750. モリブデンの超高真空中急速熱サイクル疲労

菊山紀彦*, 奥達雄*, 石原秀夫*,†

(1982年 1月7日 受理)

Rapid Heating Thermal Fatigue of Molybdenum in Ultra-High Vacuum

By Toshihiko KIKUYAMA, Tatuo OKU and Hideo ISHIHARA

Since the operation of tokamak type fusion reactors is usually pulsative, structural materials are subjected to thermal shock and cyclic loading under service conditions. Degradation of first wall under thermal fatigue is considered to be one of the major factors which determine the service life.

Thermal fatigue of Mo was investigated in an ultra-high vacuum in order to simulate the service condition of JT-60. Test specimens were prepared from sintered Mo plates which are comparable size to the magnetic limiter plates of JT-60. Thermal fatigue tests were performed under the conditions of the cyclic temperature and the complete restriction of the axial displacement in which the maximum temperature was 1,600°C and the minimum temperature was varied 500 to 1,300°C. Under each test condition, specimen showed marked bulging and necking which may be caused by nonuniform temperature distribution. Grain boundary microcrackings were found in the center of bulging portion.

KEYWORDS: fusion reactor materials, first wall materials, molybdenum, refractory metals, thermal fatigue, very high vacuum, very high temperature, temperature dependence, mechanical tests

I. はじめに

トカマク型核融合炉や核融合臨界実験装置はパルスのな運転がなされるため、その構造材料は急激な温度サイクルあるいは電磁力を受けると考えられている。なかでも第1壁の温度条件は特に苛酷であり、材料としては高融点金属のMoが候補に挙げられている。

現在日本原子力研究所において設計、製作が進められている大型トカマク臨界実験装置JT-60では、プラズマ第1壁のライナ、固定リミタおよび磁気リミタにMoが使用される予定である。これらの部材では最高温度 $T_{\max}$ は2,100°C、また温度変動範囲 ΔT は1,700°Cに達すると予測されている。このような厳しい温度サイクル下で使用される材料の場合、熱疲労がその寿命を決定する重要な因子の一つとなる。

核融合炉のプラズマ第1壁材料の熱疲労条件を他の

高温構造機器、例えば核分裂型原子炉、火力発電プラント、化学反応容器、ガスタービン等の条件と比較すると、次のような点が特徴である。

- (1) 最高温度 $T_{\max}$ が大きい。
- (2) 温度の変動範囲 ΔT が大きい。
- (3) 温度の変化速度 dT/dt が大きい。
- (4) 温度サイクルの繰返し数が大きい。

これまでの熱疲労の研究においては、HTGRやFBRなどの核分裂炉、火力発電プラント、化学反応容器、ガスタービン等の構造材料を対象としたものがほとんどであり、SUS 304, 316, 347等のオーステナイトステンレス鋼やFe基、Ni基等の耐熱合金についての報告が見られる。これらのうち最高温度および温度範囲の大きいものではSUS 304ステンレス鋼について700~300

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

† 外来研究員、東京芝浦電気(株)(Toshiba Corp.)

°C⁽¹⁾, Hastelloy-X について 900~300°C⁽¹⁾, HK-40 について 1,000~600°C⁽²⁾ の報告が見られる。

これに対して Mo 材料については、これまで構造材料としての使用がほとんどなかったため、その熱疲労挙動に関する報告は見られない。また従来の熱疲労試験はそのほとんどが大気中で実施されているが、Mo の場合 500°C 以上になると大気中での酸化が著しく、不活性ガス雰囲気中あるいは真空中において試験を行う必要がある。

熱疲労に対する雰囲気効果については SUS 347 についての報告が見られるが⁽³⁾, 600~100°C の温度条件で 1×10^{-8} mmHg の真空中では 1×10^{-5} mmHg の真空中よりも寿命が長くなることが認められている。

JT-60 のプラズマ第1壁の雰囲気条件は 1×10^{-8} Torr の超高真空中であり、このような雰囲気条件を近似した環境下で Mo 等の構造材料の熱疲労挙動を評価することが設計上重要となる。

