技術報告

252. 高熱伝導一方向性C/C複合材の開発と
高熱負荷プラズマ対向材への適用伊尾木 公裕*¹, 小野塚 正紀*², 池田 斌*³, 秋場 真人*⁴

(1993年 6月 1日 受理)

*Development of Unidirectional C/C Composite with High Thermal Conductivity
and Its Application to Plasma Facing Materials*By Kimihiro IOKI, Masanori ONOZUKA,
Takeshi IKEDA and Masato AKIBA

Unidirectional C/C composite named "MFC-1" with high conductivity was developed, and full-scale armor tiles were fabricated. The thermal conductivity in the direction perpendicular to the plasma-side surface is more than 300~500 W/m²·°C, which is higher than those of other C/C composites ever made, even superior to that of pyrolytic carbon. It was shown by high heat load tests done using an electron beam test facility that the unidirectional C/C composite was very resistant against both surface erosion as well as severe thermal shock.

The "MFC-1" was successfully brazed to copper substrate, and its high thermal shock resistance was observed in heat load tests (20MW/m², 3s, not cooled). A functionally gradient material has been also developed as compliant layer for the MFC-1 bonded to copper.

KEYWORDS: fusion reactors, plasma facing components, divertor plates, C-C composite materials, thermal shock resistance, surface erosion, functionally gradient material

I. ま え が き

多くの核融合装置において炭素系プラズマ対向材が用いられてきており、現状で最も実績の多い材料の一つとなっている。プラズマ対向機器の高熱負荷部(特にダイバータ部やリミタ部)では、プラズマ放電中においてもアーマ材の表面温度が過剰に高温にならないよう、高熱伝導性のカーボン材の使用が必要とされる。高熱伝導性カーボン材では、高熱負荷時における表面損耗が小さくなり、カーボン不純物のプラズマ中への混入が低く抑えられるとともに、アーマタイルの寿命も長くできるからである。開発を開始した当時、すでに炭素繊維強化炭素複合材(C/C複合材)はJET, JT-60, TFTRにおいてリミタ部などに使用され始め

ていたが、これは主としてC/C複合材が機械強度や耐熱衝撃性において優れていることによるもので、当初はその板厚方向の熱伝導特性は等方性黒鉛と比べて同程度もしくはそれ以下のものであった。また、TEXTORのポンプリミタなどでは、C/C複合材を機械加工した複雑形状のものをすでに使用していた。

一方、等方性黒鉛の熱伝導特性をはるかに上回るカーボン材料として熱分解炭素(PyC)が古くから知られており、その適用が検討され、実機形状における熱負荷実験も実施したが、熱分解炭素は

*¹ 三菱原子力工業(株) (Mitsubishi At. Power Ind.)*² 三菱重工業(株) (Mitsubishi Heavy Ind., Ltd.)*³ 三菱化成(株) (Mitsubishi Kasei Corp.)*⁴ 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

層の厚み方向強度が極めて弱いため、高熱負荷時に容易にクラックが入ることから、その使用については適切でないと考えられた。

こうしたことから、近い将来の核融合装置での使用を主な目的として、当初の目標熱負荷条件を $20\sim 30\text{ MW/m}^2$ 、 5 s と設定し、可能な限り高熱伝導性のC/C複合材の開発と、高熱負荷プラズマ対向機器への適用のための検討を開始した。その結果、何種類かのC/C複合材とともに、当時アーマタイルとして実用化が考えられていなかった一方向性C/C複合材(Unidirectional Carbon-Carbon Composite)に着目し、その開発、研究に着手した^{(1)~(3)}。

II. 高熱伝導性C/C複合材の開発

まず第一歩として、高熱伝導性C/C複合材実現のために、各種の方法を検討し、試作を行なった。試作されたものを第1表にまとめる。MFC-1は一方向性C/C複合材と呼ぶもので、炭素繊維

