

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03899

研究課題名(和文)核融合炉ダイバータ材ブレイジング接合界面での照射欠陥を伴う熱的三次元組織変化解析

研究課題名(英文) Analysis of thermal three-dimensional microstructural change with irradiation defects at the brazing joint interface of fusion reactor divertor materials

研究代表者

嶋田 雄介 (Shimada, Yusuke)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：20756572

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：核融合炉ダイバータ材は高温かつ高い中性子影響下に置かれる構造部材である。そのため、高い熱伝導性と耐照射性が必要となることから、タングステンと銅の接合材が候補材料として挙げられている。

本研究では、作製した接合模擬材を作製について構造・照射影響解明のため、材料特性の特異点となる異種金属界面に注目した空間的または時間的な三次元組織解析を実施した。その結果、接合面にはろう材に含まれるニッケルとタングステンの金属間化合物が、界面を被覆するように析出することがわかった。ガリウムイオンで照射ダメージを導入した加熱観察では、300℃程度で欠陥の回復ならびに酸化物表面構造に変化がないことを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題は、核融合炉ダイバータ材における接合組織並びに照射影響について解明を目指したものである。特に、組織解析に空間的・時間的な三次元観察手法を取り入れることで、サブミクロンスケールでの三次元形態や加熱環境下における原子レベルでの構造の時間変化を見出すことに成功している。本成果は、今後の接合材作製におけるプロセス改善のための解析手法として、これら三次元観察が有用であることを示すだけでなく、本研究プロセスそのものが、効率的な核融合材に限らない異種界面を有する材料開発においても有用であると考えられることから意義のあるものと言える。

研究成果の概要(英文)：Fusion reactor divertor materials are structural components that are exposed to high temperatures and high neutron irradiation. Therefore, high thermal conductivity and irradiation resistance are required, and tungsten-copper bonding materials have been identified as candidate materials.

In this study, spatial or temporal three-dimensional microstructural analysis focusing on the different metal interfaces, which are singular points of material properties, was performed to elucidate the structural and irradiation effects on the fabricated brazing mock-up materials. As a result, it was found that the intermetallic compound of nickel included in the brazing material and tungsten precipitated on the bonding surface to cover the interface. The in-situ heating observation, in which irradiation damage was introduced with gallium ions, found no change in the oxide surface structure while defect recovery was observed at about 300°C.

研究分野：材料組織学

キーワード：核融合材料 三次元組織 電子顕微鏡 界面

1. 研究開始当初の背景

(1)核融合炉用ダイバータは炉内にて生成した不純物を取り除く構造体であり、入射するプラズマから極めて高い熱負荷を受け、中性子による脆化の影響も受ける。こうした過酷環境に耐えるため、ダイバータは内側にアーマータ材として耐放射性の高いタングステンと、外側にヒートシンク材として除熱性の高いCu合金とを接合させた設計がなされている。これらWやCu合金それぞれにおいて実機環境を想定した照射実験や強度測定といった研究は数多く行われている一方で、これらの構造材の接合についての研究は各々の材料開発研究と比較すると数は少ないのが現状である。ダイバータ材における接合手法として、金属ろう材BNi-6(組成: Ni-11%P)を用いたブレイジング接合が提唱されている(M. Tokitani *et al.* Nucl. Fusion 57 (2017) 076009)。ブレイジング接合の特徴は低融点の金属ろうを用いることで母相金属を溶解することなく接合できることにある。そのため、一般的には接合界面や周囲の熱影響部は構造材料の弱点となることが多いが、このW/BNi-6/酸化物分散強化銅(ODS-Cu: Oxide Dispersion Strengthened Copper Alloy)接合体は、接合後は200°Cでも高い強度を有することも報告され、ダイバータの設計材料として有用なものと期待される。ただし一方で、異種金属接合界面においては界面付近に複数の元素が存在することからそもそも熱影響を受けやすく、さらにここに照射欠陥が分布したときに想定しない組織変化を起こす可能性がある。他にも空孔拡散により照射欠陥のクラスタリングなどによってクラック発生源を形成させる恐れもあるなど、その現象の理解は実用において非常に重要な知見となる。

