 大強度運転で予定される MR の運転パラメータ。750 kW 運転に必要な PPP (Protons Per Pulse) はすでに達成している。標的・ビーム窓の耐熱衝撃性能は 3.3×10^{14} PPP 対応で設計されており、高繰返しによる 1.3 MW 運転で予定されている PPP とほぼ同じである。年間 100 日運転を仮定した場合に標的に入射する総陽子数 POT (Protons On Target) を併せて示した。

Beam Power	PPP	Cycle	POT/100days
470kW(achieved)	2.4×10^{14}	2.48 s	(0.8×10^{21})
750kW(planned)	2.0×10^{14}	1.3 s	1.3×10^{21}
750kW(original plan)	3.3×10^{14}	2.1 s	1.3×10^{21}
1.3MW(proposed)	3.2×10^{14}	1.16 s	2.4×10^{21}

大強度陽子加速器の標的や窓は、過酷な運転条件のため、定期的な交換を要する消耗品である。2010 年の T2K 実験物理ラン開始以降、2017 年夏までの間に、標的・ビーム窓はそれぞれ、過去 1 回だけ交換されている。標的は 2013 年から 14 年にかけての長期メンテナンスの時期に、第一ホーンと一緒に丸ごと交換された。交換後、ヘリウム配管出口側でリークが発生したが、これは絶縁部に用いたセラミックと配管の拡散接合、またはセラミック本体が破れた結果と確認されており、冷間曲げされた配管の残留応力開放により過剰なストレスを受けた結果と推定される[3]。すなわち標的自体の等方性黒鉛 (IG-430) や黒鉛全体を覆うチタン合金容器の破損事象ではない。故障した配管部品は、遠隔メンテナンスエリア内で、マンピュレータを用いて電磁ホーン内部の標的を交換する装置を応用し改良型部品に交換し、以降のビーム運転で問題なく稼働している[16,17]。

ビーム窓初号機の交換は、2017 年の夏に行われた[18]。心配された対向フランジ側の汚損はなく、ピローシールは期待通りの機能を示し、交換は成功裏に完了した。交換したビーム窓のビームを受けた部分には大きな形状変化・変色が見て取れた(図6)。このまま運転を続けて破損していれば、交換のため長期のビーム停止を余儀なくされていたかもしれない。真空側の損傷はこれほど顕著ではないため、放射線損傷以外に、たとえばヘリウム内の水分などを原因とする化学反応が寄与しているとも推測されるが、この損傷が何を原因として起こっているのか、

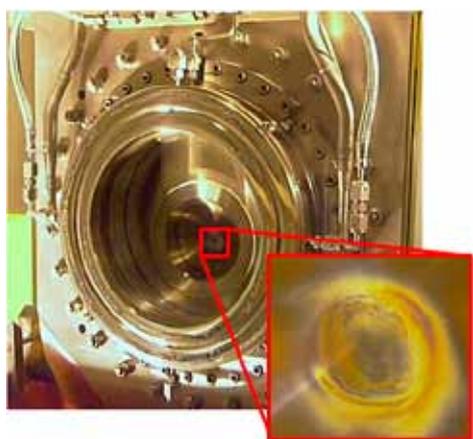


図 6 ビーム窓ヘリウム容器側に目視された損傷の様子[18]。

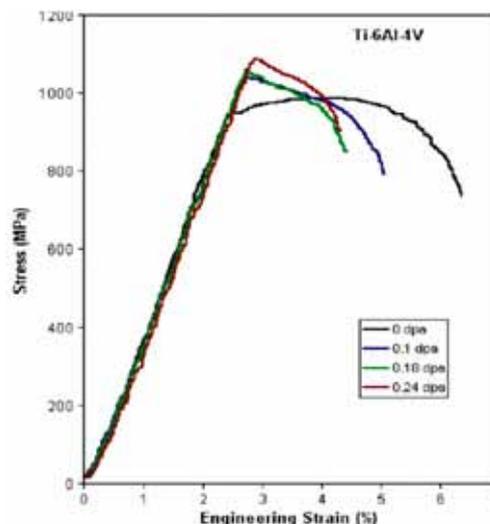


図 7 64 チタン合金被照射材料の引張試験で得られた歪-応力曲線 [19]。0.1 DPA 程度の低い照射量で硬化・脆化し始めている。将来計画でのパルス当たり陽子数 3.2×10^{14} PPP のビーム入射で予想される熱応力最大値は約 250 MPa である。

