



小特集 原型炉級核融合ダイバータおよび先進加速器コンポーネント開発に向けた 共通課題と最新研究

2. 大強度陽子加速器標的材・遮へい体として 期待されるタングステン

2. Tungsten Material as Target and Shielding for High-Power Proton Accelerator

牧村俊助, 栗下裕明, 原田正英¹⁾, 河村成肇, 的場史朗, 三原 智,
牧 宗慶, 新倉高一²⁾, 鄭 憲採²⁾, 長澤 豊²⁾, 尾ノ井正裕²⁾
MAKIMURA Shunsuke, KURISHITA Hiroaki, HARADA Masahide¹⁾, KAWAMURA Naritoshi,
MATOBA Shiro, MIHARA Satoshi, MAKI Muneyoshi, NIKURA Kouichi²⁾,
JUNG Hun-Chea²⁾, NAGASAWA Yutaka²⁾ and ONOI Masahiro²⁾

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) J-PARC センター,

¹⁾日本原子力研究開発機構 (JAEA) J-PARC センター, ²⁾金属技研株式会社

(原稿受付: 2019年5月23日)

宇宙の起源・物質や生命の根源の探求をめざし, 世界中で高エネルギー粒子加速器を用いた研究が展開されており, 更なる成果創出のため加速器の高輝度化・大強度化が望まれている. 特に大強度陽子加速器においては中性子・ミュオンを始めとする二次粒子生成のためにタングステン標的・遮へい体の開発が期待されている. しかし, その入手性や核融合分野におけるダイバータ材と同じく, 照射脆化や再結晶脆化の課題が, その性能を制限している. 本章では, 大強度陽子加速器標的材としてのタングステン材への期待, 材料開発の動向を紹介する.

Keywords:

proton accelerator, neutron production target, muon production target, radiation shield, tungsten material, recrystallization embrittlement, radiation-induced embrittlement

2.1 高エネルギー陽子加速器によって生成される中性子・ミュオンを用いた研究

物質生命科学・素粒子物理学の発展のため高エネルギー陽子加速器によって加速された(数百 MeV から数百 GeV)陽子を標的材に衝突させ, 核破砕反応によって生成される中性子・ミュオンを用いた研究が展開されている. 本報告では, 特に高エネルギー陽子シンクロトロンを利用したパルス状中性子・ミュオン生成標的に関して述べる. 図1に J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex, 大

強度陽子加速器施設)における二次粒子生成の概念図を示す.

2.1.1 中性子研究

高エネルギー陽子加速器によるパルス状中性子源は, 物質・生命科学研究に利用するための大強度の中性子を発生させることを目的としている. 標的材料には, 中性子の生成効率から, 質量数の大きな水銀やタンタル, タングステンなどが用いられる. 発生した中性子は, 物質・生命科学研究に利用するにはエネルギーが高すぎるため, 減速材(水素含有物質)により冷熱中性子まで減速する. 加速器中性子源は, パルスの陽子ビームを発生させることできるため, 飛行時間法が利用でき中性子のエネルギー識別が容易に出来ることが特徴である.

物質・生命科学研究では中性子の波の性質を利用した冷熱中性子による中性子回折・散乱法を利用する. 中性子は透過性を持ち, 散乱は原子核及びスピンにより生じ, その強度は質量数に依存しない. 水素に対して散乱する反応断面積が高いため, 水素含有物質の構造解析に大きな役割を果たす. また, 大強度化および中性子を単色化させることで, 弾性散乱のみならず, 非弾性散乱情報を取得することができる. このとき運動量変化のみならず, エネルギー変

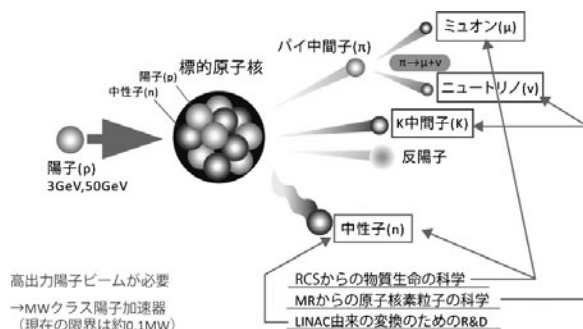


図1 J-PARCの陽子加速器で作られる粒子[1].