(2)これまでブレイジング接合界面における照射効果について明確にされていないことの要因として、熱影響部には異種金属が存在するだけでなく、照射欠陥としての空孔形成に伴うそれらの原子の照射誘起溶出などにより複雑な原子レベルでの熱的な組織変化過程を考慮する必要があることが考えられる。さらに発生した欠陥の成長過程やそれが粒界や界面においてクラックの要因となるかはその空間分布状態を定量的に解析することが不可欠であり、通常の顕微鏡による平面観察だけでは困難であることから、メゾ・ナノスケールでの三次元組織評価を行う必要がある。

2. 研究の目的

本研究では核融合炉用ダイバータ材を対象材料とし、まずは接合界面付近の熱影響部におけるマルチスケール組織について各種顕微鏡技法を用いて解明を行う。最終的には界面における照射欠陥を伴う熱的組織変化のナノスケール追跡により異種金属界面への照射効果を材料組織学的に追求・解明することを目的としている。

3. 研究の方法

(1)本研究ではまず、ダイバータ模擬材の作製を行った。純W板と鏡面研磨を施したODS-Cu合金(Gridcop®)間にペースト状のBNi-6粉末を塗布し、ホットプレスにて20MPa下で950°C-10分の条件によって接合を実施した。また加熱観察用には我々が開発を進めているY₂O₃分散Cu合金を使用した。

(2)W/Cu接合体界面のマルチスケール解析は、各種電子顕微鏡法を用いて行った。観察前処理としてはまず、接合体をワイヤーソーにより切断し、断面を鏡面研磨することで走査電子顕微鏡(SEM: Scanning Electron Microscopy)観察用試料を作製した。その後、得られた断面試料から集束イオンビーム(FIB)装置によるマイクロサンプリングにより、透過電子顕微鏡(TEM: Transmission Electron Microscopy)観察用薄膜試料を作製した。

電子顕微鏡観察では通常の像観察のほか、後方散乱電子線回折(EBSD: Electron Back-scattered diffraction)による結晶粒径、ひずみ測定や、走査透過電子顕微鏡法(STEM: Scanning Transmission Electron Microscopy)およびエネルギー分散型X線分光法(EDS: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)を用いた組成分析を実施した。また、本課題の特徴として、組織解析法に空間的および時間的な三次元観察を取り入れた。空間的三次元観察として、FIB-SEMを用いたシリアルセクションングを実施した。本手法は、我々の研究において本課題開始前からメカニカルアロイングで作製したODS-Cu合金における脆性破壊の要因となる粗大酸化物の偏在を見出している(図1)。また、時間的三次元観察としては、我々のグループにて開発を行ったTEM内その場加熱観察システム(Y. Shimada *et al.* Microsc., 68, (2019)

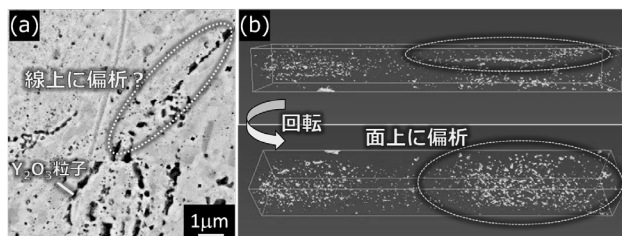


図1 ODS-Cuの(a)SEM反射電子像および(b)Y₂O₃粒子のみを抽出した三次元再構築像を示す。

を用いたシリアルセクションングを実施した。本手法は、我々の研究において本課題開始前からメカニカルアロイングで作製したODS-Cu合金における脆性破壊の要因となる粗大酸化物の偏在を見出している(図1)。また、時間的三次元観察としては、我々のグループにて開発を行ったTEM内その場加熱観察システム(Y. Shimada *et al.* Microsc., 68, (2019)

