

令和8年1月13日
R4-6年度 原子力システム研究開発事業（新発想型）
成果報告会資料

フルセラミックス炉心を目指した耐環境性 3次元被覆技術の開発

研究代表

【東北大金研】 近藤 創介 金属材料研究所 原子力材料工学部門

再委託先研究機関

【産総研】 且井 宏和

【物材機構】 下田 一哉

【京都大学】 藪内 聖皓

マルチマテリアル研究部門 セラミック機構部材グループ
構造材料研究拠点 セラミックス基複合材料グループ
エネルギー理工学研究所 エネルギー基板材料研究分野

研究背景 ～SiCの原子力利用へ向けた国内外動向～

SiC利用を目的とした国内外
のプロジェクト

米国を中心に2010年代前後から継続する
長期的な国プロにより、材料開発・製造技
術分野は先行される(ここ10年の材料開
発関連の論文発表は99%以上が米、欧、
中国の研究Gによる)。

一方、SiCの照射効果や耐腐食関連の材
料評価に関する報告は、日本が強い影響
力を維持している(次項参照)。

↓
新しい製造法にも対応できる純国産、か
つ原子炉利用特有の重要課題(照射効果
と腐食)を克服可能な技術の必要性。

土台となる材料製造技術

本研究グループが提案する
耐環境技術



研究背景 ～SiC材料の課題と本研究の目的～

■ 原子力利用へ向けたSiC材料の課題

中性子照射下で加速するSiCの腐食

⇒ 高温水環境下で我々が最初に発見.

⇒ 熔融塩, 液体金属, 高温ガスでも中性子を含む照射による加速腐食・酸化が報告^[参考文献1-4]され、活発に議論されている.

- [1] P. Doyleら, JNM (2020), "The effects of neutron ~ on the aqueous corrosion of SiC"
- [2] J. Xiら, JNM (2020), "Effects of point defects on oxidation of 3C-SiC"
- [3] J. Liら, Corr. Sci.(2020), "Corrosion behavior of ion-irradiated SiC in FLiNaK molten salt"
- [4] B. Liら, Mat. Cor. (2019), "Dissolution corrosion of 4H-SiC in Lead-Bismuth eutectic at 550°C"

■ 課題に対応する国内外の研究開発動向

耐食金属被覆(炉外試験では十分な性能を示した)を中心に被覆したSiCの中性子照射試験が始まっている(一部は結果も出始めている)。

我々はR2-3原シス事業でセラミックス被覆を開発(出願済)。平板を対象に炉外、照射(イオン)照射後に十分な性能を既に確認済。

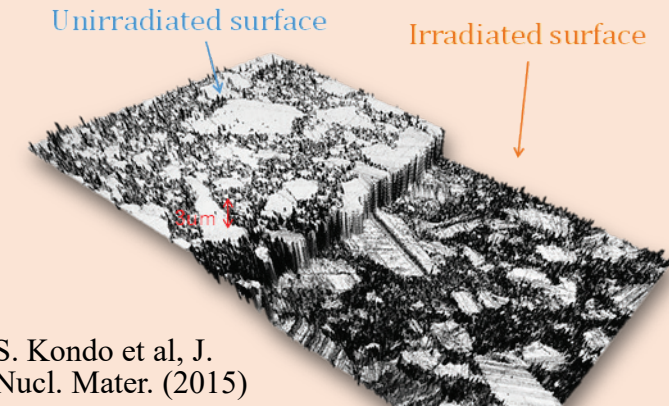
■ 本研究の目的

開発したセラミックス(アルミナ、SiC等)被覆を3次元複雑構造に適用可能な技術開発を行い、被覆技術と性能を実証する。



近年注目される積層造形SiC炉心構造物に対応できる、唯一の腐食解決策として、世界をリードできる国産技術基盤形成を目指す。

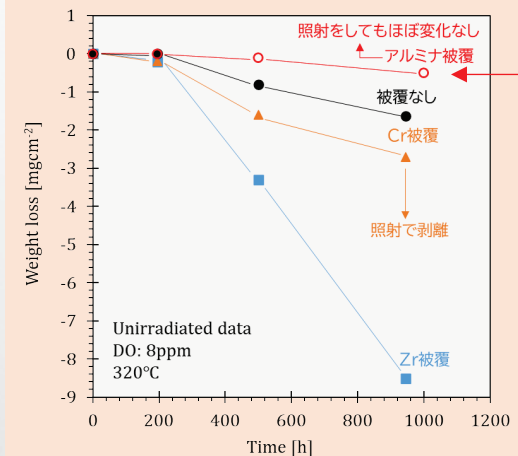
照射による加速腐食の例



S. Kondo et al, J. Nucl. Mater. (2015)

照射後腐食試験の結果. イオン照射で格子ダメージを導入した部分(右半分)が加速腐食している.

