



研究論文

YAG レーザー溶接された V-4Cr-4Ti 合金の照射組織に及ぼす 溶接後熱処理の効果

渡辺 英雄, 山崎 和宏¹⁾, 東嶋 彬¹⁾, 吉田 直亮,
長坂 琢也²⁾, 室賀 健夫²⁾, 許 男鎮²⁾, 篠崎 賢二³⁾

(九州大学応用力学研究所, ¹⁾九州大学総合理工学府, ²⁾核融合科学研究所, ³⁾広島大学工学部)

(原稿受付: 2007年9月20日 / 原稿受理: 2007年11月21日)

核融合科学研究所 (NIFS) にて開発された低放射性 V-4Cr-4Ti 合金の YAG レーザー溶接材の照射環境下での溶接後熱処理 (PWHT) の影響を九州大学応用力学設置のタンデム型加速器を用いて考察した. 873 K での溶接後熱処理により, Ti (O, C, N) 析出物が島状に形成される領域とされない領域が形成されるが, これらの領域の形成が照射前の硬度・シャルピー衝撃特性の回復と密接な関連がある. 溶接後熱処理は低温照射 (573 K) で高い照射量までその効果が期待できるが, 873K 照射では新たに微細な Ti(O, C, N) 析出物が形成され, これにより硬度が上昇することが明らかになった.

Keywords:

postwelding heat treatment, dislocation loops, ion irradiation, Ti (O, C, N) precipitates

1. 緒言

核融合科学研究所 (以下, NIFS と呼ぶ) で開発された V-4Cr-4Ti 合金 [1-3] (以下, NIFS-HEAT 2 と呼ぶ) は, 160 kg を超える大型溶解にもかかわらず, 米国で製作された同種の大型溶解 [4, 5] に比べ, 酸素濃度を 1/2 から 1/3 の 148 (wt ppm) 程度まで低減し, Nb 等の放射化不純物も大幅に低減することに成功した. 一方, 核融合炉等の大型構造物の製作には, 各種の溶接 [6-8], セラミックス・金属接合や管材化 [9] 等の技術開発が必要で, この溶接材の照射効果に関連しても精力的な研究 [10, 11] がなされている.

一般に溶接金属は溶融部が急冷硬化しており, したがって硬度は上昇するが延性が低下することが知られている. また, この硬化部では溶接に伴う各種の欠陥により, 溶接割れなどが生じやすい. 本合金においてもレーザー溶接に伴い溶融部の硬化が起こっており, 機械的特性の低下が懸念され, 溶接後熱処理による溶接残留応力の低減が必要とされる [12, 13]. そこで本研究では, レーザー溶接された NIFS-HEAT 2 に対して最適な溶接後熱処理条件を検討し, 熱処理を施した後の内部組織観察および照射実験を行うことにより, より大型構造物の使用環境を模擬した溶接材料の開発を目的とした.

2. 実験方法

本研究に用いた試料は, 厚さ 4 mm の NIFS-HEAT2 の板状試料を 1273 K (2 hr) の真空焼鈍後, YAG レーザーを高純度のアルゴン雰囲気中で試料面に対して垂直に入射する

方法 (Bead on plate) により作製 (この Bead on plate 法の詳細については, 論文 [8] 参考のこと) した. 試料をレーザー照射方向に平行, 溶接進行方向に垂直な面に切り出した後, 厚さを 0.1 から 0.25 mm 程度まで機械研磨により薄くした. 電子顕微鏡用の試料は, 切断時に侵入した水素除去の目的で 673 K (2 hr) の焼鈍を真空中で行った後, 溶融部 (Weld 部) 中心から HAZ 部, 非溶融部へと直径 3 mm の円盤試料に打ち抜き作製した.

溶接後, 溶融部中心から 1 mm の部分のみを切り出し各種不純物元素の分析を行い, 溶接前と比較した結果を表 1 に示す. これより, 内部酸素量が 139 から 158 (wt ppm) とわずかに増加するが, 溶接に伴う顕著な不純物元素の混入はないことがわかる. 重イオン照射は九州大学応用力学研究所設置のタンデム型加速器を用い, 2.4 MeV の Cu^{2+} イオンを試料面に対して垂直に照射した. 照射条件は, 低温 (573 K) および高温 (873 K) において 0.75 から 12 dpa までの照射を, 照射強度, 5.4×10^{-4} (dpa/s) で行った.

