

JAERI - M

85-089

水素パルスビームによるTiC被覆モリブデン  
の熱衝撃試験

1985年7月

中 村 和 幸

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 山田軽印刷所

水素パルスビームによるTiC被覆モリブデンの熱衝撃試験

日本原子力研究所那珂研究所核融合研究部

中 村 和 幸

(1985年6月8日受理)

モリブデン基板上にCVD法および新しいプラズマCVD法によって被覆したTiC被膜の耐熱衝撃性を、 $2 \text{ kW/cm}^2$ の水素パルスビームを用いて調べた。その結果、いずれの被膜も基板のモリブデンが溶融するまで剥離せず、密着性が極めて良好であることを確認した。なお、本試験はJT-60第一壁低Z化計画の一環として行われたものである。

Thermal shock testing of TiC-coated molybdenum  
with pulsed hydrogen beams

Kazuyuki NAKAMURA

Department of Thermonuclear Fusion Research,  
Naka Fusion Research Establishment, JAERI

(Received June 8, 1985)

Thermal shock testing of molybdenum samples, on which TiC is coated by TP-CVD and CVD methods, has been made by using a pulsed hydrogen beam. The power density applied was  $2 \text{ kw/cm}^2$ . The test results showed that TiC coatings did not exfoliate until the melting of the substrate and showed good adhesion under the thermal shock condition.

Keywords: Fusion Materials, First Wall, TiC Coating, Molybdenum  
Substrate, Adhesion, Thermal Shock Test

## 目 次

|                           |   |
|---------------------------|---|
| 1. はじめに .....             | 1 |
| 2. 試験方法 .....             | 1 |
| 2.1 装 置 .....             | 1 |
| 2.1.1 熱流束測定 .....         | 1 |
| 2.1.2 粒子エネルギーの評価 .....    | 2 |
| 2.1.3 粒子密度の評価 .....       | 2 |
| 2.1.4 粒子の中性化率 .....       | 3 |
| 2.2 試 料 .....             | 3 |
| 3. 試験結果 .....             | 3 |
| 4. 計算機シミュレーションによる検討 ..... | 3 |
| 5. 結 論 .....              | 4 |
| 謝 辞 .....                 | 4 |
| 参 考 文 献 .....             | 5 |

## Contents

|   |   |
|---|---|
| 1. Introduction .....                       | 1 |
| 2. Experiments .....                        | 1 |
| 2.1 Apparatus .....                         | 1 |
| 2.1.1 Measurement of heat flux .....        | 1 |
| 2.1.2 Estimation of particle energy .....   | 2 |
| 2.1.3 Estimation of particle density .....  | 2 |
| 2.1.4 Estimation of neutrals .....          | 3 |
| 2.2 Samples .....                           | 3 |
| 3. Results .....                            | 3 |
| 4. Computer Simulation and Discussion ..... | 3 |
| 5. Conclusion .....                         | 4 |
| Acknowledgment .....                        | 4 |
| References .....                            | 5 |

## 1. はじめに

JT-60では、プラズマパラメータの向上をはかるため、リミタおよびライナ表面に、低Z材料であるTiCを被覆するが、<sup>1)</sup> TiCを被覆するにあたって最も重視された点は、プラズマからの熱衝撃による被膜の剥離であった。そこで、我々は、56, 57年度にわたって種々の候補材について熱衝撃試験を行い、被膜の密着性の評価を行った。56年度の試験では、Mo基板の場合、CVD法によるTiCの被膜が密着性に関して最も優れているという結論を得た。<sup>2), 3)</sup>しかし、通常のCVD法では、被覆時の基板温度が1,100°Cにも達するため、Moが再結晶し、強度の低下を引き起こす。従って、被膜の密着性を劣化させることなしに被覆温度の低減化をはかる必要があった。その後、57年度には、1000°Cで被覆できるCVD法や新しいプラズマCVD法(TP-CVD法、被覆時の基板温度800°C)が開発されるようになったので、これらの方法で作製したTiC被膜について熱衝撃試験を行った。

## 2. 試験方法

### 2.1 装置

試験は、前回<sup>3)</sup>と同様、加熱工学第1研究室のイオン源テストスタンド(ITS-2)において、75 keV/35 Aの水素イオンビームを発生できる大形矩形イオン源を用いて行った。この装置を用いた理由は、広い面積にわたって比較的均一な熱流束が得られるからである。この装置の詳細は別報<sup>4)</sup>を参照していただくこととし、ここではターゲットに到達する熱流束の性質について述べる。