R2-3原シス事業の成果



R2-3開発材
被覆した板材は1000h浸漬後もほぼ腐食が認められず、照射の影響も重量変化では検出できないレベル。

フルセラミックス炉心実現への課題と我々の対応

【現在の耐食技術の課題】

- ① 欧米を中心とした研究グループは**金属被覆による耐食・耐酸化を図っているが**、照射下寸法安定性がSiCと全く異なることで**照射するだけで剥離**することがわかってきた。
- ② 照射下挙動がSiCと類似した耐環境セラミックス被膜が実現すれば解決の糸口になるが、耐熱**セラミックス同士**を強固にしかも照射に耐えうる方法で**接着・評価する技術が存在しない**。
- ③ 接着が出来たとしても今後の3D構造部材に技術対応するには、**既存技術では不可能か開発に時間がかかりすぎる**。



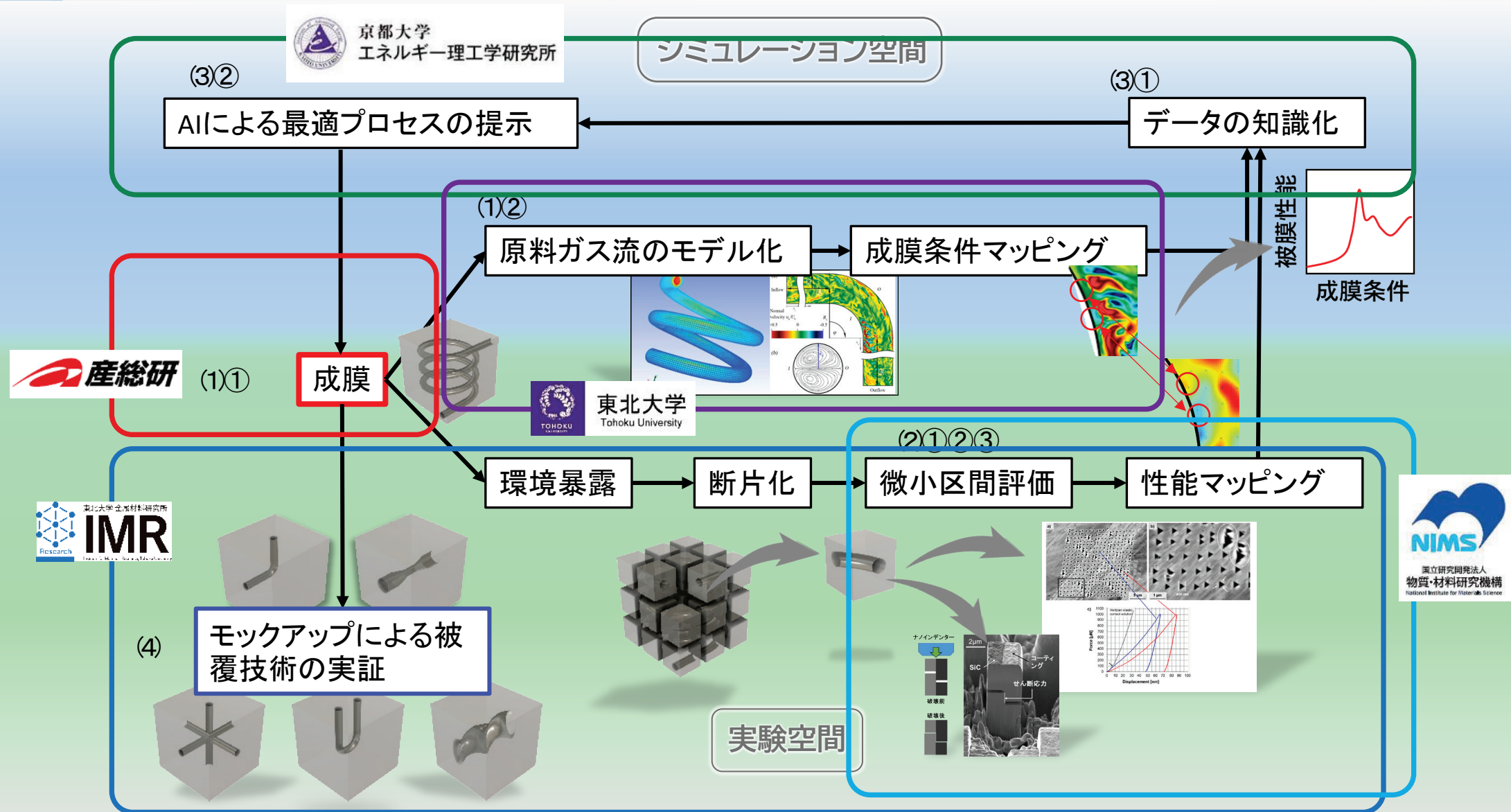
【提案者らの課題対応技術】