(CF)を一方向に配向し、特殊なマトリックス材料を使用し、高温で焼成することにより、一方向の熱伝導率特性を極めて高くしたものである。この熱伝導の良好な方向をアーマタイルの板厚方向として使用した(第1図参照)。MFC-2はこれに対して2次元C/C材と呼ぶもので、炭素繊維を1つの平面内に配向するものである。また、MCI FeltはフェルトタイプC/C材と呼ばれるものである。なお、いずれのタイプにおいても炭素繊維は高熱伝導性を有する石炭ピッチ系の繊維を使用した。

C/C材について熱伝導率などの基本的性質をまとめたものが第1表で、ここで上段の材料は第1段階で試作されたもので、下段の(H)で示した材料はさらに高熱伝導特性を得る目的で製作したものである。こうして得られたC/C複合材の熱伝導率を見ると、MFC-2やMCI Feltにおいても等方性黒鉛に比べて2~3倍程度、他のC/C複合材に比べても同程度もしくはそれ以上の値(250~

第1表 MFC-1および高熱伝導性C/C複合材の主な特性

	Density (g/cm ³)	Specific heat (J/g·°C)	Thermal conductivity at room temperature (W/m·°C)		Thermal expansion coefficient (10 ⁻⁶ /°C)		Bending strength (MPa)	
			$k_{\parallel}$	$k_{\perp}$	$\alpha_{\parallel}$	$\alpha_{\perp}$	$\sigma_{\parallel}$	$\sigma_{\perp}$
MFC-1	1.83	0.72	361	51	-0.9	8.3	250	8.2
MFC-2	1.82	0.70	214	34	-0.9	11.1	180	6.8
MCI Felt	1.72	0.69	166	117	-0.4	-0.1	28	15
MFC-1(H)	1.98	0.71	535	35	-0.6	4.3	350	10
MFC-2(H)	1.84	0.75	295	37	—	—	—	—
MCI Felt(H)	1.76	0.75	279	47	-0.5	3.1	75	11

∥ : Direction mainly parallel to carbon fibers

⊥ : Direction mainly perpendicular to carbon fibers

第1図 高熱伝導性C/C複合材(MFC-1など)のアーマタイルの模式的構造

300 W/m $\cdot$ °C)を有している。しかしながら、核融合装置では20~30 MW/m 2 といった高熱負荷条件の場合があり、さらに高熱伝導性材料が要求される。MFC-1はこれを満足するもので、その炭素繊維方向の熱伝導率 $k_{\parallel}$ として、熱分解炭素であるパイロイド(ファイザー社)のそれと同程度もしくはそれ以上の値を得ることができた。

第2図はMFC-1を含めた炭素系材料の室温における熱伝導率を比較したものであり、MFC-1(H)では $k_{\parallel}$ をパイロイドの1.5倍程度以上高い値とすることができた。第3図はMFC-1の熱伝導率の温度依存性を示したもので、熱分解炭素と同様の性質を有することがわかる。これにより、MFC-1は熱分解炭素に比して同程度もしくはそれ以上の熱伝導性を有し、熱負荷側の表面温度を低く抑えることができ、しかも熱分解炭素では層間でクラックが入り易いが、高熱伝導C/C複合材であるMFC-1では耐熱衝撃性が極めて高いプラズマ対向材を得ることが期待できる。

第2図 C/C複合材およびカーボン系材料の代表的熱伝導率

第3図 MFC-1の熱伝導率温度依存性と熱分解炭素との比較

このように優れた特性が期待できる一方向性C/C材であるが、MFC-1では初めて核融合装置のアーマタイル用として製作し、板厚方向の熱伝導率がきわめて高く大型寸法のもの(100~200 mm角, 板厚30~50 mm程度)まで製作可能となった(写真1参照)。なお、20~30 mm角程度の小型のタイルの使用は一方向性C/C材としての性質に対しても安定しており、また熱応力も軽減できるという有利な点がある。

写真1 試作製造した実機大MFC-1アーマタイル(約15 cm $\times$ 11 cm $\times$ 3 cm大)

