

## 核融合炉候補オーステナイト鋼・絶縁性セラミックス接合材の微細組織と強度

村田, 恭央

室賀, 健夫  
九州大学応用力学研究所 : 助教授

青野, 泰久  
九州大学応用力学研究所 : 助手

吉田, 直亮  
九州大学応用力学研究所 : 教授

他

<https://doi.org/10.15017/4743905>

---

出版情報 : 応用力学研究所所報. 68, pp. 349-363, 1989-10. 九州大学応用力学研究所  
バージョン :  
権利関係 :



## 核融合炉候補オーステナイト鋼・絶縁性 セラミックス接合材の微細組織と強度

村 田 恭 央\* 室 賀 健 夫<sup>+</sup>  
青 野 泰 久<sup>‡</sup> 吉 田 直 亮<sup>§</sup>  
福 沢 康<sup>||</sup>

### 概 要

金属/セラミックス接合材の核融合炉への適用の可能性を明らかにする目的で、核融合炉候補ステンレス鋼 JPCA と絶縁セラミックス  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$  の接合材を固相拡散法により作製し、強度を測定すると共に、内部組織観察により強度を決定する要因を明らかにした。これに基づき、インサート材や形成反応層を考慮した材料改良の方向を示した。また金属/セラミックス界面近傍の照射により、特徴的な転位ループ形成が観察された。

**Key words:** Metal-ceramics bonding, Austenitic stainless steel, Insulating ceramics, Fusion reactor, Radiation effects

### 1. 緒 言

核融合炉においてセラミックスは第一壁、窓材、絶縁材としての使用の可能性が考えられている<sup>1)</sup>。特に第一壁材として使用する場合は金属材料に比べ一般に次の利点がある。

- ・高融点
- ・低放射化
- ・低原子番号

しかし逆に欠点としては

- ・低熱伝導率
- ・靱性が小さい

\* 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻修士過程（現 鈴木自動車）

<sup>+</sup> 九州大学助教授，応用力学研究所

<sup>‡</sup> 九州大学助手，応用力学研究所

<sup>§</sup> 九州大学教授，応用力学研究所

<sup>||</sup> 長岡技術科学大学助教授，工学部機械系

- ・高価
- ・難加工性

等があげられる。

金属材料と比較してセラミックスは MgO を除いて一般に 1000°C 以下ではほとんど塑性変形を示さず、従ってじん性が小さい。この特徴（脆性）は第一壁においては耐熱衝撃に劣るという欠点をもたらす。その解決策としては、セラミックス自身の破壊強度・熱伝導率の向上、低熱膨張化がまず考えられ、このような特徴を備えた改良セラミックス材の開発が進められている。しかし、金属材料に匹敵する特性を得るのは当分不可能と思われる。

一方、炉構造材は金属材料を用い、表面にセラミックス材の被覆を行うことにより材料、セラミックス両者の欠点を補い合う方法も考えられてきた。その例として各種コーティング技術を用いた表面被覆法があげられる<sup>2)</sup>。しかしコーティング技術の多くは数 10  $\mu\text{m}$  程度の薄膜コーティングであり、炉壁の激しい損耗を考慮すると被覆厚が不十分な場合が多い。これに対し、金属材料に、厚みのあるセラミックス材を接合することができれば、損耗に耐える低原子番号第一壁として利用できる可能性がある。接合においては、セラミックスの最大課題である耐熱衝撃性の向上のため、界面の熱伝導性が良好である事が必要である。この様な目的に対し考えられる接合方法とその特徴、問題点を挙げると以下の様になる。

#### (1) 機械的接合

ネジなどで機械的に止める接合法である。加工ができさえすればどんな材料にも適用できるが、応力及び熱の集中を考慮した接合部分の設計と精密加工が必要である。密着していないので熱伝導性はあまり良好でない。

#### (2) 接着剤

有機系と無機系のものがあり、有機系のは耐熱温度は高々 200 度であり核融合炉で予想される高温での使用は期待できない。無機系は、硬化温度より高い耐熱性があるのが特徴で 2000°C にも及ぶものもあるが、概して接合強度は低い。

#### (3) ろう付け

簡単に接合できて気密性も良いが接合強度は 10~100 MPa 程度である。核融合炉実験装置ではこの接合が多い。主なものに Mo, Mo-Mn 等をセラミックスに塗布して高温に加熱し、表面を金属化させてからろう材で接合するメタライジング法<sup>3)</sup>、Ti, Zr 等の活性金属を含むろうで接合する方法<sup>4)</sup>、酸化物ろうで接合する方法<sup>5)</sup> などがある。

#### (4) 拡散接合

高温で加熱しながら圧力を加えて拡散によって接合する方法で、反応しやすいもの同士なら直接接合でき<sup>6)</sup>、しにくいものでもセラミックスと反応性のある金属はくを挿入することによって接合できる<sup>6)</sup>。拡散を利用しているので接合強度はろう付けや接着剤などの接合方法に比べて概して大きい。欠点としては接合装置が大がかりになること、接合できる部品の大きさ、形状などが制限されること、加熱による材質の変化等があげられる。

#### (5) 融接

レーザーなどの高密度熱源によって溶かして接合するものである<sup>7)</sup>。

接合材を高温で使用したり加熱して接合した場合、どうしても問題になるのは金属とセラミックスの熱膨張差による界面の破壊である。これを防ぐためには熱膨張差の小さい材料を選んだり ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  とコパールがよく用いられる)、間に中間の熱膨張率のものや塑性変形によって歪を緩和するものをいれる必要がある。すなわち物性の傾斜を設ける方法である。また、セラミックスと金属が良くなじむこと (ぬれ性)<sup>8)9)</sup> も必要で、この場合も材料の選択や間に反応性のある金属をいれることが考えられるが、反応して脆弱な反応層ができてしまうとかえって弱くなる<sup>10)</sup>。