#### 2.1.1 熱流束測定

ターゲットに到達する水素ビームの熱流束密度の測定を、Fig. 1に示すカロリメータを用いて行った。測定時におけるイオン源の条件は、試験時と同じ加速電圧50 kV、全電流15 Aで、照射時間は0.2秒である。スリットを通過したビームによって上昇した銅ブロックの温度上昇分を $\Delta T$ (°C)とすると、そのスリット位置における熱流束密度は次式によって与えられる。

$$\begin{aligned}
 q \text{ (kW/cm}^2\text{)} &= \frac{\text{〔銅ブロックの熱容量〕} \times \text{〔温度上昇分〕}}{\text{〔スリットの面積〕} \times \text{〔照射時間〕}} \\
 &= \frac{1.35 \text{ (cm}^3\text{)} \times 8.9 \text{ (g/cm}^3\text{)} \times 0.42 \text{ (J/g}\cdot\text{°C)} \times \Delta T \text{ (°C)}}{\frac{0.5^2}{4} \times \pi \text{ (cm}^2\text{)} \times 0.2 \text{ (sec)}} \\
 &= 0.11 \times \Delta T \text{ (kW/cm}^2\text{)}
 \end{aligned}$$

このスリットの位置を変えることにより水素ビームの熱流束分布を測定した。結果を Fig. 2 に示す。この図からは、中心から半径 5 cm の円内ではほぼ均一なビーム (2 kW/cm<sup>2</sup>) となっていることがわかる。従って、実験は試料をこの円内に設置して行った。

### 2.1.2 粒子エネルギーの評価

この装置では、水素ビームは最終的にはほとんどが H<sup>0</sup>, H<sup>-</sup> の形でターゲットに到達するが、加速される時には H<sub>1</sub><sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup>, H<sub>3</sub><sup>+</sup> の 3 つの形態をとっているため、ターゲットに到達した個々の粒子の持つエネルギーはそれぞれ異なる。この場合、1 個の粒子の持つ平均エネルギー、 $\bar{E}_p$  は次式により定義される。

$$\bar{E}_p = \frac{\text{(全到達エネルギー)}}{\text{(全到達粒子数)}}$$

$$= \frac{\sum_{i=1}^3 E \cdot Ni}{\sum_{i=1}^3 i \cdot Ni}$$

Ni : H<sub>i</sub><sup>+</sup> の個数

E : H<sub>i</sub><sup>+</sup> の持つエネルギー (ただし、加速電圧は 50 kV)

イオン源の条件は前回とほぼ同様であるので、N<sub>1</sub>, N<sub>2</sub>, N<sub>3</sub> の割合は 0.65, 0.20, 0.15 である。従って、

$$\bar{E}_p = \frac{50 \times (N_1 + N_2 + N_3)}{N_1 + 2 \cdot N_2 + 3 \cdot N_3}$$

$$= \frac{50 \times N}{(0.65 + 2 \times 0.2 + 3 \times 0.15) \times N}$$

$$= 33 \text{ (keV)}$$

ただし、N = N<sub>1</sub> + N<sub>2</sub> + N<sub>3</sub>

となる。

### 2.1.3 粒子密度の評価

2.1.1 および 2.1.2 の結果から、次式により粒子密度 f<sub>n</sub> が求められる。

$$f_n = \frac{\text{〔熱流束密度〕}}{\text{〔粒子 1 個当りの持つエネルギー〕}}$$

$$= \frac{2.0 \text{ (kW/cm}^2\text{)}}{33 \text{ (keV/H)}} = 3.8 \times 10^{17} \text{ H/cm}^2 \cdot \text{sec}$$



### 2.1.4 粒子の中性化率

イオン源から引き出されたイオンは、ターゲットまで輸送される間に、残留ガスである水素と衝突して一部が中性化されるが、中性化率は次式で与えられる。

$$\frac{[H^0]}{[H^0]+[H^+]} = \frac{\sigma_{i0}}{\sigma_{i0} + \sigma_{o1}} \{1 - \exp(-X(\sigma_{i0} + \sigma_{o1}))\}$$

こゝで、 $[H^0]$ は中性粒子密度、 $[H^+]$ はイオン密度、 $\sigma_{i0}$ は中性化断面積、 $\sigma_{o1}$ はイオン化断面積、 $X$ は残留ガスの線密度である。本実験における 50 keV, 25 keV, 17 keV, 水素粒子の中性化率は各々、0.55、0.76、0.82であった。