化を観測することができるので、物質中の振動・構造などを測りやすい。また、偏極中性子を利用することで、磁気構造を観測することができる。これらに示すように、中性子は物質・生命科学研究において幅広く利用可能な良好なプローブであると言える。中性子は強度の科学とも言われ、高エネルギー陽子加速器を利用した中性子源は、加速器の大強度化によって中性子研究において大きな役割を果たすことができる[2]。

一方で、これらに比較して低エネルギーの陽子加速器を利用して中性子を発生させる例では、核融合分野の構造材などの材料損傷を観察し、最適な材料を開発する国際核融合材料照射施設 (IFMIF) がある。他にもホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) は、ホウ素の中性子捕獲反応を利用した粒子線医療照射を目的としており、腫瘍細胞に取り込まれやすいホウ素含有薬剤を投与し、そこに中性子を当てることで腫瘍細胞へ集中的にダメージを与え治療するものである。これらに加えて、研究機関や大学において、Li, Be を標的として小型中性子源の設置・運用が進んでいる。

2.1.2 ミュオン研究

ミュオンは電子と同じくレプトンに分類され、2.2マイクロ秒で電子と2つのニュートリノに崩壊する不安定な素粒子で、負の電荷をもつ粒子(負ミュオン, μ^-)と、正の電荷をもつ反粒子(正ミュオン, μ^+)が存在する。その認知度は低いですが、日常にありふれた素粒子であり電荷をもつ宇宙線の約7割をミュオンが占め、手のひらを上に向けると、毎秒1個程度のミュオンが通り抜けている。宇宙空間を飛び交う陽子などの一次宇宙線が地球に飛来し、大気(窒素や酸素)の原子核と反応しパイ中間子が生成され、そのパイ中間子が崩壊することでミュオンとなり、地表に降り注いでいる。

ミュオンを実験で用いるには宇宙線由来のミュオンでは数が少なく、人工的に加速した300 MeV以上の高エネルギーの陽子が必要となる。陽子ビームが標的に照射されて生成されたパイ中間子が標的物質表面で崩壊してミュオンが生成される場合、ミュオンはパイ中間子の二体崩壊により生成されるので決まった運動量で放出される上、反対側に放出されるニュートリノのスピン(常に左巻き)が決まっているのでミュオンは100%偏極している。このようなミュオンを表面ミュオンと呼び様々な実験用途に供される。その他、崩壊ミュオンや正負のミュオンを使い分けることによって、物質の磁気的性質や水素の状態を調べるプローブや非破壊分析のような物性研究に用いられ、それ自体が素粒子物理学の研究対象となり原子核の電気的な大きさを調べたり、量子電磁気学の検証に役立っている[3]。なお、宇宙線ミュオンには現在の加速器技術では到達できないほど高いエネルギーをもつものが含まれ、岩石ならば数km程度を貫通することが可能である。この特徴を生かして、宇宙線ミュオンによる火山やピラミッド、原子炉のトモグラフィーなどに応用されている。