271–278) を用いた熱的組織変化解析を行った。特に、本システムの長所である温度安定性から、原子分解能での温度保持観察を試みた。

4. 研究成果

図2に作製した模擬材の断面 SEM 二次電子像(a)、EBSD により得られた逆極点図マップ(b)ならびに KAM (Kernel Average Misorientation) マップを示す。二次電子像において W と Cu の界面に、暗く見えるポイド (図中矢印) と W と Cu の中間輝度を持つ第二相 (図中丸印) が形成していることがわかる。逆極点図マップからは、界面から離れた Cu 領域では、もとの Gridcop 特有の圧延組織が残存している一方で、界面から 20 μm までの Cu 粒には熱影響による結晶粒径の粗大化や球形化がみられる。さらに、結晶粒のひずみ分布を示す KAM マップにおいても、熱影響部はひずみ量が少なく、本領域における粒成長を示す結果が得られている。

図3に接合界面の TEM/STEM 観察結果を示す。質量・厚みコントラストをもつ高角環状暗視野 (HAADF: High Angle Annular Dark Field) -STEM 像(a)において、いくつかの輝度領域がみられる。それぞれの領域から電子回折および EDS 組成分析結果を得た結果、ろう材の Ni に注目すると、Cu 中に固溶(A)、W との化合物である NiW_2 を形成(C)、ろう材のまま残存(E)となっていることがわかる。特に NiW_2 は Cu 領域内にも形成することから、これは Ni があることで W 原子が Cu 領域に侵入することを示している。また、(a)と同一視野の低角環状暗視野 (LAADF: Low Angle Annular Dark Field) -STEM 像では、Cu 領域にのみ粒内ひずみが残存しており、これは図2(c)と一致するものである。一部拡大した LAADF-STEM 像(c)では、明るく見える NiW_2 粒が Cu 粒界に、暗く見える Al_2O_3 粒子が粒界ならびに粒内のひずみ領域に分布していることがわかる。

図4に W/Cu 界面付近のメソスケール三次元組織観察結果を示す。三次元 SEM 像(a)では、界面の NiW_2 を赤色、ポイドを青色で示している。その結果、まず界面は完全な平坦ではないことから、接合はできていると思われる。 NiW_2 は、界面のほとんどを被覆するように分布しており、また、ポイドは NiW_2 と Cu の間に形成していた。これは、ブレージング接合において、W 表面では NiW_2 が形成するとともに、Cu 表面では Ni の Cu 中への拡散によるポイドの形成が起きた

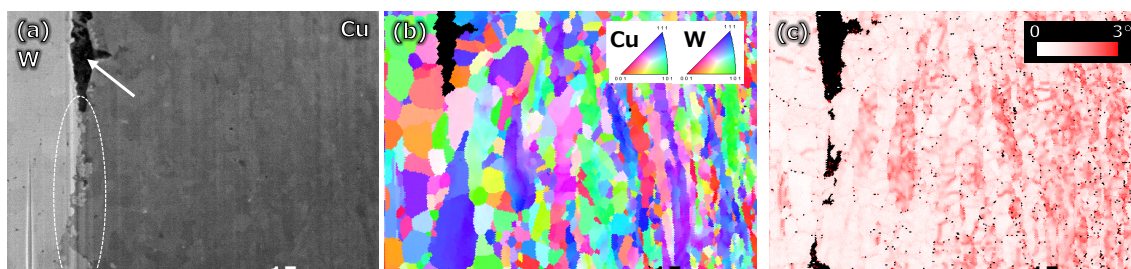


図2 作製した模擬材の断面 SEM 二次電子像(a)、ほぼ同一視野から取得した EBSD により得られた逆極点図マップ(b)ならびに KAM マップを示す。図(a)中の矢印は W/Cu 界面上に形成したポイドを、同じく丸印は析出した第二相粒子を示している。

