

2024年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」 調査研究報告書(公開版)

【研究題目】チタン系合金の耐照射性能を飛躍的に高める加工熱処理方法の開発

【整理番号】24-KEK03

【代表機関】高エネルギー加速器研究機構 (KEK)

【調査研究代表者(氏名)】石田 卓

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】

NIMS 構造材料研究センター：江村 聡

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻：阿部 弘亨

【TIA 外連携機関】

日本原子力研究開発機構 (JAEA)

J-PARC センター

ミシガン州立大学

八戸工業高等専門学校

株式会社キグチテクニクス (KIGUCHI TECHNICS INC.)

【報告書作成者】

石田 卓

【報告書作成年月日】

2025年3月28日

【連携推進(具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等)】

素粒子・原子核物理や物質生命科学の実験は、加速された陽子ビームを「ターゲット」に打ち込み、生成された二次粒子を用いて行われる。ターゲットはヘリウムや窒素などのガスで満たされたターゲットステーションに設置され、加速器の真空とターゲットステーションは「ビーム窓」と呼ばれる薄い金属板で隔てられている[A]。世界の大強度陽子加速器施設では、ビームが直接当たり、周期的な熱衝撃にさらされるターゲットやビーム窓の耐久性能がビームの運転強度を制限している。特に日米の加速器ニュートリノ振動実験で用いられているTi-64合金製のビーム窓は、ビーム運転直後に、照射硬化し完全に延性を失ってしまい、ニュートリノにおける物質・反物質対称性の破れ探索に向けた加速器の大強度化を強く制限する恐れがある[B][1]。本課題では、これまで加速器研究機関であるKEK内で主に行われてきた耐照射性チタン合金製ビーム窓の開発を、材料研究機関NIMSと強固に連携、先行研究で明らかにした耐照射性に優れた準安定 β 合金Ti-15-3[C][10]に、ナノスケールの析出構造を持たせ、耐照射性を極限まで高める加工御熱処理法を確立することを第一の目的としている。更にチタン系・鉄系高エントロピー合金(HEA)[5][7][8]など、次世代原子炉・核融合炉用途の新たな耐照射性・低放射化構造材料の開発を視野に据えている。

本年度、NIMSでTi-15-3に複数パターンの異なる加工熱処理を施した試験片(およびNIMSで溶製熱機械処理した多元系Fe合金の試験片)を製造し、6月に群馬県の高崎量子技術基盤研究所のイオンビーム照射施設TIARAで高エネルギー陽子ビーム照射

環境を模した水素・ヘリウム・鉄イオンの3重イオンビーム照射を、次いで11月に東京大学大学院原子力専攻の重粒子照射施設HITで、照射温度条件を変えた複数の鉄イオンビーム照射を実施した。これら照射済み材料をNIMSの先端設備を用いてナノ硬度測定、SEM・EBSD・TEMなどの電子顕微鏡観察を実施した。平行して、NIMSで溶製したTi-15-3の鋳塊を用いて、耐照射性に優れた等軸微細組織を生み出すための条件（温度・歪速度・歪量）を明らかにするための高温圧縮特性試験と、実機製造に向けた大型鋳塊を用いた鍛造試験を実施した。

キグチテクニクス社は航空・宇宙、自動車、エネルギー、医療分野に使用される材料の品質および性能評価の専門メーカーで、全米航空宇宙・防衛関連企業認定プログラム(Nadcap)等、試験片製造と力学特性試験に関連する主要な公的認証・認定を多数取得、高い技術力を有している。本課題では、加速器ビーム窓で問題となる、ギガサイクルの高繰り返し下での疲労強度を計測するため英国で開発中の「メソスケール超音波振動疲労試験」[D]の技術開発で連携、試験で用いる foil 材料の試験的な製造を実施した。12月には代表者が島根県の本社を訪問、工程確認や打合せを行った。

