

# レーザ局所過熱を用いた セラミックス複合材料-金属材料の異材接合技術の開発



特集  
接合科学研究所  
産学連携シンポジウム

室蘭工業大学 助教 中里 直史 氏、教授 岸本 弘立 氏、大学院生 西條 友章 氏  
大阪大学 准教授 芹澤 久 氏、准教授 佐藤 雄二 氏、教授 塚本 雅裕 氏

## 1. はじめに

エネルギーシステムの炉心部材やロケットノズル、航空機エンジン、タービンブレード等の高温部材の材料を既存の耐熱金属材料からセラミックス材料に置き換えることは、システムの高性能を実現するための有力なオプションの1つである。セラミックス材料の構造材料への応用において、セラミックスが有する脆性（壊れやすさ）は致命的な弱点となる。そのため、セラミックス長繊維等の強化材を複合化することで脆性を改善したセラミックス複合材料が注目されている。セラミックス複合材料の1つである炭化ケイ素繊維強化炭化ケイ素基複合材料（SiC/SiC 複合材料）は、炭化ケイ素（SiC）の軽量、優れた耐熱性、化学的安定性、低放射化特性等の特徴を活かしつつ、SiC 長繊維の複合化により靱性を向上させた材料であり、原子力・核融合エネルギー分野や航空宇宙分野をはじめとした過酷環境下における構造材料としての応用が期待されている。SiC/SiC 複合材料の実用化を考える上では、安全性や経済性などの観点から、システム全体をセラミックス複合材料で構築することは非現実的であり、耐熱金属材料との併用が必要不可欠である。本稿では原子力分野での応用に向けた、レーザ局所過熱を用いる SiC/SiC 複合材料-ジルコニウム合金の異材接合技術開発の現状について紹介する。

## 2. SiC/SiC 燃料被覆管開発における異材接合技術の必要性

福島第一原子力発電所の事故以降、軽水炉の安全性の向上が強く求められており、事故耐性燃料（Accident Tolerant Fuel：ATF）に関連した研究開発が国内外で積極的に行われている [1]。数ある ATF 概念の中でも燃料被覆管素材として SiC/SiC 複合材料を用いる概念は有力な候補の1つである。室蘭工業大学では文部科学省の平成 24 年度 国家課題対応型研究開発推進事業「高度の安全性を有する

炉心用シリコンカーバイト燃料被覆管等の製造基盤技術に関する研究開発（SCARLET 計画）」と、経済産業省の平成 24 年度革新的実用原子力技術開発費補助事業「革新的安全性向上を実現させるセラミックス複合材料の燃料集合体への適用技術開発（INSPIRE 計画）」を通じて、SiC/SiC 燃料被覆管の製造基盤技術を構築し、ノルウェー・ハルデン原子炉を用いた SiC/SiC 模擬燃料ピン要素の炉水環境下における中性子照射試験を実施した [2-4]。SiC/SiC 燃料被覆管の研究開発において、研究炉を含む原子炉内での中性子照射試験は必要不可欠であり、試験の実施にあたっては端栓封止技術や照射リグとの接合技術の確立が重要となる。しかしながら、セラミックス材料の端栓封止技術は未だ研究段階にあるため、現状における原子炉内照射試験の実施にあたっては、現行の金属材料を利用した照射用試験体の作製が求められる。接合においては核分裂生成物を外部に放出しないための十分な気密性と強度特性を有し、かつ核燃料を装荷した状態等の制約のある条件下で応用可能であることが重要である。そこで、室蘭工業大学ではネジによる機械的接合とロウ付けを併用し、図 1 に示すような SiC/SiC 被覆管の端部に現行の軽水炉燃料被覆管材料であるジ