詳細はホットセル内で照射後試験 (Post Irradiation Examination, PIE) を行って今後明らかにしなければならない。このビーム窓が受けた陽子総数 (2.2×10^{21} 個) は、将来計画の 1.3 MW 運転で 1 年間に受ける陽子数に相当する (表 1)。さらにパルス当たり陽子数 (= 熱応力) が増加することも考慮しなければならない。

ビーム窓では短期間で材料中の原子全てが高エネルギー陽子との核反応による弾き出し損傷を経験し、材質の劣化が起こる。図7に陽子照射を受けた 64 チタン合金の引張り強度試験の結果を示した。これによると約 0.1 DPA から照射とともに急速に延性を失い脆(もろ)くなっていることがわかる。この現象は照射による材料硬化(延性低下・脆化)として、原子炉・核融合炉材料研究の分野でよく知られている現象である。0.24 DPA 以上の試験データが存在しないが、J-PARC MR で設計値 750 kW 強度でビーム運転を行えば、チタン合金製ビーム窓に蓄積する放射線損傷は年間 1 DPA 以上、将来計画 1.3 MW 強度では



図 8 CROSS 東海の管状炉を用いた耐酸化試験の写真。

2 DPA 以上に達すると予想されており、メンテナンスサイクル決定のためには、より高い照射領域での試験データ、特に高サイクル疲労強度特性のデータ取得が必要であり、かつ高線量照射に対して延性を保った材料を用いる・開発することが望まれる。

3. 次世代標的・窓材料の開発

3.1 黒鉛材料耐酸化性能の改良

現在のミュオン回転標的の更なる高度化や次世代ミュオン・ニュートリノ生成標的材料のための開発を継続している。第一に現在の黒鉛材の改良である。黒鉛材は、圧倒的に熱衝撃に強く、耐熱性も高いが、高温での耐酸化性能が低いという欠点を持つ。そのため黒鉛表面を炭化ケイ素(シリコンカーバイド・以下 SiC) で被覆した SiC 被覆黒鉛の調査を行っている。このような SiC 被覆黒鉛は、国内の複数の黒鉛メーカーで市販されており、容易に入手することが出来る[20]。耐酸化性能試験の結果も良好であり、CROSS 東海[21]の管状炉を用いて行った試験では、800 °C、乾燥空气中で、等方性黒鉛では 70 % の重量減少が観測されたのに対して、SiC 被覆黒鉛では重量の減少は観測されなかった(図8,9)。SiC は水素を溶解しない材料として知られており、陽子ビーム照射によって黒鉛中で生成されたトリチウム等の水素同位体が、SiC 被覆や黒鉛に影響(例えば剥離)を与えないかなどの検証を行うために、後述する BNL-BLIP 施設において陽子ビーム照射試験を実施している。

3.2 SiC複合材料を利用した標的開発

等方性黒鉛は密度が低く、ヤング率や熱膨張係数が小さいため、脆性材料ではあっても高い熱衝撃耐性を持つ。しかしより高い密度で同様な大強度ビーム耐性を持つ標的材料を開発できれば、選択肢が増え様々な物理実験の要望に応える事が可能となる。SiC は等方性黒鉛と比較して 1.8 倍密度が高く、耐熱性・強度も高いため有望な材料候補であるが、脆性材料であるという欠点を持つ。これについて、室蘭工業大学 環境・エネルギーシステム材料研究機構 (OASIS) [22]で開発された NITE-SiC 複合材料を、陽子加速器標的材料として使用できる

