

氏 名 山下 東洋

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 2479 号

学位授与の日付 2024 年 3 月 22 日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 ろう付および拡散接合法を用いたタングステンと低放射化フェ
ライト鋼の接合に関する研究

論文審査委員 主 査 長坂 琢也
核融合科学コース 教授
時谷 政行
核融合科学コース 准教授
本島 巖
核融合科学コース 准教授
大塚 哲平
近畿大学 理工学部 教授
宮本 光貴
島根大学 材料エネルギー学部 教授

博士論文の要旨

氏 名：山下 東洋

論文題目：ろう付および拡散接合法を用いたタングステンと低放射化フェライト鋼の接合に関する研究

【はじめに】

トカマク型核融合炉 (JA-DEMO) のタングステン(W)モノブロック型水冷ダイバータ受熱機器では、ターゲット部、ドーム・バッフル部の定常熱負荷がそれぞれ $\sim 10\text{MW/m}^2$ 、 $<5\text{MW/m}^2$ と見積もられている。後者では中性子照射量が多くなるため、冷却配管には低放射化フェライト鋼(RAFM 鋼)が採用される見込みである。W と RAFM 鋼配管の接合では一般的にろう付や拡散接合法等の界面接合法が考えられ、同接合法を基にした様々な先行研究が成されているが、しかし、両材料の物理的特性が大きく異なることから未だ確固たる接合法の確立には至っていない。両材料の接合構造において考慮すべき 4 つの条件を以下に示す。

1. W と RAFM 鋼の接合部に生じる残留応力の十分な緩和
2. 誘導放射能の低いろう材およびインサート材の選択
3. 熱負荷時における接合部の健全性確保
4. RAFM 鋼の強度維持

本研究では、これら 4 つの条件を考慮するために必要な接合手法を選定し、同接合手法による接合構造の確立を目的とした。以下に、接合手法の選定論理および接合試験体の製造、製造試験体の特性評価試験について述べる。

【接合手法の選定論理】

まず、「1」の条件では、W と RAFM 鋼の接合界面に中間緩衝材を導入することが有効であると考えられる。中間緩衝材の候補には様々な金属が挙げられるが、「1」、「3」を両立させるためには優れた延性を有する純銅(Cu)の採用が有利であると考えられる。Cu を用いた場合、W と Cu は互いに固溶しないため、一般的にはろう付の採用が考えられる。このろう付接合では先行研究でも使用された Ni-P 系ろう材の使用を決めた。次に、「4」の条件については、本研究の成否を左右する最も難易度の高い課題である。RAFM 鋼は、溶解・精錬から鍛造、焼きならし・焼き戻しを含む複雑な加工・熱処理工程を経て製造される鋼である。接合熱処理温度が製造時の最終工程である焼き戻し温度以上となる場合、その強度特性は初期の RAFM 鋼とは異質のものとなる。また、接合熱処理温度を下げる目的で Cu と RAFM 鋼の間にインサート材等を挿入する場合、RAFM 鋼に臨まれない不純物の混入を引き起こす可能性もある。したがって、本研究では、W と Cu をろう付接合させた後に Cu と RAFM 鋼を焼き戻し温度以下かつインサート材無しで拡散接合させる二段階接合法を考案した。最後に、「2」の条件については、核融合炉運転終了から 100 年後の表面線量率 10 mSv/h を基準とした場合、中間緩衝材に用いる Cu やろう材に用いる Ni は

十分に低い誘導放射能寄与率の元素であるとは言い難い。しかし、ダイバータ受熱機器は、数年に1回の周期で交換が必要な機器であることに加えて、ダイバータ領域の中性子照射量は第一壁領域と比較して低い場合が多い。したがって、NiとCuの誘導放射能寄与率は緩やかになる可能性があるため、ダイバータ詳細設計や運用の考え方を踏まえて今後検討を要する課題である。