## 2.2 試料

今回の熱衝撃試験に使用した試料を Table 1 に示す。試料は、すべて 10mm×10mm×0.5mm のモリブデン板に、①は基板温度 800°C の TP-CVD 法で<sup>5)</sup> ②および③は基板温度 1,000°C の CVD 法で、④は基板温度 1,100°C の CVD 法で TiC をそれぞれ 20 $\mu$ m 被覆したものである。ただし、③および④は TiC 被膜と基板の間に中間層として TiN を 1 $\mu$ m 挿入してある。なお、①～③の試料は住友電気工業(株)において、また④の試料は關東芝において製作されたものである。

## 3. 試験結果

熱衝撃試験前後における試料の写真を Fig. 3～6 に示す。各写真とも左端が照射前試料で、それ以外はすべて照射後試料である。照射時間は各々の写真の下に記してある。各照射時間とも 2 回ずつ試験を行ったが、試料が受けた損傷の程度の再現性はよかった。これら試料のすべてについて、基板のモリブデンが溶融するまで TiC 被膜の剥離は観察されなかった。一例として、Fig. 5 に示した試料のうち 0.27 秒照射した試料の溶融部と非溶融部の境界部の電子顕微鏡写真を Fig. 7 に示しておく。

Fig. 3～6 の結果を試料が溶融するまでの照射時間でまとめると Table 2 のようになる。試料によって基板が溶融しはじめるまでの照射時間が異っているが、この原因は試料表面の放射率の違いや、基板のモリブデンの粒界の大きさの違い等によるものと推測される。

## 4. 計算機シミュレーションによる検討

汎用熱解析コード、heating-3<sup>6)</sup> を用いて試験結果の熱解析を行ったので以下に説明する。この実験では、試料は均一なビームで照射されるが、試料の押え板によって左右 1.5mm ずつが

非照射部となるため、その影響を考慮して計算は Fig. 8 に示した二次元モデルで行った。図の斜線部分は非照射部で計算上は断熱の、また、矢印の部分は照射部で一定の熱入力および放射による除熱を境界条件とした。モリブデンおよびインコネル 625 の温度依存性も含めた物性値は Table 3 にまとめた。Fig. 8 に示した計算モデルでは、ビームに垂直な各断面において、水平方向に熱勾配が生じるが、Fig. 9 はその様子を表わすために、試料表面の温度分布を各照射時間ごとに示した図である。横軸は中心からの距離、縦軸はその点における温度である。この図から、照射中は常に中心部の温度が最も高いことがわかる。Fig. 10 は、照射中に試料中心部の表側と裏側の温度が上昇する様子を示した図で、横軸はビームの照射時間、縦軸は温度である。この図から照射時間が 0.26 秒で表側が、0.27 秒で裏側がそれぞれ融け始めることがわかる。これを試験結果と比較すると、②と③の試料の結果と良く一致することがわかった。

試験は TiC を被覆した 0.5 mm 厚のモリブデン材を用いて行い、基材が溶融するまで被膜が剥離しないことを確認したが、JT-60 では TiC を被覆した 20 mm および 5 mm 厚のモリブデン材が使われているため、これらの厚みのモリブデン材が溶融に至るまでの照射時間を評価しておく必要がある。Fig. 11 は 20 mm の、Fig. 12 は 5 mm 厚のモリブデンに TiC を被覆した材料を  $2 \text{ kW/cm}^2$  の均一ビームで照射した時のビーム照射面からの各深さにおける温度上昇を heating-3 で計算した結果である。横軸はビーム照射時間、縦軸はその時点における温度である。これらの図から、20 mm 厚のモリブデン材は 4.1 秒で、また 5 mm 厚のモリブデン材は 1.9 秒で表面が融け始めることがわかった。

## 5. 結 論

$2 \text{ kW/cm}^2$  の均一水素ビームを照射して行った TiC 被覆モリブデンの熱衝撃試験の結果をまとめると以下ようになる。

- 1) 全試料において、基材が溶融するまで被膜の剥離は観測されず、これら被膜の基材に対する密着性はいずれも極めて良好であると評価できた。
- 2) 基材のモリブデンが溶融するまでの照射時間には若干違いが見られた。
- 3) この照射試験は、実機で使用される 20 mm 厚の基材については 4.1 秒以上の、また、5 mm 厚の基材については 1.9 秒以上の照射時間に相当することが計算によって求められた。

