

JAERI - M  
85-204

赤外線加熱によるTiC被覆モリブデンの  
熱サイクル試験

1985年12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刊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

赤外線加熱によるTiC被覆モリブデンの熱サイクル試験

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11月25日受理)

モリブデン基材上に反応性蒸着法で被覆した組成比の異なるTiC被膜の密着性を、赤外線炉で繰り返し加熱して調べた。その結果、組成比が1に近い膜の密着性が最も優れていることがわかった。なお、反応性蒸着法はJT-60 那场コーティングに適用されるTiCの被覆方法である。

Thermal Cycle Testing of TiC-coated  
Molybdenum by Infrared Heating

Kazuyuki NAKAMURA

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

(Received November 25, 1985)

TiC films which were composed of various C/Ti ratios were formed on molybdenum substrates by the reactive evaporation method, and the adhesion of the films were investigated by a cyclic infrared heating. The result shows that stoichiometric TiC films have the best adhesive characteristics for molybdenum. The reactive evaporation method will be applied to the in-situ coating for JT-60.

Keywords: Thermal Cycle Testing, TiC-coated Walls, Adhesion, JT-60,  
Reactive Evaporation Method

目 次

1. はじめに .....	1
2. 実 験 .....	1
3. 結果および考察 .....	2
謝 辞 .....	2
参 考 文 献 .....	3

Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	1
3. Results and discussion .....	2
Acknowledgement .....	2
References .....	3

## 1. はじめに

JT-60ではリミタやライナなどの第一壁にTiCを被覆したモリブデンおよびインコネル625が用いられているが<sup>1)</sup>、それらはプラズマからのエネルギー粒子や熱の流入によって損傷を受け、基材であるモリブデンなどが露出する可能性がある<sup>2)~5)</sup>。その場合、それらを真空容器外に取出して再被覆することは装置の運転上の制約から難しいため、第一壁を真空容器に取り付けた状態でTiCを再被覆するその場コーティング技術が開発された<sup>6)~9)</sup>。その開発の過程において、再被覆した膜の密着性が問題点として指摘された。すなわち、JT-60の放電に伴う周期的な温度変化によって、再被覆した膜が剥離しないかということである。そこで、われわれは、再被覆した膜を赤外線炉で繰り返し加熱することにより、膜の密着性を膜の組成比との関連で調べた。

## 2. 実験

熱サイクル試験装置の概略図をFig. 1に示す。試料室は内径36 mmの石英管から成り、パイロンのO-リングを介して排気系に接続されている。また、この試料室の中心軸上には、片端が排気系側に固定された石英ガラス製の試料ホルダーが伸びている。試料室は液体窒素トラップ付の油拡散ポンプ（排気速度 250  $\ell/s$ ）で排気され、到達圧力は  $1 \times 10^{-6}$  Pa である。また、試料加熱時における圧力は常に  $1 \times 10^{-4}$  Pa 以下であった。試料の加熱は、試料室を取り囲むように配置された8本の赤外線ヒータ（真空理工社製赤外線瞬間加熱装置 PH-L）で行うが、このヒータで均一に加熱できる範囲は炉の中心部約 200 mm 程度である。この範囲の試料ホルダー上に設置可能な試料数は、10 mm  $\times$  10 mm 程度の試料で5個以下である。また、試料の温度は、試料に溶着された熱電対（白金-白金ロジウム）からの信号で、ヒータ出力を比例制御することにより、制御可能である。

今回の熱サイクル試験における試料温度の時間変化をFig. 2に示す。これによれば、試料温度は 250°C と 1400°C の間を6分周期で変化していることがわかる。各周期の加熱過程での平均昇温速度は 160°C/秒、また、1400°Cでの保持時間は10秒であった。なお、この熱サイクルモードは、JT-60 第一壁低Z化計画の一環としてプレコーティング用TiC被覆試料に対して行われた熱サイクル試験<sup>3)</sup>と同一モードである。

熱サイクル試験に供した試料は、炉心工学研究室、阿部副主任研究員から提供されたものであるが、ここでは提供された試料の概略を述べるにとどめ、詳細は別報<sup>6)~9)</sup>を参照していただきたい。試料は、Fig. 3にその概略を示すような装置において、モリブデン基材にTiCを反応性蒸着法で被覆することにより作製された。試料作製時には基材の設置位置を、図のように2ヶ所にとともに、基材を折り曲げてフィラメントに対する角度も変えたため、1回の工程で膜厚および組成比の異なる試料が4種類作製された。TiC被膜の作製条件およびできた膜の厚み、組成