2.2 陽子加速器における中性子・ミュオン標的

2.2.1 陽子加速器を用いた中性子標的・ミュオン標的の歴史

高エネルギー物理学研究所(現在の高エネルギー加速器研究機構:KEK)では、ブースターシンクロトロンから供給される500 MeV, 5 μ Aのパルス状陽子ビームを標的材に発生させることによって、当時は画期的であったパルス状の中性子とパイ中間子が崩壊してできるミュオンを発生させ実験を行う利用施設が1980年に建設され、2006年まで運転が行われた。中性子標的はタングステン標的・劣化ウラン標的を経て、タンタル被覆タングステン標的へと改良が続けられた。パイ中間子およびミュオン(以後、両者を合わせてミュオンと呼ぶ)生成標的にはベリリウム固定標的が採用された[4]。その後、英国ラザフォードアップルトン研究所でも1990年代に800 MeV, 200 μ Aの陽子ビームパルス状中性子・ミュオンを用いた施設が建設され、2008年より、東海村J-PARCにおいて設計値3 GeV, 333 μ Aの陽子ビームを利用した物質生命科学実験施設(MLF)が建設された。ブースターシンクロトロンでは、陽子ビームをそれぞれの標的に振り分け、ビームタイムをシェアする方式を採用していたが、ISIS,J-PARC MLFでは、中性子を生成する水銀標的の上流にミュオン生成用の黒鉛標的が設置される串刺し標的の方式を採用しており、中性子とミュオンを同時に発生させることができる。

2.2.2 陽子加速器を用いた中性子標的・ミュオン標的

高エネルギー陽子が標的材に衝突する際には大きな熱が発生するため、標的材には耐熱性や熱衝撃耐性も要求される。また、高エネルギー陽子照射による弾き出し損傷・ヘリウムや水素同位体などの生成ガス・核破砕生成物によって性能が劣化する。これらの現象は原子炉・核融合炉材料でも起きるが高エネルギー陽子照射の場合は、特に生成ガス・核破砕生成物による影響が大きく、さらに残留放射能は保守性にも影響する、独自の研究が要求される。

標的材上で生成された中性子は減速材によって減速され、中性子反射ミラーを備えたビームラインによって、実験エリアに輸送される。一方でミュオンは荷電粒子であるため電磁石などの光学系で構成されるビームラインで実験エリアに輸送される。このとき標的材の密度が高いと発生する中性子・ミュオンの空間的広がりを抑制できるため、実験エリアでも、高密度の中性子・ミュオンを得られる一方で標的材上での発熱密度も高まる。そのため標的材そのものが高温で十分な安定性を備えていることが必要となり、タングステンが標的材として期待されている。

中性子・ミュオン標的では加速器の大強度化に伴い、発熱密度や照射による影響を分散させやすい液体金属標的や回転標的が採用されている。この様な方式で標的を冷却している例として、中性子標的では米国オークリッジ国立研究所(ORNL), J-PARC MLFの水銀標的, ミュオン標的ではスイスのポール・シェラー研究所(PSI)のメソン標的, 米国ブルックヘブン国立研究所(BNL) E821実験用のミュオン生成標的, J-PARC MLFのミュオン回転標的がある。更なる大強度な中性子・ミュオンの発生をめざし、欧

州核破砕中性子源 (ESS), 米国 ORNL の第二標的計画, J-PARCMFLF での第二標的計画でタングステンの回転標的が計画されている。

2.2.3 大立体角捕獲ソレノイド方式

陽子ビーム強度を増大させると中性子・ミュオンの強度を増大することができるが、陽子加速器の建設・運転経費の増大とともに標的周辺の高度な放射化を招く。そのため、近年、陽子ビーム強度を増大させる代わりに、高効率に中性子やミュオンを実験エリアに輸送する手法が検討されている。中性子の場合、中性子生成領域やモデレーター配置の最適化や中性子反射率を向上させるミラーの開発によって効率化を行う。荷電粒子であるミュオンビームを実験エリアに取り出す場合は、陽子ビームラインに標的からのミュオン捕獲用電磁石を可能な限り近づけ、大きな立体角でミュオンを捕獲する方式が採用されてきた。しかし、立体角を増大させるために電磁石を大きくすると幾何学的に陽子ビームラインとミュオン輸送のための電磁石が干渉し、さらに捕獲用磁場が陽子ビームラインに非対称な影響を与える。そのため、ミュオン標的を陽子ビームラインと、ほとんど同軸に設置された超伝導のソレノイド電磁石中に設置し大立体角でミュオンビームを捕獲する手法(大立体角捕獲ソレノイド方式)が採用されつつある。このとき、陽子ビームは、分割されたソレノイド電磁石間を通るので幾何学的な干渉も小さくなるとともに、ほぼ同軸のソレノイド中を輸送されるため、陽子ビーム軌道への影響を最小限にとどめることができる(図2)。