【接合試験体の製造および特性評価試験】

接合部の面積は $20 \times 20 \text{mm}^2$ とし、W, Cu中間緩衝材, RAFM鋼の厚さはそれぞれ3mm, 1mm, 5mmの平板形状とした。WとCuのろう付接合では、Ni-P系ろう材をWとCuの間に導入し、真空中で $960^\circ\text{C} \cdot 10$ 分の接合熱処理を実施した。取り出したW/Cu接合試験体のCu側へのRAFM鋼の拡散接合では、真空中で $720^\circ\text{C} \cdot 1$ 時間、圧縮荷重値40MPaの接合熱処理が行われた。 720°C はRAFM鋼の焼き戻し温度(750°C)以下であることに加えて、RAFM鋼の溶接後熱処理(PWHT)時の温度として考えられていることが選定の理由である。40MPaの圧縮荷重値については、いくつかの圧力条件での接合試験結果からCu系とFe系母材の拡散接合が可能であると判断されたため決定された。

製造後のW/Cu/RAFM鋼接合試験体に対して、接合部の微細構造解析を行う目的でレーザー顕微鏡、走査型電子顕微鏡(SEM)、集束イオンビーム/電子ビーム加工観察装置(FIB-SEM)、透過型電子顕微鏡(TEM)、エネルギー分散型X線分析装置(EDS)を用いた解析を実施した。また、接合部の機械的特性の指標を得るため、ビッカース硬さ試験機による硬さ評価を行った。そして、超高熱負荷試験装置(ACT2)を用いた電子ビーム熱負荷試験により、接合体の熱伝導特性を評価した。熱負荷試験では、平板のW, RAFM鋼に $0.5 \text{mm} \Phi$ の熱電対を各2本ずつ挿入し、RAFM鋼の裏側を直接水冷するACT2専用試験治具を設計・製作した。試験手順としては、 $\sim 0.5, \sim 1.1, \sim 1.5, \sim 1.7, \sim 2.0, \sim 2.4, \sim 2.8 \text{ MW/m}^2$ の各熱負荷値において、定常および30s熱負荷/30s冷却を1回とした30回の繰り返し熱負荷試験を低負荷⇒高負荷の順番で実施した。

【結果および考察】

目視およびレーザー顕微鏡による観察から、製造後のW/Cu/RAFM鋼接合試験体に接合不良およびマクロな亀裂等が存在しないことを確認した。W/Cu接合部の電子顕微鏡(SEM)を用いた観察では、ろう材成分(Ni, P)の接合界面近傍Cu側への偏析が確認されると同時に、主にアンカー効果によってW/Cuの接合が成立していることがわかった。この事実は同条件でこれまで実施された接合試験結果と同類であった。一方で、Cu/RAFM鋼の接合部の電子顕微鏡(SEM)観察では、Cu, Fe元素の相互拡散を伴う緻密な接合部が確認され、Cu, Feの相手方素材への拡散距離はマイクロレベルで計算値とほぼ一致するものであった。また、Cu/RAFM鋼接合部の断面TEM観察を実施した結果、ナノレベルの空隙や接合不良も確認されなかった。学術的に興味深い結果としては、接合界面極近傍のCu側素材に $5 \sim 10 \text{nm}$ 程度のCr酸化物の分布が確認された点である。この要因は、RAFM鋼表面に存在していたCr酸化物が接合熱処理時にCu側素材に広く拡散されたことに起因すると予想しているが、詳細な形成機構および同酸化物の接合特性への影響については今後の検討を要する。

