

令和 3 年 4 月 26 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04776

研究課題名(和文) 金属微粉体援用による局所レーザー加熱無機-金属材料直接接合法の確立

研究課題名(英文) Development of Direct Joining Method between Ceramic and Metal Materials with Micro Metal Powders By Using Local Laser Irradiation

研究代表者

芹澤 久 (Serizawa, Hisashi)

大阪大学・接合科学研究所・准教授

研究者番号：20294134

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：炭化ケイ素繊維強化型炭化ケイ素複合材料(SiC/SiC)円管の外表面に施した狭い幅の溝部に、チタン微粉体とチタン-ジルコニウム-銅系のろう材との混合物を封入後、ジルカロイ円管内にSiC/SiC円管を挿入する。SiC/SiC円管の溝部に相当する部分に、ジルカロイ円管の外表面からレーザーを照射することで、ジルカロイ円管の内表面と封入した混合物との間で、チタンとジルコニウムとの全率固溶体を生成するとともに、全率固溶体とSiC/SiC円管の外表面とが接合することで、SiC/SiC円管とジルカロイ円管との接合に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、無機であるセラミックス複合材料の炭化ケイ素繊維強化型炭化ケイ素複合材料(SiC/SiC)と、耐熱金属材料のジルカロイとを、チタン微粉体を活用して、レーザー加工により直接接合することに成功した。無機と金属材料との接合を、金属微粉体の援用で可能にした本研究成果は、学術的に類の無い独自性を有する結果であるとともに、レーザー加工技術の一つとしても、創造性にあふれた研究成果である。さらに、本接合技術は、SiC/SiCとNi合金やチタン合金との接合にも活用可能であると期待され、航空宇宙機の高温部や燃料系統への応用も期待され、その社会的意義は非常に高いと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this research, based on the calking method, the fiber laser irradiation method was employed for joining between silicon carbide reinforced silicon carbide matrix composite (SiC/SiC composite) and Zircaloy tubes, where the mixture of titanium powder and Ti-Zr-Cu brazing was packed in the slit manufactured on the outer surface of SiC/SiC composite tube. By applying the laser beam irradiation to the outer surface of Zircaloy tube circumferentially, the mechanical calking joint was successfully fabricated. In addition, it is revealed that the good adhesion between Zircaloy and SiC/SiC composite was produced as the result of the generation of all proportional solid solution between titanium and zirconium.

研究分野：接合工学

キーワード：レーザー加工 異材接合 金属微粉体 セラミックス材料 耐熱金属材料

1. 研究開始当初の背景

無機材料の一つであるセラミックス材料の中でも、炭化ケイ素繊維強化型炭化ケイ素複合材料 (SiC/SiC) は、航空機用構造部材、地熱発電用配管、原子力発電の核燃料や構造部材など、金属材料では対応が困難な苛酷環境下での使用が期待されている。また、SiC/SiC の適用は、より簡便で安価なシステムを実現するためのキーテクノロジーとしても期待されている[①]。しかし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。例えば現状では、ロウ材を用いた接合法が検討されているが、ロウ材の特性の制約を受ける。また、ボルト・ナットによる機械的締結法、拡散接合等冶金的接合法も検討されているが、線膨張率および融点の差から、金属材料との異材接合は極めて困難であり、新たな直接接合法の開発が求められている。

2. 研究の目的

本研究では、セラミックス材料と耐熱金属材料との間に、無機材料との親和性に優れた金属材料を、反応性が高い微粉体として封入し、耐熱金属材料を最新の高輝度レーザを活用して局所的に加熱することで、耐熱金属材料の特性を劣化させることなく、封入した金属微粉体をバインダーとした、セラミックス材料と耐熱金属材料との直接接合法の確立を目的とする。

3. 研究の方法

本研究に用いた SiC/SiC およびジルカロイは、それぞれ、NITE (Nano-powder Infiltration and Transient Eutectic Process) 法ならびに Zircaloy-2 で作製された平板および円管である。

(1) SiC/SiC 平板は 40 x 40 x 1 mm であり、中央部に長さ 30 mm、幅 0.5 mm の溝加工を施し、溝内に接合補助材を封入させた後、40 x 40 x 1 mm のジルカロイ平板を重ね、図 1 に示すように四つ角で両平板を固定した。出力 490 W、焦点位置でのスポット径が 0.2 mm のレーザを、補助材が封入された位置に相当するジルカロイ平板中央部に、移動速度 3.5 m/min で照射した。接合補助材として Ti 粉体のみと、Ti 粉体と Ti-Zr-Cu 系ロウ材との混合物の二種類について、実験を行った。