- ① SiC/SiCと耐環境セラミックス保護膜を接着するのではなく、SiC/SiC**表面に緻密なセラミックス被膜を気相成長させる**ことに成功した。(R2-3年度は平板SiC/SiCが対象)。
- ② 被膜の**極薄($t < 15\mu\text{m}$)化に成功し**、被膜**強度を**、照射後も含めて評価する**微小試験技術により**、**耐(イオン)照射性を実証した**。(R2-3年度は平板SiC/SiCが対象)
- ③ ①と②の開発技術を**プロセスインフォマティクスによって3次元構造へ短期間で拡張し**、最も被覆が困難とされる構造体内部の細管内壁への**緻密・極薄セラミックス被覆技術を実証する**。



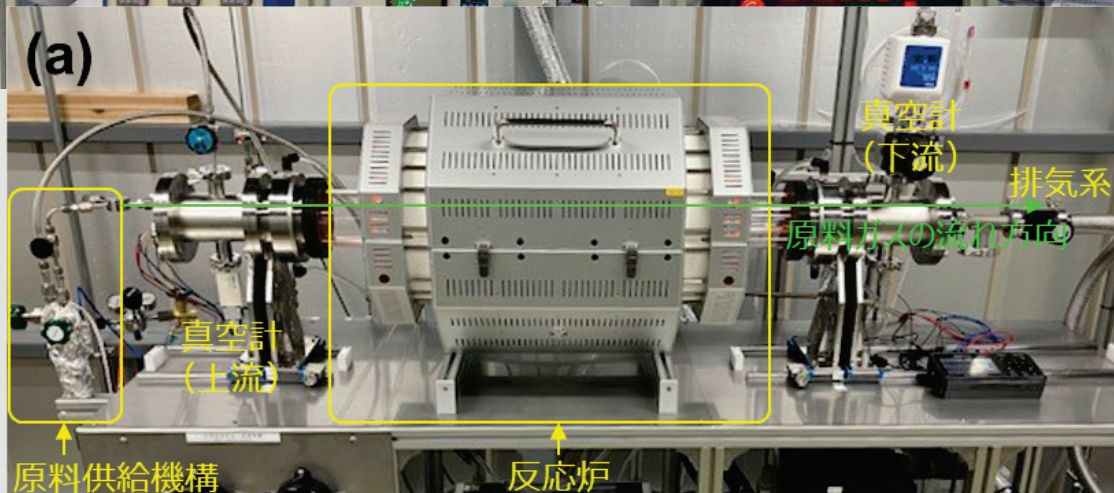
R2-3原シスで開発したセラミックス被覆技術が気相反応であることを生かした、3D構造体への迅速展開とそれを加速するAI技術。