これまでの加速器分野でのチタン合金開発研究の状況や今後のNIMSとの連携を広く金属材料の専門家に公表するため、研究代表者が日本金属学会に加入し、2024年9月、大阪大学で開催された第175回日本金属学会の日本鉄鋼協会との共同セッションで、連携研究者とともに連続講演[2][3]を行って反響を得た。10月に茨城県東海村のJ-PARCで行われたニュートリノビーム生成技術に関する国際ワークショップ

(NBI2024)にて代表者が[4]、同じく10月にシンガポールで行われた国際会議The Nuclear Materials Conference(NuMat)にて連携研究者が発表[5]を行った。(後者の内容の論文がこのほど受理された[9])。2025年1月には米国在住の連携研究者がNIMSに招待を受け、新材料開発の最新状況を講演した[6]。

【調査研究内容（実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果）】

一般に、材料の耐照射性能を更に高めるには①結晶粒の微細化②分散粒子・析出相の導入が有効であり、これは結晶の粒界および分散粒子や析出相の母相との界面が照射損傷の点欠陥の再結合を促す「シンクサイト（逃げ場）」として働くためと考えられている。準安定 β 合金であるTi-15-3は析出強化型の合金であり、 β 変態点直上からの急冷（溶体化 Solution Treatment, ST）の後、500°C程度の温度領域での熱処理（時効 Aging, A）を施し、 β 母相の中に α 相を析出させて材料の強度を高める。この時効処理において、まず低温で時効後、温度を上げ2段階に分けた時効処理（ST2A）を適用することで、析出する α 相が微細化し、 β 母相内に均一に分布するために、イオン照射による照射硬化の程度が非常に小さいことが代表者らの先行研究によって判明した[2][4]。また連携研究者を中心に開発中のチタン系高エントロピー合金でインコネル718を遥かに超える高温強度が得られている[6]。

1. Ti-15-3の加工熱処理条件の最適化

α 相析出を微細化しつつ、材料の力学特性を向上させるパラメータを特定するため、2段階目の時効温度設定を変えるとともに、 β 母相を微細粒化するため、溶体化処理の前に冷間圧延を施した材料を調製し、これら複数の試験片にHITで鉄イオンビームを照射した。初期組織を観察したところ、 α 相が従前と同様に微細化均一に分布したのは、予測に反して、当初より低温で2段階目の時効をした試料であり、他方、従前の条件では析出は微細化せず、ビーム照射後の硬化が顕著であることが明らかとなった。冷間圧延により結晶粒は予想通り微細化したが、析出の微細化には効果がなかった。2段階時効処理の設定温度は析出相の現れ方に強く影響することが明らかに

なり、今後、初期材料の品質の影響や、溶体化処理条件をも含めた詳細な追加調査が必要である。

2. ビーム窓用バルク材料の加工熱処理条件の最適化[3]

高い耐照射性能を示す Ti-15-3ST2A 材を第一候補材とするビーム窓の製作技術開発において、Ti-15-3 は通常厚さ数mm以下の薄板形状の製品としてしか調達することができないので、Ti-64 と同様のバルクからの削り出しでビーム窓を製造するためには、Ti-15-3 の組織制御された大型ビレットを加工熱処理により調製することが必要である。国際規格では Ti-15-3 の熱間鍛造は β 域での実施が推奨されているが、国内鍛造メーカーには β 域での据込み鍛造の実績がない。近い将来の実機用材料の高温鍛造のために、①加工熱処理条件の最適化と、②高温変形挙動の調査が必要である。本課題ではイットリアの増量による高周波誘導真空(VIF)溶解で調製した鋳塊を用いて②高温変形挙動の予備調査を実施した。この結果、歪み速度が速いと β の微細なサブグレインとなり、歪み速度が遅いとサブグレインが大きく、サブバウンダリーは不明瞭となることが判明した。本合金の高温鍛造では、温度を β 変態点の近傍に設定し、1秒当たり 0.1 以上の早い歪速度で材料内に歪を蓄積させることが必要である。