Ⅲ. 高熱負荷試験

1. 高熱負荷における表面損耗試験

炭素系のプラズマ対向材料の高熱負荷時における表面損耗特性は、プラズマへの影響などからも重要な性質である。MFC-1は高熱伝導率を有するため、解析から予測される表面損耗量は他の材料に比べて非常に小さいと思われる。これを実験的に確かめるため、ここではMFC-1に加えて、他のC/C複合材、熱分解炭素(パイロイド)についても試験を行なった。試験は三菱重工内の電子ビーム試験装置を用いて実施した⁽⁴⁾。また、表面損耗量は重量減少量から算出する方法をとった。熱負荷は20~40 MW/m²、1~6s間で均一分布とした。MFC-1の表面損耗試験結果を示したものが第4図である。また他の材料と比較しつつ表面損耗特性をまとめたものが第5図である。

第4図 熱負荷試験におけるMFC-1表面損耗量

第5図 30μmの表面損耗を与える熱負荷条件の比較対照(均一熱負荷,板厚20mmの場合)

図に示す通り、MFC-1では他のC/C材に比べて表面損耗量が小さく、25~35 MW/m²、5s間程度以下の熱負荷においては、表面損耗が比較的低く抑えられることがわかった。

2. 熱衝撃試験

MFC-1などの高熱伝導性C/C複合材は、機械的強度が比較的低いが、熱伝導率が高いこと、熱膨脹率が小さいこと、弾性率が比較的小さいことなどから、耐熱衝撃係数は高いことが期待できる。これを実証するために高熱負荷時における健全性確認試験を実施した。TFTRバンパリミタ形状やJT-60のダイバート板形状などの何種類かの実機形状のMFC-1アーマタイルを試作した。MFC-1のアーマタイルをボルトや固定具で機械的に固定し、主として熱負荷条件20~30 MW/m²、2~7s、3cm幅で試験した(写真2参照)。

タイルは写真1のものと同様同じ大きさ。

写真2 MFC-1における高熱負荷試験結果の例(30 MW/m², 3s)

その結果、30 MW/m²、5s間といった高熱負荷では表面変化は生じたものの(写真3参照)、MFC-1アーマタイルでは25 MW/m²、5s間においては何の表面変化も生じないことがわかった。これに対して、他のC/C複合材ではクラックなどの損傷は生じないものの、20 MW/m²以上、5sの条件において大きな表面損耗や表面状態の変化が生じることがわかった。

このようにMFC-1の物性値から予測されたように、その優れた耐高熱負荷特性を実験的にも明らかにすることができた。

写真 3 熱負荷試験後(30MW/m², 5s間)の
MFC-1アーマタイル表面SEM像
(右下の白線: 10μm)

写真 4 MFC-1と無酸素銅の真空ろう
付けによる接合体

IV. MFC-1の金属基板への接合

1. 真空ろう付けによる接合

一方向性C/C複合材MFC-1アーマタイルは板厚方向に炭素繊維が配向している。したがって金属基板とアーマタイルの裏面で冶金的に接合する場合、その接合面は繊維方向とほぼ垂直方向となる。こうしたことから、接合面内におけるMFC-1の熱膨張率は異方性がなく、その値も $8 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 程度と、等方性黒鉛や他の種類のC/C複合材の熱膨張率に比べて大きい値を有している。一方、2次元タイプやフェルトタイプなど他の種類のC/C複合材では、板厚方向に熱伝導率が高いような配置を選ぶと、接合面における熱膨張率は非常に低い値を示したり、あるいは2方向で異方性を示したりといった問題があり、こうしたC/C複合材を金属基板に冶金的な接合をする場合に基本的な問題となるものである。これに対して、MFC-1のような一方向性C/C複合材では上記のような特性を有しているため、金属基板への冶金的な接合に対して基本的に適合性が高いことが期待できた。