核融合炉においては特に、各種放射線照射・熱負荷に耐えるじん性や伝熱性、窓材などにおいては加えて気密性が要求される。従って一般に、(3) のろう材か (4) の拡散接合が適当であると考えられる。構造荷重や熱応力が付加されるところでは強度の大きい拡散接合が最も適している。

これまで金属-セラミックスの拡散接合において様々な研究がなされてきた。その中で有名なのが高分解能電子顕微鏡で撮った  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$  接合材界面の格子像の写真<sup>11)</sup> であろう。この写真をみると界面が反応層をつくらないで接合していることがよくわかる。この例のように電子顕微鏡等の組織観察の手段の発達や、EDS, EPMA 等の分析技術の進歩によって接合についての組織からの情報がかなり詳しく得られるようになった。また、接合強度向上のための接合条件 (温度、圧力、時間など) の最適化<sup>10)12)</sup>、残留応力の計算機シミュレーション<sup>13)</sup> などの研究も行われている。しかし、金属/セラミックスの接合においてはまだまだ経験的要素が多く、どの金属とどのセラミックスがよく接合するかということは、試行錯誤の繰り返しのような状況で系統的なものが少ない。また核融合炉への適用を目的とした研究も少ない。特に、現在核融合炉候補として挙げられている材料はこの様な接合性を考慮して設計されたわけではないので、それらが接合材作製においてどの様な問題点を持っているか、どの様な改良の可能性があるかを明らかにしておく必要がある。

本研究では金属/セラミックス接合材を核融合炉に使用する可能性を明らかにする目的で、その第一段階として、現在有力な候補材同士を対象とした接合の研究を行った。すなわち、核融合炉候補ステンレス鋼 JPCA<sup>14)</sup> 及び SUS304 鋼と、絶縁材として優れ、データが最も豊富で、次期核融合炉でも使用が検討されている  $\text{Al}_2\text{O}_3$  及び高靱性材料として可能性が期待される部分安定化ジルコニア (PSZ)<sup>15)</sup> を拡散接合で接合し、強度試験、組織観察を行い強度と微細組織、局所組成との関連を調べるとともに、今後の高強度接合材開発の方向を明らかにした。また今後の照射効果の研究の予備実験として、界面の超高圧電子顕微鏡による照射組織変化の観察を行った。

## 2. 実 験

### 2-1. 試料製作

#### a) 試料

接合する材料はセラミックスに東芝セラミックス社製の焼結  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (99.6%純度) と部分安定化ジルコニア (PSZ) を用い、金属には核融合炉第1壁候補材であるオーステナイト系ステンレス鋼 JPCA<sup>14)</sup> 及び SUS304 鋼を用いた。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  はデータが最も豊富で次期核融合炉でも使用が検討されている<sup>16)</sup>。PSZ は

$Y_2O_3$  を添加して立方晶として安定化させたマトリックス中に正方晶析出物が分散したもので、この析出物が正方晶から単斜晶に変態する時に膨張し、crack の破壊エネルギーを吸収するので高い靱性値を示す<sup>15)</sup>。これらの金属、セラミックスは直接には反応しにくいので、酸化物セラミックス ( $Al_2O_3$ ,  $ZrO_2$ ) との接合において高い接合強度が得られている<sup>17)</sup>  $Al-1Mn-2Si$  合金箔を間に挿入した。

#### b) 接合方法

接合材に用いた各材料の寸法は  $Al_2O_3$  ( $20 \times 20 \times 18$  mm),  $ZrO_2$  ( $20 \times 18 \times 11$  mm), JPCA ( $21 \times 21 \times 1$  mm) 各 2 個ずつ,  $Al-1Mn-2Si$  合金箔 ( $21 \times 21 \times 0.2$  mm) 4 枚である。界面に気孔が入るのを防ぐため、接合面はできるだけ鏡面にして密着性を良くする必要がある。セラミックスは接合面をダイヤモンドペーストで  $1 \mu m$  まで研磨した。JPCA はエメリーペーパーで 1000 番まで研磨した後、電解研磨で表面層を取り除いた。 $Al-1Mn-2Si$  合金は圧延後化学研磨を行った。

接合は長岡技術科学大学において行った。接合装置の概略図を図-1 に示す。試料はセラミックスで JPCA をはさみ、その間に  $Al-1Mn-2Si$  合金箔を挿入して接合した。試料上部には均一に圧力かけるためにアルミナ半球が置いてある。接合時にはまず  $0.75$  MPa の圧力をかけ 20 分間で昇温を行った。その後  $620^\circ C$  で 1 時間保持し、荷重を取り除いて炉冷を行った。接合は真空中で行い、拡散ポンプによって  $3 \times 10^{-6}$  Torr  $\sim 7 \times 10^{-6}$  Torr の真空度を保った。

#### c) 曲げ試験片

接合強度評価のため曲げ強度を求めた。曲げ試験片は  $Al_2O_3$  接合材で  $2 \times 3 \times 18$  mm,  $ZrO_2$  接合材で  $2 \times 3 \times 21$  mm になるようにダイヤモンドカッターで切り出し、ダイヤモンドペースト ( $9 \mu m$ ,  $4 \mu m$ ,  $1 \mu m$ ) で底面のみ  $1 \mu m$  まで研磨し、他の面は  $4 \mu m$  まで研磨した。 $Al-1Mn-2Si$  合金は特に柔らかいの