成膜技術の開発を加速するプロセスインフォマティクスの流れ

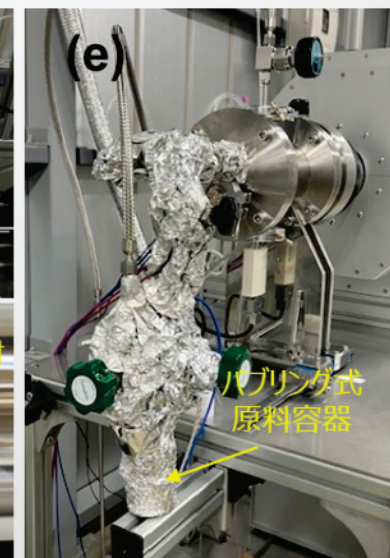
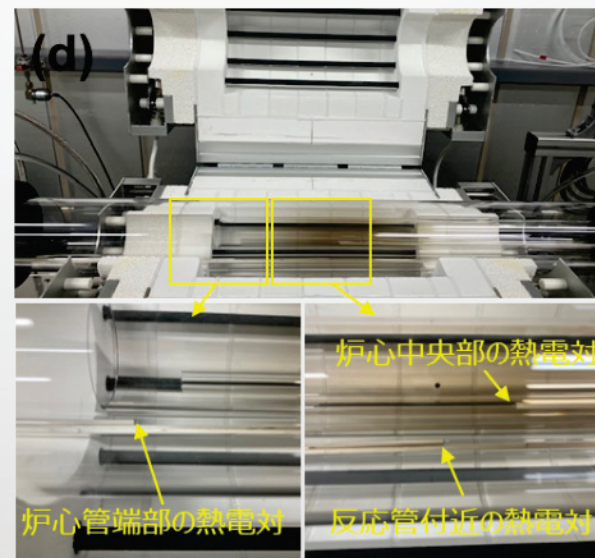
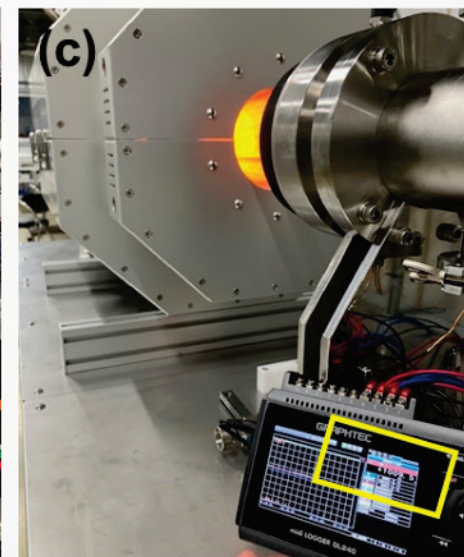
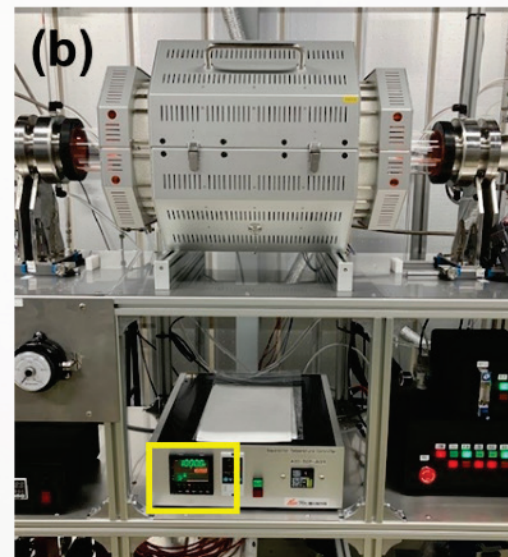


