

レーザー溶接されたV-4Cr-4Ti合金の照射組織に及ぼす溶接後熱処理の効果

渡辺, 英雄
九州大学応用力学研究所

山崎, 和宏
九州大学総合理工学府

東嶋, 彬
九州大学総合理工学府

吉田, 直亮
九州大学応用力学研究所

他

<https://doi.org/10.15017/26846>

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 133, pp.167-172, 2007-09. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :



レーザー溶接された V-4Cr-4Ti 合金の照射組織に及ぼす 溶接後熱処理の効果

渡辺 英雄^{*1} 山崎 和宏^{*2} 東嶋 彬^{*2} 吉田 直亮^{*1} 長坂 琢也^{*3} 室賀 健夫^{*3}

(2007年7月31日受理)

The Effects of Postwelding Heat Treatment on Microstructural Evolution of Laser Welded V-4Cr-4Ti Alloy

Hideo WATANABE, Kazuhiro YAMASAKI, Akira HIGASHIJIMA, Naoaki YOSHIDA,
Takuya NAGASAKA and Takeo MUROGA

E-mail of corresponding author: watanabe@riam.kyushu-u.ac.jp

Abstract

To investigate the effect of postwelding heat treatment (PWHT) on jointed materials, laser welded V-4Cr-4Ti alloy (NIFS-HEAT2) was used in this study. The hardening of the weld metal was effectively reduced by PWHT at 873K. The microstructure of after PWHT showed that formation of precipitate free (PF) areas and precipitate segregated areas (PS) in only welded metal. The samples with and without PWHT were irradiated in the temperature range of 573-873K up to the dose of 12 dpa. After the irradiation, microstructure and Vickers hardness of the welded sample were compared of base metal. The effects of PWHT on weld metal, effectively improve for the hardness for unirradiated samples and for alloys irradiated at lower temperatures, are not effective or have a very limited effect at higher temperature irradiation where plate like Ti(CON) precipitates were formed.

Key words : postwelding heat treatment, dislocation loops, ion irradiation, Ti(CON) precipitates

1. 緒言

V 合金は低放射化特性、高温での強度特性等に優れており、照射環境下での大型構造材料として有望視されている。しかしながら、本材料は溶融時に雰囲気中の酸素、窒素等の不純物を吸収することにより、材料の特性が大きく変化する可能性が指摘されている。核融合科学研究所(以下、NIFS と呼ぶ)は酸素(O)及び窒素(N)を低減し、加工性と低温領域での靱性を大幅に改善した V-4Cr-4Ti 合金(以下、NIFS-HEAT2と呼ぶ)の製作に成功した¹⁻³⁾。この NIFS-HEAT2は、160kgを超える大型溶解にもからわず、米国で製作された同種の大型溶解^{4,5)}にくらべ、酸素濃度を1/2から1/3の148 (wt ppm)程度まで低減し、Nb等の放射化不純物も大幅に低減された。

一方、核融合炉等の大型構造物の製作には、各種の溶接⁶⁻⁸⁾、セラミックス・金属接合や管材化⁹⁾等の技術開発が必要で、精力的な研究がなされている。

一般に溶接金属は溶融部が急冷硬化しており、従って硬度は上昇するが延性が低下することが知られている。また、この硬化部では溶接に伴う各種の欠陥により、溶接割れなどが生じやすい。本合金においてもレーザー溶接に伴い溶融部の硬化が起こっており、機械的特性の低下が懸念された為、溶接後熱処理による溶接残留応力の低減が必要とされる^{10, 11)}。

そこで本研究においても、最適な溶接後熱処理条件を検討し、熱処理を施した後の内部組織観察および照射実験を行うことにより、より大型構造物の使用環境を模擬した溶接材料の開発を実施した。