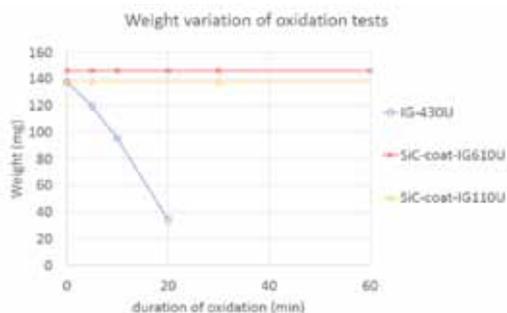


図9 CROSS 東海の管状炉を用いた耐酸化試験結果。800 °C まで試料を加熱しながら200 cc/min の乾燥空気を導入した。等方性黒鉛 IG-430U では 70 % の重量減少が観測されるが SiC 被覆黒鉛では重量減少は観測されない。

かの調査を開始した(図10)。大阪大学 RCNP 実験施設の N0 ビームラインにおいて 392 MeV、0.5 μA の陽子ビーム照射を行い (E494 実験)、大阪大学 RI 実験棟において照射試料を分析し、残留放射性核種の同定や、生成されたトリチウム総量の計測と放出過程の検証を行っている。また 2017 年夏には、CERN SPS の材料研究用ビームライン施設 HiRadMat において、440 GeV 陽子ビームによる熱衝撃試験を実施した(図11)。



図10 OASIS グループで試作したミュオン標的模擬体。

3.3 高靱性タングステン材料の開発

J-PARC MLF 施設において検討されている MLF 第二標的計画と J-PARC COMET 第二期計画ではタングステン標的の採用が計画されている。欧州 ESS 研究所、米国オークリッジ国立研究所の次世代中性子源や米国 Fermilab で推進されるミュオン電子転換過程の物理実験 Mu2e 計画においてもタングステンの標的材への採用が計画されている。タングステンは全ての金属中で最も優れた耐熱性能(融点 3420 °C)を持ちながら、再結晶温度 1200 °C 程度を超えた場合に発現する脆性(延性喪失、強度低下、弱い粒界に起因)という欠点のため荷重を支える耐熱構造材料として使用することが出来ない。脆性を解決



図11 CERN-HiRadMat での熱衝撃試験後の NITE-SiC (写真手前の黒い試料)。ビーム経路が観測される。

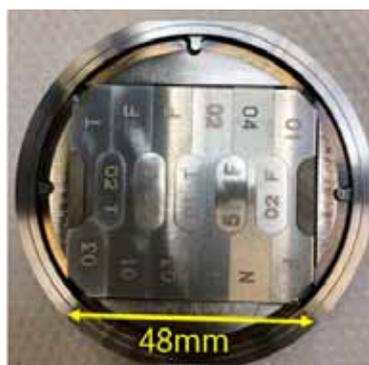


図 12 BLIP 照射実験に組み込まれたチタン合金カプセルの内部。小型の引張試験片と電子顕微鏡観察等のための試験片が組み込まれている。

するために、粒界すべり処理を利用した高靱性タングステン [23] (核融合科学研究所との共同研究, 金属技研との共同研究) や電子ビーム積層造形法を利用したタングステンの製造法に関する開発を進めている。

3.4 チタン合金材料の耐損傷性能の比較

BNL の線形加速器 RI 製造施設 (Brookhaven Linear Isotope Producer, BLIP) において、後述する RaDIATE 国際協力による陽子ビーム照射実験が 2017 年 4 月にスタートした。この試験では参加各研究機関がベリリウム・グラファイト・シリコン・アルミ合金・チタン合金・TZM・イリジウム・CuCrZr など、それぞれの施設で利用中または利用を計画している標的・窓・コリメータ・ビームダンプの材料を持ち込み、180 MeV・165 μ A の大強度陽子ビームを都合8週間照射する[24]。チタン合金については 0.7~1 DPA 程度まで照射を受けた試験片が得られ、引張試験 (図7) も含め、かつてない高照射領域でマクロからミクロスケールに渡る PIE を総合的に実施する[25]。図 12 に照射カプセル内部に組み込まれた引張試験片と微視的観察用試験片のレイヤを示した。他のレイヤには曲げ疲労測定用試験片などが組み込まれており、照射を受けた 64 チタンの高サイクル疲労強度を初めて計測する。微視的観察用試験片は、後方散乱電子回折 (EBSD) による結晶解析、微小押し込み試験器 (ナノインデンタ) での照射硬化挙動観察、透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察による延性低下や脆化の原因となる損傷欠陥構造や析出物形成の有無などの観察・評価に用いられる。