## 1. はじめに

JT-60ではリミタやライナなどの第一壁にTiCを被覆したモリブデンおよびインコネル625が用いられているが<sup>1)</sup>、それらはプラズマからのエネルギー粒子や熱の流入によって損傷を受け、基材であるモリブデンなどが露出する可能性がある<sup>2)~5)</sup>。その場合、それらを真空容器外に取出して再被覆することは装置の運転上の制約から難しいため、第一壁を真空容器に取り付けた状態でTiCを再被覆するその場コーティング技術が開発された<sup>6)~9)</sup>。その開発の過程において、再被覆した膜の密着性が問題点として指摘された。すなわち、JT-60の放電に伴う周期的な温度変化によって、再被覆した膜が剥離しないかということである。そこで、われわれは、再被覆した膜を赤外線炉で繰り返し加熱することにより、膜の密着性を膜の組成比との関連で調べた。

## 2. 実験

熱サイクル試験装置の概略図をFig. 1に示す。試料室は内径36 mmの石英管から成り、パイロンのO-リングを介して排気系に接続されている。また、この試料室の中心軸上には、片端が排気系側に固定された石英ガラス製の試料ホルダーが伸びている。試料室は液体窒素トラップ付の油拡散ポンプ（排気速度 250  $\ell/s$ ）で排気され、到達圧力は  $1 \times 10^{-6}$  Pa である。また、試料加熱時における圧力は常に  $1 \times 10^{-4}$  Pa 以下であった。試料の加熱は、試料室を取り囲むように配置された8本の赤外線ヒータ（真空理工社製赤外線瞬間加熱装置 PH-L）で行うが、このヒータで均一に加熱できる範囲は炉の中心部約 200 mm 程度である。この範囲の試料ホルダー上に設置可能な試料数は、10 mm  $\times$  10 mm 程度の試料で5個以下である。また、試料の温度は、試料に溶着された熱電対（白金-白金ロジウム）からの信号で、ヒータ出力を比例制御することにより、制御可能である。

今回の熱サイクル試験における試料温度の時間変化をFig. 2に示す。これによれば、試料温度は 250°C と 1400°C の間を6分周期で変化していることがわかる。各周期の加熱過程での平均昇温速度は 160°C/秒、また、1400°Cでの保持時間は10秒であった。なお、この熱サイクルモードは、JT-60 第一壁低Z化計画の一環としてプレコーティング用TiC被覆試料に対して行われた熱サイクル試験<sup>3)</sup>と同一モードである。

熱サイクル試験に供した試料は、炉心工学研究室、阿部副主任研究員から提供されたものであるが、ここでは提供された試料の概略を述べるにとどめ、詳細は別報<sup>6)~9)</sup>を参照していただきたい。試料は、Fig. 3にその概略を示すような装置において、モリブデン基材にTiCを反応性蒸着法で被覆することにより作製された。試料作製時には基材の設置位置を、図のように2ヶ所にとともに、基材を折り曲げてフィラメントに対する角度も変えたため、1回の工程で膜厚および組成比の異なる試料が4種類作製された。TiC被膜の作製条件およびできた膜の厚み、組成

比を Table 1 にまとめておく。試料番号中の A, B, C の記号は同一工程で作製された試料であることを示す。また, 1-4 の番号は, Fig. 1 に示した試料番号 1-4 にそれぞれ対応している。作製された試料全般について言えることは, Ti 蒸発フィラメントに近く析出速度の大きい膜ほど TiC の組成比が Ti 過剰になっていることである。

### 3. 結果および考察

熱サイクル試験前後における TiC 被覆試料の電子顕微鏡写真を Fig. 4~6 に示す。Fig. 4, 5, 6 はそれぞれ Table 1 の A, B, C の試料に対応し, 上段は試験前, 下段は試験後の写真である。写真横の数字は試料に加えられた熱サイクルの回数である。Fig. 4 の場合では, 膜厚が他の 2 つの場合に比べて小さいため, 試験後の写真において, 基材であるモリブデンの粒界が浮き出て見えている。また, B-1, C-3 には剥離が, B-2, C-1 には割れが, それぞれ膜中に生じているが, その程度はいずれの場合も, 膜厚の大きい方が大きかった。それ以外の写真では特に損傷は見られないが, 全体的な傾向として, 試験前に比べ試験後の膜の方が滑らかに見える。

