インコロイ 908 熱処理中の粒界割れ解析†

菊 地 賢 司* 加 藤 崇** 杉 本 誠**
石 尾 光太郎** 深 谷 清* 加 治 芳 行*

Analysis of Intergranular Cracking for Incoloy 908 during a Heat Treatment

by

Kenji KIKUCHI*, Takashi KATO**, Makoto SUGIMOTO**,
Kohtaro ISHIO**, Kiyoshi FUKAYA* and Yoshiyuki KAJI*

The Incoloy 908 jacket material exhibited intergranular cracking during superconductor reaction heat treatment at 650 °C. The mechanism of this intergranular cracking was attributed to stress-accelerated grain boundary oxidation (SAGBO). Incoloy 908 is the jacket material for the cable-in-conduit superconductor for the International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER). Fracture surfaces mapped by wave dispersive X-ray (WDX) analyses indicated an accumulation of oxygen at the crack initiation region, but did not show any presence of oxygen around the crack tip. A computational simulation of the conductor manufacturing process indicated the presence of residual surface stresses in the jacket material. Residual surface tensile stresses are created on the jacket outer surface, as a result of plastic deformation during conductor fabrication (known as the jacket compaction process). It has been concluded that the successful heat treatment of the jacket material can be accomplished by:

- (1) Careful shotpeening on the outer surface of the jacket material to create compressive surface stresses and
- (2) Evacuation of oxygen by removing oxygen sources such as the oil contaminants and water vapor from the conductor at temperatures below 550 °C.

Key words: Incoloy 908, Stress-accelerated grain boundary oxidation, Intergranular crack, Heat treatment, International Thermonuclear Experimental Reactor, Residual stress, Compaction

1 序 論

インコロイ 908 は ITER (国際熱核融合実験炉) で用いられる Nb₃Sn Cable-In-Conduit-Conductor (CICC) のジャケット材として開発された材料である。^{1)~4)} 熱膨張係数が小さい Fe と Ni をベースにし、Cr を 4% 含む合金であり、超伝導生成熱処理条件である 650 °C、および実際に超伝導状態で使用される -269 °C の温度において、Nb₃Sn 素線を保護する機能と同時に、極低温における十分な破壊強度を持つ。

しかし、インコロイ 908 には、他の Ni, Fe および Ni-Fe 合金と同様に酸化による粒界割れを起こしやすいという弱点がある。粒界割れは 650 °C の熱処理中にわずかな酸素濃度とある値以上の引張応力が同時に作用して起こるとされており、応力誘起粒界酸化 (SAGBO: Stress-Accelerated Grain Boundary Oxidation) と呼ばれる。これは粒界に沿った酸素輸送を伴う内部酸化であり、応力誘起粒界酸化割れを起こすかどうかは熱処理中における表面酸素濃度および負荷応力に大きく依存する。ジャケット材にはコンパクションと呼ばれる塑性加工、およびロール状に巻き上げる曲げ変形を与えるが、それぞれのプロセスにおいてジャケット材に残る残留応力が正確に評価されていない。また、応力誘起粒界酸化割れの機

構についても、McMahon-Coffin⁵⁾ は粒界酸化と引張力による引き続く酸化物の割れの繰り返しによるき裂の進展、Bricknell-Woodford⁶⁾ は Ni/Fe 基インコロイ 903 について酸素の粒界拡散による粒界脆化と引張力による粒界割れ、そして破面の酸化というプロセスを提案してはいるが、あくまでも定性的な議論に留まっている。これらのモデルには粒界の酸化がき裂進展の前、後に起こるという違いがある。いずれにしても、応力誘起粒界酸化割れの機構自体が明確になっている訳ではない。熱処理中にジャケット材に貫通割れができると、超伝導素線を液体ヘリウム温度に保持できなくなり、超伝導特性を得ることができなくなる。また、貫通しないまでも、潜在き裂が存在すると、2 千回と見積られるジャケット材に繰り返し加わる電磁力により、き裂が進展し、板厚を貫通し、液体ヘリウムが核融合炉内に気化、噴出し、断熱真空を破り、炉の運転はできなくなる。以下、アルゴン雰囲気での熱処理中に割れたジャケット材の組織分析によるき裂解析、引張性質の変化、並びにジャケット材の残留応力を明らかにし、インコロイ 908 熱処理中に起きた粒界割れの原因を、応力誘起粒界酸化との関連で考察する。