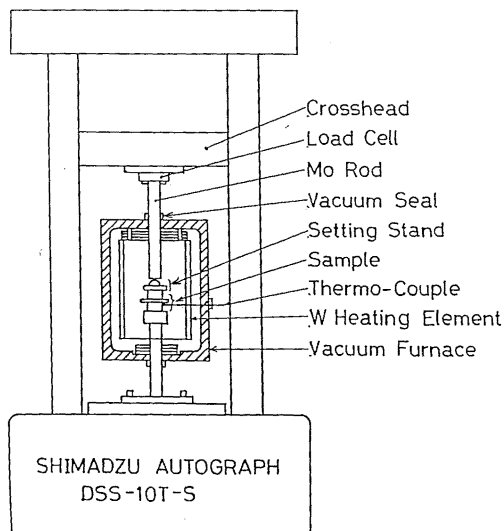


図-1 接合装置

でかなり低速で研磨を行った。

#### d) TEM 観察用試料

TEM によって接合材の界面組織を観察するための試料は以下の順で作製した。

まず、接合材をダイヤモンドカッターで約 0.7 mm 厚の薄板に切断する。それを、ダイヤモンドスラリーを適宜加えながら、スラードリルで、観察したい界面が中心にくるように、3 mm の disc に切り出す。

その後、試料面が平行になるように 0.2 mm 厚までエメリーペーパーで研磨する。さらに、ディンブラーでダイヤモンドスラリーを加えながら 10~20  $\mu\text{m}$  厚になるまで削る。この場合、ディンブリング時間の短縮と接合面積を大きく保つために両面から削った。その後、加速電圧 5 keV、電流 1 mA、20° に傾けて Ar イオンを照射しミリングを行った。このとき、金属とセラミックスではスパッタリング率が金属の方が大きいので、そのまま研磨すると界面部に段差ができて良好な試料とならない。そこで金属側に試料と同時に回転する半円筒のしゃへい物を置き、試料ホルダーを回転させるときにセラミックス側からのみビームが当たるようにした。こうすることによって、界面近傍金属は常にセラミックスの陰側になりセラミックスと同時に削れていくので段差が生じない。界面まで研磨されたかどうかは SEM によって確認した。最後に TEM 観察中に試料が帯電しないように片面に C 蒸着を行った。また、全工程において試料を壊さないように（特にイオンミリングが終わってからの薄い部分）細心の注意を払った。

## 2-2. 強度試験

曲げ試験には接合部に一定の曲げモーメントがかかるように 4 点曲げ試験を採用した。4 点曲げ強度は材料力学より<sup>18)</sup>

$$\sigma = \frac{3P(L-l)}{2wt^2}$$

$P$  : 荷重

$w$  : 幅

$t$  : 高さ

$L$  : 下部スパン

$l$  : 上部スパン

から求めた。

さらに接合に用いた  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$  セラミックスの曲げ強度も 3 点曲げ試験によって算出し、接合材と比較した。研磨条件は上記の接合材と同じで試験片の大きさは  $2 \times 1.5 \times 20$  mm である。接合材の時と違って 3 点曲げ試験を行ったが、試験法の差は強度評価値に影響しない事が確かめられている。

4 点曲げ試験及び 3 点曲げ試験の条件を図-2 に示す。4 点曲げ試験においては各試料寸法、試料条件 ( $l$ ,  $L$ ) の相違により、また 3 点曲げ試験と同一の歪速度  $\dot{\epsilon} = 6.0 \times 10^{-5}/\text{s}$  を得るため

$$\dot{\epsilon} = \frac{6lV}{L^2 - 2l^2 + Ll}$$

の式を用いてクロスヘッドスピード、 $V$  を変動させた。

## 4点曲げ試験（接合材）

$$\sigma = \frac{3 P (L - l)}{2 w t^2}$$

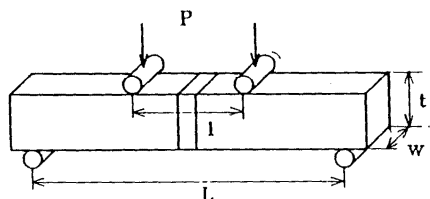
P : 荷重

w : 幅

t : 高さ

L : 下部スパン

l : 上部スパン

 $\delta V$  : クロスヘッドスピード

|                                    | t (mm) | w (mm) | L (mm) | $\delta V$ (mm/min) |
|------------------------------------|--------|--------|--------|---------------------|
| ZrO <sub>2</sub> 接合材               | 3      | 2      | 18     | 0.12                |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 接合材 | 3      | 2      | 16     | 0.084               |

## 3点曲げ試験（セラミックス）

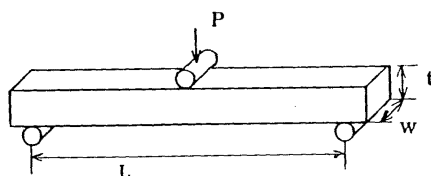
$$\sigma = \frac{3 P L}{2 w t^2}$$

P : 荷重

w : 幅

t : 高さ

L : スパン

 $\delta V$  : クロスヘッドスピード

|                                | t (mm) | w (mm) | L (mm) | $\delta V$ (mm/min) |
|--------------------------------|--------|--------|--------|---------------------|
| ZrO <sub>2</sub>               | 1.5    | 2      | 16     | 0.1                 |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 1.5    | 2      | 16     | 0.1                 |

