

タングステン/酸化物分散強化鋼の異材接合における熱応力緩和法

能登 裕之

## 目次

## 第一章 序論

1.1 核融合エネルギー .....	1
1.1.1 現在のエネルギー問題と次世代エネルギー供給源 .....	1
1.1.2 核融合反応 .....	5
1.1.3 研究炉 .....	6
1.1.4 実験炉 .....	7
1.1.5 原型炉 .....	9
1.1.6 核融合炉環境と熱負荷 .....	10
1.2 構造材料候補材 .....	11
1.2.1 核融合炉における構造材料 .....	11
1.2.2 炉内構造材候補材料 .....	12
1.2.3 プラズマ対向材料候補材 .....	15
1.2.4 炉材料における課題 .....	23
1.3 従来の接合法 .....	24
1.3.1 低融点アモルファス中間材を用いた同材接合 .....	24
1.3.2 低融点アモルファス中間材を用いた異材接合 .....	26
1.4 本研究の目的と博士論文の意義 .....	27
参考文献 .....	28

## 第二章 バナジウム中間材を用いた弾性的応力緩和技術開発

2.1 緒言 .....	30
2.1.1 弾性適応力緩和法 .....	30
2.1.2 本章の目的 .....	31
2.2 V-4Cr-4Ti/ODS-FS 間におけるバリア層導入による $\sigma$ 相脆化抑制 .....	32
2.2.1 はじめに .....	32
2.2.2 実験方法 .....	32
2.2.3 結果・考察 .....	34
2.2.4 まとめ .....	38
2.3 有限要素法による熱応力解析 .....	38
2.3.1 はじめに .....	38
2.3.2 解析手法 .....	39

## 目次

2.3.3 解析結果.....	41
2.3.4 まとめ.....	44
2.4 結言.....	44
参考文献.....	46

### 第三章 純鉄中間材を用いた弾塑性的応力緩和技術開発

3.1 緒言.....	47
3.1.1 塑性的応力緩和法.....	47
3.1.2 純鉄中間材.....	48
3.1.3 純鉄の照射硬化.....	49
3.1.4 本章の目的.....	50
3.2 純鉄/アモルファス中間材二層中間材.....	50
3.2.1 実験方法.....	50
3.2.2 結果.....	53
3.2.3 考察.....	57
3.3 純鉄を中間材として用いた異材接合.....	58
3.3.1 はじめに.....	58
3.3.2 実験方法.....	59
3.3.3 結果.....	63
3.3.4 考察.....	66
3.3.5 まとめ.....	69
3.4 結言.....	70
参考文献.....	71

### 第四章 タングステンの機械的特性評価

4.1 緒言.....	72
4.2 Wにおける配向性と曲げ強度比較.....	72
4.2.1 はじめに.....	72
4.2.2 実験方法・目的.....	73
4.2.3 結果・考察.....	75
4.2.4 まとめ.....	79
4.3 VPS-Wにおける中性子照射影響.....	80

## 目次

4.3.1 VPS-Wにおける中性子照射影響 .....	80
4.3.2 HFIR .....	80
4.3.3 実験方法 .....	81
4.3.4 結果 .....	83
4.3.5 まとめ .....	85
4.4 結言 .....	85
参考文献 .....	87

## 第五章 変態超塑性金属を用いた応力緩和技術開発

5.1 緒言 .....	88
5.1.1 超塑性現象 .....	88
5.1.2 超塑性の応用 .....	91
5.1.3 本章の目的 .....	93
5.2 超塑性鉄鋼材料を中間材として用いた異材接合 .....	93
5.2.1 はじめに .....	93
5.2.2 実験方法 .....	94
5.2.3 結果・考察 .....	97
5.2.4 まとめ .....	101
5.3 化合相の生成過程と拡散方向の同定 .....	102
5.3.1 はじめに .....	102
5.3.2 実験方法 .....	103
5.3.3 結果 .....	104
5.3.4 まとめ .....	107
5.4 炭素鋼を中間材とした核融合炉設計の考察 .....	108
5.5 結言 .....	111
参考文献 .....	112

## 第六章 総括

総括 .....	113
----------	-----

## 付録

論文リスト .....	117
謝辞 .....	118

# 第一章

## 第一章 序論

### 1.1 核融合エネルギー

#### 1.1.1 現在のエネルギー問題と次世代エネルギー供給源

現代社会におけるエネルギーの需要は、ますます高まり、その消費量は増え続ける傾向にある。この傾向は近年、先進国のみならず、途上国も含め、全世界で見受けられており、21世紀における重要な課題となっている（図 1-1-1） [1]。

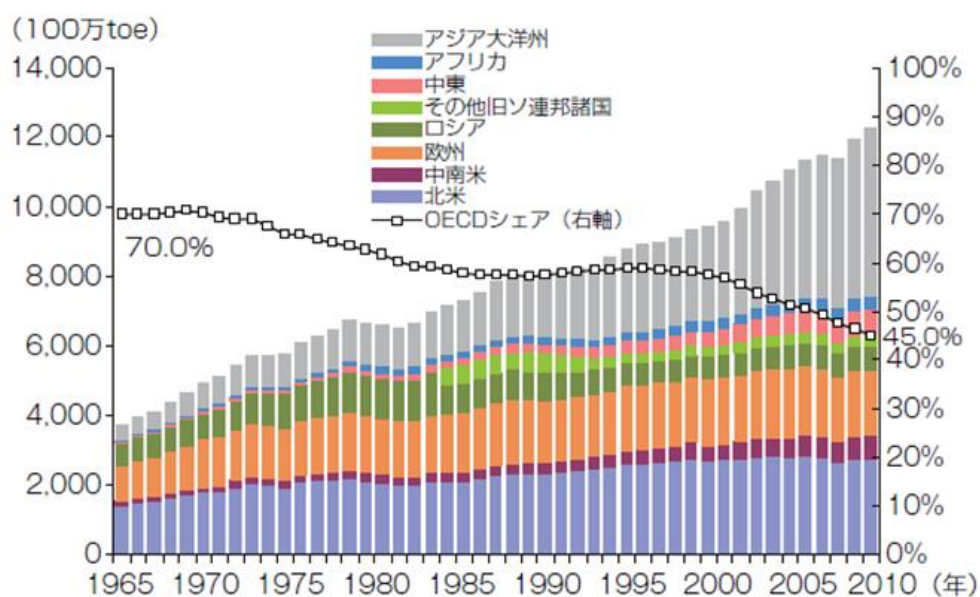


図 1-1-1 世界のエネルギー消費量の推移

経済産業省 資源エネルギー庁 HP 平成 24 年度 エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書）2013 第 221-1-1

現在、このエネルギー供給法として、化石燃料を燃焼させる手法が主流であるが、化石燃料の枯渇によるエネルギー不足や、その過程で発生する二酸化炭素の排出が地球温暖化に寄与することが叫ばれ続けている（図 1-1-2） [2]。

# 第一章

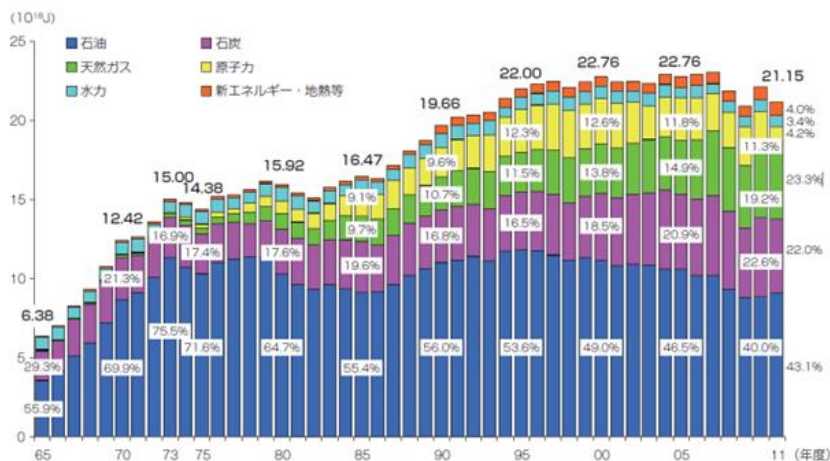


図 1-1-2 一次エネルギー国内供給の推移

経済産業省 資源エネルギー庁 HP 平成 24 年度 エネルギーに関する年次報告 (エネルギー白書) 2013 第 211-3-1

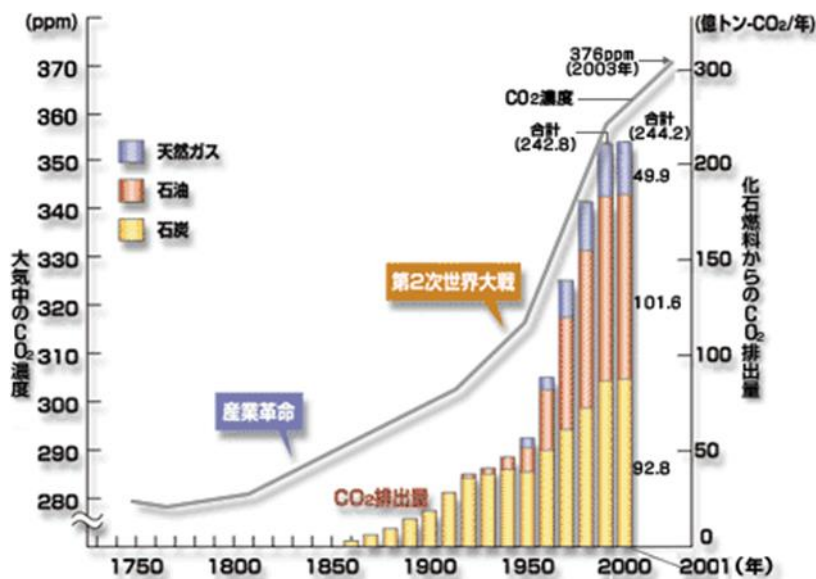


図 1-1-3 年代別大気中二酸化炭素濃度

出典：環境省資料、気象庁資料、エネルギー・経済統計要覧 2004 年版の温室効果ガス世界資料センター (WDCGG) HP

図 1-1-3[3]は年代別の大気中二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 濃度を示している。CO<sub>2</sub> 濃度は、産業革命以降急激に増大しており、自然界が数 10 億年をかけて固定した二酸化炭素を 200 年余りで大気に放出している。このようにエネルギー需要が増え続ける一方で、二酸化炭素の排出量を規制する動きもまた加速している。1997 年の第 3 回気候変動枠組条約締結国会議 (地球温暖化防止京都会議 COP3) では、京都議定書が承認され、2008 年の第 34 回主要

# 第一章

国首脳会議（洞爺湖サミット）では二酸化炭素排出量を半減する目標値が設定された。つまり将来のエネルギー供給源には、「大規模安定エネルギー供給」と「環境保全」という二面性を確保した革新性が求められている。

このような化石燃料の代替新エネルギーとして、NEDO（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）では再生可能エネルギーとして、太陽光、風力、バイオマスなどを筆頭に実用化の検討がなされている（図 1-1-4）[4]。

1. 再生可能エネルギー導入拡大の必要性	5. 太陽熱発電の技術の現状とロードマップ
2. 太陽光発電の技術の現状とロードマップ	6. 波力発電の技術の現状とロードマップ
2.1 技術を取りまく現状	7. 海洋温度差発電の技術の現状とロードマップ
2.1.1 技術の俯瞰	8. その他の再生可能エネルギー等の技術の現状
2.1.2 ポテンシャル	8.1 太陽熱冷暖房
2.1.3 導入目標量例	8.2 中小水力発電
2.1.4 導入実績	8.3 地熱発電
2.1.5 技術開発動向	8.4 温泉熱発電/熱利用
2.1.6 システム価格、発電単価等	8.5 雪氷熱利用
2.1.7 推進施策・関連法令	8.6 海流・潮流発電
2.1.8 ビジネスモデル	8.7 潮汐力発電
2.1.9 国内技術の競争力	8.8 熱電発電
2.2 技術ロードマップ	8.9 圧電発電
2.2.1 目指す姿	8.10 工場等排熱利用
2.2.2 目指す姿の実現に向けた課題と対応	8.11 温度差熱利用
2.2.3 技術開発目標と技術開発の内容	
3. 風力発電の技術の現状とロードマップ	9. スマートグリッドの技術の現状とロードマップ
4. バイオマスエネルギーの技術の現状とロードマップ	10. スマートコミュニティの構築に向けて

図 1-1-4 再生可能エネルギーの構成

独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）再生可能エネルギー技術白書（平成 22 年 7 月）目次録

このような新エネルギーは、地球温暖化の原因となる二酸化炭素の排出の少ないクリーンなエネルギーである。しかしながら、その一方でこれらの電力生産は、自然環境に強く依存しているため、安定的な生産は見込めず、産業や都市機能を維持する大規模発電には不向きといえる。

化石燃料依存のエネルギー供給法に対し、一線を画し、大規模発電システムとして注目されてきたのが、核分裂型の原子力発電システムである。その歴史は、エンリコ・フェルミが開発した黒鉛型より派生し、現在では軽水型へ進歩を遂げた。その結果、エネルギー製造時に二酸化炭素を排出せず、火力発電に匹敵する高エネルギーを得ることが可能となった。原子力発電は、1970 年代から飛躍的に世界に普及し、その発電量は増加の一途を辿ってきた（図 1-1-5）[5]。しかしながら、核分裂型原子力発電もまたその燃料を化石燃料（ウラン）としており、このウランの確認加算埋蔵量は、発電量として、あと 100 年といわれており、無尽蔵ではない（図 1-1-6）[6]。さらに使用済み燃料である高レベル放射性廃棄物処理の問題が残されている。このように核分裂型原子力発電では、つねに高レベル放射性

# 第一章

物質の問題が付きまとい、2011年3月11日福島第一原子力発電所における事故にもみられるように、緊急時のリスクが大きくなるという短所も併せ持っている。

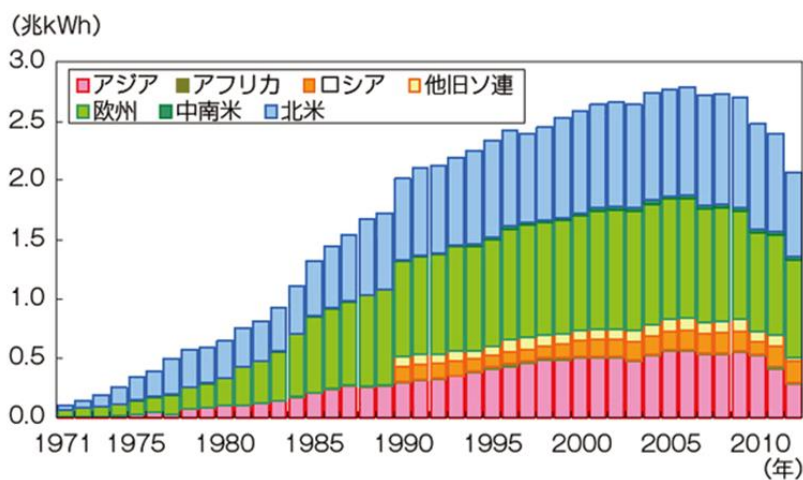


図 1-1-5 世界の原子力発電電力量の推移（地域別）

経済産業省 資源エネルギー庁 HP 平成 24 年度 エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書）2013 第 222-2-2

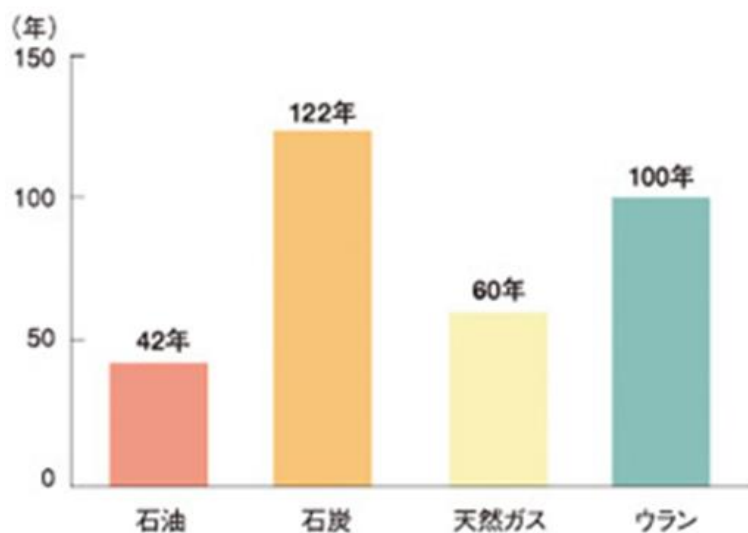


図 1-1-6 世界のエネルギー資源確認埋蔵量

経済産業省 資源エネルギー庁 HP  
BP 統計 2009、OECD/NEA-IAEA Uranium 2007



## 第一章

このような現状を打破するため、次世代のエネルギー供給源として注目されているのが、核融合によるエネルギー供給システムである。核融合エネルギーは、資源量、二酸化炭素排出量、大規模発電システムの観点で、次世代エネルギー源として優れ、現在の原子力発電よりも、環境調和性の高いエネルギーになると期待できる。燃料は水素同位体（重水素やトリチウム）を使用する。重水素は海水より回収する計画となっており、ほぼ無尽蔵である。一方でトリチウムは、核融合炉ブランケット内で、リチウム金属に中性子を照射することにより、発生・増殖する。この手法では既存の核分裂炉とは異なり、使用済み燃料等の高レベル放射性廃棄物をまったく排出することなく、多量のエネルギーを得られるため、次世代エネルギー取得手段の一つとして注目され、世界主要国において精力的に研究開発が進められ、現在、核融合炉システムとしては実験炉建造の段階まで達している。

国際熱核融合実験炉（ITER）計画は、核融合エネルギーの科学技術的な実現の可能性を実証することを目指す大型国際共同プロジェクトである。日本では、2007年に国際協力協定として締結し、このITER計画の主要国として活動するだけでなく、幅広いアプローチ（BA）活動を、核融合材料の開発や中性子源開発、ブランケットなどの炉工学技術の研究開発、原型炉設計などの面から進めている。

### 1.1.2 核融合反応

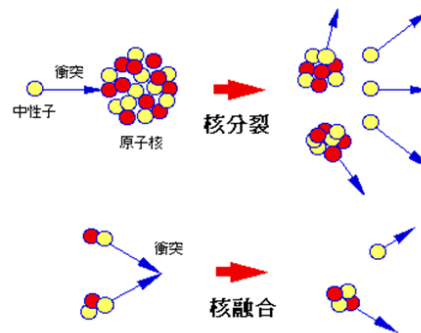
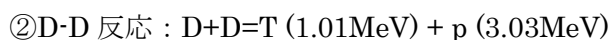
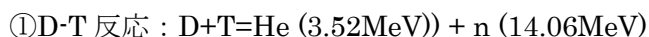


図 1-1-7 核分裂反応と核融合反応

図 1-1-7 は、核分裂と核融合反応の違いを示している。核分裂とは、中性子の衝突により、ウランやプルトニウムといった重い原子核から分裂し、より軽い元素をつくる反応を指す。一方で核融合とは、重水素(Deuterium)や三重水素(Tritium)などの軽元素の原子核どうしを衝突させ、より重い原子核へ変化させる反応である。現在利用可能な、核融合反応として以下の式に示すような反応が検討されている。



ここで、D,T は、それぞれ重水素と三重水素を指し、p,n,He は、それぞれ、陽子、中性子、

# 第一章

ヘリウムを示している。この中で、現在最も実現の可能性が高いといわれる核融合反応は D-T 反応である。この時に発生する熱エネルギーを回収する装置が核融合炉と呼ばれ、実現のためには、持続的に反応させる必要がある。

## 1.1.3 研究炉

現在核融合炉技術は「科学的実証段階」まで達しており、その種類は原子核を衝突させる方式（閉じ込め方式）により分類される（図 1-1-8）。核融合炉の閉じ込め方式は粒子（水素燃料）を加速させる方式により分けられ、研究炉（実験炉の前段階）が開発された。

慣性閉じ込め型は、レーザーを利用することにより粒子を加速・衝突させる手法である。一方で、磁場閉じ込め型は、誘導磁場で閉じ込め、電荷を持った重水素や三重水素を強力磁場で加速させ、プラズマ状態を維持する手法である。これにより核融合反応を起こし、燃料を連鎖的に反応させることにより核融合反応を継続する。一般的に核融合炉実現に向け、求められている点として、プラズマの高密度化、閉じ込め時間の長時間化などが挙げられる。この点において注目を集めてきたのが、トカマク型とヘリカル型である。特にトカマク型は、工学的実証段階（実験炉）へ移行するに当たり、ヘリカル型に比べエネルギーロスが少ないため、発電に適していると考えられている。

核融合炉は、その実現までの段階として、「研究炉」、「実験炉」、「原型炉」、「商用炉」といった位置づけがなされている。研究炉として、JT-60（日本）、JET（欧州）、TFTR（米国）といった装置がつくられ、プラズマの科学的検証段階という位置づけで、高性能プラズマを目標に精力的に研究は行われた。



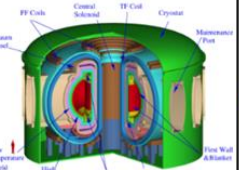
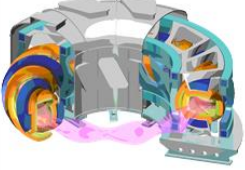
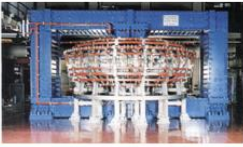
慣性閉じ込め型	直接噴射・間接噴射		レーザー型(NIF)	
磁場閉じ込め型	開放型		ミラー型方式(筑波大学:ガンマ10)	
	閉端型		 	
		トカマク型 (JAEA: JT-60)	ヘリカル型 (NIFS: LHD)	逆磁場ピンチ方式(産総研TFE-RX)

図 1-1-8 核融合炉の分類

## 第一章

### 1.1.4 実験炉

現在は、実験炉の建造段階に入り、炉心プラズマ性能及び工学的機能の実証という位置づけになっている。国際熱核融合実験炉（International Thermal Experimental Reactor :ITER）は、トカマク型の実験炉であり、「平和目的の核融合エネルギーが科学技術的に成り立つことを実証するためのプロジェクト」として位置づけられている。図 1-1-9 は概略図と諸元を示している。

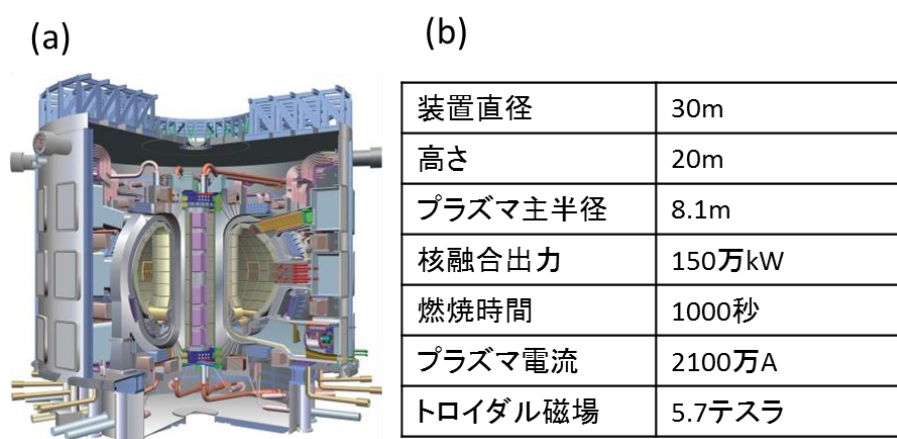


図 1-1-9 ITER 装置の概略

(a)ITER 概形

(b)ITER 諸元

ITER 歴史と計画案について以下に示す。

1985 年：米ソ首脳会談（ジュネーブ）において核融合研究開発の推進に関する共同声明

1988～1990 年：概念設計活動期(CDA)

1992～1998 年：工学設計活動期(EDA)

2005 年 6 月：ITER 建設候補地の決定。

2007 年 10 月：ITER 協定。（7 極:日、EU,米、ロシア、中国、韓国、インド）

2016 年：完成予定

ITER 機構の人員は、本島修 ITER 機構長を筆頭に現在、約 270 名。将来的に、約 700 名の組織になり、建設にかかる費用として、建設費：50 億ユーロ（10 年間）、運転費：50 億ユーロ（20 年間）が見込まれている。さらに ITER は本体の試験とは別に、原型炉に向けたテストブランケットモジュールにて試験が実施される予定（各システムの評価を実施）である。その他にも、基礎技術として「モジュール構造の溶接技術の確認」「トリチウム被膜制御の確認」などの調査対象ある。特に、50 万キロワットの核融合出力を長時間にわたって実現を確認することを目的としている。

その核融合炉建造において、プラズマに直接接する「ブランケット」と「ダイバータ」

は材料に課せられる要求が厳しく大きな研究テーマとなっている（図 1-1-10）。

ブランケットは、主に燃料および中性子の増殖を役割とする部位である。ブランケットの主な役割として、

1. 中性子のエネルギーを熱に変え取り出す
2. 中性子の反応を用いて、使った量以上のトリチウムを生産する
3. 超伝導マグネットの遮蔽

などがあげられ、これまで考案されたブランケットは、主に「固体増殖型」と「液体増殖型」の二種類に大別されている。この分類は、冷却材と燃料の役割を分けるか、同じ物質で行うかといった観点で分けられている（図 1-1-11）。ITER においては軽水を用いた固体増殖型が有力であり、日本はその TBM（Test Blanket module）の納入を予定している。

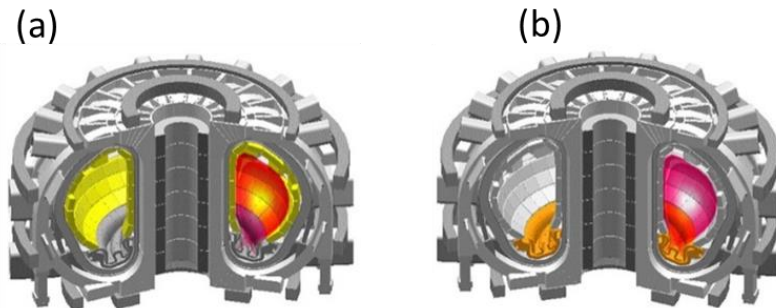


図 1-1-10 トカマク型核融合炉におけるブランケットとダイバータの部位  
 (a)ブランケット  
 (b)ダイバータ

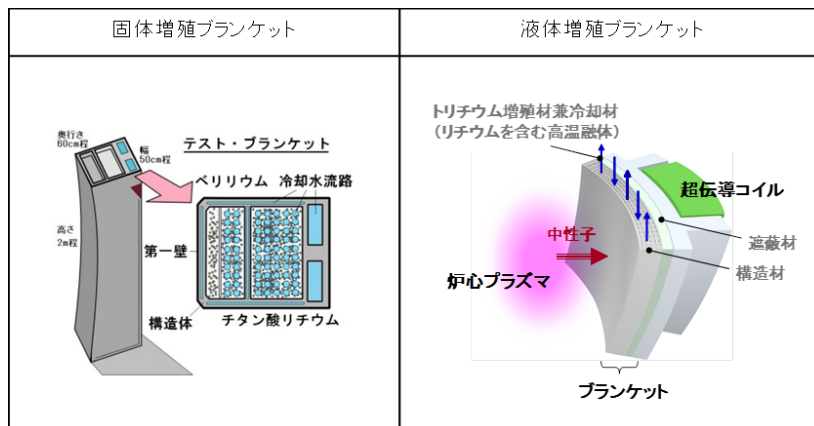


図 1-1-11 ブランケットの分類

ダイバータは、巨大な真空トカマク容器内を真空に保つための吸入口の役割を担う。しかし、この性質がプラズマ雰囲気を過酷なものにし、ディスラプションやエッジ局在モード（ELM : Edge Localized Mode）などのプラズマ非定常状態時には、プラズマ対向材料

に大きな損傷を与えることが懸念されている。ITER では図 1-1-12 に示すようなカセットボディを真空容器内に配置し、ダイバータ全体を構築する。特に日本は外側ターゲットの製作を担っている。

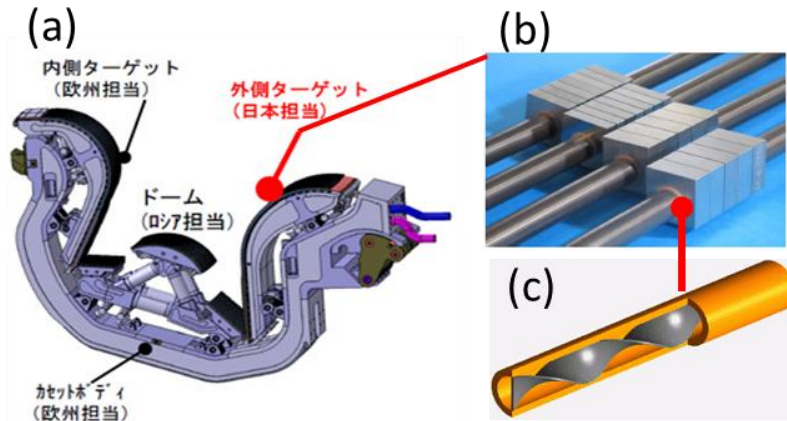


図 1-1-12 ダイバータ内部構造

(a)カセット構造内:日本原子力機構 HP 引用

(b)プラズマ対向部分

(c)冷却管

### 1.1.5 原型炉

ITER の建設が終わり、2050 年頃には、原型炉の段階へ入る計画である。原型炉は、ITER と同等程度の半径トカマクで 300 万 kW 相当の熱出力パワーに達すると考えられている。それゆえ、炉を構成する機器への要求が厳しくなる。現在想定されている熱環境は、歴史上もっとも過酷な高温環境になると想定されており、原型炉以降を見据えても、革新的冶金技術が核融合炉の健全性を維持する上で重要となると考えられる。

表 1-1-1 核融合炉の進歩による環境変化

第一壁による負荷			
負荷	実験炉(ITER)	原型炉	商用炉
中性子壁負荷 (MW/m <sup>2</sup> )	1	5	10
表面熱負荷 (MW/m <sup>2</sup> )	0.5	1	1.5
中性子フルエンス (MWa/m <sup>2</sup> )	0.5	10	20
プラズマ崩壊時定数 (ms)	30	数100	数100
*ダイバータ: x 10 <sup>~20</sup>			

## 第一章

表 1-1-1 には、実験炉から商用炉までの核融合炉内環境の変化を示した。実験炉から原型炉を経て、商用炉に至る過程は、実用化への大きなステップとなり、容易ではない。一般的に、実用化の際には大きな困難を伴う場合が多く、「死の壁 (death valley)」と呼ばれている。この所以は、基礎研究段階で、学術的には成功すると見込まれる事象であっても、いざ応用となると、実用化が困難な状況に追い込まれることが多く発生するためである。特に、核融合における「死の谷」として挙げられるのが「構造材料」の問題であると考えられる。特に実験炉と原型炉の決定的な違いは、燃料を増倍しつつ、長期連続運転を行う点であり、これに付随して構造材料への照射損傷や熱負荷などの要因が各段に増大することが問題となる。

### 1.1.6 核融合炉環境と熱負荷[7;8;9]

核融合炉における環境は「定常状態」と呼ばれるプラズマが安定した環境と「非定常状態」と呼ばれるプラズマが瞬時にパルス的に増強してしまう不安定なプラズマの環境に分類することができる。定常状態に比べ、非定常状態では、熱の放出が格段に上昇し、第一壁部およびダイバータ材料部への損耗が激しくなる。特に、トカマク型ではヘリカル型にはない「プラズマ電流」を流すため非定常状態が顕著になる。このように、トカマク型核融合炉開発においては、非定常状態を想定した材料開発が求められている。以下には非定常状態の例を列挙する。

ディスラプション (Disruption) : プラズマ電流が突如失われる現象で以下の様な現象と共に発生するとされている。

- 1) 電流消滅 : プラズマの急速低温化により、電気抵抗が著しく増大し、プラズマ電流を維持できなくなった状態。
- 2) 熱消滅 : 電流消滅の様な閉じ込め磁場の乱れにより、プラズマに蓄えられたエネルギーが熱として放出される現象であり、磁力線沿ってプラズマ対向危機へ流れ込むことにより、熱負荷を与える。
- 3) ハロー電流 : トロイダル方向へプラズマが移動する (VDE) 現象と共に流れるプラズマ電流。
- 4) 逃走電子 : プラズマ内部で加速されている電子を指す。これがプラズマ崩壊後、第一壁部に衝突することにより対向機器に損耗を与えるとされている。
- 5) 周辺局在化モード (Edge Localized Mode : ELM) : プラズマ状態は、磁場により閉じ込められ、その圧力を制御されているが、この圧力が高くなりすぎると、周辺部に近いペデスタル領域部が崩壊し、その圧力を下げようとする。この時閉じ込められていたエネルギーは熱や粒子として周辺輸送障壁に放出される。これを ELM と呼んでいる。図 1-1-13 は ELM の概要を示している。このような非定常状態も考慮して、プラズマ対向材や構造材料の開発研究が進められている。

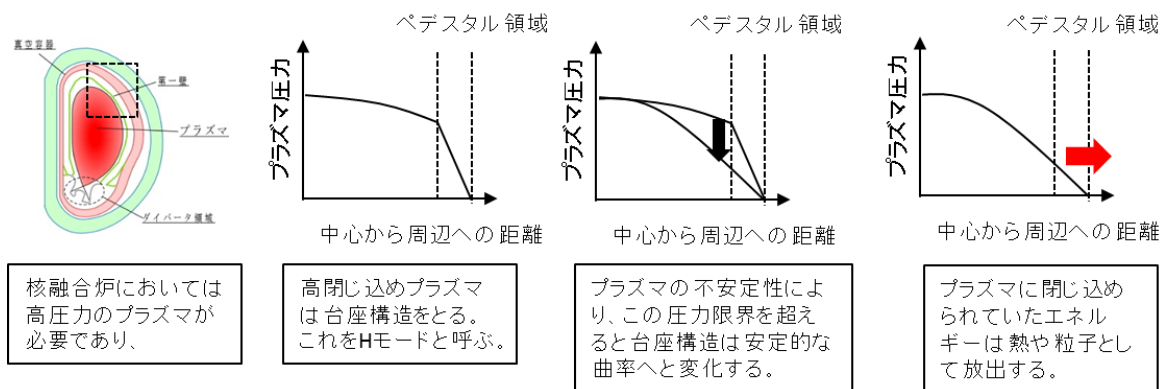


図 1-1-13 ELM 概要

## 1.2 構造材料候補材

### 1.2.1 核融合炉における構造材料

前項で示したように、核融合炉におけるブランケットとダイバータは、最もプラズマに近く、途中に飛散粒子の減速材および遮蔽材が存在しないため、プラズマに直接さらされる。材料にとっては「プラズマによる高熱流束」と「He,H等のプラズマ粒子」、「高エネルギー中性子線」および、「電磁力」が重畳した複合環境となり、非常に過酷な条件となる。

特に原型炉では、照射量がITERとは大きく異なるため、照射による損傷劣化を最小限に抑える金属材料が要求される。加えて原型炉は、将来の商用炉に向けた経済性も視野に入れる必要がある。ここで着目すべき点は、実験炉との違いであり、放射化の要件が必要な点である。使用後の材料の処理・処分を考慮すると誘導放射能の低いことが求められる。金属は複数の元素を合金化状態で使用するのが一般的である。放射化特性は金属元素によって異なる。そこで、放射化しやすい金属元素(Ni, Cu, Mo, Nb, Ag, Al)などの含有量を制限し、放射化しにくい金属元素(C, Cr, W, V, Ta, Ti, Mn, Si, B, Fe)で構成することにより全体として誘導放射能を低く抑えることができる。このような材料は、低放射化材料と呼ばれている。例えば、一般的に鉄合金は耐食性を上げるためCrを添加し、耐熱性向上を目的としMoを添加する。しかし、Moは前述のように放射化元素である。そこでMoの代替元素として、低放射化元素であるWを添加することにより、合金全体として、低放射化特性を付与し、耐熱性向上を図ることができる。図1-2-1[10]は、一般的な耐熱鋼を模擬した添加元素により構成された鉄合金(Fe-9Cr-1Mo)とMoをWに代替した低放射化鋼(Fe-9Cr-2W)において、FER(Fusion Experimental Reactor)により、10 MWy/m<sup>2</sup>の照射を受け、放射化したのちの放射能の減衰の様子を示したものである。二つの金属の減衰より、代替低放射化鋼の方が減衰率は早く、放射線防護の条件下で人間が取り扱える

程度 (Hands-on limit) までに低下していることがわかる。このように、低放射化の要求を満たすべく、既存の汎用合金をベースにこれまで様々な核融合炉材料が検討されてきた。その中で有力な候補材が「低放射化鋼」、「低放射化氧化物分散強化鋼」「バナジウム合金」「SiC/SiC 複合材料」である。これらに関し次項で詳細に解説する。

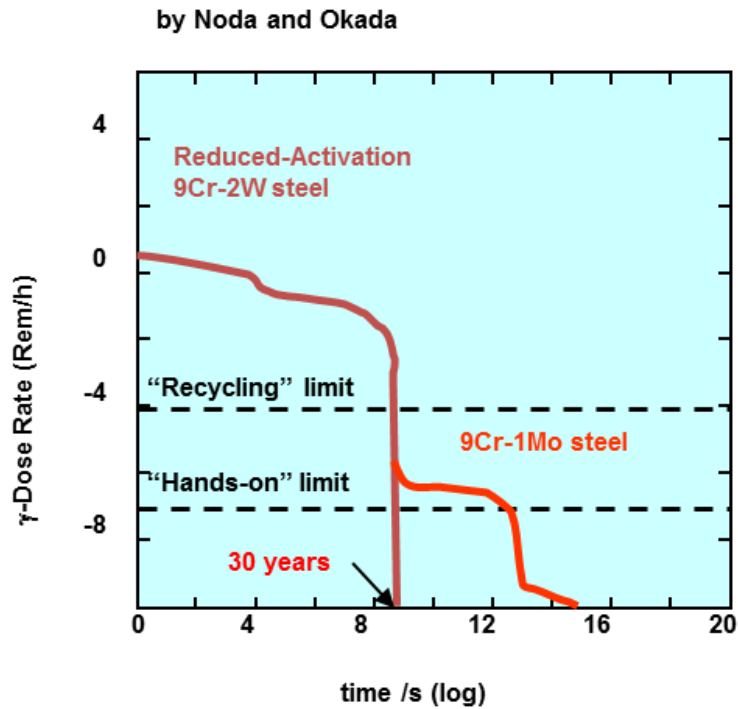


図 1-2-1 低放射化鋼と放射化鋼におけるガンマ線の減衰

### 1.2.2 炉内構造材候補材料

#### ①低放射化フェライト鋼 (F82H) [11]

低放射化フェライト鋼 F82H は、日本原子力機構の開発したマルテンサイト系フェライト鋼である。次期核融合炉用構造材料として期待され、冶金的知見の豊富な候補材料と位置づけられている。これまで、原子力構造材料としては、オーステナイト系ステンレス鋼が主流であったが、中性子減速材が存在しない核融合炉第一壁材料では、耐スウェリング性の向上が求められ、フェライト化が推し進められた。そこで汎用の高クロム鋼をベースに添加元素の置換、不純物元素の制御などの改良が加えられた。表 1-2-1 は候補材 F82H と市販のフェライト鋼 (T91, HT9) の組成である。F82H は市販のフェライト鋼と比較し、高温強度に優れた Mo や Nb は W や V で置換され、窒素などの不純物元素の濃度もまた厳しく制御されているのがわかる。F82H の場合、不純物制御などの製造上の課題は、現在の工業基盤で十分クリアできるといわれている。今後、原型炉・商用炉へ向け、さらなる耐食性の向上、高温強度、耐照射性が求められている。



表 1-2-1 F82H、T91,HT9 における組成

	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	W	V	Ta	Nb
F82H	0.1	0.2	0.5	-	8.0	<5wt.p pm	2.0	0.2	0.04	<1wt.p pm
T91(市販 フェライト 鋼)	0.1	-	-	-	8.5	1.0	-	0.2	-	0.08
HT9(市 販フェライト 鋼)	0.2	0.2	0.5	0.5	12.0	1.0	0.5	0.3	-	-

M.Tamura, et al, Development of Potential Low Activation Ferritic and Austenitic Steel, J.Nucl. Mater, 141-143,p155(1986)

②酸化物分散強化フェライト鋼（デザインウィンドウ）

酸化物分散強化フェライト鋼は、低放射化フェライト鋼をベースにナノレベルの酸化物を分散させることにより、高温強度や耐照射性を飛躍的に向上させた先進材料である。その製造法は、既存の鋳造法とは異なり「機械的合金化法(MA : Mechanical Alloying)」という手法を用いる。混合粉末を高速衝突させることにより、強制固溶状態を作り出し、焼結と同時に結晶粒内あるいは粒界に再析出させることにより、ナノレベルオーダーのサイズの粒子の分散を可能とした。分散による利点として、転位運動の抑制により高温強度の上昇、異相界面の増加による耐照射性の向上がある。図 1-2-2 は低放射化フェライト鋼と酸化物分散強化鋼のデザインウィンドウを示している。これより、耐クリープ性、耐スウェリング性、耐 He 脆化性、耐照射性などが飛躍的に向上していることがわかる。

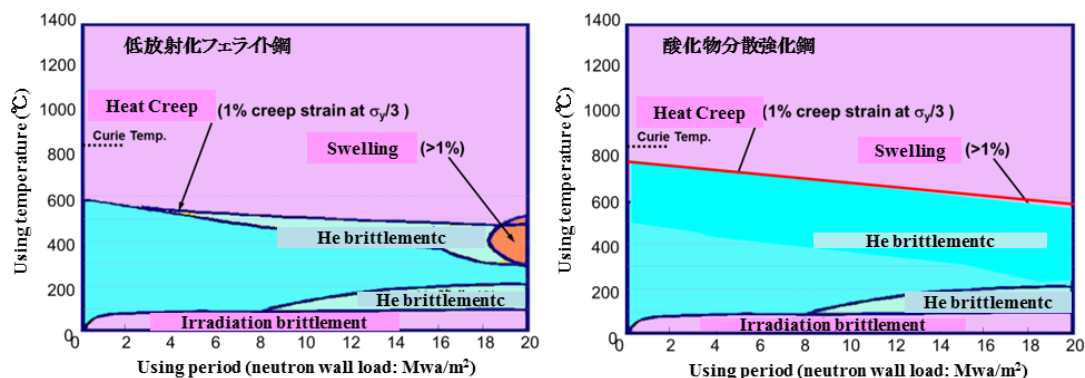


図 1-2-2 低放射化フェライト鋼と酸化物分散強化鋼のデザインウィンドウ

しかし現段階では、分散粒子に起因する熱伝導性の低下などの課題も残っている。以下に各種 ODS 鋼を挙げる。

- ・ 15Cr-ODS フェライト鋼：原型炉ダイバータ支持構造材として期待される。使用想定温度域でフェライトを維持し、耐食性にも優れる[12;13]。

・9Cr-ODS フェライト鋼：マルテンサイト系フェライト鋼に分散強化を施した ODS 鋼であり、F82H に近い組成・組織を有した ODS 鋼といえる。マルテンサイトラス構造を有するため非常に良好な耐照射性を有し、組織に「残留フェライト相」を含むため、靱性に優れた材料である。ブランケット構造材として注目される一方、高速増殖炉燃料被覆管としても期待されている[14]。

③バナジウム(V)合金[15;16;17;18]

V 合金は液体リチウム増殖型ブランケットの使用目的として開発された候補材である。基材となる V は低放射化元素であり、耐熱性、熱伝導性、高温強度に非常に優れた金属である。これをベースに耐食性上げるべく、Cr の添加およびさらなる強度向上をめざし、Ti が添加され、V-Cr-Ti 系を中心に核融合研究所 (NIFS) で長年精力的に行われてきた。その結果、添加元素・添加量・不純物元素の抑制により、現在では、V-4.02Cr-4.13Ti(NIFS HEAT2) が液体増殖型ブランケットの有望な候補材とされている。近年では、V-4.02Cr-4.13Ti(NIFS HEAT2) を超えるべく、ODS 鋼とほぼ同様の手法で開発された酸化物分散強化 V 合金も開発され、耐クリープ性を飛躍的に向上させた研究も報告されている。一方で、これら V 合金の短所として、不純物による脆化が顕著に表れるため、製造が非常に困難である点が挙げられる。

④SiC/SiC 複合材料[19]

炭化ケイ素複合材料は、非常に軽量で、高温強度に優れる。さらに燃料による耐腐食性にも優れ、ブランケット構造材料として期待されている。

図 1-2-3[20]は、一般的な SUS316 ステンレス鋼と上記に挙げた候補材料に関し、核融合炉停止後（中性子流速 4.15MW/m<sup>2</sup>, 2.5y 照射後）の誘導放射能の減衰を示している。通常のオーステナイト鋼（316 鋼）では再利用は望めないことがわかるが、低放射化候補材は 20~100 年の冷却で再利用が見こめる。