実際にMFC-1を無酸素銅に間挿材を用いずに真空ろう付けした試験片を試作し(写真4参照)、その健全性を確認した後、予備的な熱負荷試験を20MW/m², 1~3s(無冷却)の条件で行なったが、少なくともこの範囲では変化は見られなかった。

2. 傾斜機能層を有する接合材

一方向性C/C複合材と無酸素銅の間に接合材製作時や、熱負荷時に生じる熱膨張差を軽減する目的で、傾斜機能層を間挿材として用いることを検討した。C/C複合材とCuの直接的な組合せによる傾斜機能材の製造が容易でなかったことなどにより、ここでは様々な検討の結果、TiNとCuの混合物を使用した傾斜機能層を用いることとした。TiNを用いた主たる理由は熱伝導特性が良好なこと、熱膨張率が比較的小さいこと、Cuとの混合物における材料的な問題がないことなどである。

TiN/Cuの傾斜機能材を間挿したMFC-1アーマタイルと無酸素銅ヒートシンクの組合せによるダイバートブロックの試作を行なった(第6図参照)。傾斜機能材を間挿した場合を、直接的に真空ろう付けした場合と比較しつつ熱応力解析を実施したところ、まず接合材製作時に発生する残留応力を軽減できることがわかった。また、熱負荷時における熱応力も減少することがわかった。なお、予備試験として、等方性黒鉛と無酸素銅にTiN/Cuの傾斜機能層の組合せによるダイバートブロックの試作と熱負荷実験を実施したが、直接的に接合した場合に対する優位性を実験的にも示すことができた⁽⁵⁾。なお、本件については現在も開発継続中で、今後報告の予定である。

第 6 図 傾斜機能層を有するダイバータ板と MFC-1/傾斜機能材/Cu のダイバータ板用ブロック製作

V. おわりに

本報では、 $300 \sim 500 \text{ W/m}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ を越す従来達し得なかったレベルの高熱伝導一方向性 C/C 複合材 MFC-1 タイルの開発を行い、高熱負荷プラズマ対向機器(ダイバータやリミタ)への適用が有効であることを示した。一方向性 C/C 複合材をプラズマ対向機器アーマタイルとして実用規模で製作したのは MFC-1 が初めてのことであったが、その実機形状における試作および実際の使用条件を模擬した高熱負荷試験でも良好な結果を得ることができた。例えば、 25 MW/m^2 、5 s 間の熱負荷(冷却なし)においても、表面損耗やクラックなどの損傷が生じることがなかった。また、MFC-1 のような一方向性 C/C 複合材は接合面における熱膨脹率が等方的で、他のタイプの C/C 複合材に比べて大きい値であるなど、金属基板との冶金接合において本質的に適合性が高く、優れた特性が期待できるものである。実際に MFC-1 を Cu に接合して、ダイバータ板など強制冷却方式機器

に適用する技術開発が進められた。また、接合部における熱膨脹差を軽減する目的で、傾斜機能材を間挿する方式の試作、試験を実施した。

C/C 複合材の試作・製作に当っては三菱化成(株)の方々の全面的な協力を得た。また、本報をまとめるに当たり、日本原子力研究所 関 昌弘、小原祥裕、高津英幸の諸氏、三菱重工業(株) 清川輝行、富田 充、辻村誠一、名山理介、豊田真彦の諸氏、三菱原子力工業(株) 岩井正三、浅見直人、並木勝男、森本将明の諸氏のご指導・ご協力を得た。深く謝意を表したい。

— 参 考 文 献 —

- (1) 奥山公平, 他: 原子力学会「1988秋の大会」予稿集, G49.
- (2) 伊尾木公裕, 他: 同 上, B27.
- (3) IOKI, K., et al.: *Fusion Eng. Des.*, **15**, 31 (1991).
- (4) IOKI, K., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **141~143**, 204 (1986).
- (5) 伊尾木公裕, 他: 原子力学会「1991春の年会」要旨集, C18.