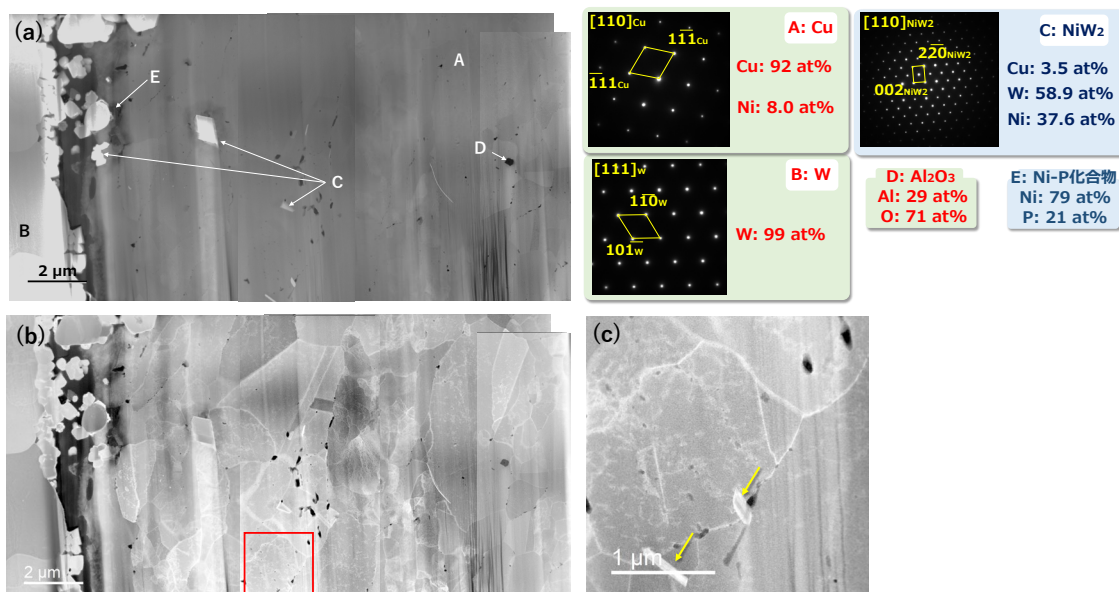


図3 接合界面の HAADF-STEM 像ならびに図(a)中に示す A-E の領域における電子回折図形と EDS 元素分析結果(a)。W と酸化物領域以外すべての領域において Ni 原子の存在がみられる。(a)と同一視野の LAADF-STEM 像(b)と図(b)中で囲んだ領域の拡大 LAADF-STEM 像(c)では、図(c)中に矢印で示すように NiW_2 粒が Cu 粒界上に分布していることがわかる。

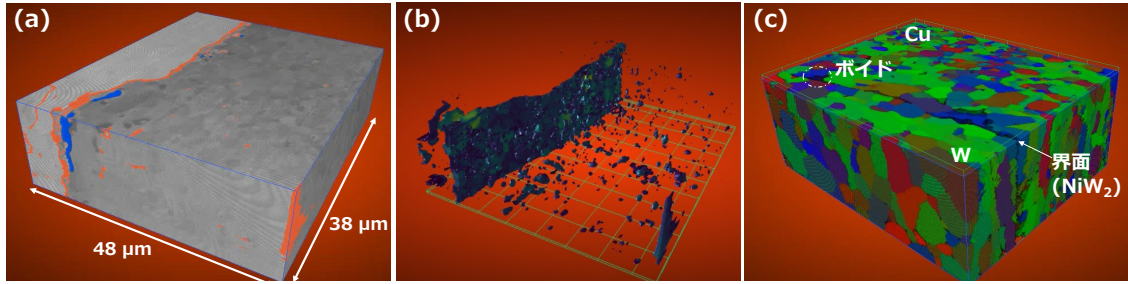


図 4 W/Cu 界面付近の三次元 SEM 二次電子像(a)と NiW₂ のみを抽出した再構築像(b)、3D-EBSD により取得した三次元 IPF マップ(c)を示す。図(a)中では、NiW₂相を赤色、ポイドを青色で示している。

ことを示唆している。一方で、W 相には異種元素も存在しておらず、また 3D-IPF マップ(c)からみられるように結晶粒も粒径が揃った球形のもともとのものらしき組織が残っていることから、本ブレージング接合では Ni 原子の反応による NiW₂ の形成というステップが Cu と W の接合プロセスに寄与したこと示唆された。