2. 実験方法

本研究に用いた試料は、厚さ 4mm の NIFS-HEAT2 の板状試料を1273K (2hr) の真空焼鈍後、YAG レー

*1 九州大学 応用力学研究所

*2 九州大学 総合理工学府 院生

*3 核融合科学研究所

ザーを高純度のアルゴン雰囲気中で試料面に対して垂直に入射する方法 (Bead on plate) により作製 (この Bead on plate 法の詳細については、論文⁸⁾ 参考のこと) した。試料をレーザー照射方向に平行、溶接進行方向に垂直な面に切り出した後、厚さを 0.1 から 0.25mm 程度まで機械研磨により薄くした。電子顕微鏡用の試料は、切断時に侵入した水素除去の目的で 673K (2hr) の焼鈍を真空中で行った後、溶融部 (Weld 部) 中心から HAZ 部、非溶融部へと直径 3mm の円盤試料に打ち抜き作製した。

溶接後、溶融部中心から 1mm の部分のみを切り出し各種不純物元素の分析を行い、溶接前と比較した結果を Table 1 に示す。これより、内部酸素量が 139 から 158 (wt ppm) と僅かに増加するが、溶接に伴う顕著な不純物元素の混入はないことが解る。重イオン照射は九州大学応用化学研究所設置のタンデム型加速器を用い、2.4 MeV の Cu^{2+} イオンを試料面に対して垂直に照射した。照射条件は、低温 (573K) 及び高温 (873K) において 0.75 から 12 dpa までの照射を、照射強度、 5.4×10^{-4} (dpa/s) で行った。

内部組織の観察は、損傷ピーク近傍 (500nm) まで研磨した後、背面研磨法により薄膜化し、透過電子顕微鏡観察を実施した。微小転位ループの型 (格子間原子型あるいは空孔型) 判定には、超高压電子顕微鏡 (HV EM) を用いて、室温にて電子線を照射し決定した。また、超微小硬度計にて損傷ピーク近傍の硬度変化を測定し、ビッカース硬さを算出し、照射前後で比較した。

Table 1 Impurity level of the alloys

	H	C	N	O
Before welding	29	51	123	139
Weld metal	35	49	129	158

(wt ppm)

3. 実験結果及び考察

3.1 溶接後熱処理の必要性について

Fig.1, Fig.2 に溶接材、非溶接材に対して真空中で 873K 及び 973K で 1hr から 3000hr までの熱処理を行ない、ビッカース硬さ試験およびシャルピー衝撃試験を行った結果を示す¹⁰⁾。また、Fig.3 に 873K での熱処理を実施した後、電子顕微鏡により溶融部での内部組織の熱処理時間依存性を示す。詳細な観察の結果、熱処理時間が 1hr から 10hr で既に微細な $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が高密度に形成され、これに伴いビッカース硬さが上昇していることが分かる。一方、100hr 以上の熱処理を実

施すると、板状の $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が成長・集合化 (島状) して、ビッカース硬さ及びシャルピー衝撃特性が回復する。以上の結果より、本溶接材料における最適熱処理条件は、板状 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が成長・集合化が不可欠であることが分かった。この板状 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物の成長・集合化が熱処理温度とも密接な関連があるが、873K では 1000hr 程度である。