## 謝 辞

本研究をまとめるに際し、ITS-2 の運転及び熱解析に協力していただいた加熱工学第 1 研究室、松岡、奥村、小原、荒木の各研究員に、また、有意義な助言をいただいたが心工学研究室、阿部副主任研究員、村上室長に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Y. Murakami, T. Abe, and H. Nakamura ; J. Nucl. Mater. 111 & 112 (1982) 861
- 2) K. Nakamura, et al. : J. Nucl. Mater. 111 & 112 (1982) 852
- 3) 中村和幸 : JAERI-M 82-026 (1982)
- 4) S. Tanaka ; Proc. 9th Symp. on Engineering Problems of Fusion Research ,  
Chicago, 1981
- 5) 阿部哲也 他 ; 真空 27 (1984) 398
- 6) W. D. Turner and M. Simon ; ORNL - TM 3208, 1971

Table 1 The list of TiC-coated samples

| No. | Coated samples | Coating method and substrate temp. (°C) |       | Film thickness (μm) |
|-----|----------------|---|-------|---------------------|
| ①   | TiC/Mo         | TP-CVD                                  | 800   | 20                  |
| ②   | TiC/Mo         | CVD                                     | 1,000 | 20                  |
| ③   | TiC/TiN/Mo     | CVD                                     | 1,000 | 20/1.0              |
| ④   | TiC/TiN/Mo     | CVD                                     | 1,100 | 20/1.0              |

Table 2 Summary of the test results

| No. | Coated samples   | Surface observation |      |      |      |      |
|-----|------------------|---------------------|------|------|------|------|
|     |                  | pulse length (sec)  |      |      |      |      |
|     |                  | 0.20                | 0.23 | 0.25 | 0.27 | 0.30 |
| ①   | TiC/Mo (TP-CVD)  | ○                   | ○    | ×    |      |      |
| ②   | TiC/Mo (CVD)     |                     |      | ○    | ×    | ×    |
| ③   | TiC/TiN/Mo (CVD) |                     |      | ○    | ×    | ×    |
| ④   | TiC/TiN/Mo (CVD) | ○                   | ×    | ×    |      |      |

○ : No failures

× : Substrate melt

Table 3 The thermal properties of molybdenum and Inconel 625

|                 | thermal conductivity (W/cm·deg) | heat capacity (J/g·deg) | density (g/cm <sup>3</sup> ) | emissivity |
|-----------------|---------------------------------|-------------------------|------------------------------|------------|
| TiC/Mo          | 1.36 (20°C)                     | 0.251 (20°C)            | 10.23                        | 0.378      |
|                 | 1.13 (730°C)                    | 0.299 (730°C)           |                              |            |
|                 | 0.78 (1,730°C)                  | 0.385 (1,730°C)         |                              |            |
| TiC/Inconel 625 | 0.093 (20°C)                    | 0.412 (20°C)            | 8.44                         | 0.141      |
|                 | 0.140 (300°C)                   | 0.479 (300°C)           |                              |            |
|                 | 0.175 (550°C)                   | 0.538 (550°C)           |                              |            |