参考例として、これまで RaDIATE 国際協力のもと行われた被照射材料の微視的解析例を示す。図13は Fermilab の NuMI (Neutrinos at Main Injector) ビームラインで長期間用いられ、120 GeV 陽子 1.6×10^{21} 個の照射を受けたベリリウム製ビーム窓を Oxford 大学の核融合材料研究室で EBSD と硬度測定を組み合わせで解析した結果である。照射を受けたベリリウムの硬化は 0.1 DPA 程度から既に顕著であり、脆化した材料の破断は結晶の粒界で起こることが明らかとなった[26]。図 14 は J-PARC ニュートリノビームラインで 1.4×10^{20} 個の陽子照射を

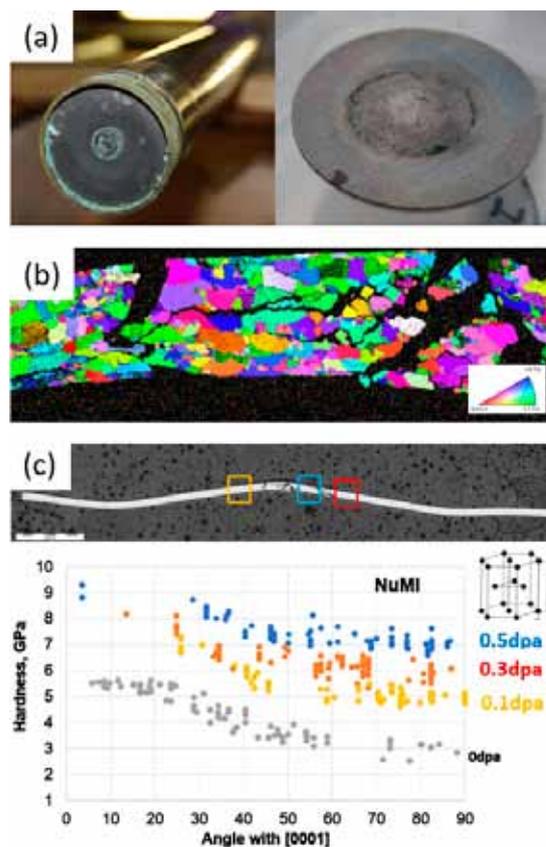


図 13 (a) NuMI 一次ビームラインベリリウム製のビーム窓。ビーム中心部の損傷は 0.5 DPA。中心部から直径 19 mm の試験片を切り出す際に、照射で脆化した中央部にひびが入ってしまった。(b) 断面の EBSD 画像。HCP 結晶の向きにより表示される色が異なっている。破断が結晶の粒界に沿って起きている。(c) ナノインデンタによる硬度解析。結晶軸に対する角度でプロットされている。0.1 DPA ですでに照射による硬化が起こっている。

受けた OTR モニタ 15-3 チタン合金 (Ti-15V-3Cr-3Sn-3Al) のフォイルを米国の原子力研究機関 Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) に輸送し行った 200 keV 電子ビームを内蔵する最新の透過型電子顕微鏡 (TEM) による解析の結果である[27]。陽子線によるはじき出し損傷値は 0.1 DPA 程度と評価されているが、放射線損傷の点欠陥が集合してできる dislocation loop などの顕著な損傷は見られず、black dot と呼ばれる微小な欠陥 (約 1~2 nm) をわずかに観測した。インデンタによる硬度計測でも、照射中心とそれ以外で硬度の違いは高々 6% 程度という結果を得ており、この black dot 形成に対応していると考えられるものの、顕著な劣化は見られなかった。15-3 チタンは航空機材料として開発された体心立方晶 BCC の準安定 β 合金であり、64 チタンと異なり冷間圧延が可能で板材の製造に適する。 β 変態点よりも高い温度で添加物を多量に溶かした状態で急冷することで β 相を保ち (溶体化)、その後変態点以下の温度で数時間保持し細かな析出物を結晶内に析出させ (時効処理)、64 チタン以上の高強度を得ている。今回