本報では、JT-60 のプラズマ第1壁材料としての Mo が受ける予想される温度条件、雰囲気条件をできるだけ近似した試験を行なった場合の熱サイクル疲労挙動について報告する。

II. 実験方法

1. 試験材料

現在工業的規模で生産されている Mo 材料は、大別すると粉末冶金材(PM), 真空アーク溶解材(AM), 電子ビーム溶解材(EB) の3つである。JT-60 ではこれら3種のうち、大型部材の製造に適し、他の2法より価格が安い粉末冶金材を採用する予定にしている。したがって、試験材料としては粉末冶金材を用いることとした。

試験結果を実機の構造物の設計データとして、また耐久性評価のデータとして用いるため、試験素材の大きさは実機に用いられるものとはほぼ等価なサイズとした。JT-60 の磁気リミタ板1枚の寸法は 100mm 幅×100mm 長×20mm 厚程度であるので、試験素材として 160mm 幅×160mm 長×22mm 厚の熱間圧延板を用いた。試験材の化学分析値を Table 1 に示す。

Table 1 Chemical composition of Mo tested

	O ₂	C	Fe	Si	N	S	W	Ta	P
Sintered Mo (ppm)	64	12	57	32	21	10	<20	<5	<5

試験片は素材の圧延方向と平行方向に Fig. 1 に示す形状の平行部 100mmφ×30mmL のものを採取した。

Fig. 1 Thermal fatigue specimen

2. 試験条件

JT-60 の固定リミタ板はその表面にプラズマが接触することにより急激な加熱を受ける。また磁気リミタ板はプラズマからのイオンビームを受けるため、Fig. 2 に示すような急激な局部加熱を受ける。このような加熱による温度サイクルは、Fig. 3 に示すように、5~10 s のプラズマ放電による加熱が 10 min ごとに繰り返される⁽⁴⁾⁽⁵⁾。JT-60 の寿命中には約 10^5 程度の温度サイクルがあるものと予測されている。

固定リミタや磁気リミタが表面から急激に加熱される時に生じる過渡的な温度分布が熱疲労の原因となる

Fig. 2 Transient temperature distribution of JT-60 magnetic limiter plate

Fig. 3 Transient temperature change of fixed limiter and magnetic limiter and heating performance of test facility

が、このような非定常的な温度分布を与えて試験することは加熱方法やひずみの測定など技術的に難しい点が多い。本報では試験片の軸方向の変位を一定に拘束したまま温度を変化させる Coffin 型の熱疲労試験を行うこととした。

温度条件は Fig. 4 に示すように上限温度 $T_{\max}$ を $1,600^{\circ}\text{C}$ 一定とし、下限温度 $T_{\min}$ をそれぞれ $500, 800,$

Fig. 4 Temperature-time diagram of thermal fatigue test

$1,100, 1,300^{\circ}\text{C}$ とした温度サイクルを与えた。Fig. 4 には上限温度 $1,600^{\circ}\text{C}$ 、下限温度 500°C の場合の時間-温度ダイアグラムを示した。

加熱速度は $T_{\max} 1,600^{\circ}\text{C}$ 、 $T_{\min} 500^{\circ}\text{C}$ の場合において $500 \sim 1,600^{\circ}\text{C}/15 \text{ s}$ とし、それ以外の温度条件の場合には、ほぼこれと等価となるように設定した。なおすべての試験条件で $1,600^{\circ}\text{C}$ で 60 s の保持を行なった。

試験片をセットした後、真空槽を排気しながら $150 \sim 200^{\circ}\text{C}$ でベーキングを行い、常温での真空度が $1.5 \times 10^{-8} \text{ Torr}$ に達したことを確認して試験を開始した。

試験開始に当っては試験片を無拘束、すなわち自由熱膨張の状態 T で $(T_{\max} + T_{\min})/2$ まで加熱し、約 10 min 保持して試験片の温度分布が安定した後、Fig. 1 に示す試験片の A-B 間の距離が一定になるよう試験機を制御して温度サイクルを与えた。