内部組織の観察は, 損傷ピーク近傍 (500 nm) まで研磨した後, 背面研磨法により薄膜化し, 透過電子顕微鏡観察を実施した. 微小転位ループの型 (格子間原子型あるいは

表 1 本研究に用いた試料の溶接前後の不純物分析結果.

	H	C	N	O
Before welding	29	51	123	139
Weld metal	35	49	129	158

(wt ppm)

The Effects of Postwelding Heat Treatment on Microstructural Evolution of Yag Laser Welded V-4Cr-4Ti Alloy

WATANABE Hideo, YAMASAKI Kazuhiro, HIGASHIJIMA Akira, YOSHIDA Naoaki, NAGASAKA Takuya, MUROGA Takeo, HEO Nam-Jin and

SINOZAKI Kenji

author's e-mail: watanabe@riam.kyushu-u.ac.jp

空孔型) 判定には、超高压電子顕微鏡 (HVEM) を用いて、室温にて電子線を照射し決定した (イオン照射した NIFS-HEAT2 の電子線照射によるループの型判定に関しては、論文[14]を参考のこと)。また、超微小押し込み試験機にて損傷ピーク近傍の硬度変化を測定し、これより照射領域のビッカース硬さを算出し[14, 15], 照射前後で比較した。

3. 実験結果および考察

3.1 溶接後熱処理の必要性について

図 1, 図 2 に溶接材, 非溶接材に対して真空中で 873 K および 973 K で 1 hr から 3000 hr までの熱処理を行ない, ビッカース硬度試験およびシャルピー衝撃試験を行った結果を示す[12]。熱処理には酸素の混入を抑制する目的で Zr 箔にて試料を覆い, 石英管に真空封入して実施した[16]。図 3 に 873 K での熱処理を実施した後, 電子顕微鏡により観察した溶融部での内部組織の熱処理時間依存性を示す。詳細な観察の結果, 熱処理時間が 1 hr から 10 hr ですでに微細な Ti (O, C, N) 析出物が高密度に形成され, これに伴いビッカース硬さが上昇していることがわかる。一方, 100 hr 以上の熱処理を実施すると, 板状の Ti (O, C, N) 析出物が成長・集合化 (島状) して, ビッカース硬度およびシャルピー衝撃特性が回復する。以上の結果より, 本溶接材料における最適な熱処理条件として, 板状 Ti (O, C, N) 析出物の成長・集合化が不可欠であることがわかった。この板状 Ti (O, C, N) 析出物の成長・集合化が熱処理温度とも密接な関連があるが, 873 K では 1000 hr 程度である。

図 4 に, 873 K, 1000 hr の熱処理を行った溶融部中心, およびこの場所から 5 mm, 10 mm (母材に対応) 離れた箇所での内部組織観察を行った結果を示す。溶融部においてのみ Ti (O, C, N) 析出物が集合して島状に析出しているのが観察され, この結果は図 3 と一致した。また, 5 mm, 10 mm 離れた試料では 1000 hr の熱処理前にも観察された塊状の Ti (O, C, N) 析出物が観察された。図 4 (上

段) の溶融部中に示した暗視野像は電子線回折図の析出物からのストリークで結像したものであり, 島状に析出したものが, $\langle 100 \rangle$ 方向に成長した Ti (O, C, N) 析出物であることが示された。図 4 (下段) では, 溶融部で島状に析出している領域 (Ti (O, C, N) 集合部) と析出のない領域