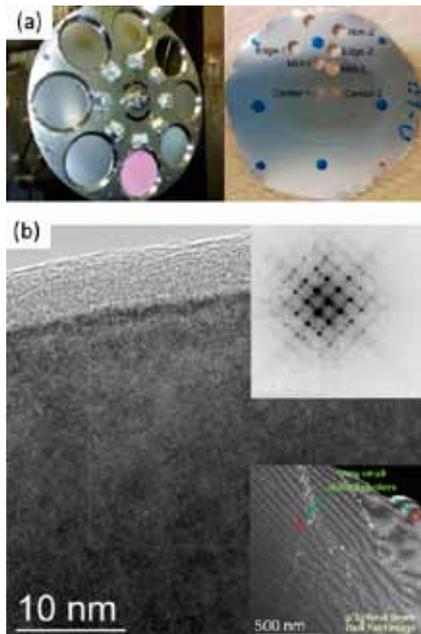


図 14 (a) J-PARC ニュートリノビームラインの標的直前に設置された OTR モニタの 15-3 チタン合金箔を取り出し、TEM 観察用にビーム中心部 (0.17 DPA) からエッジにかけて数か所の試料を採取し電解研磨する。(b) TEM 解析画像の例。最大倍率 ($\times 2M$) では Å 大のチタン原子が規則正しく配列しているのが見て取れる。放射線損傷による格子欠陥・介在物を探するため、回折像に条件を設定、特定の角度に散乱した電子線だけを画像化する。このフォイルには、点欠陥が集合してできる dislocation loop などの顕著な損傷状態は見られなかった。

の TEM 解析でも、熱・時効処理により、照射前に高密度転位が存在するとともに、準安定相と思われる非常に微細な高密度の析出層が形成されていることが判明した。析出物による原子配列の歪み (図 14 でも観察されている) が、放射線損傷による点欠陥の逃げ場 (シンクサイト) として働いた結果、顕著な損傷が観測されなかった、すなわち 15-3 チタンは耐照射特性に優れた材料である可能性があり、今後より高い照射領域での調査解析を進める予定としている。

一般に金属材料の性質、特に弾性変形や塑性変形の挙動といった機械的性質は、合金の組織 (合金を構成する結晶構造 = 相の割合と存在状態) が変わると変化する。純チタンにとってアルミニウムは β 変態点を高くする α 相安定化因子であり、バナジウムは逆に低くする β 相安定化因子であって、組成比率で相状態を変えることができる。チタン合金は室温での相状態から α 合金、準安定 β 合金、 α - β 合金に大別されるが、耐損傷性能は異なるはずであり、これら既存の合金から最適の材料を選び出すだけでも、ビーム窓の耐用寿命が改善する可能性がある。事実 α 合金の Ti-5Al-2.5Sn は、中性子・陽子による 0.3 DPA の損傷に対して 64 チタンより有意に延性を保つことが知られている [28]。組成だけでなく、熱処理によっても結晶の大きさや構造は大きく変化する。特殊な製造法や熱処理を施し金属材料の耐損傷性能を高める研究は、核融合炉材料分野で

盛んにおこなわれており、チタン合金にも適用可能な手法があると考えられる。2018 年 1 月から再開する BLIP 照射では、これら異なる相を持つ代表的なチタン合金の引張・微視的試験片も組み込み、耐損傷性能のより高い結晶構造、微細組織及び最適な加工熱処理条件を明らかにするべく、準備を進めている。

3.5 超微小強度測定技術の開発

BLIP などの陽子ビーム照射実験での問題点は、有意な損傷を与えうる照射領域が狭く、機械的特性を得るための従来型の試験片をどんなに小型化しても、限られた数しか配置できないことであった。核融合炉材料研究の分野では、数 μm から 0.1 mm 程の小さな試験片を用いた超微小強度測定技術の開発が進んでいる。 μ 曲げ試験では、収束イオンビーム (FIB) によってサンプル上に数 μm 大の微細なカンチレバを切削加工、ナノインデンタで変位を与え曲げ強度を測定する。メソスケール疲労試験では、約 0.1 mm 厚さのフォイルにレーザー切削で自由端側にエンドブロックのついたカンチレバを加工、超音波振動により繰返し負荷を与え疲労強度を測定する。数 cm^2 の照射領域内に多数の試験片を配置でき、個々の結晶や粒界の効果が平均化されマクロな疲労強度特性が得られるなど、注目すべき微小試験の新技术である (図 15) [29]。BLIP 照射にもメソスケール疲労試験片加工を行ったチタン合金フォイルが組み込まれている。