3. 試験装置

プラズマ第 1 壁の温度条件、雰囲気条件を近似した条件の熱サイクル疲労試験を行うためには試験装置として、①超高真空中で試験が行えること、②加熱速度が大きいこと、③最高温度が高いこと、が要求される。

Fig. 5 Block diagram of test facility

試験装置および試験方法の詳細については既に報告したので⁽⁶⁾、ここではその概略を述べるにとどめる。

試験装置構成のブロックダイアグラムをFig. 5に示す。容量 ± 10 tの油圧サーボ式疲労試験機に真空槽、高周波加熱装置を組み合わせたものである。試験装置の性能諸元をTable 2に示す。

Table 2 Performance of testing apparatus

Fatigue test unit	± 10 t, closed loop
Strain detection	Optical
Maximum temperature	1,600°C
Heating rate	500~1,600°C/15 s
Heating system	Induction heating 30 kVA
Temperature detection	2 color pyrometer
Evacuation system	Turbo-molecular pump 1,500 l/s
	1×10^{-8} Torr at room temperature
	1×10^{-7} Torr at 1,600°C

4. 試験片の温度分布

試験片の温度測定は放射温度計を用いて試験片の中央部の最高温度位置のみを計測している。したがって、試験片の試験中の温度分布は実測していない。そこで次のような方法を用いて硬度測定の結果より温度分布を測定した。

Fig. 6(a) Temperature distribution along specimen axis
(b) Temperature dependence of compressive flow stress during thermal fatigue test
(c) Compressive strain distribution along specimen axis at $T_{\max} = 1,600^\circ\text{C}$

Ⅲ. 結 果

1. 温度-応力関係

$T_{\max}$ 1,600°Cで、 $T_{\min}$ をそれぞれ 500, 800, 1,100,

Photo. 5(a)に示されるように、1,600~500°Cの温度条件で72サイクルの加熱を受けた試験片は、最高温度で60 s /サイクルの保持を受けるので、最高温度での全保持時間は約 4,300 s とみなせる。Photo. 5(a)では、試験片中央から14 mmの距離で軟化が始まり、12 mmの距離で完全に軟化している。今回の試験に用いたのと同じ粉末冶金Moについて再結晶を測定した結果⁽⁷⁾、1,050°Cで $3 \sim 5 \times 10^8$ sで軟化の開始がみられ、また同じ時間条件で1,200°Cで完全に軟化することが認められた。この結果よりFig. 6(a)のような温度分布が推定された。

この温度分布は通常行われている熱疲労試験の温度分布に比べると悪いが、それは主として次の原因によると思われる。

- (1) 試験装置の設計条件として加熱速度を大きくすることを優先させたため、均一な温度分布よりも加熱速度の大きくとれる高周波加熱コイルの形状としたこと。
- (2) 試験片の歪の測定を光学式歪計を用いて軸方向歪で行なったため、Fig. 1中にA, Bで示した歪測定用のエッジを高周波コイルの外に出す必要があり、コイル設計に制約があったこと。

1,300°Cとした場合の温度サイクルに対応する温度-応力のヒステリシスをFig. 7に示す。

この温度-応力ヒステリシスは温度範囲 ΔT に応じて最初の数サイクルから10数サイクルではほぼ安定する

が、試験が進行するにつれ後述するバルジングを生じるとこれは変化する。Fig. 7 にはバルジングの発生がほとんどヒステリシスに影響を与えない領域の繰返しで測定したものを示した。図中の 10, 90, 70, 100 はそれぞれのヒステリシスの測定されたサイクルを示す。