ACT2での熱負荷試験では、各熱負荷値での繰り返し熱負荷前後の定常熱負荷時に計測した温度変化を基に接合試験体内部の温度分布を求めた。その結果、 $\sim 2.0 \text{ MW/m}^2$ までの熱負荷値では、試験体内部の温度分布に不連続性は見られず、接合界面を含めて理想的な熱伝導特性が維持されていることが確認された。一方で、 $\sim 2.8 \text{ MW/m}^2$ の熱負荷値では、W側から外挿した温度分布と RAFM 鋼側から外挿した温度分布に明らかな不連続性が確認された。この事実は、 ~ 2.0 から $\sim 2.8 \text{ MW/m}^2$ の間で接合試験体に亀裂や接合部剥離等の熱抵抗が生じたと考えられる。 $\sim 2.0 \text{ MW/m}^2$ 、 $\sim 2.8 \text{ MW/m}^2$ の熱負荷時の RAFM 鋼の温度はそれぞれ $\sim 450^\circ\text{C}$ 、 $\sim 550^\circ\text{C}$ であった。熱抵抗の原因を調査するため、熱負荷試験後の接合試験体側面をデジタルマイクロスコープで観察した結果、W 素材にミリスケールの明瞭な亀裂が確認された。繰り返し熱負荷による連続した応力負荷により W 素材に亀裂が生じたものと推察される。本試験体構造としての使用限界を示すとすると、RAFM 鋼の温度が少なくとも $\sim 550^\circ\text{C}$ よりも低い状態で維持される必要がある。今後の研究方針として、本熱負荷試験から得られた接合体の熱伝導特性評価の結果を基に、弾塑性解析によって熱負荷試験中の応力分布を計算し、亀裂が発生する接合構造内の応力分布を求めることを検討している。熱負荷中の応力分布を把握することで、原型炉モノブロック構造中の温度分布や応力分布、使用限界、寿命が精度よく推定できるようになり、高応力部分の形や温度を変更する等の構造の最適化、設計指針を考案できると考えられる。

博士論文審査結果

Name in Full
氏名 山下 東洋

Title
論文題目 ろう付および拡散接合法を用いたタングステンと低放射化フェライト鋼の接合に関する研究

出願者は、核融合炉のダイバータ受熱機器としてタングステン(W)をアーマー材料とし、その裏側に低放射化フェライト鋼(RAFM 鋼)製ヒートシンク(冷却配管)を接合させる「W/RAFM 鋼」接合構造の開発を目指し、平板型の接合試験体の製作と接合部の特性評価試験にもとづく研究を行った。本研究の特徴は、新しい接合手法の確立を目指す「接合研究」と試験体への亀裂等のその場検出を行う「熱負荷特性研究」を繰り返すことにより、将来のダイバータ受熱機器の性能・寿命の予測や、規格・基準策定などへの貢献を目指す点にある。

W と RAFM 鋼の接合にはろう付、爆発圧接、拡散接合等の界面接合法が考えられ、多くの先行研究が存在するが、両材料の物性が大きく異なることから、未だ確固たる接合法の確立には至っていない。申請者は、両材料の接合構造において考慮すべき以下の4つの条件を最も多く満たすことが期待できる接合方法を考案した。また、考案した接合方法による接合試験体の製造と接合部の特性評価試験を実施した。