† 原稿受理 平成 10 年 5 月 6 日 Received May 6, 1998

* 正 会 員 日本原子力研究所東海研究所 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村, JAERI, Tokai-mura, Ibaraki, 319-1195

** 日本原子力研究所那珂研究所 〒311-0193 茨城県那珂郡那珂町, JAERI, Naka-machi, Ibaraki, 311-0193

2 実 験

2・1 供試材

インコイ 908 は、熱膨張係数が小さい Fe と Ni をベースにし、Cr を 4% 含む合金であり、その化学成分を Table I に示す。溶体化処理材の電解研磨後の組織写真を Fig. 1 に示す。結晶粒径は 10 ~ 50 μm である。650 $^{\circ}\text{C}$ の熱処理により (Ni, Fe) 3Al, Ti, Nb の γ' が析出する。¹⁾ 析出硬化後の室温における機械的強度を Table II に示す。尚、破断材の機械的強度試験結果も同時に示してある。

Table I. Chemical compositions of Incoloy 908 (wt%).

Fe	Ni	Cr	Mn	Si	Ti	Al	Cu	Nb	C
40.8	49.4	3.99	0.44	0.16	1.55	1.03	0.01	2.94	0.01
Co	P								
0.01	0.01

Fig. 1. Microstructure of Incoloy 908.

Table II. Mechanical properties of Incoloy 908.

Proof stress $\sigma_{0.2\%}$	Tensile strength σ_t		Elongation
	MPa	MPa	%
Test-1	1083	1299	13
Test-2	1053	1311	11
Test-3	1103	1327	13
Ref *	1075	1433	17

* : referred to PFC/RP94-2, MIT (1994)¹⁾

2・2 製造過程

超伝導素線をジャケット材に挿入後、矩形のジャケット材をローラーで 4 面同時圧延し、超伝導特性から定まる最適な内径に圧縮する (コンパクション)。このとき、ジャケット材の内孔はコンパクション後に超伝導素線の外径にほぼ等しくなるように予め設計し、素線に無理な荷重が加わらないようにしている。塑性加工プロセスによりジャケット材は外側 1 辺の長さ 53.1mm が 51.15mm

Fig. 2. Configuration of jacket material of Incoloy 908.

に狭まる (Fig. 2)。結果として長手方向に約 5% 伸びる。ジャケット材はコイル形状に曲げ加工後、外側表面に直径 1mm の鋼鉄球を 0.6MPa の圧力で打ち出すショットピーニングを施し、圧縮応力を残留させる処置をとった。

2・3 熱処理の方法

全長 100m 以上の超伝導素線入りジャケット材は、Fig. 3 に示すように CICC のコイル形状である直径 1.5m のドラム状に上下方向に 30 ターン巻き上げ後、その両端にあるリード部をたちあげ、熱処理炉内に設置した。熱処理炉内は、液体アルゴンから気化させたガスを精製した後、循環させ、不純物濃度を監視した。加熱方法はバーナーによる炉の外壁の直接加熱である。熱処理温度は素線の超伝導化温度である 650 $^{\circ}\text{C}$ 、熱処理時間は 240 時間である。

Fig. 3. Cable-in-Conduit Coil in the heat treatment furnace.

3 結果および考察

3・1 ジャケット材の割れ

熱処理開始後 45 時間で割れを示唆するガス漏れを検知した。熱処理時間 100 時間経過後に、炉を空冷、開放検査し、割れの発生を確認した。下部電流ターミナル部 (Fig. 4) の曲がり管部外側に、完全破断部 1 箇所 (き裂 A)、他にき裂線を 3 箇所 (き裂 B, C, D) 検出した。

Fig. 4. Location of cracks in the Incoloy 908 jacket.

3・2 き裂の組織分析

割れたジャケット材より採取したき裂 A を SEM 観察の結果, 金属光沢と茶色に変色した領域が混じり, 全域が粒界破面であった (Fig. 5). 茶色部は主にジャケット外側に見られた. 金属光沢部には特に多数の, 析出物と思われる $1\mu\text{m}$ 程度の細かな粒子が観察された (Fig. 6). オージェ分析の結果, インコロイ 908 の成分の他にいずれの色の破面から, 表面では O, S が検出された.