Fig. 7 Temperature stress loops during Coffin type thermal fatigue, sintered Mo

各温度サイクルにおいて加熱サイクルでは試験片は膨張により軸方向に圧縮を受ける。1,600~500°Cサイクルの場合には約 950°C 付近で圧縮による塑性変形が始まる。さらに高温になると、加工硬化による応力上昇と温度上昇に伴う変形抵抗の低下との釣合いから決まる圧縮応力のピークをへて、応力は次第に減少してゆく。1,600°C で 60 s 間の保持中にリラクゼーションによって応力はさらに減少する。冷却サイクルに入ると試験片は収縮による引張応力を生じるが、1,400°C 付近で約 8 kg/mm² の応力で塑性変形する。しかし、温度の低下とともに変形抵抗が上昇するにつれ引張応力は増加する。

2. 温度範囲と寿命との関係

T_{max} を 1,600°C 一定とした場合、 ΔT が小さくなるにつれて寿命は増大する。

$\Delta T=1,100^\circ\text{C}$ 、すなわち 1,600~500°C の条件では試験片の中央部に軸方向と直角方向の亀裂が発生し破断した。しかし、それ以外の $\Delta T=800, 500, 300^\circ\text{C}$ の各条件ではこのような亀裂の発生は見られず試験片は破断しなかった。しかし、試験片にバルジングとネッキングを生じ、そのために荷重が変化していった。1,600~

800°C の条件において、第 90, 第 400, 第 500 サイクルの温度-応力ヒステリシスの関係を Fig. 8 に示す。応力は初期断面 A_0 で荷重を割った公称応力を用いて表わしている。また、この試験条件における公称引張最大応力と公称圧縮最大応力とのサイクル依存性を Fig. 9

Fig. 8 Degradation of temperature stress loop during thermal fatigue test

Fig. 9 Degradation of peak tensile and compressive stress during thermal fatigue test

Fig. 10 Relation between temperature range and thermal fatigue life of sintered Mo

に示す。ここで、引張り側の公称最大応力が試験開始時の応力 σ_0 の 0.75 になった繰返し数を便宜上寿命とした。その他の温度条件においても寿命の判定は開始時の応力の 0.75 とした。

このようにして求めた ΔT と熱サイクル疲労寿命との関係を Fig. 10 に示す。

3. 試験片の外観観察

試験片はいずれも Photo. 1 に示すように中央部に顕著なバルジングとネッキングを生じている。 $T_{\min}$ 500°C の場合には試験片中央に軸方向と直角方向に亀裂が発生し破断している。その他の条件ではこのような破断は生じていない。 $T_{\min}$ 800, 1, 100°C の場合は、バルジングの中央部に軸方向と平行方向のマイクロクラックを生じていることが認められた。

Photo. 1 Failed specimens in thermal fatigue tests

4. 断面の金相観察

試験片の縦断面のマクロ金相観察の結果を Photo. 2 に示す。1,600~500°C および 1,600~800°C の場合、試験片の中央に再結晶による顕著な結晶粒の粗大化が認められる。

ミクロ金相観察では試験片の中央部に、軸方向と平行方向の粒界亀裂が認められたが、特に 1,600~500°C および 1,600~800°C の場合に顕著で、1,600~500°C の場合は Photo. 3 に示すような粒界亀裂が破断部から約 5 mm の範囲まで分布している。また 1,600~800°C の場合は Photo. 4 に示すようにバルジング部分のは

ば全面にわたって粒界亀裂が認められた。

5. 硬度

試験後の試験片の縦断面の中心軸に沿ってビッカース硬度の測定を行なった。荷重は 1 kg とした。

Photo. 5(a), (b) で試験片のグリップ部に近い部分の硬度は H_V 190~200 であるが、再結晶した部分では約 160 に軟化している。 H_V 160 以下の軟化領域は金相観察による結晶粒の粗大化領域と一致していることが認められる。さらに、バルジング部においては硬度の低下が見られ、またネッキング部では硬度の上昇が見られる。1,600~800°C の条件では Photo. 5(b) に示すように

パルジング部の中心で $H_V 97$ まで硬度が低下している。この試験片の中央部で、Photo. 5(b)中にA, B, Cに示した位置で硬度を測定してみると、中心部Aの硬度が最も低く、B, Cの順に高くなっている。Photo. 4に見られるように、この硬度低下の大きい領域はマイクロクラックの密度が高いことから、マイクロクラックが硬度低下の原因の一つになっていると考えられる。