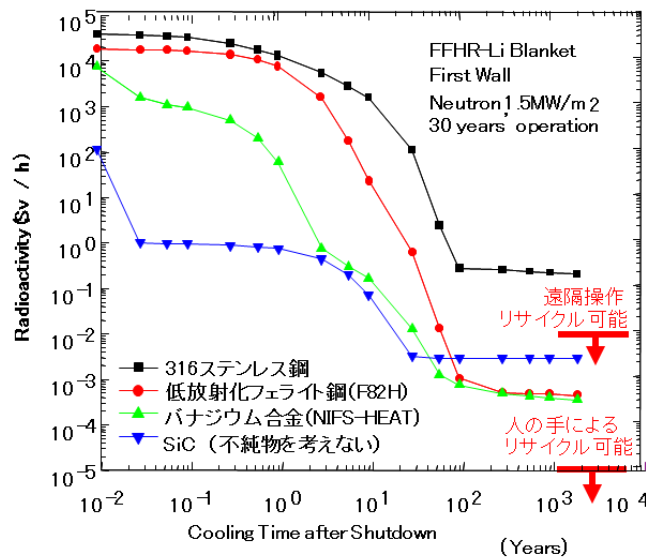


図 1-2-3 候補材料の誘導放射能

### 1.2.3 プラズマ対向材料候補材[19]

核融合炉内において、プラズマに直接接する部分には、プラズマ対向材料 (PFM: Plasma Facial Materials) と呼ばれる高融点金属の使用が想定されている。この PFM として求められる要件として、「スパッタリング率が低い」、「高融点である」、「熱電伝導性に優れる」、「水素同位体に対するリテンション性 (水素同位体保持放出) が小さい」などが挙げられる。そこで注目されてきたのがタングステン (W) と炭素繊維強化炭素材 (CFC: Carbon Fiber Composite) である。しかしながら CFC 材料は低 Z 材であり、これに起因し、核融合プラズマ中に容易に混入し、良好なプラズマ状態を維持できないという欠点も持っている。近年、ITER では PFM 材料のすべて W でまかなう決定がなされた。(フル W 計画) しかし W に関して力学的特性など構造材料としての適用性の調査が不足しているため、W 自体の特性調査が求められている。その W に関し、一般的特性と、核融合炉適用を見据えた上で懸念される問題点を以下に示す。

#### 1) W の一般的性質

タングステンは、地殻中における存在量が少なく、希少金属 (レアメタル) の一つとされている。周期律表の中で、6 族 6 周期に属し、その金属特性としては非常硬く、高温強度の高い金属として一般的に知られている。タングステンの名称は、1781 年スウェーデンの Carl Wilhelm Scheele が三酸化タングステンの分離に成功し、タングステン酸と命名したことに始まる。その後、1783 年、スペインのファン・ホセとファウストのエルヤル兄弟がタングステン酸を木炭で還元し、初めて単体を得てウオルフラムと命名した。タングステン(Tungsten)とは、スウェーデン語で「重い石」という意味を持ち、元素記号の W はドイツ語の WOLFRAM (ウオルフラム) だといわれている。この語源は、タングステン鉱石 (鉄マンガン重石=wolfart) から来ているとされ、錫鉱石の中に混入すると、鉱屑を生成し、錫の精製を阻害することから、錫を狼のようにむさぼり食べるという意味で名付けられた。W の一般的金属特性を表 1-2-2 に示す。この表に示されているように、W の融点は 3695K (3422°C) であり、金属元素中で最も高い。さらに熱伝導性にも非常に優れていることがわかる。加えて、水素同位体に対するリテンション性、耐スパッタリング性などの PFM 材料としての特性を兼ね備えている。

# 第一章

表 1-2-2 W の金属特性

原子番号	74
原子量(g/mol)	183.85
原子半径	0.137 nm
構造	BCC (a=0.3165nm:298K)
融点	3695 K
沸点	582 8K
密度	19.30 g/cm <sup>3</sup>
蒸気圧	10 <sup>-2</sup> Pa(3000K)
熱伝導率(300K)	173 W/m・K
熱膨張率(25°C)	4.5×10 <sup>-6</sup> /°C
中性子吸収断面積	19 barn

## 2) 製造方法 [22;23]

W は、鉄マンガン重石と灰重石の鉍石より生産される。この原石の主要産出国は中国である。中国への W の依存度は高く、2010 年の時点で生産量は 52000 トン、埋蔵量は 190 万トンといわれ、世界の 8 割を占める (図 1-2-4)。そのためニッケル、コバルトなどと共に備蓄元素として指定されている。

採掘された原料は粗鉍 (品位は WO<sub>3</sub> 1%程度) として分別され、その後、粉碎、選鉍 (比重法、静電法、浮遊法) により WO<sub>3</sub> が 65%以上にした状態にすることが求められ、これを W の精鉍と呼ばれる。精鉍となった W は、適度な粒径まで粉碎され、湿式により精錬過程に入る。

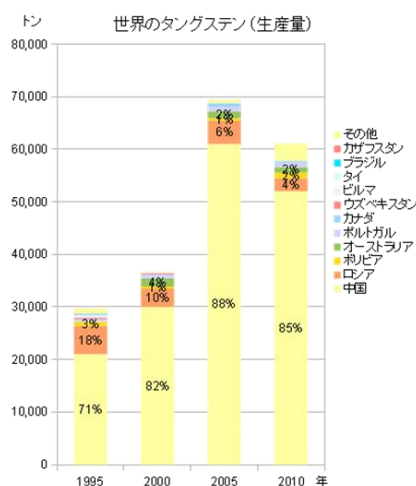


図 1-2-4 W の国別生産量

(出典) USGS 「Mineral Commodity Summaries(鉍物商品概要)」

3) 成形工程[23;24;25]

図 1-2-5 は、精錬後の固化成形のプロセスを示している。W の製造固定において、精錬工程後は粉末状態となる。そのため、固化のためのプロセスを必要とする。一般的に、固化成形には冷間等方圧(CIP: Cold Isotactic Pressure)で行われる。この工程ではゴムモールドに詰められた W 粉末を水または油媒体にて 100~150MPa の静水圧により圧縮成形する。この後、水素気流中 1,300~1,500K で予備焼結を行い、最終的に通電し抵抗加熱により約 3,000~3,300K で焼結する。

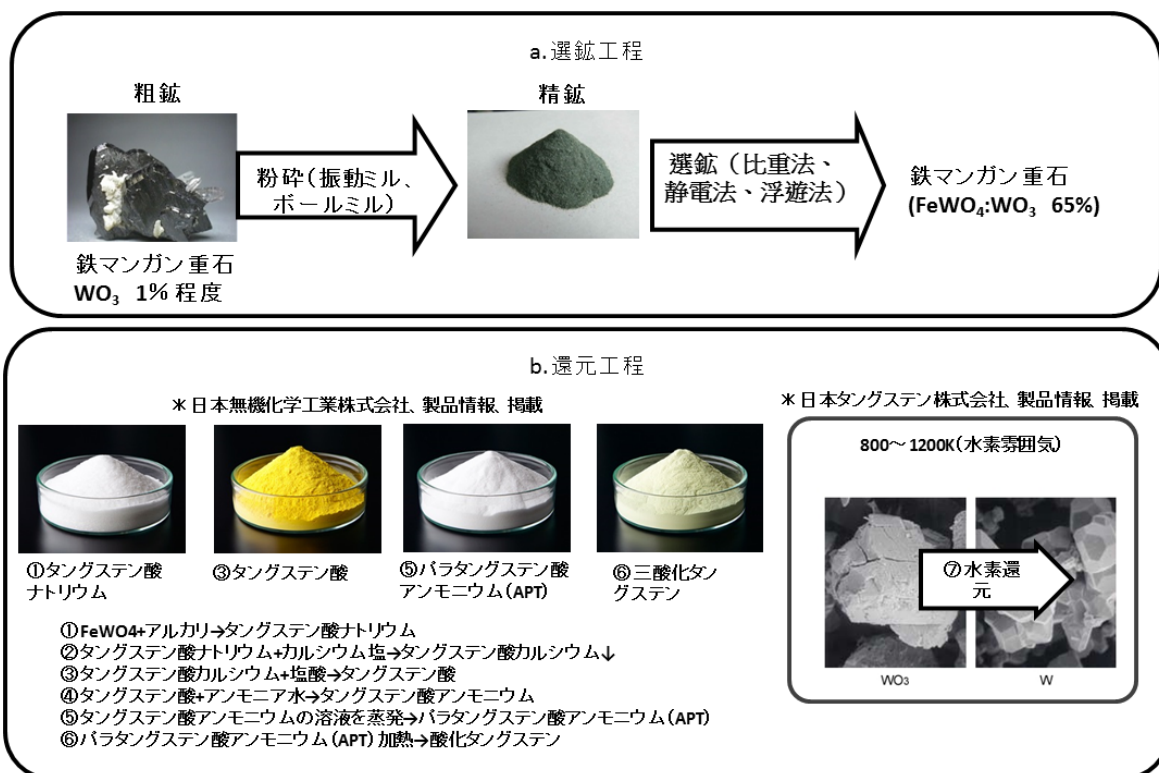


図 1-2-5

タングステンの精錬工程

(a)選鉱工程(b)還元工程

図 1-2-6 は、各種加工方法を示している。焼結体は「熱間圧延」や「熱間鍛造」、「スウェーピング」といった手法により、塑性加工が加えられる。これにより、固化成形段階よりも格段に密度を上昇させ、靱性を持つように組織制御される。また等軸粒 W を製造する手法として「熱間静水圧プレス(HIP)」という方法もある。これは、カプセル封入された粉末 W をおよそ 1800K、180MPa の温度と静水圧で高温焼結する手法である。W は圧延率が高くなるほど再結晶脆化が顕著になる。これは圧延率の増加に伴い、再結晶脆化開始温度が低下するためである。1400~1800℃での加工では、板材 W の板厚を薄く成形する場合、加工率に従い、圧延温度を下げる手法がとられ、1mm 以下の箔や線材では、600~1000℃と

# 第一章

いった低温で圧延が施される。このため、圧延の際は断面縮小に伴い、一回圧延の断面縮小の10~20%ごとに歪除去焼鈍を行う。このように圧延工程では、厚みごとに異なる加工度に応じて、圧延温度を下げる事が重要となる。

**3. 固化工程CIP(100~150MPa)**

**4. 予備焼結**

水素気流中  
1,300~1,500K

**5. 通電焼結**

抵抗加熱により約  
3,000~3,300K

**6. 加工工程**

熱間圧延

**Rolling Plates**

1. 10~20%/pass  
2. 歪とり焼鈍

スウェージング

**Rolling/Swaging Rods**

加工温度(K)	加工度と材料
1800	圧延率が大きくなるほど加工温度も下げる。
1400	
1000	1mm以下の箔や線材
600	

熱間静水圧プレス(HIP)

図 1-2-6

タングステンの成型工程

## 第一章

表 1-2-3 は成形工程の異なる純Wにおける密度の相関を示した[26]。これはアルキメデス法により、圧延面に平行に切出された試験片 (10<sup>l</sup>x10<sup>w</sup>x1.0~2.0<sup>t</sup>mm) に対し、測定された。この結果、製造工程における加工法により、密度が異なることがわかる。圧延により製造された 1.0mm~12.0mm 厚の W では、圧延加工度が高い薄厚 W ほど密度が高い。これに対し、HIP により製造された W (エスタン) の密度は圧延加工の W より低かった。これは閉鎖されたカプセルを使用し、圧縮されるためと考えられる。真空プラズマ溶射 (VPS) 法による W の密度は、溶射法を変えて比較した (第 1 章 1.2.3 参照)。旧手法と比較し、新手法では密度の上昇が認められた。このように W は、成形工程により、密度に違いが生じる特徴を持つ。

表 1-2-3 成形工程の異なる純Wにおける密度の相関

\*理論密度 19.30g/cm<sup>3</sup> (日本タングステン社)

W種類	アルキメデス法測定時形状(mm)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	相対密度 (%)
1.5mm厚W	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x1.5 <sup>t</sup>	19.28	99.90
2.0mm厚W	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x2.0 <sup>t</sup>	19.27	99.84
10.0mm厚W	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x2.0 <sup>t</sup>	19.24	99.69
12.0mm厚 (ITER grade W)	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x1.0 <sup>t</sup>	19.24	99.69
エスタン	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x1.0 <sup>t</sup>	19.07	98.81
新VPS法	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x1.0 <sup>t</sup>	17.66	91.50
旧VPS法	10 <sup>l</sup> x10 <sup>w</sup> x0.5 <sup>t</sup>	17.07	88.46

#### 4) タングステンの組織制御

W は元来、VIA 遷移金属に特有な原子間の強い共有結合性のために、焼結材におけるランダム粒界のエネルギーが高く、これに起因し、粒界脆化を引き起こす。図 1-2-7-a には加工を施していない状態の W の破面を示した。この破面より、粒界脆化に起因する割れが発生している。図 1-2-7-b には圧延後の組織を示した。圧延した厚さ部分は圧延方向に平行に組織が形成していることがわかる。この手法により、結晶粒配向を一軸方向へ向けることができ、整合性の悪いランダム粒界を減少させることができる。W の靱性化には、このような粒界脆化を防止するための熱間圧延や線引き等といった強塑性加工により、結晶粒界を応力軸に平行な配向に組織制御する方法が採用されている。

図 1-2-7-c には、加工集合組織による延性化の例を示す。初期状態の W では降伏は見ら

れないが、歪除去焼鈍と圧延を施すことにより延性が発現していることがわかる。このように W は加工による組織制御により靱性化が可能である。

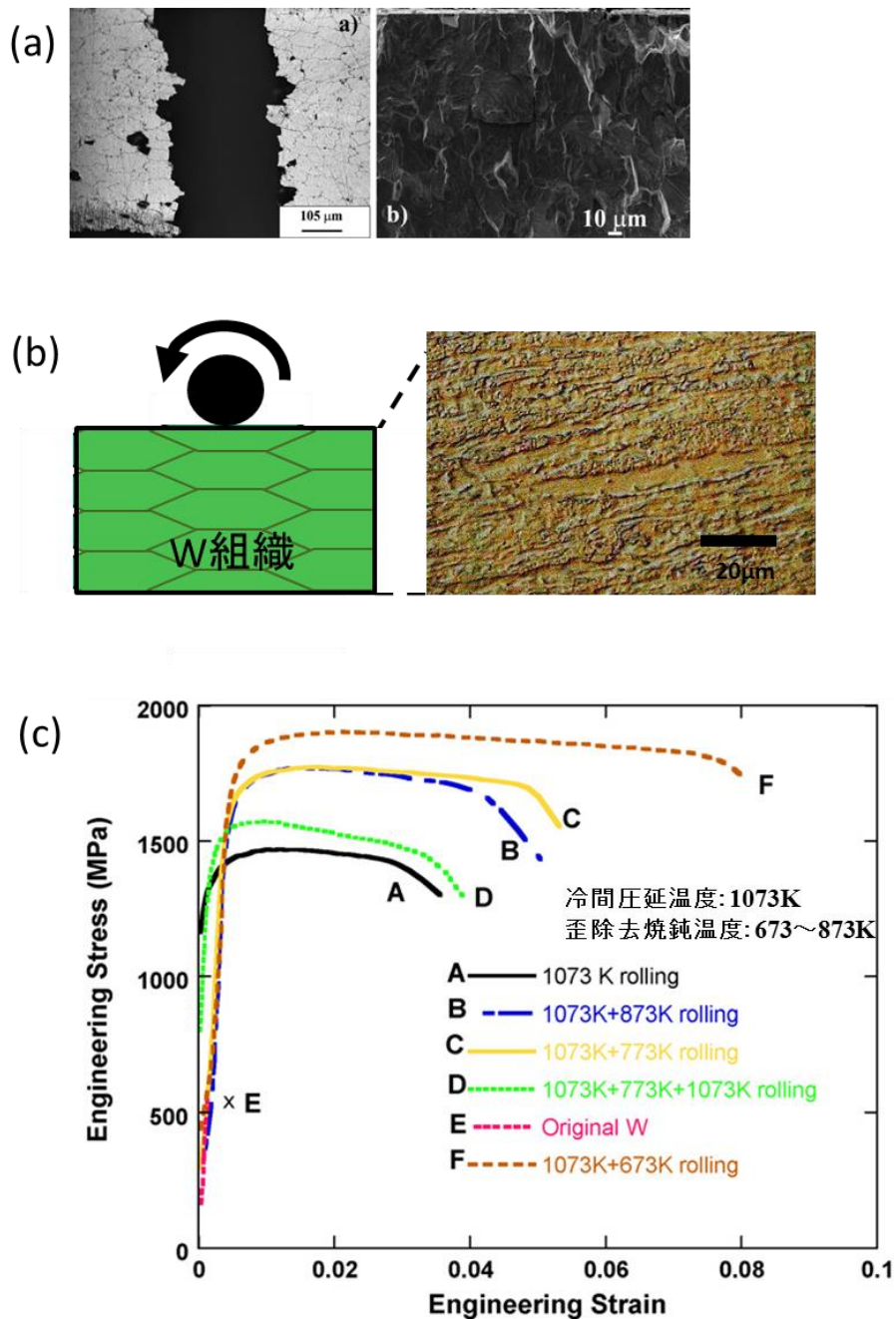


図 1-2-7 圧延加工組織による靱性化技術

- (a) 初期Wの粒界脆化に起因する割れ例
- (b) W における加工集合組織の例
- (c) 加工集合組織における延性化



## 5) 再結晶

圧延により韌性化できる W は線材や薄板材に限られるとともに、そのような塑性加工材は再結晶温度が低く、高温加熱中に再結晶を生じて粒界脆化（再結晶脆化）を引き起こす。図 1-2-8 には、2mm 厚 W/純鉄拡散接合後の焼鈍による W 結晶粒比較を示した。拡散接合は、W 圧延面と接合面が平行に配置されている。(a) は 1240°C1 時間拡散接合後である。この段階で、W 組織は加工組織が等軸化していることがわかる。これが(b)の同温度での長時間化、(c)の高温化に伴い、さらに結晶粒の粗大化が顕著にみられた。このように、W は高温下で再結晶により、加工集合組織の維持ができなくなり脆化する。

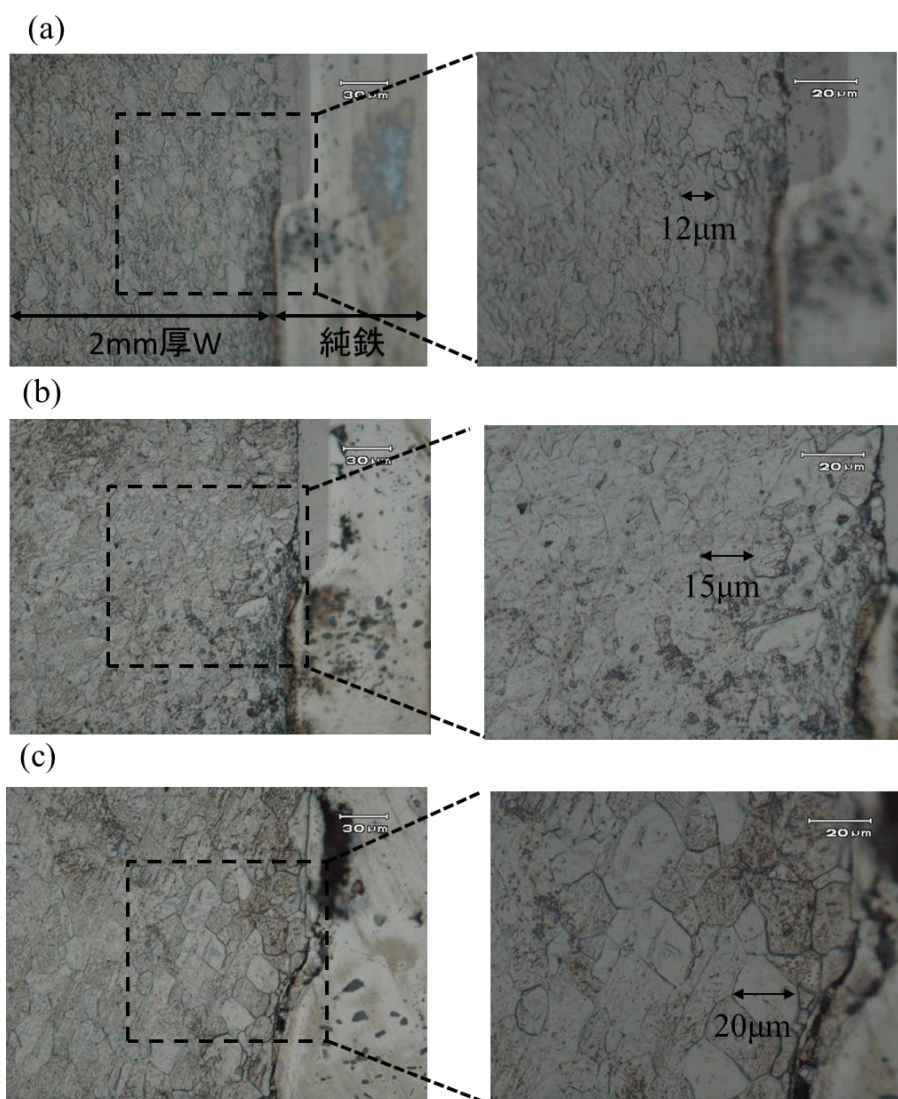


図 1-2-8 2mm 厚W/純鉄拡散接合後の焼鈍による W 結晶粒比較

(a) 1240°C1 時間熱処理後

(b) 1240°C3 時間

(c) 1240°C3 時間+1400°C1 時間

以上のように W は一般的な製造方法では、核融合炉への直接の適用には問題点がある。現在、実験炉以降の核融合炉における PFM として期待されている W を以下に紹介する

①VPS-W[27]

真空プラズマ溶射法(VPS 法 : Vacuum Plasma Spraying Method)は、チャンバー内を減圧環境下にし、アルゴンと水素の混合ガスをプラズマジェットとして基板へ溶射する技法である。溶射法は、複雑な基板への被覆が可能であるなどの理由から、これまで核融合炉第一壁を想定し、様々な溶射法が試みられてきた (図 1-2-9)。その中でも VPS 法は、基板への投锚効果や、他の溶射法よりも気孔を抑制できる理由から、現在注目されている。この VPS 法に関し、近年九州大学の徳永らにより、この VPS-W 部分特性が評価された。F82H を基盤とし、VPS 法を施した試験材に対し、核融合研究所 ACT による電子線ビーム型熱負荷試験の結果、5.5MW/m<sup>2</sup>16 サイクルまで耐えることが判明した。さらに徳永らはこの VPS 製膜方法の改良に着手しさらなる高密度化に成功した。

<b>気相析出法</b> <b>(VD法;Vapor Deposition)</b>	<b>物理気相析出法</b> <b>(PVD法;Physical Vapor Deposition)</b>
	<b>化学気相析出法</b> <b>(CVD法;Chemical Vapor Deposition)</b>
<b>プラズマ溶射法</b> <b>(PS法;Plasma Spray Method)</b>	<b>減圧プラズマ溶射</b> <b>(VPS法;Vacuum Plasma Spray Method)</b>
	<b>大気中プラズマ溶射</b> <b>(APS法;Atmospheric Plasma Sparaying)</b>

図 1-2-9 F82H 基板に対し試みられてきた溶射法の分類

②高靱性化 W 合金[28~35]

固体 W は、一般的に熱間鍛造で成形される。ITER ダイバータに用いられる W(ITER GRADE W)もまた、厚さが 12mm 程度まで圧延された W をターゲット面に垂直に配置される予定である。しかし、このような圧延 W は、結晶粒配向性が強度に影響を与えることが懸念されている。W は高温で再結晶脆化を引き起こすため、その脆性的な特徴は核融合炉設計において、解決すべき重要な課題ともなっている。そこで栗下らは、粉末冶金法により、分散粒子を粒界の「つなぎ手」として分散させることにより革新的な W 合金を製造した。図 1-2-10-a,b には W-TiC 合金の製造過程を示す。初期の合金化法 (①~②) は鉄基分散強化合金 (ODS 鋼) などと同じである。③の GSMM 処理は、微細粒超塑性変形にみられる「粒界すべり変形」を圧縮変形で与える工程である。これにより、整合性が悪い粒界に、整合性の良い分散粒子 (W-TiC) が配置される。このため整合性の悪い異相境界を減少させることができる。この TiC の量は 1.1Wt% が最適であるとされ、W-1.1wt%TiC 合金

が完成した。この合金は、室温でも延性が発現し、W 合金の中では、最も高い 4GPa 以上の破壊強度を記録した。この合金の最大の特徴は、すでに再結晶状態でありながら靱性化に成功している点であり、再結晶脆化のない W といえる。この合金の延性脆性遷移温度 (DBTT) は 235K であり、室温を下回った。この合金に対し、電子線ビーム型熱負荷試験器 (独国ユーリッヒ研究所 JUDITHs) を用いて、ITER-ELM と同等条件で熱負荷を与えても全くき裂を発生させず、高靱性を保っていた。

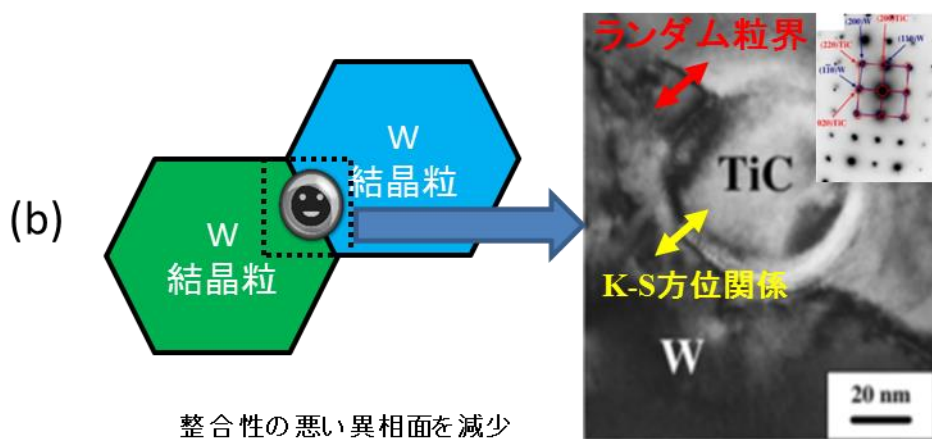
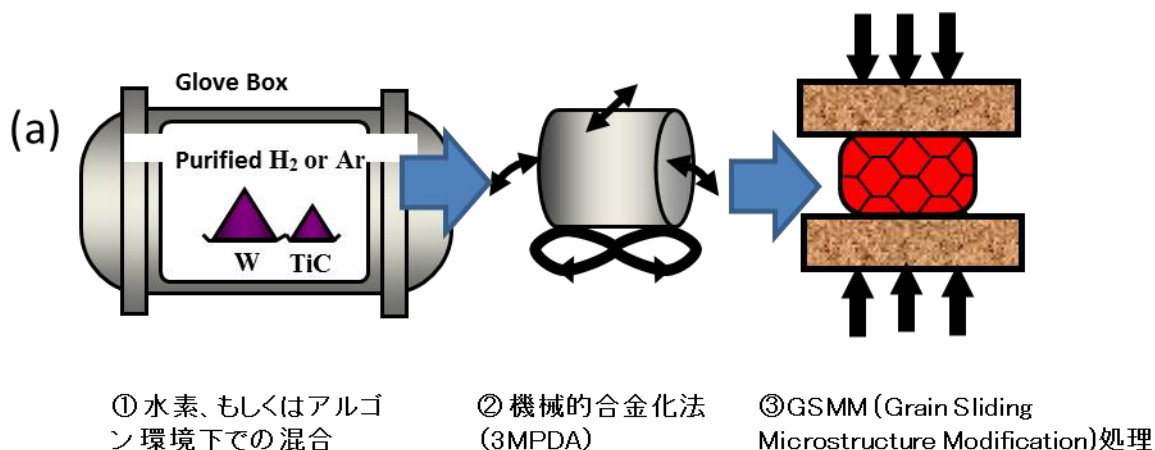


図 1-2-10 粒界強化 W における粒界強化法(W-TiC 合金)

(a)製造工程概要

(b)結晶粒界における分散粒子の効果

#### 1.2.4 炉材料における課題

構造材料としては、低放射化、高温強度、高い熱伝導性などの条件が求められ、これら候補材の接合部においても、母材同様の条件が求められる。特に構造材料設計において、接合の重要性はますます高まってきている。ダイバータ部分は核融合炉において最も過酷な環境にさらされる。現在は研究段階ではあるが、将来の核融合炉の PFM において、固体

## 第一章

純 W では対応が困難となる可能性が高く、ダイバータ部分では高靱性化固体 W の被覆が検討されている。一方で、W は崩壊熱が大きいため、その使用量に制限をもたせようという計画もあり、その一例がモノブロック型から、平板型へシフトの計画である(図 1-2-11-a,b)。しかし平板型では W との接合界面における接合後の熱応力が大きくなり(図 1-2-11-c)、接合部に亀裂の生じることが懸念される。従って、平板型で支持構造体に接合するためには、熱応力を緩和する技術が必要となる。この時、中間材を用いて、異材間の熱応力を緩和することは非常に効果的な手法であると考えられる。つまり先に述べたような接合に関する条件とは、応力緩和中間材に求められる要件ともいえる。

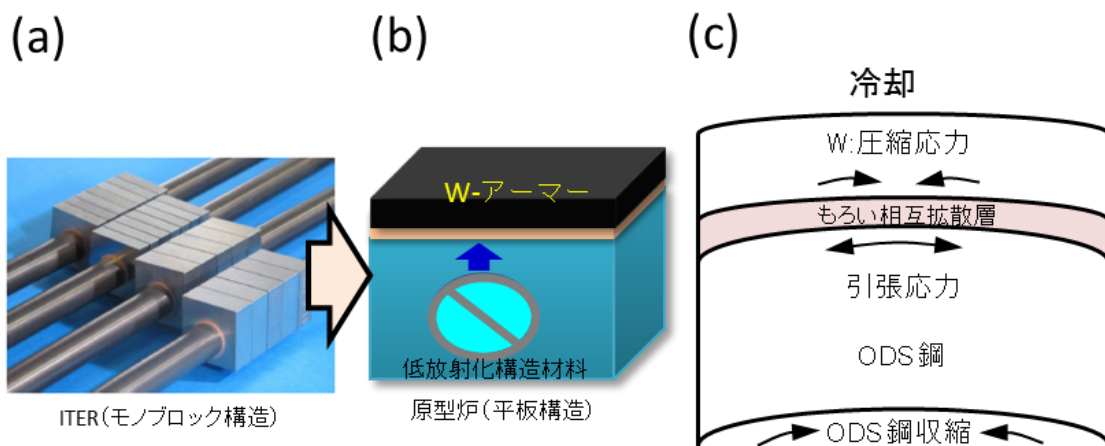


図 1-2-11

- (a) ITER におけるモノブロック型ダイバータ
- (b) 原型炉における平板構造型ダイバータ
- (c) W/ODS 鋼接合時における熱応力

### 1.3 従来の接合法

#### 1.3.1 低融点アモルファス中間材を用いた同材接合

低融点アモルファス中間材を使用した核融合炉および原子炉用材料の接合は十数年前より行われてきた。特に酸化物分散強化鋼の同種接合については、KAN らによる研究がある[36:37]。低融点アモルファス中間材は、鉄に Si や B、C といった添加元素を加えることにより、融点を下げた合金である。一般的に図 1-3-1 に示すように Fe-X 系では共晶点を下げることができる[38]。これを三、四元系共晶合金として、融点を降下させる。さらに延性を発現させるため非晶質化、箔状に成形され、一般工業的には、軟質磁性材料として使用されている。

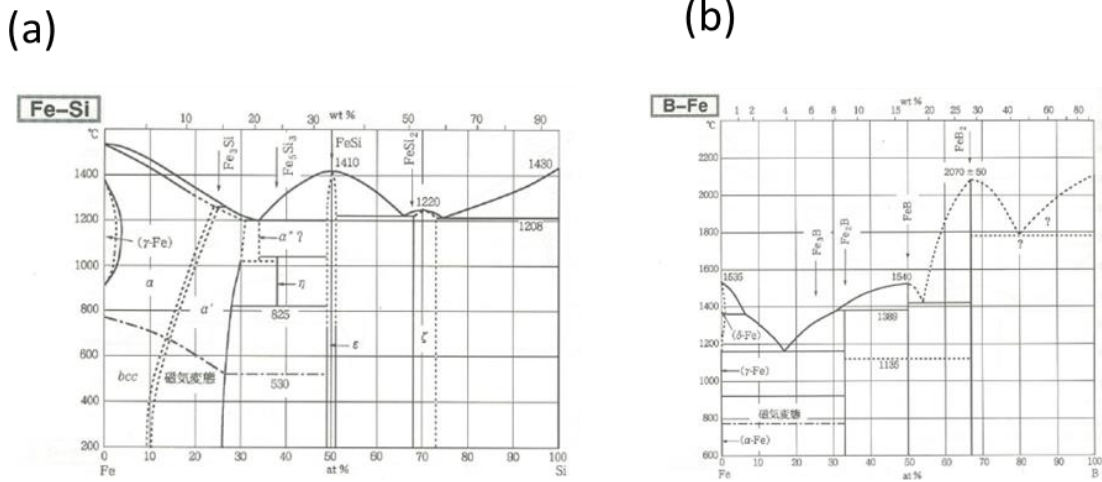


図 1-3-1 融点降下元素による鉄基の影響

(a) Fe-Si 系状態図

(b) Fe-B 系状態図

この中間材が溶融する温度での拡散接合は、液相拡散接合(TLPB :Transient Liquid Phase Bonding)となることが多く、TLP 接合は、図 1-3-2 に示すように、鉄に対する融点降下能力を持った添加元素が母材に拡散することにより、母材を等温で溶解・凝固させる界面反応型接合の一種である[39~42]。この接合は、溶融接合とは異なり、溶解部分が非常に微小であり、割れ、変形、残留応力が発生しにくい特徴を持ち、ブラケット材料の接合法として注目されてきた。

しかし、これとほぼ同じ中間材を使用して 9Cr-ODS 鋼を接合した場合[43]、融点降下元素の侵入により、拡散影響部の形成が確認され、元素の残留や溶融部分の結晶粒粗大化などの問題の生じることが判明した。

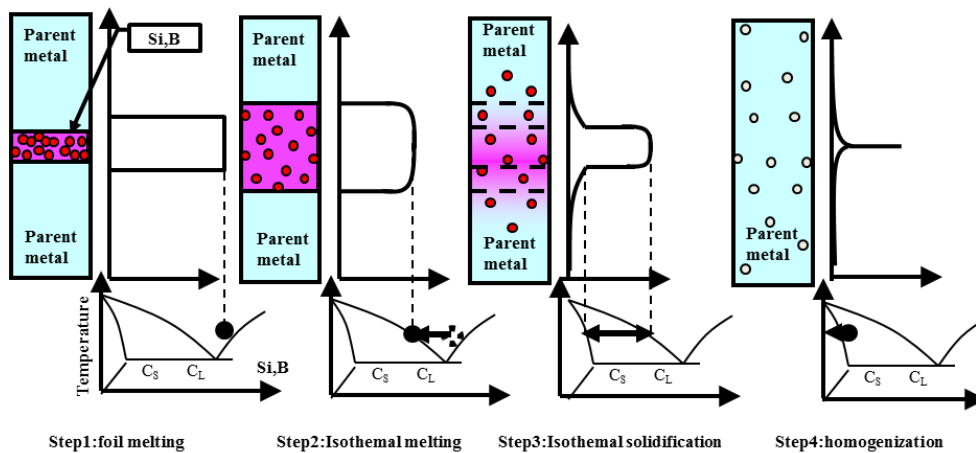


図 1-3-2 TLPB の接合機構

しかし、これを解決すべく中間材の組成を改良した結果、溶融部分の粗大化を防止することに成功した[44]。これにより異材接合において、この中間材への適用した場合にも同じような溶融部の結晶粒微細化が可能であることが示唆された。

### 1.3.2 低融点アモルファス中間材を用いた異材接合

原型炉において、ダイバータ冷却構造は様々な型が検討されている。その中の一例として欧州では、**9 finger module** と呼ばれる設計が期待されており[45]、**W** の支持構造材料として、**ODS 鋼**が期待されている。このように、**W** と酸化物分散強化鋼の接合は極めて重要な位置づけとなっている。しかしその熱膨張係数は、 $CTE(W) = 4.91 \times 10^{-6}/^{\circ}C$  ( $1000^{\circ}C$ )、 $CTE(ODSS) = 13.25 \times 10^{-6}/^{\circ}C$  ( $1000^{\circ}C$ ) と大きく異なる。この熱膨張差は接合後の冷却段階において熱応力として **W** に蓄積し、き裂を引き起こす。

Ohno、Noh Saunghoung らは、**W/ODSS** 間に **Fe-3B-5Si** の低融点アモルファス中間材を用いて、ろう材付接合を行い、中間材の有無による強度を評価した[46]。その結果、中間材を使用した場合、**W/中間材**界面はろう材接合となり、**中間材/ODSS** 界面は **TLP 接合** となった。なお中間材を使用しなかった場合、固相拡散接合 (**SSDB : Solid Solution Diffusion Bonding**) となった。この接合体によるねじり試験を行った結果、中間材を用いたろう材接合のほうが高い強度を示した。この接合断面を観察した結果、中間材の組織結晶粒に変形がみられた。これは **W/ODSS** 間の熱応力により中間材部分に変形したものと考えられる。この接合断面にナノインデンテーション硬さ試験を実施した結果、ろう付け接合では、中間材部分で **W**、**ODSS** に比べ低い硬さを示したのに対し、**SSDB** では界面付近では、非常に高い硬さを示した。これらの結果より、低融点アモルファス中間材は、応力軽減層として働き、その変形能を利用した塑性的応力緩和が可能であることが明らかになった。しかしこの中間材を使用した場合、以下のような問題が生じていたと考えられる。

1) アモルファス中間材における添加元素の問題:**B,Si** といった融点降下元素の影響により、**ODS 鋼**側には、結晶粒粗大化領域が生じ、**W** 側には **WB** として拡散相が形成することが確認されている。加えて、これらの添加元素は、拡散後残留する。ホウ素 (**B**) は中性子照射により、**He** 生成元素として働く。**He** は金属内部で気孔として発生・凝集し、脆化を引き起こす。また、珪素 (**Si**) は電磁鋼の添加元素制限にみられるように、鉄に対し、**4wt%**以上で室温脆性を発現する。異材接合の熱応力は、冷却過程で発生し、室温で最も高くなる。よって室温における脆性は、応力緩和中間材にとって大きな問題である。

2) 厚みの制御：構造材料の設計においては、母材 (**W,ODS 鋼**) の形状により、熱応力が変化する。この場合、熱応力緩和中間材の厚さ制御は必要不可欠となる。しかしながら、溶融を伴うアモルファス中間材では、凝固・収縮により、接合後の厚さを制御することが難しい。

### 1.4 本研究の目的と博士論文の意義

ITERをはじめ、原型炉、商用炉に向けた材料研究において、Wをプラズマ対向材料とし、ODSSやF82H鋼といった鉄鋼材料を構造材料に用いた接合体の製造技術は重要な位置づけとなっている。しかし、これら異材接合における大きな熱膨張差による熱応力は、接合の健全性を欠くことが懸念されるため、この熱応力を緩和する技術が必要不可欠となると考えられる。この接合体の製造においては、「接合体の熱伝導性」、「低放射化中間材」、「高融点中間材の使用」といった核融合炉適用を見据えた条件の付加が望ましい。しかし、これらの条件を満たすWとの異材接合法は、現在のところ存在しない。本研究では、核融合炉への応用をめざし、WおよびODSSの異材接合部の健全性を高めるため、接合部における熱応力緩和法として、中間材を適用することに着目し、接合部の健全性に及ぼす中間材の影響を調べるとともに、新たな異材接合プロセス技術の開発を目的としている。

## 第一章

### 参考文献

- [1]資源エネルギー庁 エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書）2013 第 221-1-1
- [2]資源エネルギー庁 エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書）2013 第 211-3-1
- [3]気象庁資料、エネルギー・経済統計要覧 2004 年版の温室効果ガス世界資料センター（WDCGG）
- [4]新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）再生可能エネルギー技術白書（平成 22 年 7 月）目次録
- [5]資源エネルギー庁 エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書）2013 第 222-2-2
- [6]BP 統計 2009, OECD/NEA-IAEA Uranium 2007
- [7]鎌田裕、大山直幸、杉原正芳：J.Plasama Fusion Res. Vol.82, No.9 (2006)566-574
- [8]河野康則、杉原正芳、飛田健次：J.Plasama Fusion Res. Vol.86, No.1 (2010)3-16
- [9]中村幸治：プラズマ・核融合学会誌 Vol.77, No.9(2001)843-856
- [10]F.Abe et al., J. Nucl. Mater., 195 (1992) 51-67
- [11] S.Jitsukawa et al., J. Nucl. Mater., 307-3011(2002)179-186
- [12]A. Kimura et al., J. Nucl. Mater, 417(2011)176-179.
- [13]A.Kimura et al., Proc.10th ICAPP (Atomic Energy Society of Japan,2009) pp.9220-1~9220-8
- [14]鶴飼重治 et al,まてりあ 第 44 巻 第 9 号(2005) P.749~P.756
- [15] T.Muroga et al, J. Nucl. Mater, 307-311(2002)547-554
- [16]T. Sakamoto et al., Materials Science and Engineering, A528(2011)7843-7850.
- [17] T. Sakamoto et al., Materials Transaction, Vol.47, No.10(2006)pp.2497-2503
- [18]H.Kurishita, et al., J. Nucl. Mater, 343(2005)318-324
- [19]Y.Katoh, et al., J. Nucl. Mater.,367-370(2007)659-671
- [20]室賀 健夫, Sokendai journal ,12(2007) 32-37
- [21]I. Smid et al., J. Nucl. Mater. 258-263(1998)160-172
- [22]USGS 「Mineral Commodity Summaries(鉱物商品概要)
- [23]粉体粉末冶金用語辞典（粉体粉末冶金協会）
- [23]日本タングステン株式会社 HP、製品情報、掲載
- [24]日本無機化学工業株式会社ホーム HP、製品情報、掲載
- [25]山本良治、五十嵐廉「酸化タングステンの水素還元機構」、粉体および粉末冶金、第 42 巻第 10 号、1171-1177、1995 年 10 月
- [26]谷口修一,京都大学大学院エネルギー科学研究科エネルギー変換科学専攻修士論文 (2013)
- [27]徳永知倫,九州大学総合理工学府先端エネルギー理工学専攻博士論文(2012)
- [28]H. Kurishita et al., J. Nucl. Mater. 367-370 (2007) 1453-1457



- [29]H. Kurishita, et al.,Materials Science and Engineering A 477(2008)162-167
- [30]H. Kurishita et al., J. Nucl. Mater. 386-388(2009)579-582
- [31]H. Kurishita, et al., J. Nucl. Mater. 398(2010)87-92
- [32]H. Kurishita et al.,Materials Transactions, Vol.54 No.04 (2013) pp.456-465
- [33]H. Kurishita, J. Nucl. Mater. Advanced Materials Research Vol.59(2009)pp18-30
- [34]G.Pintsuk, J. Nucl. Mater. Phys. Scr. T145(2011) 014060(5pp)
- [35]M.Miyamoto, J. Nucl. Mater. ,Nucl. Fusion 49(2009)065035(7pp)
- [36]T.I.Khan,E.R.Wallach: J.Materials Science 30(1995)5151-5160
- [37]T.I.Khan, R.Wallach :J.Materials Science 31(1996)2937-2943
- [38]長崎 誠三、平林 眞：二元合金状態図集 (2008)
- [39]吉田総仁、京極秀樹、篠崎賢二、山根八州男：機械技術者のための材料加工学入門 (2007)
- [40]社団法人 溶接学会：第2版 溶接・接合便覧(2003) P.475～P.480
- [41]大笹憲一：ふえらむ Vol.12(2007)No.1 P.22～P.27
- [42]Grant O. Cook, Carl D .Sorensen: journal Material Science, (2011)46:5305-5323
- [43]H.Noto, et al. J. Nucl. Mater. 417 (2011)249-252
- [44]H. Noto, et al. J. Nucl. Mater. 442 (2013) 567-571
- [45]P. Norajitra, et al.,Fusion Engineering and Design 84 (2009) 1429-1433
- [46]Oono and S. Noh et al., J. Nucl. Mater. 417(2011)253-256

### 第二章 バナジウム中間材を用いた弾性的応力緩和技術開発

#### 2.1 緒言

##### 2.1.1 弾性的応力緩和法

異材接合では一般的に、何らかの応力緩和技法を用いて、接合後の異材間の残留熱応力を緩和する。特にセラミックと金属の接合においては傾斜制御（Grading）と呼ばれる技法が適用されることがある。これは組成や熱膨張係数の観点から、異材間に中間の性質の材料を配置し、弾性的に残留熱応力を緩和する技法である。