1. W と RAFM 鋼の接合部に生じる残留応力の十分な緩和
2. 熱負荷時において接合部の健全性確保
3. RAFM 鋼の接合前の機械特性維持
4. 中性子照射による誘導放射能の低いろう材およびインサート材の選択

上記4つの条件のうち「1, 2」を満たすと期待できる手段として、W と RAFM 鋼の接合界面に Ni-P 系ろう材と純銅(Cu)の中間緩衝材を導入することを決めた。また、「3」の条件を満たすと期待できる手段として、RAFM 鋼を焼き戻し温度以下の熱処理にて接合させる方法が考えられた。これに対して出願者は、W と Cu 接合界面を 960°C でろう付接合させ、次に Cu と RAFM 鋼界面を 720°C で拡散接合させる二段階接合法を考案・実施した。720°C は、RAFM 鋼の焼き戻し温度(750°C)以下であり、溶接後熱処理(PWHT)として規定されている温度であることから、同温度での接合が実現されれば、これまで取得されてきた RAFM 鋼の特性評価試験データベースをダイバータ設計時に有効活用できる利点がある。製造後の W/Cu/RAFM 鋼平板接合試験体において、走査型電子顕微鏡を用いた接合部評価を実施した結果、W/Cu 接合部には、点在する 1~2 μm 程度の空隙(接合不良)が確認されたが、接合時の圧縮荷重値を調節することにより抑制できることを示した。一方、Cu/RAFM 鋼接合部においては同サイズの接合不良は確認されなかった。Fe 基材料を用いた先行研究では、Fe の拡散による接合に 1000°C 程度の高温が必要であったが、基材としても溶質としても拡散が起こりやすい Cu を中間緩衝材に用いることで、約 300°C 低温の 720°C において Cu, Fe 元素の相互拡散を伴う接合を確認した。更なる接合健全性評価の目的で、接合部断面の透過型電子顕微鏡(TEM)観察も実

施しているが、接合界面及びその近傍においてナノスケールでの接合不良も確認されていない。先行研究では、典型的には 1~5 μm の大小様々な接合不良が接合界面において確認されており、熱輸送や接合強度が低下する可能性があるが、そのような欠陥構造が確認されなかったことから、出願者が選定した条件が適切であったことが示唆される。最後に、「4」の条件について、核融合炉運転終了から 100 年後の取扱で要求される表面線量率 10 mSv/h を基準とした場合、中間緩衝材の Cu やろう材成分の Ni は、ブランケット構造材料の構成元素として用いる場合には低放射化元素であるとは言い難いことが論文中で指摘された。一方で、ブランケットよりも交換頻度が高く中性子照射量が低いダイバータ受熱機器において、なお且つ中間緩衝材として少量使用されるのであれば上述の表面線量率を満たせる可能性があり、現在進行中である原型炉詳細設計にもとづいた交換頻度や使用量の評価、及び使用量を抑えられる構造設計が課題であることが述べられた。

上記の接合試験体に対して、超高熱負荷試験装置(ACT2)を用いた熱伝導特性評価および繰り返し熱負荷耐久試験も実施された。接合試験体の熱負荷試験は、一般的には円形断面の冷却水配管を使用するダイバータモックアップで実施されるが、同形状の場合、伝熱経路が複雑であるため、亀裂発生時の温度分布とそれに起因する熱応力の高精度な推定が困難であった。これに対して出願者は、W/Cu/RAFM 鋼平板接合試験体の RAFM 鋼の背面全体を直接水冷する一次元熱伝導に近い試験体構造を用いて、亀裂発生が懸念される接合界面近傍の熱電対による精度の高い温度変動計測を行った。これにより、熱負荷試験中の実測温度変化を基に亀裂発生を捉え、その際の接合試験体内部の温度分布を特定した。さらに、亀裂はタングステンバルク材で発生することから、接合界面の強度はタングステンの強度に対し十分であることを実証した。亀裂発生までの機器寿命をさらに延ばすためには、破壊強度の高いタングステンの開発、熱応力の集中を緩和する設計の検討が必要であることを明らかにした。

出願者が行った研究の成果は、上述した「接合研究」と「熱負荷特性研究」によって平板型接合試験体の製造法を確立したことであり、これらによる亀裂発生前後における接合試験体内部の温度分布を特定したことであり、これらの成果は核融合炉のダイバータ製作技術の学理の確立及び、その破壊条件としての温度分布や応力状態の高精度な推定に寄与するものと期待できる。

本論文の研究目的はダイバータ接合構造の開発であり、それを上述した独創的研究手法により達成した。また、得られた知見については学術上の意義が大きいと認められて、主著者として 2 編の査読付き論文を英文誌に出版済みであり、加えて 1 編が投稿準備中である。さらに国際会議に参加し英語でポスター発表も行っているため英語力も十分であると判断できる。

以上のことから、審査委員会は、本論文が博士学位論文として価値があり、学位の授与に値すると判断した。