Photo. 2 Longitudinal sectional view of failed specimens in thermal fatigue tests

1,600~500°Cの条件ではPhoto. 5(a)に示すように、破断部から2.5 mmの位置で $H_V 128$ であり、試験片中心部の硬度は測定できないが、おおよそ1,600~800°Cの場合と同程度であると推定される。

一方、ネッキング部の硬度上昇はPhoto. 5(a)の1,600~500°Cの場合約 $H_V 5$ であり、Photo. 5(b)の1,600~800°Cの場合は $H_V 10 \sim 22$ である。Photo. 2 でネッキ

Photo. 3 Longitudinal metallography of failed specimen in 1,600~500°C thermal fatigue test

Photo. 4 Longitudinal metallography of failed specimen in 1,600~800°C thermal fatigue test

Photo. 5(a), (b) Hardness distribution of failed specimen in 1,600~500 and 1,600~800°C thermal fatigue test

ング部分において結晶粒が軸方向に引き伸ばされていることが認められるが、これは結晶粒が細粒化した場合と類似した効果を硬度に及ぼすと考えられる。

粉末冶金 Mo の硬度と結晶粒径との関係を調べた結果によると、粒径が 0.063 から 0.04 mm になると硬度は H_v 163 から 174 に上昇する。ネッキング部に見られる硬度の上昇は、このような結晶粒の引伸しによる細粒化効果としてほぼ説明できる。

Ⅳ. 考 察

T_{max} を 1,600°C とし、 T_{min} を 500, 800, 1,100, 1,300°C とした条件で粉末冶金 Mo 材の熱疲労試験を行なった。その結果 1,600~500°C の場合、試験片は破断したが、それ以外の条件では試験片の破断は見られず、試験片に顕著なバルジングとネッキングを生じた。このようなバルジングとネッキングは試験片の温度分布の不均一が原因で生じたものと考えられる。第Ⅱ-4節で述べたように、本試験では通常の熱疲労試験に比べると温度分布が不均一である。このような温度分布の不均一さが Mo の変形抵抗に与える影響を Fig. 7 のヒステリシスの 1,300~1,600°C 付近の挙動から推定すると、Fig. 6(b) のようになる。歪分布が変形抵抗に反比例すると仮定すれば、Fig. 6(c) のような歪分布になる。Fig. 6(c) 中での歪分布は最大歪に対する割合 $\varepsilon/\varepsilon_{max}$ で示している。このような温度分布の不均一さに起因する歪分布の不均一さがバルジングの原因と考えられる。Fig. 7 の温度-応力ヒステリシスにおいて、すべての試験条件で高温側と低温側とともに塑性

変形を生じている。Mo の融点は $T_m = 2,898\text{K}$ (2,625°C) であり $\frac{1}{2}T_m = 1,449\text{K}$ (1,176°C) であるから今回の $T_{max} = 1,600^\circ\text{C}$ の試験条件の場合、高温側の変形は主として“粒界すべり”によるもので、低温側の変形は主として“粒内すべり”によるものと考えられる。したがって、このようなサイクルを繰り返すことにより、各サイクル

の低温部での粒内の引張変形がサイクルの高温部での粒界の“圧縮すべり変形”として蓄積してゆくこととなり、その結果バルジング部に軸方向と平行方向の粒界亀裂が発生すると推測される。

Fig. 9 において、引張り側の公称応力は繰返し数の増加に従って減少してゆく。これはネッキングによる断面積の減少が原因であるが、ネッキング部の真応力を求めるとネッキングの進行に従って増加していくことが認められる。