図-2 接合材及びセラミックスの曲げ条件

研磨した曲げ試験片は SEM 観察のための試料としても用いた。

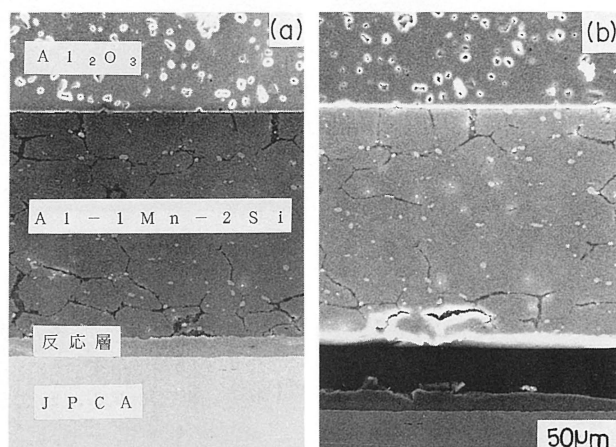
## 2-3. 組織観察

接合材界面の組織観察は 200 kV 透過型電子顕微鏡 (JEM2000FX) 及び走査型電子顕微鏡 (JSM-T330) によって行った。また、界面近傍での成分元素の定量分析を行うために電頭装備されたエネルギー分散型 X 線分光器 (EDS) を用いた。曲げ試験後の破壊した試験片の破面観察も、SEM によって行った。

JPCA/ZrO<sub>2</sub> 接合材の Al-1Mn-2Si 合金/ZrO<sub>2</sub> 界面付近を、超高圧電子顕微鏡内で室温で 1 MeV 電子線照射し ( $2.0 \times 10^{-4}$  dpa/s) 組織変化のその場観察を行った。

表 1 接合材及びセラミックスの曲げ強度 (3~4試料の平均)

| 試 料                                    | 曲げ強度 (MPa) |
|----------------------------------------|------------|
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /JPCA   | 179        |
| ZrO <sub>2</sub> /JPCA                 | 166        |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /SUS304 | 85         |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>         | 262        |
| ZrO <sub>2</sub>                       | 769        |

図-3 曲げ試験を行った Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接合材の組織  
(a) 試験前 (b) 試験後

### 3. 結 果

#### 3-1. 接 合 強 度

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接合材, ZrO<sub>2</sub> 接合材及び各セラミックスの曲げ強度の結果を表-1に示す。接合材の強度は接合相手のセラミックスよりも低くなるが, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub> の強度の大きな差に関わらず, 両接合材ともほぼ同じ強度になっている。ただし SUS316 鋼の場合はかなり強度が低下している。曲げ試験の時の変位-荷重曲線はセラミックス, 接合材とも直線的に増加して破壊する脆性破壊の様相を示していた。

#### 3-2. SEM による組織観察及び破面観察

曲げ試験を行った Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 接合材の試験前後の組織を図-3に示す。これからわかるように, JPCA と Al-1Mn-2Si 合金の間に 10~20 μm の厚さの反応層ができています。一方セラミックス/金属界面では, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Al-1Mn-2Si 合金界面, ZrO<sub>2</sub>/Al-1Mn-2Si 合金界面とも SEM で見るかぎりには反応層らしきものは見あたらない。そして破壊は反応層もしくは反応層/金属界面で起こっていることがわかる。ZrO<sub>2</sub> 接合材についても同様に反応層もしくは反応層/金属界面で破壊した。