(2) 円管の場合には、内外直径 10.0, 12.0 mm の SiC/SiC 端部の外表面 15 mm と、内外直径が約 10.6, 12.3 mm のジルカロイ円管端部の内表面 15 mm を切削加工し、それぞれの肉厚を 0.85 および約 0.35 mm に減肉した。減肉した SiC/SiC 円管の二ヶ所に、幅 0.5 mm の溝加工を円周状に行い、溝内に接合補助材 (Ti 粉体と Ti-Zr-Cu 系ロウ材との混合物) を封入させた後、切削加工したジルカロイ円管にはめ込んだ。レーザ照射は、補助剤が封入された位置に相当するジルカロイ外表面に行った。回転速度 60 rpm で回転させた円管に、出力 500 W、焦点位置でのスポット径 0.2 mm のレーザを、4.2 秒間照射した。図 2 に、レーザ照射後の外観写真を示す。レーザ照射後、接合体の組織観察として、X 線 CT スキャンおよび SEM による組織観察を行った。さらに円管継手については、水没試験による気密性評価も行った。

4. 研究成果

(1) 平板のジルカロイと SiC/SiC とで作製した異材接合体の、レーザ照射後の外観は、接合補助材の影響は認められなかったが、X 線 CT スキャンによる溝部の内部観察結果より、Ti 粉体と Ti-Zr-Cu 系のロウ材との混合物を補助材としたほうが、図 3 に示すように、レーザ照射後の溝部への固溶体充填率が高い傾向が認められた。EDS による分析の結果より、Ti 粉体のみを封入した場合には、固溶体内の Ti と Zr との分布は、ほぼ均一であった。一方、Ti 粉体と Ti-Zr-



図 1 レーザ照射後の SiC/SiC 平板とジルカロイ平板との接合体の外観写真

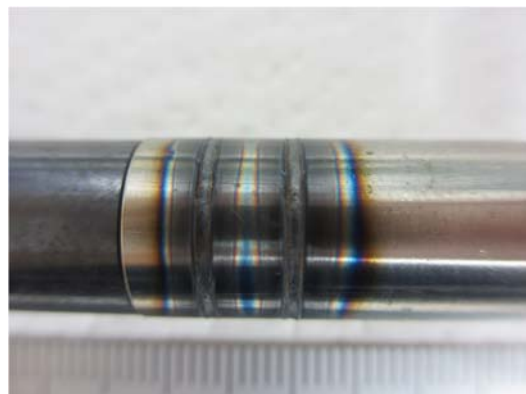
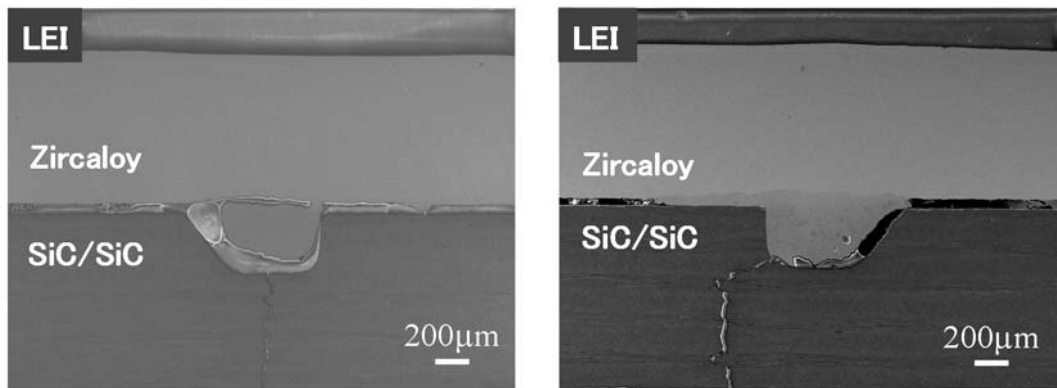