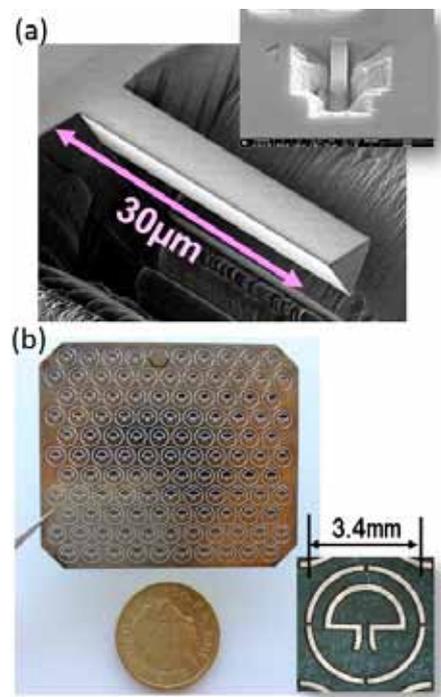


図 15 (a) μ 曲げ試験: 収束イオンビーム (FIB) により微細な試験片を試料上に加工、ナノインデンタにより押し込んで曲げ強度を計測する。(b) メソスケール疲労試験用フォイル: 0.1~0.2 mm 厚さのフォイルにレーザー加工でキノコ型の振動子を施工、超音波振動を与え高サイクル疲労強度を測定する。

4 大強度化に向けた内外の連携体制

J-PARC は様々な二次粒子生成標的を有しており、それぞれの施設で豊富な経験や知識が蓄積されているが、これまで相互の情報共有が十分ではなかった。より安全・安定な運転を目指し、効率的な開発を行うための情報共有を進める取り組みが進められつつある。それぞれの施設において大規模な標的や窓に関する開発や作業を行う際、他施設の開発担当者や施設安全の担当者が参加するレビューを開催することで、多角的かつ客観的な視点をもって検討を進める事が出来るようになった。

陽子ビームの大強度化に向け、標的材やビーム窓材にはますます過酷な条件が要求される事となり、原子炉材・核融合炉材の照射研究の手法を取り入れた独自の陽子ビーム照射効果の研究が望まれている。高エネルギー陽子ビームを照射できる機会は非常に限られ、また前述の超微小試験片による PIE の結果を、どうやって工学的な装置設計や寿命評価に反映させるのかも重要である。研究内容の高度化に伴い、標的担当者同士、より緊密な連携を取れるような取り組みが、ボトムアップでも進められつつある。J-PARC では著者らが呼び掛けて 2015 年秋より「PIE 倶楽部」という有志による会合を開始し、原研内の放射化試験施設（例えば、燃料試験施設 RFEF）を利用する可能性の検討を始めた。また、High Power Targetry Workshop (HPTW), the International Workshop on Spallation Materials Technology (IWSMT), International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI) [30] といった標的に関連する国際会議における、プログラム委員の選出や運営に関して連携を行っている。次世代の大強度陽子加速器標的・ビーム窓の開発に関して、一層緊密な施設間の連携が望まれている。

国際的には、Fermilab・CERN・J-PARC・SNS・ESS などの大強度陽子加速器を用いた素粒子原子核・中性子源・核変換研究施設と PNNL・Oxford などの原子力総合研究施設、日米欧計 13 機関の研究者・技術者が連携し、加速器標的環境材料へ放射線損傷が与える影響を研究する国際協力体制 RaDIATE (Radiation Damage In Accelerator Target Environments) が発足した[31]。RaDIATE では、前述のとおり BNL-BLIP 施設での大強度陽子ビーム材料照射実験や、CERN-HiRadMat 施設での陽子ビームのシングルショット熱衝撃試験を推進している。