まだ完全に割れていないき裂 C を含むジャケット材を Fig. 7 のように切り出し, $p'-p''$ 面で二つに割り, 破面を SEM により観察した, き裂は板厚中央部で分岐し, かつ粒界に沿って貫通していることがわかった. 試料 R を mn 面で切り, き裂面 C-4 を観察の結果, ジャケット材の内側と外側が変色しているが, 中心部では色の変化が見られなかった (Fig. 8). したがって, き裂 C はジャケット材の内側と外側から独立に発生し, 板厚方向に成長したものと考えられた. 破壊はやはり粒界で生じており, 粒界面には析出物が見られた. 着色の原因を調べるため, 試料 L (Fig. 7) の表面を研磨後直ちに波長分散 X 線分光法 (WDX) による元素分析を Fe, C, Ni, O, Cr, Al, Ti, Nb について実施した. 分析地点は内側表面より 1mm のところにある C-2 (着色部) とほぼ板厚中央部に当たる C-3 (金属光沢部) である. Fig. 9 ~ 12 に それぞれの場所の反射電子像と酸素の面分析結果を示す. C-2 では割れた粒界に沿って酸素が検出されたが, C-3 では

Fig. 7. Location of Crack C-1, 2 and 3.

Fig. 8. The fracture surface in Crack-4: the top is the outer surface and the bottom is the inner surface.

Fig. 5. SEM observation of the fracture surface in Crack-A.

Fig. 6. Fine precipitates on the fracture surface in Crack-A.

Fig. 9. Back scattered image for Crack C-2.

Fig. 10. Oxygen mapping by WDX analyses for Crack C-2.

Fig. 11. Back scattered image for Crack C-3. 10 μ m

Fig. 12. Oxygen mapping by WDX analyses for Crack C-3. 10 μ m

検出限界以下であった。

応力誘起粒界酸化割れの機構を考察する上で重要と考えられるき裂先端部を試料 L の外表面より研磨して露出させた。き裂は粒界に沿って 3 次元的に分岐しており、先端縁の一部 C-1 について (Fig. 13, 14), EPMA による面分析を行った。その結果、酸素を含め特定の元素の集積は検出限界以下であった。

3・3 引張性質の変化

割れを起こしたコイル端部より (Fig. 15), 試験片 (JIS-Z2201, 5 号) を 3 本製作し、室温にて引張試験を行い、熱処理後の機械的強度の変化を調べた結果を

Fig. 15. Tensile test specimen; unit:mm.

Fig. 13. SEM observation for Crack C-1: a crack grew from bottom to top. 10 μ m

Fig. 14. Back scattered image for zoomed Crack C-1. 10 μ m

Table II に示す。引張強度および破断伸びとも熱処理後のインコロイ 908 のデータブック値¹⁾とほぼ対応しており、機械的性質が特に劣化していたということは認められず、この供試材特有の問題ではないことがわかる。

3・4 表面残留応力の測定

ショットピーニングの効果を調べるため、き裂が発生したジャケット材リード部の残留応力を X 線回折により測定した。測定場所はき裂 B の近くである。測定にはリガク社 MSF-2F を用い、Cu-K α X 線管球、管球電圧 / 電流 30kV/10mA で、並傾法により、回折面 (420), 回折角度 $2\theta_0 = 147.0^\circ$, 照射面積 64mm² の条件で実施した。

Fig. 16. Location for residual stress analyses by X-ray method.

測定場所は Fig.16 に示すように, 角部 (a) と角部より $D/4$ (b), $D/2$ (c) コンジット幅の点で応力の方向は上下の長手方向である. D は一辺の長さである. 測定の結果, a, b, c 点で -247 ± 51 , -296 ± 64 , -177 ± 50 MPa であり, 表面は圧縮の応力状態になっていることがわかった.

3・5 コンパクションの計算機シミュレーション

コンパクション後のショットピーニングがないジャケット材を, 無負荷で, 空气中 650°C で 240 時間加熱し, 応力誘起粒界酸化割れの実験を行った例を Fig. 17 に示す. 外側角部および端部から割れ, 破面は粒界であった. コンパクションによりジャケット材に残留する応力を評価するため, 実際の加工プロセスをジャケット材直管のローラーによる圧延でモデル化し, 数値シミュレーションを行った. すなわち, 外側 1 辺の長さ 53.1mm の矩形 4 面を同時にローラー圧延し, 1 辺の長さを 51.15mm に減少させた. 超伝導素線の変形は起こらないので考慮しない. 計算には陽解法による ABAQUS Explicit Version 5-6⁷⁾ を用いた. モデルは 1/2 断面, 長さ 100mm である.