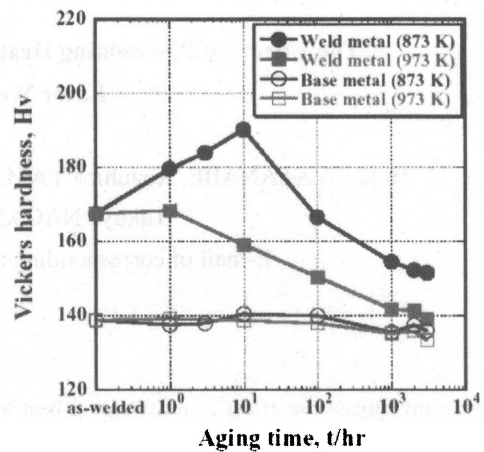


Fig. 1 Aging time dependence of Vickers hardness

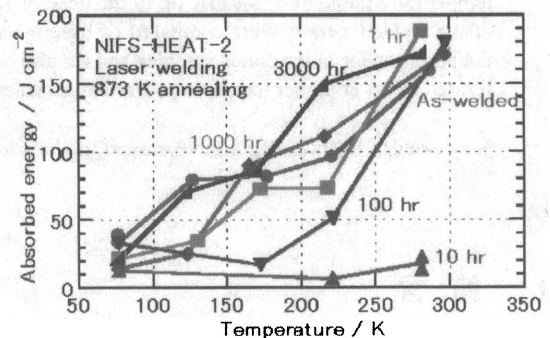


Fig. 2 Annealing temp. dependence of absorbed energy

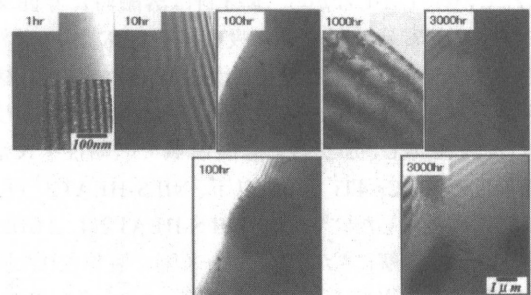


Fig. 3 Annealing time dependence of microstructure

Fig.4に、873K, 1000hr の熱処理を行った溶融部中心、及びこの場所から 5mm、10mm (母材に対応) 離れた箇所では詳細な内部組織観察を行った結果を示す。溶融部においてのみ $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が集合して島状に

析出しているのが観察され、この結果は Fig.3 と一致した。また、5mm, 10mm 離れた試料では 1000hr の熱処理前にも観察された塊状の $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が観察された。Fig.4 の溶融部中に示した暗視野像は電子線回折図の析出物からのストリークで結像したものであり、島状に析出したものが、 $\langle 100 \rangle$ 方向に成長した $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物であることが示された。Fig.5 にさらに高倍で観察した結果を示す。溶融部では島状に析出している領域 ($\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 集合部) と析出の無い領域 (非集合部) に分けて観察を行った。 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物集合部では、板状の $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ が高密度に析出しているのに対し、非集合部では析出は観察されない。一方、5mm, 10mm 離れた試料では微細な $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物が観察された。

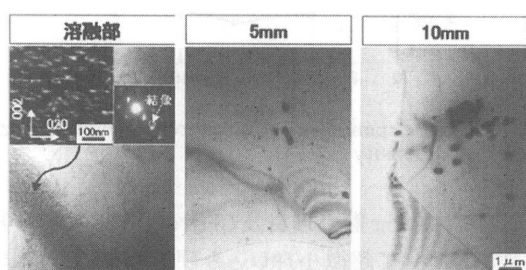


Fig. 4 Microstructure of annealed samples at 873K for 1000hr (low magnification)

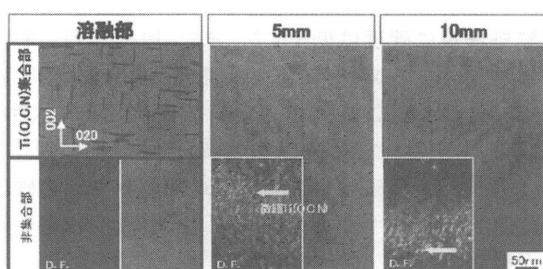


Fig. 5 Same as fig.4 (higher magnification)

3.2 低温 (573K) における照射効果

Fig.6 に 1000hr の熱処理後の溶融部に 573K で重イオン照射実験後を行い、内部組織を観察した結果を、Fig.7 に比較の為、中心より 10mm (母材に対応) における 573K での重イオン照射実験後の内部組織観察結果を示す。Fig.6 に示す様に、溶融部では $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 析出物の集合部と非集合部を区別して示している。

溶融部では照射後、いずれもドット状の微小欠陥集合体が高密度に形成された。0.75dpa 照射により形成された微小欠陥集合体の数密度は、 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 集合部: $4.1 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$, 非集合部: $3.5 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$, 1000hr 熱処理のない試料: $4.7 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$ であり、非集合部において微小欠陥の形成が抑制される傾向が見られた。7.5dpa 照射後の微小欠陥集合体数密度は、 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 集合部:

$8.4 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$, 非集合部: $9.8 \times 10^{22} \text{m}^{-3}$, 1000hr 熱処理のない試料: $1.0 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$ であり、 $\text{Ti}(\text{O}, \text{C}, \text{N})$ 集合部において微小欠陥の形成が抑制された。