3. メソスケール超音波疲労試験用 フォイル製造技術の調査

「メソスケール超音波振動疲労試験」は、Oxford 大学材料学部の Jicheng Gong 博士によって発明された画期的な技術である。これまでの照射損傷研究では、数cm大のマクロな試験片に原子炉からの中性子などを照射して機械特性を評価するか、イオンビームを照射した金属片から、収束イオンビーム加工(Focused Ion Beam Milling, FIB)で成型した数 μ mサイズの試験片を用いたマイクロメカニクス技術が用いられてきた。前者では加速器ビームでは照射領域が小さすぎサンプル数が確保できないので疲労試験が難しい。後者では無数の試験片を得ることができるが、結晶ごとの種類や方位に依存した情報しか得られず、結晶の集合体である材料のマクロな機械特性が得られない。この点数 mm の大きさの「メソスケール試験片」ならば、限られたビーム照射領域内に十分な試料数を配置できるだけでなく、結晶ごとの個性は平均化されて、マクロな機械特性・疲労特性を得ることができると期待される。メソスケール試験片に超音波振動で繰り返し疲労負荷を与える試験器が Gong 博士の協力のもと、英国 Culham 核融合エネルギーセンター(CCFE)の材料試験施設(MRF)に新たに設置されコミショニングが進んでいる[D]。この試験には、厚さ 150 μ m に精度よく両面研磨した材料フォイルが指定されており、その製造技術の開発が重要となっていた。本課題では、Ti-15-3ST2A を用いて、 Φ 20 mm のフォイルを試験的に製造し、表面の歪量と厚さを要請される \pm 10 μ m 程度以下程度に抑えることに成功した。

4. イオンビーム照射による影響を評価する微細組織観察[1][2][4]

イオンビーム照射後に硬化を示さなかった試料の表面から収束イオンビーム(FIB)加工法で数 μ m大のラメラを切り出し、ビーム照射により生じた転位ループや相変態の有無を判定するための透過型電子顕微鏡観察を実施した。 β 相回折像の主逆格子点を結ぶ線上に、 ω 相および α 相に起因する散漫散乱とスポットがみられ、比較的明瞭に表れた α 相スポットを選択した暗視野像には、ナノサイズで一様に分散した極微細な粒子群がみられた。更に、高分解能透過電子顕微鏡(HREM)を用いた原子レベル像でこの散漫散乱領域を選択したフィルター像で、数nm大の格子歪み構造が結晶格子中に均一に分散している構造が撮像された。これらは先行研究でTi-64やTi-15-3(未時効材)の β 相に見られたと同様の構造であって、チタン合金の β 相が示す高い耐照

射性を、本材料も保持していると推測される。また α 析出相にも、ナノスケールの微細な下部構造（微細な転位ループまたは析出）が存在するらしいことが観察された。この構造は照射域・未照射域に変化なく存在しているようであり、照射による欠陥や相変態を検出するには至っていない。 β 相が備えている耐照射性に加えて、特殊な熱処理で α 析出相内などに形成されたナノスケールの構造がシンクサイトとして有効に働いたため、本材料が高い耐照射性を示した可能性があると考えられる。

5. 低放射化多元系 Fe 合金の耐照射性能調査 [5] [7] [8] [9]

Ti-15-3 は多種の溶質元素を高濃度で含むが、高放射線場での使用で放射化が問題となる元素は Al のみであり、高温クリープ試験によって、400°Cまでの耐用性能があることが明らかとなった。次世代原子炉・核融合炉用材料としては、更に高い温度での利用が可能な低放射化材料が求められており、チタン系合金では 600°Cまでの耐熱性を備えたニア α 型の DAT54 に高い耐照射性がみられている。高エントロピー合金 (HEA) は優れた高温強度と延性を有し、また原子レベルの歪み等が照射欠陥のシンクサイトとして作用することから耐照射性が高いと予測される。FCC 構造の鉄基材料は中性子照射下でのクリープ特性が問題となることから、BCC 構造を基本とする低放射化 HEA 合金の開発が連携研究者らにより進められている。HEA への展開を視野に設計した Fe-Mn-Cr-Al-V-C 合金は、2 種類の BCC 相または BCC 相と FCC 相より構成される 2 相固溶体で、従来のフェライト鋼よりも優れた強度と延性を示すだけでなく、チタン合金とともにイオン照射実験を実施してその影響を評価したところ、従来の核融合構造材料や圧力容器鋼と同等以上の耐照射性能を有することが判明した。

