

## VPS-タングステン被覆低放射化フェライト・マルテンサイト鋼の耐熱負荷特性改良に向けた検討

徳永, 知倫  
九州大学大学院総合理工学府

渡辺, 英雄  
九州大学応用力学研究所

吉田, 直亮  
九州大学応用力学研究所

長坂, 琢也  
核融合科学研究所

他

<https://doi.org/10.15017/27101>

---

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 139, pp.153-157, 2010-09. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

# VPS-タングステン被覆低放射化フェライト・マルテンサイト鋼の耐熱負荷特性改良に向けた検討

徳永知倫<sup>\*1</sup> 渡辺英雄<sup>\*2</sup> 吉田直亮<sup>\*2</sup> 長坂琢也<sup>\*3</sup> 笠田竜太<sup>\*4</sup>  
時谷政行<sup>\*3</sup> 光原昌寿<sup>\*1</sup> 中島英治<sup>\*1</sup> 増崎貴<sup>\*3</sup> 高島剛<sup>\*5</sup>  
黒木信義<sup>\*5</sup> 江里幸一郎<sup>\*6</sup> 鈴木哲<sup>\*6</sup> 秋場真人<sup>\*6</sup>

(2010年7月30日受理)

## Study on Improvement of Heat Load Characteristic of Tungsten Coated F82H Ferritic/Martensitic Steel

Tomonori TOKUNAGA, Hideo WATANABE, Naoaki YOSHIDA, Takuya NAGASAKA, Ryuta KASADA  
Masayuki TOKITANI, Masatoshi MITSUHARA, Hideharu NAKASHIMA, Suguru MASUZAKI,  
Takeshi TAKABATAKE, Nobuyoshi KUROKI, Koichiro EZATO, Satoshi SUZUKI, Masato AKIBA

E-mail of corresponding author: [tokunori@riam.kyushu-u.ac.jp](mailto:tokunori@riam.kyushu-u.ac.jp)

### Abstract

Resistance for repetitive pulse heat load and vacuum properties of F82H steel protected by plasma-sprayed W, which is being developed as advanced plasma facing armor material for fusion reactors, was experimentally examined. Microscopic observation of the sprayed W by means of EBSD and SEM revealed that deposition of large spherical particles of un-melted and/or re-solidified W ejected from the plasma gun prevent good interlayer adhesion in the sprayed W. It was experimentally shown that the number of the spherical particles will be minimized by optimizing the power of the gun and the distance between the plasma gun and the substrates. In order to reduce large retention of residual gas pre-annealing in vacuum above 450K is necessary.

**Key words:** *vacuum plasma spraying, tungsten, F82H,*

## 1. 緒言

核融合炉の第一壁は激しいヘリウム(He)や水素同位体による粒子負荷に加えて、高い熱負荷に耐える必要がある[1]。そのため、第一壁構造材料の有力な候補材として検討されている低放射化フェライト・マルテンサイト鋼(F82H)を用いる場合、第一壁のプラズマ対向面は耐損耗性・耐熱負荷特性に優れたタングステンで被覆し、表面を保護する必要がある。

タングステン被覆方法の一つである減圧プラズマ溶射(VPS)法は、厚い膜を広範に被覆することに適しており、大気圧プラズマ溶射法(APS)に比べて良好な基本的特性を有することが知られている[2]。成膜時に基材温度を高くすることが出来るカーボンへ成膜した試料は柱状の結晶粒が大きく、耐熱負荷特性の高い皮膜層を

形成していることから、VPS法において品質の優れた膜を作製するためには溶射中の基板温度を高く保持することが効果的であると考えられる[3]。しかし、F82Hは約1073 K以上で相変態をしてしまうため、基盤温度をこの温度以上に上げることは好ましくない[4]。

そこで本研究ではVPS法によって種々の条件で被覆したW/F82H被覆材の熱負荷試験を行い耐熱負荷特性とW被覆層の微視的な組織変化を検証することによって核融合実験炉の第一壁に使用可能な高い熱負荷特性を有するタングステン被覆材の製造技術指針を得ることを目的とした。