炉内計装・高温化システムを備えた熱CVD装置

装置外観

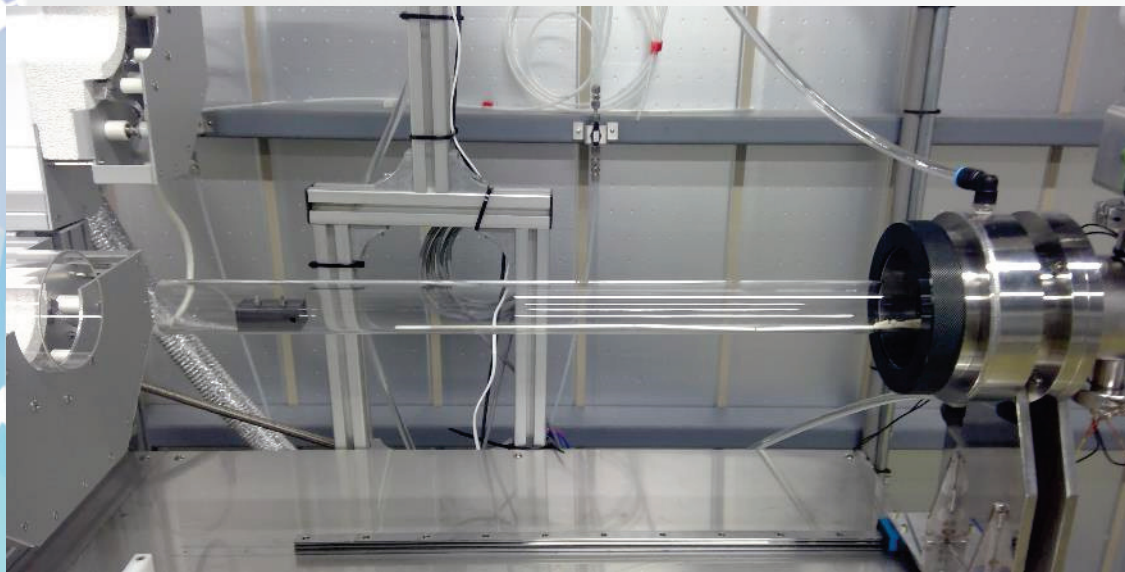
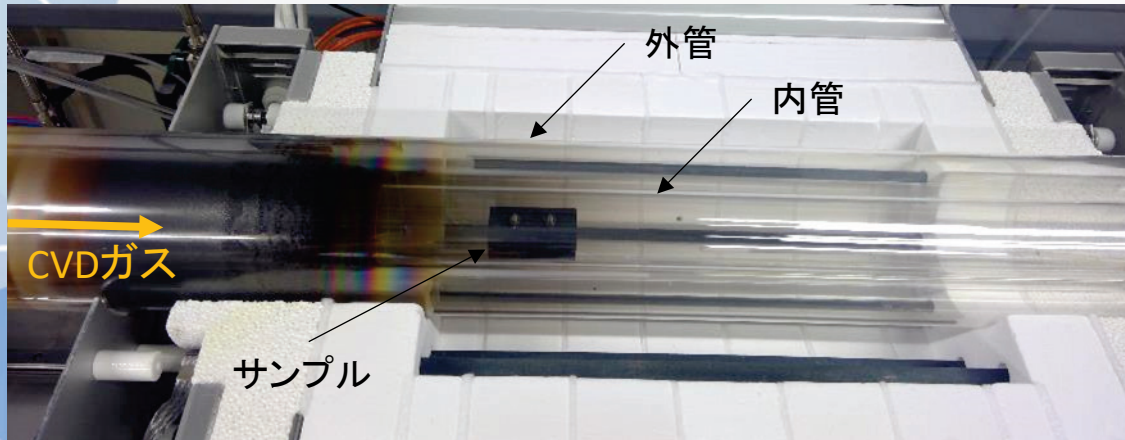