例えば、セラミックスと金属の間に、中間的な熱膨張係数を持つ中間層を適用することは非常に効果的である。特に、組成的な傾斜組成制御を行う場合は、両者に対して接合性（拡散性、濡れ性など）を担保するため、組成をセラミックスから金属へ連続的に変化させる複合材料中間材手法が古くから検討されてきた[1]。1950～1970年代にはグレーディング（Graded power seal）と呼ばれており、様々な複合材料を用いて熱膨張差を緩和する手法が考案されてきた。中間層の形成は粉末冶金法が中心であったが、CVDや自己燃焼法などの新規手法も試みられている。この手法における要件としては、「熱膨張係数差が小さい」、「焼結温度が同じであること」、「焼結による収縮が小さいこと」などがあげられる。

過去の先行研究として、Thomas Weberらはこの技法をWと鉄鋼材料の接合に応用し、W/Fe複合材料からなる中間材を作製した。しかし焼結後、中間材に亀裂が生じていることが分かった[2]。これはWとFeからなる脆性相の形成が起因していると考え、特に複合材料とすることにより脆性界面の割合が増えたことが要因となったと考えられる。さらに脆性相間での熱膨張差も、より顕著なものになったと考えられる。つまり中間材にも靱性が求められている。そこで中間材として母材同士の複合材を用いる際に脆化相の形成が懸念される場合には、新たなバルク材を中間材として用いる必要があると考えた。

W内部における熱応力を緩和するためには、W材料/ODSS間に中間材を使用することが熱応力緩和のために効果的である。中間材を用いる接合法として最も一般的なろう付け法はろう材の融点が低く、高温強度に乏しいため、核融合炉設計の観点より、W/ODSSの接合に適切であるとは言い難い。そのため、ろう付け法とは異なる新たな応力緩和中間材の開発が必要である。W材料/ODSS接合における中間材としてこれまで、アモルファス中間材や銅合金の使用が報告されているが、ここでは、新たな応力緩和中間材としてバナジウム（V）を選択し、その適用性を調査した。

バナジウムはWとODSSの中間の熱膨張係数を持つため、WとODSS間のCTEミスマッチを軽減できる。また、VとWは全率で固溶するため接合性は良いと考えられる。さらに、バナジウムは、低放射化材料であり、ODSSよりも優れた熱伝導性を有し、また、分散強化が可能な材料である[3]。先行研究として拡散接合を試みたW-TiC/V合金/ODSSの接合界面組織を図2-2-1を示す。接合界面の近傍に亀裂は観察されず、バナジウムはW

## 第二章

材料/ODSS 間の接合用インサート材に適用できることがわかった。

一方、V 合金と鉄合金の併用において、脆化相として知られる  $\sigma$  相の形成とそれに伴う接合領域の脆化は大きな問題と考えられる[4]。 $\sigma$  相は、D8<sub>b</sub> 型金属間化合物と呼ばれ、遷移金属合金系にみられるように、非常に硬く、脆い特徴を持つ。Fe-V 系においても、広い範囲の組成において確認されており、単位胞に 30 原子を含む体心正方晶であることが知られている[5]。図 2-2-1 の先行接合実験では、 $\sigma$  相形成の上限温度を超えた 1250°C で拡散接合を実施したが、核融合炉の運転温度は  $\sigma$  相形成温度領域である 700~800°C も想定されている。

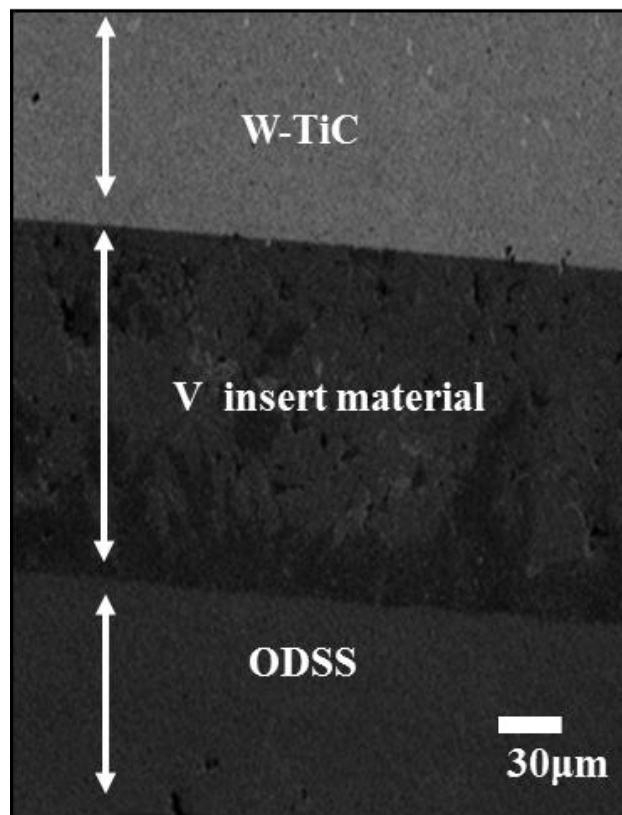


図 2-2-1 W-TiC/V 中間材/ODSS 拡散接合における接合界面

### 2.1.2 本章の目的

そこで本章では、V 合金/ODSS 接合体において 700°C 時効熱処理に伴う脆化挙動を明らかにするとともに、 $\sigma$  相形成を抑制するため、V 合金と ODSS 間に拡散バリア層を挿入した場合の、接合強度を調査することを第一の目的とした。次に W/ODSS 拡散接合においてバナジウム中間材を用いた場合の残留熱応力の大きさを有限要素法により解析することを第二の目的とした。

## 第二章

### 2.2 V-4Cr-4Ti/ODSS 間におけるバリア層導入による $\sigma$ 相脆化抑制

#### 2.2.1 はじめに

本実験では、W/ODSS の拡散接合における熱応力緩和中間材として V 合金を使用するに当たり、Fe-V 系  $\sigma$  相による脆化が懸念されるため、この間に Ti 箔を拡散バリア層として挿入することにより相互拡散抑制を図った。用いた V 合金は、液体増殖型核融合炉構造材として期待されている V-4Cr-4Ti(NIFS HEAT-2)である。

#### 2.2.2 実験方法

表 2-2-1 母材と中間材の化学組成 (Wt.%)

	Fe	Cr	W	Ti	Y	O	V	Si	B	N	C
ODSS	Bal.	15	2	0.2	0.25	<0.05		<0.1		<0.01	<0.03
V-4Cr-4Ti (NIFS HEAT2)		4.02		4.13		<0.02	Bal.	<0.03		<0.02	<0.01
Ti foil (20 $\mu$ m)				Bal.							
Amorphous foil (25 $\mu$ m)	Bal.							5	3		
		Mn	Hf	Zr	Mn	P	S	Al	Ar		
ODSS		<0.1	<0.1	<0.1	<0.03	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01		
V-4Cr-4Ti (NIFS HEAT2)											
Ti foil (20 $\mu$ m)											
Amorphous foil (25 $\mu$ m)											

本研究の接合に用いた ODSS、V-4Cr-4Ti、Ti 箔、アモルファス箔の組成を表 2-2-1 に示す。ODSS はメカニカルアロイング法ののち、焼結、熱間圧延を施し板材として成形され、耐照射性と高温強度の特性をもつ。また、この V-4Cr-4Ti は核融合科学研究所(NIFS)が製造した NIFS HEAT-2 であり、核融合炉第一壁候補材料の共通試料として広く評価されたものである。Ti 箔とアモルファス箔はいずれも市販材で、それぞれ厚みは 0.020mm、0.025mm である。Ti 箔は Fe/V 間の相互拡散を抑制するバリアの役割をねらったもので、Ti の特徴として、低放射化元素であること、熱膨張係数(CTE)がバナジウムと類似している

## 第二章

こと、バナジウムに対して高い固溶度を持つ点が挙げられる。アモルファス金属箔は、Fe に対する融点降下元素(Si,B)を含み、ODSS と Ti の相互拡散を促す役割をねらったものである。

ODSS の熱間鍛造材と V-4Cr-4Ti の板材から、それぞれ寸法が 10mm×10mm×10mm の試料を放電加工機により切断し、各表面を #500、800、1200、2400、4000 の耐水研磨紙で機械研磨した後、接合面となる表面について粒度 1.0 $\mu$ m のダイヤモンドペーストを用いてバフ仕上げを行った。接合は、図 2-2-2 に示す 3 種類の組み合わせとし、接合中における酸素や窒素による試験片の劣化を防ぐために Ta 箔（厚さ 0.025mm）で全体を覆った。接合温度は 1250 $^{\circ}$ C、圧力は 10MPa、真空度は  $0.8 \times 10^{-4}$ Pa、保持時間は 1 時間で、一軸加圧型のホットプレス炉（多目的高温炉、最高温度 1500 $^{\circ}$ C、最大荷重 49N）を用いて行った。

三点曲げ試験(3PMPDA)により、接合強度評価するための微小試験片(2mm<sup>t</sup>×3mm<sup>b</sup>×25mm<sup>l</sup>:ノッチなし)、および接合界面で破断させて接合界面近傍を XRD 分析するために、接合界面に沿ってあらかじめ U ノッチ（深さ 0.6mm）をいれた XRD 測定用試験片(5mm×10mm×25mm)をワイヤーカッターにより切断した。熱処理中の酸素や窒素による試験片の劣化を防ぐために、Ta 箔および Zr 箔（ゲッター材）と共に試験片を石英管の中に真空封入して 700 $^{\circ}$ C で時効熱処理を行った。保持時間は 0,50,100,1000 時間とした。三点曲げ試験は、スパン 13.2mm の三点曲げ試験治具を用い、室温、変位速度  $1 \times 10^{-3}$  mm/s で行い、また、接合界面の XRD 測定は、三点曲げ試験によりノッチ部から破断させた破面に対し、Co 線源の X 線解析を行った（送り速度 0.02 degree/min）。また、接合材の断面の組織観察および元素分析では、接合面に垂直に 2 分割した接合断面について Electron Probe Micro-Analysis (EPMA) を用い、硬さ測定には Nano-indentation (G200)を用いた。

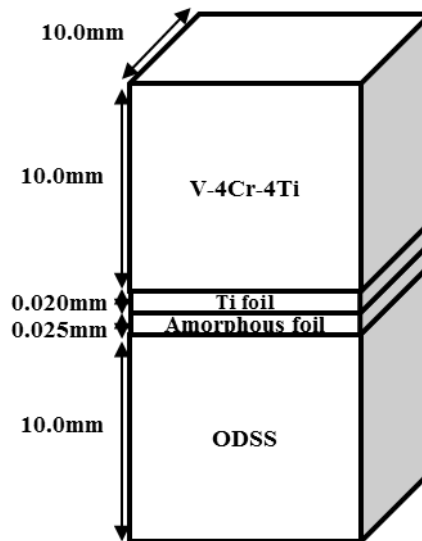


図 2-2-2 接合材とバリア層の組み合わせ配置図

## 2.2.3 結果・考察

V-4Cr-4Ti/ODSS 接合におけるバリア層の有無と時効時間における室温三点曲げ試験結果を図 2-2-3 に示す。この結果より、接合直後では 260MPa の破壊強度を示し、時効時間増加に伴い 50 時間時効までほぼ同じ破壊強度を示した。しかし 100 時間時効以降はバリア層の有無で結果が異なった。バリア層なしの条件では 100 時間時効より 25%程度の破壊強度の低下がみられた。一方、バリア層ありの条件では強度低下は見られなかった。この強度低下抑制は、Ti バリア層による基材同士(ODSS/V-4Cr-4Ti)の相互拡散を抑制した結果であると考えられる。なお 100 時間時効以降、1000 時間時効まで破壊強度は低下せず逆に、15%程度上昇した。

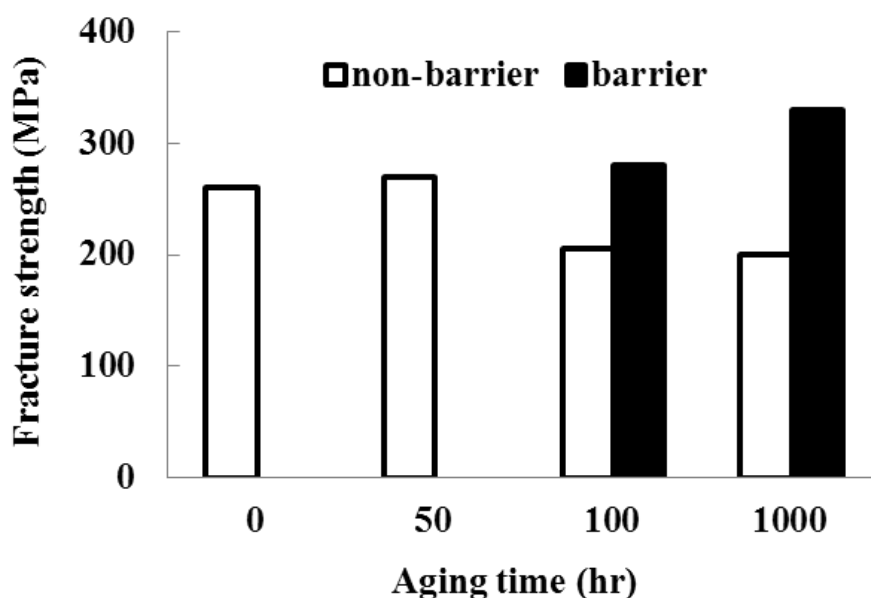


図 2-2-3 V-4Cr-4Ti/ODSS 拡散接合における室温 3 点曲げ強度に及ぼすバリア層の効果。

図 2-2-4 には 0 時間時効-バリア層なし条件の接合断面に対する SEM 観察組織と硬さ試験分布、相互拡散相の EPMA による面分析結果を示した。この結果より、ODSS と V-4Cr-4Ti 接合時には、 $75\mu\text{m}$  の相互拡散相が確認され、この部分では硬さ上昇がみられた。EPMA による面分析の結果より、この相互拡散相は Fe-V 系であることがわかる。

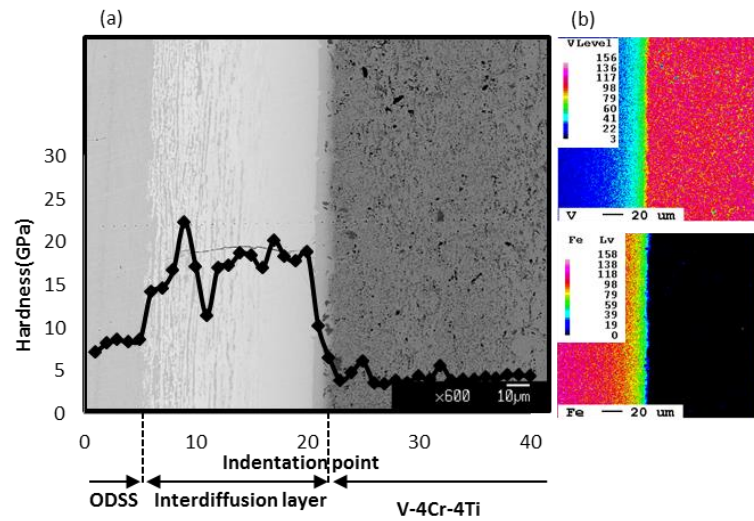


図 2-2-4 未熱処理材のバリア層なし条件における接合断面  
 (a) ナノインデンテーションによる硬さ分布(相互拡散相幅=75 $\mu\text{m}$ )  
 (b) EPMA による組成解析

図 2-2-5 は 50 時間時効-バリア層なし条件の接合断面に対する SEM 観察組織と硬さ試験分布、相互拡散相の EPMA による面分析結果を示している。これも接合直後と同様の相互拡散層が観察され、その厚さは 95  $\mu\text{m}$  であり、50 時間時効による拡散層増加は顕著にみられないことがわかる。

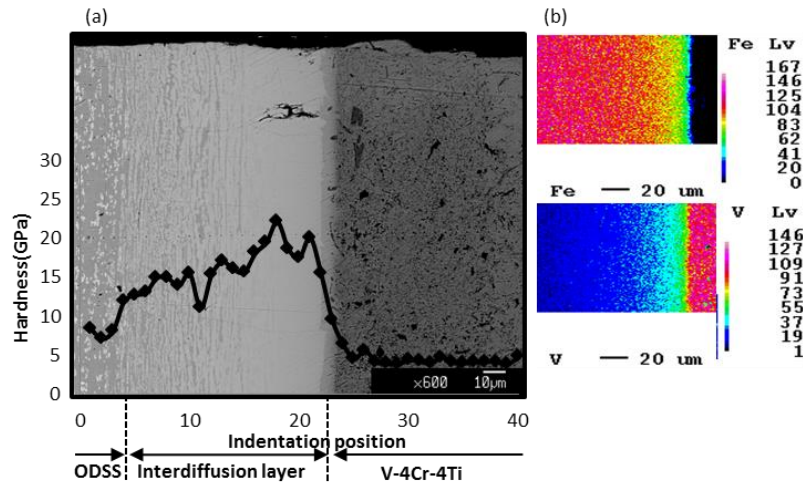


図 2-2-5 50 時間熱処理材のバリア層なし条件における接合断面  
 (a) ナノインデンテーションによる硬さ分布(相互拡散相幅=95 $\mu\text{m}$ )  
 (b) EPMA による組成解析

## 第二章

図 2-2-6 には、50 時間時効-バリア層なし条件の接合断面に対する SEM 観察組織と硬さ試験分布、バリア層部分の EPMA による面分析結果を示した。この結果より、Fe-V 系相互拡散相部分は確認されず、それに伴った硬さ上昇もみられなかった。バリア層付近(b)では、バリア層として Ti 箔を挿入した部分で Fe-Ti 系の化合物を形成していることがわかった。

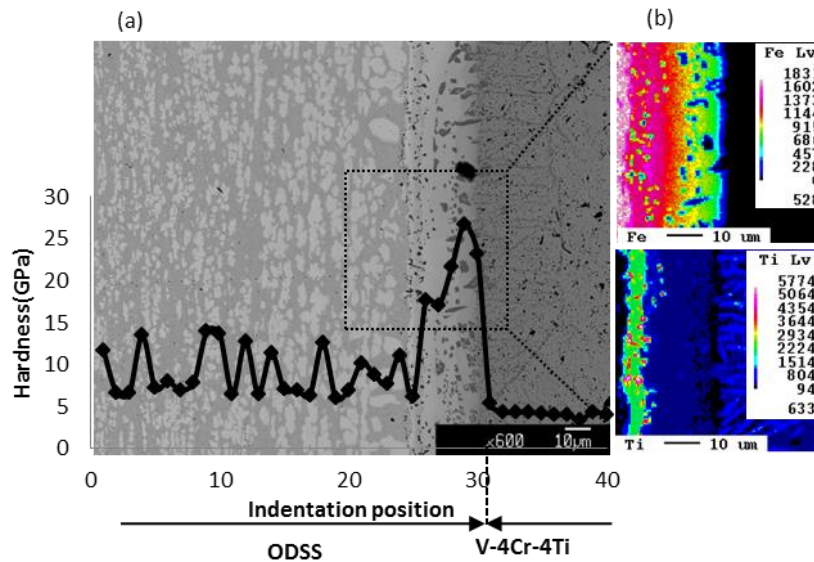


図 2-2-6 50 時間熱処理材のバリア層あり条件における接合断面  
 (a) ナノインデンテーションによる硬さ分布  
 (b) EPMA による組成解析

図 2-2-7 はバリア層の有無による、1000 時間時効後の接合破面における XRD 測定結果である。バリア層なし-1000 時間時効後の接合破面 XRD の結果から、 $\sigma$  相 (Fe-V) のピークが観測された。ODSS/V-4Cr-4Ti の接合部三点曲げ破壊強度が時効熱処理 100 時間以降で同様の低下を示した理由は、この Fe-V 系  $\sigma$  相の影響であると考えられる。一方、バリア層がある場合には  $\text{Fe}_2\text{Ti}$  が同定され、1000 時間後にも Fe-V 相互拡散を抑制していたと考えられる。よって ODSS/V-4Cr-4Ti の接合部三点曲げ破壊強度が 100 時間熱処理後も強度が低下をしなかった理由は、 $\text{Fe}_2\text{Ti}$  相が形成したことによる拡散遮蔽効果であると考えられ、破壊強度が逆に上昇した理由は、時効焼鈍による熱処理により、Fe/V 異材金属間の熱膨張差による熱応力を緩和したためと考えられる。



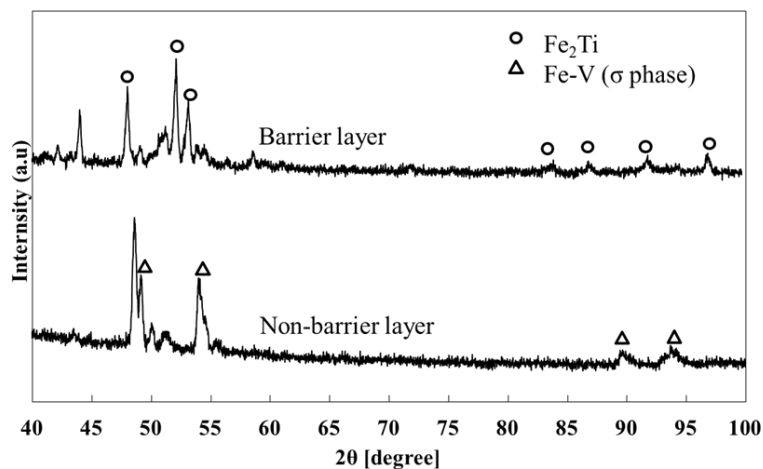


図 2-2-7 1000 時間熱処理材の破面の XRD 解析

Ti 箔を用いたことによる V-4Cr-4Ti/ODSS 接合時の各相への拡散について、各原子における  $700^{\circ}\text{C}$ 1000 時間時効後の拡散距離を導出した結果を図 2-2-8 に示す。(a)の Ti バリア層を用いた場合では Ti 中の Fe 拡散は非常に速いことがわかる。これにより早期に  $\text{Fe}_2\text{Ti}$  として形成し、飽和することによりバリア層として機能したと考えられる。加えて、V 中の Fe の拡散速度は非常に遅いことも拡散抑制の効果といえる。一方、拡散バリア層がない場合(b)には Fe と V の相互拡散は非常に遅く、1000 時間後にも生成量は少ないことが考えられる。特に本実験は固相拡散接合であり、溶接と異なり熔融部がない。つまり  $\sigma$  相の生成量は非常に少ないことから、ナノインデンテーションで測定されるような微視的な硬さ上昇はみられても、巨視的な生成量が少ないためは 25%程度しか強度低下を引き起こさなかったと考えられる。

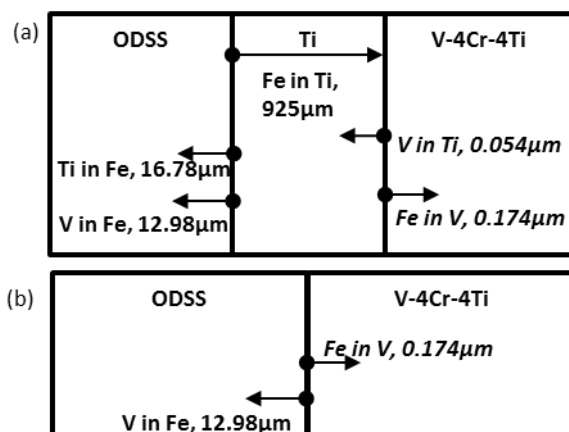


図 2-2-8 接合後、熱処理 ( $700^{\circ}\text{C}$ ,1000hr) による構成元素の拡散距離  
(a) Ti バリア層あり (b) Ti バリア層なし

## 第二章

### 2.2.4 まとめ

W/ODSS 間に配置され、中間材として用いたバナジウム合金は、熱膨張係数(CTE)差の傾斜を小さくする等の中間材に必要な多くの優れた特性をもつ。一方、ODSS との接合領域において $\sigma$ 相形成による脆化の可能性も持っている。そこで、接合部での $\sigma$ 相による界面強度低下を明らかにするために、接合部における三点曲げ試験を行い、以下の結果を得た。

1) ODSS/V-4Cr-4Ti の接合材において、バリア層なしで 700°C100 時間の時効熱処理を行った場合、接合材の破壊強度は、未時効材と比較し約 25%低下したが、1000 時間の時効処理後はさらなる強度低下は認められなかった。

2) 厚さ 20  $\mu\text{m}$  の Ti 箔をバリア層として挿入し、25  $\mu\text{m}$  のアモルファス中間材をろう付け材として挿入した場合には、700°C1000 時間までの時効処理後において接合強度の低下は見られず、逆に時効処理時間とともに接合強度は増加した。

3) 接合部断面組織観察の結果、バリア層なしの場合、Fe-V の相互拡散相が確認され、その領域で硬さ上昇がみられた。またその硬さ上昇領域は時効時間に伴い増加した。

4) バリア層なしの拡散接合の場合に見られた接合強度の低下は、Fe-V 系 $\sigma$ 相によると考えられる。一方、バリア層を用いた場合には Ti 系化合物が相互拡散バリアとなり、接合強度の低下を抑制したと考えられる。また、時効処理時間の増加に伴う接合強度の増加は、V-4Cr-4Ti/ODSS 間の CTE 差を時効処理により緩和したためと考えられる。

本研究では、バリア層を用いることにより、V 合金と鉄系材料との接合で懸念されていた $\sigma$ 相の形成とそれによる接合強度の低下を抑制した。ただし、バリア層なしでも、700°C1000 時間までの時効処理による $\sigma$ 相形成による接合強度の低下は小さいことが判明した。

## 2.3 有限要素法による解析

### 2.3.1 はじめに

前述したように V 中間材を用いて、弾性的に熱応力緩和を試みたが、図 2-3-1 に示すように、接合体端部よりき裂の発生が確認された。特にき裂端部の組織観察より、W の結晶粒界に沿った粒界割れであることがわかった。

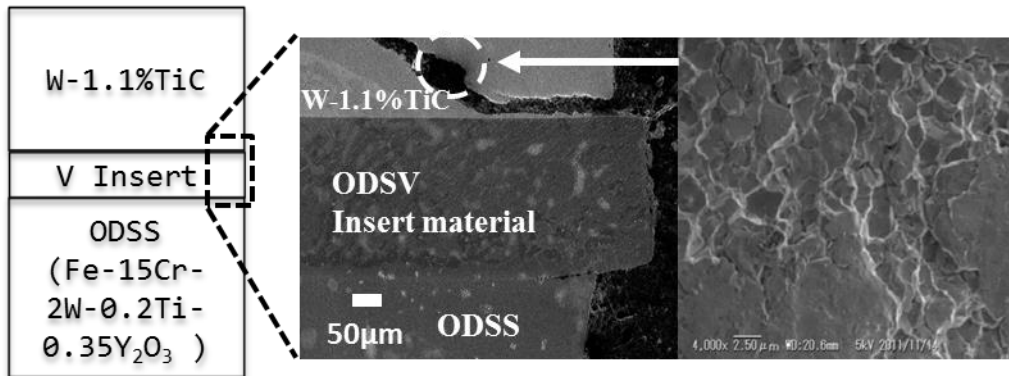


図 2-3-1 W-1.1TiC/V 中間材/ODSS 接合端部

この理由を解明するため、有限要素法 (Finite Element Method) により、接合体に働く残留熱応力を計算した。ここでは先ほどと同様の接合条件で、W-TiC と酸化物分散強化鋼を固相拡散接合し、室温まで冷却したと想定し、有限要素法 (FEM: Finite Element Method) により、W 内部に発生する熱応力を計算した。この場合、相互拡散相を形成しないものと仮定した。V 合金は、V-4Cr-4Ti (NIFS HEAT 2) を用い、厚さを 0~10mm まで増加させ、残留する熱応力を評価した。

### 2.3.2 解析手法

解析には計算ソフトとして「ANSYS」、モデル作成およびファイル変換ソフトに「CADAS」を用いた。対象金属は、W 合金: W-1.1TiC、V 合金: V-4Cr-4Ti、ODS 鋼: Fe-15Cr-2W-0.2Ti-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> であり、解析モデルは 15×15mm 正方形で W-1.1TiC 部分が 1.2mm、ODSS 部分が 10mm、V 中間材部分を 0~1.0mm へと変化させた(図 2-3-2)。解析に必要な材料定数を表 2-3-1 [6-7] に示した。解析条件は 1523K で接合し、1523K から 300K まで冷却されたことにより発生する熱応力を弾性解析により計算した。この時、1523K において熱応力がゼロであることを模擬するため、初期状態を  $\Delta T=0K$  とし、 $\Delta T=-1223K$  まで温度を下げた。また、熱膨張 (熱収縮) は温度変化量のみ依存、 $L = L_0(1 + \alpha \Delta T)$  と定義した。なお、ここでは W や接合界面に作用する応力の最大値を評価するため、W や接合界面は破断しないと仮定している。

## 第二章

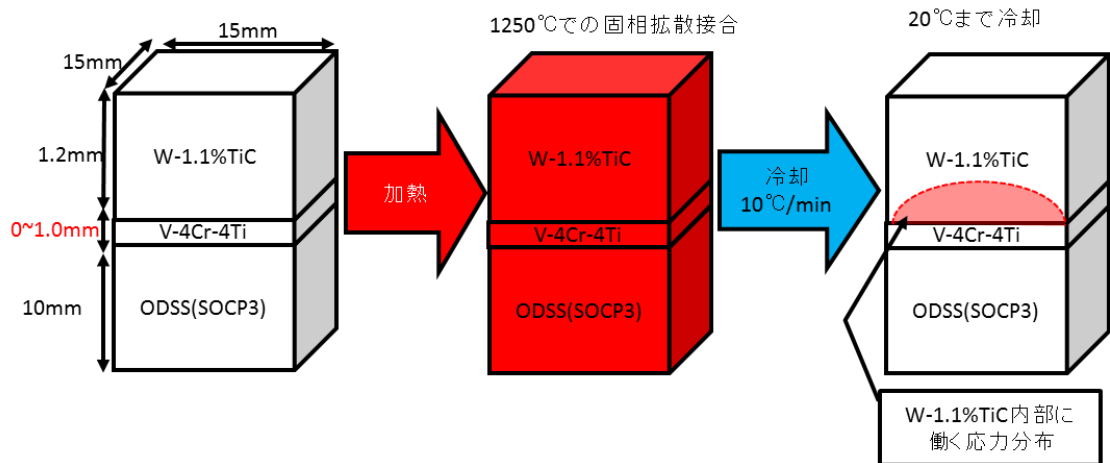


図 2-3-2 解析概要

表 2-3-1 W-1.1%TiC、V-4Cr-4Ti、ODS 鋼の材料定数

		材料定数						
実験上の温度 [K]		1523	1300	1100	900	700	500	300
解析上の温度 [K]		0	-223	-423	-623	-823	-1023	-1223
W-1.1%TiC	ヤング率 [GPa]	345.1	355.6	365.0	374.5	383.9	393.4	402.9
	ポアソン比	0.302	0.298	0.295	0.291	0.287	0.284	0.280
	線膨張率[10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> ]	5.12	4.96	4.81	4.66	4.51	4.37	4.21
V-4Cr-4Ti	ヤング率 [GPa]	114.8	116.7	118.5	120.2	122.0	123.8	125.5
	ポアソン比	0.313	0.320	0.330	0.340	0.340	0.350	0.360
	線膨張率[10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> ]	9.44	10.0	10.2	10.1	9.76	9.41	9.11
ODS 鋼	ヤング率 [GPa]	216.6	117.1	128.5	169.7	203.0	217.4	228.5
	ポアソン比	0.440	0.440	0.440	0.320	0.297	0.285	0.283
	線膨張率[10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> ]	15.8	14.2	13.4	12.9	12.5	11.8	10.6

図 2-3-3 には、解析モデルの初期状態を示した。前述したように、接合体は正方形であり、その対称性から、1/4 のモデルで解析した。初期状態（解析では 0K）における W 合金、V 合金、ODS 鋼の X, Y 方向の長さ L は、室温から 1523K までの熱膨張を考慮し、(W 合金 : 15.08mm, V 合金 : 15.18mm, ODS 鋼 : 15.30mm) とした。よって、初期状態において、接合体端部は寸法の違いによる段差を有する。なお、解析は 2 次元モデルとし、解析する平面に垂直な方向の接点位置は拘束状態にある。

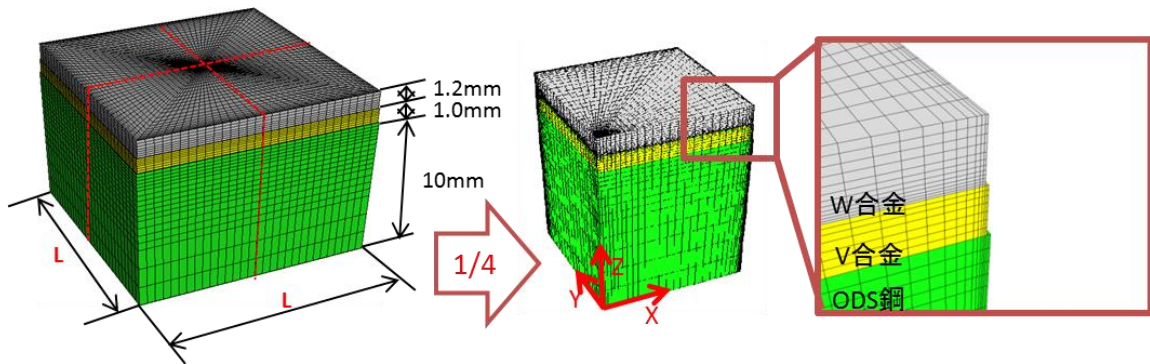
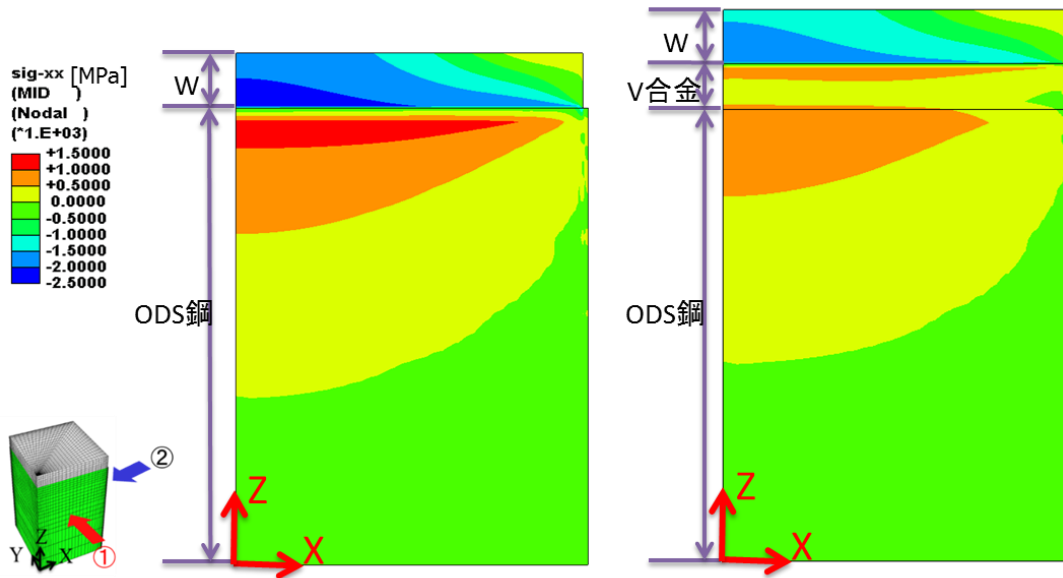


図 2-3-3 解析モデルの初期状態

## 2.3.3 解析結果

図 2-3-4 は、X 方向応力  $\sigma_x$  の分布を示している。この結果より、W において 2GPa 以上の圧縮応力が、ODS 鋼において 1.5GPa 程度の引張応力が発生した。バナジウム中間材の挿入により W および ODS 鋼に発生する応力は 0.5GPa 程度低下した。

図 2-3-4 X 方向応力  $\sigma_x$  の分布 (T=300K)

また、ZX 方向せん断応力  $\tau_{zx}$  の分布 (図 2-3-5) より界面に生じるせん断応力の最大値は 1GPa 以下であった。このせん断応力においても、バナジウム中間材の挿入により発生応力の低下は外縁部でのみわずかに確認された。

## 第二章

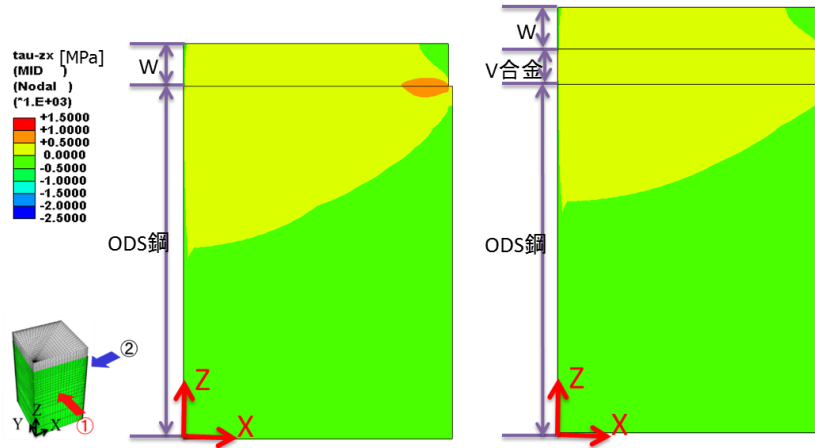


図 2-3-5 ZX 方向せん断応力  $\tau_{zx}$  の分布 (T=300K)

図 2-3-6 は、Z 方向応力  $\sigma_z$  の分布を示している。この結果より、W の外縁部に 1~1.5GPa の応力の発生が確認された。Z 方向応力についても、中間材の挿入による発生応力の変化は小さかった。

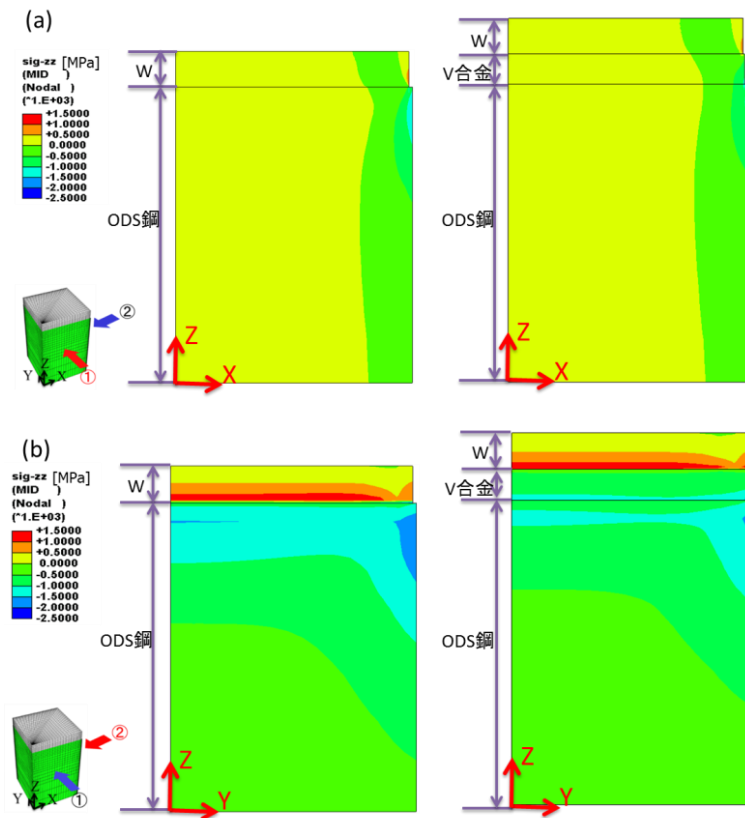


図 2-3-6 Z 方向応力  $\sigma_z$  の分布 (T=300K)

(a)接合モデル①方向(b)接合モデル②方向

図 2-3-7 は、ミーゼス相当応力  $\sigma_{ms}$  の分布を示している。この結果より、内部 (①面) では  $W$  に生じる最大応力は 2GPa 程度であり、中間材の挿入により発生応力はわずかに低下した。また外面 (②) では  $W$  に生じた最大応力は 2.0~2.5GPa 程度であった。インサート材の挿入により発生応力は、0.5GPa 程度の低下が確認された。

しかし、中間材の挿入による各方向の熱応力低下は非常にわずかであり、 $W$ /中間材界面近傍では、ミーゼス相当応力は 2GPa を超えている部分も存在した。

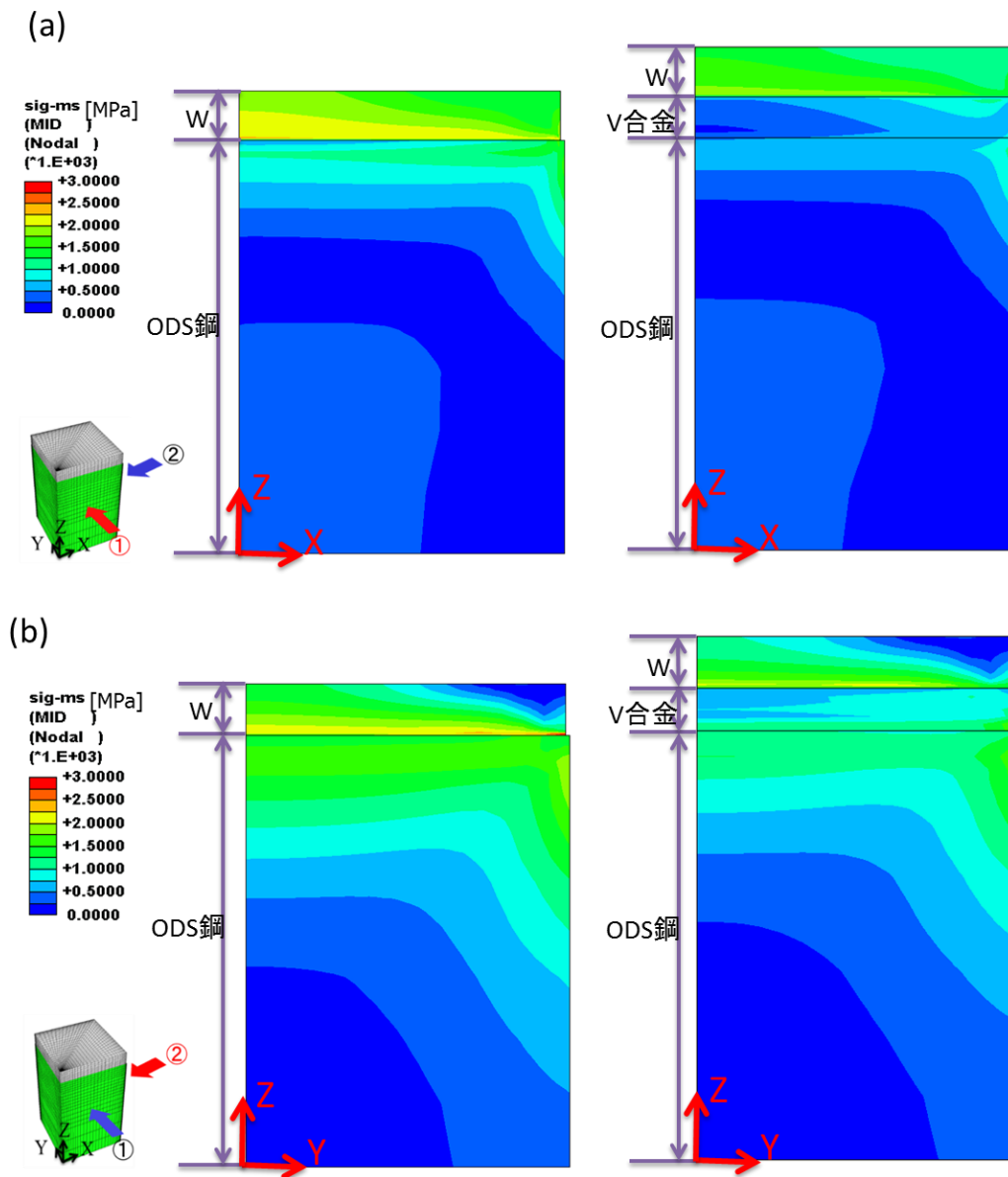


図 2-3-7 ミーゼス相当応力  $\sigma_{ms}$  の分布 (T=300K)

(a)接合モデル①方向(b)接合モデル②方向

## 第二章

### 2.3.4 まとめ

W-1.1%TiC/V 合金/ODS 鋼の固相拡散接合体について、1523Kにおいて接合し、その後の冷却によってのみ熱応力が生じることを仮定し、その熱応力を有限要素解析（弾性解析）により評価した。

- 1) タングステンに発生する接合面と平行な方向の応力 ( $\sigma_x$ ) は圧縮であり、実験で生じたき裂発生には寄与していないと考えられる。
- 2) タングステンと ODS 鋼の界面に生じるせん断応力は 1GPa 以下であり、実験で生じたき裂発生には寄与していないと考えられる。
- 3) タングステンの外縁部に発生する接合面と垂直な方向の応力 ( $\sigma_z$ ) は引張であり、1~1.5GPa であった。また、インサート材の挿入による変化は小さかった。実験では、インサート材の挿入の有無にかかわらず、タングステンの外縁部からき裂発生していたことから、熱膨張率差に起因する接合面と垂直な方向の応力 ( $\sigma_z$ ) によりき裂発生した可能性が考えられる。