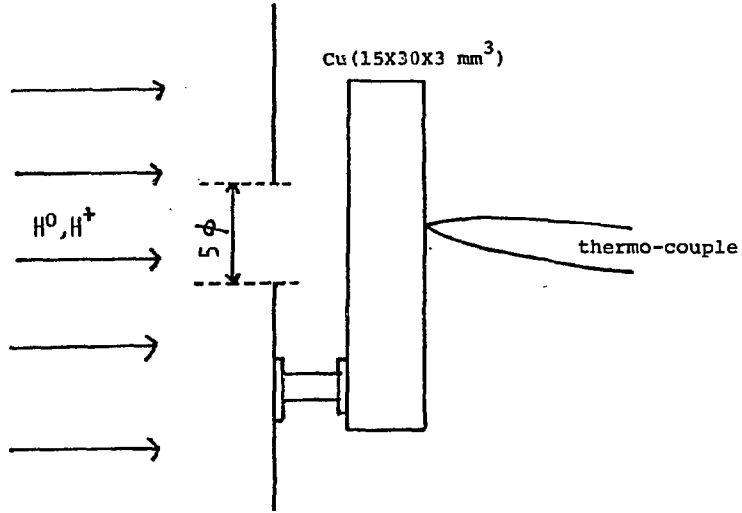


Fig. 1 Schematic diagram of calorimeter for measuring the heat flux

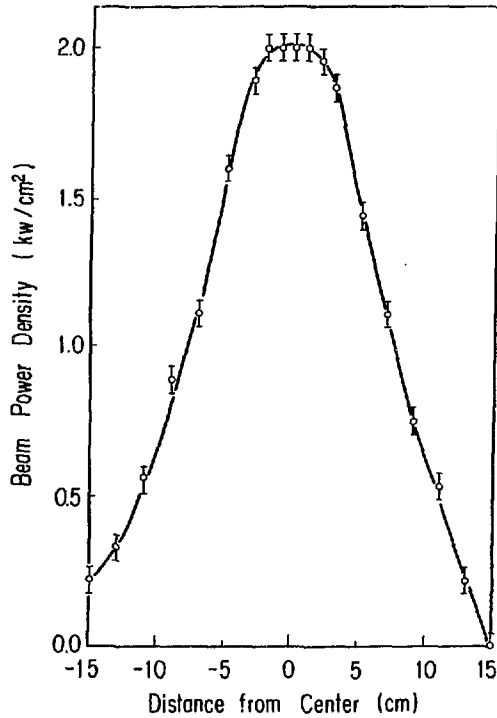
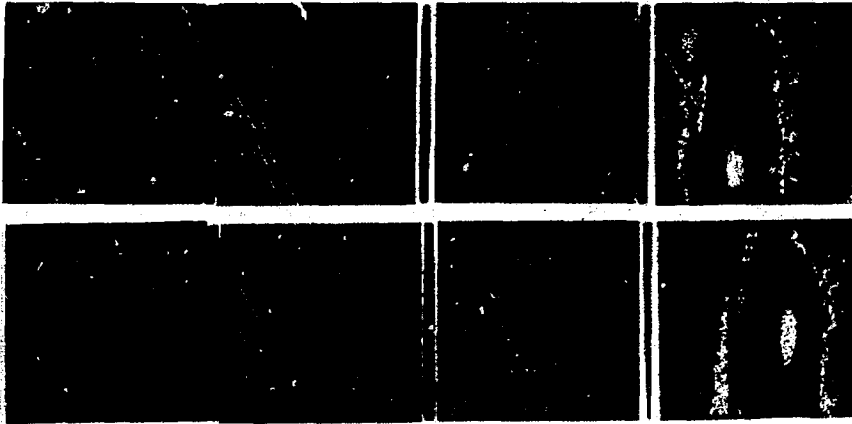


Fig. 2 Power density distribution of the hydrogen beam

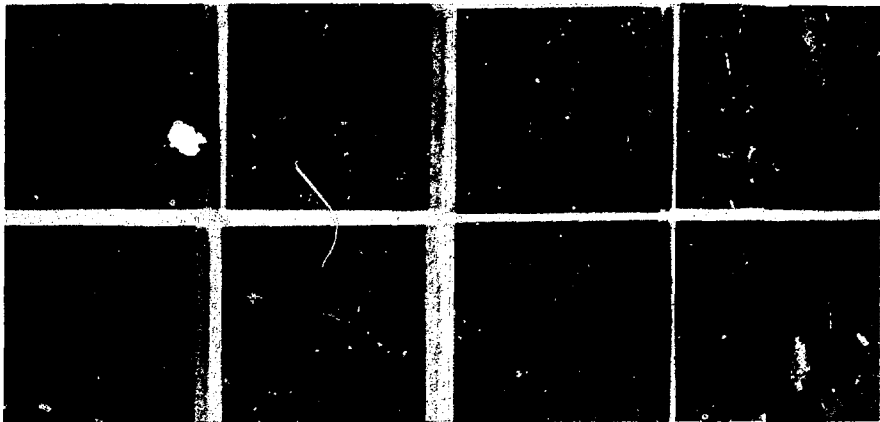
① TiC/Mo (TP-CVD)



un-irrad.    0.20s    0.23s    0.25s

Fig. 3 Photographs of TiC-coated molybdenum before and after hydrogen beam irradiation ( $2 \text{ kw/cm}^2$ ). TiC is coated by the TP-CVD method at  $800 \text{ }^\circ\text{C}$ .