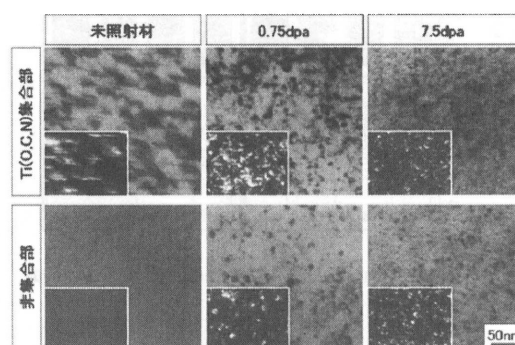


Fig. 6 Microstructure of irradiated sample (Weld metal, 573K)

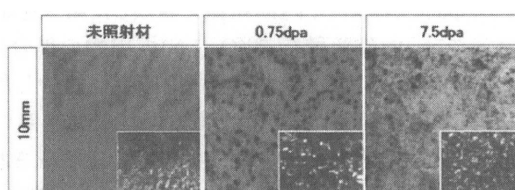


Fig. 7 Microstructure of irradiated sample (Base metal, 573K)

一方、溶融部より 10mm 離れた試料において、溶融部と同様にドット状の微小欠陥集合体が高密度に観察された。0.75dpa 照射後の微小欠陥数密度における熱処理の有無による有意な差は見られなかったが、7.5dpa 照射後の微小欠陥数密度は、熱処理あり: $1.2 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$, 熱処理なし: $1.0 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$ であり、熱処理による微小欠陥集合体形成が促進された。

Fig.8 に 1000hr 熱処理後の溶融部及び溶融部から 10mm に場所における 573K での重イオン照射実験後の超微小押し込み硬さ試験結果を示す。図では比較の為、溶接後の熱処理を行っていない試料の硬度測定結果も合わせて示している。溶融部では照射量の増加に伴い硬度の上昇が見られた。7.5dpa 照射後には、ビッカース硬さが 400 程度まで上昇しており、熱処理を行う前の 2 倍近くの硬度を示すことが明らかになった。また、溶融部より 10mm 離れた試料では、熱処理による硬化が顕著に示され、0.75dpa 照射後にはわずかな硬度の低下が見られた。しかし、7.5dpa 照射後はビッカース硬さ 400 近くまで硬化しており、溶融部と同程度の硬度を示すことが明らかとなった。

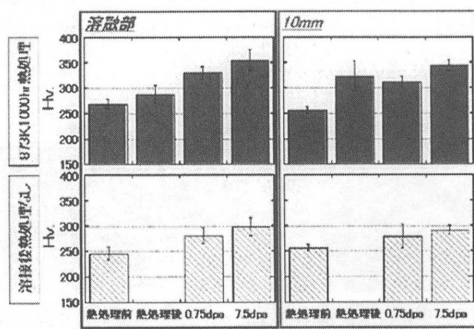


Fig. 8 Radiation induced hardness in weld metal and base metal (573K)

3.3 高温(873K)における照射効果

Fig.9 に 1000hr 熱処理後の溶融部に 873K で重イオンを 12dpa まで照射し、内部組織を観察した結果を示す。溶融部では、内部組織を Ti(O,C,N)析出物の集合した部分と非集合部に区別して行った。島状に集合した部分では、Ti(O,C,N)析出物は、照射量の増加に伴い数密度は一旦減少する。12dpa では新たに形成される Ti(O,C,N)析出物と集合、合体を繰り返したと予測され、比較的大きく成長した Ti(O,C,N)析出物が観察されている。一方、非集合部では、照射による板状の Ti(O,C,N)析出物の形成は、4dpa 程度まで抑制された。4dpa でわずかに形成された Ti(O,C,N)析出物は、照射量の増加に伴い成長し、数密度も増加した。溶融部から 5mm, 10mm の各試料では、0.75dpa 照射により板状の Ti(O,C,N)析出物が形成され、照射量の増加に伴い成長・粗大化した。いずれの試料においても、照射について、ほぼ単調にサイズは増加し、粗大化の傾向を示した。