FEM の解析により発生した熱応力は、実際の W-1.1wt%TiC 曲げ強度よりも低い。この理由として、FEM の解析結果からも明らかのように、発生熱応力は、一軸的な応力のみではなく、せん断応力も同時に働くため、実際の破壊でも観察されているように粒界すべりによる破壊が起こったためと考えられる。有限要素法解析からも、V 中間材による弾性的応力緩和法では、熱応力を緩和しきれないと考えられる。よって、塑性的応力緩和法の有効性が示唆された。

### 2.4 結言

本章では、W/ODSS の拡散接合における熱応力緩和を目的とし、バナジウム中間材を用いて弾性的応力緩和法を試みた。この際に ODSS とバナジウム中間材間で懸念される  $\sigma$  相脆化を抑制するため、この間に Ti バリア層を用いて V と Fe の相互拡散抑制を試みた。一方で、バナジウム中間材を用いた場合の熱応力の発生状況を有限要素法を用いて解析し、以下の結果が得られた。

- 1) 本章では、拡散バリア層を用いることにより、V 合金と鉄系材料との接合において、懸念されていた Fe-V 系  $\sigma$  相の形成と、それによる接合強度の低下を抑制した。ただし、バリア層なしでも、700°C1000 時間までの時効処理による  $\sigma$  相形成による接合強度の低下は約 25%であり顕著な低下ではないことが明らかになった。
- 2) 有限要素法を用いた結果、W の外縁部に発生する接合面と垂直な方向の応力 ( $\sigma_z$ ) は引張であり、1~1.5GPa に達すると見積もられた。また、インサート材の挿入による残留熱応力の低下は小さかった。実験では、インサート材の挿入の有無にかかわらず、W の外縁部からき裂が発生していたことから、熱膨張率差に起因する接合面と垂直な方向の応力 ( $\sigma_z$ ) によりき裂が発生したと考えられる。



## 第二章

よって弾性的な応力緩和法では、W/ODSS 接合体の拡散接合後冷却段階における熱応力を緩和しきれなかったものと考えられる。

## 第二章

### 参考文献

- [1]各種接合加工における予測理論の構築（大阪大学接合科学研究所）異材接合界面の力学（溶接学会）
- [2]Thomas Weber, Zhangjian Zhou, Dandan Qu, Jarir Aktaa : Journal of Nuclear Materials 414(2011)19-22
- [3]H.Kurishita et al. Advanced Mater. Research (2009)参照
- [4]S. Nogami et al. proc. 15th Int. Conf. on Fusion Reactor Materials (J. Nucl. Mater)
- [5]猶原隆 日本金属学会誌 第47巻 第12号(1983)1080-1086
- [6]Properties of V-4Cr-4Ti by Mike Billone HP 参照
- [7] 日本原子力機構「ODS フェライト鋼被覆管の材料強度基準（暫定案）研究報告書(2005)

### 第三章 純鉄中間材を用いた弾塑性的応力緩和技術開発

#### 3.1 緒言

##### 3.1.1 塑性的応力緩和法

前章では、熱応力緩和を目的とし、W/ODSS 拡散接合において、熱伝導性に優れ、CTE が W/ODSS の中間に位置し、低放射化特性をもつ酸化物分散 V 合金を中間材として使用した[1]。しかしながら、V 合金を中間材として使用した W/ODSS の拡散接合体は、放電加工中に接合面に対し平行に W 内部に亀裂が入った。この原因は、V 中間材による応力緩和は、弾性範囲における、降伏強度が高く [2]、熱応力の緩和に限界があるためと考えられる。弾性範囲を考えると、W と ODSS の拡散接合後、室温までの冷却において、線膨張の差による歪はおよそ 1.0% 近くに達する。これに対し、V-4Cr-4Ti の弾性歪はおよそ 0.4% 程度であり、弾性変形域を超えている。つまりさらなる熱応力緩和には、塑性変形能が大きく、降伏強度の低い材料が熱応力緩和に適していると考えられる（塑性的応力緩和）。ITER ダイバータにみられるように、無酸素銅緩衝材は非常に塑性変形能に優れ、応力緩和材としては効果的である。これを基に、ITER ではダイバータを構築する技術が開発されている[3]。

第 1 章では、先行研究として、アモルファス中間材を用いた W/ODSS ろう付け・拡散接合についてねじり試験を実施した例を紹介した。そこで本章に先立ち、通常の W より強度の高い W-TiC 合金を用いて同様の接合を行った (図 3-1-1)。その結果、接合後の断面にはき裂は生じなかった。しかし、微小試験片を切り出す過程において、すべての接合試験片において、W で割れが生じることが判明した。これは、第 2 章で述べたように接合体に働く熱応力は、試験片の各位置で一定ではなく、部分的に強度の低下している箇所が存在することを示唆している。この確認のため、微小化した試験片により接合強度を評価する必要がある。なお第 3 章において、接合材の破断は異材金属界面に限定されず、界面近傍の W で破断する場合は想定されることから、これ以降は曲げ試験による破断強度を「接合強度」と呼ぶこととする。よって本章では、新たに独自に開発した微小 3 点、4 点曲げ試験治具を用いて、微小曲げ強度を測定することにより、W に働く残留熱応力評価の指標とした。

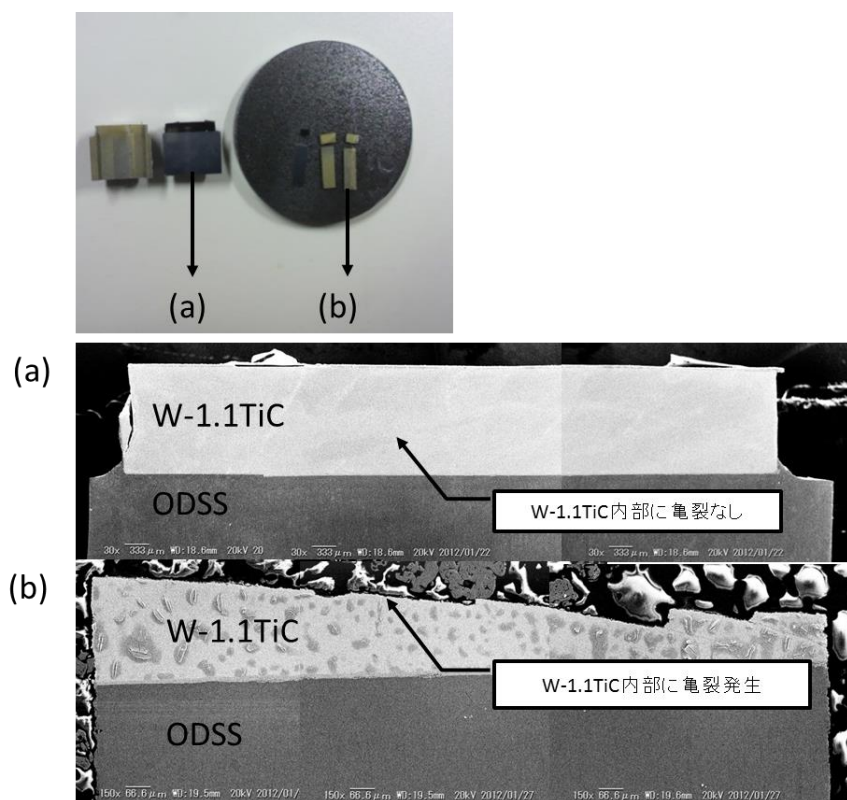


図 3-1-1 アモルファス中間材を用いた W-1.1TiC/ODSS 接合  
 (a)W/アモルファス中間材/ODSS 接合体断面  
 (b)接合体より切出し時に W-1.1TiC 上部表面近傍が破壊した微小曲げ試験

### 3.1.2 純鉄中間材

ITER ダイバータにおいて、冷却管と W の間に用いられる緩衝材（中間材）は無酸素銅である。これは熱伝導性に優れるほか、非常に降伏点が低く、容易に塑性変形することにより、熱応力を緩和する能力を有するためと考えられる。加えて高延性を示し、支持構造体と同じのバルク組成（銅）であり接合性もよい。そこで、実験炉以降の核融合炉構造材料として鉄バルク合金（低放射化鋼や ODSS）を用いることを想定した場合、バルク組成（鉄）である純鉄を中間材として用いることが適していると考えた。表 3-1-1 には無酸素銅と純鉄の降伏点と伸びを示した。

表 3-1-1 無酸素銅と純鉄の機械的特性

	降伏点(MPa)	伸び(%)
無酸素銅(JIS規格C1020-O)	76~86	44~55
純鉄(実験値)	75	35

### 第三章

純鉄は、焼きなまされると降伏点が下がる。これは無酸素銅にも匹敵し、高延性を示すようになる。本章では純鉄を中間材として用い、その適用性を調査する。特に本章では、このアモルファス中間材の特徴を生かし、室温までの延性に優れる純鉄を併用することによる応力緩和を試みた。アモルファス中間材は、Fe の融点降下させる Si と B を含有し、Fe 系合金にもかかわらず接合温度付近で液相が出現するためろう付け・拡散接合効果がある。その一方で接合後は、中間材部分は結晶化するため、Fe-Si 系になる。よって鉄に対する Si の固溶状態となるため、室温では純 Fe よりも硬く、脆性的である。よって接合温度以下の温度域で塑性変形能を有する純鉄と併用することが適切であると考えた。純鉄は、前述の通り、室温での降伏応力が低く、室温延性に優れ、液相が出現しない分厚みの制御が容易であり、熱伝導に優れる。そこで W/ODSS の接合において、純鉄中間材とアモルファス中間材の併用による接合挙動を調査する着想に至った。つまり W/アモルファス箔/純鉄部分はろう付け接合、純鉄/ODSS の部分は固相拡散接合というハイブリット接合の実現を目指す。

#### 3.1.3 純鉄の照射硬化

核融合炉第一壁構造材料は、母材部、接合部ともに核融合反応の放射線へ耐えうる性能が要求される。特に、中性子線においては、照射硬化により、炉内構造材料への健全性が損なわれることが懸念される。本研究では、純鉄を中間材として用いる。しかしながら、純鉄の高温下での中性子照射硬化の調査例はほとんどないのが現状である。そこで研究に先立ち純鉄における中性子照射硬化を調査した。照射に使用した炉、試料、条件、照射後試験方法を以下に示す。

照射炉：米国オークリッジ国立研究所 HFIR

照射試料：純鉄(純度：0.99%)

照射温度：500°C

弾き出し損傷量（鉄換算）：5.5dpa,9.6dpa

ビッカース硬さ試験方法

荷重：2.9~9.8N

負荷時間：10 秒

試験片：クーポン状態、引張試験片状態

図 3-1-2 には純鉄と F82H の照射硬化挙動を示す。F82H および純鉄は硬化に寄与する損傷組織の回復によるものと考えられる。このように純鉄は ODS 鋼と共に使用する温度域(500°C) 付近では回復により照射硬化は見られず、脆化の懸念は少ない。

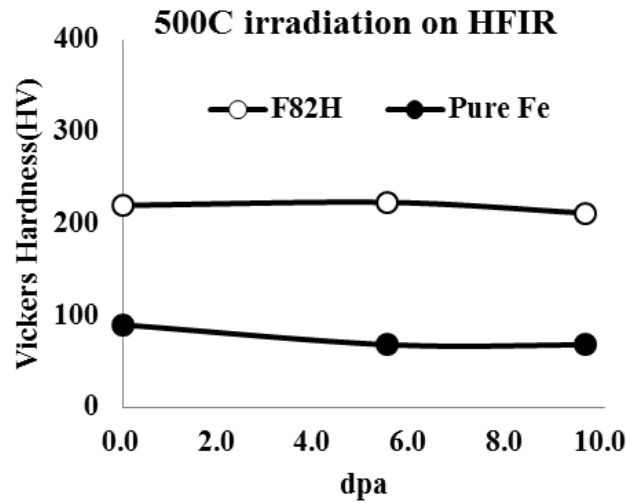


図 3-1-2 500°Cにおける F82H と純鉄にける中性子はじき出し損傷量の硬さ影響

### 3.1.4 本章の目的

本章では、純鉄とアモルファス箔を併用し、W/ODS 鋼接合部の熱応力緩和を促進することを目的とする。

## 3.2 純鉄/アモルファス中間材二層中間材

### 3.2.1 実験方法

拡散接合に用いた母材 (W,ODSS) と中間材 (純鉄とアモルファス箔) の組成を表 3-2-1 に示す。W 板材は、熱間圧延材であり、ODSS は機械的合金化法と熱間の押し出しにより製造されたものを用いた。また中間材として使用される純鉄は、冷間圧延を施されたものを用いた。アモルファス箔は、液体急冷法により、非晶質化され、その後箔状とした。またこれらの供給試験材料から接合試験片、曲げ試験片への加工はすべて放電加工機を用いて切り出された。接合体用の出発素材の形状として、W は 10 mm x 10 mm x 1.5 mm と ODSS は 10 mm x 10 mm x 10mm 、純鉄中間材は 10 mm x 10 mm x 0.6mm、アモルファス中間材は 10 mm x 10 mm x 0.02 mm である。接合材は、W、アモルファス箔、純鉄、ODSS の順に配置した (図 3-2-1)。試験片の表面は SiC 耐水ペーパーにより、#500 から 4000 まで機械的研磨し、最終的に 1.0 mm のダイヤモンドペーストによりバフ研磨を施した。

### 第三章

表 3-2-1 使用中間材の組成、形状

Material (Purity, Supplier)	Composition(Wt%)	Thickness or Diameter (mm)
Pure Tungsten (PLANSEE Co.)	W-99.95%,	1.5
ODS-FS (KOBELCO Co.)	Fe-15%Cr-2%W-0.2%Ti-0.35%Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	φ20
Pure Iron (NIRACO Co.)	Fe-99.99%,	0.6
Amorphous foil (NIRACO Co.)	Fe-3B-5Si	0.02

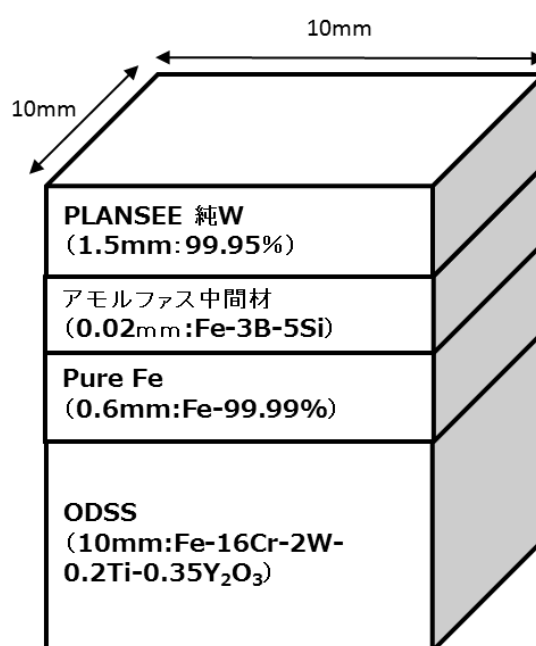


図 3-2-1 拡散接合における試料の配置

なお接合炉は、一軸加圧型圧縮試験機を用いた。図 3-2-2 には本圧縮試験機の概要を示す。加熱方式は誘導加熱で、温度測定は、放射温度計を用いて、穴があらかじめ開いたグラフィットパンチより試料表面温度を直接測定した。拡散接合間は、この炉を用いて、 $8.0 \times 10^{-4}$  Pa の真空下において、接合温度 1240°C、1 時間、10MPa 保持した。この拡散接合体からは、微小曲げ試験片(2.4mm<sup>w</sup> x 0.35mm<sup>t</sup> x 5.0mm<sup>l</sup>)が切出され、室温で微小 3 点曲げ試験に供された (図 3-2-3)。この 3 点微小曲げ試験法は独自に開発され、スパンが 2.1mm の形状で設計されている (図 3-2-4)。なお曲げ試験の負荷速度は  $1 \times 10^{-3}$  mm/s と設定した。

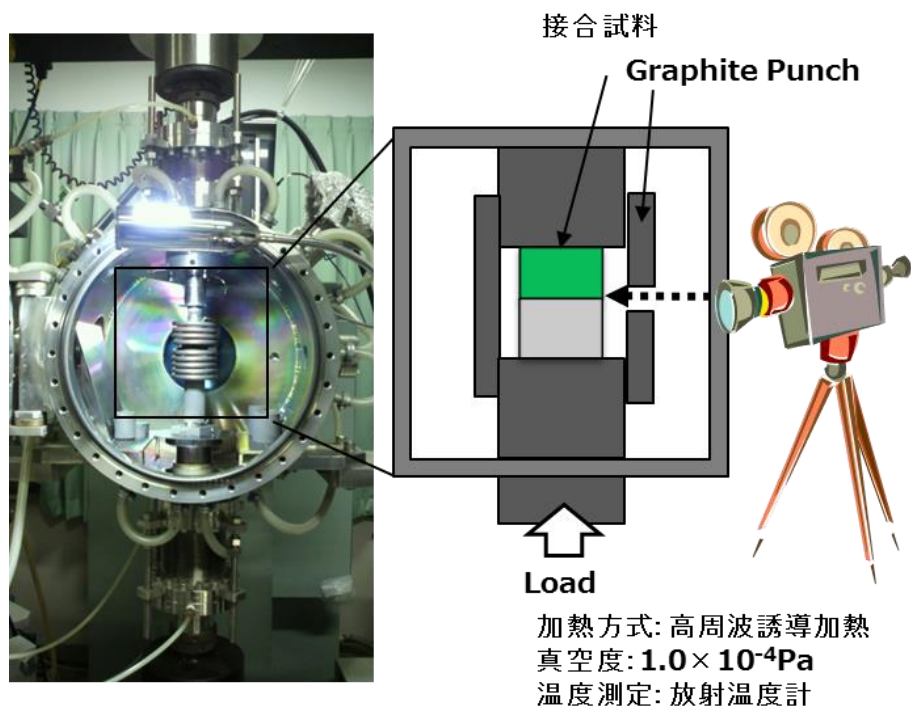


図 3-2-2 一軸加圧型高温圧縮試験機  
 (東北大学金研大洗センター セラミクス棟コールド実験室)  
 INSTRON 社製 MODEL1362

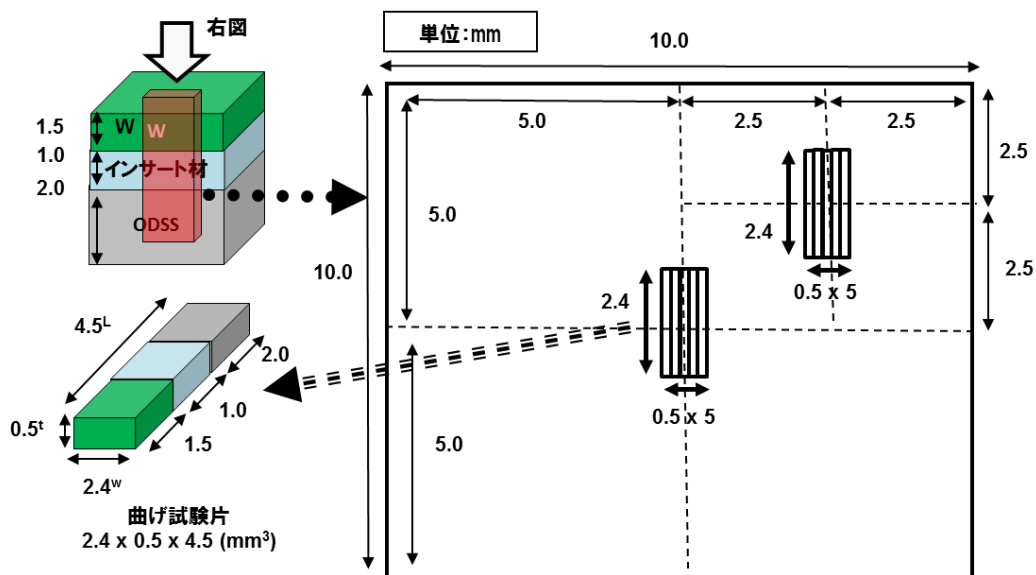


図 3-2-3 接合体からのワイヤーカット (放電加工) 方法



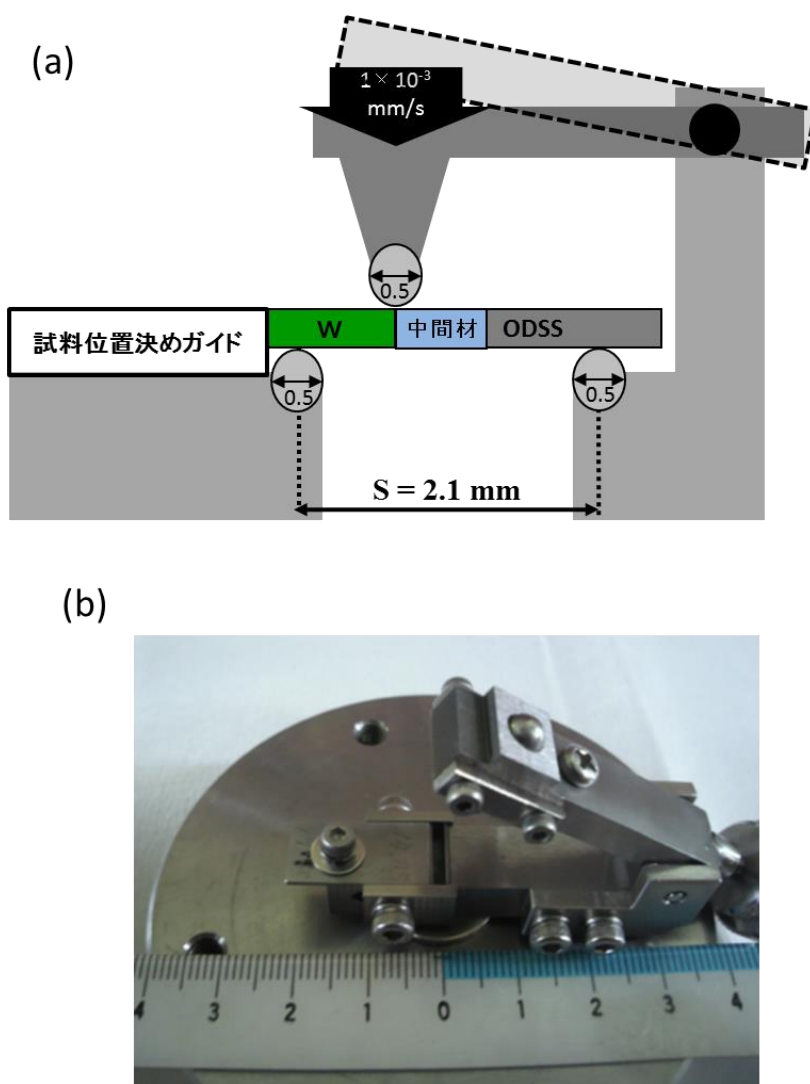


図 3-2-4 微小 3 点曲げ試験

(a)概略図

(b)外観

### 3.2.2 結果

図 3-2-5 は、接合後の W/純鉄接合界面近傍における組織とナノインデンテーション法による連続硬さ測定結果を示している。接合前は、W と ODSS の間にアモルファス中間材  $20 \mu\text{m}$  と純鉄  $0.6\text{mm}$  が存在し、二層構造となっていた。接合後は、アモルファス中間材に含有する融点降下元素 (Si, B) の影響とみられる拡散影響部 (DAZ : Diffusion Affected Zone) が  $110 \mu\text{m}$  の幅で観察された。この部分では W、純鉄の硬さとは異なる値がみられた。特に W 側の DAZ-I では硬さが  $16\text{GPa}$  に達し、W の硬さと比較し、2 倍程度高い値となった。一方で純鉄側の DAZ-II の硬さは、 $4\text{GPa}$  であり、純鉄と比較し、2 倍程度程の硬さ変化がみられた。

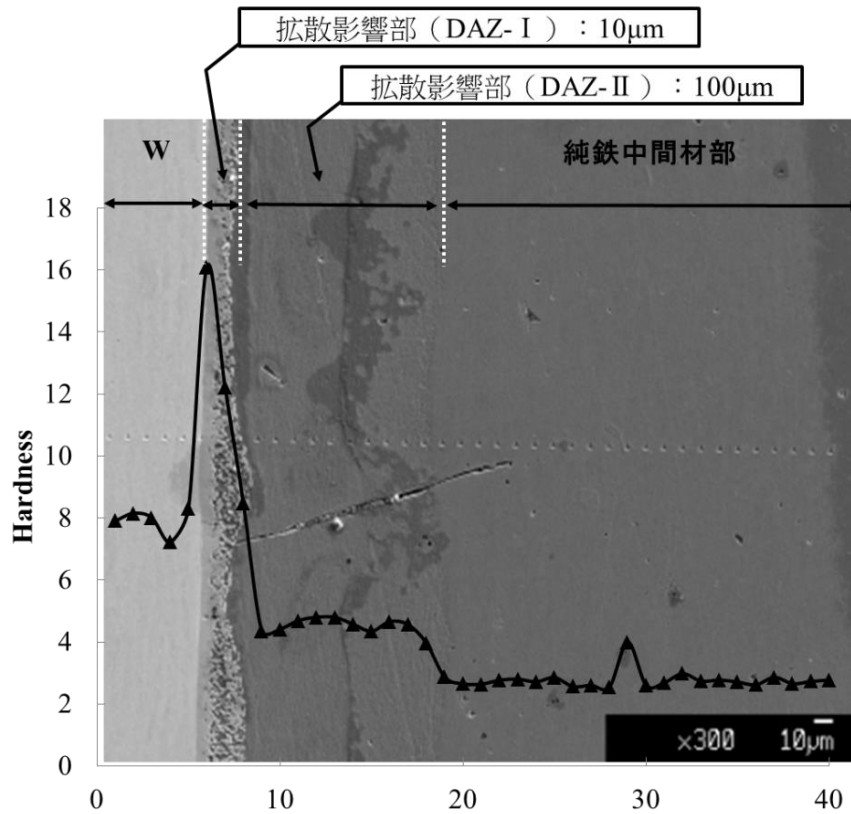


図 3-2-5 W/純鉄接合界面における組織と硬さ分布

図 3-2-6(a)は、W/純鉄接合界面近傍の、Fe-EPMA (Field emission-Electro-probe micro analysis) を用いた組成分析結果を示している。その W,B,Fe マッピングより、W 側の DAZ-I は、W,B,Fe の 3 元素による化合相であることがわかる。一方で、Si のマッピングでは、アモルファス中間材部分に Si が拡散している。図 3-2-6 (b)は W/アモルファス箔/純鉄接合間における Fe,Si,W の拡散距離である。拡散距離導出に用いた式を以下に示す。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{\Delta H}{kt}\right)$$

用いた代数に関し、D=拡散距離、D<sub>0</sub>=振動因子、H=活性化エネルギー、k=ボルツマン定数、t=温度である。Fe 中の W 拡散距離は 12 μm であり、DAZ-I の幅とほぼ同じであり、Fe 中で W が拡散して生成した化合相であると考えられる。つまり W からアモルファス中間材への拡散が支配的であり、箔元素である B とともに、Fe-B-W 系の化合相になったと考えられる。Fe 中の Si の拡散距離と DAZ-II の幅はほぼ同等である。これは、融点降下元素としてアモルファス中間材に含有していた Si が、箔から純鉄への拡散により生成したことを示唆している。

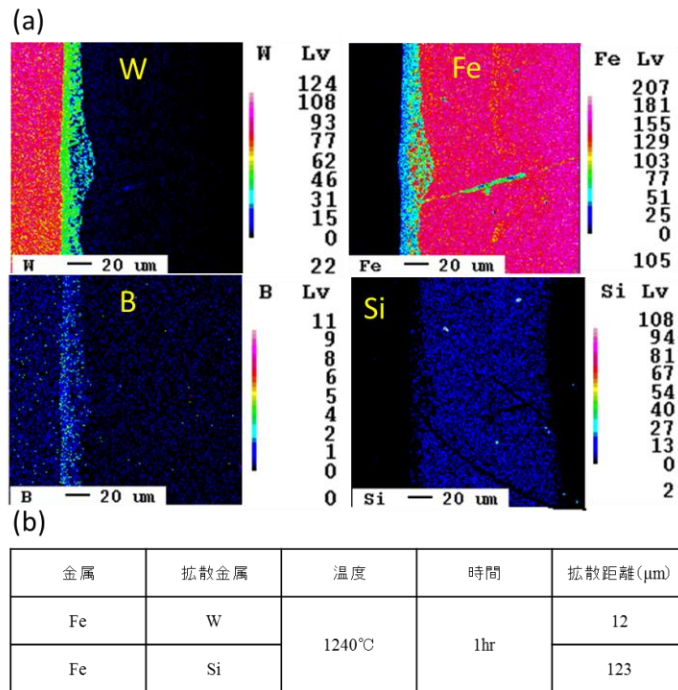


図 3-2-6 W/純鉄接合組成解析

(a)EPMA による W/純鉄界面付近の組成分析

(b)W/アモルファス中間材/純鉄接合間における Fe,Si,W の拡散距離[3]

図 3-2-7 は、純鉄/ODSS 固相拡散接合部分の組織と組成分析結果を示している。組織解析(a)では純鉄/ODS 鋼界面に針状の析出物が確認できる。これを EPMA により組成解析マッピングで観察すると、Fe の欠乏、Cr リッチ層となっている。これは先行研究[5]において F82H (9Cr) /ODSS(15Cr) の固相拡散接合でみられ、Cr 濃度差を示す相分離の結果であると考えられる。

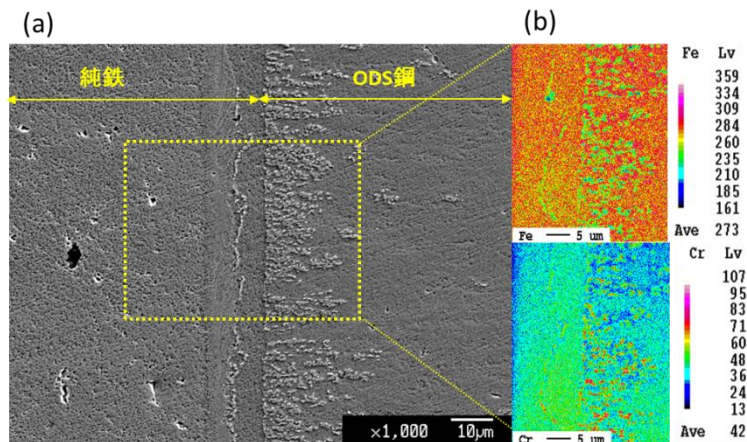


図 3-2-7 純鉄/ODS 鋼界面解析

(a)組織観察 (b)組成分析

### 第三章

表 3-2-2 は、接合材試験片 5 本の 3 点曲げ試験により得られた破壊強度を示している。接合後は、アモルファス中間材単体を中間材とした接合と比較し、放電加工による割れは少なく、微小曲げ試験片切り出しにも成功した。得られた破断強度は分散が大きかったものの最大 280MPa であり、5 本の平均値は 206MPa であった。平均近い強度の試験片 (W-ODSS-2) の曲げ試験後の破界面を EPMA により観察した(図 3-2-8-a)。破壊後のき裂は、W 内部で結合しなかった。これより、き裂は端部より発生し、中心へ向かい進展したと考えられる(図 3-2-8-b)。ここで注目したいのが、き裂の位置である。き裂は拡散影響を受けない W 内部 (W-Fe-B 化合相より  $70\mu\text{m}$ ) で進展していた。つまりこれは W 部分が、何らかの理由により接合前に比べ低い破壊強度を有していることを示している。

図 3-2-9 は、本研究で使用したものと同じ加工度 (1.5mm 厚) の W の  $1240^{\circ}\text{C}$ 1 時間の熱処理 (拡散接合と同じ環境) 後の曲げ試験結果を示している。受け入れ状態で 2150MPa に達していた破壊強度が、熱処理後では 1100MPa まで低下している。この結果より、拡散接合を行う温度域にさらされることにより、接合強度が低下することが判明した。

表 3-2-2 三点曲げ破壊強度結果

試験片	破壊強度 (MPa)
W-ODSS-1	270
W-ODSS-2	230
W-ODSS-3	140
W-ODSS-4	110
W-ODSS-5	280

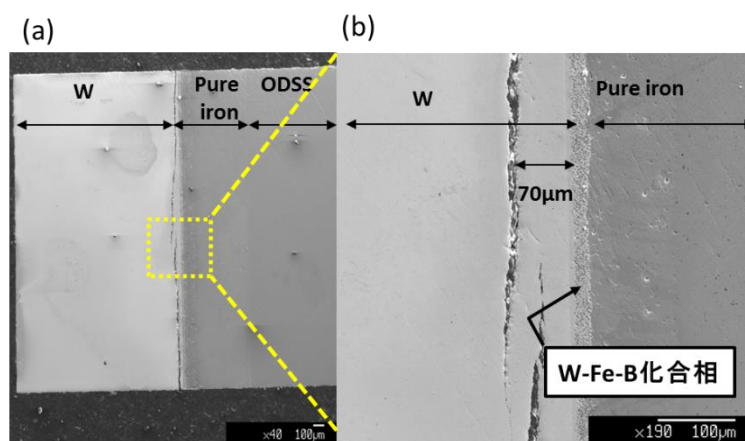


図 3-2-8 試験片 (W-ODSS-2) の微小曲げ試験後の破壊面観察

(a)W/二相中間材/ODSS 接合断面

(b)W/二相中間材接合断面

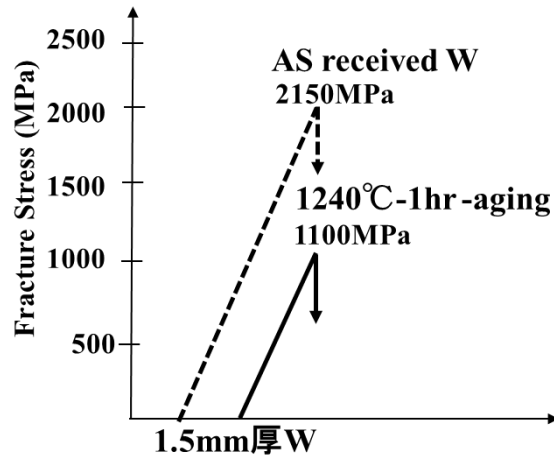


図 3-2-9 1.5mm厚 W の受け入れ材、1240°C焼鈍材の曲げ強度（各方向 2 回の試験結果）

3.2.3 考察

本研究では、接合後の W 内部の曲げ強度低下が確認された。その要因の一つとして、拡散接合時における脆化が考えられた。加えて、強度低下の要因として、W 結晶粒配向性も影響していると考えた。図 3-2-10 は拡散接合による拡散相とき裂発生位置の関係を示している。接合後母材近傍に拡散相が形成され、曲げ試験に供された。しかし、圧延 W の結晶粒配向が接合界面に対し、平行になっており、曲げ試験片底部に引張応力（最大繊維応力）が働くと剥離モードの破壊が容易に発生すると考えられる。

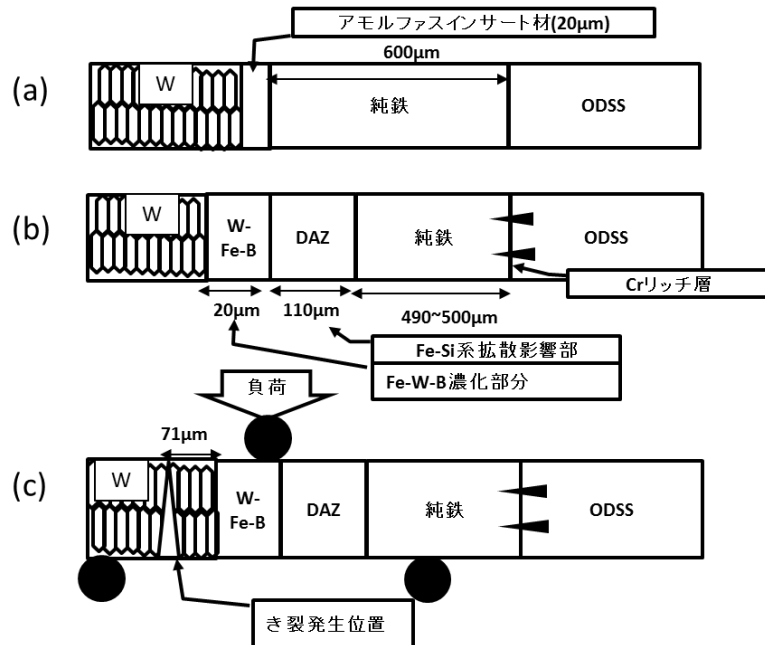


図 3-2-10 接合後の生成相  
(a)接合前、(b)接合後、(c)曲げ試験後

図 3-2-11 は、接合後の「拡散接合温度による脆化要因」と「結晶粒配向要因」による接合強度低下を模式的に示している。W 単体の曲げ強度が 2150MPa であり、拡散接合により強度低下した W の破壊強度は 1100MPa であった。これは W の再結晶脆化に起因したと考えられる。特に本接合で使用した W の厚さは 1.5mm 厚と薄く、加工率が高いと考えられ、拡散接合温度が再結晶開始温度に近かったと考えられる。またそのような W を用いた接合材の破壊強度は最大で 280MPa であった。この 820MPa の強度低下要因としては、「残留熱応力」や「結晶粒配向性」といった要因が考えられる。

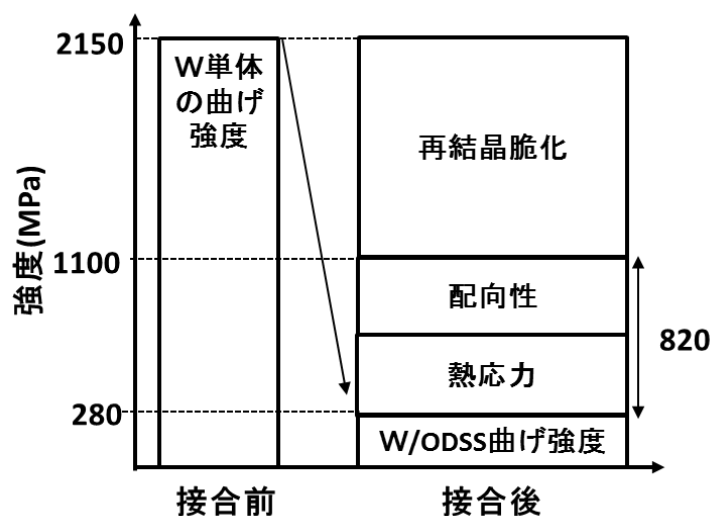


図 3-2-11 強度低下の要因の考察

(a)曲げ試験方向と結晶粒配向性、(b)曲げ強度低下要因考察

### 3.3 純鉄を中間材として用いた異材接合

#### 3.3.1 はじめに

前節では、W/ODSS の接合に純鉄/アモルファス箔の二層中間材により熱応力緩和を試みた。しかしアモルファス箔を用いたことにより拡散影響部の発生を確認された。当初、W/ODSS の接合にアモルファス箔と純鉄の二層中間材を用いた理由は、接合面の密着性の確保であった。本章では、純鉄のみを中間材として、密着性確保を目指した。特に、前節で用いた加圧試験器は圧縮試験を行うことも可能であり、微小変位を制御することが可能である。これを利用し、W/純鉄中間材/ODSS を拡散接合時に、三金属の中で最も降伏強度の低い純鉄中間材のみを降伏させ、母材 (W と ODSS) に対する密着性確保を試みた。また前節では、曲げ試験の結果、クラックは接合部近傍の W 内部であった。このため W 結晶粒配向性が接合強度に与える影響についても調査した。よって本節では、「純鉄中間材のみを使用したときの接合強度の評価」と「W 結晶粒配向性の接合強度に及ぼす影響の調査」を目的とした。

#### 3.3.2 実験方法

##### 1) 試料

本実験に用いた市販の W、ODSS (Fe-15%Cr-2%W-0.2Ti-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、中間材として使用した純鉄の初期材料を表 3-3-1 に示す。純鉄および、K-dope W の板材は、熱間鍛造および熱間ロールにより製造した。W 棒材は、熱間スウェーピングにより製造し、エスタンは、HIP (熱間等方圧 : Hot Isostatic Press) 処理により製造され、等軸結晶粒組織を有する。ODSS は機械的合金化法と熱間の押し出しにより製造された。また中間材として使用される純鉄は、冷間圧延された。またこれらの供給試験材料から接合試験片、曲げ試験片への加工はすべて放電加工により切出された。接合体の形状は、W と ODSS が 10 mm x 10 mm x 2.0 mm、純鉄中間材が 10 mm x 10 mm x 0.9 mm である。また W 単体の曲げ試験片形状は(1.0~2.0) mm x (1.0~2.0) mm x (7.0~13.2) mm とした。図 3-3-1 はこれら試験片の圧延方向および、押し出し方向を矢印で示し表している。加工方向に対し長手方向が L 方向、これに横方向を T 方向とし示している。試験片の表面は、SiC 耐水ペーパーにより、#500 から #4000 まで機械的研磨し、最終的に 1.0 μm. のダイヤモンドペーストによりバフ研磨を施した。

表 3-3-1 使用材料の初期形状・厚さ

Material	Shape	Thickness or diameter (mm)
Pure tungsten	Plate	1.0
		1.5
		2.0
		10.0
K-dope tungsten		1.0
Pure tungsten	Rod	φ20
S-TAN	Rectangular block	25
Pure iron	Plate	1.0
ODSS (Fe-15%Cr-2%W-0.2%Ti-0.35%Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ,KOBELCO Co.)	Rod	φ20

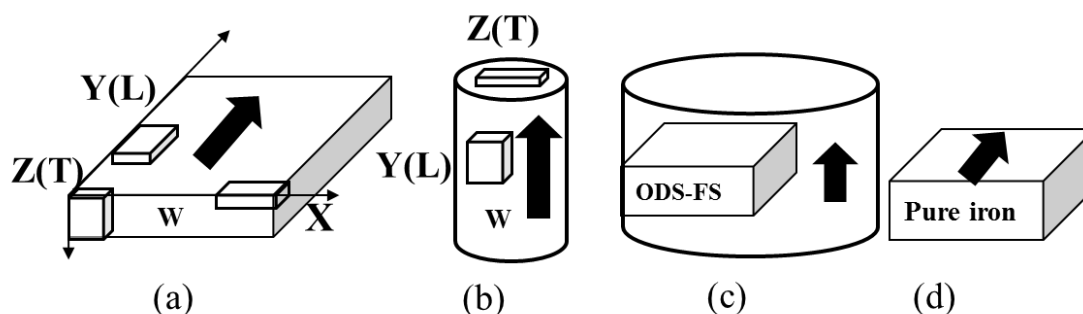


図 3-3-1 試験片の形状とそれぞれにおける塑性加工（圧延、押し出し）方向  
 (a) W 板材, (b) W 棒材, (c) ODSS 押し出し棒材 (d) 純鉄板材

## 2) 拡散接合と曲げ試験

拡散接合に用いた材料を表 3-3-1 に示した。中間材は、W と ODSS の間に配置した。拡散接合は、一軸加圧ホットプレス炉用いて、 $8.0 \times 10^{-4}$  Pa の真空下において、接合温度  $1240^{\circ}\text{C}$ 、1 時間保持で行った。接合保持間中に 2%程度の圧縮変形を加えることにより、W/ODSS との密着性を図った (図 3-3-2)。



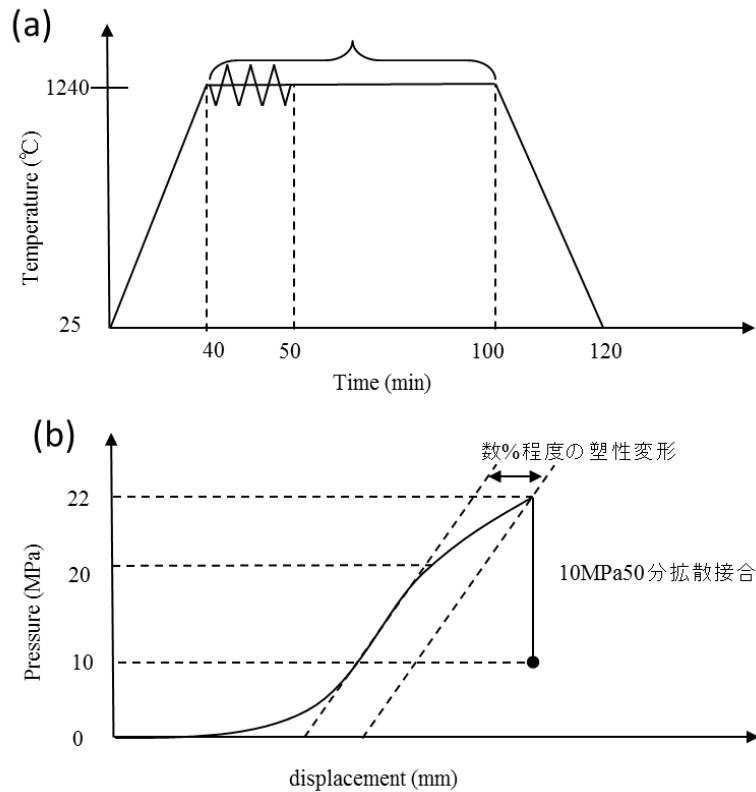


図 3-3-2 接合方法

- (a) 拡散接合における温度履歴  
 (b) 高温圧縮試験機による塑性変形導入

この拡散接合における強度は、室温で微小 4 点曲げ試験により評価するため、微小曲げ試験片(2.4mm<sup>w</sup> x 0.5mm<sup>t</sup> x 5.0mm<sup>l</sup>)が切り出された。この 4 点微小曲げ試験法は独自に開発されたもので、上部スパン長 0.8mm、下部スパン長 3.0mm に設計されている。(図 3-3-3)。4 点曲げ試験法は元来、上部幅部分に均一に最大繊維応力が働く特性をもっており、接合部評価に最適と考えられる (図 3-3-4)。なお曲げ試験の負荷速度は  $1 \times 10^{-3}$  mm/s である。