Fig. 17. Typical SAGBO cracking for Incoloy 908.

Fig. 18. Stress strain curve for Incoloy 908.

Fig. 19. Compaction model.

ローラーは半径 20cm である. 用いた要素は, ジャケット材が 3 次元固体要素 C3D8R, ローラーは剛体要素 R3D4, インコロイ 908 の降伏応力は 320MPa, ローラーの半径は 20cm である. ジャケット材とローラーの接触部には潤滑剤を使用しないので摩擦係数を 0.3 と設定した. 要素総数は 4537, 節点総数は 6438, 計算に用いた

Fig. 20. Contour plotting of axial stress (S11): all of the outside surfaces were rolled to the direction 1 (unit: MPa).

Fig. 21. Contour plotting of circumferential stress (S33): all of the outside surfaces were rolled to the direction 1 (unit: MPa).

Fig. 22. Contour plotting of axial displacement (U1) (unit: mm).

室温における熱処理前の応力ひずみ曲線を Fig. 18 に、計算モデルの模式図を（ローラーは 2 つのみ図示）Fig. 19 に、計算結果を Fig. 20, 21, 22 に示す。軸 - 1 方向にはジャケット材の内側表面に圧縮の残留応力が 630MPa、外側には引張の残留応力 560MPa 生じることがわかった。残留応力の原因は、ジャケット内側のローラー塑性加工による変形量が外側より大きいこと（Fig. 22、中央部参照、両端は端部の影響大）、外側が引張られ、内側が圧縮されることにより生じることがわかった。また、コンパクションによる長手方向の伸びは約 5 % と計算されたが、この値は実際の値とおおよそ一致することが確かめられた。軸 - 3 方向には、Fig. 20 に示すように特に端部に引張の残留応力が 590MPa 生じることがわかった。これは計算機シミュレーションによる引張の残留応力が残る場所と符合している。

3・6 考察

応力誘起粒界酸化割れの必要条件として熱処理時における酸素の存在と引張応力の寄与が挙げられている。⁴⁾ ジャケット材とは別に溶体化処理材より製作した試験片にコンパクションで加えられる 5% の冷間加工を与え、真空中 10^{-7} Pa、応力 530MPa、650 °C で引張破壊させた実験結果を Fig. 21 に示す。破面は粒内のディンプル (Fig. 23) であり、応力誘起粒界酸化割れは起きなかった。

ジャケット材には熱処理時の表面に発生する SAGBO を回避するため、外側表面にショットピーニングを施してある。X 線残留応力測定の結果、表面は圧縮の応力状態になっており、この値はこれまでの開発研究で得られ

Fig. 23. Dimple pattern in the fracture surface of Incoloy 908 pulled from top to bottom.

Fig. 24. Shotpeening at the corner of the Incoloy 908 jacket.

た表面から 0.03 mm の範囲で 300 MPa 程度の圧縮応力が残留する結果と一致した。しかし、その後の詳細検査で 1mm 程度の面取りが行われた角部等にショットピーニングが不十分な場所が見つかり (Fig. 24 の中央部横方向)、カラーチェックの結果、その箇所に傷の指示があることがわかった。これはき裂の発生に引張応力が関係していることを示唆する。角部はショットピーニングがかかり難い場所でもあり実機製作への対策が図られることになった。

応力誘起粒界酸化割れのもう一つの要因である酸素は、ジャケット材板厚のほぼ中央に位置するき裂先端部 (Fig. 7) では検出限界以下であり、明確な粒界酸化物は見当たらなかった。ただし、微量酸素の検出は WDX では困難であり、き裂先端における酸素の存在の有無は今後の検討課題である。板厚中央のき裂先端以外の粒界破面には酸素が検出されたことから、熱処理中に炉内に酸素が存在したと疑われる。ジャケット内の超伝導素線の汚れをアセトンで抽出し、溶剤を除去後、赤外線分光装置により定性分析を行った結果、CH, C = O, OH が検出された。これは素線に (鉱物) 油が付着していたことを示しており、熱処理中に油に含まれた水分が、酸素の供給源となった可能性が考えられる。まとめると、割れのメカニズムとして、