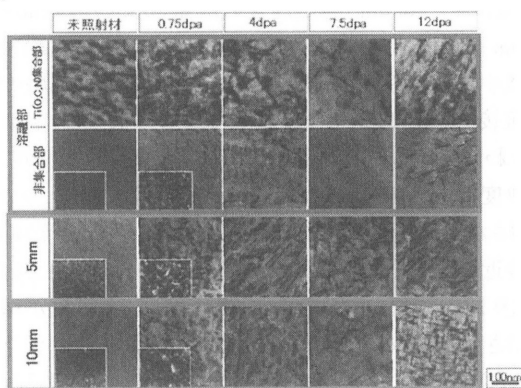


Fig. 9 Microstructure of irradiated sample at 873K

Fig.10 に Ti(O,C,N)析出物数密度及びサイズの照射量依存性をプロットした結果を示す。各試料の数密度を比較すると、特に溶融部の非集合部において Ti(O,C,N)析出物の形成、数密度の増加が抑制されていることが示された。しかし 12dpa 照射では、集合部、

5mm, 10mm とほぼ同一組織が観察され、本実験においても、照射雰囲気(真空)からの酸素等の不純物の混入が示唆する結果が得られた。

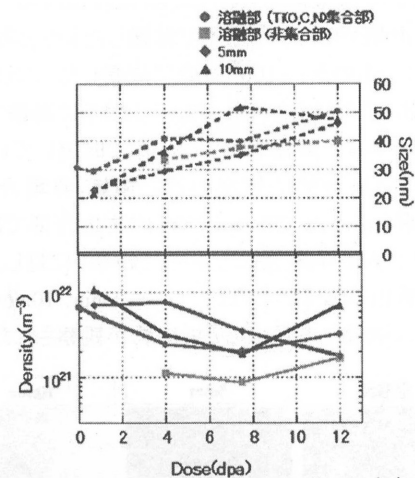


Fig. 10 Dose dependence of measured precipitate size and density

Fig.11 に 1000hr 熱処理材及びそれを 873K にて照射した試料について超微小押し込み硬さ試験を行った結果を示す。溶融部(図上段)、5mm(図中段)、10mm(図下段)において溶接前、溶接後、1000hr 熱処理後及びその照射試料の硬度測定結果を示している。溶融部では熱処理後に硬度は低下した。また、照射試料においては、4dpa までの照射領域で硬度の上昇を抑制している。5mm, 10mm においては 1000hr の熱処理後に大きな硬度上昇が見られ、照射量の増加に伴いさらに硬化した。溶融部及び 5mm, 10mm における照射試料の硬度を比較すると、いずれの照射量においても溶融部で硬化が抑制されたことが示された。

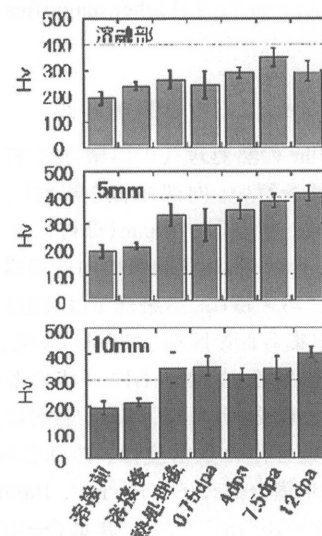


Fig. 11 Radiation induced hardness at 873K

3.4 照射組織に与える溶接後熱処理の影響

溶接後熱処理条件の最適化と内部組織とは密接な関連があり、溶接後熱処理条件の最適化には、Ti(O,C,N)析出物が島状に集合することが不可欠である。既に明らかになっている内部組織の熱処理温度依存性より、低温での熱処理では、均一な微小Ti(O,C,N)析出物が形成されが、温度の上昇とともに島状析出物が形成される。従って、島状析出物の形成により、マトリクス中に均一に存在していた不純物元素(特に酸素)の集積が起こり、島状に析出していない領域では、不純物の純化が期待される。このときの模式図を、Fig.12 に示す。また、この島状の集合体は、溶融部だけに観察され、レーザー溶接中に強制的に固溶したチタンが長時間の熱処理により析出した結果と考えられる。従って、照射環境下ではこの熱処理により形成された島状組織の照射環境下での安定性が今後の課題となる。