② TiC/Mo (CVD)



un-irrad.    0.25s    0.27s    0.30s

Fig. 4 Photographs of TiC-coated molybdenum before and after hydrogen beam irradiation ( $2 \text{ kw/cm}^2$ ). TiC is coated by the CVD method at  $1,000 \text{ }^\circ\text{C}$ .

### ③ TiC/TiN/Mo (CVD)

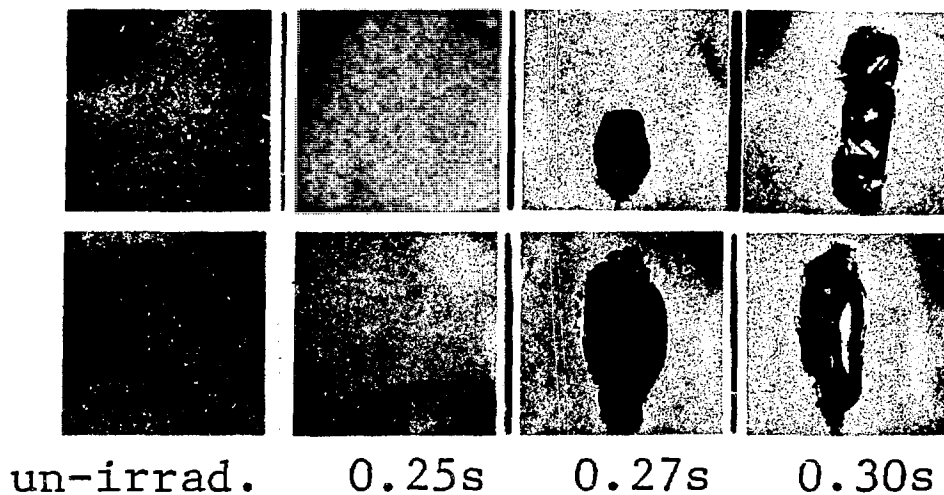


Fig. 5 Photographs of TiC-coated molybdenum with an intermediate layer before and after hydrogen beam irradiation ( $2 \text{ kw/cm}^2$ ). TiC is coated by the CVD method at  $1,000 \text{ }^\circ\text{C}$ .

### ④ TiC/TiN/Mo (CVD)

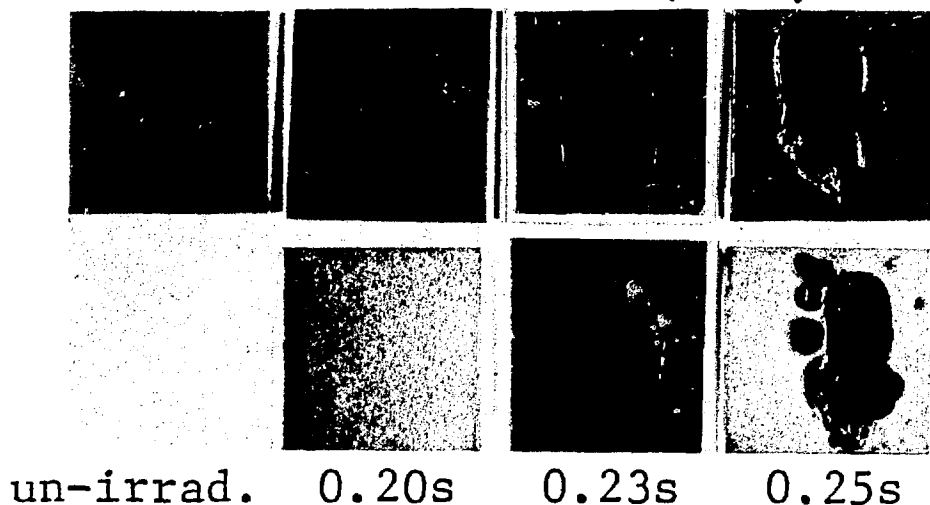


Fig. 6 Photographs of TiC-coated molybdenum with an intermediate layer before and after hydrogen beam irradiation ( $2 \text{ kw/cm}^2$ ). TiC is coated by the CVD method at  $1,100 \text{ }^\circ\text{C}$ .