また、プラズマ対向面をVPS-Wで被覆した場合の水素同位体に対する振る舞いを検証するため、重水素イオンを注入してTDSによる吸蔵、放出特性等を評価した。

## 2. 実験方法

### 2.1 VPS被覆材作製

\*1 九州大学 総合理工学府

\*2 九州大学 応用力学研究所

\*3 核融合科学研究所

\*4 京都大学 エネルギー理工学研究所

\*5 トーカロ株式会社

\*6 日本原子力研究開発機構

減圧したチャンバー内に設置した F82H 基板 (50 mm×50 mm×3, 5mmt)を、表面温度が 873 K になるまで、ガンから噴出されるプラズマジェットによって温度上昇させた。基板表面温度上昇後、平均粒径 17  $\mu\text{m}$  のタングステン粉末をガンからプラズマジェットに送り込み、ガンを走査しながら複数回吹き付けることで厚さ 1 mm のタングステン層を被覆した。Fig.1 に溶射前後の試料の外観を示す。成膜後の W 被覆層は目立ったクラックは無く、膜厚もほぼ均一に成膜されていた。

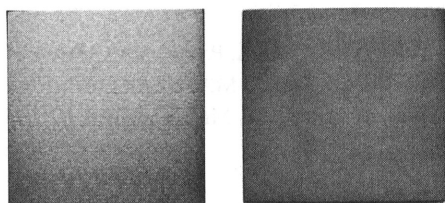


Fig.1 Before (left) and after (right) spraying.

## 2.2 熱負荷実験

熱負荷試験は核融合科学研究所の電子ビームを用いた熱負荷試験装置 ACT[5]を用いて行った。Fig.2 に電子ビーム照射の設置の概略図を示す。ヒートシンクに機械的に固定した試料のタングステン被覆面に 20 mm×20 mm の電子線をパルス的に繰り返し照射することにより試料に熱負荷を与えた。熱負荷後の試料表面や断面の組織や残留歪量を、方位像顕微鏡 (EBSD) や光学顕微鏡、SEM、TEM を用いて調べることで繰り返し熱負荷によって発生する被覆材の微視的な変化を調べた。

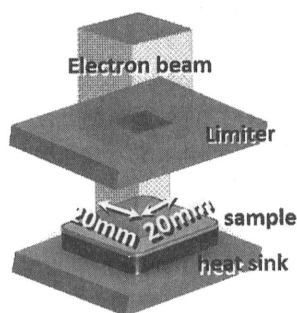


Fig.2 Overview of heat load test.

## 2.3 水素同位体保持放出特性評価

基材から剥離した VPS-W 表面を湿式研磨後、873K で脱ガスを行った。この試料に重水素イオンを 2 keV で

$1 \times 10^{21}$  ions/ $\text{m}^2$  注入後、TDS を用いて重水素の吸蔵・放出特性を評価した。

## 3. 実験結果及び考察

### 3.1 W 被覆 F82H 断面観察結果

Fig.3 に基板温度を 873 K に制御して成膜した試料の光学顕微鏡、SEM および EBSD を用いた断面観察結果を示す。光学顕微鏡写真に見られるように光を乱反射し白く光る空隙が多数形成されているが、これは試料を切断・研磨した際に W 粒が剥落した部位であり、密着性の悪い W 粒が多いことを示唆している。SEM 観察により F82H 界面や W 層内部で破断やクラックが形成されていないことが確認された。一方、EBSD による組織観察から、W 層は約 15  $\mu\text{m}$  の丸い結晶粒と、1  $\mu\text{m}$  以下の微細結晶粒および長さ数  $\mu\text{m}$  の柱状結晶粒によって構成されており、各結晶粒内には溶射時に導入されたと思われる大きな歪が残留していることがわかった。また、界面近傍の F82H は結晶粒が微細化しており、強い残留歪が確認された。

また、製膜条件が異なるため、W 層にマイクロクラックが形成された試料の W 被覆層断面を EBSD で観察したところ、残留歪が小さかった。これはクラック近傍の W 粒が周りの粒に拘束されなくなり、溶射中の温度上昇によって転位が回復したためと考えられる。このことから Fig.3 に示す強く歪んだ W 組織は、溶射中に細かなクラックが形成されていないということが推察され SEM による観察結果とも一致する。

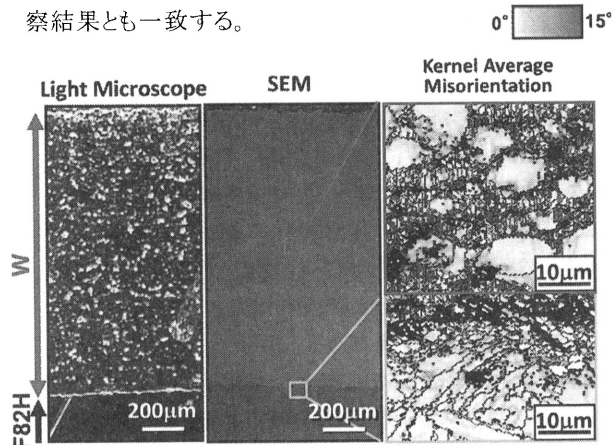


Fig.3 Micrograph of cross section of VPS-W which coated at the temperature of 873K.