図 2 レーザ照射後の SiC/SiC 円管とジルカロイ円管との接合体の外観写真



(a) チタン粉体のみ (b)チタン粉体とロウ材との混合物
 図3 レーザ照射後の SiC/SiC 平板–ジルカロイ平板接合体の断面組織観察結果

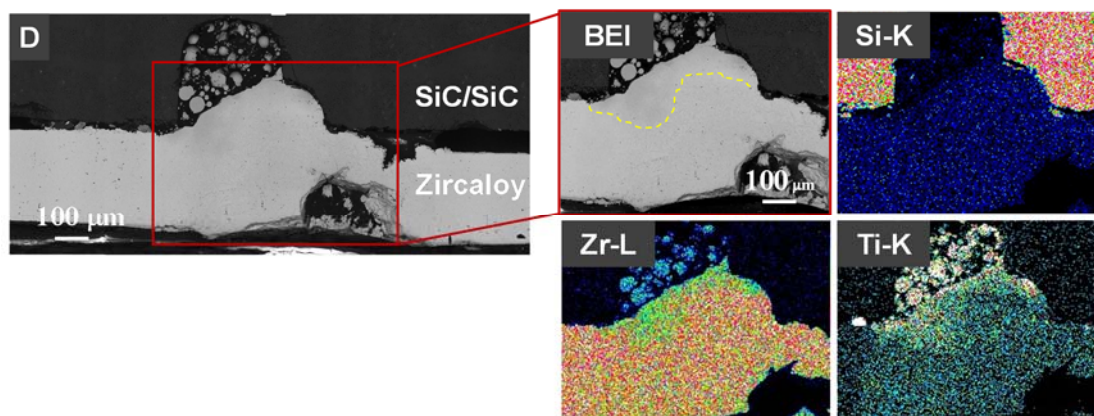


図4 レーザ照射後の SiC/SiC 円管–ジルカロイ円管接合体の断面組織観察・分析結果

Cu 系のロウ材との混合物を封入した場合には、ジルカロイ側に、Ti と Zr との比率がほぼ同等の固溶体が形成されるが、SiC/SiC 側は Zr よりも Ti のほうが比率が高い固溶体が掲載される結果となった。その原因は、ロウ材の主な原子比率が、 $49\text{Ti}-26\text{Zr}-25\text{Cu}$ に起因すると考えられる。なお、Cu は僅かに固溶体中に均質に分布する結果となった。

(2) 固溶体充填率が高くなる傾向が認められた、Ti 粉体と Ti-Zr-Cu 系ロウ材との混合物を接合補助材として作製したジルカロイと SiC/SiC との円管継手は、水没試験では完全な気密性を確保することはできない結果となったが、空気の漏れは一箇所のみで、良好な気密性が期待できる結果であった。X 線 CT スキャンによる溝部の内部観察結果では、円周状の溝部に不均一な固溶体が形成した結果となっており、不均一性が、気密性が確保できなかった原因の一つであると考えられる。また、溝部への固溶体充填率が高い部分の組織観察を行った結果、図 4 に示すように、溝の角部で固溶体と SiC/SiC との間に良好な接合性が認められており、Ti-Zr-Cu 系ロウ材の導入により接合性が向上することを確認することができた。なお、ジルカロイ表面部でレーザー照射による損傷が認められており、入熱量の制御が必要であることも分かった。

<引用文献>

- ① H. Kishimoto and A. Kohyama, “SiC/SiC Fuel Cladding R&D Project “SCARLET”: Status and Future Plan,” Nuclear Science, Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-3) Workshop Proceedings, Idaho National Laboratory, Idaho Falls, United States, 7-10 October 2013, 9 (2015) pp233-240.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Serizawa Hisashi, Nakazato Naofumi, Sato Yuji, Tsukamoto Masahiro, Park Joon Soo, Kishimoto Hirotsu	4. 巻 1
2. 論文標題 Experimental studies on joinability of zircaloy and SiC/SiC composite with titanium powder	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Ceramic Engineering & Science	6. 最初と最後の頁 57～63
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/ces2.10010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 H. Serizawa, H. Motoki, Y. Asakura, Y. Sato, N. Nakazato, M. Tsukamoto, J.S. Park, H. Kishimoto and A. Kohyama	4. 巻 39
2. 論文標題 Influences of Laser Condition and Slit Shape on Joinability of Zircaloy-SiC/SiC Composite Tube Joint	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Ceramic Engineering and Science Proceedings	6. 最初と最後の頁 241-249
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/9781119543343.ch24	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 H. Serizawa, Y. Sato, N. Nakazato, M. Tsukamoto and H. Kishimoto	4. 巻 941
2. 論文標題 Effect of Slit Shape on Joinability of Zircaloy - SiC/SiC Composite Tube Joint with Titanium Powder	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Science Forum	6. 最初と最後の頁 1944-1949
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4028/www.scientific.net/MSF.941.1944	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3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 西條友章, 中里直史, 芹澤 久, 岸本弘立
2. 発表標題 融点活性金属を用いたNITE-SiC/SiC 複合材料のロウ付けの検討
3. 学会等名 日本金属学会166回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 芹澤 久, 元木裕崇, 中里直史, 佐藤雄二, 塚本雅裕, 朴 峻秀, 岸本弘立
2. 発表標題 ジルカロイ - SiC/SiC 接合体作製時のチタン封入法に関する検討
3. 学会等名 平成30年度溶接学会秋季全国大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Serizawa, N. Nakazato, Y. Sato, M. Tsukamoto J.S. Park and H. Kishimoto
2. 発表標題 Experimental Studies on Joinability of Zircaloy and SiC/SiC Composite with Titanium Powder
3. 学会等名 The 43rd International Conference on Advanced Ceramics & Composites (国際学会)
4. 発表年 2019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	塚本 雅裕 (Tsukamoto Mashiro) (90273713)	大阪大学・接合科学研究所・教授 (14401)	
研究分担者	中里 直史 (Nakazato Naofumi) (70714864)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・助教 (10103)	
研究分担者	岸本 弘立 (Kishimoto Hirotsu) (30397533)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・教授 (10103)	

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
---------	---------