W 単体の曲げ強度測定では、受け入れ状態と同時に、拡散接合同条件の 1240°C1 時間の熱処理を加えたものを比較した。この試験は室温で 3 点曲げ試験器(下部幅: 7.0 mm もしくは 13.2 mm)により行われた。またこれら 3、4 点曲げ試験の評価における強度はすべて最大繊維応力を用いた。以下には 3 点曲げの最大繊維応力導出に用いた式を挙げる。

$$\sigma_{b \max} = \frac{3a}{bt^2} W_{\max}$$

導出式に用いた代数に関し、a は支持点から上部負荷点までの距離、b は試験片幅、t は試験片厚さ、 $W_{\max}$  は破断荷重である。

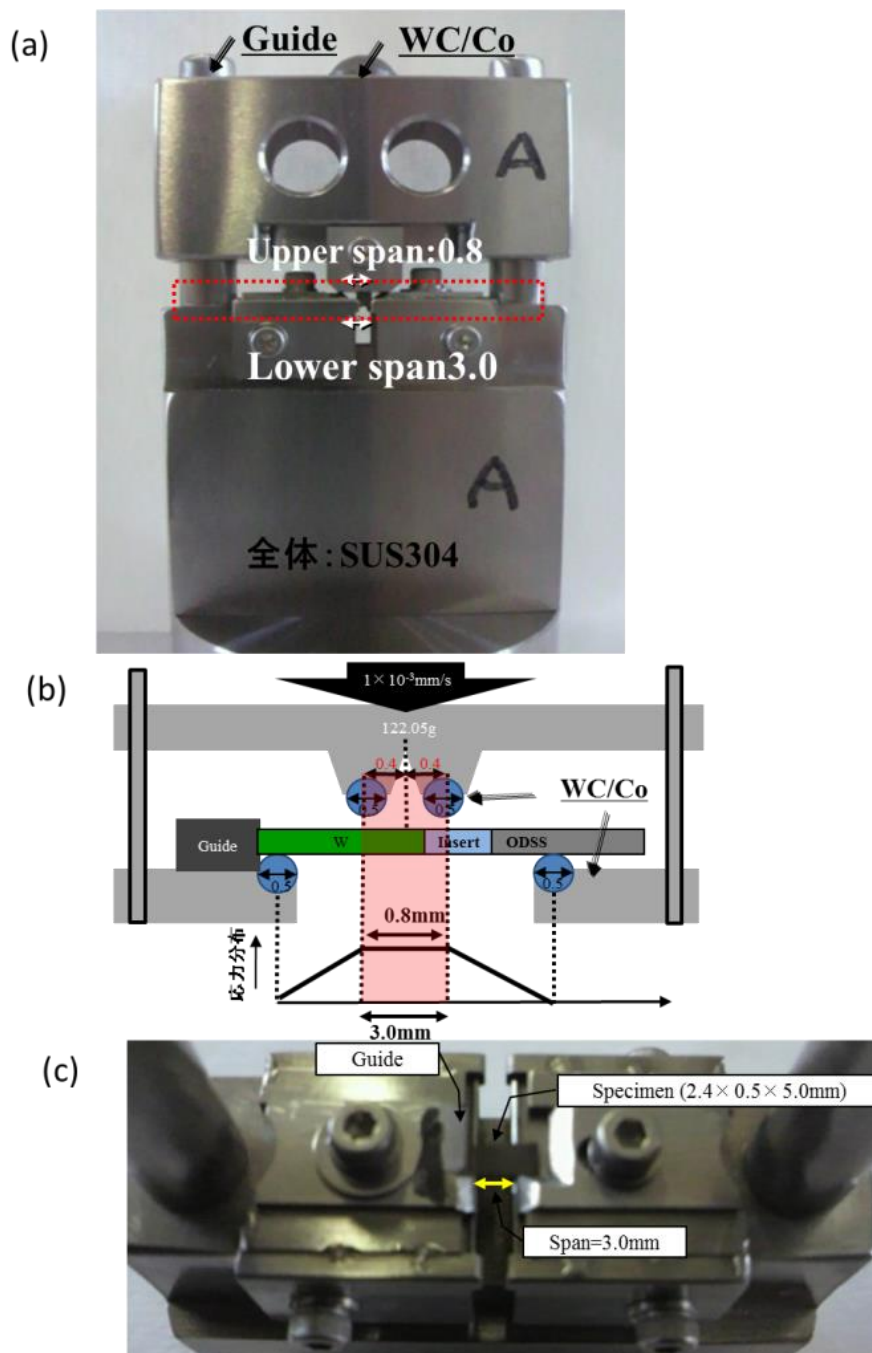


図 3-3-3 微小 4 点曲げ試験器概要

(a) 曲げ試験治具外観

(b) 曲げ試験治具寸法

(c) 下部スパン部

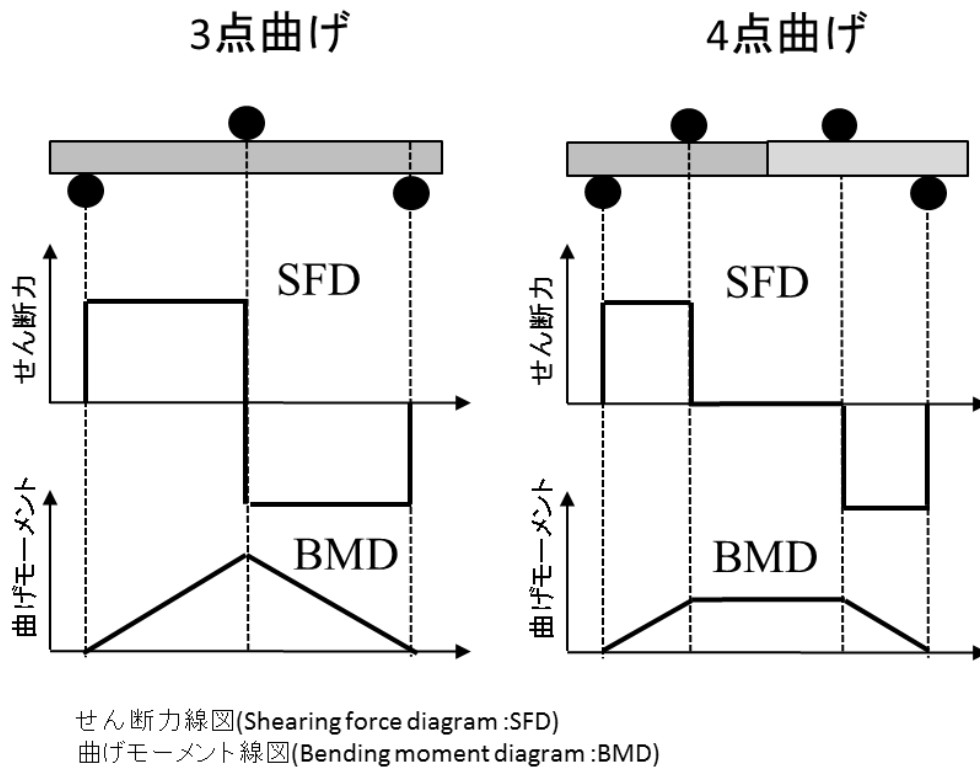


図 3-3-4 3点曲げ試験と4点曲げ試験における応力分布

### 3.3.3 結果

図 3-3-5 は、板状 W 単体の試験片において、試験片の厚さと熱処理（1240℃1 時間）が室温破断強度におよぼす影響を示している。0 mm, 1.5 mm, 10.0 mm 厚 W 受け入れ状態の強度は、Y(L)で 2440 MPa, 2150 MPa, 1230 MPa であった。これは W の厚さの増加が、顕著な強度低下を招くこと示している。薄厚の W は、必然的に加工率が高くなっており、その結果、受け入れ状態では、高い曲げ強度を示したと考えられる。これは熱間加工時の塑性変形により、転位の高密度化や、結晶粒微細化がおり、結果的に降伏、破壊強度が高くなったと考えられる。

一方で、熱処理後の破壊強度は、730 MPa, 1100 MPa, 1320 MPa であり、加工率の増加に伴う強度の低下を示した。これは、高い塑性加工が再結晶開始温度を下げたためと考えられる。W 材料にとって再結晶はランダム粒界の形成につながり、その異相界面には大きなひずみエネルギーが蓄積し、クラックの発生しやすい状態となるため、いわゆる再結晶脆化として脆い材料へと変化する。ランダム粒界の形成は、W 原子の強い原子間力や酸素や窒素といった侵入型元素の偏析・析出が起因しているといわれている。

10mm 厚 W 板では、破壊強度は、受け入れ状態と熱処理状態の強度差は小さかったが、試験片切り出し方向にかかわらず熱処理により増加した。これは 1240℃、1 時間の熱処理による回復現象であると考えられる。この理由として、10mm 厚 W の塑性加工率は 1240℃、

1 時間の条件で再結晶を開始するほど高くなかったためと考えられる。しかしながら、XYZ の方向による差は大きいものであった。特に Z 方向は、低い値を示した。その XZ 方向の値はそれぞれ、840、250 MPa、であり、Y 方向と比較すると、それぞれ 68%、20%であった。

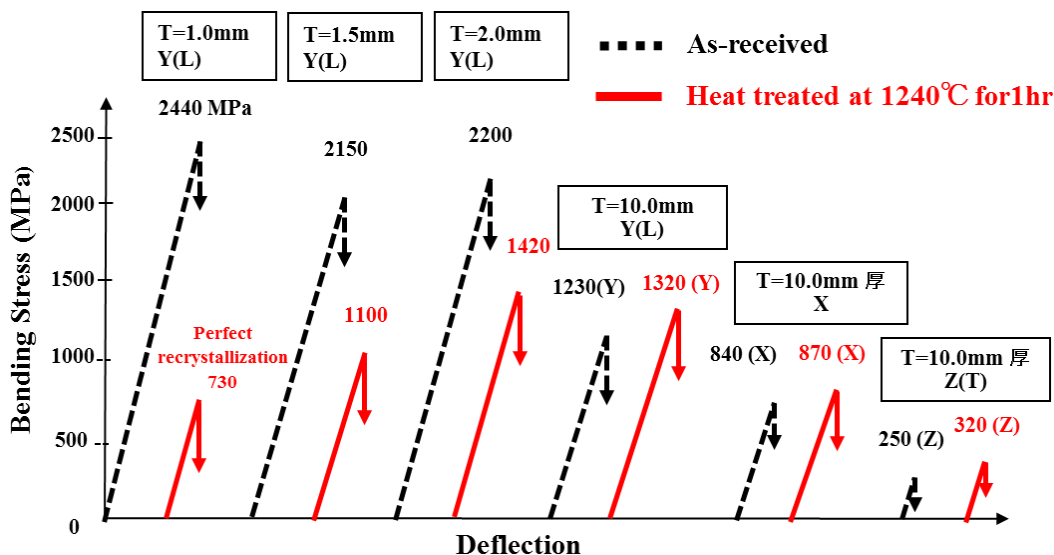


図 3-3-5 純 W (厚さ 1~10mm) の受け入れ材および 1240°C 熱処理材における三点曲げ試験の応力-たわみ線図。

図 3-3-6 は、製造工程の異なる W 材料 (K-dope W、20mm φ 棒材、S-TAN) における室温三点曲げ強度と結晶粒配向の関係を示している。1.0mm 厚 K-dope W-Y(L) 板材の強度は、おおよそ 1.0 mm pure W-Y(L) と同じ値を示した。その X 方向の強度は、1460MPa、であり、Y(L) 方向と比較すると 60% 程度であった。この 60% という値は、10mm 厚 W 板材の 68% の値とほぼ同じである。これらの結果は、板厚が K-dope W の破壊強度依存性が、純 W 板材と同様の傾向にあることを示唆していると考えられる。

W 棒材に関しては、XY 方向の強度は K-dope W と比べ低く、XY 方向の強度差も少なかった。これは棒材の押し出し径が大きく、塑性加工度が高くなく、10mm 厚 W の事例と同様であったと推測出来る。ここで注目すべき点は、S-TAN (エスタン) の Y(L) 方向の強度が調査対象の W の中で最も低いにもかかわらず、Y(L)Z(T) 方向での強度差は無かった点である。この結果は、エスタンが HIP 製造による等軸結晶粒を有していることに起因し、そのような結晶粒はクラックの影響を受けにくいと考えられる。

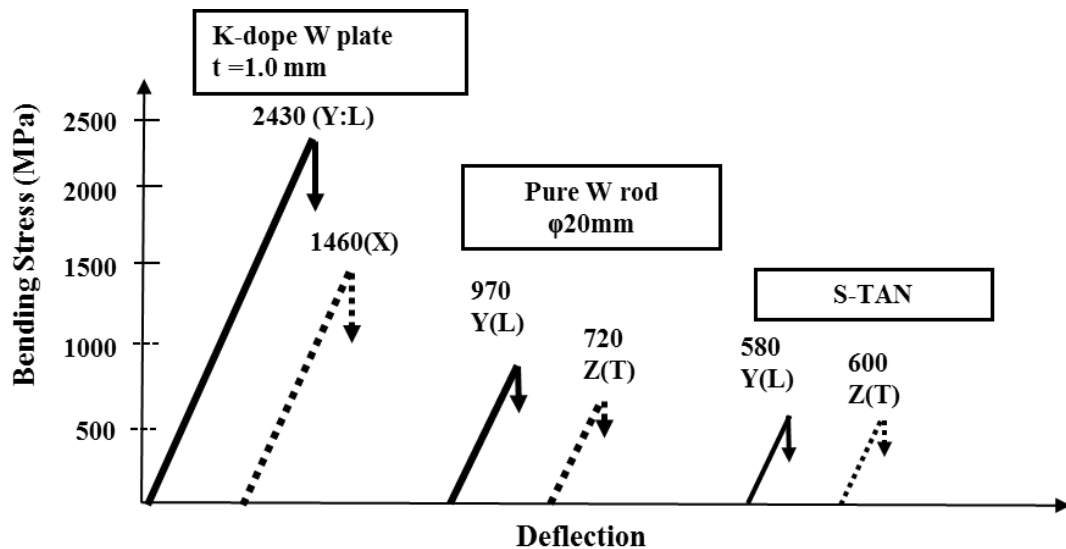


図 3-3-6

K-dope W,純 W 棒材,S-TAN(エスタン)の受け入れ材における三点曲げ試験の応力-たわみ線図。

図 3-3-7 は、純鉄中間材を用いた W/ODSS 接合材の室温 4 点曲げ試験における W 結晶粒の影響を示している。V 合金を用いた W/ODSS 接合では非常にもろく、接合強度を測定できなかった第 2 章の結果とは異なり、純鉄を中間材に用いた本接合では、接合強度評価を行うことが可能であった。これは、接合冷却段階で発生した熱応力が、容易な塑性変形能をもつ純鉄中間材の使用することより、緩和されたためと考えられる。K-Dope W を用いた接合強度は 112MPa であった。結晶粒配向が接合面に平行な T 方向の接合は特に低いものであり、純 W 棒材 (T 方向) は曲げ試験前の試験片切り出し中に亀裂が生じ、破壊した。その一方で、結晶粒配向が接合面に垂直な L 方向では、T 方向比べ高い値を示し、純 W 棒材 (L 方向) を用いた接合強度は 139MPa であった。この結果より、結晶粒配向を持つ W を接合する場合、結晶粒配向を接合面に対し垂直にした方がよい傾向を示している。一方で、エスタンは単体の曲げ強度に関し、本実験中扱った W の中で最も低かったにもかかわらず、その接合強度は際立って高く、324MPa にも達した。このエスタンをを用いた接合における高強度は、等軸粒 W が接合後の熱応力の緩和に対し、き裂が入りにくいためと考えられ、W/ODSS の拡散接合における接合強度の上昇に適切であるためと考えられる。

エスタンの単体の強度の低さにみられるように、結晶粒界が弱いという観点より、近年開発されている TFGR (Toughened, Fine Grained, Recrystallized) W-1.1%TiC の純鉄中間材を用いた ODSS への接合の適用は、さらなる接合強度の上昇を生むと期待できる。これは TFGR- W-1.1%TiC もまた等軸粒し、超微細粒構造を有し、結晶粒界を TiC にて強化し、高靱性化を図っているためである。

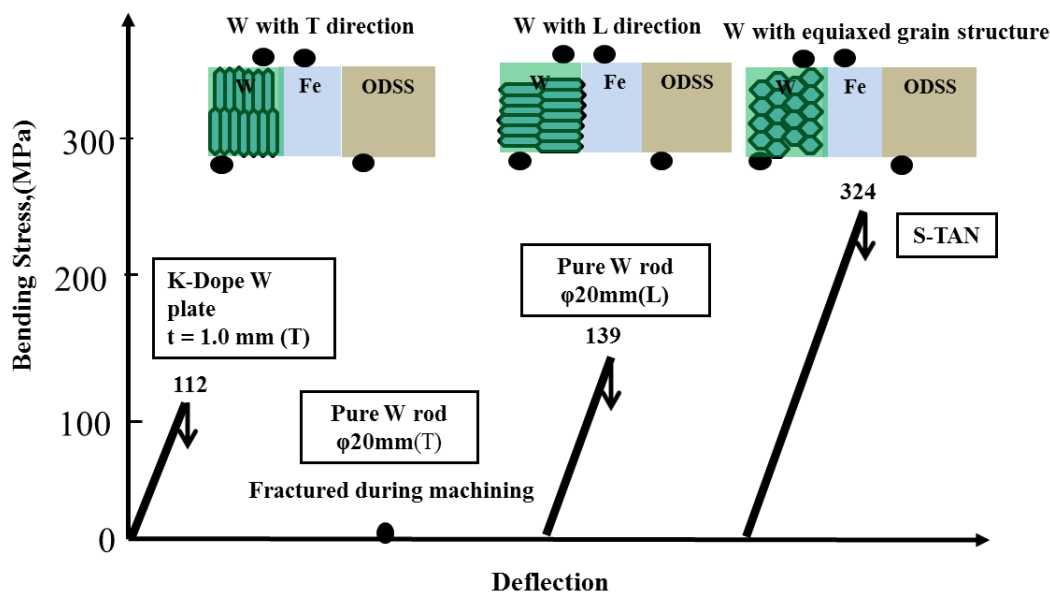


図 3-3-7 純鉄中間材を用いた W/ODSS 拡散接合の 4 点曲げ室温強度に及ぼす W 結晶粒の影響

### 3.3.4 考察

#### 1) 核融合炉設計における結晶粒配向

W の結晶粒配向は W/ODSS 拡散接合の強度に影響を及ぼすことが判明した。この結果を基に核融合炉構築時の W の配置について考察する。図 3-3-8 には、各種配向の W を ODSS に拡散接合した場合を想定した。図 3-3-8-(a)は、接合面に対し、垂直に結晶粒長手方向を配向する場合である。この配置は ITER ダーバータと同じである。この配置では熱衝撃に対し、き裂進展が容易であるが、垂直方向のき裂が想定されているため、冷却管のある支持構造体までの冷却能が確保できる特徴を持つ。図 3-3-8-(b)は、接合面に対し、平行に結晶粒長手方向を配向する場合である。この場合、熱衝撃に対し、き裂は進展しにくい特徴を持つが、曲げ強度に対し脆弱である。さらにき裂が発生すると接合面に対して平行に進展が予想される。この時、き裂部分で冷却能が喪失される。図 3-3-8-(c)は等軸粒の W を使用した場合である。この場合は、熱衝撃によるき裂が発生を仮定してもそのき裂は、進展しにくいと考えられ、冷却能の確保と、き裂による PFM の損失を生じさせない特徴を持つと考えられる。さらにエスタンを用いた接合材の曲げ強度においても、他の接合材よりも優位性を示した。つまり等軸粒 W の使用とその開発は、PFM において非常に重要であると考えられる。第 1 章で紹介した W-1.1wt%TiC もまた等軸粒であり、エスタンをはるかに上回る機械的特性や耐照射性を兼ね備えている。本実験より、W/ODSS 拡散接合を想定した場合には、等軸粒 W による接合が、W/ODSS 接合の健全性を維持する上で重要であると考えられる。

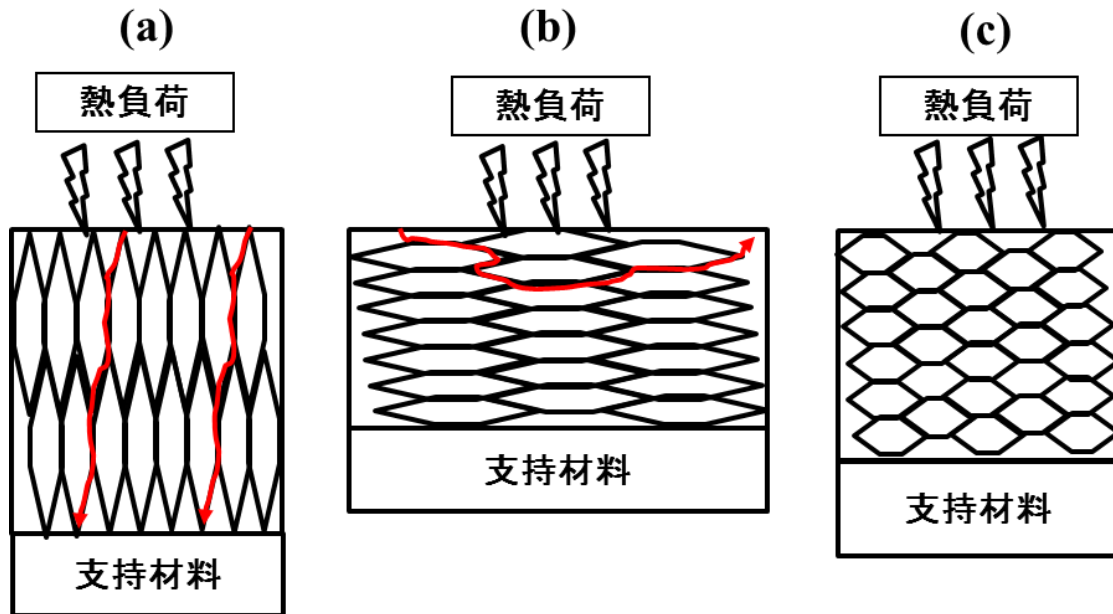


図 3-3-8 W 配向性が W/ODSS 接合に及ぼす影響を考慮したダイバータ設計の考察

(a)接合面に対し W 結晶粒を垂直にした例場合

(b)接合面に対し W 結晶粒を平行にした例場合

(c)等軸粒を使用した場合

2) 非定常状態[6~9]

第 1 章でも述べたようにトカマク型核融合炉内では、非定常状態と呼ばれる熱負荷が極めて厳しくなる場合がある。特に ELM や、ディスラプションでの熱負荷は特に厳しく、PFM-W には以下の様な現象が働くと考えられる。

- a) 過熱溶融：溶融凝固に伴う組織粗大化
- b) 急熱：熱応力負荷速度大（熱衝撃負荷）
- c) 温度変動：熱疲労⇒き裂

図 3-3-9 は、ダイバータ非定常時を想定した W アーマーの損傷例を示している。非定常熱負荷が大きい場合、溶融再凝固は、再結晶を伴い、再結晶脆化が発現すると考えられる。そしてパルス照射による亀裂発生とそれに伴う溶融の加速が損傷を促進すると考えられる。一方で熱負荷が小さくても、パルス照射による疲労き裂に伴う冷却能の低下は過熱溶融を促進し、熱負荷の大きい場合と同様の効果を生む可能性がある。W は金属元素として最高融点を有するため PFM として候補材に挙げられたが、その W すら溶融する状況も想定しなくてはならなくなっている。つまり溶融部の下部に発生すると考えられる再結晶脆化領域もまた想定しなくてはならない。

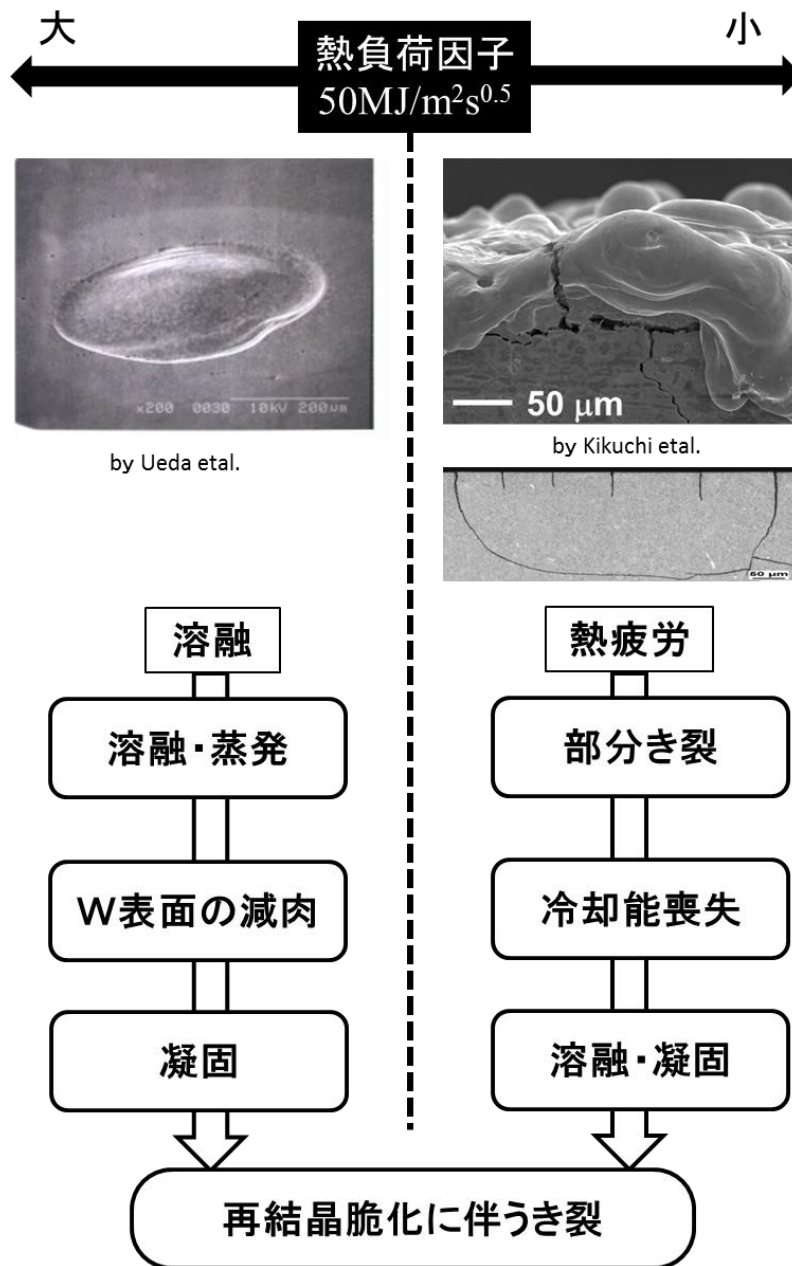


図 3-3-9 ダイバータ非定常時を想定した W アーマーの損傷例

図 3-3-10 には、圧延などによる集合組織を有した W と 1)で述べた再結晶状態強化 W (W-1.1wt%TiC 合金) の熱負荷後の組織を考察した。集合組織では、溶融に伴いその下部には、再結晶脆化領域が形成される可能性がある。この部分は炉内運転において、非常に健全性を欠く要因となる。しかし、W-1.1wt%TiC のように、製造段階で既に再結晶状態であれば、再結晶脆化領域が広がることは少ないと考えられる。

このように熱負荷による溶融を想定した場合においても W-1.1wt%のような、高靱性化分散強 W の研究・開発は必要であろう。



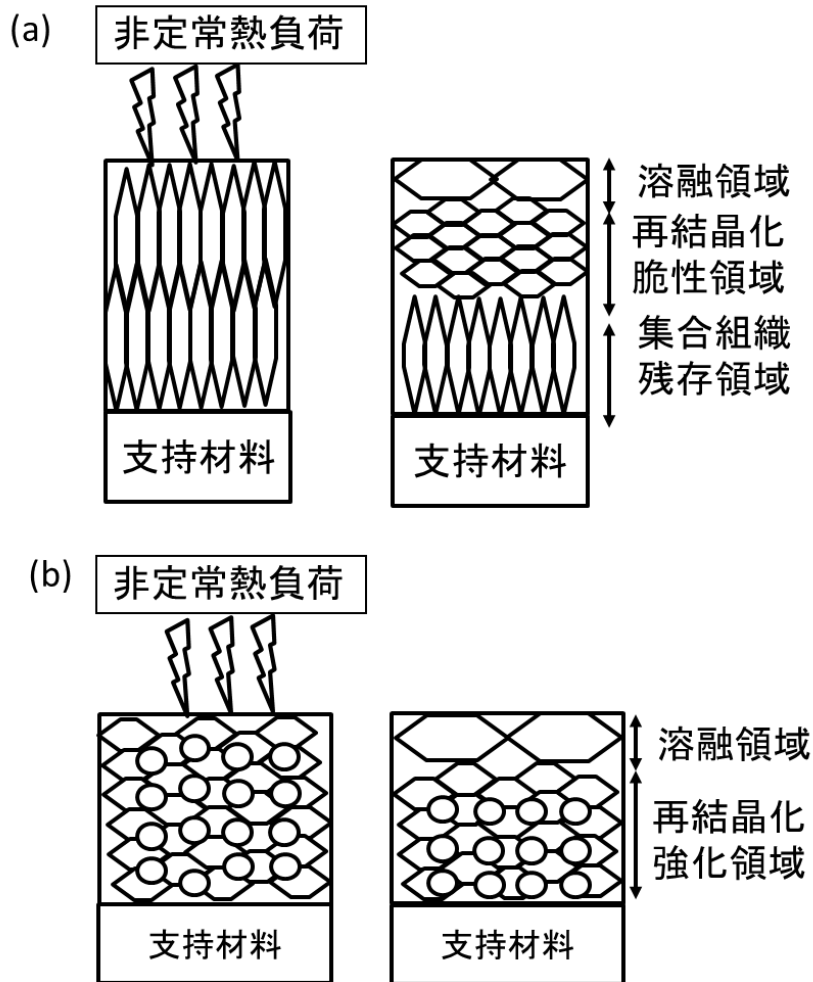


図 3-3-10 W 製造工程の違いによる熱負荷後の組織の考察

(a)集合組織の W を用いた構造体

(b)再結晶状態・等軸組織の高靱性化 W を用いた構造体

### 3.3.5 まとめ

W と ODSS の拡散接合技術の開発には、この異材間の CTE ミスマッチによる接合後の熱応力の軽減が求められている。この熱応力軽減のために低降伏強度や延性を有する純鉄を中間材として用いることは効果的である。W/ODSS の拡散接合において破壊は常に接合界面近傍の W 内部で起こっていることが確認されたため、その接合強度は結晶粒組織（粒径、配向性）に依存している可能性があるかと推測した。本研究では、接合に使用する結晶粒の最適化を W 単体の破壊強度を測定することにより図り、結晶粒組織の異なる W 材料、純鉄中間材を用いて、1240℃で W/ODSS を拡散接合し、接合強度に及ぼす W の結晶粒配向性の効果を調査した。得られた主要な結果を以下に示す。

1) 受け入れ W 板材では、板厚の減少に伴う顕著な強度の増加が観測された。これは塑性加工度の増加が破断強度を上昇させるためと考えられる。

### 第三章

- 2) 拡散接合と同等環境である 1240°C、1 時間の熱処理を加えた W の強度は、W の厚さの減少に伴い、際立って低下し、これは塑性加工率の増加が再結晶開始温度の低下を引き起こし、脆化に寄与したためと考えられる。
- 3) 10mm 厚の W に関し、XYZ 方向の強度に差が顕著にみられ、特に Z 方向では顕著に低い強度を示した。
- 4) エスタンの破壊強度は、本測定中の受け入れ材 W 中で最も低い強度を示し、XY 方向での強度差は見られなかった。この結果はエスタンが、HIP により製造され、等軸結晶粒を持つことに起因していると考えられ、このような結晶粒では、結晶粒界は強化されておらずクラックが入りやすいと考えられる。
- 5) エスタンは単体の曲げ強度では、本実験中、受け入れ材 W 内で最も低い値を示した一方で、W/ODSS の接合に使用した結果、接合強度は 324MPa に達した。この高強度は等軸粒 W が W/ODSS の接合で発生する熱応力緩和に寄与したためと推測できる。

#### 3.4 結言

本章では、W/ODSS の拡散接合における熱応力緩和を目的とし、純鉄中間材を用いて、塑性的応力緩和法を試みた。純鉄を中間材として使用するに当たり、W, ODSS との密着性を図るため、a)アモルファス中間材との併用および、b)中間材への圧縮変形の導入を試みた。主要な結果を以下に示す。

- 1) アモルファス/純鉄中間材の併用による W/ODSS の接合を行い、明確に接合強度を測定することが可能となった。
- 2)アモルファス中間材を使用した場合、融点降下元素 (Si,B) の影響により、W および純鉄側に拡散影響部が確認された。
- 3) エスタンは単体の曲げ強度では、本実験中、受け入れ材 W 内で最も低い値を示した。その一方で、W/ODSS の接合に使用した結果、接合強度は 324MPa に達した。この高強度は等軸粒 W が W/ODSS の接合で発生する残留熱応力緩和に寄与したためと推測できる。
- 4) 等軸粒組織を持つ W は、純鉄中間材を用いた W/ODSS における拡散接合強度の上昇に適していると考えられる。

### 第三章

#### 参考文献

- [1]H. Noto et al., Mater. Trans. 54 (2013) 451-455.
- [2] J.M. Chen et al.,Journal of Nuclear Materials 374 (2008) 298–303
- [3] Smid et al., J. Nucl. Mater. 258-263(1998)160-172
- [4]日本金属学会 金属データブック改正 2.4 版
- [5]S.Noh, et al., Acta Materialia,59(2011)3196-3204.
- [6]I.Uytendhouwen et al., J. Nucl. Mater.363-365(2007)1099-1103
- [7]G.Pintsuk et al.,Fusion Eng.&Desiogn,82 (2007)1720-1729
- [8]S.E.Petchanyi et al.,Fusion Eng.&Desiogn82 (2007) 1657–1663
- [9]K.Nakamura et al.,Fusion Eng.&Desiogn, 39-40(1998)295-301

### 第四章 タングステンの機械的特性評価

#### 4.1 緒言

第3章では、W結晶粒の配向性が接合強度に影響を及ぼすことが明らかになった。本章では、製造工程の異なるWに関し、その機械的特性の調査を目的とし、加えて、第一壁被覆として注目されている真空プラズマ溶射法によるWの中性子照射後の機械的特性評価を第二の目的とした。

#### 4.2 Wにおける配向性と曲げ強度比較

##### 4.2.1 はじめに

タングステン(W)は、その優れたプラズマ対向特性により、先進核融合炉システム用材料として注目を集めている[1]。Wの最も大きな特徴として、金属元素中で最も高い融点(3683K)を持ち、非常に良好な熱伝導率(167 W/m・K (293K))、水素同位体に対する最も低い溶解度およびリテンション性、耐スパッタリング性を持つ点あげられる。このため、熱核融合実験炉(ITER)では炉内ダイバータのすべてをタングステンで製造する計画となっている[2]。

プラズマ対向材料(PFM)としてのWは冷却機能が求められるが、その一方で冷却管(構造物)との異種接合により大きな温度勾配にさらされ、大きな熱応力を受けることが懸念されている。したがって、WのPFMとしての適用のためには、Wの熱機械的特性が必要である。しかしながら、もっとも基本的な純W材料についてさえも熱機械的特性のデータは少ない。

Wは元来、VIA遷移金属に特有な原子間の強い共有結合性のために、焼結材におけるランダム粒界のエネルギーが高く、これに起因し、粒界脆化を引き起こす。この粒界脆化を防止するため、熱間圧延や線引き等の強塑性加工により、結晶粒界を応力軸に平行な配向に組織制御する方法が採用されてきた。しかし、この方法で製造されるWは線材や薄板材に限られるとともに、そのような強塑性加工材は再結晶温度が低く、高温加熱中に再結晶が生じて粒界脆化(再結晶脆化)を起こす。また、ITERダイバータに使用されるWのように厚い板材(ITERでは12 mm厚)では、圧延率が低く、したがって圧延による組織制御の効果は限られる。さらに、前章でも示されたように熱応力のような複合応力場に対しては、圧延による組織制御の効果はほとんど期待できない。

このように塑性加工Wの機械的特性は、結晶粒配向性に強く依存し、高温環境下での再結晶化により大きく変化する。前章では、Wのこのような機械的特性のため、鉄基材料とWの拡散接合後に発生する熱応力によりW内にき裂を発生することが明らかになっており、さらに、加工Wの場合、結晶粒配向性もまた接合強度に影響を与えることがわかっている

[3]。そこで本章では、純 W に関し、その機械的特性に及ぼす結晶粒配向性・熱処理温度・試験温度の効果を評価することにより、PFM としての適用性調査を目的とする。

#### 4.2.2 実験方法

##### 1) 試料

表 4-2-1 強度試験に用いた純 W の初期形状、厚さ、直径

Shape	Thickness or diameter (mm)
Plate	1.0, 1.5, 2.0, 10.0
	12.0 (ITER grade thickness)
Rod	$\phi=20.0$
S-TAN	25.0

用いた市販の純 W の形状、厚さを表 4-2-1 に示す。いずれも純 W の原料粉末をゴム製モールドに充填して冷間等方加圧 (CIP : Cold Isostatic Press) により成形した後、水素気流中で加熱焼結し、さらに板材 W は熱間圧延を、棒材 W は熱間押し出しを施し、最後に再結晶温度以下で応力除去処理したものである。一例として、厚さ 2.0mm 板材の 1240°C 焼鈍前後における組織を図 4-2-1(a)(b) に示す。図 4-2-1 は、圧延面に垂直で、圧延方向に平行な面 (図 4-2-2(a)) を腐食したものであるが、供試材では結晶粒が圧延方向に長く伸びているのに対して、1240°C 焼鈍後はかなり再結晶とみられる結晶粒の等軸化が生じている (結晶粒径 : 約 11 $\mu$ m) ことがわかる。一方、エスタンは熱間等方加圧 (HIP) により焼結されており、結晶粒径が 7 $\mu$ m 程度でほぼ等軸結晶粒を有している (図 4-2-1(c, d) 参照)。

機械的特性評価のための曲げ試験片と引張試験片は、図 4-2-2(a)~(d) に示す方向・形状にワイヤーカットで切断された。その後、全ての試験片表面に対し 4000 番までの耐水ペーパーにより研磨し、最終的に 1.0  $\mu$ m のダイヤモンドペーストによりバフ仕上げを施した。また、曲げ試験片については、拡散接合時想定環境 (1240°C, 1 時間) および炉内想定環境 (1100~1600°C) を想定し、 $8 \times 10^{-4}$  Pa の真空下、1100~1600°C で 1 時間熱処理を施した。

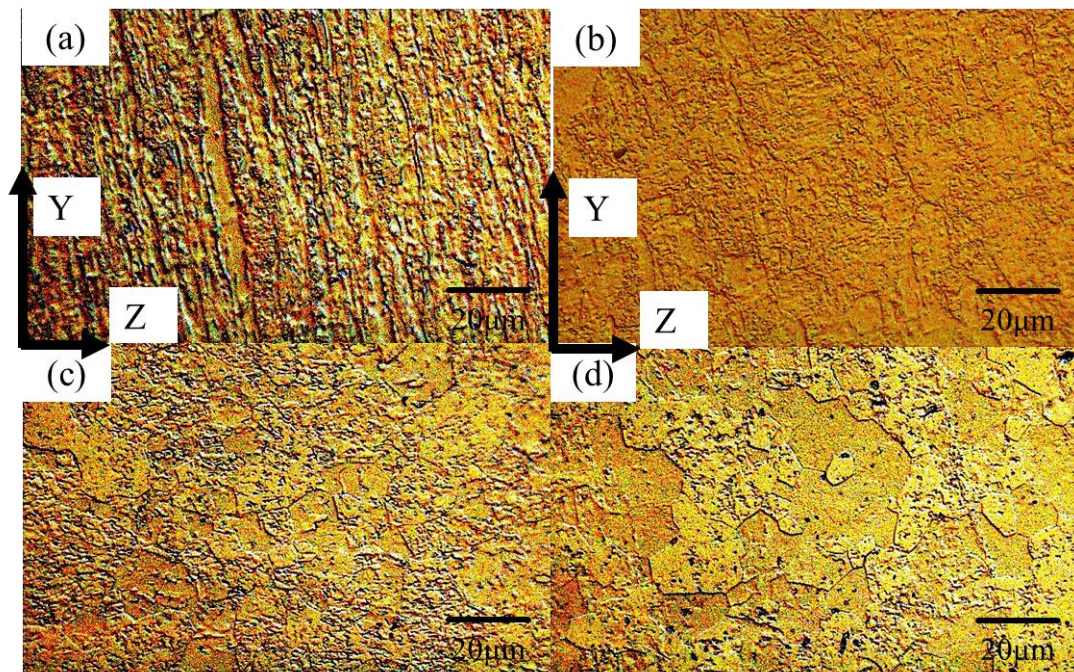


図 4-2-1 光学顕微鏡観察

(a)2mm 厚 W : 受け入れ材、(b)2mm 厚 W : 1240°C1 時間熱処理材

(c)エスタン : 受け入れ材、(d)エスタン : 1240°C1 時間熱処理材

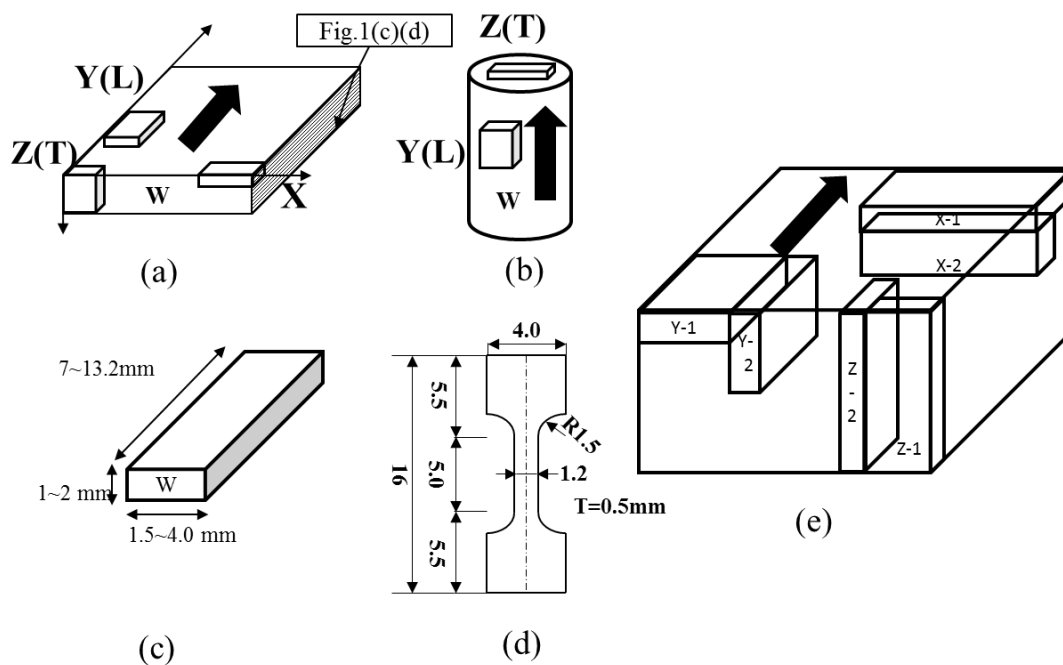


図 4-2-2 試験片の構造

(a) W 板材、(b) W 棒材 (c) 曲げ試験片(d)引張試験片 (e) W 板材における試験片切出し (t=10mm)\*矢印は圧延、押し出し方向

2) 強度試験

曲げ試験は、室温において、初期歪速度  $1.7\sim 6.1\times 10^{-4}/s$  で、7.0 または 13.2mm スパンの3点曲げ試験治具を用いて行った。一方、引張試験は、室温 $\sim$ 1300 $^{\circ}C$ 、初期歪速度  $2\times 10^{-4}/s$ 、真空度  $5\times 10^{-5}$  Pa で行った。試験片加熱は、グラファイト製サセプタを用いた高周波誘導加熱により間接的に PID 制御を行い、サセプタにあけた直径 4mm の孔を通して試験片表面温度を放射温度計により計測した。用いた引張試験治具は、圧縮荷重負荷方式の治具[4]を用いた。この治具はワンタッチで引張試験片装着が可能であり、引張試験片のピン部の塑性変形を防止するため、ピン孔でなく 4mm $\times$ 4mm 試験片肩部で荷重を担うように改造したものである。材質は試験温度に応じて MoRe-2 (Ni-25%Cr-15%W) あるいは高強度グラファイトである[5]。高温引張試験中の雰囲気からのガス不純物(酸素、窒素)による試験片の酸化を防止するため、試験片表と裏の両面に試験片形状の Ta 箔をゲッター材として接触させた。ITER grade thickness W (12mm) と S-TAN は 200 $\sim$ 1300 $^{\circ}C$  で高温引張試験に供した。放電ワイヤー加工により切出した後、上下面、側面を耐水研磨紙で機械研磨した。試験治具は、室温試験で使用された。引張試験片 (4.0 x 0.5 x 16.0 mm) の強度は、圧縮負荷方式引張試験治具により測定された。本引張試験は、歪速度  $2\times 10^{-4}/s$  で行われた。