### 3.2 熱負荷実験結果

Fig.4 に 5 mm 厚の F82H に W を成膜した試料と 3 mm 厚の F82H に成膜した試料に、各熱負荷を与えたときの

試料表面とヒートシンクの温度の測定結果を示す。また、網掛けしている部位は、熱負荷後にクラックが形成されていなかった試料の範囲を示している。この温度測定結果から、試料表面温度の近似線を引くと、F82H の厚みに関係なくほぼ傾きは同じであった。また、F82H を 5 mm 厚から 3 mm 厚に薄くしたことで、表面温度は約 33K 低下し、耐熱負荷特性 1.2 MW/m<sup>2</sup> 上昇した。また、いずれの試料においてもクラックが発生する表面温度が 1050 K 程度まで上昇しており、この溶射条件で成膜した W 皮膜層は、熱負荷時の表面温度が 1050 K 以上になることが破断の起こる目安になることがわかった。

Fig.5 に熱負荷実験を行った後の試料(F82H 5 mm 厚)の W 被覆層断面観察結果を示す。4.8 MW/m<sup>2</sup> 以下の熱負荷であれば 100 サイクルでも組織に大きな変化はみられなかった。一方 5.5 MW/m<sup>2</sup> 以上の熱負荷では低サイクルで W 層に破断が形成され、更に計 50 サイクルの熱負荷を与えるとクラックの伸長と W 微細組織で粒成長が確認された。これは早い段階でマイクロクラックが発生し熱伝導率が低下したことで、W 被覆層の温度が上昇し粒成長が起こる温度域まで上昇したためと考えられる。

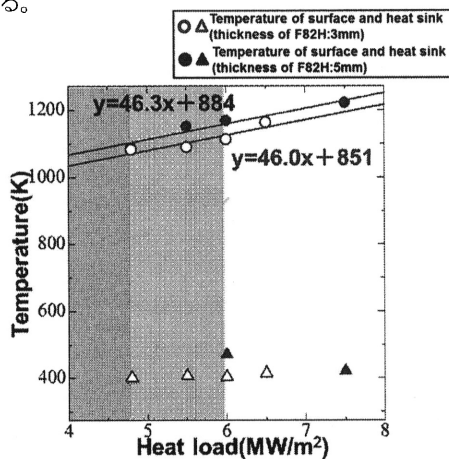


Fig.4 Surface temperature at each heat loading.

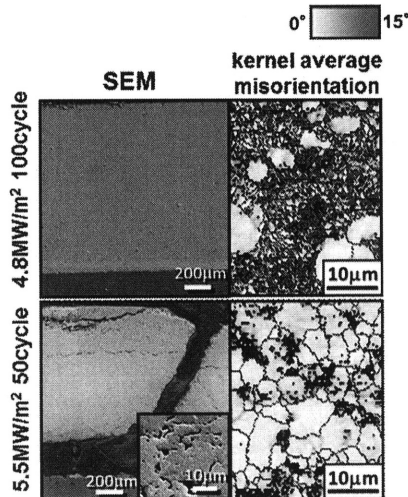


Fig.5 SEM and EBSD image of cross section of VPS-W after heat load test.

### 3.3 結晶性の改善 新たな成膜条件で成膜した W 組織観察結果

溶射する際に基材とガンの距離を近づけて成膜した試料を SEM と EBSD で解析した観察結果を Fig.6 に示す。SEM 写真に見られるようにこの成膜条件では、W 層全面にマイクロクラックが形成されており、W 層内部には破断もみられた。また、EBSD のインパース・ポール図に見られるように従来の溶射条件で作製した W 皮膜組織と比較して、再凝固状態で堆積したと思われる球状の粒子が減少していた。また、球状の再凝固粒が多い層と、柱状粒が多い層は交互に積層しており、W 内部で破断している部位は再凝固状態で堆積した粒が多い部位であることが分かった。この結果は、溶射の際に、溶融した状態で堆積する粒の割合が多い時と、凝固した状態で堆積する粒の割合が多い時が繰り返したことを示唆するものである。また更に、SEM 画像と詳細に比較すると、球状粒の近傍や微細粒が多い組織ではマイクロクラックが多いのに対し、柱状粒が多い部位では少ないことがわかった。よって、長く大きな柱状粒が高い耐熱負荷特性を有していることがわかった。