以上の結果から, 総体的にみて被膜の堆積速度が大きく, C/Ti の組成比が 1 から離れている膜ほど熱サイクルによって損傷を受け易いと言える。従って, JT-60 において TiC をモリブデン上にその場コーティングする場合には, 膜の堆積速度を  $1 \text{ \AA/s}$  程度以下にすることおよび C/Ti の組成比を 1 にすることが良質な膜の作製のために必要と考えられる。

## 謝 辞

本研究をまとめるに際し, 有意義な助言をいただいた炉心工学研究室, 阿部副主任研究員, 村上室長に感謝の意を表します。



比を Table 1 にまとめておく。試料番号中の A, B, C の記号は同一工程で作製された試料であることを示す。また, 1-4 の番号は, Fig. 1 に示した試料番号 1-4 にそれぞれ対応している。作製された試料全般について言えることは, Ti 蒸発フィラメントに近く析出速度の大きい膜ほど TiC の組成比が Ti 過剰になっていることである。

### 3. 結果および考察

熱サイクル試験前後における TiC 被覆試料の電子顕微鏡写真を Fig. 4~6 に示す。Fig. 4, 5, 6 はそれぞれ Table 1 の A, B, C の試料に対応し, 上段は試験前, 下段は試験後の写真である。写真横の数字は試料に加えられた熱サイクルの回数である。Fig. 4 の場合では, 膜厚が他の 2 つの場合に比べて小さいため, 試験後の写真において, 基材であるモリブデンの粒界が浮き出て見えている。また, B-1, C-3 には剥離が, B-2, C-1 には割れが, それぞれ膜中に生じているが, その程度はいずれの場合も, 膜厚の大きい方が大きかった。それ以外の写真では特に損傷は見られないが, 全体的な傾向として, 試験前に比べ試験後の膜の方が滑らかに見える。

以上の結果から, 総体的にみて被膜の堆積速度が大きく, C/Ti の組成比が 1 から離れている膜ほど熱サイクルによって損傷を受け易いと言える。従って, JT-60 において TiC をモリブデン上にその場コーティングする場合には, 膜の堆積速度を  $1 \text{ \AA/s}$  程度以下にすることおよび C/Ti の組成比を 1 にすることが良質な膜の作製のために必要と考えられる。

## 謝 辞

本研究をまとめるに際し, 有意義な助言をいただいた炉心工学研究室, 阿部副主任研究員, 村上室長に感謝の意を表します。

比をTable 1にまとめておく。試料番号中のA, B, Cの記号は同一工程で作製された試料であることを示す。また, 1-4の番号は, Fig. 1に示した試料番号1-4にそれぞれ対応している。作製された試料全般について言えることは, Ti 蒸発フィラメントに近く析出速度の大きい膜ほどTiCの組成比がTi 過剰になっていることである。

### 3. 結果および考察

熱サイクル試験前後におけるTiC被覆試料の電子顕微鏡写真をFig. 4~6に示す。Fig. 4, 5, 6はそれぞれTable 1のA, B, Cの試料に対応し, 上段は試験前, 下段は試験後の写真である。写真横の数字は試料に加えられた熱サイクルの回数である。Fig. 4の場合では, 膜厚が他の2つの場合に比べて小さいため, 試験後の写真において, 基材であるモリブデンの粒界が浮き出て見えている。また, B-1, C-3には剥離が, B-2, C-1には割れが, それぞれ膜中に生じているが, その程度はいずれの場合も, 膜厚の大きい方が大きかった。それ以外の写真では特に損傷は見られないが, 全体的な傾向として, 試験前に比べ試験後の膜の方が滑らかに見える。

以上の結果から, 総体的にみて被膜の堆積速度が大きく, C/Tiの組成比が1から離れている膜ほど熱サイクルによって損傷を受け易いと言える。従って, JT-60においてTiCをモリブデン上にその場コーティングする場合には, 膜の堆積速度を $1 \text{ \AA/s}$ 程度以下にすることおよびC/Tiの組成比を1にすることが良質な膜の作製のために必要と考えられる。