- ① ジャケット材表面の酸素源 (油、水分による汚染)
- ② 塑性加工プロセスで発生した引張残留応力
- ③ 熱処理中に酸素源から発生した酸素

のため、環境鋭敏なインコロイ 908 の粒界が選択的に割れたものと考察できる。

き裂 C の解析では超伝導素線が挿入されるジャケット材内孔の表面からもき裂が進展し、軸方向応力が寄与したことを示した。計算機シミュレーションによるジャケット材直管のコンパクション終了後の応力状態は、ジャケット材内面に圧縮力が残留し、引張力は残留しなかった。したがって、内孔表面からのき裂の進展は上記考察と矛盾するように見えるが、さらに詳しく検討すると、Fig. 3 に示すように割れが発生した場所は、いったんコイル形状に曲げ変形させた後に、再度曲げ変形させて立ち上げたりード部であった。その後の研究^{8), 9)} から、曲げ変形させた後の除荷過程でジャケット材内面にも引張の残留応力が発生することが明らかになってきている。引張残留応力発生機構について、今後製造プロセスと関連して詳細な検討が必要と考える。いずれにせよ応力誘起粒界酸化割れを防止するため、超伝導素線の油を除去し、割れ発生温度 550 °C⁴⁾ の手前の温度でベーキングすることにより酸素を排除する必要がある。この処理を実行することによりその後の熱処理プロセスでは割れ発生の報告はない。

4 結 論

ITER に用いられる超伝導素線のジャケット材であるインコロイ 908 が熱処理中に粒界割れを起こした原因を応力誘起粒界酸化との関連で解析し、塑性加工プロセスを計算機シミュレーションし、割れの防止対策をまとめ

た。得られた結論は以下のとおりである。

(1) ジャケット材の外面からではなく内面からもき裂が粒界に沿って3次元的に進展している。

(2) き裂の先端縁をEPMAで面分析を行った結果、酸素を含め特定の元素の集積は検出限界以下であったが、き裂先端部以外の箇所では酸素の集積が認められる。

(3) コンパクションの計算機シミュレーションにより、ジャケット材は軸方向に5%伸び、外面には引張の、内面には圧縮の応力が残留することがわかった。ショットピーニングの無いジャケット材のき裂の発生位置は最大応力発生点と一致した。

(4) ショットピーニングはジャケット材外表面の割れを防止するために有効な表面処理方法となりうる。特にショットピーニングがかかりにくい角部は注意して処理する必要がある。

(5) 内表面における引張応力の発生を完全に抑止できない以上、超伝導化のための熱処理前に、応力誘起粒界酸化割れ発生温度550℃の手前の温度でベーキングし、酸素濃度を下げる必要がある。

本研究を遂行するに際し、日本原子力研究所超電導研究室辻博史室長および中島秀夫主任研究員、ブランケット研究室阿部哲也主任研究員、三菱電機㈱市原 直氏の協力を得た。記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) L. S. Toma, M. M. Steeves and R. P. Reed, "Incoloy Alloy 908 Data Handbook, PFC/RP-94-2", MIT (1994).
- 2) J. S. Smith, J. H. Weber and H. W. Sizek, *Advances in Cryogenic Engineering*, **42**, 407 (1996).
- 3) J. Feng and M. Steeves, "Fracture Mechanics Analysis of Incoloy Alloy 908 Conduits", PFC/RP-95-4, MIT (1995).
- 4) M. M. Morra, "Stress Assisted Intergranular Oxidation Cracking of Incoloy Alloy 908", PFC/RP-95-7, MIT (1995).
- 5) C. J. McMahon and L. F. Coffin, Jr., *Met. Trans. A*, **1**, 3443 (1970).
- 6) R. H. Bricknell and D. A. Woodford, *Met. Trans.*, **12A**, 1673 (1981).
- 7) ABAQUS/Explicit, user's manual V.5.6, Hibbitt, Karlsson & Sorensen, Inc. (1996).
- 8) 加治芳行, 菊地賢司, 駒田至秀, 杉本 誠, 日本機械学会講演論文集, No.98-1, 273 (1998).
- 9) Y. Tsuchiya, N. Nakashima, Y. Mori, T. Kato, H. Nakajima, K. Hamada, I. Watanabe, K. Ishio, T. Abe and H. Tsuji, *Physica B*, 241 (1998).