4.2.3 結果・考察

図 4-2-3 に、純 W 板の室温破壊強度に及ぼす供試材の板厚(薄いほど圧延率が高い)と熱処理の効果を示す。圧延率の高い 1.5、2.0mm 厚 W では破壊強度に違いはほとんど見られないが、1.5mm 厚 W (Y、X) および 2.0mm 厚 W (Y) では降伏が生じた。これは、緒言で述べた強圧延による組織制御の効果であると考えられる。一方、これらの強圧延材では、熱処理により破壊強度は大きく低下し、1.5mm 厚の Y 方向で 39% (1463MPa)、X 方向で 38% (1523MPa) 低下し、2.0mm 厚の Y 方向では 52% (1335MPa)、X 方向では 40% 低下 (1329MPa) した。図 4-2-1 で示したように、2.0mm 厚 W では熱処理後、再結晶が生じていたことから、これらの強度低下は再結晶脆化によるものと考えられる。

これに対し、10mm 厚 W の受け入れ材は、室温で塑性変形(延性)を全く示さず、破壊強度は Y 方向で 1232MPa、X 方向で 838MPa と、2.0mm 厚 W の 44% (Y 方向) と 38% (X 方向) にまで低下した。これは、圧延率の違いによる効果と考えられる。しかしながら、10mm 厚 W では、いずれの方向でも熱処理により破壊強度がわずかながら上昇している。これは、圧延率が低いため圧延により蓄積された内部エネルギーが 1240 $^{\circ}C$ 、1 時間で再結晶を起こすほど大きくはなかったこと、圧延時に導入された転位の配列の変化・消滅が生じたことによるものと考えられる。しかしながら、ここで注目すべき点は、Z 方向の強度が Y 方向や X 方向と比較して非常に低い値を示したことであり、10.0mm 厚 W では、248MPa (熱処理後 320MPa)、12.0mm 厚 W では 267MPa (熱処理後 314MPa)であった。この Z 方向の破壊強度の低さは、引張軸に対し垂直あるいは垂直に近い配向の結晶粒界により、粒界

に沿ってき裂が発生、伝播が容易に進んだためと考えられる。現在 ITER ダイバータは、結晶粒界が支持構造体に対し垂直に配向するモノブロック構造の使用が計画されている。これは、高熱負荷による熱応力で粒界にき裂が生じても冷却性能を失わないためである。ダイバータ設計において、XYZ 方向に関する結晶粒配向性を考慮し設計することが極めて重要であるといえる。

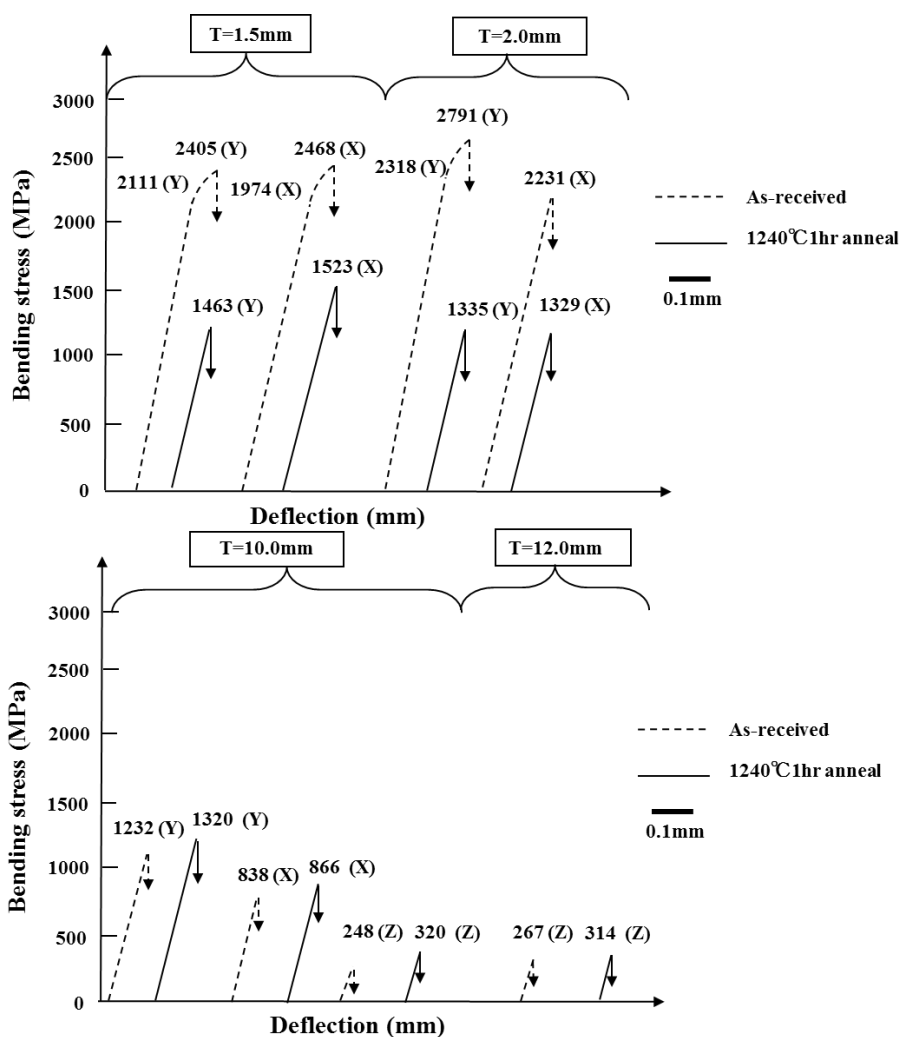


図 4-2-3 純 W (厚さ 1~10mm) の受け入れ材および 1240°C 熱処理材における三点曲げ試験の応力-たわみ線図。

図 4-2-4 は 10mm 厚純 W の室温三点曲げ強度の焼鈍温度依存性を示している。各 3 方向すべてにおいてデータのばらつきが大きいものの、平均値は 1100°C から 1300°C までは大きな変化は見られなかった。1300°C ~ 1600°C での範囲では、XY 方向の強度に減少がみられるが、X 方向は、供試材の強度よりも高いのに対し、Y 方向は供試材の強度よりも低下している。これは、図 4-2-3 の結果と同様に再結晶脆化によるものと考えられる。しかし Z



方向では反対に強度の上昇がみられた。これは、再結晶による結晶粒等軸化により、引張軸に対し垂直な配向の結晶粒界が減少したためと考えられる。これらの結果より 10mm 厚より低い圧延率の W では 1300°C までの熱処理では再結晶脆化の影響は見られないという重要な結果が得られた。

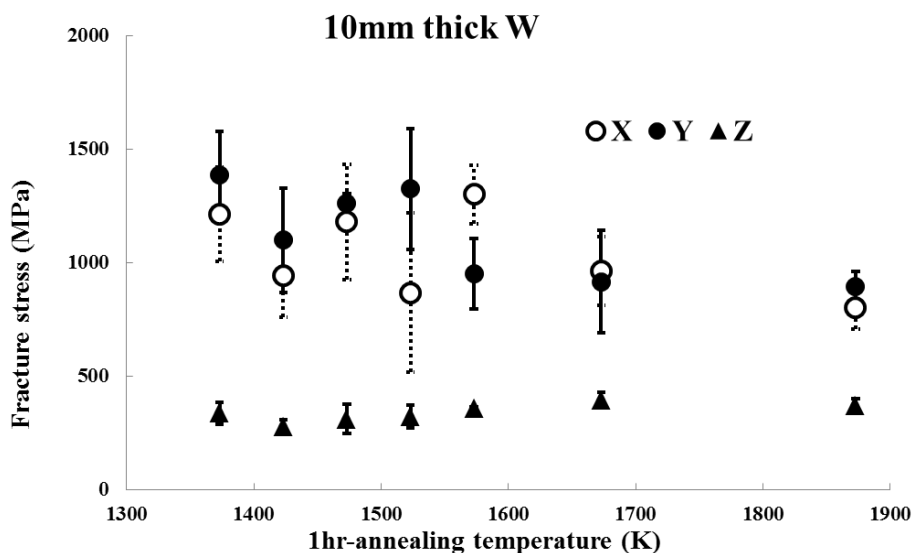


図 4-2-4 純 W (厚さ 10mm) の熱処理材(1100~1600°C, 1hr)における室温三点曲げ破壊強度

図 4-2-5 には、室温における 10mm 厚 W の圧延方向をさらに二方向に分類し、圧延方向の曲げ強度に及ぼす影響を示した。X 方向(X-1.2)はそれぞれ 942,916MPa であり、Z 方向(Z-1.2)はそれぞれ、219,208MPa であり、ほとんど差は見られなかった。しかしながら、Y 方向は Y-1,2 で 930MPa,609MPa と 34%程度低下した。

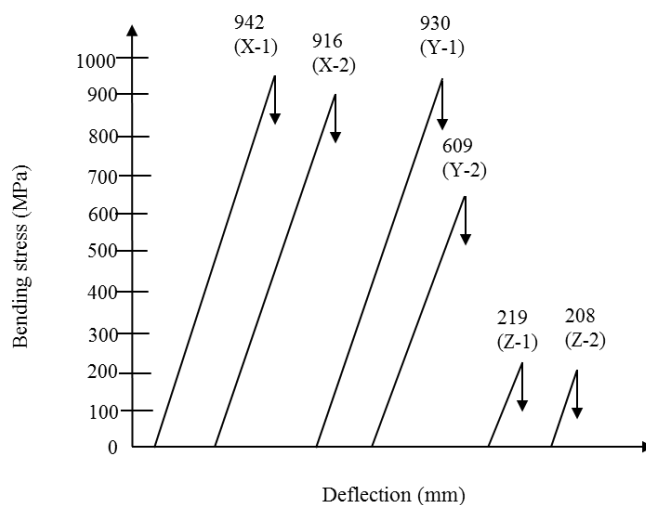


図 4-2-5 純 W (厚さ 10mm) の受け入れ材における室温三点曲げ破壊強度

図 4-2-6 は、製造工程の異なる純 W 棒とエスタンの受け入れ材、および 1240°C 1 時間熱処理材の室温 3 点曲げ試験結果を示している。純 W 丸棒は、Y、T 方向で若干の強度差が認められるが、熱処理後ではいずれも強度の上昇が見られる。これは図 4-2-3 の 10、12mm 厚 W のケースとほぼ同様で、押し出し径が大きく、加工率が低かったためと考えられる。一方、エスタンは等軸結晶粒とみなされるため、切断方向による強度差はないものと予想されたが、図 4-2-6 から明らかなように、少ないながら強度差が認められる。これは、HIP 時の加工率が圧縮方向にやや依存したことを示唆しており、今後の検討課題である。エスタンの注目すべきは、熱処理後に 853MPa と ITER grade thickness W の Z 方向よりも 2.7 倍近い高い強度を示したことである。W とフェライト鋼の異種接合に関する先行研究では、接合後の熱膨張係数の差による熱応力のような複合応力場（引張応力、せん断応力）の緩和が、エスタンは圧延加工 W よりも優れていることも明らかになっている。この結果は、配向性を持たない W の開発・使用が非常に有益であることを示している。

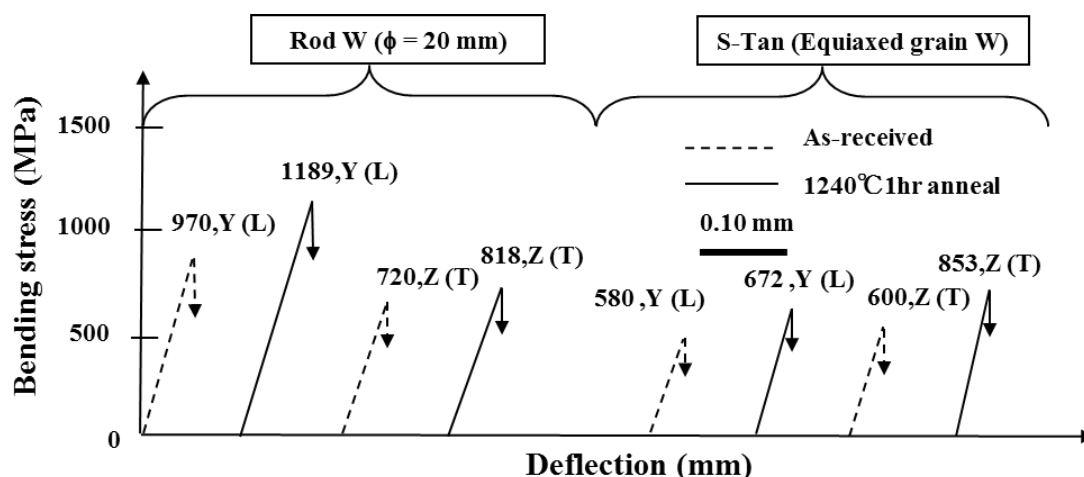


図 4-2-6 W 棒材、エスタンの受け入れ材および 1240°C 熱処理材における三点曲げ試験の応力-たわみ線図。

図 4-2-7 は、ITER grade W の引張試験による降伏強度（0.2%耐力）の試験温度依存性を示したものである。200°C~400°C までは顕著に降伏応力は減少している。BCC 遷移金属の低温領域で見られる顕著な降伏応力の温度依存性は、らせん転位がパイエルス障壁を乗り越える過程（熱活性化過程）が降伏強度を支配するパイエルス機構によることが知られている。したがって、400°C 以下の降伏強度の温度依存性はパイエルス機構によるものと考えられる。一方、400°C 以上ではあまり降伏強度の減少は見られなかった。これは、400°C 以上では、らせん転位のパイエルス障壁の乗り越えが容易になったためと考えられる。また、ITER grade W の Y 方向と X 方向の間に降伏強度の差は見られず、等軸結晶粒のエスタンのも同様な強度を示している。これは、転位のすべり運動に対する転位等の内部

応力を与える障害物の効果（非熱活性化過程）が、圧延率の低い板材と等軸粒のエスタンでは、ほとんど差がなかったことを示していると考えられる。

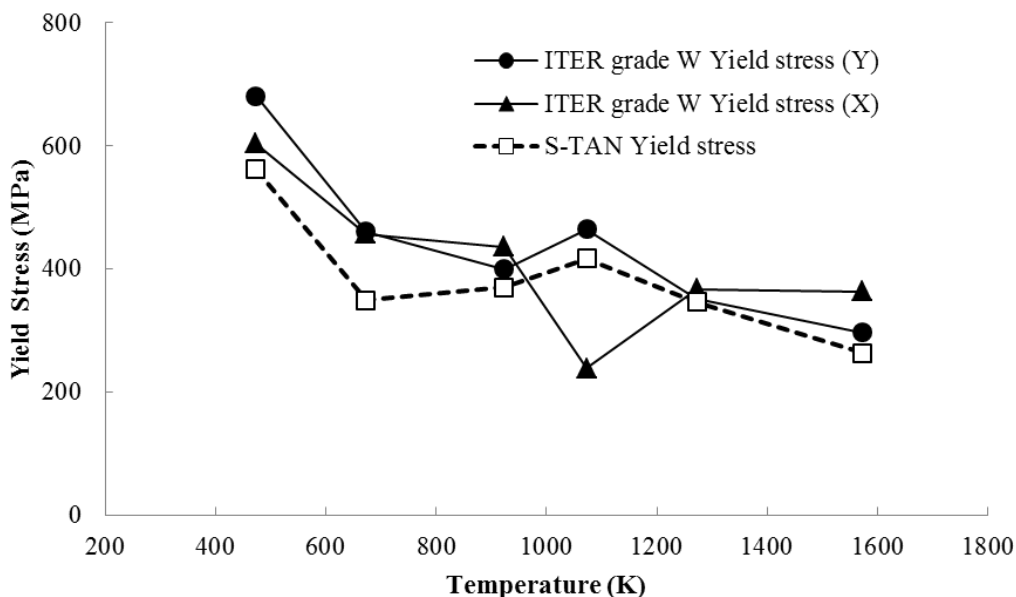


図 4-2-7 ITER grade 純Wと、エスタン引張試験における降伏強度（0.2%耐力）の温度依存性（歪速度： $2 \times 10^{-4}$  /s）

#### 4.2.4 まとめ

本研究では、核融合炉プラズマ対向材料として注目されているタングステンに関し、炉体構造製作および運転の健全性に重要な機械的特性を調査した。特に異材接合環境（1240°C、1時間）や炉内環境（1100～1600°C）を想定し、純W（板材、棒材、等軸粒W）の室温での曲げ強度に及ぼす結晶粒配向と熱処理温度の効果、および引張特性に及ぼす試験温度（室温～1300°C）の効果の評価し、以下の結果を得た。

- 1) 10～12mm厚Wでは、供試材の強度は低いが、1240°C熱処理によりわずかながら強度が上昇した。これは圧延率が低いため圧延により蓄積された内部エネルギーが1240°C1時間で再結晶を引き起こすほどでなく、回復が生じたためと考えられる。
- 2) 10mm厚Wの破壊強度に及ぼす熱処理温度の効果は、結晶粒配向によって変化する。圧延の効果があまり期待できないX,Z方向では1600°C熱処理まで強度が増加するが、圧延の効果が表れるY方向では1300°C以上で再結晶によるとみられる強度低下がみられた。
- 3) 等軸結晶粒を有するエスタンは、結晶粒配向性に影響されず、ITER grade W Z方向よりも高い強度を示した。
- 4) ITER grade Wとエスタンによる高温引張試験の結果、200°C以上で延性が発現し、降

伏強度は同様の温度依存性を示した。

### 4.3 VPS-Wにおける中性子照射影響

#### 4.3.1 VPS法と核融合炉における位置づけ

第1章で紹介したVPS-Wに関し、Wと鉄鋼材料の接合・被覆部の中性子照射影響のデータ数は少なく、調査研究が急がれている。そこでオークリッジ国立研究所(Oak Ridge National Laboratory: ORNL)のHFIR (High Flux Isotope Reactor)で中性子照射を行った。核融合炉の第一壁部では高熱負荷・中性子付加を受けることが想定されている。従来は、低Z材料であるベリリウムを第一壁部PFMに用いることが期待されていたが、近年では、その熱負荷想定が増したため、Wの検討がなされている。そして、構造材料として期待されているのが、低放射化フェライト・マルテンサイト系鋼(F82H鋼)であり、これに対してWをPFMとして被覆することが期待されている組み合わせである。W被覆法には様々な手法が考案されてきたが、今最も期待されている手法が「減圧プラズマ溶射法(VPS法; Vacuum Plasma Spraying Method)」である。VPS法の特徴としては、

- ・溶射対象物に対する自由度が比較的高い点
- ・酸化などにより材料特性を変えないまま被覆可能である点
- ・活性金属への製膜が可能である点。
- ・大気中プラズマ溶射法(APS法)と比較し、粒子の飛行速度が速く、より緻密に製膜が可能である点。

などが挙げられる。このような特性をもったVPS-Wは、核融合熱負荷を受けるため、固体W同様に熱衝撃試験が行われており、その核融合炉適用性の研究がおこなわれている[6-7]。しかしながら、中性子照射研究は少ない。そこでVPS-Wの中性子照射影響を調査した。特に、照射による硬さ影響を調査することにより、弾きだし損傷による照射硬化影響を調査した。

#### 4.3.2 HFIR

##### (HFIR概要)

高流速同位体実験炉(High Flux Isotope Reactor : HFIR)はORNL内にある炉材料に対する中性子照射試験を目的としてつくられた動作電力82MW、HFIR中性子量 $8.87 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>・Sの実験炉である。この実験炉を使用し、国際連携により、核融合フラックスに近い中性子照射が様々な候補材に対し行われてきた。

##### (キャプセル構造)

HFIRの基本構造は核分裂型軽水炉とほぼ同じであり、キャプセルと呼ばれる容器に封入され、照射エリアに充填される。今回使用したキャプセルはラビットタイプである(図4-3-1)。本実験で使用した。キャプセルは「T9C1」と「T9C2」と識別された。

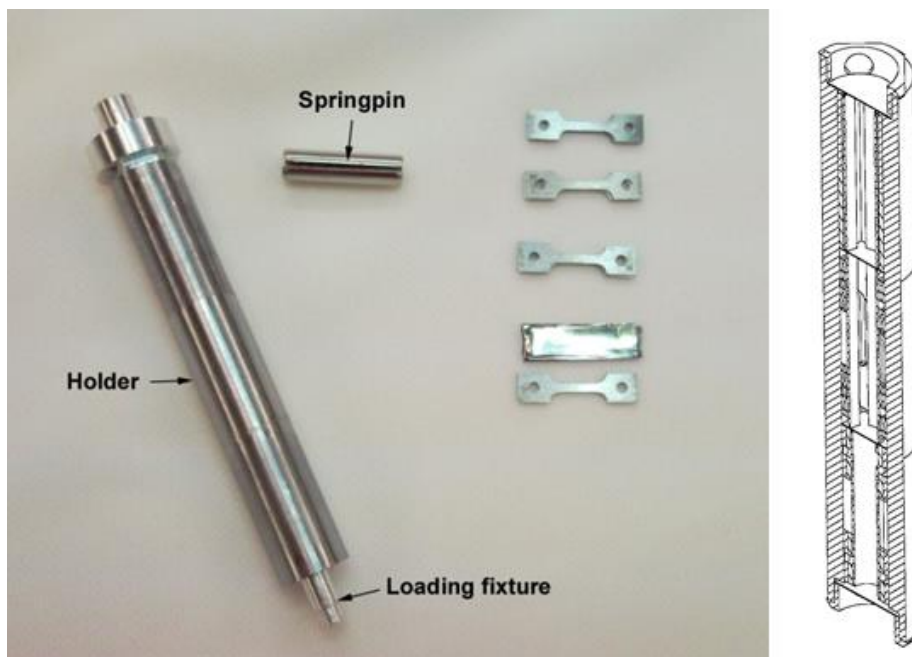


図 4-3-1

ラビットキャプセルの概要

### 4.3.3 実験方法

#### 1) 試験片

試験片の基材および VPS-W の組成は表 4-3-1 に示す。F82H は、低放射化フェライト鋼として知られている材料である。K1-ODS、および K-4ODS は、核分裂炉の燃料被覆管用材料の研究であるスーパーODS 鋼プロジェクトにおいて製造された試験材である。特に、高延性化のためのアルミニウム添加や耐熱性向上を目的としたタングステン添加といった点で、組成が変えられている。

表 4-3-1 試験片組成

試料	組成
VPS-W	純W(相対密度89.1%)
F82H	Fe-8Cr-2W-0.1C (Wt%)
K1-ODS	Fe-19Cr-0.3W-0.35YO (Wt%)
K4-ODS	Fe-19Cr-4Al-2W-0.35YO (Wt%)

## 第四章

### 2) 照射方法

図4-3-2はHFIR内の構造と本実験試料を装填したキャプセルの置かれる位置を示している。HFIRでの照射実験は1サイクル22日として、計画的に行われる。本実験では、425サイクル目に2キャプセルを挿入し、5.5dpaのT9C1は427サイクル目に取り出し、9.6dpaのT9C2は429サイクル目に取り出した。これら照射期間はそれぞれ、110日、225日であった。それぞれの照射期間、試料、照射温度を表4-3-2に示した。照射温度は500℃、弾きだし損傷量は、鉄換算で、5.5/9.6dpaとして装填された。またこれらのW換算弾きだし損傷量は1.6/2.7dpaである。試料はそれぞれ基板ごとに識別され、試験片形状は(3.7mm<sup>w</sup> x 0.5mm<sup>t</sup> x 8.0mm<sup>l</sup>)の板状態である。VPS-Wの溶射条件は、第1章に挙げたグラファイトマスクを使用しない条件である。

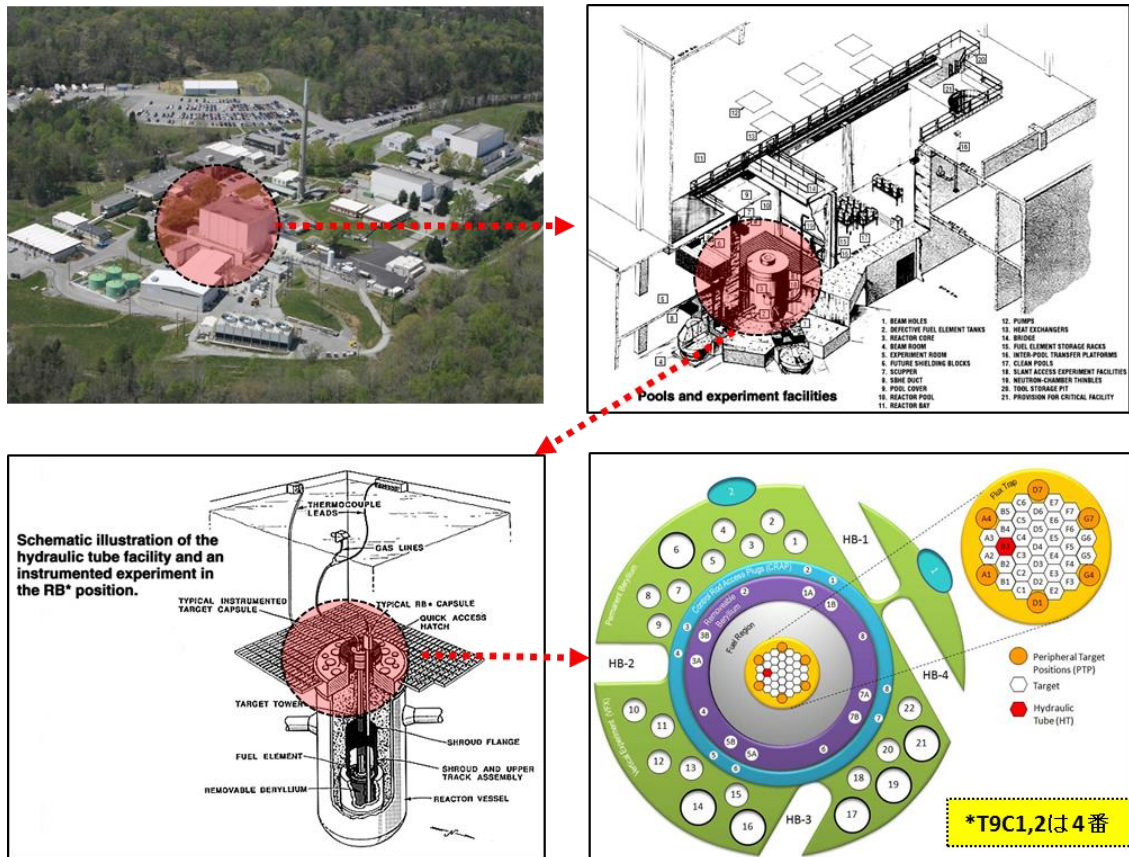


図 4-3-2 HFIR 構造

## 第四章

表 4-3-2 照射試験の照射時期および、実験条件

キャプセル	試料	基材	温度(°C)	Fluence	HFIR In (cycle)	HFIR Out (cycle)	HFIR Irradiate Period Stat~finish		Dose (dpa)
T9C1	KFW1	F82H	500	2	425	427	2009/11/25	2010/3/15	5.5
	K1C1	K1-ODS							
	K4S1	K4-ODS							
T9C2	KFW2	F82H		12	429	429	2009/11/25	2010/7/10	9.6
	K1C2	K1-ODS							
	K4S2	K4-ODS							

### 3) 硬さ試験方法

硬さ試験は、ビッカース硬さ試験法により行われた。照射後の試料は、放射線取扱規則により、ORNL ホットラボ内のセルに移され、マニピレーター操作により行われた(図 4-3-3-a)。試験片は VPS-W/基材のクーポン状態であり、これに圧痕間隔：150 $\mu$ m 以上の幅を持ち(図 4-3-3-b)、試験荷重：9.8N、負荷時間：10 秒の条件で押し込まれた。

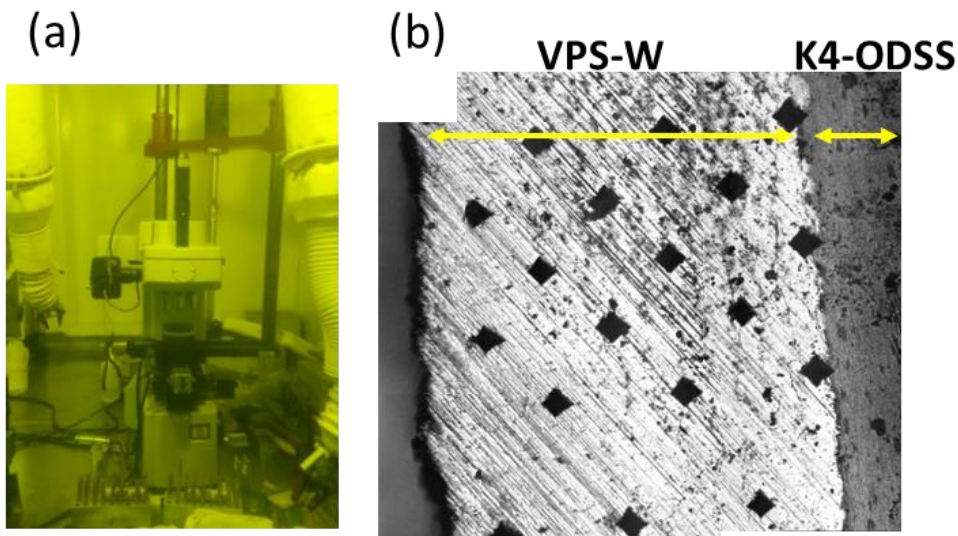


図 4-3-3 硬さ試験方法

(a)ORNL ホットラボ、ホットセル内の硬さ試験機

(b) K4S1 の実施時の硬さ試験状況

### 4.3.4 結果

図 4-3-4 は異なる基板 (F82H、K1-ODSS、K4-ODSS ) に溶射した VPS-W の硬さに及ぼす弾きだし損傷量(鉄換算)の関係を示している。VPS-W を種々の基材 (ODSS,F82H) に

被覆しても、VPS-W 自体の硬さに影響を与えないことがわかった。加えて、被覆層の奥行き方向の硬さ分布には、溶射タングステンであるという特性上、個々の位置においてデータにばらつきがみられたが、平均値には大きな変化は見られなかった。

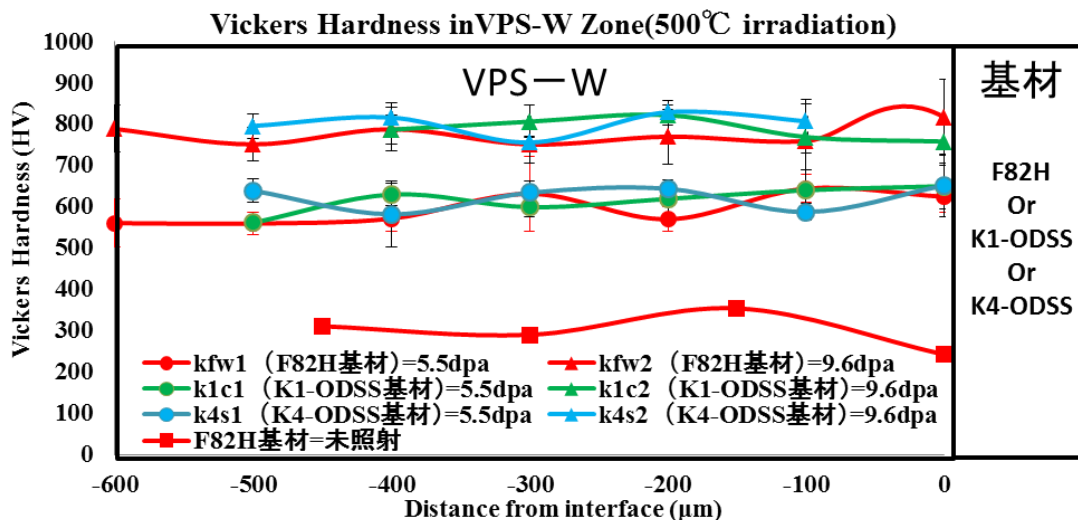


図 4-3-4 異なる基板 (F82H、K1-ODSS、K4-ODSS) に溶射した VPS-W の硬さに及ぼす弾きだし損傷量(鉄換算)の関係

図 4-3-5 には、500°Cにおける VPS-W の硬さに及ぼす弾きだし損傷量 (W 換算) の影響を示した。この結果は図 4-3-4 の結果を基に、VPS-W 母材の照射量依存性を求めるため、照射条件ごとに VPS-W/基材界面の影響を受けない 100 μm より浅い領域での硬さの平均値を用いて算出した。未照射 VPS-W の硬さは HV299 であり、この値は市販の純 W の値、Hv=約 500 に比べ、顕著に低い。これは溶射後の、粒子径が粗大であることや、密度が低い (約 92%) ことによると考えられる。照射後の弾きだし量と硬さに関し、1.6dpa では HV604、2.7dpa では HV785 に達した。照射硬化量は、飽和に達していない傾向を示しており、今後、硬化量の飽和値の確認が必要である。この結果において注目したいのは、照射温度が 500°Cと比較的高温であるが、VPS-W は硬化を示している点である。通常、鉄鋼材料や V 合金や銅合金では、この照射温度においては硬化が発現しない。



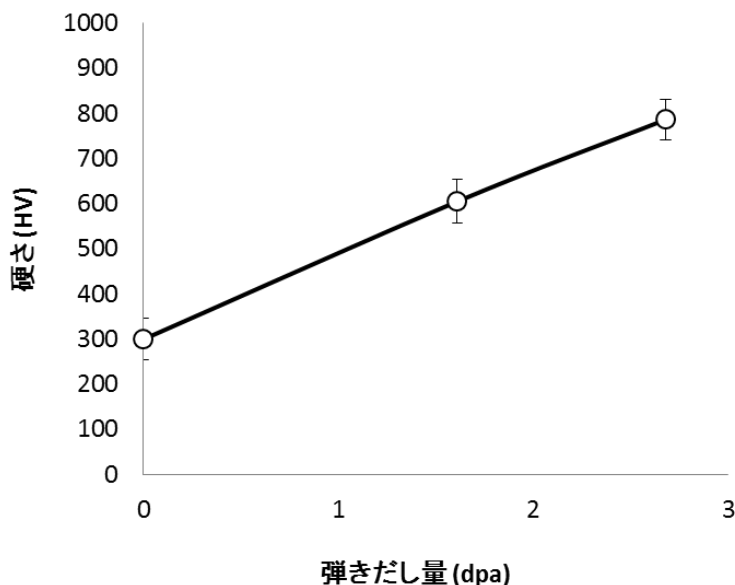


図 4-3-5 500°Cにおける VPS-W の硬さに及ぼす弾きだし損傷量 (W 換算) の影響。

#### 4.3.5 まとめ

接合・被覆技術開発について、HFIR で照射した接合・被覆材について中性子照射 (500°C) 後試験を実施し、以下の点を明らかにした。

- 1) 異なる基板 (F82H、K1-ODSS、K4-ODSS) における VPS-W の弾きだし損傷量の影響を調査した結果、VPS-W の照射硬化は基盤の影響を受けず、VPS-W/基板界面から表面までに硬さ分布の勾配は見られなかった。
- 2) 真空プラズマ溶射Wの照射影響に関し、硬さに及ぼす弾きだし損傷量依存性を明らかにした。この結果、2.7dpa ではまだ飽和には達していなかった。

#### 4.4 結言

本章では、W の機械的特性評価を行った。W/ODSS の拡散接合において、W の配向性が強度に影響を与えていることが判明したため、製造方法異なる W および結晶粒配向を変えた W の曲げ、引張特性評価を行った。加えて VPS-W に関し中性子照射後の硬さ変化を調査した。主要な結果を以下に示す。

- 1) 1.5~2.0mm 厚 W の供試材 (応力除去処理材) は室温で高い曲げ強度とわずかながら延性を示すが、いずれも 1240°C 熱処理により再結晶脆化とみられる強度低下を示した。一方、10~12mm 厚 W では、供試材の強度は低いが、1240°C 熱処理によりわずかながら強度が上昇した。これは圧延率が低いため圧延により蓄積された内部エネルギーが 1240°C、1 時間で再結晶を引き起こすほどでなく、回復が生じたためと考えられる。
- 2) 10mm 厚 W の破壊強度に及ぼす熱処理温度の効果は、結晶粒配向によって変化し、圧延

## 第四章

の効果があまり期待できない X,Z 方向では 1600°C 熱処理まで強度が増加するが、圧延の効果が表れる Y 方向では 1300°C 以上で再結晶によるとみられる強度低下がみられた。

3) 等軸結晶粒を有するエスタンの強度は、結晶粒配向性に影響されず、ITER grade W の Z 方向よりも高い強度を示した。これは配向性を持たない W の開発・使用が非常に有益であることを示唆している。

4) ITER grade W とエスタンによる高温引張試験の結果、200°C 以上で延性が発現し、降伏強度は同様の温度依存性を示した。

5) 異なる基板 (F82H、K1-ODSS、K4-ODSS) における VPS-W の弾きだし損傷量の影響を調査した結果、VPS-W の照射硬化は基盤の影響を受けず、VPS-W/基板界面から表面までに硬さ分布の勾配は見られなかった。

6) 真空プラズマ溶射 W の照射影響に関し、硬さに及ぼす弾きだし損傷量依存性を明らかにした。この結果、2.7dpa では、まだ飽和には達していないことがわかった。

## 第四章

### 参考文献

- [1] M. Rieth et al., J. Nucl. Mater. 432 (2013) 482-500
- [2] R.A. Pitts et al., J. Nucl. Mater. 438 (2013) S48-S56
- [3] H.Noto, et al., PRICM-8 proceedings (2013)129-135
- [4] A.Kohyama, et al., J. Nucl. Mater. **212-215** (1994) 684-689.
- [5] S. Oda, et al., J. Nucl. Mater. 329-333 (2004) 462-466.
- [6] F.L. Chong et al., J. Nucl. Mater. 386-388 (2009) 780-783
- [7] Y. Yahiro et al., J. Nucl. Mater. 386-388 (2009) 784-788

第五章 変態超塑性金属を用いた応力緩和技術開発

5.1 緒言

5.1.1 超塑性現象

前章では、純鉄中間材を用いて熱応力緩和を試みた。本章では、純鉄を超える塑性変形能をもった中間材を用いることにより、さらなる残留熱応力の除去、接合強度の上昇が見込めると考えた。そこで超塑性変形を起こす金属を中間材として応用することを検討した。本章に先立ち、超塑性の概要・分類・接合への応用例について述べる。

1)概要

図 5-1-1[1]には代表的な Ti-6Al-4V 合金の微細粒超塑性変形を示した。このように、超塑性とは、金属およびセラミックスにおいて、一定歪速度下での非常に巨大な変形現象である。一般的に、歪速度感受性指数 (m 値) は 0.3 以上、一軸引張試験の破断伸びは 200% 以上であることが超塑性現象発現判断基準である。

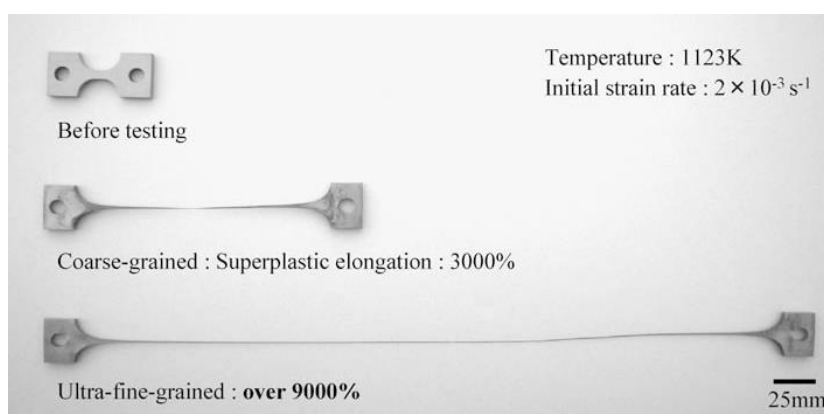


図 5-1-1 Ti-6Al-4V 合金の微細粒超塑性変形の例

2)分類

図 5-1-2[2;3]には超塑性現象の分類を示した。超塑性現象は、その変形機構により、概して二種類に分類される。「微細粒超塑性」は結晶粒が数  $\mu\text{m}$  以下の微細結晶粒を有し、粒界すべりによる変形である。一方で「内部応力超塑性」は熱サイクルによって材料内部に誘起された不均一な内部応力が外力による巨視的な変形を促進させる現象である。現在では 3 種類に分類されている。その内部応力超塑性の利点としては、原理的に材料の結晶粒径に依存しないため、微細粒超塑性では不可能な粗大粒 (単結晶) でも可能な点や、変動環境という特異な場で変形するため再度粒界すべりなどでの変形・破壊が起こらないといった点が挙げられる。

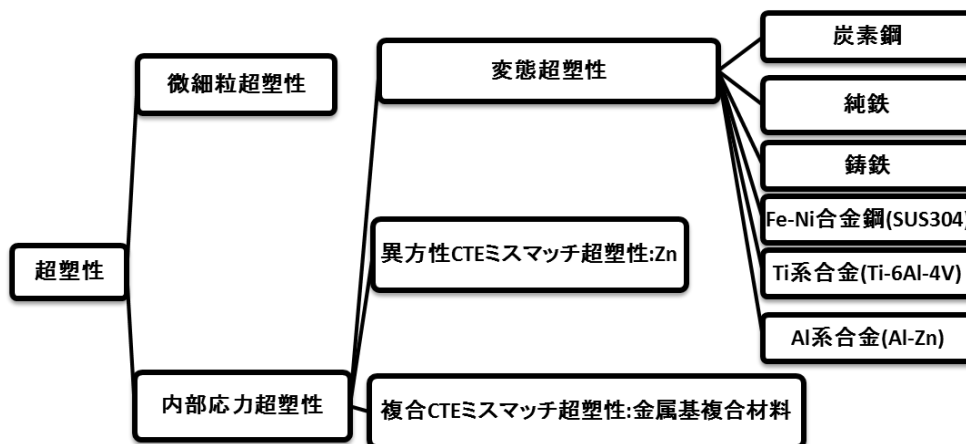


図 5-1-2 超塑性の分類

### 3)変態超塑性[3;5]

変態超塑性の巨視的理解は微細粒超塑性と同じように低応力下でネッキングなしに200%以上の巨大な変形が起こる点である。加えて、この流動は歪速度依存性があり、微細粒超塑性流動と比較し、歪速度感受性指数  $m$  値は1に近くなることが多い。変態超塑性の発現因子は、「相変態の発生・進行」であり、その発現には変態点を上下するような熱サイクルを与える必要がある。その歴史は、1920年代までさかのぼる。発見のきっかけは、材料の変態中における機械的特性の異常現象として、Sauveur や Seigle らによって報告されたことだといわれている。現在では、純鉄、炭素鋼、鑄鉄、合金鋼、チタン合金、アルミニウム合金などでも発現が見つかっている。変態超塑性は以下の様な特性をもつ。

- (a) 相変態が発生・進行中に応力を与えると、変態超塑性が発現する。
- (b) 作用応力と発生ひずみ間に線形則が成立する。
- (c) 変態超塑性流動は歪速度依存性がある。
- (d) 変態超塑性流動の歪速度感受性指数は1に近い。
- (e) 作用応力かなり低い。
- (f) 発生歪は加熱-冷却速度に依存する。
- (g) 鉄鋼材料での変態超塑性

図 5-1-3 は Fe-C 系状態図を示している。鉄鋼材料 (Fe-C 系) は、 $A_3$  変態点を持ち、結晶型が変態点以上では面心立方格子 (オーステナイト相)、以下では体心立方格子 (フェライト相) になり、変態時には大きな体積変化を有する。この相変態を利用し、Oelschlagel や Weiss らは、鉄鋼材料における変態超塑性の加熱・冷却速度依存性や、サイクル数依存性の研究を行った。表 5-1-4 は、その時用いられた材料である。 $A_3$  点は、それぞれの炭素濃度により変化するが、実験結果より、どの炭素鋼でも発現がみられた (図 5-1-5)。