### 謝 辞

本研究をまとめるに際し, 有意義な助言をいただいた炉心工学研究室, 阿部副主任研究員, 村上室長に感謝の意を表します。

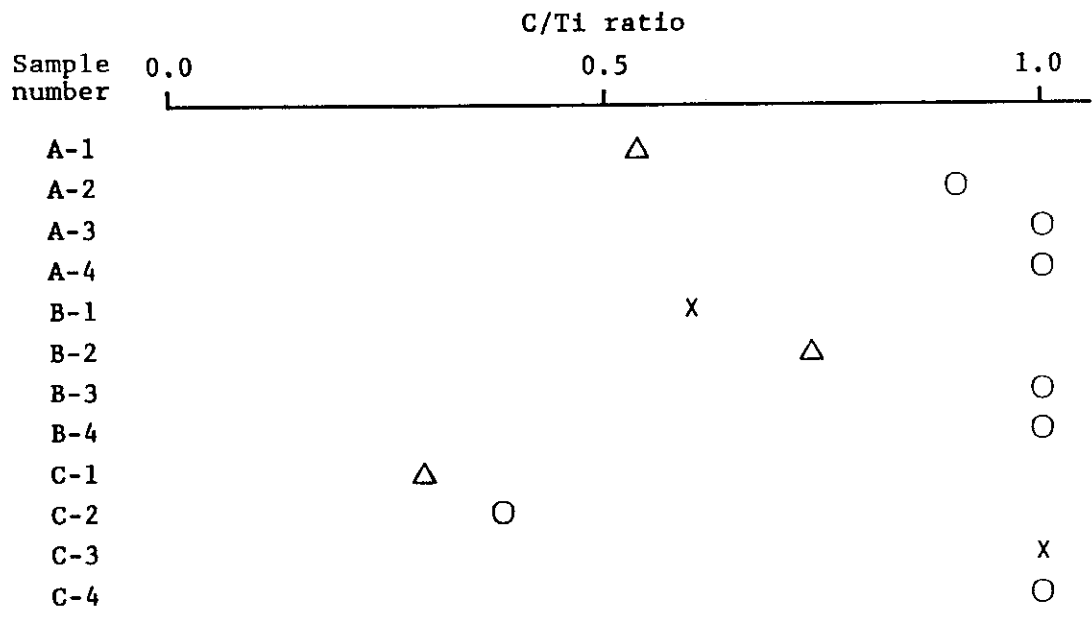
## 参 考 文 献

- 1) Y. Murakami, T. Abe and H. Nakamura ; J. Nucl. Mater. 111 & 112 (1982) 861
- 2) K. Nakamura, R. Yamada, M. Saidoh and Y. Murakami ; J. Nucl. Mater. 111 & 112 (1982) 852
- 3) R. Yamada, K. Nakamura, M. Saidoh and Y. Murakami , J. Nucl. Mater. 111 & 112 (1982) 856
- 4) 中村和幸 ; JAERI-M 82 - 026 (1982)
- 5) 中村和幸 ; JAERI-M 85 - 089 (1985)
- 6) 阿部哲也, 稲川幸之助, 小原建次郎, 広木成治, 村上義夫 ; 真空 26 (1983) 488
- 7) 稲川幸之助, 阿部哲也, 小原建次郎, 広木成治, 村上義夫 ; 真空 26 (1983) 494
- 8) 広木成治, 阿部哲也, 稲川幸之助, 小原建次郎, 中村和幸, 村上義夫 ; 真空 27 (1984) 386
- 9) 稲川幸之助, 阿部哲也, 広木成治, 小原建次郎, 中村和幸, 村上義夫 ; 真空 27 (1984) 389

Table 1 Deposition conditions, thickness and composition of test samples

Sample number	Substrate temperature (°C)	Pressure of reactive gas (Torr)	Deposition rate of film (Å/sec)	Film thickness (Å)	Ratio of C/Ti
A-1	300	$2 \times 10^{-4}$ (C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> )	1.60	2,400	0.53
A-2			0.80	1,200	0.91
A-3			0.60	900	1.03
A-4			0.40	600	1.07
B-1	300	$1 \times 10^{-5}$ (C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> )	1.13	11,500	0.60
B-2			0.86	8,700	0.74
B-3			0.47	4,800	1.02
B-4			0.30	3,000	1.06
C-1	300	$2 \times 10^{-4}$ (C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> )	6.16	10,900	0.30
C-2			4.75	8,400	0.38
C-3			2.32	4,100	1.03
C-4			1.36	2,400	1.06