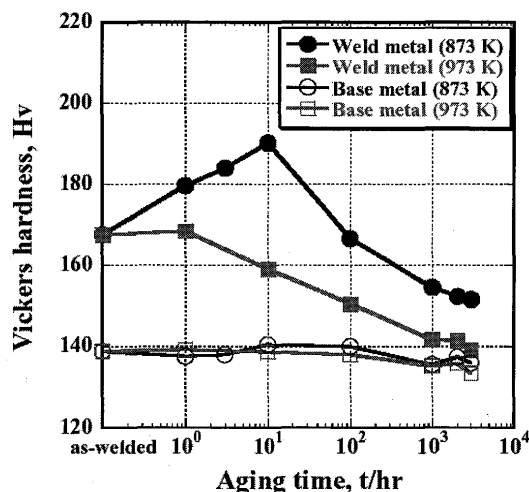


図 1 ビッカース硬度の 873 K および 973 K 熱処理時間依存性。

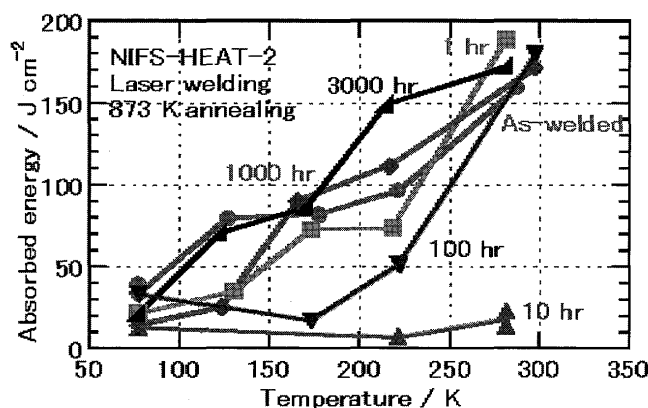


図 2 吸収エネルギーの熱処理時間依存性 (873 K)。

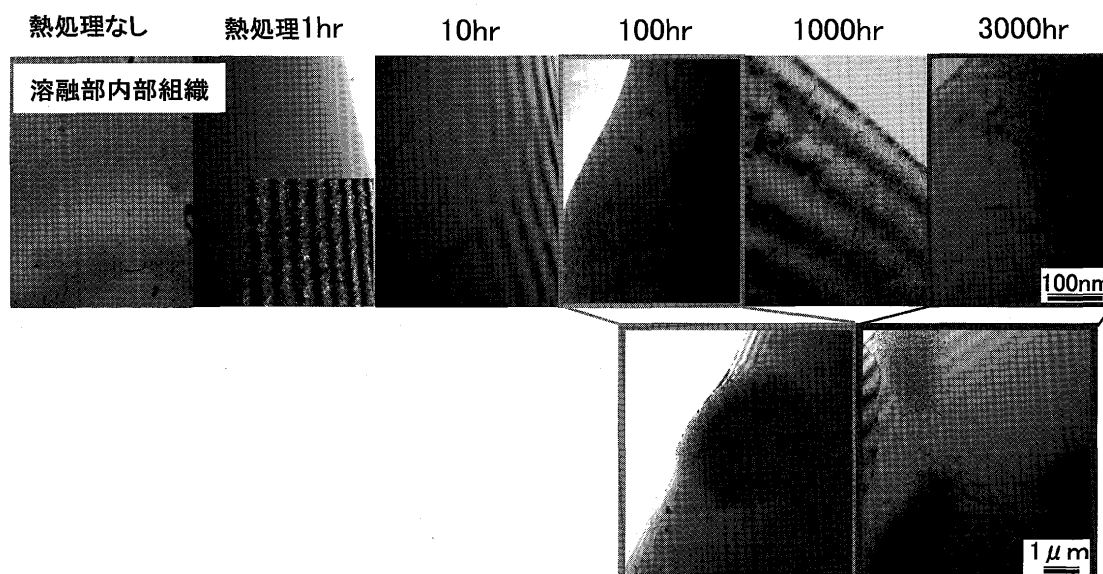


図 3 内部組織 (溶融部) の熱処理時間依存性。

(非集合部)に分けて観察した結果を示している。Ti(O, C, N)析出物集合部では、板状のTi(O, C, N)が高密度に析出しているのに対し、非集合部では析出は観察されない。一方、5 mm, 10 mm 離れた試料では微細なTi(O, C, N)析出物が観察された。