第五章

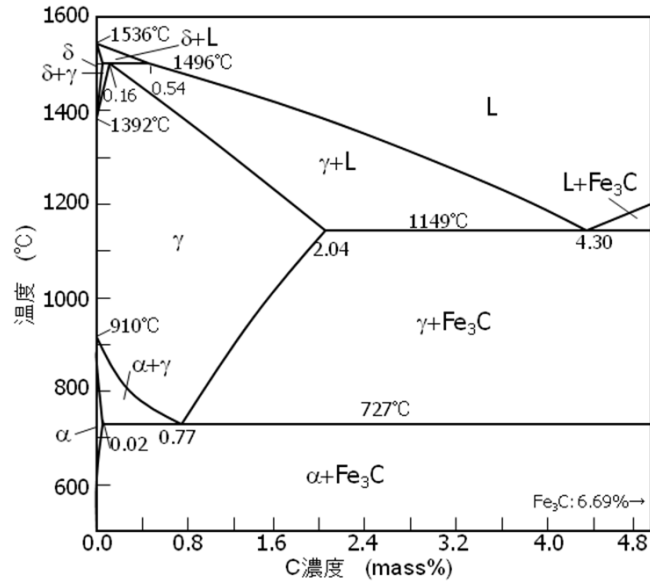


図 5-1-3 Fe-C 系状態図

アメリカ鉄鋼協会基準	組成(Wt%)
AISI 1018	Fe-0.15~0.20C-0.6~0.9Mn
AISI 1045	Fe-0.42~0.48C-0.6~0.9Mn
AISI1095	Fe-0.90~1.03C-0.3~0.5Mn

図 5-1-4 Fe-C 系状態図と変態超塑性を示した炭素鋼

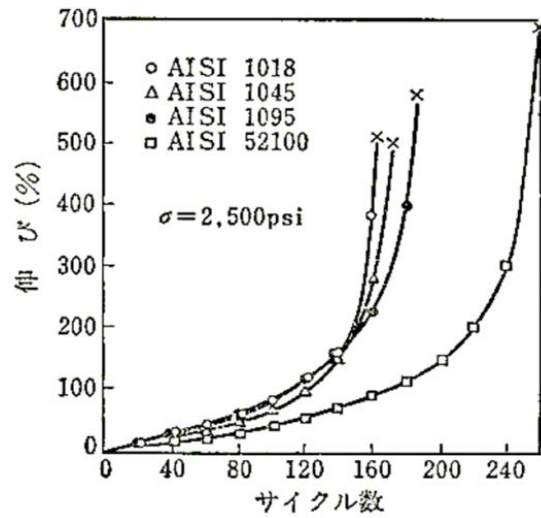


図 5-1-5 温度サイクル (538/815°C) の伸びとサイクル数

5.1.2 超塑性の応用

1) 従来の接合への応用例

超塑性材料の変形応力は、通常の引張応力より低い。これを応用し、超塑性材料は、塑性加工成形に利用されている。またこの成形技術を進歩させ、現在では超塑性と HIP 成形と組み合わせ、固相拡散接合により複雑な構造体を作成することが実用化されている。図 5-1-6[6]には Ti-6Al-4V 合金における微細粒超塑性変形を応用し、固相拡散接合と同時に組み合わせた例を示した。これは複雑な冷却構造を持つタービンプレードに成形した例である。超塑性現象は粒界拡散が大きい材料ほど高温粒界すべりが容易になり、拡散接合は拡散速度が速いほど良い。つまり両者にとって有益になる条件がそろっている。超塑性成形と拡散接合を組み合わせた研究は、実用化されるほど一般的なものとなっている。

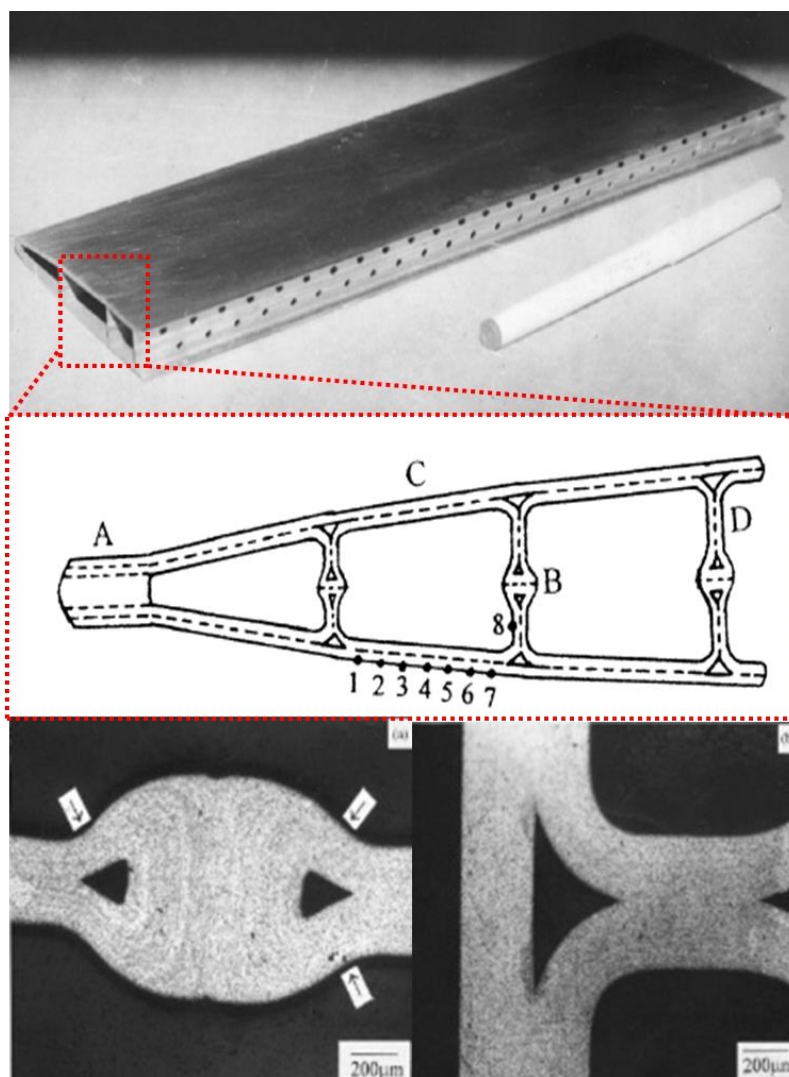


図 5-1-6 Ti-6Al-4V の微細粒超塑性と固相拡散接合の組み合わせた応用例

2) 本研究における接合への応用

本研究では、変態超塑性金属の中で炭素鋼に注目した。炭素鋼は変態超塑性誘起金属の中で、ただ一つ低放射化条件を満たし、熱伝導性にも非常に優れる。この鉄鋼材料（炭素鋼）の変態超塑性変形を応用し、熱応力緩和することを検討した。その概略図を図 5-1-7 に示す。第 2 章での FEM 解析の結果より、接合後は冷却過程で熱応力が発生する。この発生応力を駆動力とし、接合後後熱処理により変態超塑性変形を発現できると考えた。ここで重要になるのが炭素鋼の炭素濃度である。熱応力緩和という観点からは、変態温度を最大限下げることが望まれる。このため、最も安価にかつ、入手可能な範囲で、S50C 鋼を採用した。その組成および変態温度、熱処理法について表 5-1-1 に示す。この鋼においては、変態温度 600~800°C の範囲で生じる。

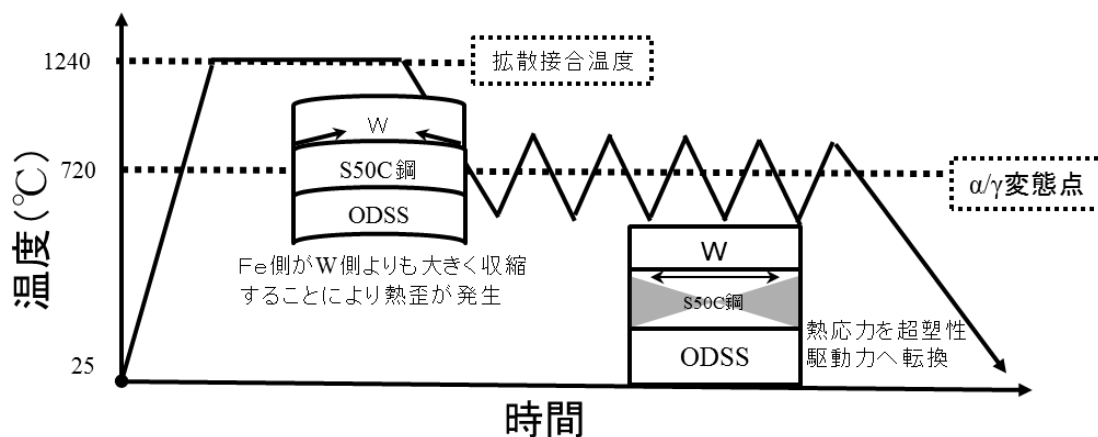


図 5-1-7 相変態誘起高温クリープ変形を応用した応力緩和法の概略

表 5-1-1 S50C 鋼に関する特性

(a)組成表、(b)変態温度

(a)

種類	Fe	C	Mn	Si	P	S
S50C	Bal.	0.47~0.53	0.6~0.9	0.15~0.35	<0.030	<0.035

(b)

種類	変態温度		熱処理温度			
	Ac線	Ar線	焼きならし	焼きなまし	焼入れ	焼き戻し
S50C	720~770°C	680~740°C	810~860°C ⇒空冷	約800°C⇒ 炉冷	810~860°C ⇒水冷	550~650°C 急冷



### 5.1.3 本章の目的

本章では、W/ODSS の接合に変態超塑性を示す炭素鋼を応力緩和中間材として使用した場合の接合強度を調べ、この方法の新規異材接合法としての可能性を調査することを目的とする。

## 5.2 超塑性鉄鋼材料を中間材として用いた異材接合

### 5.2.1 はじめに

炭素鋼の変態超塑性機構は、高温クリープであるという説が最も有力とされている。通常、変態超塑性現象は、一定荷重クリープ試験を初期駆動力とし、温度変動により相変態を誘起させ、異相間に内部応力が発生することにより、変形が進行する。しかし本研究における駆動力は、W/ODSS 間の熱応力である。このため緩和の進行により駆動力が変動する。このことを考慮し、最適な接合後後熱処理法を調査した。

図 5-2-1 は、本研究で新しく提案する相変態誘起高温クリープによる熱応力緩和機構を示した模式図である。拡散接合した W/ODSS を室温へ冷却する過程において、W と ODSS の大きな熱膨張係数差により冷却の進行とともに増大する熱応力が接合体に発生する。このとき、中間材として S50C 鋼を用いると、S50C 鋼は冷却時の 740~680°C の温度範囲で  $\gamma \rightarrow \alpha$  相変態を示す。 $\gamma$  相中の  $\alpha$  相生成は体積膨張を伴うので、体積膨張により生ずる弾性応力を緩和するために  $\alpha$  相のまわりに転位が生成する。それらの転位は、中間材に生じた熱応力の勾配をなくす方向に移動する。この機構では、熱応力が大きいほど誘起される塑性変形も増大し、しかも、この塑性変形は、熱応力の下で作用する高温クリープであり、したがって、相変態温度域で保持される時間が長いほどクリープ変形が進み（相変態誘起高温クリープ）、その結果、熱応力が十分に緩和されるものと考えられる。

なお、後述するように、本方法による熱応力緩和は、変態超塑性が発現する条件である温度サイクルが不要であり、接合後の 1 回の冷却のみで十分に熱応力が緩和されるという革新的なものである。

本節は、熱応力緩和機構の異なる中間材の効果を明らかし、この結果を基に、高接合強度を有する W/ODSS 接合を可能とする革新的接合技術を示す。

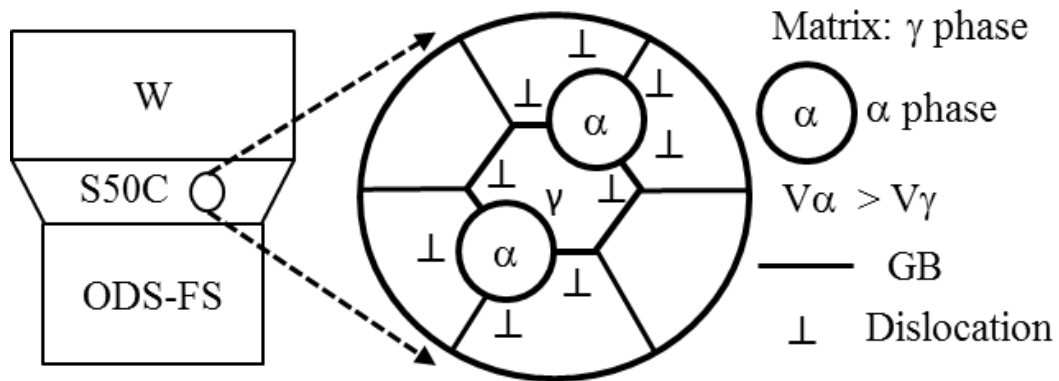


図 5-2-1  $\gamma/\alpha$  相変態誘起高温クリープ変形による熱応力緩和機構の模式図

### 5.2.2 実験方法

#### 1) 試料

拡散接合には、母材として ODSS と W を用い、中間材として炭素鋼 S50C を使用した。S50C 鋼は、炭素を 0.5% 含み、680~740°C の温度範囲で  $\gamma \leftrightarrow \alpha$  相変態を示す。表 5-2-1 に使用した接合母材と中間材の組成を示す。なお、本研究で接合強度に及ぼす中間材の効果を比較するために用いた他の中間材 (V 合金と純鉄) の組成も示す。接合母材はいずれも粉末冶金法で製造されたものであり、W には純鉄中間材を用いた場合に最も高い接合強度を示したほぼ等軸結晶粒の S-TAN (HIP (熱間等方加圧) 処理) を用い、ODSS には出発原料粉末の MA (機械的合金化法) 処理後、熱間押し出しにより製造されたものを使用した。また、中間材の S50C 鋼は、溶製後に熱間押し出しされたものである。

これらの接合母材と中間材から拡散接合用の試験片をワイヤー放電加工法により切断した。試験片寸法は、ODSS と W が 10 mm x 10 mm x 2.0mm、中間材が 10 mm x 10 mm x 1.0mm であり、全ての試験片の上下表面は #500~4000 の SiC 耐水ペーパーにより機械研磨し、最終的に 1.0  $\mu$ m ダイヤモンドペーストによりバフ仕上げを行った。

表 5-2-1 使用材料の初期形状、厚さ、直径

Material	Designation	Composition (wt%)	Shape	Thickness/ Diameter (mm)	Remarks
Tungsten	S-TAN	Pure W	Rectangular block	25	HIPed Equiaxed grains
Insert material	S50C steel	Fe-0.5%C-0.25%Si-0.75%Mn	Round bar	$\phi = 50$	Hot worked product
	Pure iron	Fe, Purity: 99.99%	Plate	1.0	Rolled
	V alloy	V-1.4Y-7W-9Mo-0.7TiC	Plate	11 x 26 x 36	Rolled
Ferritic steel	15Cr-ODS-FS	Fe-15%Cr-2%W-0.2%Ti-0.35%Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Rod	$\phi = 20$	MA-Swaged

## 2) 拡散接合と曲げ試験

拡散接合は、図 5-2-2(a)に示すように、中間材を W と ODSS の間に配置し、1240 °C 1 時間、 $8.0 \times 10^{-4}$  Pa の真空中で行った。この拡散接合は固相拡散接合となるため、接合時に熔融する中間材を用いるろう付け接合とは異なり、接合面の均一な密着性が確保できない可能性があり、均一な密着性を得るため超高温材料試験機により、中間材に 2%程度の塑性ひずみを与えた。その後、拡散接合後の冷却段階で S50C 鋼に生じる相変態の効果を調べるために、相変態の起こる 680~740°C を挟む温度領域で、図 5-2-3 に示す種々の熱処理を施し、室温に冷却した。熱処理 HT-1 と HT-2 はいずれも 800↔600 °C の温度サイクルを 10 回繰り返したものであり、これらは変態超塑性の出現に必要とされる典型的な熱サイクル処理である。但し、両者は加熱冷却速度が異なり、HT-1 は最も速い 650°C /min で、HT-2 はその約 1/16 の 40 °C /min で加熱冷却を繰り返した。一方、HT-3 と HT-4 は熱サイクルではなく 1 度の冷却のみをそれぞれ異なる速度で行った。すなわち、HT-3 では、接合温度から 600 °C まで HT-2 と同じ 40 °C /min の速度で冷却し、その後 600 °C に 2 時間保持し、HT-4 では拡散接合後、800 °C から 600 °C まで非常に遅い 1.6°C /min で徐冷した。

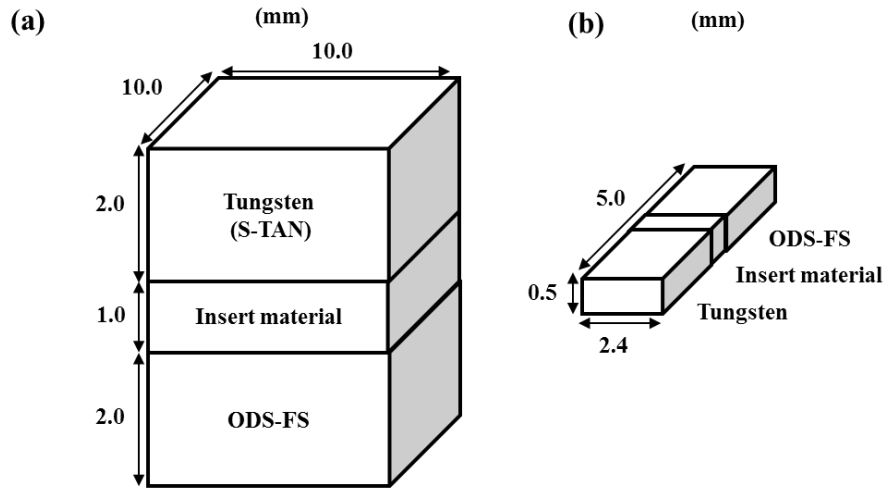
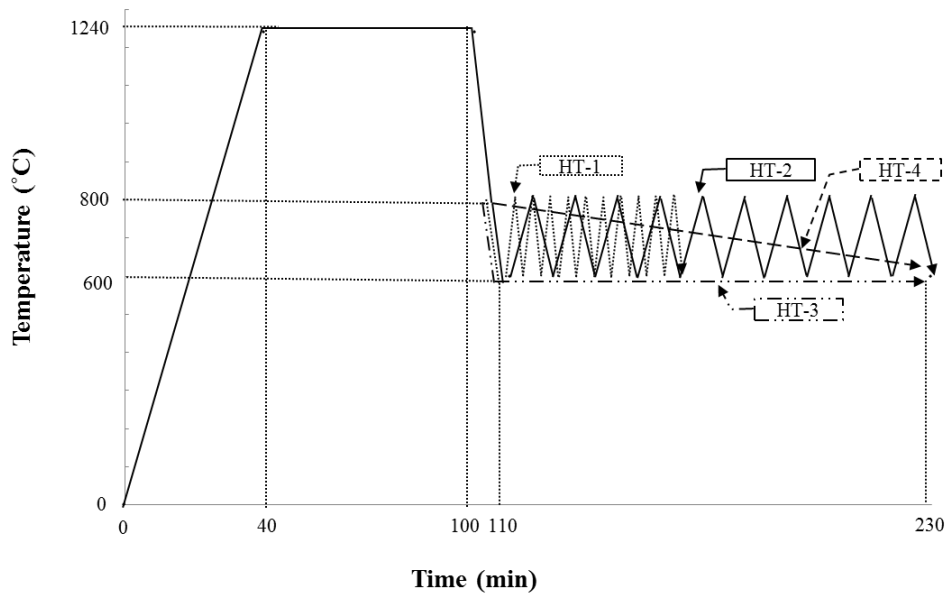


図 5-2-2 中間材と接合母材の配置

(a) 接合状態の配置

(b) 接合後放電加工による曲げ試験片形状



Tungsten	Insert	Heat treatments after bonding	Temperature (°C)	Temperature history	Cooling/heating rate
S-TAN	Pure Fe	non			40°C/min
	S50C	HT-1	800 ↔ 600	Cyclic change: 10.5 times	650°C/min
		HT-2	800 ↔ 600	Cyclic change: 10.5 times	40°C/min
		HT-3	800 → 600	Fast cooling and holding at 600C	40°C/min
		HT-4	800 → 600	Slow cooling	1.6°C/min

図 5-2-3 拡散接合後の温度履歴

## 3) 接合後熱処理

前節で述べた 800~600°Cにおける種々の熱処理が接合強度に及ぼす効果を調べるために、接合体の中央部および端部から曲げ試験片 (2.4mm<sup>w</sup> x 0.5mm<sup>t</sup> x 5.0mm<sup>l</sup>)を放電加工により切り出し、試験片表面と側面を前節と同様に機械研磨した。接合強度の評価は、独自に設計した上部スパン 0.8mm、下部スパン 3.0mm の超微小 4 点曲げ試験治具[6]により室温で行った。変位速度は  $1 \times 10^{-3}$ mm/s とした。

次に、S50C 鋼と純鉄の中間材自身の降伏強度 (0.2%耐力) に及ぼす熱処理 (1240 °C、1 時間熱処理：拡散接合条件) の効果を明らかにするために、それぞれの圧延材と熱処理材の引張試験片 (寸法 4 mm x 16mm x 0.5mm ; 平行部 : 1.2 mm x 0.5 mm x 5.0 mm) を作製し、室温、 $1 \times 10^{-3}$ /s の初期歪速度で引張試験を行った。用いた試験機は島津製作所社製の疲労試験機 (サーボパルサー : 容量 50kN) であるが、微小試験片のため測定荷重と測定変位が小さいので、容量 5KN のせん断型ロードセルと容量 ±2.5 mm の LVDT (Linear Variable Differential Transformer)を使用した。

## 5.2.3 結果・考察

図 5-2-4 は、中間材の S50C 鋼が  $\gamma \leftrightarrow \alpha$  相変態を起こす温度領域を含む 800~600°Cにおいて、拡散接合後の冷却中に 4 種類の異なる熱処理 (HT-1~HT-4) を施し、それらの熱処理が W/ODSS 接合体の室温での曲げ強度に及ぼす効果を調べたものである。図には、測定に用いた試験片 4~10 本の平均値とその最大値を示した。曲げ試験で破断した全ての試験片は、延性を示すことなく上部スパン内にある試験片底面から割れたので、破断強度は接合材の接合強度に対応すると考えられる。S50C 鋼の超塑性発現に必要とされている HT-1 と HT-2 の熱サイクル熱処理を施した接合体の平均強度は、それぞれ 260MPa と 364MPa であり、加熱冷却速度の減少に伴い、接合強度は 40%上昇した。一方、冷却速度は HT-2 と同じであるが、熱サイクルを与えていない HT-3 の平均接合強度は 287MPa であり、HT-2 より 21%低かった。但し、最大値は両者でほぼ等しい。ここで最も重要なことは、HT-3 と同じく 800°Cから 600°Cまで冷却するのみで熱サイクルを施していない HT-4 によって 4 種類の熱処理の中で最も高い強度が得られたことであり、その平均接合強度は 377MPa、最高強度は 478MPa にも達している。HT-3 と HT-4 の間の特筆すべき違いは、HT-4 の冷却速度が HT-3 の約 1/5 と非常に遅い徐冷であったことである。このことは、HT-4 では他の全ての熱処理と比較し、相変態温度域に最も長く保持されたことを示しており、したがって、相変態誘起高温クリープに晒された時間が最も長く、その結果、冷却と共に増大する熱応力を駆動力として高温クリープが最も進行し、熱応力が十分に緩和されたものと考えられる。また、熱サイクルに含まれる 600 °C から 800 °C への昇温は、相変態誘起高温クリープ変形の駆動力である (W と ODSS の熱膨張係数の差に基づく) 熱応力を逆に低下させることから、熱応力緩和は 800 °C から 600 °C への冷却時の  $\gamma \rightarrow \alpha$  相変態により起こるものと考えられる。

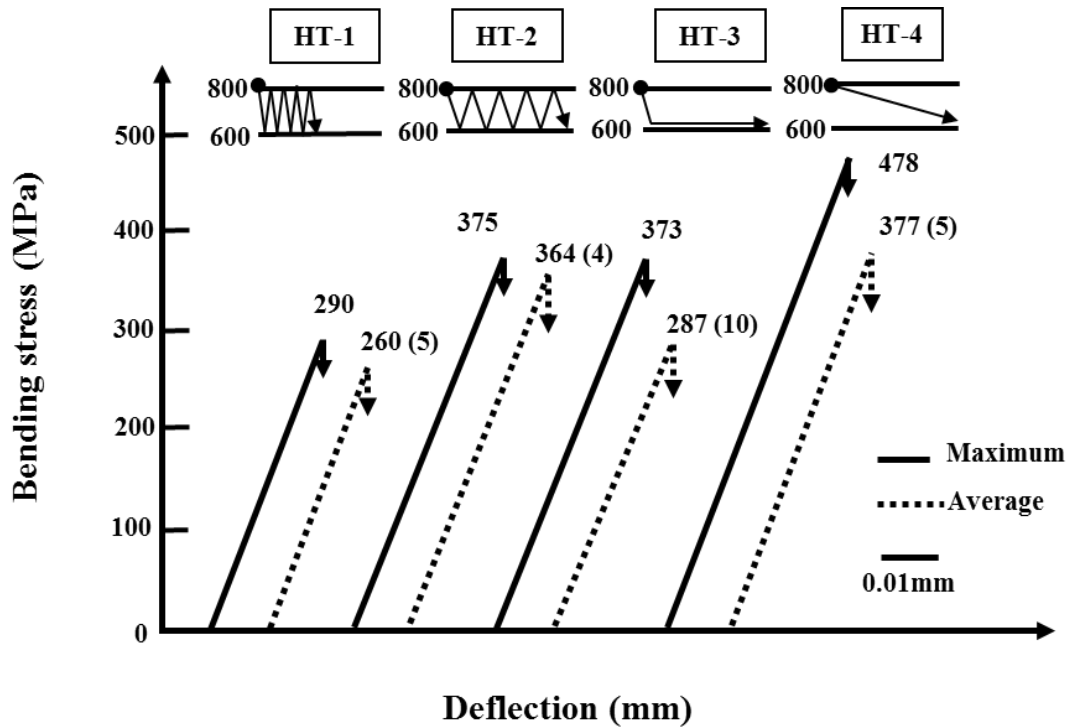


図 5-2-4 純鉄および S50C 鋼を中間材として用いた W/ODSS 拡散接合における微小 4 点曲げ試験の応力-たわみ線図。

そこで、この妥当性を調べるために S50C の  $\gamma \rightarrow \alpha$  相変態が起こる温度範囲を 740~680 °C と設定し、HT-1 から HT-4 までの熱処理に対して、S50C が  $\gamma \rightarrow \alpha$  相変態に晒される累積時間を求め、接合強度に対して両対数プロットした。その結果を図 5-2-5 に示す。図から明らかなように、両者の間には良い直線関係が成り立っている。この結果は、相変態温度域に晒される時間が長いほどクリープ変形が進み、熱応力が緩和されるという相変態高温クリープによる熱応力緩和機構が妥当であることを示すとともに、相変態超塑性の発現に必要な温度サイクルは必要ではなく、拡散接合後の 1 回の冷却のみで十分に熱応力が緩和されることを示しており、革新的な接合技術を提供したものといえる。

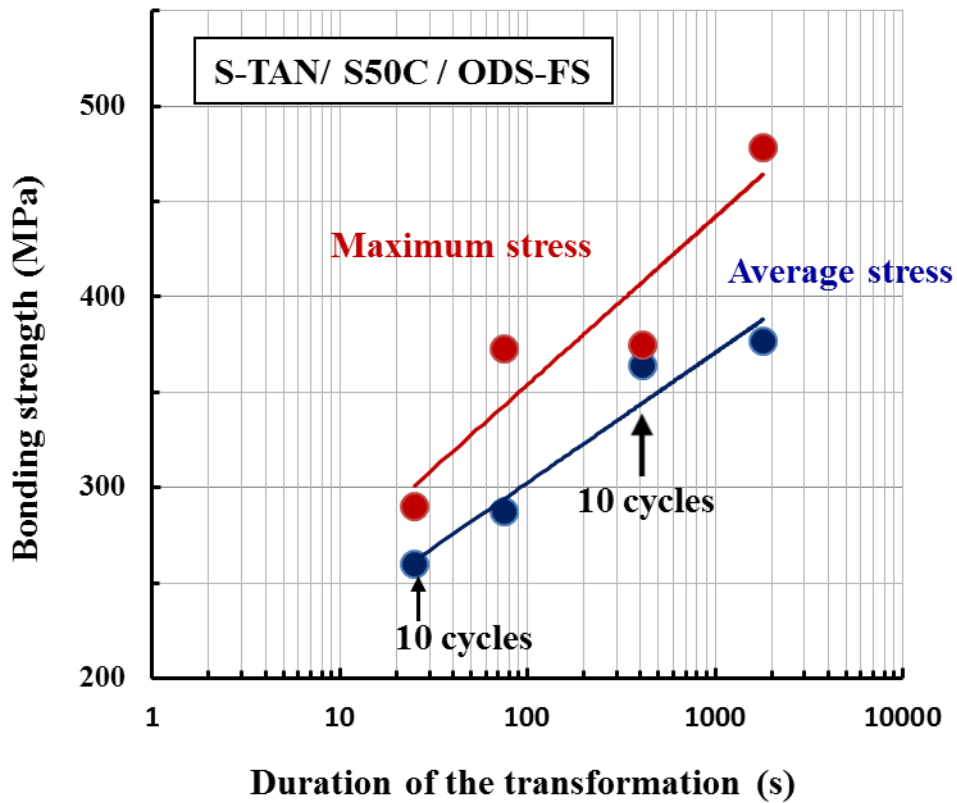


図 5-2-5 接合後冷却段階における  $\gamma\alpha$  相変態温度通過時間と接合強度の関係。

図 5-2-6 は、中間材としての基本的性質（鉄以上の高融点、低放射化特性等）を満たす 3 種類の金属を用いて作製した W/ODSS 接合体の接合強度を比較したものである。使用したタングステンは、最も高い接合強度の期待される等軸結晶粒をもつ S-TAN である。図から、V 合金を中間材に用いた場合、接合強度測定用の曲げ試験片を放電加工により切り出すときにすべて破断し、4 点曲げ試験で接合強度を測定できないほど接合強度が低かった。これに対し、純鉄中間材を用いた結果、放電加工による曲げ試験片の切り出しが可能になり、4 点曲げ試験により平均値で 324MPa、最大値で 384MPa の接合強度が得られた。また、S50C 鋼を中間材とし、拡散接合後の冷却時に HT-4 の履歴を与えた場合、平均値で 377MPa、最大値で 478MPa の接合強度が得られた。なお、最大値の横の ( ) 内にエスタン単体の曲げ破断強度(670MPa)に対する比を示したが、純鉄中間材では 57%、S50C 鋼中間材では 71% であり、いずれも純 W (S-TAN) 単体の破断曲げ強度には達していないことがわかる。

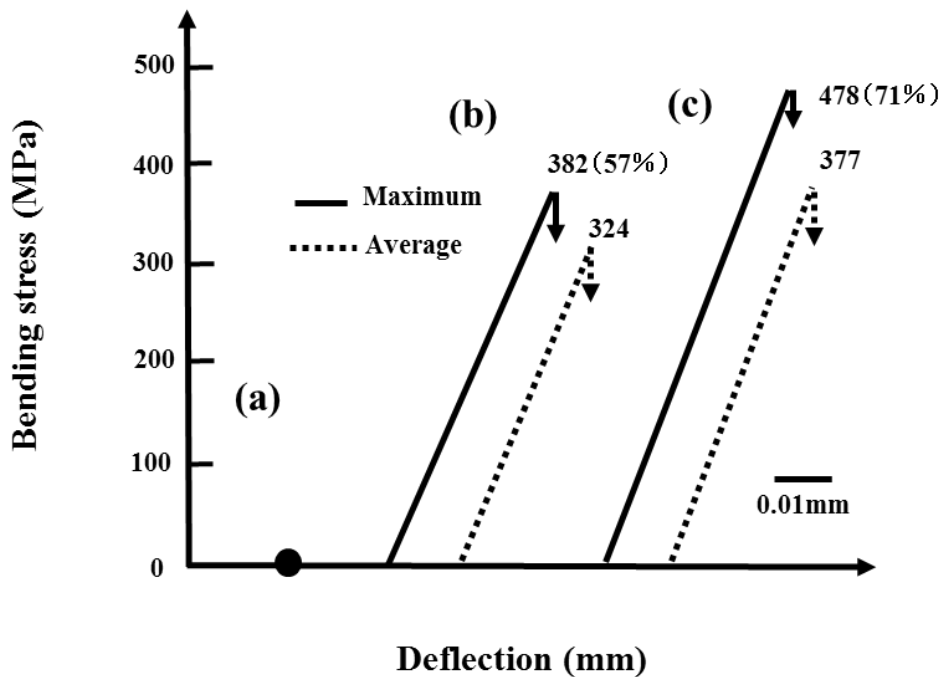


図 5-2-6 W/ODSS 接合における室温破壊強度に及ぼす中間材の効果  
 中間材 ; (a) V 合金 (b) 純鉄 (c) S50C

W と ODSS の大きな熱膨張係数差により W/ODSS 接合体中に生じた熱応力は、室温への冷却の進行と共に増大する結果、室温で最大となる。したがって、W/ODSS 接合体の熱応力緩和に及ぼす中間材の塑性変形の効果は、室温での降伏強度が低い金属（中間材）ほど大きいことが期待される。そこで、図 5-2-6 に示した中間材に対して、引張試験により室温での降伏強度を測定し、比較した。その結果を図 5-2-7 に示す。図から、熱処理後の室温の降伏強度は、純鉄が 64MPa であり、著しく低い。それに対し、S50C はその約 6 倍の 374MPa、V 合金が約 9 倍の 650MPa[7]といずれも非常に高い降伏強度を示している。したがって、中間材の塑性変形により熱応力が緩和される効果は、純鉄が最も大きく、S50C や V 合金では非常に小さいと考えられる。それにもかかわらず、中間材として S50C を用いた場合に、純鉄よりもかなり高い接合強度が得られたことは注目すべき結果である。また、相変態温度領域に保持される冷却時間が長いほど高い接合強度が得られたことは、S50C 鋼による熱応力緩和機構が第 2 章で述べた相変態誘起高温クリープによることを支持するとともに、この相変態誘起高温クリープによる熱応力緩和が極めて有効な方法であることを示している。



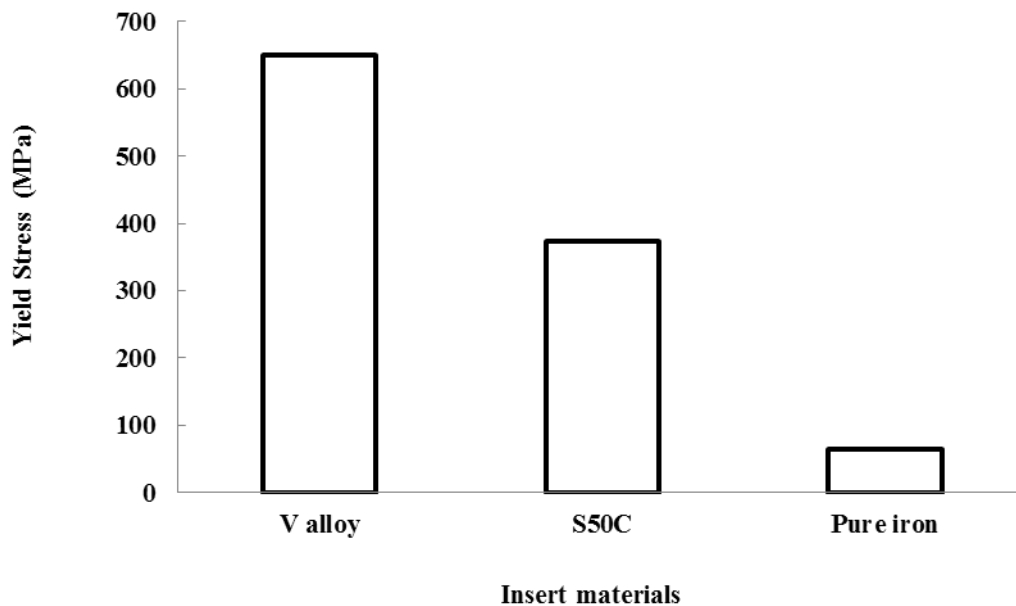


図 5-2-7 中間材（1240℃1 時間熱処理材）の室温引張試験

一方、中間材として S50C を用いた場合も W/ODSS 接合体は主に W 内部で破断しており、その接合強度の最大値は純 W (S-TAN) の曲げ破断強度の 70%程度である。この結果は、相変態温度領域の冷却時には相変態誘起高温クリープにより熱応力の十分な緩和が起こるが、相変態温度領域以下の冷却中に生じる熱応力については、相変態とは直接関わりのない塑性変形による熱応力緩和が十分でなかったことを示していると考えられる。

#### 5.2.4 まとめ

熱効率に優れた高効率ブランケットを製造するためには、W と ODSS の接合技術の開発が必要である。W と ODSS の拡散接合における最大の課題は、接合後の冷却段階で大きな CTE の差により発生する熱応力の緩和である。本研究では、変態超塑性金属として知られる炭素鋼 (S50C 鋼) を中間材として使用し、相変態誘起高温クリープ変形による新しい熱応力緩和機構を提案するとともに、その方法を W と ODSS の拡散接合体に適用した。得られた主な結果を以下に示す。

1. W/S50C 鋼/ODSS 拡散接合後、4 種類の熱処理を加え、接合強度を比較した。後熱処理の温度履歴と対応させると 800℃から 600℃への冷却速度が最も遅い熱処理を施した場合に最も高い接合強度を得た。
2. 4 種類の熱処理に供された W/S50C 鋼/ODSS の接合強度は、相変態に晒される累積時間に線形関係を持つことが明らかになった。
3. W/ODSS 拡散接合の接合強度は使用する中間材に影響された。
4. 拡散接合同じ条件の熱処理 (1240℃1 時間) を受けた S50C 鋼と純鉄を比較した結果、

S50C 鋼は純鉄よりも 6 倍近い降伏強度を示した。塑性変形に優れる純鉄を使用した接合よりも、S50C 鋼を使用した接合の方が高い接合強度を得たことは、相変態誘起高温クリープによる熱応力緩和機構が極めて有効な方法であることを示唆している。

### 5.3 脆化相の生成過程と拡散方向の同定

#### 5.3.1 はじめに

5.2 では、エスタンと ODSS の応力緩和法として、S50C 炭素鋼を中間材として、拡散接合を行い、応力緩和を試みた。図 5-3-1 に、エスタン/S50C 鋼/ODSS 拡散接合の 4 点曲げ試験後の断面と EPMA による組成解析を示した。前章でも述べたように 4 点曲げ試験は上部スパン間には一定の応力が働く。本接合評価の場合、エスタンから中間材に至る区間が上部スパン間にあたる。つまり 4 点曲げ試験後はこのスパン間の最弱部にき裂が入る。図 5-3-1(a)では、エスタン/S50C 鋼中間材接合界面で、化合物にき裂が生じていることが確認できる。この化合物は、図 5-3-1(b)の組成解析より、Fe-W 系の化合物であることがわかり、この化合物が最弱部となっていると考えられる。一般的に、接合部における熱影響部、拡散影響部は実機運転中に脆化が懸念される。そのためその化合物の発生・成長挙動を調査することは重要である。

本項では、この化合物生成を W/Fe 系拡散対実験により調査することを目的とする。

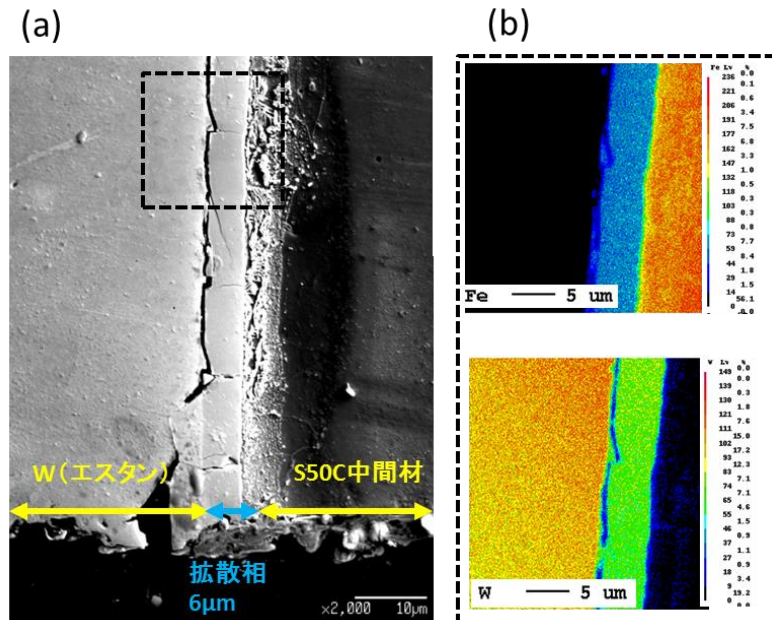


図 5-3-1 エスタン/S50C 鋼/ODSS 拡散接合後の 4 点曲げ試験後のき裂位置。

(a)エスタン/S50C 鋼中間材接合界面

(b)EPMA による組成解析

5.3.2 実験方法

Material (Purity, Supplier)	Composition (Wt%)	Thickness or Diameter (mm)
Pure Tungsten (PLANSEE Co.)	W-99.95%,	2.0
Pure Iron (NIRACO Co.)	Fe-99.99%,	10.0

表 5-3-1 拡散対実験に用いた試料における組成と初期形状

実験に用いた試料を表 5-3-1 に示す。純 W はプランゼー社製で、LHD 共同研究により核融合科学研究所 (NIFS) から支給された試料を使用した。なお純鉄は初期厚さ 10mm を機械的切削により、8.8mm x 9.7mm x 16.8mm へ切断した。

拡散実験には古典的なカーケンドール実験を行った。図 5-3-2(a)には接合前の配置と接合後の形状を示した。本拡散対実験では、純鉄は板 W 上に配置し、初期界面位置を決定するため W 系材料の剥離材として使用される Ta 箔を挟んだ。その後ホットプレス炉を用いて、1240°C1 時間、12MPa 程度の応力をかけ、固相拡散接合を行った。このときの真空度は  $8.0 \times 10^{-4}$  Pa とした。接合時には純鉄に 35% 程度の塑性変形を加え、密着性を図った (図 5-3-2(b))。拡散接合後は、1240°C2 時間熱処理、加えて、1400°C2 時間の処理を追加することにより W と Fe の相互拡散の進行を確認した。相互拡散距離の確認には、通常、カーケンドール実験のように、無拡散ワイヤー (Mo 等) が用いられるが、本研究では無拡散ワイヤーを用いず、Fe-EPMA による組成解析により拡散距離を調査した。

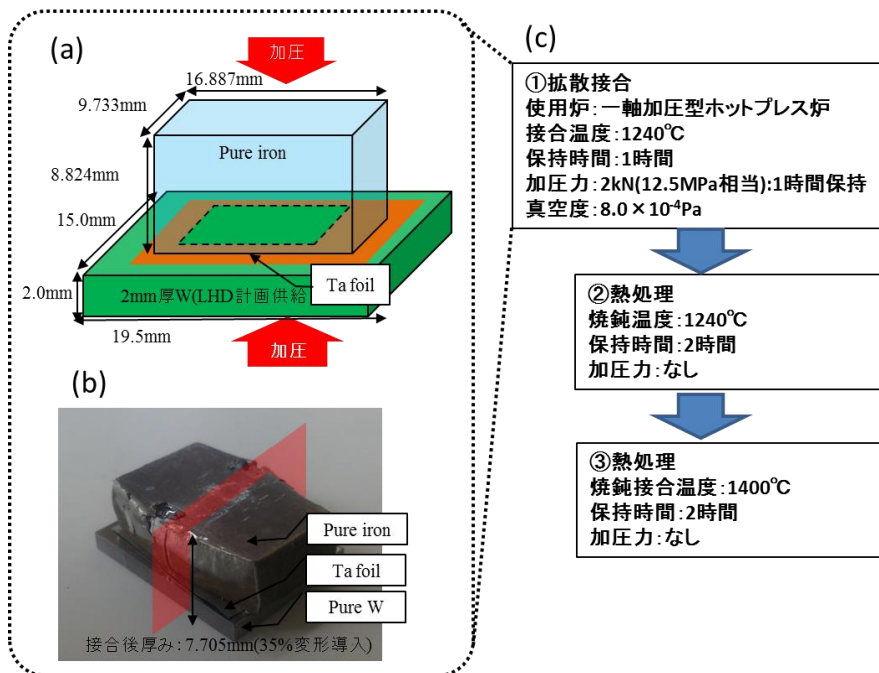


図 5-3-2 W/Fe 拡散対実験の概要

(a)接合前の配置(b)接合後の形状(c)接合後後熱処理のプロセス

5.3.3 結果[8]