1,600~800°C の条件で 500 サイクルの試験をして取り外した試験片のネッキング部の 500 サイクル目における断面積は 15.5 mm² であり、500 サイクル目の最大荷重は 643 kg であったので、真応力は

$$\sigma_{true} = 643 \text{ kg} / 15.5 \text{ mm}^2 = 41.5 \text{ kg/mm}^2$$

となる。ただし、ネッキングの曲率による補正は行なっていない。一方、試験開始時の断面積および引張り側最大荷重は 78.5 mm² および 1,068 kg であったから、真応力は

$$\sigma_{true} = 1,068 \text{ kg} / 78.5 \text{ mm}^2 = 13.6 \text{ kg/mm}^2$$

となる。

500 サイクル目におけるネッキング部の真歪の値は

$$\varepsilon_{true} = \ln(78.5/15.5) = 1.62$$

一方、試験開始直後の真歪の値は拘束率を 1 と仮定すると、Mo の 800~1,600°C 付近での平均線膨張率を $6 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ とし、また Fig. 7 より引張り側の温度範囲を 750°C とすれば、

$$\begin{aligned}\epsilon_{\text{true}} &= \ln(1 + \Delta\epsilon_{\text{thermal, tension}}) \\ &= \ln(1 + 6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \times 750^{\circ}\text{C}) \\ &= \ln 1.0044 = 0.0043\end{aligned}$$

となる。このようにして求めた試験開始直後の真応力-真歪がFig. 11中のA点であり、500サイクル目のネッキング部の真応力-真歪がFig. 11中のC点である。

Fig. 11 True stress strain curves in tensile test at 700 and 900°C and presumed true stress strain relation in 1,600~800°C thermal fatigue test, sintered Mo

今回の試験に用いたものと同一ロットの Mo 材について700および 900°C の引張試験から求めた応力-歪曲

Fig. 12 Tensile stress strain curves of sintered Mo tested at 700 and 900°C

線を Fig. 12 に示す。800°C の試験は行っていないが、700, 900°C の場合と大きな違いはないものと考えられる。この応力-歪の関係を真応力-真歪の関係で示したものがFig. 11中の700および900°Cである。800°C の場合もほぼこの両者と似た挙動となることが考えられる。

1,600~800°C の熱疲労試験におけるネッキング部の真応力-真歪の関係が Fig. 11 中に A—C で示した線上に沿って変化すると考えると、およそ 800°C での引張試験における真応力-真歪の関係に近いものとなることが推定される。

V. 結 論

トカマク型の核融合炉や核融合臨界実験装置のプラズマ第 1 壁が運転条件下でさらされると予想される急速な加熱による、熱サイクル疲労挙動を粉末冶金 Mo 材料について調べ、次の結論を得た。

- (1) 上限温度 T_{max} を 1,600°C 一定とし、下限温度 T_{min} を 500, 800, 1,100, 1,300°C とした場合、下限温度が 500°C の条件では軸方向と直角方向の亀裂が発生して破断したが、それ以外の温度条件ではこのような破壊は生じなかった。
- (2) 下限温度が 800, 1,100, 1,300°C の場合、ネッキングにより荷重範囲 ΔP が減少するが、引張り側の公称応力が初期値の 1/2 に低下するまでの繰返し数は下限温度の上昇とともに増加する。
- (3) すべての試験条件でバルジングとネッキングが認められ、バルジング部の中央に軸方向と平行方向の粒界亀裂が認められた。
- (4) 硬度測定によりネッキング部で硬化が認められた。
- (5) ネッキング部の公称引張応力は低下するが、真応力は試験開始時に比べ 3 倍まで増加する場合があることが認められた。

— 参 考 文 献 —

- (1) 日本材料学会高温強度部門委員会: 耐熱合金の高温熱疲労に関する共同研究報告書, (1977).
- (2) 丸山武志: 材 料, 26[288], 873 (1977).
- (3) 加藤則忠: 同 上, 13, 589 (1964).
- (4) 中村博雄, 他: JAERI-M 7013, (1977).
- (5) NAKAMURA, H.: JT-60 first wall development program, US/Japan Seminar, (1980).
- (6) 菊山紀彦, 他: 材 料, 29, 340 (1980).
- (7) 石原秀夫, 他: JAERI-M 8567, (1979).