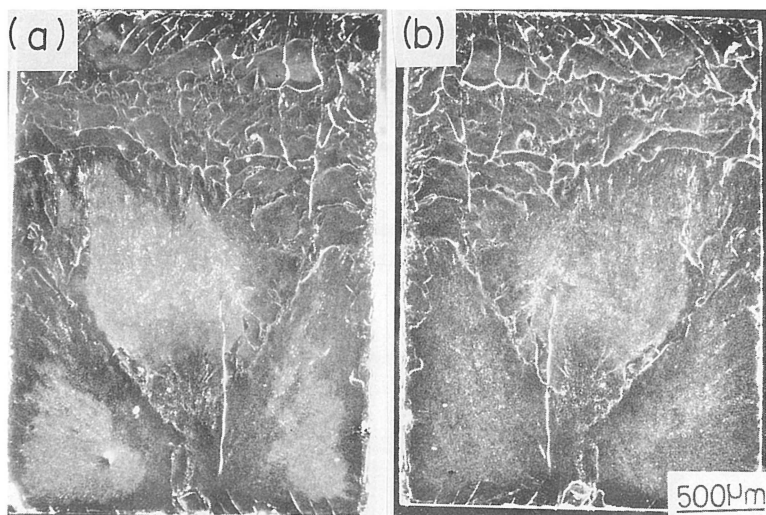


図-4 破面写真  
(a) JPCA 側 (b) Al-1Mn-2Si 合金側

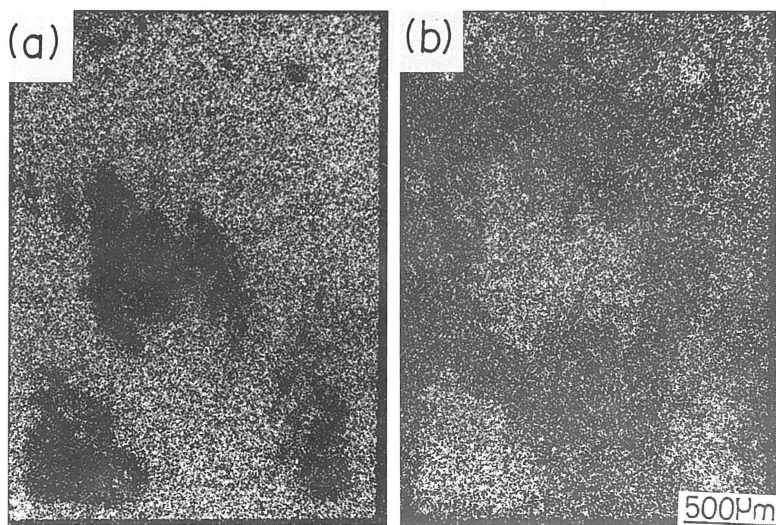


図-5 JPCA 側破面の元素分析 (MAPPING)  
(a) Fe (b) Al

図-4 にそれぞれ (a) JPCA 側と (b) Al-1Mn-2Si 合金側の破面写真を示す。破壊は図の下から上へ進行しているが、はじめ脆性破壊で進行し、後半延性破壊を伴いながら進行することがわかる。ただし、試験中破壊の発生から破断までは瞬時に起こっている（これは変位-荷重曲線にセレーションが無いことから明らかである）ので初期の脆性破壊の進行開始が曲げ強度を決定している。また、(a) の部分を SEM の EDS 組成分析によって mapping を行った写真を図-5 に示す。脆性破壊の進行した部分に Fe

が検出され、JPCA の地が出ていることがわかる。これらのことから、脆性破壊は主に、反応層/JPCA 界面付近を通して進んでいることがわかる。

### 3-3. TEM による界面組織観察

まず破壊が起こっている反応層近傍についての TEM 組織を示す。図-6 は JPCA/反応層界面と反応層/Al-1Mn-2Si 合金界面の組織である。また、この界面での組成変化を図-7、図-8 に示す。図-7、8 では界面からの各距離に対し 3 点を測定し最大最小を縦線で、平均値を記号で示した。反応層は Al が約 60 wt%，Fe が約 20 wt% を占め、残りを Cr，Ni，Si が 5 wt% 程度占めている。反応層の回折斑点は図-9 に示すようにかなり細かく、複雑な化合物を作っていると思われる。JPCA/反応層界面の反応層側では Si 濃度の上昇と Ni 濃度の減少がみられた。また図 6 (a) でわかる様にこの部分では界面近傍の JPCA 側には転位がからみついており、かなり歪の蓄積があると思われる。また界面から 500 nm までの反応層は他の部分と異なり縞状の微細粒組織がみられ、この領域が図-7 の界面近傍の反応層の組織変動の領域とほぼ一致している。反応層/Al-1Mn-2Si 合金界面では図-8 に示すように、Ni 濃度の上昇が顕著に見られる。Cr はほとんど検出されず Si 濃度も低くなっている。この界面から 1000 nm までの領域は Al，Fe，Cr の組成がほぼ一定なので特定の相ができていていると思われる。

次に、セラミックス/金属界面の TEM 組織について述べる。図-10 に  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /Al-1Mn-2Si 合金界面組織を示す。界面にひずみがかかなり蓄積していることがわかる。また界面のひずみを緩和するように Al-1Mn-2Si 合金に転位の発生がみられる。しかし界面に反応層の存在は認められない。 $\text{ZrO}_2$ /Al-1Mn-2Si 合金界面組織を図-11 に示す。試料が厚いため、 $\text{ZrO}_2$  側の組織は不明瞭だが、やはり界面近傍の Al

