

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656557

研究課題名(和文) セラミックス繊維強化高靱性タングステン材料の開発

研究課題名(英文) Development of Silicon Carbide Fiber Reinforced Tungsten Composites with Enhanced Fracture Toughness

研究代表者

檜木 達也 (HINOKI, Tatsuya)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授

研究者番号：60372596

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：タングステンは核融合炉におけるダイバータ、第一壁材料として期待されているが、特に中性子照射環境下で脆くなることが懸念される。また、タングステンの融点は非常に高いものの、1000 程度の再結晶温度以上になると、靱性は低下してしまうため、使用上限温度が制約を受けてしまう。本研究では、タングステンに対してセラミックス長繊維での強化という、セラミックス複合材料の破壊力学を取り入れた全く新しい手法により、中性子照射環境下、また再結晶温度を超えるような温度域においても優れた破壊靱性を得られる材料の開発を行なった。

研究成果の概要(英文)：Tungsten is a primary candidate material for divertor and first wall of nuclear fusion reactor. A tungsten material is expected to be used at high temperature due to its extremely high melting point. However mechanical properties of tungsten degrade at high temperature due to recrystallization of pure tungsten above 1000C. Neutron irradiation also affects mechanical properties significantly. The objective of this work is to develop a tungsten material with ductile behavior under high temperature neutron irradiation environment. Silicon carbide has very close coefficient of thermal expansion with tungsten. Silicon carbide fibers can be used at above 1000C under neutron irradiation. Silicon carbide was selected as reinforcement of tungsten to have ductility under the severe environment. Novel tungsten composites reinforcement with silicon carbide fibers were developed.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：ダイバータ タングステン 複合材料 炭化珪素 高温強度 中性子照射

1. 研究開始当初の背景

核融合環境は材料にとっては非常に過酷な環境であるが、特にダイバータのおかれる環境は熱負荷、プラズマによるスパッタリングの観点で非常に厳しい。タングステンは最も有望な候補材料であるが、基本的な脆性特性と中性子照射環境下での更なる脆化が課題となっている。また、融点は非常に高いにもかかわらず、1000 程度の再結晶温度以上で冷却時に靱性が劣化してしまうため、実質的な使用上限は 1000 程度に抑えられ、設計で求められる十分な性能を発揮することができない。実用環境下で耐えうる材料は存在しない。本研究では、タングステンを母材としながら、最大の弱点である脆性特性を克服する手段として、C 繊維や SiC 繊維のセラミック長繊維で強化を行う。セラミック繊維は高温強度特性に優れている。タングステンとセラミック繊維は熱膨張係数が非常に近いため、熱負荷時への界面に生じる応力も非常に小さいものと考えられる。セラミック繊維自身はタングステンに比べ非常に低放射化特性に優れ、軽いため、タングステン単体に比べて、放射能の低減及び軽量化を行うことが可能である。また、既存の設計でタングステンをを用いた場合、緊急時に冷却機能が失われた際の崩壊熱が大きな問題であるが、セラミック繊維の割合を増やすことにより、リスクを軽減することが可能である。

これまでの研究で結晶性の高い SiC 材料は中性子照射環境下において非常に優れた特性を示し、強度劣化が生じないことが報告されている。高結晶性の SiC 繊維で強化された高結晶性のマトリックスを持つ SiC/SiC 複合材料に関しても、同様に照射下で劣化しないことが報告されている [1]。C 繊維の中性子照射のデータは十分に得られていないが、グラファイトの中性子照射特性から寸法変化は懸念されるものの安定した強度特性が期待される。また、本研究で用いる C 繊維や SiC 繊維は、2000 程度まで強度特性は劣化しない。タングステンは、作製時や接合時の熱履歴、中性子照射等により強度特性の変化が生じるため、これらを考慮した材料開発が必要であるが、本研究で用いるセラミック繊維自身は、これらの環境因子に強度特性はほとんど影響を受けない。長繊維強化型の複合材料の理論式では、最大強度は繊維強度や強度のばらつき等の繊維特性と繊維とマトリックスの界面の摩擦力に大きく依存するため [2]、本研究で開発を目指す材料は、実際の製造条件や実環境下でも安定した強度特性を示すことが期待される。