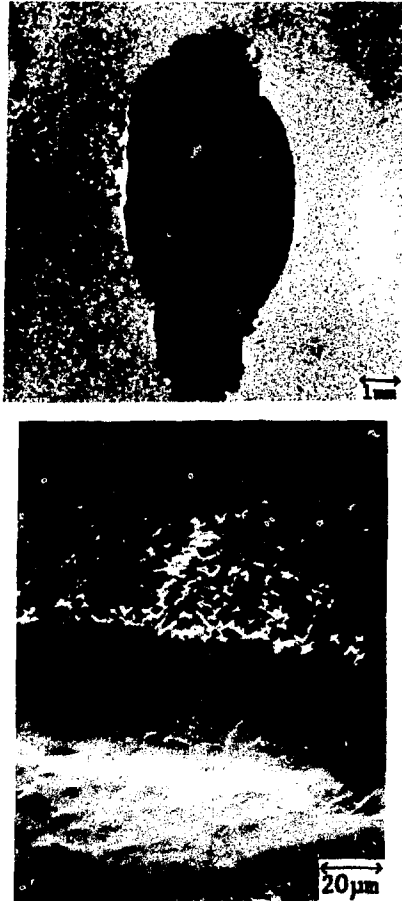


Fig. 7 A photograph and a micrograph of TiC-coated molybdenum showing partial melting of the substrate.