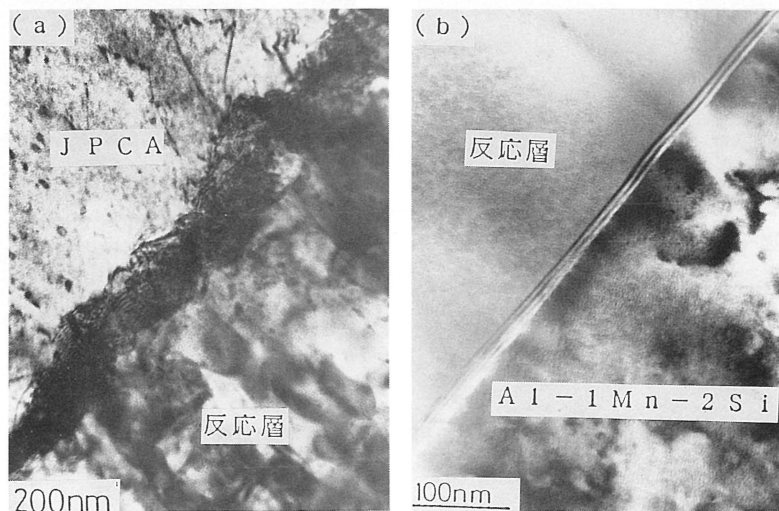


図-6 反応層/金属界面の TEM による界面組織

(a) JPCA/反応層界面

(b) 反応層/Al-1Mn-2Si 合金界面

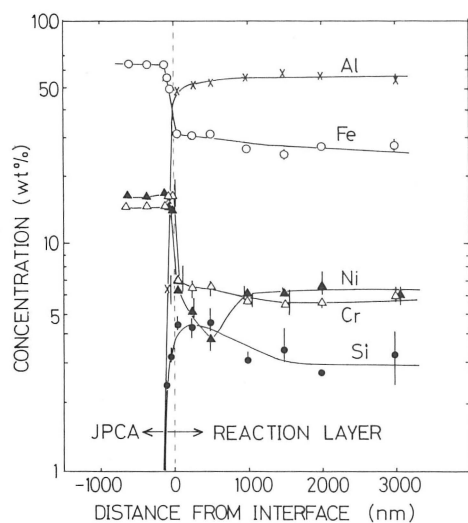


図-7 JPCA/反応層界面の組成分析

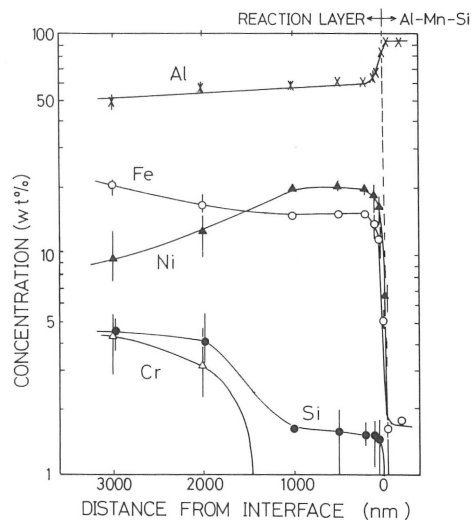


図-8 反応層/Al-1Mn-2Si 合金界面の組成分析

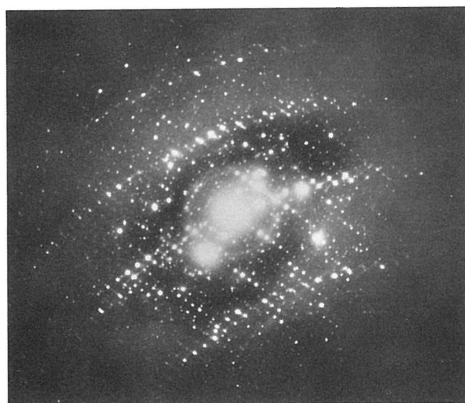
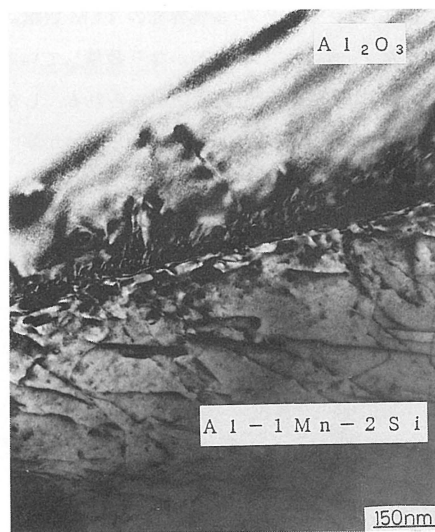


図-9 反応層の回折斑点の例

図-10  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /Al-1Mn-2Si 合金界面組織

-1Mn-2Si 側には転位が存在し、界面ひずみを緩和している。界面極近傍で転位が細くもつれている様子が暗視野像よりわかる。

図-12 は SUS304 鋼と反応層の界面を示す。反応層が微細な組織をしている事がわかる。図-13 は界面近傍の組成分析結果だが微細粒により組織が大きく異なる。また多くの粒で Ni が極めて少なくなっている。

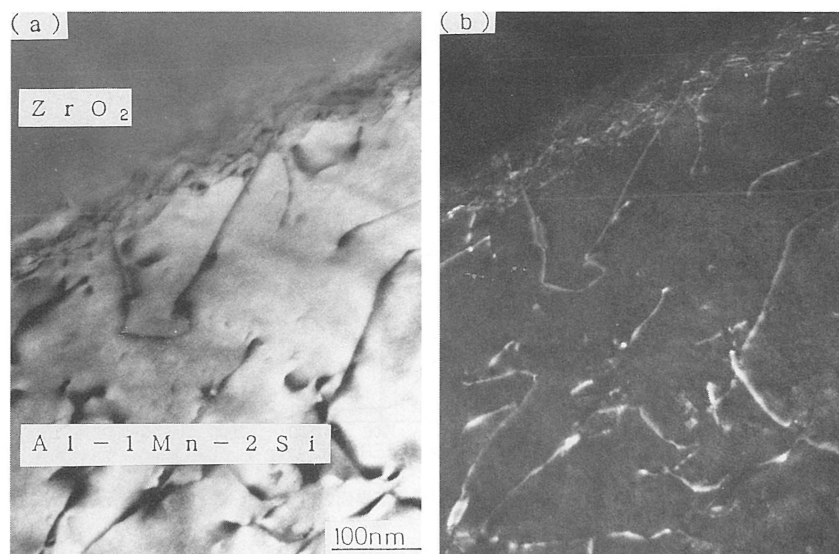


図-11  $\text{ZrO}_2/\text{Al-1Mn-2Si}$  合金界面組織  
(a) 明視野像 (b) 暗視野像

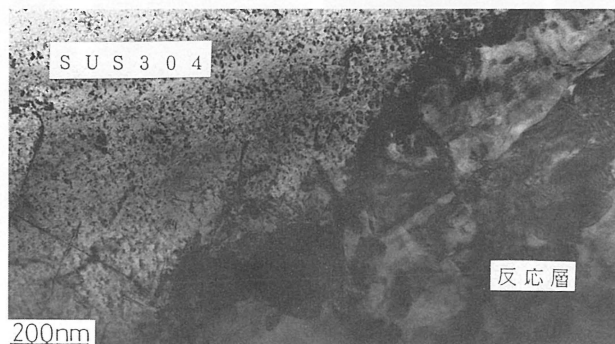


図-12 SUS304/反応層界面組織

### 3-4. 照射による界面近傍組織変化

図 14 は  $\text{Al-1Mn-2Si}$  と  $\text{ZrO}_2$  の接合界面を 1 MeV 電子線照射した場合の  $\text{Al-1Mn-2Si}$  側の組織変化を示す。予め歪による転位が入っており界面上をもつれて存在しているが、照射により特にその近傍で大きな転位ループの発生、成長が見られた。他の部分の照射欠陥は見にくいですが、暗視野で見ると一面に小さな転位ループが発生している事がわかった。