2.3 遮へい体としてのタングステン

2.3.1 遮へい体としてのタングステン

上述のように大立体角捕獲ソレノイド方式では、大強度磁場を実現するために超伝導磁石が採用される。このときソレノイド磁場が強ければ強いほど収集効果が高くなるが、二次放射線による発熱は超伝導状態を保つには大きすぎるので、半径の最適化と標的・超伝導電磁石間に遮へい体を挿入することが必要とされる。この遮へい体として有

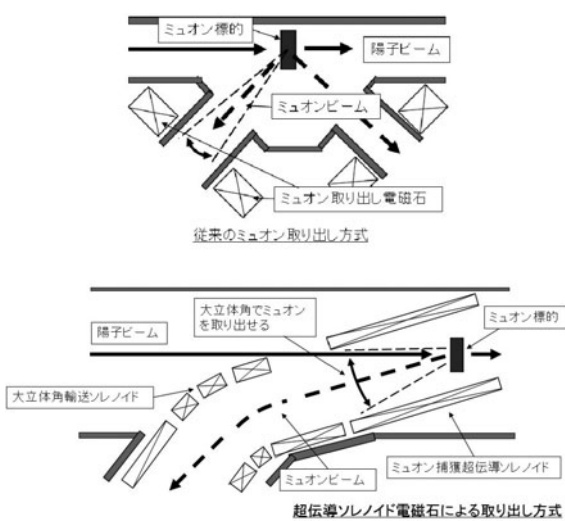


図2 ミュオンビーム取り出し概念図.

力視されているのがニッケルと銅を微量に添加したタングステン合金である。このタングステン合金は陽子ビームに直接、晒されるわけでは無いので、耐熱性能や耐照射性能はそれほど要求されない。密度が高く(18 g/cc 以上) 遮へい体としての性能が高い上、非磁性であるために高磁場磁石内でも問題なく使用できる。さらには熱伝導度も高いため、比較的容易に放射線による発熱を冷却水によって除去することが可能である。

大立体角捕獲ソレノイド内に配置するタングステン遮へい体の寸法は、直径1.2 m、内径0.24 m、長さ1.8 m、総重量は約30トンである(図3)。現在、遮へい体を放射状に12分割(1分割は30°)し、一本当たりの重量が約2.5 tonとなる(1/12 遮蔽体)構造を検討している(図4)。1/12 遮蔽体は積層したタングステン合金の両側面に冷却板を配置し、真空中への脱ガスを抑えるためにステンレスで被覆する構造を計画している。1/12 遮蔽体を円筒形に組み立てた遮へい体全体は、ビーム下流側の面のみを架台で支持する片持ち支持構造である。実際に大立体角捕獲ソレノイド内に配置する放射線遮へい体をタングステン合金で製造するには次の課題を解決する必要がある。

2.3.2 課題1：調達可能なタングステン合金寸法

遮へい体の構造や製造方法を定める最も大きな課題の一つが、調達できるタングステン合金の大きさである。目的とするタングステン合金の国内での用途の殆どが小型のブロック片や微小な部品であるため、1/12遮へい体を調達可能な材料で製造すると約600~1000個のタングステン合金片を積層する必要がある。その場合、タングステン合金片の加工や組立に膨大な時間と手間がかかると同時に増える接触熱抵抗のため冷却効率も低下する。これらの課題を解決するため、海外も含めた大型のタングステン合金片の調達を模索しており、タングステン材の主要な供給国である中国メーカにおいては、比較的大きなタングステン合金

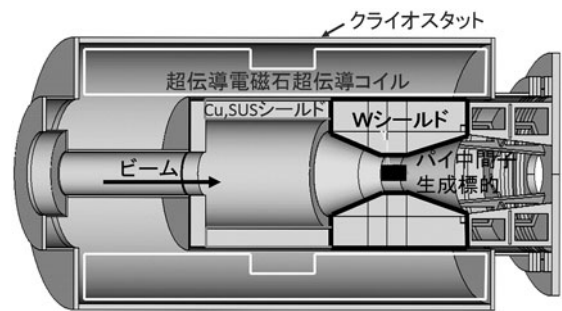


図3 COMET 実験用標的部断面図.