さらに、溶射距離が短い成膜条件で成膜した W 皮膜に 2 種類の層が形成された原因として、溶射中の W 粉末は Fig.7 に示すように、プラズマジェットのフレーム中心付近を通って溶融状態を長い時間維持し、溶融したまま製膜面に到達した粒と、フレーム中心から遠い部位を通過して、長い時間溶融状態を維持できず、製膜面に到達するまでに凝固してしまった粒があると考えられる。そして、この W 粒の偏りのため、ガンの走査によって、溶融粒と再凝固粒が別々に積層していったと思われる。また、これまでの成膜条件で作製した W 皮膜に再凝固状態の W 粒が多かったのは、溶射距離が長い場合、プラズマジェットによって溶融した状態を維持することが出来ない粒の割合が多かったからと考えられる。

Fig.8 に溶射時に熱負荷量を増やした条件で成膜した W 層の TEM 観察結果を示す。写真より薄く溶け広がった厚み 1 µm 程度の W 粒が積層している様子がわかる。下地と密着して堆積した W 粒は、下の粒の結晶方位を引継ぎ、より長い柱状結晶粒となるのに対し、密着性の悪い結晶粒は下地の結晶方位が反映できず、ランダムな方位を持つ微細粒になっている。これらの結果から、は機械的特性が高く、空隙の一因となる未溶融粒を減少させることで、溶融した状態で堆積する粒によって柱状粒を形成する確率を高め、粒をまたいで成長した柱状の組織を増やすことと、溶射中の温度変化による応力を減少させることにより耐熱負荷特性の高い皮膜を成膜出来ることがわかった。

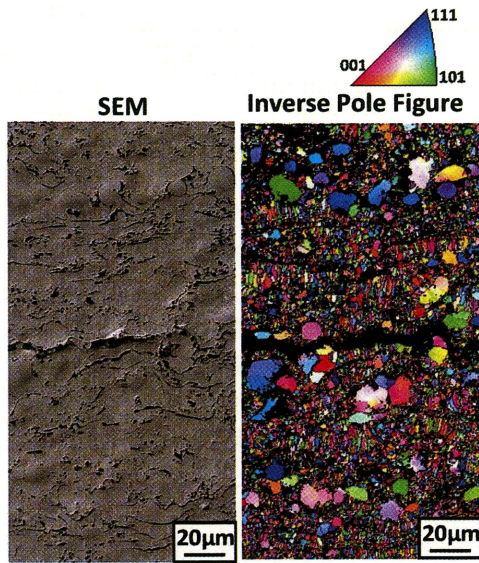


Fig.6 SEM and EBSD image of cross section of VPS-W which changed the spray distance.

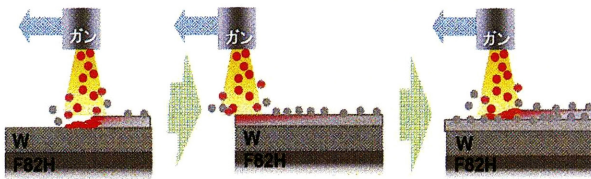


Fig.7 The mimetic diagram at the time of production of VPS-W.

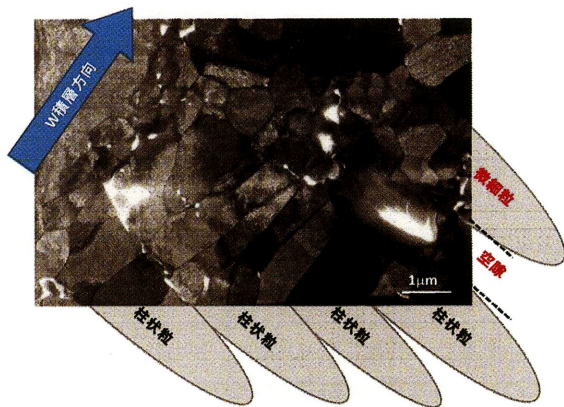


Fig.8 TEM image of cross section of VPS-W which changed the plasma spraying method.