詳細

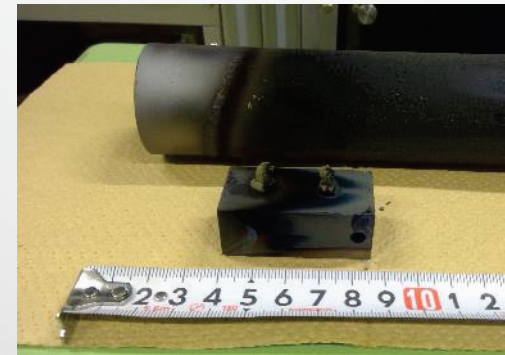
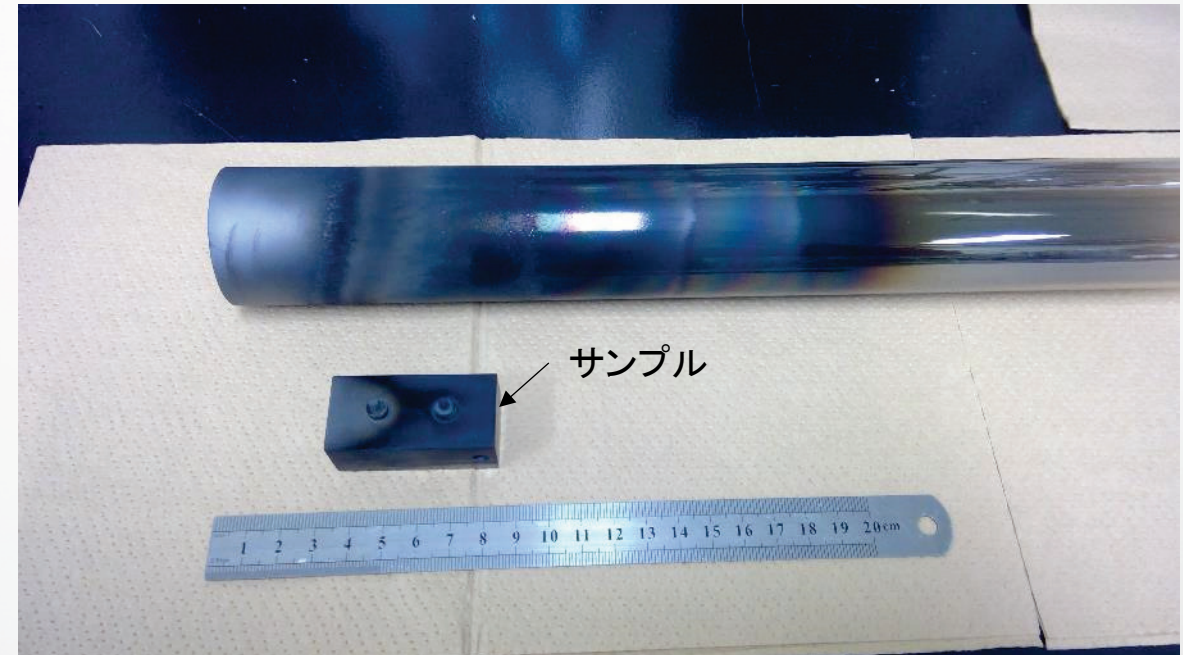