Table 2 Summary of the test results



O: No failure, Δ: Micro-crack formation, X: Film exfoliation

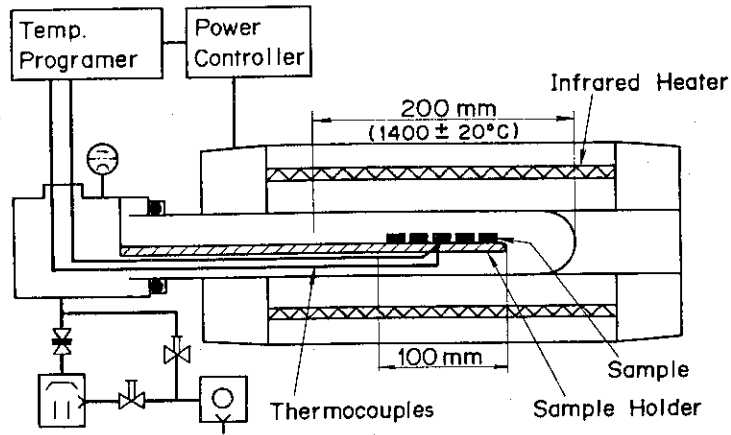


Fig. 1 Schematic diagram of the apparatus for thermal cycle testing

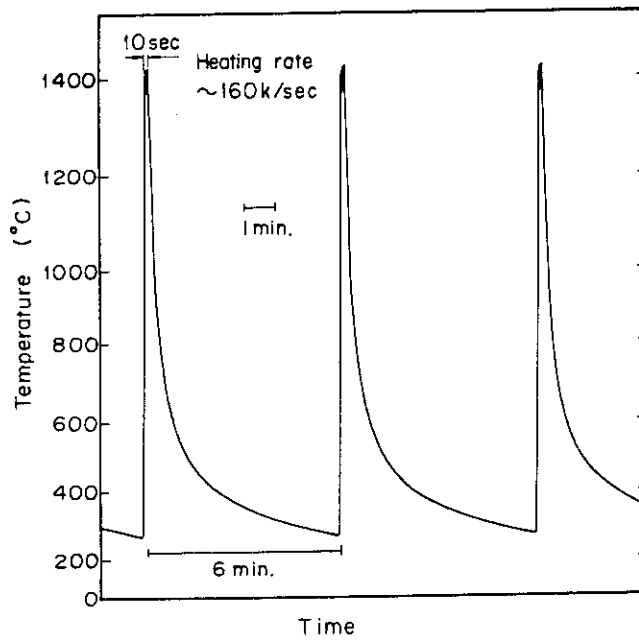


Fig. 2 Sample temperature change during thermal cycles

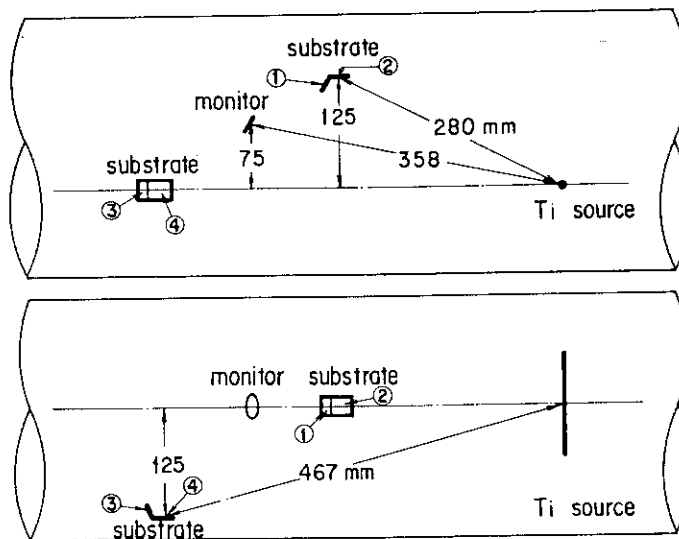


Fig. 3 Schematic diagram of the apparatus for TiC coating by reactive evaporation