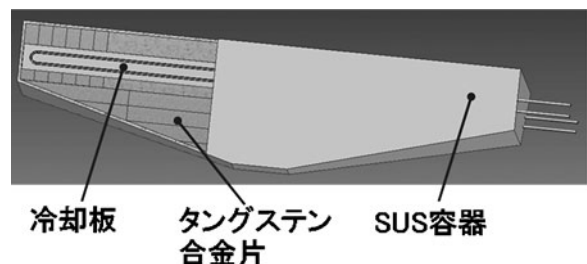


図4 1/12 遮蔽体.

を製造できることが判明している。

2.3.3 課題2：遮へい体の片持ち支持構造

二次放射線によって発生する熱は冷却板に埋め込まれた配管中の冷却水で除熱する。その際、二次放射線によって冷却水中に大量のトリチウム水を生成するため、可能な限り、ミュオン生成標的から離れた位置に冷却配管を配置する必要がある。タングステン合金は鉄の倍以上の比重があるため、占める体積に比して重量が大きい。当該遮へい体のように、タングステン合金による数十トンクラスの構造物は、世界中を見渡しても稀である。また、遮へい体設置エリアの都合上、支持架台の大きさにも制限があり、片持ち支持構造で支えなければならないため、支持構造体にかかる負荷が非常に大きいという課題もある。

2.3.4 現在の開発状況

現時点では、1/12 遮へい体の製造法として、箱型のステンレス容器内にタングステン合金片と冷却板を配置し、HIP (熱間等方圧加圧法) により全体を一体化した後に、ステンレス容器外面を切削し製作精度を担保する方法の試作・検討を進めている。

HIP 以外の方法として、鑄ぐるみによる製造検討も行った。これは国内で材料を調達し多量のタングステン合金片をステンレス容器内に積層せざるを得ない場合に備えて、タングステン合金片の加工の工程を減らすと同時に熱接触を保つことを目的としている。この場合、ステンレス容器の中に、隙間を設けながら製作精度の粗いタングステン合金片を積層し、その中に溶融した鉛等の鑄ぐるみ材を充填することで、隙間を埋め、一体化するという方法である。しかし試作の段階でタングステン合金は表面の濡れ性が非常に悪く、合金表面の濡れ性改善が必要であることが判明した。また、鑄ぐるみ材による遮へい密度の低下、および遮へい体の変形による鑄ぐるみ材とタングステン合金片の接触面の剥離といった課題を解決する必要がある。

現在、タングステン合金の物性試験や接合試験、冷却試験などを行いながら、詳細設計を行う為の検証を積み重ねている。2019年度中にタングステンシールドの製造法を確定し、1/12 遮蔽体の製作に取り掛かる計画である。

2.4 二次粒子生成標的材料としてのタングステン

密度の高さ、融点の高さなどによって標的材料としてのタングステンへの期待が高まっているが、タングステンが高温に晒されることによって起きる再結晶脆化および高エネルギー陽子照射による照射脆化は大きな課題である。同様な課題を抱える核融合分野ではダイバータ材としてカリウムドーパタングステンやレニウム固溶タングステン、タングステン複合材料に関する研究が精力的に進められている。

2.4.1 微細粒・ナノ粒子分散型再結晶タングステン合金, Toughened Fine-Grained Recrystallized (TFGR) W-TiC

微細粒・ナノ粒子分散型再結晶タングステン合金, Toughened Fine-Grained Recrystallized (TFGR) W-TiC は東北大学 金属材料研究所 附属量子エネルギー材料科学