3.2 低温 (573 K) における照射効果

図5に1000 hrの熱処理後の溶融部より5および10 mmにおける場所で573 Kで重イオン照射実験を行い、内部組織を観察した結果を示す。図では、溶融部ではTi(O, C, N)析出物の集合部と非集合部を区別して示している。

溶融部では照射後、いずれもドット状の微小欠陥集合体が高密度に形成された。0.75 dpa 照射により形成された微小欠陥集合体の数密度は、Ti(O, C, N)集合部： $4.1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 、非集合部： $3.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 、1000 hr 熱処理のない試料： $4.7 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ であり、非集合部において微小欠陥の形成が抑制される傾向が見られた。7.5 dpa 照射後の微小欠陥集合体数密度は、Ti(O, C, N)集合部： $8.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 、非集合部： $9.8 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 、1000 hr 熱処理のない試料： $1.0 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ であり、Ti(O, C, N)集合部において微小欠陥の形成が抑制された。

一方、溶融部より10 mm離れた試料においても、溶融部と同様にドット状の微小欠陥集合体が高密度に観察された。しかしながら、いずれの照射量においても照射後の微小欠陥数密度は熱処理の有無による有意な差は確認されなかった。したがって、組織観察から溶融部では熱処理の影響は確認されたが非溶融部ではその影響は顕著ではない。

図6に1000 hr 熱処理後の溶融部および溶融部から10 mmの場所における573 Kでの重イオン照射実験後の超微小押し込み硬さの試験結果を示す。図では比較のため、溶接後の熱処理を行っていない試料の硬度測定結果も合わせて示している。溶融部では照射量の増加に伴い硬度の上昇が見られた。7.5 dpa 照射後には、ビッカース硬さが350程度まで上昇しており、熱処理を行う前の約1.5倍近くの硬

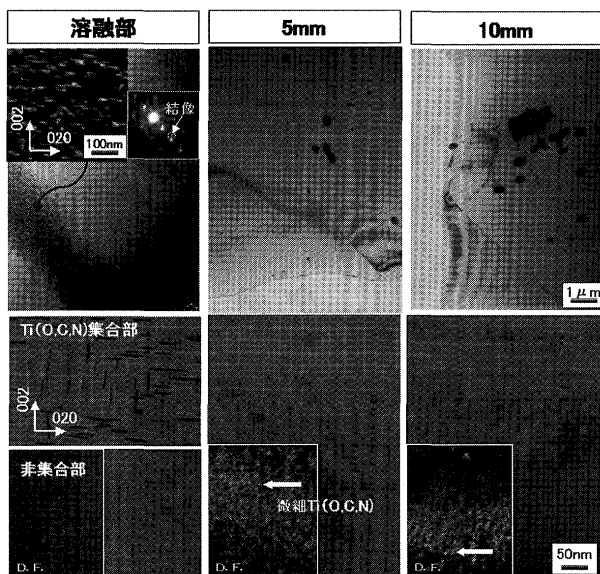


図4 873 K, 1000 hr 熱処理時の各領域における内部組織 (上段：低倍率, 下段：高倍率)。

度を示すことが明らかになった。また、溶融部より10 mm離れた試料では、熱処理によりビッカース硬度が350程度まで上昇し、顕著な硬化を示すが、照射量が増加してもほぼ一定の硬度 (約350) を示している。

これまでに著者ら[10, 12]は、JMTRを用いた低照射量 (約0.1 dpa) の中性子照射実験より、この温度領域での硬化の主要な原因は照射に伴う格子間原子型転位ループの形成であり、この温度領域では溶接後の熱処理が照射後の硬度上昇を抑制することに効果的であることを明らかにしている。本実験結果は、このメカニズムが高照射領域まで有効であることを示しているが、本研究で実施した長時間の熱処理 (873 K, 1000 hr) により微小なTi(O, C, N)析出物の形成とこれに伴う母材の硬度上昇も否定できず、より詳細な検討が今後必要となる。