図 1 ハルデン原子炉照射用の SiC/SiC 模擬燃料ピン要素の外観

ルコニウム合金管（ジルカロイ管）を接合した接合体を作製した。この SiC/SiC 模擬燃料ピン要素部材はハルデン原子炉の核燃料非装荷の気密性基準を満たし、照射試験後でも健全性は維持されていたものの、接合部ではロウ材の変色や剥離が観察された。SiC/SiC 被覆管とジルカロイ管の併用は、SiC/SiC 被覆管の早期実用化を考えた場合の1つのオプションにもなり得る。そのため、接合部の耐熱性や耐環境特性の向上の観点から、SiC/SiC 複合材料とジルカロイの新しい異材接合技術の開発が必要であるとの考えに至り、本研究での異材接合技術開発に繋がった。

### 3. レーザ局所過熱を用いた SiC/SiC 複合材料 - ジルコニウム合金の異材接合技術

本研究ではレーザー局所過熱を用いた異材接合技術に着目した。これは加熱が局所的であるため、接合母材の特性の劣化を可能な限り抑えた接合が可能であること、核燃料ピン製造等の制約のある条件下でも応用できる可能性があるためである。本異材接合技術の概念としては、図2に示すように耐熱金属をレーザーで局所的に加熱することで、焼嵌めによる機械的に接合する。加えて、母材セラミックスとの親和性に優れた高融点金属粉末をレーザー照射領域に局所的に利用し溶融させることで化学的な接合も促し、気密性の確保を目指した。



図2 本異材接合技術の概念図

封入する金属粉末としては、母材セラミックスである SiC と親和性が高く、ジルコニウムと全率固溶体を形成するチタン (Ti) を選択した。

本研究の供試材には SiC/SiC 管 (外径 12 mm/ 内径 10 mm、長さ 35 mm) と、ジルカロイ管 (外径約 12 mm/ 内径約 11 mm、長さ 25 mm) を用い、長さ 15 mm の嵌め合わせができるように段付き加工を行った。SiC/SiC 管は室蘭工業大学が得意とす

る SiC/SiC 複合材料製造技術の1つである、ナノ含浸遷移共晶相 (NITE) 法により作製し、優れた気密性を有する管である。封入用の Ti 粉末は純度 99.9%、粒径 $\sim 45 \mu\text{m}$ である。SiC/SiC 管の各スリット部に Ti 粉末を封入後、ジルカロイ管を装着し、試験体とした。レーザー源には最大出力 500 W のファイバーレーザーを用い、ビーム径は $\phi 200 \mu\text{m}$ とした。図3に示すような一定速度で回転可能な専用機器の先端に試験体を取り付け、回転している試験体のスリット部に上部からレーザー照射を実施した。試験体の回転速度は 60 rpm、各スリット部へのレーザー照射時間は 3.2 s とした。接合体の評価として、樹脂に埋め込み、円管の長軸方向に切断・研磨し、SEM による接合部の微細組織観察と、EDS による元素分析を行った。また、気密性は片側にシリコン樹脂の栓を装着し、水没させ、反対側から空気を送り込む液没試験により簡易的に評価した。

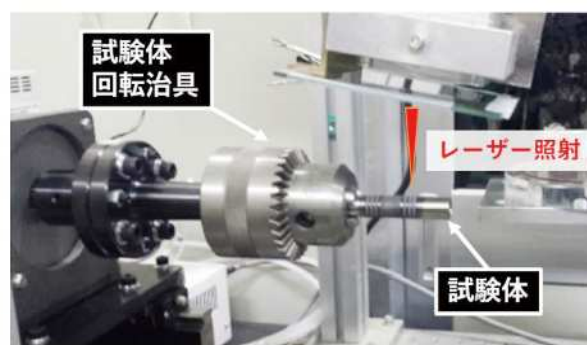


図3 レーザ照射試験装置外観

図4にレーザー局所過熱による異材接合体の作製について示す。Ti 粉末封入の為の溝は2本であり、Ti 粉末封入部に対応する部分にレーザー照射痕が見られる。外観上はレーザー照射部に欠陥は認められず、焼嵌めによる機械的な接合も可能であった。