国際研究センター (東北大 金研) 栗下准教授 (当時) のグループによって主に核融合炉材料として開発された。TFGR W-TiC は等軸微細粒構造の再結晶状態にありながら、チタン (Ti) 原子と炭素 (C) 原子の粒界での固溶・偏析により、本来割れやすい再結晶後の全ての粒界が割れにくい強い粒界に変えられているため、室温で 3 GPa を超える高い曲げ強度と延性を示す。また、結晶粒内と粒界に炭化チタンのナノ析出物を有するため、粒子照射環境で課題となる照射脆化を低減するシンク (逃げ場) サイトを多く有する [5, 6]。このように理想的とも言える TFGR W-TiC ではあるが小型な試料しか製造できないなど実用化に向けた大きな課題を残している。

2.4.2 金属技研株式会社との共同研究の現状

このような状況の中、KEK では熱処理メーカーである金属技研株式会社との共同研究のもと栗下氏の協力を得て、標的材料として TFGR W-TiC の開発を再開した。目標は製造環境を整備し、TFGR W-TiC を再現すると共に大型化・実用化に向けた開発を行うことである。

TFGR W-TiC は、「粉末調合」、「メカニカルアロイング (以下; MA) 処理」、「高真空下での加圧焼結」、「粒界すべり処理」によって製造する。

(工程 1 : 粉末調合)

高純度タングステンと微量の炭化チタン (約 1.1 wt%) の原料粉末を、侵入型ガス不純物を極力、排除するために酸素濃度 1 ppm 以下の高純度グローブボックス (GB) 内で調合・混合して MA 容器内に封入する (図 5)。また、真空中で 1000°C までベーキング可能な管状炉を併設しており、粉末中の酸素・窒素濃度を通常の 1/10 以下に低減できる。

(工程 2 : メカニカルアロイング処理)

MA 処理では、MA 容器壁面と容器内のボールとの衝突で混合粉末に大きな機械的エネルギーを付与する三軸加振型ボールミルによって、結晶粒のナノサイズ化および合金化 (添加した TiC の Ti 原子と C 原子への分解、およびそれらのタングステン母相への強制固溶) を行う。従来の開発では 1 気圧の水素雰囲気中で粉末調合、MA 処理が行われていたが、本共同研究では設備・手続きの簡素化のため、真空中で MA 容器中に粉末を封入することによって真空中での MA 処理を実現した。

(工程 3 : 高真空下での加圧焼結)



図 5 高純度グローブボックスの写真 [7]。

MA 処理された粉末は熱間等方圧加圧法 (HIP 法) によって焼結を行う。HIP の使用は、MA 処理粉末の大気との接触を防止し、粒成長の起こりにくい比較的低温 (1350°C) で緻密化を行うためである。この HIP 処理の結果、タングステン母相中に強制固溶していた Ti と C の各原子は粒界に固溶偏析し、また結晶粒内と粒界にナノ粒子として析出するが、固溶偏析も析出も不十分であり、気孔も残留している。そこで、引き続き粒界すべり処理を行う。(工程 4 : 粒界すべり処理)

続いて材料中に加工組織を残さず、未だ原子状に分解したままの炭化チタンをすべての粒界に均一に偏析・析出させるとともに残留気孔を排除するために、ホットプレスによって 1500°C ~ 1800°C の温度中、最大 100 MPa 程度の圧力で、超低速にて変位制御を行いながら変形させ、長時間に渡り「粒界すべり処理」(超塑性変形) を継続する。これまでに金属技研と KEK の共同研究体制では、直径 20 mm、厚み 3 mm の TFGR W-TiC の製造に成功した。切り出した試料は三点曲げ試験において室温で 2.6 GPa の破壊強度を持ち、わずかではあるが延性を示した (図 6, 7)。