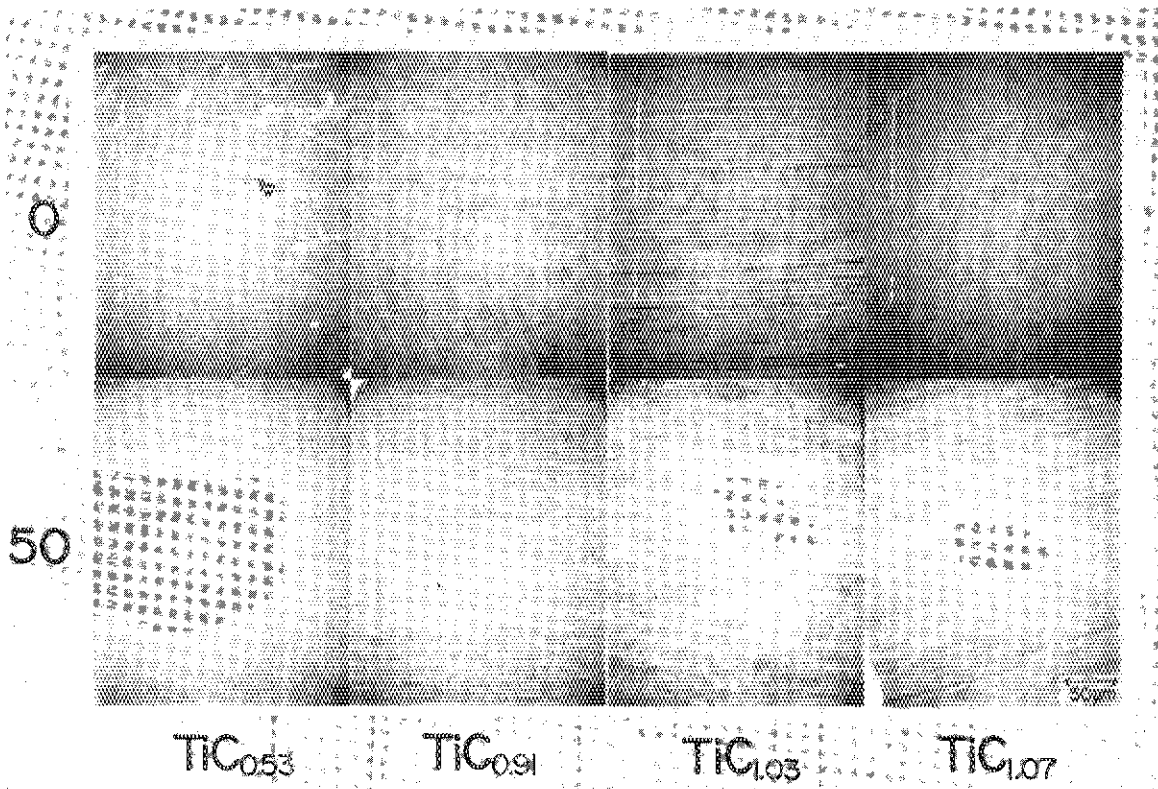


Fig. 4 Micrographs of TiC-coated molybdenum samples before and after 50 thermal cycles