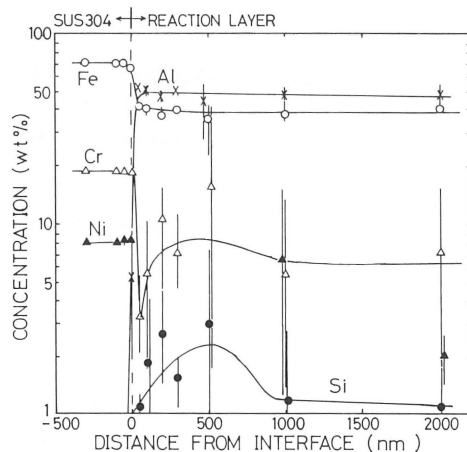
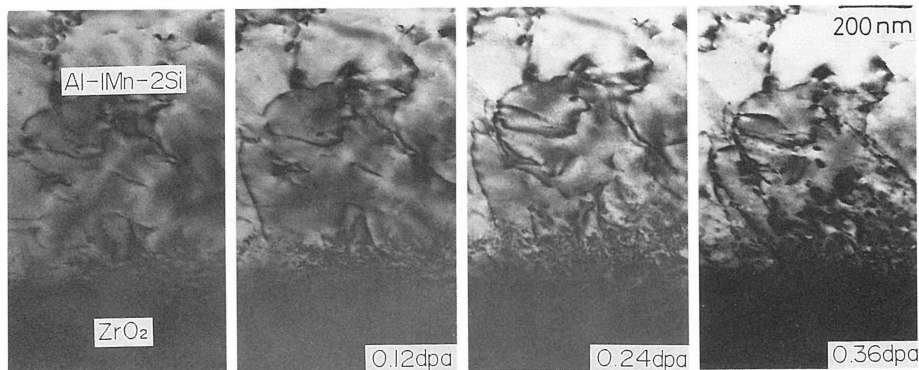


図-13 SUS304/反応層界面の組成分析

図-14 Al-1Mn-2Si/ZrO<sub>2</sub> 界面の 1 MeV 電子線による照射組織変化 (室温,  $2.0 \times 10^{-4}$  dpa/s)

## 4. 考 察

### 4-1. 強度変化の要因

JPCA 接合材の強度はセラミックス単体 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ) に比べて小さくなっているが,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の強度の半分以上には達しており, ろう付け等の接合方法に比べてさほど見劣りしない<sup>19)</sup>. しかし, 荷重-変位曲線, 破面観察からこの接合材は JPCA/反応層界面付近が特に弱く, そこでの脆性破壊の進行が強度を決定していることがわかる. TEM 組織観察, 組成分析(図-6, 7)によって, この界面への転位の集積, 反応層近傍での縞状微細粒組織とそれに対応した組成変化が観察され, 強度変化を引き起こす原因と思われる. この事は, 脆性破壊を起こしていない反応層/Al-1Mn-2Si 合金界面には顕著な転位の集積, 組成変化はみられないこと, またこの付近の反応層の粒が大きいことから裏付けられる.

このように、JPCA/Al-1Mn-2Si 合金間に反応層が生じたことによって、強度が低下してしまった。従って、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  接合材、 $\text{ZrO}_2$  接合材とも同程度の強度を有したことも、両方とも JPCA/Al-1 Mn-2Si 合金界面の反応層で破壊したためであり、当然の結果として理解できる。

今回、金属/セラミックス界面から破壊しなかったので接合強度の測定はできなかった。そこで、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  同士、 $\text{ZrO}_2$  同士を Al-1Mn-2Si 合金で接合した試料の曲げ強度（鎌田らのデータ<sup>17)</sup>）と比較する。鎌田氏らのデータによると  $\text{ZrO}_2$  同士の接合強度は 325 MPa であり、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  同士の場合は 185 MPa であった。すなわち、 $\text{ZrO}_2$  の強度は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の倍近いことがわかる。これらの界面は本実験の Al-1Mn-2Si 合金/セラミックス界面と同様のはずなので、本実験の界面組織観察は両者の強度の差の原因を考える上で参考になる。界面組織（図-10、図-11）を比較してみると、界面付近での転位の発生は同じように見られるが、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の方がひずみが多いように見える。この理由として、 $\text{ZrO}_2$  は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  よりも熱膨張率が大きいので、 $\text{ZrO}_2$  の熱膨張率の方が Al-1Mn-2Si 合金により近く（Al-1Mn-2Si は  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$  よりかなり熱膨張率が大きい）、界面の不整合性が小さい事が考えられる。

以上のことからわかるように、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$  と Al-1 Mn-2Si 合金の接合はかなりの強度が期待できるが、本実験ではこれにこのまま JPCA を接合したため脆い反応層が生じ、強度が低下してしまった。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、 $\text{ZrO}_2$  と Al-1Mn-2Si 合金界面には観察の限り反応層は生じていないので、この接合に関しては靱性の向上と熱伝導性の付加は十分期待できる。従って、JPCA との界面の反応層の出現を抑えるか、より高強度の反応層が出現するよう工夫することにより、接合材全体の強度を向上させることができる。

本照射実験の結果、Al-1Mn-2Si/ $\text{ZrO}_2$  界面近くで特に転位組織が発達する事が示されたが、これは残留歪によるものか、不純物分布によるものかは明らかでない。いずれにしても、照射により界面近傍が転位の発達により延性低下、強度劣化を起こす事が懸念され、これが接合材全体の照射による強度変化にどう影響を与えるかが今後の課題である。

#### 4-2. 高強度接合材開発への展望

前節で接合材の高強度化の方向として、反応層の生成を抑えることおよび高強度反応層が出現させることを示したが、具体的には次の手段が考えられる。1つは新しいインサート材を開発することであり、2つめとしては Al-1Mn-2Si 合金/JPCA 間に第2のインサート材を挿入すること、さらに JPCA よりも Al-1Mn-2Si 合金との接合性がよいステンレス鋼なども検討の必要があろう。