2.4.3 現在の課題

現段階では東北大金研で製造された TFGR W-TiC の性

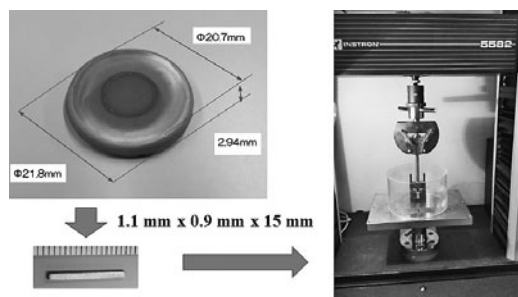


図 6 三点曲げ試験図。

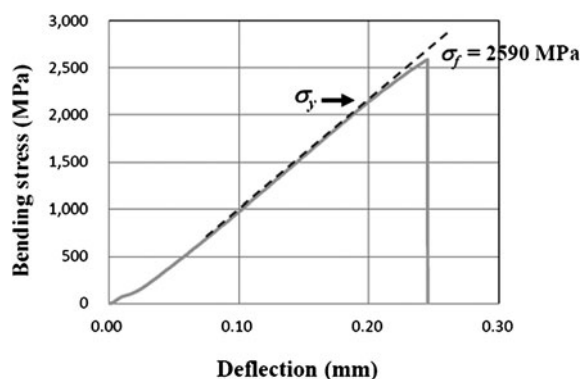


図 7 三点曲げ結果 [7].

能には到達できていない。原因は「MA 処理の最適化不足」, 「不純物酸素の除去不足」と推測している。

MA 処理後の粉末を走査型電子顕微鏡付属のエネルギー分散型 X 線分析によって観察したところ、ナノサイズ化されているはずの炭化チタンが 1 μm 程度の粒径のまま残存していることが確認された。MA 処理時間を延ばす事で解決は可能である一方で、MA 処理中に、モリブデン合金製の容器およびボールから不純物として混入するモリブデン濃度 (現段階でも 2 wt% 程度のモリブデンが混入している) が高まることが予想される。MA 処理の振動数、処理時間、容器、ボール材質の最適化が必要とされる。

完成した TFGR W-TiC の不純物酸素濃度を確認したところ、380 ppm であった。この値は、高純度グローブボックス内でのベーキングのおかげで、小さな値ではあるが、東北大金研での酸素濃度 160 ppm よりも多い。MA 処理時間や、各工程での待機時間が影響していると考えられ、効率的な作業工程の立案によって低減をめざしている。

本開発では、製造試料の大型化・実用化をめざしており、上記開発と並行して大量粉末処理装置の開発、大型試料製造装置の開発を産学連携の下、進めている。

2.5 おわりに

大強度粒子加速器における様々な技術は核融合分野と共通している。本章で述べたタングステンに関する技術だけではなく、極限環境に使用される材料、液体金属に関する技術、トリチウムハンドリング技術や遠隔操作に関連する技術なども共通な課題を抱えており、共同研究を進める事によって、相乗効果を期待できる。KEK では既に MA 処理の基礎研究に関して核融合研との共同研究を展開している。

参考文献

- [1] <http://www.j-parc.jp/ja/jparc.html> より引用
- [2] 日本中性子科学会誌 波紋 vol.28 No.1 (2018) 「パルス中性子50周年記念」特集。
- [3] K. Nagamine, *Introductory Muon Science*, (Cambridge University Press, 2003), On line ISBN 9780511470776
- [4] 池田 進・西山 樟生 他: KEK 陽子加速器の軌跡-中性子・ミュオン- (高エネルギー加速器研究機構, 2007) ISBN 978-4-9901936-3-8.
- [5] H. Kurishita *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **398**, Issues 1-3, 87 (2010).
- [6] H. Kurishita *et al.*, *Mater. Trans.* **54**, 456 (2013).
- [7] 物構研ハイライトより引用
<https://www2.kek.jp/imss/news/2019/highlight/0218-WTiC/>