2 次元 C/C 複合材料の超高温ガス炉への応用のための特性評価*

柴田大受^{*1}, 角田淳弥^{*2}, 牧田太陽^{*3}
高木 俊^{*4}, 國本英治^{*2}, 沢 和弘^{*2}
W. J. KIM^{*5}, C. H. JUNG^{*5}, J. Y. PARK^{*5}

Characterization of 2D-C/C Composite for Application of
Very High Temperature Reactor

Taiju SHIBATA^{*6}, Junya SUMITA, Taiyo MAKITA,
Takashi TAKAGI, Eiji KUNIMOTO, Kazuhiro SAWA,
W. J. KIM, C. H. JUNG and J. Y. PARK

^{*6} High Temperature Fuel & Material Group, Japan Atomic Energy Agency,
4002 Narita-cho, Oarai-machi, Ibaraki, 311-1393 Japan

For in-core components of VHTR (Very High Temperature Reactor), carbon fiber reinforced carbon matrix composite (C/C composite) is one of the major candidate materials. In this study, fracture behaviors of two dimensional (2D-)C/C composites were examined by SENB specimens with four-point bending test. The surface of specimens was observed by a CCD camera during the bending test, and observed by a stereomicroscope before and after the bending test. The following results were obtained through mode-I fracture test. (1) Three types of the composites were evaluated by tentatively using the stress intensity factor equation for metallic materials. The equivalent stress intensity factor of 2D-C/C composite is in the range of 5.9~10.0 MPa m^{1/2}. It was expected that the fracture mechanism for the composite materials could be assessed by this test method. (2) The crack opening displacement-load behavior of C/C composite might depend not only on the propagation of crack but also on delaminating between layers.

Key Words: VHTR, C/C Composite, SENB, Ceramics, Stress Intensity Factor, Delamination

1. 結 言

高温ガス炉は、1000℃近い高温のガスを炉外に取り出すことができ、高効率発電や水素製造が可能であり、固有の安全性にも優れた原子炉である。また、燃料の効率的な利用、安全性・信頼性の向上、高い経済性などを目標にした第四世代 (GEN-IV) 原子炉システムとして、2020~30 年頃の実用化を目指した超高温ガス炉 (VHTR) の研究開発が世界的に進められている。

VHTR では、炉心出口ガス温度の高温化と出力密度の向上が重要であるが、炉内温度の高温化による技術的課題が伴う。中でも、制御棒要素の材料として、金属材料に代わり 900℃以上の高温でも繰り返し使用のできる炭素繊維強化炭素複合材料 (C/C 複合材料) 等の繊維強化セラミック

ス複合材料が高く注目されている⁽¹⁾。候補材料である 2 次元 C/C (2D-C/C) 複合材料は、炭素繊維を積層させて焼結した材料であり、材料特性は繊維の積層方向と垂直方向とに異方性を有するため、構造物として用いる際にはこの異方性を考慮した設計が必要である。また、VHTR の炉内構造物は不活性であるヘリウムガス環境下で使用されるが、酸化の影響も考慮しておく必要がある。特に、C/C 複合材料は高温での酸化により材料特性が低下するので、耐酸化特性及び酸化による特性変化の把握が重要である⁽²⁻⁴⁾。

原子力機構 (JAEA) では、これらの特性評価を進めており、平成 20 年度より新たに韓国原子力研究所 (KAERI) との共同研究を開始した。JAEA では、設計上重要な破壊特性 (モード I 及び II) に着目し、破壊特性データを取得して亀裂の発生・伝播等の破壊のメカニズム解明を目指す。また、KAERI では、C/C 複合材料の未酸化及び酸化試験片を用いた熱・機械的特性 (引張、曲げ、熱拡散率、せん断、弾性率) の試験を行い、酸化による特性変化を評価する。

本報告は、JAEA で開始した破壊特性試験 (モード I) について記したものである。

2. 試 験

* 原稿受付 2009 年 9 月 16 日。

^{*1} 正員、(独)日本原子力研究開発機構 (〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002)。

^{*2} (独)日本原子力研究開発機構。

^{*3} 東海カーボン(株) (〒107-8636 東京都港区北青山 1-2-3)。

^{*4} イビデン(株) (〒503-8604 大垣市神田町 2-1)。

^{*5} KAERI (Daedeok Daero 1045, Deokjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon, 305-353, Korea)

E-mail: shibata.taiju@jaea.go.jp

2-1 供試材 試験には3種類の2D-C/C複合材料を用いた。供試材は、CX-270G（東洋炭素）、ICU-10（イビデン）、CC28NHPS（東海カーボン）である。

2-2 試験方法 破壊特性試験（モードI）は、2D-C/C複合材料を用いてSENB(Single Edge Notched Beam)試験片を製作して実施した⁹⁾。今回の試験では、繊維の積層面が荷重に対して垂直になる場合について、破壊特性を取得した。試験片寸法は9(W)×4.5(B)×50(L)mm³、試験片厚さの半分までノッチ加工を施し、ノッチ加工の先端部は鋭利になるようにナイフで仕上げ、曲率半径約20μmとした。試験は4点曲げにて行い、上部スパン10mm、下部スパン36mm、クロスヘッド速度は0.1mm/minで一定とした。試験にあたっては、クロスヘッドの移動に伴う荷重の変化をロードセルで測定するとともに、試験片の下部開口部に分解能約0.5μmのクリップゲージを取り付け、開口変位量を測定した。さらに、試験片の表面をデジタルカメラ及び実体顕微鏡（試験の前後）及びCCDカメラ（試験中）で測定した。