3.3 高温 (873 K) における照射効果

図7に1000 hr 熱処理後の溶融部に873 Kで重イオンを12 dpaまで照射し、内部組織を観察した結果を示す。溶融部では、内部組織をTi(O, C, N)析出物の集合した部分と非集合部に区別して行った。島状に集合した部分では、Ti(O, C, N)析出物は、照射量の増加に伴い数密度は一旦減少

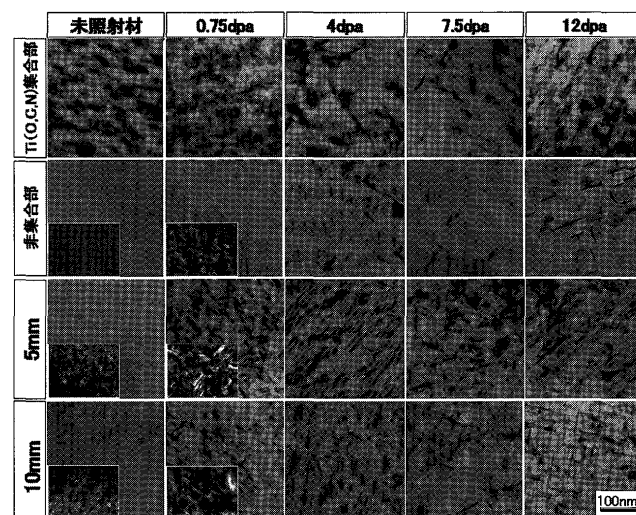


図5 573 K照射時の内部組織の照射量依存性 (溶融部および溶融部より5, 10 mmの場所)。

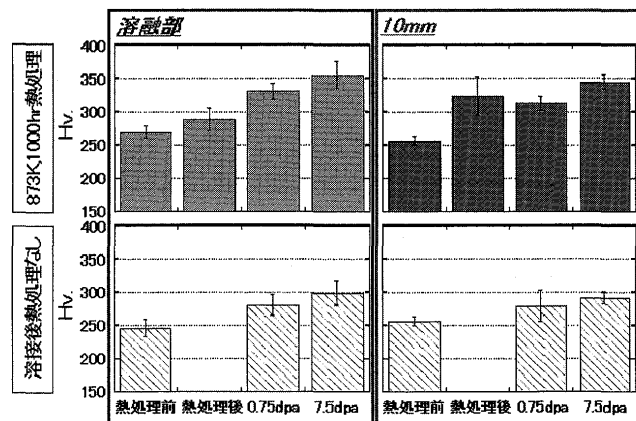


図6 溶融部および10 mm位置での照射による硬度変化 (573 K)。

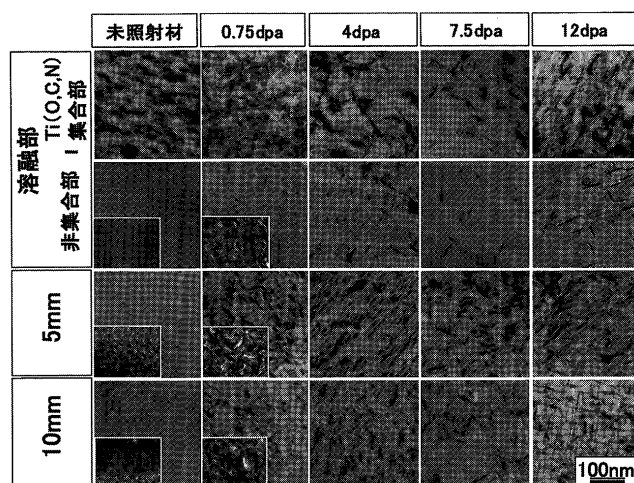


図7 873 K 照射時の内部組織の照射量依存性.