図 5 に、FIB によりガリウムイオン照射を行った Y₂O₃ 分散 Cu 合金における熱的組織変化観察結果を示す。室温 (R.T.) 観察では、LAADF-STEM 像(a)でみられるように Cu 粒内に多数の輝点ならびに明線がみられる。これは、輝点は照射ダメージにより形成した結晶欠陥であり、明線はもともと導入されている転位がみえている。図中の四角で示した粒界上の酸化物と Cu の界面における原子分解能 HAADF-STEM 像(b)では、方位関係なども持たないランダムな界面であることがわかる。これを 400°C に加熱した LAADF-STEM 像(c)では、照射欠陥のみが回復によって消失し、線状にみられた転位はほとんどそのまま残存している。ここで、照射欠陥は 300°C あたりで変化が始まり、400°C ではほとんど消失した。また、酸化物と Cu 界面での原子構造は 400°C でも変化はなく、異相やポイドの形成などはみられなかった(d)。400°C での観察後、R.T. に戻り取得した LAADF-STEM 像(e)と領域“A”における EDS により取得した Cu (f) と Y (g) 元素マップを示す。Cu 粒内の 10 nm 程度の酸化物粒子は加熱によっても変化することなく残存し、さらに一部の転位が酸化物粒子と相互作用を起こしている様子がみられている。これは、図 3(c) でみられた粒内分散酸化物粒子のまわりにひずみ領域が存在していた知見と一致している。つまり、本結果は合金設計時の狙いの通り、分散させた酸化物粒子が実用温度域において安定に存在し、転位運動の阻害していることを示唆しているものと考えられる。

以上の知見から、W/Cu 接合材を作製するうえでプロセス設計上に重要となる組織は、ろう材の反応に伴い発生する接合熱影響部の、特に形成する金属間化合物層とポイドの制御であり、その後の実用温度環境においては高い組織安定性を有することがわかった