3. 結果と考察

3-1 測定結果 それぞれの供試材（以下、順不同で供試材A,B,Cと記す）に対して取得した開口変位量(COD)と荷重との関係を図1に示す。試験は各々3回実施した。ここで、荷重はそれぞれの供試材に対して得られた最大荷重 P_{max} （供試材Aは254N、Bは196N、Cは352N）で規格化してある。製造方法の違いにより最大荷重に差があるものの、各々の供試材について試験片間の最大荷重のばらつきは約10%であり、試験が適切に実施できたと考える。また、最大荷重となる開口変位量は約200μmと全ての供試材でほぼ同じであった。

最大荷重を経た後に、試験の進行に伴い供試材Aでは開口変位量が約400μmに至るまで荷重の大きな変動が見られないのに対し、供試材B及びCでは段階的に低下する傾向が現れた。試験後の試験片の実体顕微鏡写真を図2に示す。図2から繊維の積層面ごとに破壊が進展している様子が確認された。類似の方法で製造された供試材AとCとを比較すると、Aでは繊維の束の間の隙間など気孔が比較的多くが観察されるのに対し、Cではそれほど顕著ではない。このことから、Aでは試験の進行に伴い、試験片の変形が気孔に吸収されたのではないかと推測しているが、詳細なメカニズムの解明は今後の研究課題である。

3-2 破壊特性の評価 ASTMでは金属材料に対して、SENB試験片を用いた4点曲げ試験により、試験片寸法及び荷重-開口変位曲線から、応力拡大係数、破壊靱性値を評価する式が示されている⁹⁾。今回の2D-C/C複合材料の評価においても、暫定的にこの式を適用した。そのため、荷重-開口変位量曲線において、初期の線形部の勾配を5%低下させた直線を元の曲線に重ね合わせた交点の荷重 P_Q を求め、 P_{max} と比較を行った。その結果、3つの供試材について P_{max}/P_Q の平均値は、1.8~2.2の範囲であった。ASTMでは、応力拡大係数を破壊靱性値として判断できる条件として、この値が1.1以下の場合を示している。今回の2D-C/C複合材料についてはいずれの供試材でも1.1を超えており、これは荷重-開口変位量曲線において初期の線形部から外れた後の荷重の増加が大きかったためであり、繊維強化セラミックス複合材料に顕著な傾向であると考えられる。

暫定的に得られた応力拡大係数の平均値は、供試材Aは6.9、Bは5.9、Cは10.0MPa $m^{1/2}$ であり、供試材ごとに異な

Fig.1 Load-crack opening distance (COD) curves for material A, B and C.

った数値が得られた。これらは、原子力用IG-110黒鉛の破壊靱性値 ($1 \text{ MPa m}^{1/2}$ 程度) に比べて10倍ほど大きな値である。図2からノッチ先端から荷重方向に垂直に繊維の積層方向に沿ってき裂が進展していることが確認できた。繊維で強化したことにより、き裂の進展が荷重方向ではなく繊維に沿った方向となり、大きな値が得られたことがわかる。以上のことから、今回の試験体系で異なった2D-C/C複合材料について破壊特性を評価できる見通しを得た。

Fig. 2 Crack observation at specimen surface for material A, B and C.

一方、CCDカメラによる試験中の試験片表面の観察では、ノッチ先端部以外の繊維の積層面において、わずかではあるが積層面がはく離している可能性があることが確認され、また図2に示したように試験後の実体顕微鏡写真からは積

層面の破壊が確認されている。このことは、荷重-開口変位量曲線において、層間はく離の効果が含まれていることを示唆している。このはく離の影響が、応力拡大係数にどのように影響しているかについては、今後評価を行う予定である。今回の試験で暫定的に得られた応力拡大係数の値については、き裂に対する抵抗としてだけではなく層間はく離の効果も含んだ値であることに留意すべきである。

4. 結 言

VHTRの制御棒要素の候補材料である2D-C/C複合材料について、設計上重要な破壊特性の評価を行った。SENB試験片を用いて繊維の積層方向に対して4点曲げにて破壊特性試験(モードI)を実施して以下の結果を得た。

(1) 3つの供試材の2D-C/C複合材料について、試験結果を金属材料の応力拡大係数の評価式に当てはめた場合、供試材ごとに異なった数値が得られ、今回の試験体系で異なった2D-C/C複合材料について破壊特性を評価できる見通しを得た。

(2) 荷重-開口変位量曲線において、き裂の進展だけではなく層間はく離の効果が含まれていることを確認した。今後、定量評価を行う予定である。

今後、繊維の積層方向や破壊モードを変えた試験を進めるとともに、酸化させた材料についても同様の試験を実施し酸化効果についても併せて評価を行う予定である。

本研究は、独立行政法人日本学術振興会と韓国 KOSEF との二国間交流事業(共同研究)による支援を得た。

文 献

- (1) Japan Society for the Promotion of Science Carbon Material No.117 Committee ed., *New Development of Carbon Material* (in Japanese), (2007), p.328, Material and Structure Laboratory of Tokyo Institute of Technology.
- (2) Ishizawa S. and Machida T., Effect of Oxidation Degradation on Elevated-Temperature Strength of C/C Composite, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol.63, No.608 (1994), pp.845-850.
- (3) Takada T. and Kimura Y., Evaluation of High Temperature Oxidation Characteristics of C/C Composite, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol.60, No.578 (1994), pp.2342-2349.
- (4) Sogabe T., Ishihara M., Baba S. and Tachibana Y., Effect of Air-oxidation on Thermal Diffusivity of the Nuclear Grade 2-dimensional Carbon Fiber Reinforced Carbon/carbon Composite, *Material Science Research International*, Vol. 9, No.3 (2003), pp. 235- 241.
- (5) Brown W. F. Jr. and Srawely ed., *ASTM STP 410*, (1965), p.1, American Society for Testing and Materials.