### 3.2 水素同位体保持・放出特性

Fig.9 に試料を湿式研磨後の試料で TDS 測定を行った結果を示す。この結果より、C と思われる質量数 12 と、

H<sub>2</sub>O と思われる質量数 18 は異なる放出挙動を示していることがわかる。また、質量数 18 は 450 K 付近から脱離量が減少傾向であるのに対し、質量数 12 は更に増える兆候がみられ、系内の真空度も急激に低下していた。これは、VPS-W 内部のマイクロクラックによる比表面積の増加によって、湿式研磨後の洗浄の際に水とアセトンが吸着したことが要因と考えられる。特に質量数 12 は約 1100 K まで放出ピークが存在し、高い温度まで炭化水素の起きることが示唆された。これらの結果より第一壁に VPS 被覆材を用いる際には、被覆材を有機溶媒で洗浄することを避け、予め 450K 以上の高温でガス出し処理を行う必要があることを示している。

Fig.10 に VPS-W に重水素イオンを注入後、TDS によって吸蔵放出特性を測定した結果を示す。質量数 4 の D<sub>2</sub> は 800 K および 1050 K の高温域でブロードな放出ピークがみられた。また DH を含む質量数 3 は 900 K と 1050 K でブロードな放出ピークがみられた。それに対し、欠陥が少ない再結晶 W に重水素イオンを注入すると、これらの高温での放出ピークは確認できなかった[6]。したがって、VPS-W の中に存在する欠陥がこのような高温までトラップした要因になっていると考えられる。

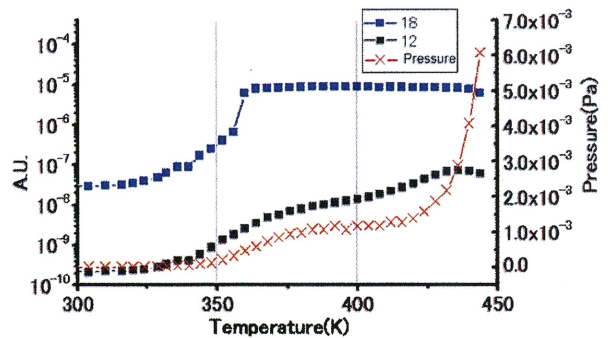


Fig.9 Desorption of mass number 12, 18 from VPS-W.

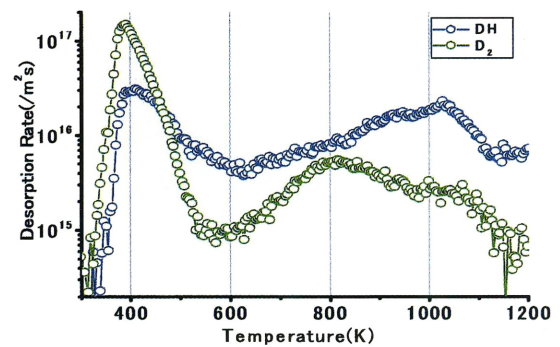


Fig.10 Desorption of D<sub>2</sub> and DH from VPS-W.

#### 4. 結 言

基材温度を約 873 K に保ち成膜した W/F82H は、4.8 MW/m<sup>2</sup> までの熱負荷であれば高サイクルの熱負荷でも耐えることが示唆され、現段階で第一壁が受けると想定されている熱負荷でも耐える事が示唆された。また、F82H の厚みを薄くすることで、耐熱負荷特性が向上する事がわかった。

低い基材温度を維持した状態でより良い W 皮膜を成膜するには、微粉末を溶融した状態で W 基盤まで到達させる事で、長い柱状粒の割合を増やす事が重要であることがわかった。

TDS 測定結果より、VPS-W は温度変化によって、多量の H<sub>2</sub>O や有機溶媒を吸着しており壁材として使用する場合には 450K 以上での十分な脱ガス処理が必要であることがわかった。

#### 5. 参考文献

- [1] N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 266-269 (1999) 197-206.
- [2] Y. Yahiro, M. Mitsuhara, K. Tokunaga, N. Yoshida, et al., J. Nucl. Mater. 386-388 (2009) 784-788.
- [3] Thaddeus B. Massalki, Joanne L. Murray, Lawrence H. Bennett, Hugh Baker: *Binary alloy phase diagrams*, (1986) American society for metals, Vol. 1, p. 822
- [4] K. Tokunaga, T. Matsubara, Y. Miyamoto, Y. Takao, N. Yoshida, et al., J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 1121-1127
- [5] Y. Kubota, S. Noda, A. Sagara, N. Inoue, K. Akaishi, O. Motojima: NIFS-MEMO-013, (1994)
- [6] S. Miyamoto, private communication, (2010), AEES of Kyushu univ.