図 5-3-3 には拡散接合後の解析結果を示した。図 5-3-3(a)より、W/Ta 界面の延長線上を拡散初期界面とすると、W 側に、5 $\mu\text{m}$  程度の拡散相が確認できた。図 5-3-3(b)は、(a)の EPMA による組成解析である。この W と Fe のマッピングより、W と Ta の相互拡散の相互拡散はほとんどみられず、その延長線上から W 側への化合相は W-Fe 系相互拡散相であることがわかる。Fe と Ta のマッピングでは、Fe/Ta 界面では相互拡散がみられた。図 5-3-3(c)は Fe と W の拡散距離を計算した表である。1240 $^{\circ}\text{C}$ 1 時間において、 $\gamma$ -Fe 中の W の拡散距離は、12.2 $\mu\text{m}$ 、W 中の Fe の拡散距離は 1.7 $\mu\text{m}$  であり、W 側に形成された化合相は、Fe 側から W への拡散で生じた化合相であると考えられる。前章で確認された化合相も同様の位置に形成していたことから、W/S50C 中間材間にできた化合相の、本結果と同様であったと考えられる。

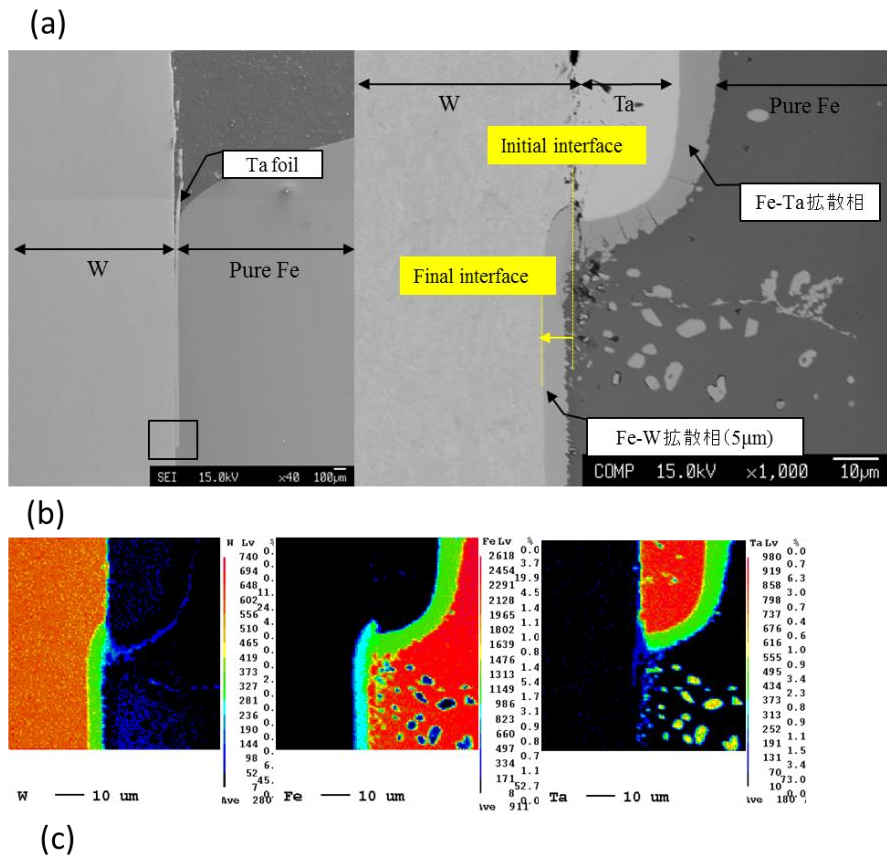


図 5-3-3 拡散接合後 (図 1:c-①)

(a)W/純鉄接合端部(b) 組成解析(c)W,Fe 拡散距離

図 5-3-4 は、拡散接合後の内部の W/純鉄界面を示している。(b)の組成解析より、Fe 中も W の拡散が観測でき、W から Fe 側への拡散も確認できた。

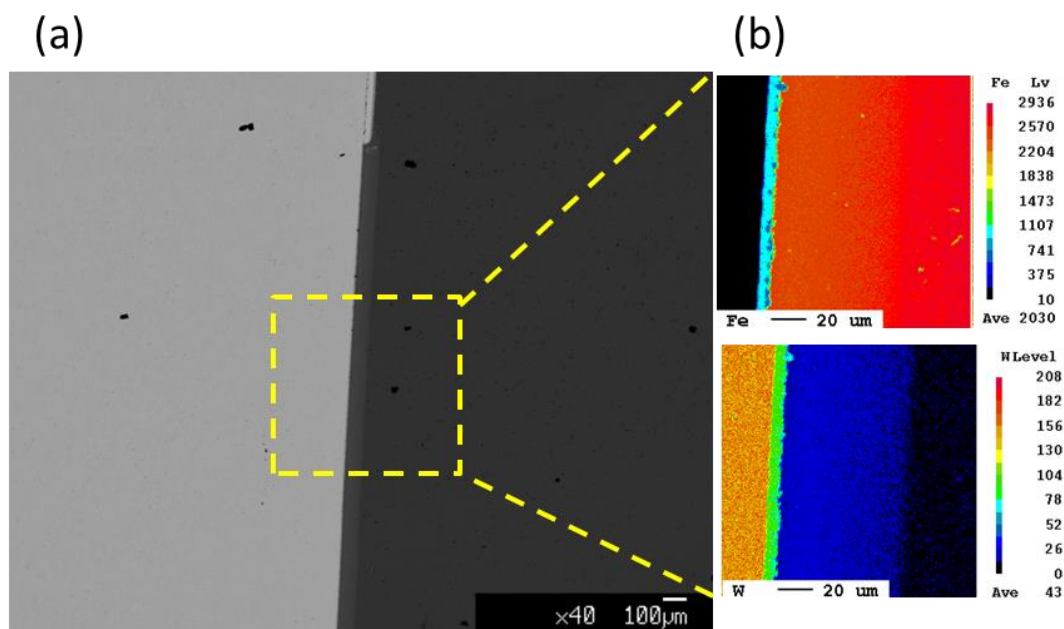


図 5-3-4 拡散接合後 (図 1:c-①)

(a) W/純鉄接合内部

(b)組成解析

図 5-3-5 は、接合後さらに熱処理 (1240°C2 時間 : 図 5-3-2:c-②) を施した接合部を示している。Fe-W 化合相は 7 μ m とほとんど進展は見られなかった。(c)には拡散器距離を示しているが、実際の相互拡散相の成長とはなっていない。

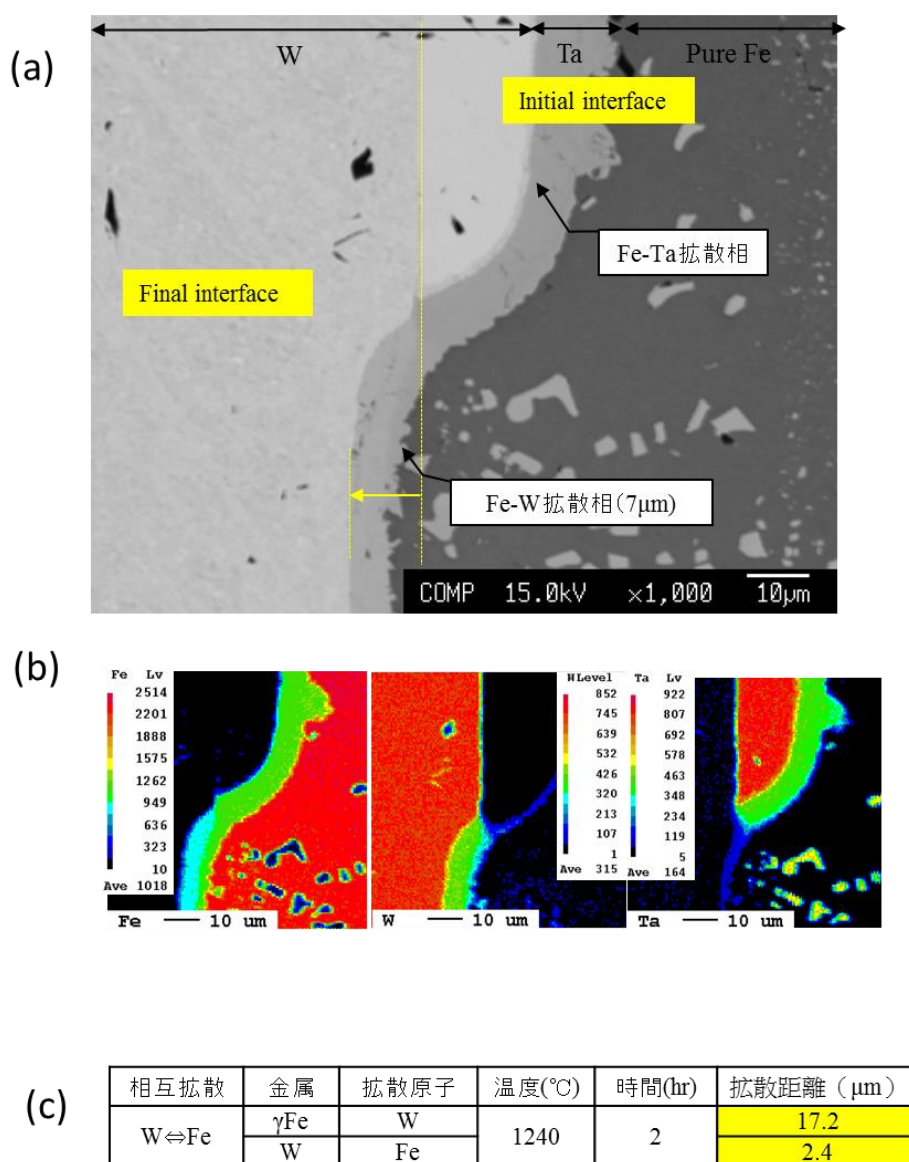


図 5-3-5 熱処理後 (図 1:c-②)

(a)W/純鉄接合端部

(b) 組成解析

(c)W,Fe 拡散処理

図 5-3-6 は (図 5-3-2:c-③) の結果であるが、化合物の増加は見られない。これらの結果より、W/S50C/ODSS 固相拡散接合においても、高温環境中における化合物の W への成長は際立ったものではないことが予想される。

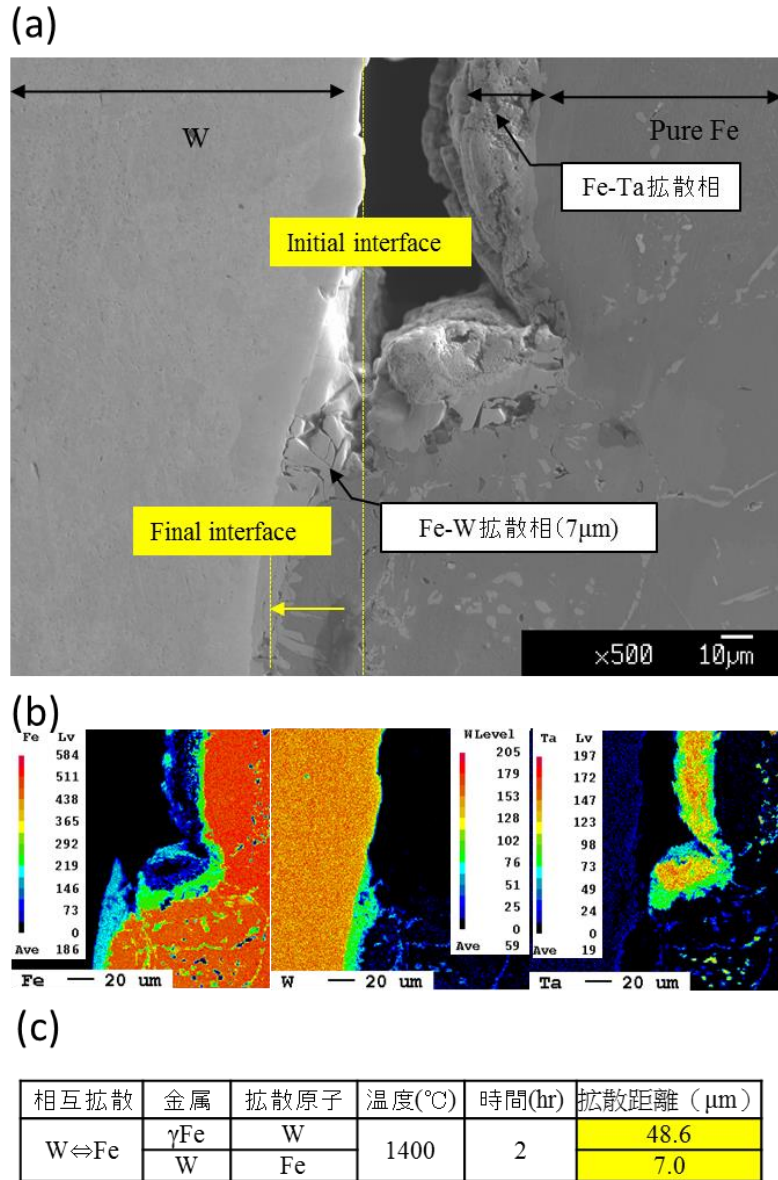


図 5-3-6 追加熱処理後 (図 1:c-③)

(a)W/純鉄接合端部

(b) 組成解析

(c)W,Fe 拡散処理

#### 5.3.4 まとめ

W と ODSS の拡散接合では、接合後冷却段階で CTE の差により熱応力発生する。この熱応力緩和のためには、変態超塑性金属として知られる S50C 炭素鋼を中間材として使用し、応力緩和を試みた。4 点曲げ試験によるこの強度評価後に破断面を観察した結果、き裂発生・進展は W と S50C 炭素鋼の化合相であることが認められた。このような異材間での化

合相は炉内運転中に健全性を欠く可能性がある。そこで、2mm厚 W と純鉄の拡散対実験により、この化合相の生成過程を調査した。得られた主要データを以下に示す：

- 1) EPMA 組成解析の結果、化合相は Fe-W の化合相であり、Fe から W への拡散により生成したことが明らかになった。
- 2) 1240°C1 時間の拡散接合後、同じ温度において 2 時間の焼鈍および 1400°C2 時間の焼鈍を加えたが、化合相は W 側への進展は見られなかった。

#### 5.4 核融合炉構造材料の設計[9-11]

本接合は、W/S50C 炭素鋼/ODSS の形状で拡散接合を試みた。この拡散接合における、熱伝導を考慮した冷却設計を考察した。図 5-4-1 は、PFM-W/ODSS の冷却構造を考察した概形であり、W/S50C 炭素鋼/ODSS 拡散接合を利用し、W 量を減少させた平板型、モノブロック型を想定し比較した。平板型とした場合、W の厚さを 2mm、中間材の厚さを 1mm、ODSS の厚さを 2mm とし、微小曲げにより強度評価ができる形状とした。モノブロック構造は、ITER モノブロックよりも形状を小型化したものを想定した。このような小型化、鉄基材料による配管の配置は、過去にも、原型炉を想定し検証されてきた。中間材と ODSS は、それぞれ ITER モノブロックと対比すると、無酸素銅緩衝剤と冷却管に相当する。この時、W の厚さを 2mm、中間材の厚さを 1mm、ODSS の厚さを 1mm とした。W-1.1wtTiC、S50C 鋼、ODSS それぞれの熱伝導(W/m/K)は、110,26.5,25(1000°C)である。冷却媒体は PWR にみられる高温加圧水(325°C)を想定し、配管形状は ITER ダイバータ構造に採用されている外形 12mm のスワール冷却管を想定した。この時、ダイバータ定常熱負荷が入熱したときの熱勾配を以下の式を用いて計算した。

$$q = -k \frac{dt}{dx}$$

式に用いられている代数に関し、q は単位面積当たりの熱流束、k は熱伝導率、t は温度、x は材料の厚さである。なお計算は一次元定常熱伝導をフリーエの法則を用い、発熱 (W の核熱など) の無い物体を通過する熱流束に関し、線形的な熱伝導として仮定した。



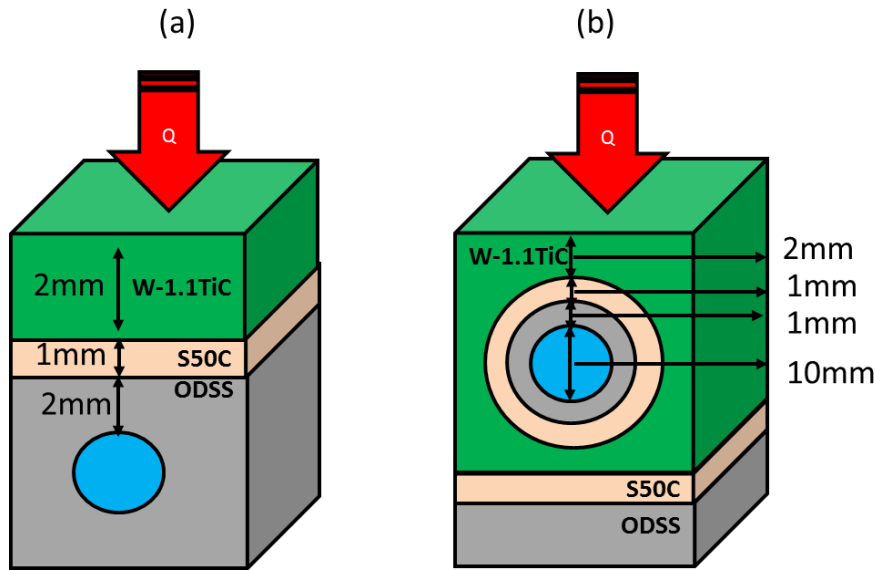


図 5-4-1 PFM-W/ODSS を想定した冷却構造

(a)平板構造の概要想定

(b)小型モノブロック構造の概要想定

図 5-4-2 は、冷却構造の違いが構造材料の熱勾配に与える影響に関し、表面熱負荷ごとに示している。(a)は平板構造であり、表面熱負荷が 9.56MW まで熱負荷が加わると、W/S50C 中間材界面で 1450℃ (0.5wt%炭素鋼融点) を超え、溶融の可能性が発生する。これに対し、モノブロック構造において、W/S50C 中間材界面で 1450℃を超える熱負荷は、14.48MW であった。入熱による中間材の限界を考慮した場合、ODSS の厚さが冷却能に影響を与えていることがわかる。つまり配管として、厚さを薄くとるモノブロック構造は、図に示すように温度勾配が急になり、運転時の熱応力発生が顕著となることが懸念される。よってモノブロック構造による冷却を想定する場合、運転想定温度における S50C 中間材の降伏強度を測定し、W/ODSS 接合構造で発生する熱応力と併せて検討することが重要であると考えられる。モノブロック構造の場合、ODSS 間における熱勾配により発生する線膨張は 0.72%である。しかし ODSS の弾性歪は 0.33%であり、ODSS の弾性域内では緩和しきれず、W/ODSS 接合体の健全性に影響を及ぼす可能性がある。

図 5-4-3 は、S50C 鋼の 0.2%耐力に及ぼす引張温度依存性を示している。図よりは、引張温度の上昇に伴い、顕著な耐力の低下が確認された。700℃における ODSS の降伏強度と比較しても、S50C は高温下での耐力は極端に低い。これは分散強化されている ODSS の方が高温特性に優れているためと考えられる。高温環境下で熱勾配をもつ W/ODSS の熱応力について考察すると、S50C 鋼の高温強度の低さにより ODSS の弾性歪では緩和しきれない熱応力に対し、変形能をもつことができると期待できる。

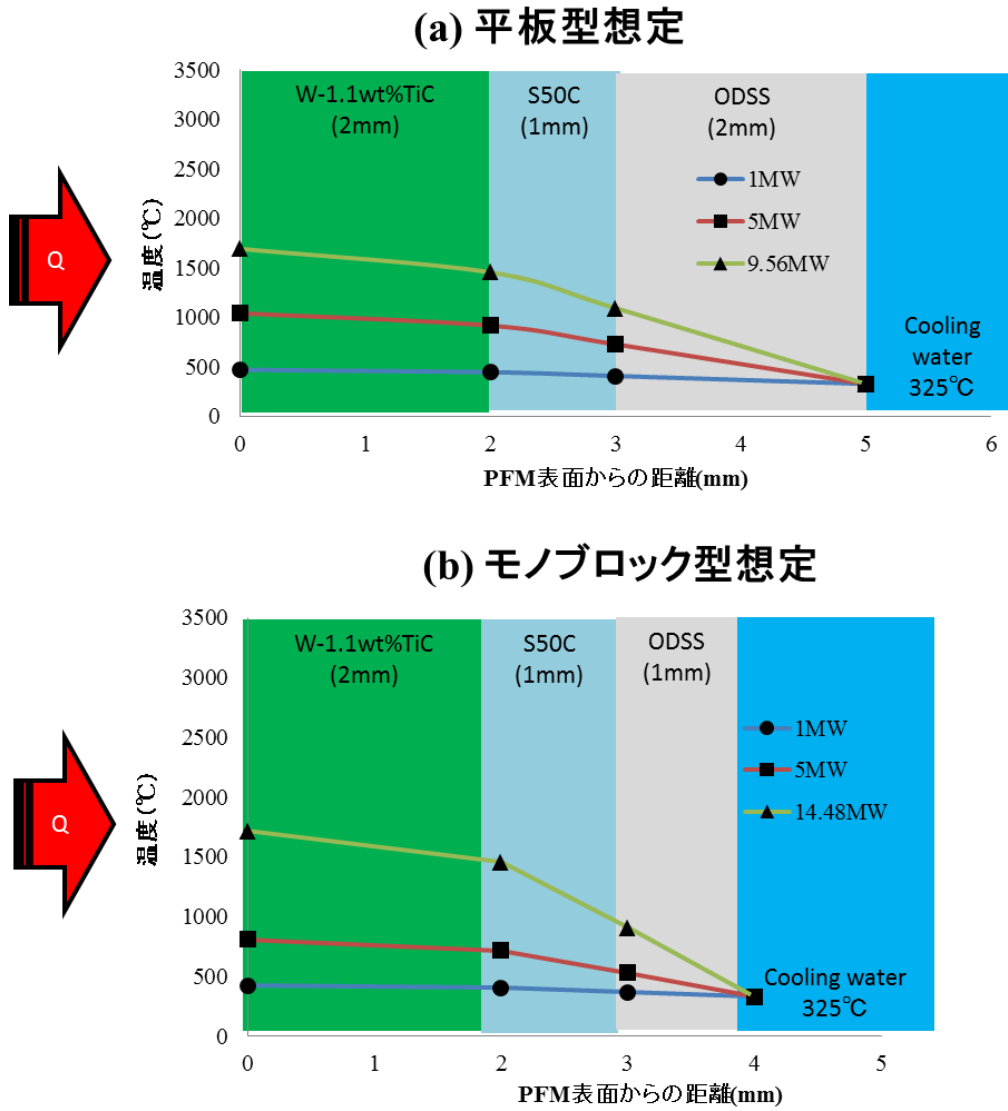


図 5-4-2 冷却構造の違いが構造材料の熱勾配に与える影響

(a) 平板構造の熱勾配想定

(b) 小型モノブロック構造の熱勾配想定

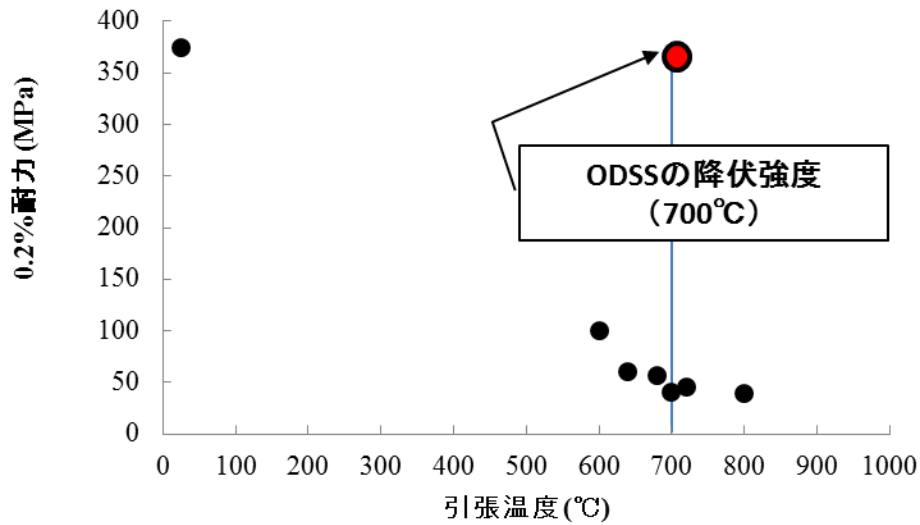


図 5-4-3 S50C 鋼の 0.2%耐力における引張温度依存性

### 5.5 結言

本章では、純鉄中間材を用いた W/ODSS の拡散接合を超える応力緩和を目的とし、変態超塑性材料として知られている炭素鋼を用いて、後熱処理により応力緩和法を試みた。この拡散接合後、(W)エスタン/炭素鋼間には化合相を確認した。その化合相に関し、組成、成長方向を調査した。主要な結果を以下に示す。

- 1) 相変態誘起の塑性変形を示す中間材(S50C)、等方結晶粒 W(S-TAN)の使用は、W/ODSS 接合の強度を上げるに当たり、最も効果的に働いた。
- 3) S-TAN/S50C/15Cr-ODSS の接合強度は、接合後必然的に通過する  $\gamma/\alpha$  変態の温度の冷却過程に依存する。この際、徐冷は 480MPa の接合強度をもたらすことがわかった。
- 4) EPMA 組成解析の結果、化合相は Fe-W の化合相であり、Fe から W への拡散により生成したことが明らかになった。
- 5) 1240°C1 時間の拡散接合後、同じ温度 2 時間の焼鈍および 1400°C2 時間の焼鈍を加えた結果、化合相は W 側への進展は見られなかった。

参考文献

- [1]中東 潤, et al.,日本金属学会誌 第70巻 第2号 (2006) 204-211
- [2]K.Kitazono, et al.,Materials Science Forum 447-448(2004)541
- [3]超塑性研究会：超塑性と金属加工技術(1980)
- [4]Porter, L., et al.,:Acta Met.,7(1959),504.
- [5]Oelschlagel,, et al.,Trans. A.S.M., 58(1969),143.
- [6]Y.W.Xun, et al., journal of Materials Processing Technology 99(2000)80-85
- [7] S. Oda et al., J. Nucl. Mater. 329–333 (2004) 462–466
- [8]日本金属学会：金属データブック改訂4版
- [9]鈴木哲,J.Plasama Fusion Res. Vol.87, No.9 (2011)607-614
- [10]Pintsuk et al. PFMC-13, 2011
- [11]日本原子力機構「ODS フェライト鋼被覆管の材料強度基準（暫定案）研究報告書(2005)

## 第六章 総括

核融合炉ダイバータおよび高効率ブランケットの設計において、タングステン (W) は、耐熱性や耐スパッタリング性の観点からプラズマ対向材料 (PFM) として期待されており、酸化物分散強化鋼 (ODSS) は、その高温強度、耐照射性、耐食性から内部支持構造材料として期待されている。これらの材料を併用する場合には、W と ODSS の異材接合技術が必要であり、その開発研究は重要な位置づけとなっている。

しかしながら、W/ODSS の異材接合においては、W (CTE=4.91  $\times 10^{-6}/K:1000^{\circ}C$ ) と ODSS (CTE=13.25  $\times 10^{-6}/K:1000^{\circ}C$ ) 間に存在する熱膨張差により拡散接合後に発生する熱応力が問題となっている。この熱応力緩和において、中間材 (インサート材) の使用が効果的であると考えられるが、核融合炉では、中性子照射量の違いから、従来試みられてきた中間材では適用が難しい。本研究では、核融合炉への応用をめざし、W および ODSS の異材接合部の健全性を高めるため、接合部における熱応力緩和法として、中間材を適用することに着目し、接合部の健全性に及ぼす中間材の影響を調べるとともに、新たな異材接合プロセス技術の開発を目的とした。なお、本論文における各章の成果概要と関連を図 6-1 に示す。

第 2 章では、バナジウム中間材を用いた W と酸化物分散強化鋼 (ODSS) の固相拡散接合技術開発を行った。この拡散接合実験において、脆化相である  $\sigma$  相の抑制に着目し、以下の結果を得た。

① V-4Cr-4Ti/ODSS 間へのバリア層導入による  $\sigma$  相脆化抑制：拡散接合により、炉運転温度  $700^{\circ}C \sim 800^{\circ}C$  では、 $\sigma$  相による脆化が顕著になることが懸念されたため、酸化物分散強化フェライト鋼と V-4Cr-4Ti 合金の間に相互拡散バリアとして Ti 箔を導入し、拡散バリア層の有無による接合強度を調査した。その結果、バリア層を用いなかった場合、 $700^{\circ}C$ 、1000 時間の熱処理後に、破壊強度が低下した。一方、バリア層を用いた場合は、同様の熱処理後においても、強度低下は見られなかった。

② 有限要素法による熱応力解析：バリア層導入により、Fe-V の相互拡散は抑制され、熱処理後も接合強度を維持することが可能となったが、放電加工法により微小試験片を切出した結果、W 内部においてき裂の発生が確認された。この原因を調査するため、有限要素法により、熱応力を解析した結果、バナジウム中間材を用いた弾性的な熱応力緩和は、十分でないことが明らかになった。この理由として、弾性変形量は W と ODSS の熱膨張差による歪量より少なく、さらにバナジウム合金は降伏点が高いためと考えられる。

第 3 章では、W/ODSS 拡散接合の中間材として降伏点の低い純鉄を用いて、塑性的熱応力緩和を試みた。純鉄の降伏点は、広範囲温度域で低く、延性や熱伝導性にも優れており、W と ODSS の中間材としては適していると考えた。純鉄の中間材として適用性を検討し、以下の結果を得た。

① 純鉄/アモルファス中間材二層中間材：従来、アモルファス中間材のみを使用したろう付

け接合法が試みられてきたが、この接合では、拡散接合時に溶融を伴うため、応力緩和の指標として重要な中間材の厚さの制御が難しくなる。さらにアモルファス中間材単体での使用では、アモルファス中間材が、鉄に対し融点降下元素となる Si を含有しているため、室温での脆性が懸念される。すなわち Fe-Si 系合金は Si が 4wt%以上で室温脆性が懸念されており、アモルファス中間材は 5wt%Si を含むことから室温脆性が懸念される。一方、アモルファス中間材は従来の研究より、ろう付け性能は高いと判断できるため、従来の荷重プレスで拡散接合し、純鉄とアモルファス中間材を併用した。この調査では、「固体状態を維持しつつ、低降伏強度を持つ純鉄の効果」と「W/純鉄界面のろう付けの効果を持つアモルファス中間材の効果」で熱応力緩和ができると考えた。その結果、放電加工法により、微小曲げ試験片採取に成功し、独自に開発した微小曲げ試験器により曲げ強度を得ることに成功した。しかし、組織観察の結果、アモルファス中間材に含まれる融点降下元素(Si,B)により拡散影響部が確認された。

②純鉄を中間材として用いた異材接合：純鉄のみを用い、高温圧縮試験器を使用し、中間材部のみに数%程度の塑性変形を導入することにより、ろう付けと同等の W/中間材界面の密着性を確保した。この結果、微小曲げ破壊強度 300MPa 以上の破壊強度を得ることに成功した。この時、製造工程の異なる W と拡散接合時に接合面に対する結晶粒配向の違い W で、接合を行い、曲げ試験を行った結果、結晶粒配向性が接合強度に影響を与えることがわかった。この強度に及ぼす関係は、W を強加工した製造ほど顕著にみられた。これらの接合強度を調査した結果、最も高い接合強度を示した W は、一般的な、圧延・押し出し加工による W を使用した場合ではなく、日本タングステン社の製造するエスタン(S-TAN)と呼ばれる HIP 加工により製造された等軸結晶粒を有する W であった。この結果から等軸粒 W は拡散接合の残留熱応力場に適していると考えられる。

第 4 章では、焼結後の塑性加工率と製造工程の異なる純 W に関し、その機械的性質に及ぼす結晶粒の配向、熱処理温度および試験温度の効果を調査した。加えて、近年、ブランケット PFM 材料として注目されている。真空プラズマ溶射(VPS)法による W の機械的特性評価を行い、以下の結果を得た。

①W における配向性と曲げ強度比較：圧延率の高い W (1.5~2.0mm 厚) では、接合温度 1240°Cにおいて、再結晶脆化によるとみられる破壊強度の低下が認められた。一方、圧延率の低い W (10~12mm 厚)は、1300°C 付近まで強度低下を示さず、1300°C より低い熱処理温度では、受け入れ材と比較し、むしろ破壊強度の上昇が認められた。これは塑性加工により導入された転位の回復の効果であると考えられる。また、結晶粒配向性をもつ ITER grade W および等軸結晶粒のエスタンについての高引張試験の結果、いずれも 200°C 以上で延性を示し、200~1300°C における降伏強度は結晶粒配向に依存せず、同様な試験温度依存性を示すことが分かった。

第 5 章では、変態超塑性で知られている相変態誘起塑性変形を示す S50C 炭素鋼を中間材として用いて拡散接合を行った。その結果、純鉄を中間材として用いた場合を超える破

壊強度を示した。この応力緩和機構を調査し、S50C 中間材を用いた場合の接合部の調査を行い、以下の結果を得た。

①超塑性鉄鋼材料を中間材として用いた異材接合：この接合法は、W/ODSS 間において、熱応力が発生する冷却段階で、後熱処理を加えることにより、相変態誘起塑性変形を誘起させる応力緩和技術である。W/ODSS 拡散接合に本技術を適用した結果、従来の接合技術では、成し得なかった高強度 (377MPa) を得ることに成功した。この応力緩和機構を明らかにするために、異なる後熱処理を試みた結果、 $\gamma/\alpha$  変態温度域を徐冷した後熱処理を施したとき最も高い破壊強度を示した。この原因として、 $\gamma/\alpha$  変態により誘起される高温クリープ変形は、 $\gamma$  相中より  $\alpha$  相が析出するときの転位発生により促進されるためと考えられる。よって、その転位発生時間のより長い後熱処理が高温クリープを誘起するのに適していたと考えられる。また、拡散接合条件 (1240°C、1 時間) で焼鈍熱処理を施した純鉄と炭素鋼の室温引張試験を行った。その結果、純鉄は低い降伏強度を示し、純鉄中間材を用いた応力緩和は、この低降伏強度に起因していると考えられる。一方で炭素鋼では、焼鈍熱処理後も降伏強度は、ほとんど低下しなかった。これは炭化物によるピンニング効果であると考えられる。つまり拡散接合後、「純鉄の降伏強度よりも、S50C 炭素鋼の降伏強度ほうが高い」という結果が得られ、熱応力緩和機構が異なっていることが明らかになった。そしてこれらの結果より、炭素鋼による応力緩和機構は、相変態による高温クリープ変形であると考察した。

②化合相の生成過程と拡散方向の同定：新たな熱応力緩和機構として S50C 鋼を中間材として用い、拡散接合を試みた。その接合部断面を観察した結果、破壊部は、W 内部ではなく、W/中間材界面の化合相内部であることが観察された。この化合相は、拡散接合の際に生成されたと考えられる。その後の拡散相の進展に関し、焼鈍熱処理により調査した結果、1400°C、2 時間で焼鈍してもさらなる進展は見られなかった。

以上、本論文では、核融合炉への適用に向け、W/ODSS の接合技術の開発を行い、変態誘起高温クリープ変形を利用することで、従来の接合法をはるかに凌ぐ、高い曲げ強度が得られており、変態誘起クリープ変形による高い接合強度の発現機構は、学術的にも重要である。また、本手法は、新規接合技術と位置づけられ、得られた成果は、W との異材接合を必要とする核融合炉ダイバータならびに他の金属との異材接合にも応用することが可能であると期待できる。

第六章

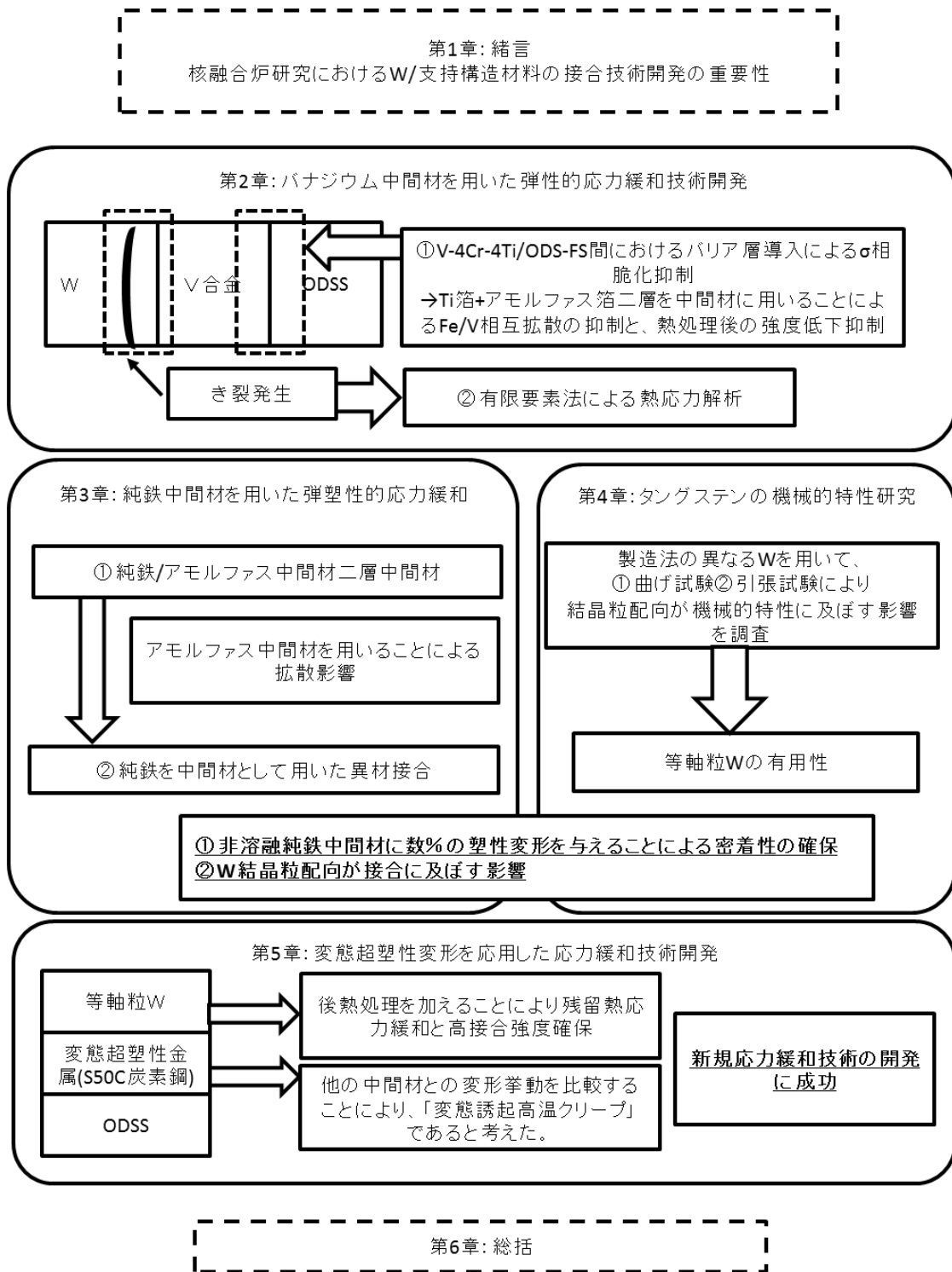


図 6-1 本論文における各章の成果概要と関連



論文リスト

1) 博士課程在学中に発表し、本論文を制作するに当たり学位論文に反映された学術雑誌論文を以下に示す。

第二章 バナジウム中間材を用いた弾性的応力緩和技術開発

Evaluation of Feasibility of Tungsten/Oxide Dispersion Strengthened Steel Bonding with Vanadium Insert

(バナジウム中間材を用いたタングステン/酸化物分散強化鋼接合における特性評価)

Materials Transaction, 54, 451-455 (2013)

H.Noto, A.Kimura, H.Kurishita, S.Matsuo, S.Nogami,

第三章 純鉄中間材を用いた弾塑性的応力緩和技術開発

Diffusion Bonding of W/ODS steel using pure iron insert for fusion reactor applications

(純鉄中間材を用いた核融合炉用 W/ODS 鋼の拡散接合)

H.Noto, S.Taniguchi, H.Kurishita, S.Matsuo, A.Kimura,

PRICM-8 proceeding with John Wiley & Sons, 129-135(2013)

第四章 タングステンの機械的特性研究

Effect of grain orientation and heat treatment on mechanical property of pure W

(純タングステンの機械的特性における結晶粒配向性および熱処理の効果)

ICFRM-16 proceeding (submit)

H.Noto, S.Taniguchi, H.Kurishita, S.Matsuo, T. Ukita, K.Tokunaga, A.Kimura,

第五章 変態超塑性変形を応用した応力緩和技術開発

Development of high strength W/ODSS joints by innovative thermal stress relaxation technique based on phase-transformation induced plasticity

(相変態誘起超塑性変形に基づく新規熱応力緩和技術を用いた高強度 W/ODS 鋼接合の開発)

ACTA MATERIALIA(submit 予定)

H.Noto, S.Taniguchi, H.Kurishita, S.Matsuo, A.Kimura,

2) 本論文を作成するに当たり参考とした発表した学術雑誌論文を以下に示す。

1. Grain refinement of transient liquid phase bonding zone using ODS steel insert foil

(ODS 箔を用いた液相拡散接合部の結晶粒微細化)

Journal of Nuclear Materials, 442 (2013) S567–S571

H.Noto, R.Kasada, A.Kimura, S.Ukai,

2. Transient liquid-phase bonding of ODS steels

(ODS 鋼における液相拡散接合)

Journal of Nuclear Materials 417 (2011) 249–252

H. Noto, S. Ukai, S. Hayashi

謝辞

本研究を行うに当たり、常日頃より、ご指導いただいた京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦教授には、深く感謝申し上げます。博士課程3年間のご指導のおかげで本論文を完成させるに至ることができました。在籍期間は木村晃彦教授のもとでしかできない貴重な経験をさせて頂きました、木村晃彦教授のもとで、博士論文を完成させることができたことはとても幸せに感じております。

森下和功准教授におかれましては、多方面からのアプローチにおかれまして研究にアドバイス頂き感謝申し上げます。

本研究における共同研究者として、直接、研究の方向性、指針をご助言いただいた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所属の栗下裕明准教授（元：京都大学客員准教授、現：京都大学非常勤講師）におかれましては、共同研究の他、将来に向けた研究者としての基本を指導いただき誠に感謝しております。なお同センター所属 松尾悟研究員におかれましては直接実験の指導・補佐して頂き感謝申しあげます。特にお二人におかれましては、本論文を作成するに当たり、重要なご指導を頂いたことに強く謝辞を表します。

京都大学エネルギー理工学研究所 笠田竜太准教授（元同研究室助教）におかれましては、同研究室在籍中並びに移籍後も研究に対するご助言を頂き誠にありがとうございます。

接合後評価試験器機制作などを依頼させて頂いた飛田精機様におかれましては、非常に難しい設計を実現して頂き感謝しております。特に微小曲げ試験器においては、学会・研究会の発表時には、国内外にかかわらず、その精巧さ、技術力の高さを評価する声をたくさんいただいたのも飛田精機様のおかげであります。

神戸工業試験場様におかれましては常に試験片作成の依頼を受諾して頂き、誠にありがとうございます。この切出し技術は、貴試験場でのラインでしかできない精密さであり、保有する経験の深さには感動を否めませんでした。本研究の根幹である応力緩和の指標はまさにこの微小曲げ試験を制作なくしては比較できず、試験片自体を毎回同じ精度で切出せる技術がなくては、統計的な実験はできなかつたと思います。

NIFS 長坂琢也准教授におかれましては、第2章で使用したV系合金を提供して頂き誠に感謝申しあげます。

長谷川晃教授・野上修平准教授、藪内聖皓助教、小西裕希氏におかれましては、第2章の有限要素法による解析に関するご指導を頂きました。特に、東北大学での長期出張によるご指導を仰げたこと感謝の意を表したいと思います。

同研究室（現、研究員）の諸煥日氏におかれましては、博士論文製作にたいへん尽力いただき、加えて3年間博士課程の学生としての見本を示していただき誠に感謝しております。

谷口修一氏におかれましては、本研究の補佐をしていただき、誠に感謝しております。

## 付録

この補佐なくしては、本研究における応力緩和という実験的確認は困難であったと思います。

和田裕子秘書、山本泰則氏、河侑成氏、陳冬生氏、張哲先氏、Eva Hasenhuetl 氏、久保博史氏、村井宏俊氏、奥西成良氏、山口貴大氏、中筋俊樹氏におかれましては、同研究室において、日々の研究室生活で大変お世話になり感謝しております。

京都大学グローバル COE プログラムにおかれましては、2011 年より 2012 年までの 2 年間、本研究に対する RA 費および研究費を支給して頂きました。この期間の研究遂行費用の捻出及び、発表の機会を設けていただいたことについて感謝申し上げます。

日本学術振興会におかれましては、2013 年より 1 年間特別研究員に採用していただき、研究奨励費および科学研究費を支給して頂きました。これにより、非常に円滑に研究生活および、研究を遂行することができました。誠にありがとうございました。