新しいインサート材の開発については、まずセラミックスとの接合性が良好な金属の範囲で試してみるのが良いであろう。活性金属の Ti, Zr,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  となじみやすい Nb, 貴金属 Pt,  $\text{Ag}^{20)21)}$  などが接合性がよいことが知られ候補であろう。また Al 合金として、鎌田らのデータ<sup>17)</sup> より  $\text{ZrO}_2$  と Al-6Cu-2Li, Al-6Cu や  $\text{Al}_2\text{O}_3$  と Al-6Cu-2Li, Al-2Li の組合せで高強度の接合が可能である。これらの中から良好なインサート材を見つけることが望ましいが、見つからなくともインサート材の合金改良等の方向で可能性は更に広がる。

つぎに第2インサート材としては、セラミックスとは接合は難しいが JPCA と Al-1Mn-2Si 合金とも 600°C 付近で接合し、界面強度が強いという性質のものであればよい。600°C 付近で Al と金属を接合

して反応層が生じるかどうかという実験は行われており<sup>10)</sup>、これによると Mo (反応層無し)、Ti (反応層 1  $\mu\text{m}$ ) が反応層が無いと小さく有望である。しかし強度は測定されておらず、この結果からのみでは判断できない。

3 つめは、ステンレス鋼の組成などを変えて Al-1Mn-2Si 合金との接合性を良くすることである。これには、JPCA の代わりに SUS304 と接合を行った場合強度が大きく低下したという本実験結果が参考になる。SUS304 鋼は Ni が約 8% と JPCA のほぼ半分であり、そのためか反応層の Ni 濃度が極めて低くなった。この事は、JPCA 接合材の場合強度は比較的大きいが、破壊は Ni 量が局所的に少ない JPCA 界面近くの反応層付近で進行したと一致する。すなわち Ni 濃度の低い反応層が特に脆く、強度を低下させる事が予想される。以上より、ステンレス鋼の Ni 濃度を増加させるかまたは Ni 基の第 2 インサート材を用い、反応層の強度を増やし接合強度を大きくするという材料改良方向を、1 つの可能性として示すことができる。

## 5. 結 論

核融合炉における金属-セラミックス接合材の使用可能性を明らかにするため、JPCA/Al-1Mn-2Si 合金/セラミックス ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ) を拡散接合しその特性を明らかにした。曲げ試験により強度を測定し、両接合材とも  $\text{Al}_2\text{O}_3$  セラミックスの強度の半分程度であることがわかった。この破壊は JPCA/Al-1Mn-2Si 合金間で生じた脆弱な反応層で起こる事がわかった。TEM 観察、EDS 組成分析により、この反応層/JPCA 近傍で、JPCA 側にひずみ形成のあと、反応層側に強い偏析及びそれに対応した粒の変化が認められた。ゆえに、この脆弱な反応層の生成を抑えたり、たとえ生じたとしても強度の大きい反応層にすればさらに高強度の接合材が期待できることがわかった。SUS304 を用いた接合材の強度は JPCA に比べかなり低かった。両者に共通して、この様な脆弱な部分の多くは Ni 量が極度に低下していることがわかった。すなわち第 2 インサート材、成分調整ステンレス鋼の使用等により Ni の界面濃度を増加させる事が、1 つの改良方向として示された。電子線照射下で、金属-セラミックス界面に優先的なループ形成が認められた。これは照射による強度劣化の一因となる可能性がある。

## 参 考 文 献

- 1) 井関孝善：セラミックス 21 (1986) 510.
- 2) 例えば、稲川幸之助：材料科学 23 (1986) 363.
- 3) 浜野健也編：ファインセラミックスハンドブック p. 215.
- 4) S. Morozumi, M. Endo, M. Kikuchi: J. Mater. Sci., 20, (1985) 3976.
- 5) S. Morozumi, M. Kikuchi, T. Nishino: J. Mater. Sci., 16, (1981) 2137.
- 6) M. Naka, M. Kubo, I. Okamoto: J. Mater. Sci., 22, (1987) 4417.
- 7) R. W. Rice, in NRL-7085, Naval Reserch Lab., 23-July (1970) p. 3, 11-13.
- 8) J. E. McDonald, J. G. Eberhart: Trans. Met. Soc. AIME., 233, (1965) 512.
- 9) M. Nicholas, R. R. D. Forgan, D. M. Pole: J. Mater. Sci. 3, (1966).
- 10) M. Nicholas, R. M. Crispin: J. Mater. Sci. 17, (1982) 3347.
- 11) M. Florjancic, W. Mader, M. Ruhle, M. Turwitt: J. de Physique., 46C4 (1985) 129.

- 12) J. T. Klomp : Amer. Ceram. Soc. Bull., 51 (1972) 683.
- 13) 管沼克昭, 岡本平 : 日本溶射協会誌, 22, (1985) 929.
- 14) 井形直弘 : 核融合研究 53 (1985) 179.
- 15) 五十嵐昇 : 東芝レビュー39, (1984) 492.
- 16) Summary Report of ITER Specialists Meeting on Materials Data Base, Sec. 5 (1988).
- 17) 鎌田公仁 : 長岡技術科学大学工学部機械システム工学課程課題研究 (修士論文).
- 18) 奥田博 : セラミックス 18, (1983) 23.
- 19) S. Hayage, Y. Ishida, S. Tanaka : J. Ceram. Soc. Jpn., 96, (1988) 1119.
- 20) 柏木孝三, 塩田重雄 : BOUNDARY, 10, (1987) 29.
- 21) 岩本信也 : セラミックス 26, (1987) 496.

(平成元年 5 月 31 日 受理)