Fig.13 に TEM-EDS を用いた島状組織のチタン濃度の変化を測定した結果を示す。(a)照射前、(b)873K、12dpa イオン照射後の島状組織について測定を行った結果である。照射前の島状組織のチタン濃度は6wt%程度であり、マトリクスの濃度よりも2%程度濃化していることが示された。12dpa 照射後には島状組織のチタン濃度変化が緩やかになったことから、照射による溶質原子(チタン)の再分配が進行したことが示された。以上の結果より、島状の析出が溶質原子であるチタンの偏析によって生じたものであることが明らかになった。

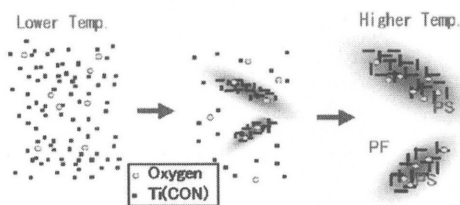


Fig. 12 Schematic view of Ti(CON) formation due to annealing at various temperatures

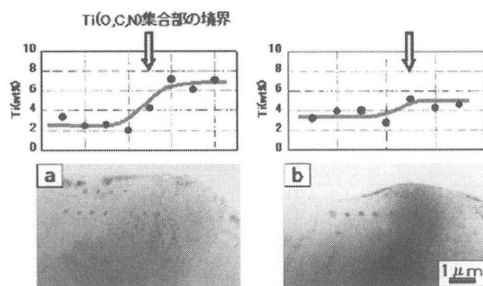


Fig. 13 Measured Ti concentration of specimens (a) before irradiation (b) after irradiation at 873K

4. ま と め

レーザー溶接されたNIFS-HEAT2の溶接後の熱処理を真空中で実施し、銅イオン照射前後の組織観察並びに硬度測定から、以下のことが明らかにされた。

- 1) 溶接後熱処理条件の最適化と内部組織とは密接な関連があり、Ti(O,C,N)析出物が島状に集合した組織が観察されることが不可欠である。
- 2) この島状の集合体は、溶融部だけに観察され、溶融中に強制的に固溶したチタンの分布状態と密接に関連していると考えられる。
- 3) 熱処理後の試料をイオン照射して観察した結果、溶融部の析出物が集合していない領域(非集合部)において Ti(O,C,N)析出物の形成、数密度の増加が抑制されていることが示されたが、照射量の増加に伴い、熱処理の影響が減少した。
- 4) 高照射領域において、熱処理の影響が減少する理由として、真空雰囲気からの酸素の混入が挙げられる。

謝辞

本研究は、平成 15-17 年度文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(C)代表者渡辺英雄)並びに核融合科学研究所一般共同研究(平成 17 年度)により行われたものであることを記す。

参考文献

- 1) T. Muroga, T. Nagasaka, A. Iyoshi, A. Kawabata, S. Sakurai and M. Sakata, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 711.
- 2) T. Muroga, T. Nagasaka, K. Abe, V. M. Chernov, H. Matsui D. L. Smith, Z. -Y. Xu and S. J. Zinkle, J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 547.
- 3) T. Nagasaka, Nam-Jin Heo, T. Muroga, M. Imamura, Fusion Engineering and Design, 61-62 (2002) 757-762
- 4) W. R. Johnson, J. P. Smith, J. Nucl. Mater. 256-263 (1998) 1425.
- 5) D. L. Smith, J. Konys, T. Muroga, V. Evtikhin, J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 1314.
- 6) T. Nagasaka, T. Muroga, M. L. Grossbeck, T. Yamamoto, J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 1595.
- 7) T. Nagasaka, M. L. Grossbeck, T. Muroga, J. F. King, Fusion Technology, 39 (2001) 664.
- 8) Nam-Jin Heo, T. Nagasaka, T. Muroga, A. Nishimura, K. Sinozaki and H. Watanabe, Fusion Science and Technology, 44 (2003) 470.

- 9) T. Nagasaka, T. Muroga, T. Iikubo, Fusion Science and Technology, 44 (2003) 465.
- 10) T. Nagasaka, NAM-Jin Heo, T. Muroga, A. Nishimura, H. Watanabe, M. Narui, K. Suzuki, J. Nucl. Mater. 329-333 (2004) 420-424
- 11) T. Nagasaka, T. Muroga, H. Watanabe, K. Yamasaki, NAM-Jin Heo, K. Shinozaki, M. Narui, Material Transactions, Vol.46, No.3 (2005) pp.498-502