成膜試験前後の炉内状態

成膜前

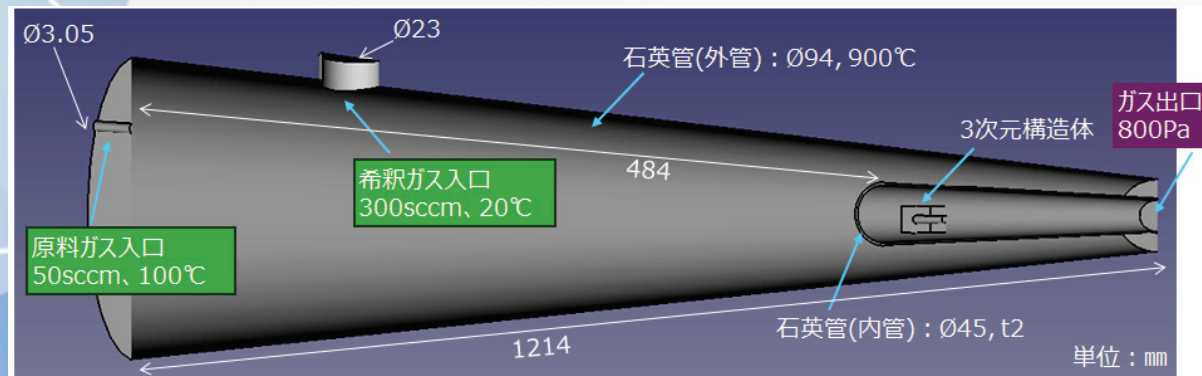


成膜後



原料ガス流のシミュレーション解析

- 炉内寸法、炉内温度、炉内ガス流束を実測値から入力



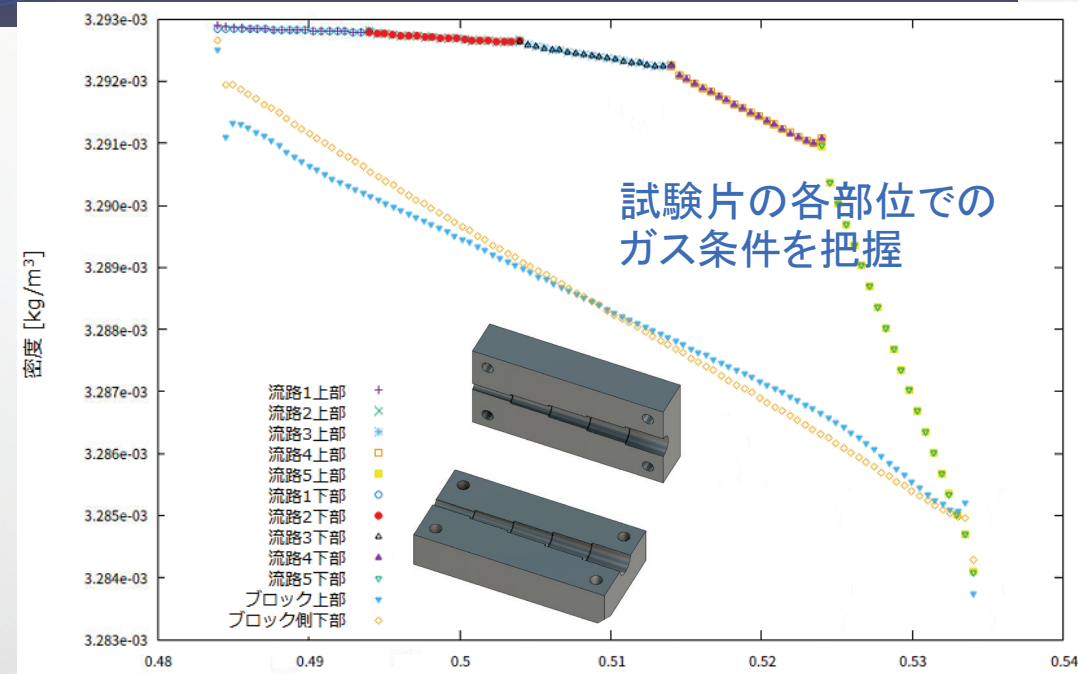
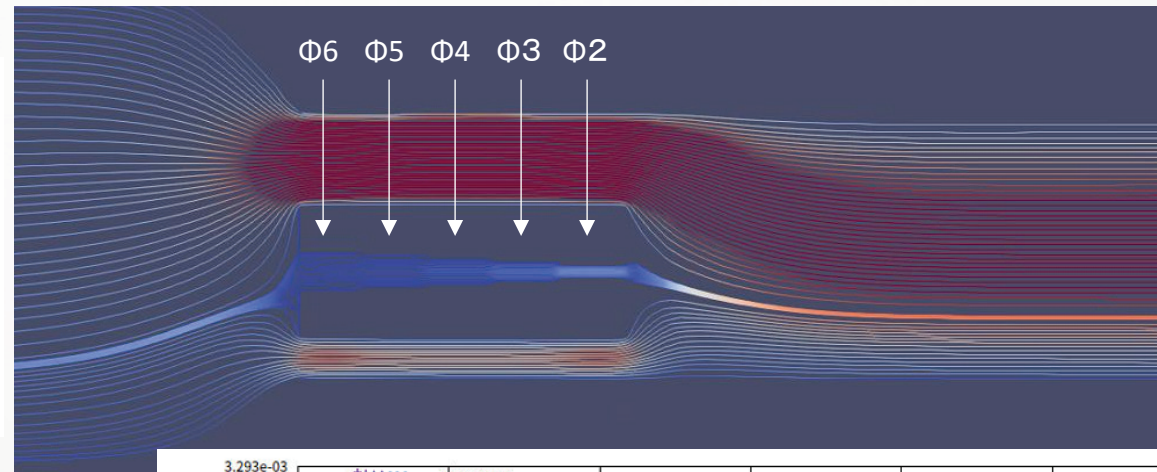
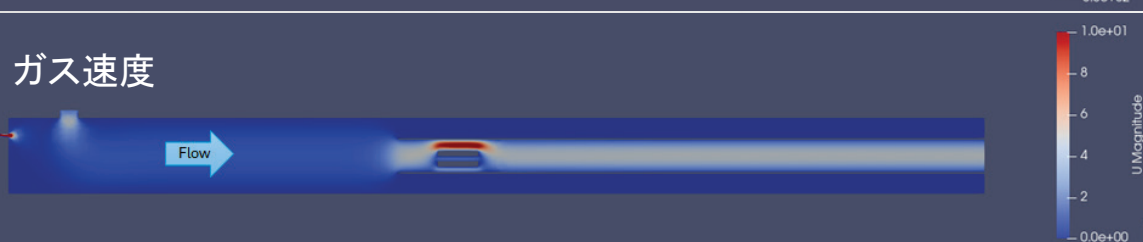
ガス密度