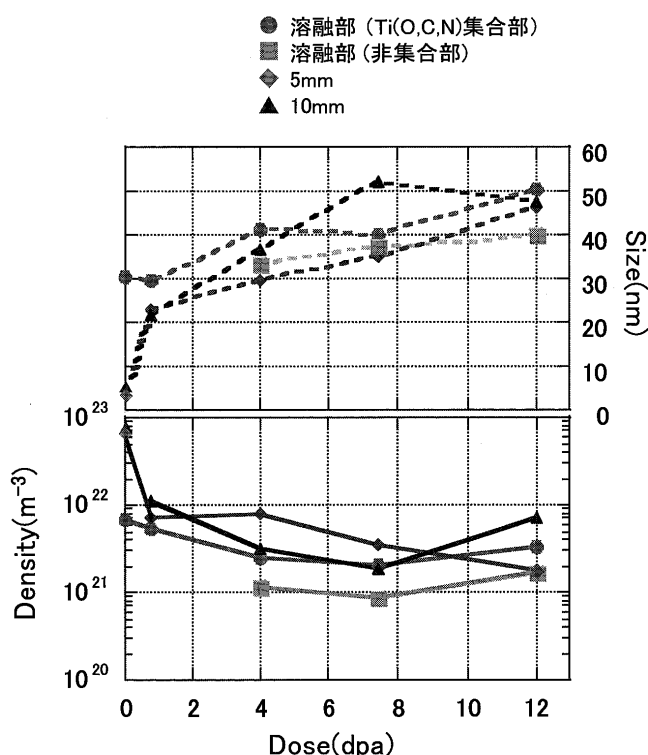


図8 873 K照射時のチタン析出物サイズ・密度の照射量依存性.

する。12 dpa では新たに形成される Ti (O, C, N) 析出物と集合, 合体を繰り返し, 比較的大きく成長した Ti(O, C, N) 析出物が観察されている。一方, 非集合部では, 照射による板状の Ti (O, C, N) 析出物の形成は, 4 dpa 程度まで抑制された。4 dpa でわずかに形成された Ti (O, C, N) 析出物は, 照射量の増加に伴い成長し, 数密度も増加した。溶融部から 5 mm, 10 mm の各試料では, 0.75 dpa 照射により板状の Ti (O, C, N) 析出物が形成され, 照射量の増加に伴い成長・粗大化した。いずれの試料においても, 照射量の増加に伴い, ほぼ単調にサイズは増加し, 粗大化の傾向を示した。

図8に Ti (O, C, N) 析出物数密度およびサイズの照射量依存性をプロットした結果を示す。各試料の数密度を比較

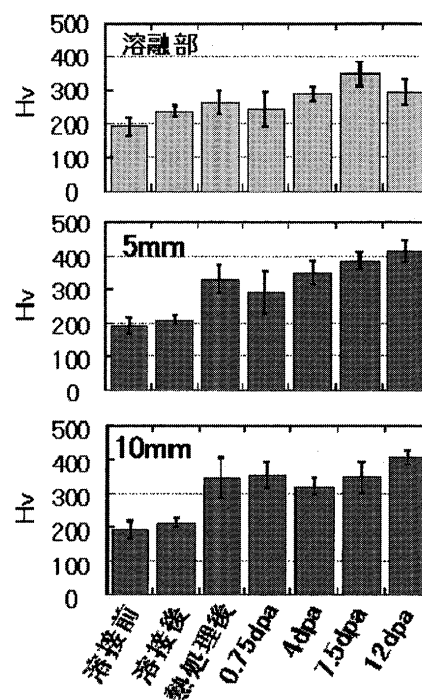


図9 溶融部, 5 mm, 10 mm 位置での照射による硬度変化(873 K).

すると, 特に溶融部の非集合部において Ti (O, C, N) 析出物の形成, 数密度の増加が抑制されていることが示された。しかし 12 dpa 照射では, 集合部, 5 mm, 10 mm とほぼ同一組織が観察された。これまで, 著者ら[14, 17]は NIFS-HEAT2 および純 V において, 照射雰囲気 (真空) からの酸素等の不純物の侵入に伴う Ti (O, C, N) 析出物の成長を観察しているが, 本実験においても, 高照射量領域ではこの影響が無視できないことがわかる。