研究成果

[1] (Journal Article) Taku Ishida, Sho Kano, Eiichi Wakai, Tamaki Shibayama, Shunsuke Makimura, Hiroaki Abe, “Contrasting irradiation behavior of dual phases in Ti-6Al-4V alloy at low-temperature due to ω -phase precursors in β -phase matrix”

Journal of Alloys and Compounds 995 174701-174701 2024 年 8 月.

<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2024.174701>

[2] (学会講演) 石田卓, 叶野翔, 若井栄一, 牧村俊助, 古谷一幸, 江村聡, 阿部弘亨, 柴山環樹, クリス・デンシャム, 「Ti-15-3 合金を用いた耐照射性 大強度陽子加速器ビーム窓の開発(I)」日本金属学会 2024 年秋期講演大会 大阪大学豊中キャンパス 2024 年 9 月 19 日.

[https://researchmap.jp/jparc-](https://researchmap.jp/jparc-taku_ishida/presentations/49005216/attachment_file.pdf)

[taku_ishida/presentations/49005216/attachment_file.pdf](https://researchmap.jp/jparc-taku_ishida/presentations/49005216/attachment_file.pdf)

[3] (学会講演) 古谷一幸, 若井栄一, 石田卓, 土谷浩一, 江村聡, 本橋功会, 檜原高明, 上野豪, 富樫千穂, 實川資朗, 「Ti-15-3 合金を用いた耐照射性大強度 陽子加速器ビーム窓の開発(II)」日本金属学会 2024 年秋期講演大会 大阪大学豊中キャンパス 2024 年 9 月 19 日.

[4] (国際研究集会講演) T. Ishida, S. Kano, E. Wakai, S. Makimura, K. Furuya, S. Emura, H. Abe, T. Shibayama, C. J. Densham, “Development of Radiation-Damage Resistant Proton Accelerator Beam Window Using Ti-15-3 Alloy”, 13th

International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI2024),
Tokai, Japan 2024 年 10 月 9 日.

<https://conference-indico.kek.jp/event/270/contributions/5915/>

[5] (国際研究集会講演) K. Furuya, E. Wakai, M. Ando, T. Kamada, K. Tsuchiya,
“Microstructure and nano-hardness of low-activation iron-based high entropy
alloys performed by combined ion beam irradiation at 573 K”, Poster
Presentation, NuMat2024: The Nuclear Materials Conference, Singapore, 15
October, 2024.

<https://virtual.oxfordabstracts.com/event/public/5095/submission/132>

[6] (招待講演) E. Wakai, “Irradiation damage study of materials and the
related development for nuclear and accelerator application”, The 354th ICYS
& RGS Special Seminar, NIMS, Jan. 10, 2025.

[7] (学会講演) 古谷一幸, 土谷浩一, 若井栄一, 實川資朗, 石田卓, 「高エントロピー
化を目指した新しい鉄基低放射化合物の開発」2025 年春期 (第 176 回) 講演大会
東京都立大学 3 月 10 日.

[8] (招待講演) 古谷一幸, 「鉄系、チタン系耐照射性材料の開発」, 169th
Structural Materials Seminar, NIMS, 2025 年 3 月 17 日.

[9] (Journal Article) Kazuyuki Furuya, Koichi Tsuchiya, Eiichi Wakai, Bikash
Tripathy, Elango Chandiran, Masami Ando, Takaharu Kamada, Hiroyuki Noto,
“Development of Novel Multi-element Low-activation Fe-based Alloys for
Nuclear and Fusion Reactor Applications”, J. Nucl. Mater., 2025, March, in
press.

[10] (Journal Article) Eiichi Wakai, Taku Ishida, Sho Kano, Tamaki Shibayama,
Koichi Sato, Hiroyuki Noto, Shunsuke Makimura, Takashi Wakui, Hiroaki Abe,
Kazuyuki Furuya, Satoshi Emura, Koichi Tsuchiya, “Microstructural
development and hardening behavior in Titanium 15-3 Alloys with high density
nano-size precursor induced by ion irradiation”, in preparation.