2. 研究の目的

タングステン材料は核融合炉におけるダイバータ、第一壁材料として期待されているが、特に中性子照射環境下における脆化が懸念される。タングステンの融点は高いものの、1000 程度の再結晶温度以上では靱性は劣

化してしまう。本研究では、タングステンに対して C や SiC のセラミック長繊維での強化という、セラミックス複合材料の破壊力学を取り入れた全く新しい手法により、中性子照射環境下、また再結晶温度を超えるような温度域においても優れた破壊靱性を得られる材料の開発を目指す。これまでに培ったセラミックス複合材料、タングステンの焼結プロセスをベースにセラミック繊維を含むタングステンをホットプレスにより焼結を行うことにより革新的な素材を開発する。本研究では、タングステンの再結晶温度を上回る 1500 程度においても、セラミック繊維の引き抜け効果による安定した靱性の発現を有する材料の開発を目指す。

3. 研究の方法

SiC セラミックスも非常に脆性であるが、SiC 繊維で強化することにより擬延性を示し、破壊靱性値を大きく向上させることができる。これは、図 1 に示すように、初期亀裂がそのまま破壊に繋がるモノリシックのセラミックス材料と異なり、繊維と母材間の相対的に弱い界面層において亀裂が偏向し、更に剥離した界面層においても摩擦力により荷重を担うために、破壊靱性値が向上される。タングステンも非常に脆性ではあるが、セラミック繊維で強化することにより、セラミック繊維と母材のタングステンの界面において亀裂を偏向させることにより破壊靱性値を大きく向上させることを目指した。

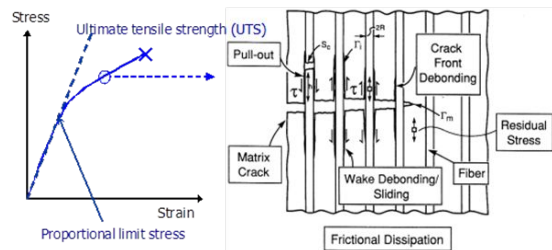


図 1：繊維強化セラミックス複合材料の破壊と挙動

タングステンに対する複合材料の考えの応用としては、これまでにタングステン繊維で強化したタングステンマトリックスの材料開発が行われたが、基本的には同一素材の複合材料であり、期待されたような擬延性効果は得られなかった。最近になり、EU で同様なタングステン繊維強化タングステンの開発が進められており、繊維/マトリックス間に銅等を用いる方法により、擬延性を示したと報告されているが詳細な強度特性の報告はされていない [3]。

将来の実用化を考えたときに、現実的に作製できる技術で、既存のタングステン材料の強度特性を大きく上回るようなタングステン材料の開発が重要である。金属材料の場合、熱履歴等の作製条件により特性が大きく影響を受け、実用スケールを考えた場合に特性の制御が非常に困難である。コンポーネント

作製に必要な接合を行う際にも、通常は熱を加えるために、特性の変化が懸念される。また、実環境下での熱負荷や中性子照射等により材料特性は大きく影響を受けてしまう。つまり、どれだけ優れたタングステンを作製したとしても、最終的なコンポーネントを作製した際や、実際の環境下において特性は大きく変わるため、非常に注意深い材料開発が必要となる。本研究で用いるセラミックス繊維自身は高温・照射環境下で優れた特性を示すことが期待されるため、タングステンの再結晶温度を上回る高温域で安定した特性が期待される。製造性に関して、航空・宇宙分野で確立されている、繊維で形状物を作りマトリックスを含浸させるニアネットシェープ成形技術の応用により、将来的に実用形状物を作製することも可能である。

複合材料の最大強度に関しては、基本的に繊維特性と繊維と母材の界面特性に大きく依存するため、タングステン自身の特性よりもセラミックス繊維間へのタングステンの含浸性や界面の反応性に着目した開発を行った。第一に、繊維間にできるだけ緻密に母材が形成されるような条件でホットプレス焼結を行い、最適化を行ったが、強度特性や微細組織評価の結果、繊維の引き抜け効果による靱性の向上が得られなかったため、含浸性や反応の制御等により複合材料としての高靱性メカニズムを達成できるような材料の最適化を行った。作製した材料は引張等の強度評価を行った。