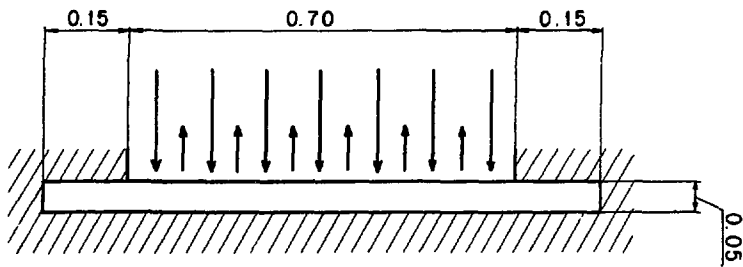


Fig. 8 Calculation model for the thermal analysis



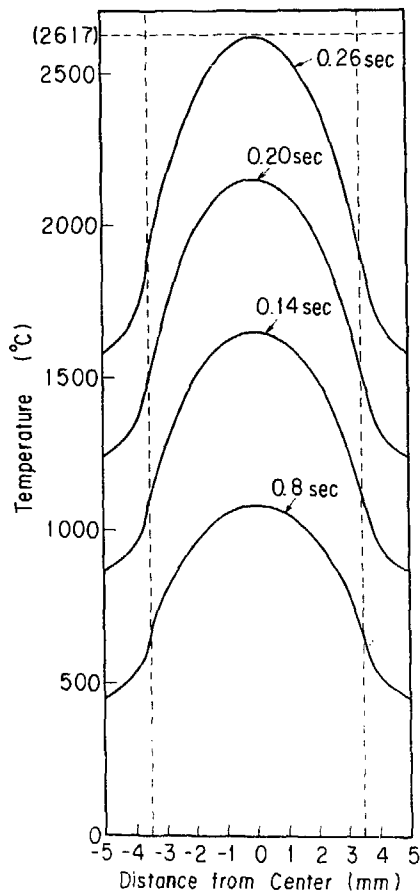


Fig. 9 Temperature gradient of the sample during the hydrogen beam irradiation

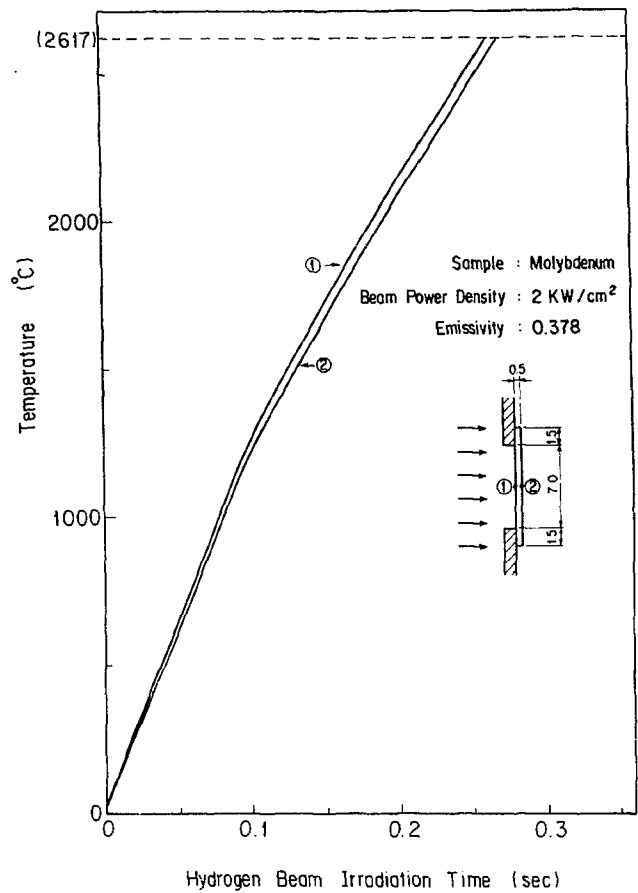


Fig. 10 Temperature of the sample during the hydrogen beam irradiation

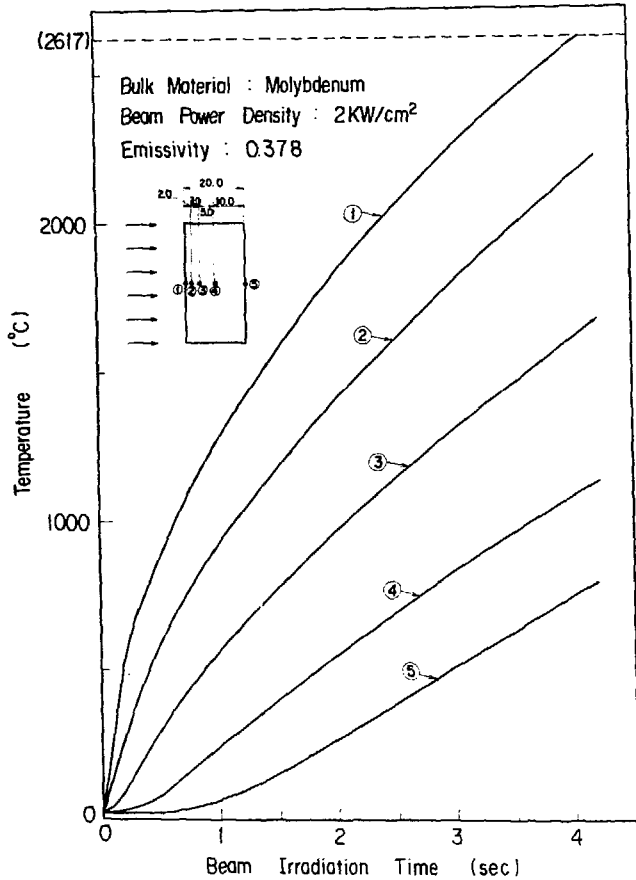


Fig. 11 Temperature distribution of the molybdenum plate (20 mm) during the beam irradiation

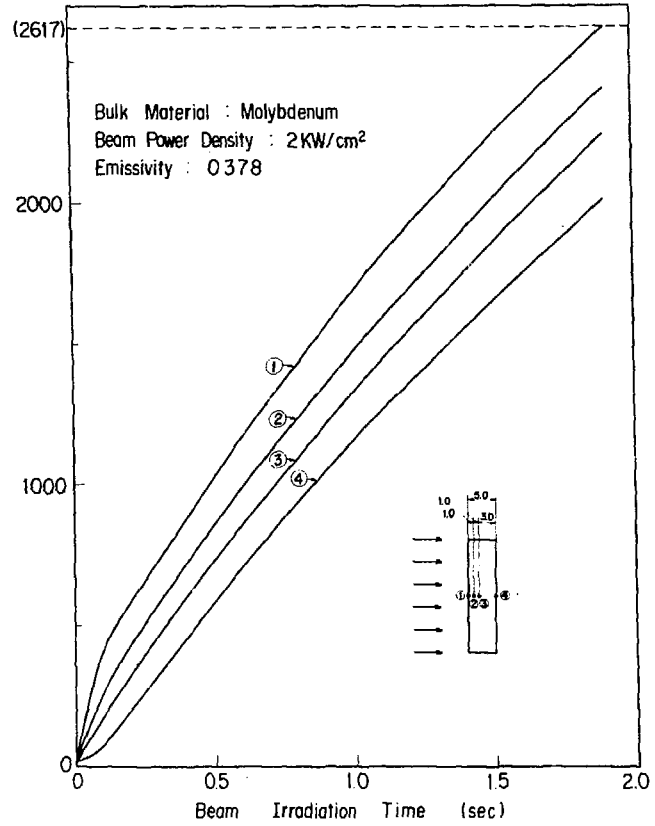


Fig. 12 Temperature distribution of the molybdenum plate (5 mm) during the beam irradiation