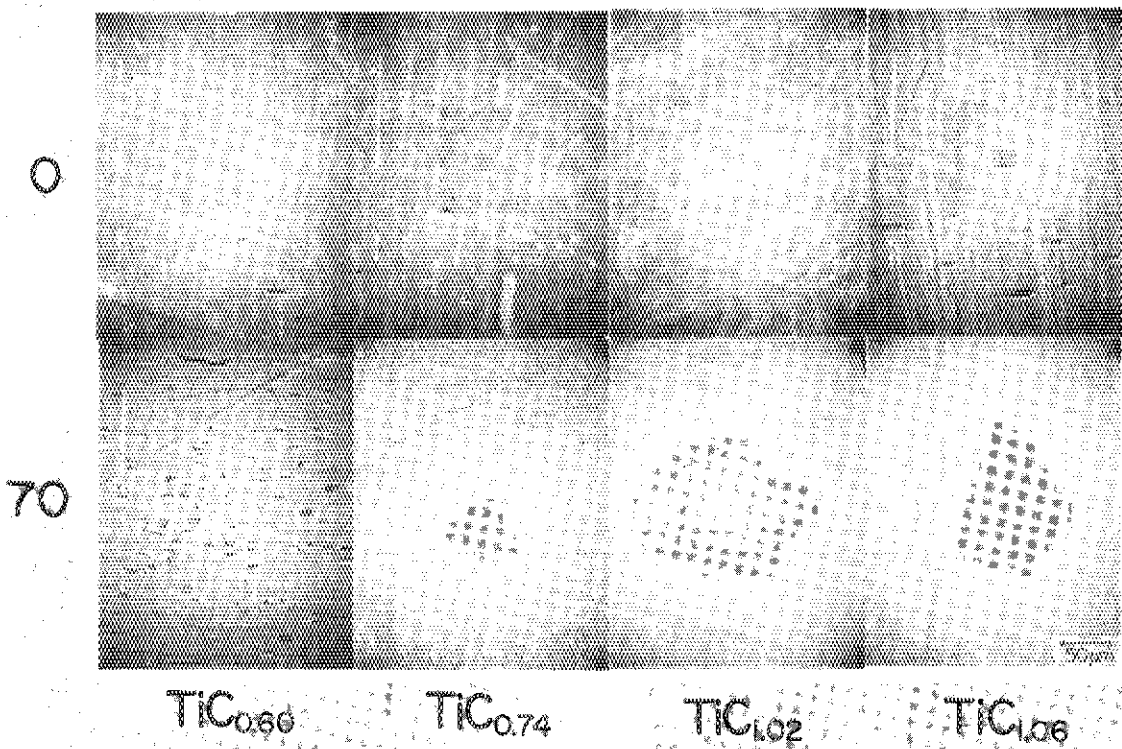


Fig. 5 Micrographs of TiC-coated molybdenum samples before and after 70 thermal cycles

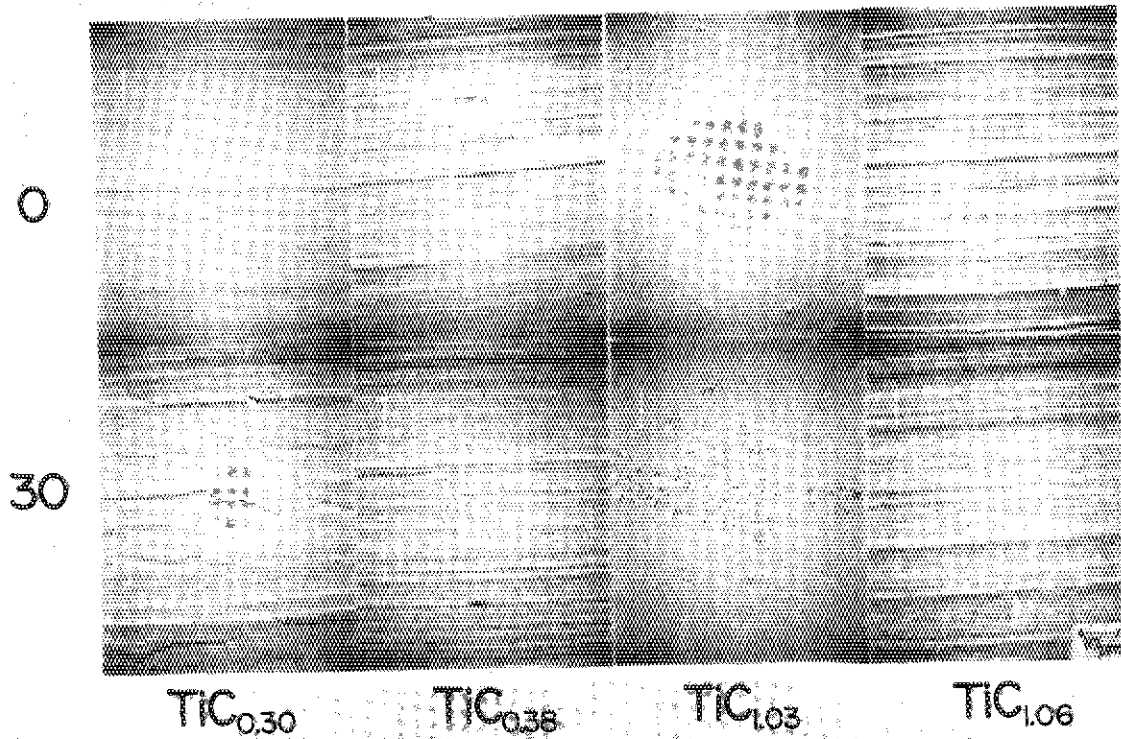


Fig. 6 Micrographs of TiC-coated-molybdenum samples before and after 30 thermal cycles