図5に接合体のレーザー照射部の SEM による断面微細組織観察及び、SEM/EDS 分析結果を示す。SiC/SiC 管のスリット内に Ti 粉末が溶融したと思われる組織が形成されている。このような溶融部では SiC/SiC 管とジルカロイ管の良好な接合が同え、この接合状態をスリット内全域に形成することが気密性の確保に繋がると考えている。溶融部の反射電子像からは、溶融組織のコントラストの違いが観察されることから、溶融部の組織は組成の異なる複数の相から成り立っていると考えられる。EDS 分析



図4 レーザ局所過熱による SiC/SiC 複合材料—ジルカロイ異材接合体の作製

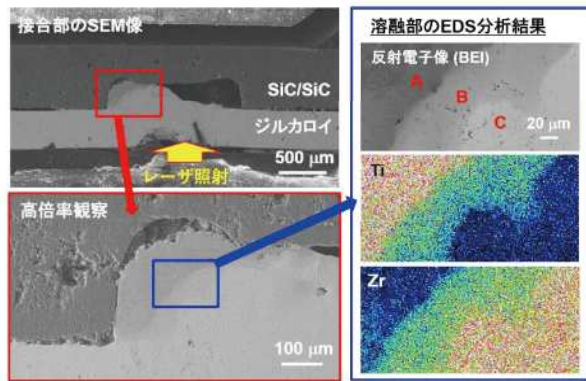


図5 接合体のレーザー照射部の SEM による断面微細組織観察及び、SEM/EDS 分析結果

結果から、コントラストの暗い相 (A) は Ti 相で、コントラストの明るい相 (C) が Zr 相、中間の相 (B) が Zr-Ti の固溶体相を形成していると考えられる。組織観察から観察できる Ti 粉末と Zr の反応部から、反応はジルカロイの内面のみで起こっていると考えられ、これは本接合技術が目指す組織構造である。

しかし、気密性試験から接合部における空気リークが観察され、気密性には未だ課題が残っている。最近の成果としては、本接合法の重要因子の 1 つと考えられる Ti 粉末封入用のスリット部形状の接合性に及ぼす影響評価から、空気リークが少ない有効的なスリット形状 (片側スリット形状) を見出せ

ている [5, 6]。今後の目標としては、片側スリット形状に適したレーザー照射条件の再検討を行い、気密性を確保できる照射条件を見出すことである。

#### 4. おわりに

レーザー局所過熱を用いた本異材接合法により、機械的な接合を有する SiC/SiC 複合材料—ジルカロイ接合体の作製が可能であった。今後は気密性を確保できる接合条件の最適化を行うことにより、SiC/SiC 複合材料—ジルカロイのレーザー局所過熱を用いた異材接合法の基盤技術の確立を目指す。本接合技術はジルカロイだけでなく、その他の耐熱金属材料にも応用可能であると考えており、将来的には多様な金属材料と SiC/SiC 複合材料を接合可能な異材接合技術に発展させていきたいと考えている。

#### 参考文献

- 1) S.J. Zinkle, K.A. Terrani, J.C. Gehin, L.J. Ott, L.L. Snead, *Journal of Nuclear Materials*, 448 (2014) 374-379
- 2) A. Kohyama, H. Kishimoto, *Nuclear Science, Proceedings of SMINS-3*, 9 (2015) 215-222.
- 3) H. Kishimoto, A. Kohyama, *Nuclear Science, Proceedings of SMINS-3*, 9 (2015) 233-240.
- 4) A. Kohyama, H. Kishimoto, J.S. Park, N. Nakazato, E. Yanagiya, Paper presented at 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit, December 1 (2016).
- 5) H. Serizawa, H. Motoki, Y. Asakura, Y. Sato, N. Nakazato, M. Tsukamoto, J.S. Park, H. Kishimoto, A. Kohyama, *Ceramic Engineering and Science Proceedings*, 39 (2018) 2.
- 6) H. Serizawa, N. Nakazato, Y. Sato, M. Tsukamoto, J.S. Park, H. Kishimoto, *International Journal of Ceramic Engineering & Science*, 1 (2019) 57-63.