これまでのセラミックス複合材料の作製及びセラミックス材料とタングステンの接合に関する知見に基づき、繊維間にできるだけ緻密に母材が形成されるような条件での最適化を行った。この方針に基づき、素材となるセラミックス繊維とタングステンの選定を行った。セラミックス繊維はタングステン焼結温度程度の耐熱性のあるセラミックス繊維の中から選択したC繊維及びSiC繊維を用いた。

本研究では、セラミックス繊維強化タングステンの具体的な作製方法としては、タングステン粉末を溶媒に溶かしスラリーを形成し、セラミックス繊維間に塗りこんだものやスラリーを乾燥させシート形成したもの、繊維と数10 μm 厚のタングステンの薄い板を図2に示すように積層し、ホットプレスを行った。タングステン原料として、0.6 μm 、5 μm の粉末またはタングステン箔を用いた。含浸性にはスラリーの粘性も重要な要素である

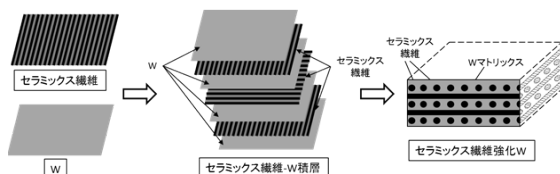


図2：本研究で開発を行うセラミックス繊維強化タングステン材料の作製過程のイメージ

ので、溶媒も含めた検討を行った。焼結条件は1000~1800、20MPa以下の条件で試料を作製した。しかしながら、高温・高圧条件であれば緻密性の向上とともに、セラミックス繊維と母材のタングステンとの界面における反応が促進し、繊維とマトリックスの界面の強度が必要以上に高くなり、本来期待されている、繊維とマトリックスの引き抜けによる高靱化が得られなかったため、緻密性を保ちながら、焼結条件の緩和を行い繊維とマトリックスの界面の反応制御を行った。

作製した材料の評価方法としては、引張り試験を行った。作製した試料の微細組織はビデオマイクロスコプ及び電界放射形走査形電子顕微鏡により評価を行った。破壊挙動、界面特性の評価のために破面観察、特に引き抜け繊維の観察を行った。

引張試験片等の破面観察から繊維の引き抜け長さを測ることにより、評価を行う。タングステンの再結晶温度を上回る温度域においても、繊維の引き抜け効果による靱性が得られるかどうかを確認するために、1500でアニールした材料の強度評価を行う。

4. 研究成果

C繊維で強化したタングステン複合材料は、タングステン焼結時に反応が進み界面において、強固な結合が形成されたものの、冷却時の熱膨張係数差に起因する応力により、亀裂の発生及び進展が起こり、本研究で用いた焼結条件では、健全な材料が得られなかった。SiC繊維で強化したタングステン複合材料においては、0.6 μm のタングステン粉末を用いた場合、繊維束内にもタングステンが含浸し、比較的緻密な組織を形成したが、SiC繊維とタングステンの反応も進み、強度評価において、繊維の引き抜けによる擬延性効果を得ることができず脆性破壊挙動を示した。5 μm のタングステン粉末を用いた場合、繊維束内へのタングステンの含浸が制限され、繊維とタングステンの過度な反応が抑制されたため、破壊挙動としては図3に示すように、繊維の引き抜け効果を得ることができ、擬延性破壊

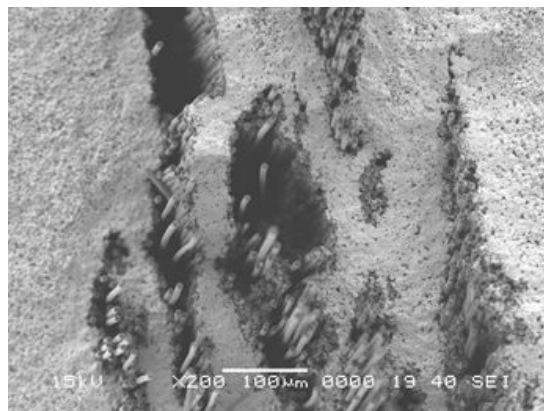


図3：5 μm のタングステン粉末を用いて作製したSiC繊維強化複合材料の引張試験後破面の走査形電子顕微鏡像

挙動を示した。SiC 繊維に C 被覆した材料に関しては、C とタングステンの反応は進むものの、SiC 繊維と C が適度に弱いせん断強度を有するために、タングステン粒子のサイズに依らず擬延性効果が得られた。