5 結 び

本稿では大強度陽子加速器の二次粒子生成標的・ビーム窓開発の現状と動向について解説を試みた。近未来に MW 強度運転を目指す陽子加速器施設の標的やビーム窓には、原子炉や核融合炉を凌駕するような材料研究に基づいた設計開発が必須となってきている。J-PARC は加速器研究機関 (KEK) と原子力総合研究機関 (JAEA) の共同機関であり、この分野への

貢献が世界から期待されている状況にある。施設間・国際間の連携を強化して、効率的に研究をすすめていく所存である。

本研究は日米科学技術協力事業(高エネルギー物理分野)の支援を受けている。また SiC 複合材料、高靱性タングステン材料の開発は科研費 (16H03994・17K18787), KEK 共同研究 (金属技研), 核融合研共同研究 (NIFS17KEMF101) の支援を受けている。関係者のご理解とご協力に篤く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] 石原正博他 JAERI-M 91-153 等にサマライズされている。
- [2] TOYO TANSO: http://www.toyotanso.co.jp/index_en.
- [3] T. Nakadaira, talk at NBI2017+RaDIATE, Tokai-mura, Sep.2017. <http://www-conf.kek.jp/NBI2017>.
- [4] S. Makimura *et al.*, Proceedings of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Tsukuba, Japan, Aug. 1-3, TUPS111, (2011) 1188-1191.
- [5] S. Makimura *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **A600** (2009) 146-149.
- [6] S. Makimura *et al.*, JPS Conf. Proc. 2015, **8**, 051002-1-8, 10.7566/JPSCP.8.051002 (2015).
- [7] JTEKT: <http://www.jtekt.co.jp/e/index.html>.
- [8] THK: <http://www.thk.com/?q=jp/node/6682>.
- [9] MORESCO: <http://www.moresco.co.jp/>.
- [10] ワコー技研: <http://www.wacogiken.co.jp/>, プラズマ核融合学会誌 第 73 巻第 1 号 他。
- [11] S. Makimura *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem., **305**, 811-815, 10.1007/s10967-015-3949-0 (2015).
- [12] To be published at JPS proc. for muSR conference 2017.
- [13] 藤井芳昭他 高エネルギーニュース **Vol.28** No.2,p.67.
- [14] 市川温子他 高エネルギーニュース **Vol.28** No.4, p.246.
- [15] M. Rooney *et al.*, talk at HPTW2011, Malmö, Sweden, May 2011.
- [16] 市川温子他 高エネルギーニュース **Vol.35** No.3, p.129.
- [17] A. Atherthon, *et al.*, talk at HPTW2016, Oxford, Apr. 2016.
- [18] M. Tada, talk at NBI2017+RaDIATE, Tokai-mura, Sep.2017.
- [19] N. Simos *et al.*, J. Nucl. Mat., **377** (2008) 41.
- [20] TOYO TANSO: <http://www.toyotanso.co.jp/Products/coating/permakote.html>.
- [21] 一般財団法人総合科学研究機構 中性子科学センター <http://www.cross-tokai.jp/ja/>.
- [22] 室蘭工業大学 環境・エネルギーシステム材料研究機構 <http://oasis.muroran-it.ac.jp/>.
- [23] H. Kurishita *et al.*, Mater. Trans., **54** (2013) 456-465.
- [24] K. Ammigan, talk at IWSMT13, Chattanooga, TN, Nov. 2016; talk at NBI2017+RaDIATE, Tokai-mura, Sep.2017.
- [25] T. Ishida, talk at NBI2017+RaDIATE, Tokai-mura, Sep.2017.
- [26] V. Kuksenko *et al.*, J. Nucl. Mat. **490** (2017) 260-271.
- [27] T. Ishida *et al.*, talk at the 18th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM18), Aomori, Nov. 2017.
- [28] S. Tähtinen, *et al.*, JNM, **Vols. 307-311**, (2002) 416-420.
- [29] J. Gong *et al.*, Acta Materialia **96** (2015) 249-257.
- [30] 石田卓・若井栄一 高エネルギーニュース **Vol.36** No.3.
- [31] RaDIATE collaboration: <http://radiate.fnal.gov>.