参考文献

[A] Taku Ishida, Eiichi Wakai, Shunsuke Makimura, Patrick G. Hurh, Kevin
Ammigan, Andrew M. Casella, Danny J. Edwards, David J. Senior, Christopher J.
Densham, Michael Fitton, Joe Bennett, Dohyun Kim, Nikolaos Simos, Marco
Galviani, Claudio Torregrosa Martin, “Radiation Damage Studies on Titanium
Alloys as High Intensity Proton Accelerator Beam Window Materials”, JPS
Conf. Proc. 28, 041001 (2020).

<https://doi.org/10.7566/JPSCP.28.041001>

[B] Taku Ishida, Eiichi Wakai, Shunsuke Makimura, Andrew M. Casella, Danny
J. Edwards, Ramprashad Prabhakaran, David J. Senior, Kevin Ammigan, Sujit
Bidhar, Patrick G. Hurh, Frederique Pellemoine, Christopher J. Densham,

Michael D. Fitton, Joe M. Bennett, Dohyun Kim, Nikolaos Simos, Masayuki Hagiwara, Naritoshi Kawamura, Shin-ichiro Meigo, Katsuya Yonehara, “Tensile behavior of dual-phase titanium alloys under high-intensity proton beam exposure: Radiation-induced omega phase transformation in Ti-6Al-4V”, Journal of Nuclear Materials 541 (2020) 152413.

<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2020.152413>

[C] T. Ishida, E. Wakai, M. Hagiwara, S. Makimura, M. Tada, D. M. Asner, A. Casella, A. Devaraj, D. Edwards, R. Prabhakaran, D. Senior, M. Hartz, S. Bhadra, A. Fiorentini, M. Cadabeschi, J. Martin, A. Konaka, A. Marino, A. Atherthon, C. J. Densham, M. Fitton, K. Ammigan, P. Hurh, “Study of the radiation damage effect on Titanium metastable beta alloy by high intensity proton beam”, Nuclear Materials and Energy 15 (2018) 169–174.

<https://doi.org/10.1016/j.nme.2018.04.006>

[D] P. Earp, A. Wilkinson, C. J. Densham, J. Hess, J. Gong, S. Kuksenko, “Development of ultrasonic meso-scale fatigue testing of irradiated titanium alloys for proton beam window applications”, Presentation at 6th RaDIATE Collaboration Meeting, Dec 9 - 13, 2019, TRIUMF

<https://indico.triumf.ca/event/81/contributions/2613/>

【今後の活動予定】

2024年度の調査研究により試料調製・イオンビーム照射・照射後試験という耐照射性材料開発の効率的フローを確立し、その1回目を完了することができた。2025年度にもTIAの枠組みを継続、この効率的な開発フローを用いて、Ti-15-3合金の耐照射性と機械特性を両立する加工熱処理方法の確立を目指す。良好な耐照射性能を示した多元系Fe合金の知見を元にHEA開発も平行して進める。更にイオン照射試験片を用いてFIB加工で μ サイズの試験片を切り出して試験を行う μ 引張試験をQST六ヶ所フュージョンエネルギー研究所で実施する検討をしており、強度（ナノ硬さに比例）に加えて延性（伸び）への照射影響評価が可能となる。NIMSの疲労強度が専門の若手研究者や、連携研究者が在籍する八戸高専の学生が新たに連携に加わる検討をしている。

本課題で開発中のチタン合金やHEA等の耐照射性材料は、原子炉・核融合炉の構造材としての応用が可能である。2025年度は核融合炉用先端材料開発への展開を検討するために、ムーンショット10・ICFRM22など核融合関連の集会・研究会に積極的に参加貢献する。ビーム窓実機製造に向けた大手材料メーカーでの鍛造試験や、メソスケール疲労試験技術開発で英国と連携するため、大型科研費への応募を検討する。