図9に1000 hr 熱処理材およびそれを873 Kにて照射した試料について超微小押し込み硬さ試験を行った結果を示す。溶融部 (図上段), 5 mm (図中段), 10 mm (図下段) において溶接前, 溶接後, 1000 hr 熱処理後及びその照射試料の硬度測定結果を示している。図では図1と異なり溶融部での熱処理後による硬度の低下は確認されなかったが, 照射試料においては, 4 dpa までの照射領域では熱処理により硬度の上昇を抑制した。5 mm, 10 mm においては 1000 hr の熱処理後に大きな硬度上昇が見られ, 照射量の増加に伴いさらに硬化した。溶融部および 5 mm, 10 mm における照射試料の硬度を比較すると, いずれの照射量においても溶融部で硬化が抑制されたことが示された。

3.4 照射組織に与える溶接後熱処理の影響

溶接後熱処理条件の最適化と内部組織とは密接な関連があり, 溶接後熱処理条件の最適化には, Ti (O, C, N) 析出物が島状に集合することが不可欠である。すでに明らかになっている内部組織の熱処理温度依存性より, 低温での熱処理では, 均一な微小 Ti(O, C, N) 析出物が形成されが, 温度の上昇とともに島状析出物が形成される。したがって, 島状析出物の形成により, マトリクス中に均一に存在していた不純物元素 (特に酸素) の集積が起り, 島状に析出していない領域では, 不純物の純化が期待される。このと

きの模式図を、図10に示す。また、この島状の集合体は、溶融部にのみ観察され、レーザー溶接中に強制的に固溶したチタンが長時間の熱処理により析出した結果と考えられる。

図11に TEM-EDSを用いた島状組織のチタン濃度の変化を測定した結果を示す。(a)照射前、(b)873 K, 12 dpa イオン照射後の島状組織について測定を行った結果である。照射前の島状組織のチタン濃度は6 wt%程度であり、マトリクスの濃度よりも2 wt%程度濃化していることが示された。12 dpa 照射後には島状組織のチタン濃度が減少し、濃度変化が緩やかになった。これは照射によって、島状組織から溶質原子(チタン)がマトリクスへ拡散した効果とマトリクスでは新たに Ti (O, C, N) 析出物が形成された2つの原因によるものと推測される。

詳細な議論には島状組織が形成される機構を解明することが不可欠であるが、熱処理により形成された島状の析出が高温・重照射環境下ではチタンあるいは不純物酸素の拡散によって大きな影響を受けることも予測され、島状組織の照射環境下での安定性が今後の課題となる。

4. 結言

レーザー溶接された NIFS-HEAT2 の溶接後の熱処理を真空中で実施し、銅イオン照射前後の組織観察並びに硬度測定から、以下のことが明らかにされた。

- 1) 溶接後熱処理条件の最適化と内部組織とは密接な関連があり、Ti (O, C, N) 析出物が島状に集合した組織が最適化にとって不可欠である。
- 2) この島状の集合体は、溶融部にのみ観察され、溶融中に強制的に固溶したチタンの分布状態と密接に関連していると考えられる。
- 3) 熱処理後の試料をイオン照射して観察した結果、い