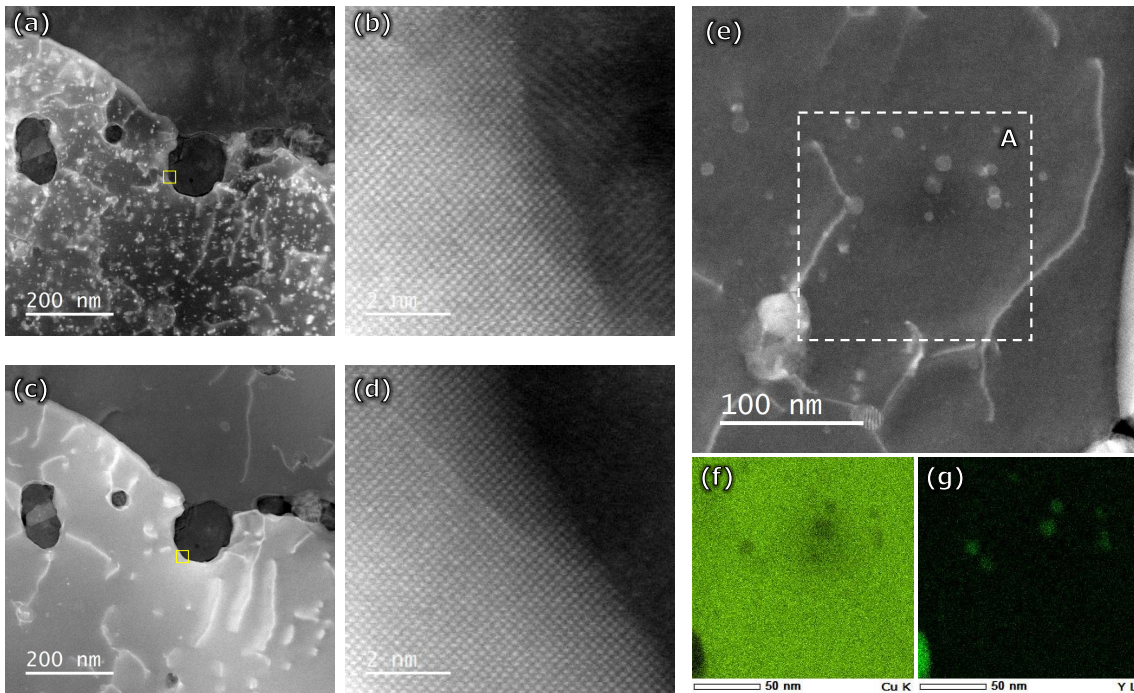


図 5 ガリウムイオン照射を行った Y₂O₃ 分散 Cu 合金における熱的組織変化観察結果。R.T.(a)(b)および 400°C(c)(d)における低倍 LAADF-STEM 像ならびに図中四角で示した Cu と Y₂O₃ 粒子界面の原子分解能 HAADF-STEM 像。400°C での保持後、R.T. に戻り取得した LAADF-STEM 像(e)と図中“A”における Cu(f)および Y(g)元素マップ。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shimada Yusuke, Mizumoto Masataka, Hishinuma Yoshimitsu, Ikeda Ken-ichi, Yoshida Kenta, Noto Hiroyuki, Ma Bing, Muroga Takeo, Nagai Yasuyoshi, Konno Toyohiko J.	4. 巻 173
2. 論文標題 Microstructural changes of oxide dispersion strengthened copper powders fabricated by mechanical alloying	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 112804 ~ 112804
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/J.FUSENGDES.2021.112804	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shimada Yusuke, Kazukawa Makoto, Hishinuma Yoshimitsu, Ikeda Ken-ichi, Noto Hiroyuki, Ma Bing, Takeguchi Masaki, Muroga Takeo, Konno Toyohiko J.	4. 巻 14
2. 論文標題 Multiscale structural characterization of yttria dispersed copper alloys fabricated by hot isostatic processing of mechanically alloyed powders	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 100892 ~ 100892
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.mtla.2020.100892	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shimada Yusuke, Ikeda Yuki, Yoshida Kenta, Sato Mitsutaka, Chen Jiao, Du Yufeng, Inoue Koji, Robert Maass, Nagai Yasuyoshi, Konno Toyohiko	4. 巻 131
2. 論文標題 In situ thermal annealing transmission electron microscopy of irradiation induced Fe nanoparticle precipitation in Fe-Si alloy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 164902 ~ 164902
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0070471	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Shimada Yusuke, Tokuta Shinnosuke, Yamanaka Akinori, Yamamoto Akiyasu, Konno Toyohiko J.	4. 巻 923
2. 論文標題 Three-dimensional microstructure and critical current properties of ultrafine grain Ba(Fe,Co)2As2 bulk superconductors	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 166358 ~ 166358
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jallcom.2022.166358	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 嶋田 雄介, 陳 嬌, 原田 寛大, 池田裕樹, 杜 玉峰, 吉田 健太, 井上 耕治, 渡邊 英雄, 今野 豊彦, 永井 康介
2. 発表標題 電子線照射欠陥の成長メカニズム解明に向けた 新規その場加熱観察法の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 嶋田雄介, 中嶋優汰, 菱沼良光, 池田賢一, 能登裕之, 室賀健夫, 吉田健太, 今野豊彦, 永井康介
2. 発表標題 MA-HIP法により作製したCu-Y化合物添加ODS-Cu合金の微細組織解析
3. 学会等名 日本金属学会第170回春季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 嶋田 雄介, 吉田 健太, 杜 玉峰, 陳 嬌, 原田 寛大, 井上 耕治, 今野 豊彦, 永井 康介
2. 発表標題 過酷環境下における原子分解能その場加熱観察手法の開発
3. 学会等名 第167回金属学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 嶋田雄介, 水本政隆, 菱沼良光, 池田賢一, 吉田健太, 能登裕之, Ma Bing, 室賀健夫, 永井康介, 今野豊彦
2. 発表標題 メカニカルアロイングODS-Cu粉末の熱的組織変化
3. 学会等名 第168回金属学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Shimada, M. Mizumoto, Y. Hishinuma, B. Ma, K. Ikeda, H. Noto, T. Muroga, T. J. Konno
2. 発表標題 Microstructural changes of oxide dispersion strengthened copper powders fabricated by mechanical alloying
3. 学会等名 31st Symposium on Fusion Technology (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 嶋田雄介
2. 発表標題 電子顕微鏡その場加熱観察による金属材料の熱的組織変化解析
3. 学会等名 大洗・アルファ合同研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	吉田 健太 (Yoshida Kenta) (10581118)	東北大学・金属材料研究所・准教授 (11301)	
研究分担者	菱沼 良光 (Hishinuma Yoshimitsu) (00322529)	核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授 (63902)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------