SiC 繊維とタングステン箔の積層材に関しては、タングステン粉末の焼結と異なり、SiC 繊維織物とタングステン箔の接合の条件が基本となるため、比較的低い温度と圧力の 1500 、10MPa で作製することができた。作製した SiC 繊維強化タングステン複合材料をタングステンの再結晶温度を超える 1500 でアニールした材料の室温での引っ張り試験結果を図 4 に示す。本材料はタングステン箔を用いており、作製過程でタングステンの再結晶温度以上になり、冷却されたため、通常延性挙動は示さないが、更に再結晶温度以上でアニールしても、SiC 繊維の引き抜け効果により、擬延性挙動を示した。

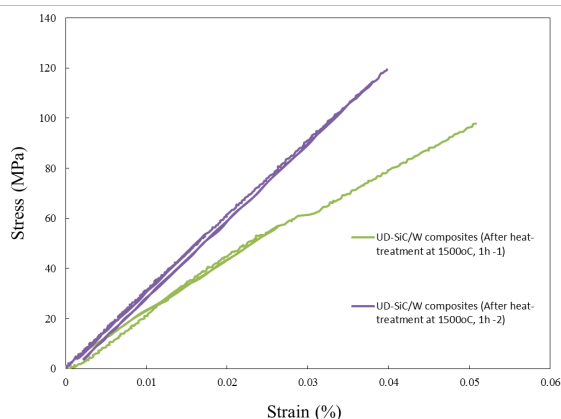


図 4 : SiC 繊維とタングステン箔を積層して作製した SiC 繊維強化複合材料の 1500 アニール試験後の室温での引っ張り試験歪 応力曲線

本研究で得られた SiC 繊維強化タングステン複合材料は、タングステンの脆化に依存しないで擬延性挙動を示した。このことは、中性子照射にタングステンが脆化したとしても、同様に擬延性挙動が得られることが期待され、本研究で目的とした核融合炉のダイバータや第一壁として使用でき可能性のある材料の開発に成功した。

参考文献

- [1] T. Hinoki and A. Kohyama, "CURRENT STATUS OF SiC/SiC COMPOSITES FOR NUCLEAR APPLICATIONS," Annales de chimie science des matériaux, 30[6] (2005) 659-71.
- [2] W.A. Curtin, "Ultimate Strengths of Fibre-Reinforced Ceramics and Metals," Composites, 24 (1993) 98.
- [3] J. Du, T. Höschel and J-H. You, "Interfacial Properties of Tungsten Fiber/Tungsten Matrix Composites with Cu Interlayer," ICFRM-14, Sep. 6-11, 2009, Sapporo, Japan.

5 . 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 3 件)

檜木達也、繊維強化タングステン複合材料、イノベーションフェア関西、2012 年 12 月 06 日～2012 年 12 月 06 日、グランキューブ大阪

檜木達也、豊島和沖、下田一哉、セラミックス繊維強化タングステン複合材料の開発、日本原子力学会 2012 年秋の年会、2012 年 09 月 19 日～2012 年 09 月 21 日、広島大学東広島キャンパス

檜木達也、繊維強化複合材料の開発、京都大学 新技術説明会 未来につながる新技術を京都から - 材料・バイオ・装置 -、2012 年 08 月 24 日～2012 年 08 月 24 日、JST 東京別館ホール

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称 : セラミックス繊維強化タングステン複合材料

発明者 : 檜木達也、下田一哉、豊島和沖

権利者 : 京都大学

種類 : 特許

番号 : 特願 2012-183610

出願年月日 : 2012 年 08 月 22 日

国内外の別 : 国内

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

檜木 達也 (HINOKI, Tatsuya)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授

研究者番号 : 6 0 3 7 2 5 9 6