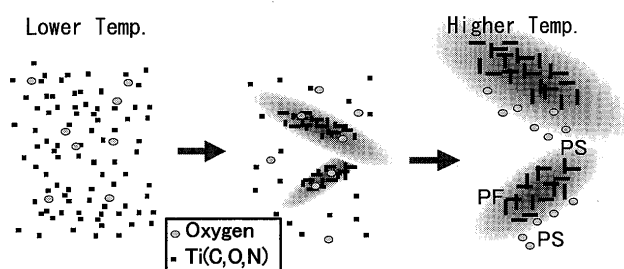


図10 熱処理による島状析出物の模式図。

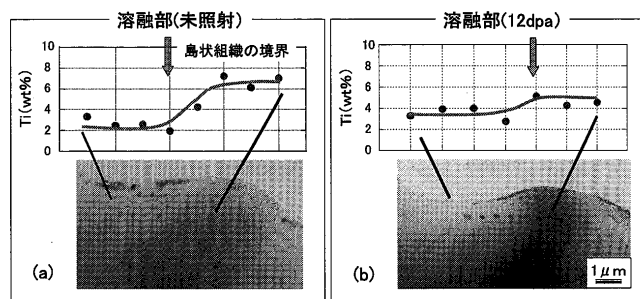


図11 照射前 (a)、873 K (12 dpa) 照射後 (b) のチタン濃度の分析結果。矢印は島状組織の境界を示す。

れの照射温度においても低照射領域では、溶接後熱処理による改善効果が確認された。特に 873 K 照射では、溶融部の析出物が集合していない領域(非集合部)において Ti (O, C, N) 析出物の形成、数密度の増加が溶接後熱処理により抑制されていることが示された。

- 4) 高照射領域において、熱処理の効果が減少する理由として、島状組織の照射による消失並びに照射雰囲気(真空)からの酸素の混入に伴う Ti (O, C, N) 析出物の形成が挙げられる。

謝 辞

本研究は、平成15-17年度文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(C) 代表者渡辺英雄)並びに核融合科学研究所一般共同研究(研究コード:NIFS05KFRF021)により行われたものであることを記す。

参考文献

- [1] T. Muroga, T. Nagasaka, A. Iyoshi, A. Kawabata, S. Sakurai and M. Sakata, J. Nucl. Mater. **283-287**, 711 (2000).
- [2] T. Muroga, T. Nagasaka, K. Abe, V.M. Chernov, H. Matsui D.L. Smith, Z.-Y. Xu and S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater. **307-311**, 547 (2002).
- [3] T. Nagasaka, Nam-Jin Heo, T. Muroga, M. Imamura, Fusion Eng. Des. **61-62**, 757 (2002).
- [4] W.R. Johnson and J.P. Smith, J. Nucl. Mater. **256-263**, 1425 (1998).
- [5] D.L. Smith, J. Konys, T. Muroga and V. Evtikhin, J. Nucl. Mater. **307-311**, 1314 (2002).
- [6] T. Nagasaka, T. Muroga, M.L. Grossbeck and T. Yamamoto, J. Nucl. Mater. **307-311**, 1595 (2002).
- [7] T. Nagasaka, M.L. Grossbeck, T. Muroga and J.F. King, Fusion Technol. **39**, 664 (2001).
- [8] Nam-Jin Heo, T. Nagasaka, T. Muroga, A. Nishimura, K. Sinozaki and H. Watanabe, Fusion Sci. Technol. **44**, 470 (2003).
- [9] T. Nagasaka, T. Muroga and T. Iikubo, Fusion Sci. Technol. **44** (2003) 465.
- [10] H. Watanabe, M. Nagamine, K. Yamasaki, T. Muroga, T. Nagasaka, Nam-Jin Heo and K. Sinozaki, J. Plasma Fusion Res. **80**, 889 (2004).
- [11] H. Watanabe, K. Yamasaki, A. Higashizima, N. Yoshida, T. Nagasaka and T. Muroga, J. Nucl. Mater. **367-370**, 794 (2007).
- [12] T. Nagasaka, Nam-Jin Heo, T. Muroga, A. Nishimura, H. Watanabe, M. Narui and K. Suzuki, J. Nucl. Mater. **329-333**, 1359 (2004).
- [13] T. Nagasaka, T. Muroga, H. Watanabe, K. Yamasaki, NAM-Jin Heo, K. Shinozaki and M. Narui, Mater. Trans. **46**, 498-502 (2005).
- [14] 渡辺英雄, 長嶺成将, 山崎和宏, 吉田直亮, 室賀健夫, 長坂琢也, 許男鎮, 篠崎賢二: J. Plasma Fusion Res. **80**, 889 (2004).
- [15] 稲村元則, 鈴木敬愛: 生産研究 **42**, 32 (1994).
- [16] K. Abe, K. Toma, H. Yoshinaga, S. Morozumi and J. LessCommon, Materials **23**, 213-216 (1971).
- [17] M. Hatakeyama, H. Watanabe, T. Muroga and N. Yoshida, J. Nucl. Mater. **329-333**, 420 (2004).