ガス圧力

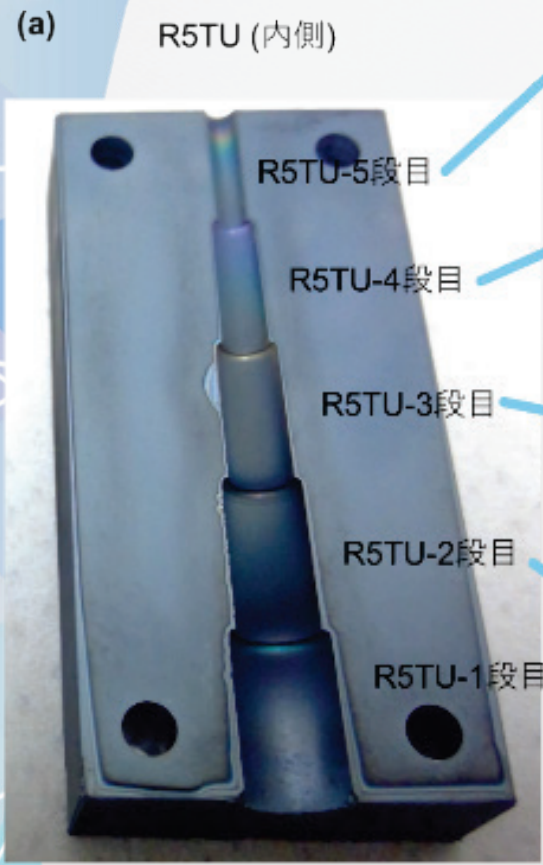


ガス速度

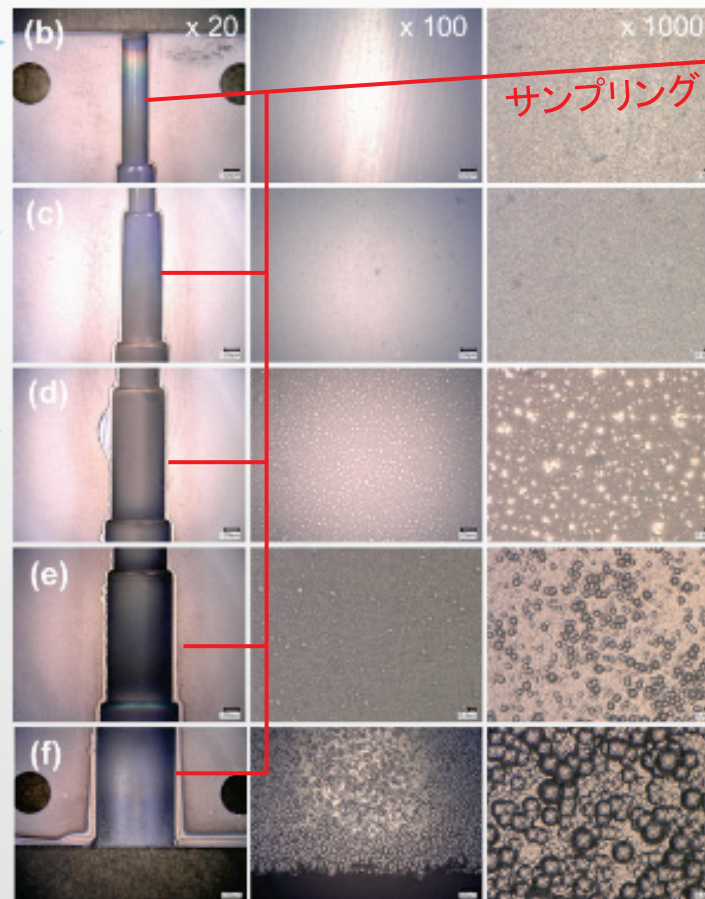


被膜性能の微小区間評価と性能マッピング

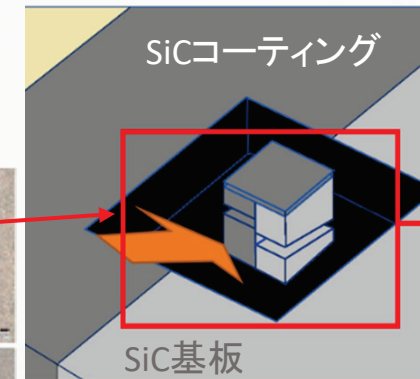
- 成膜後に被膜が試験片(基板)といかに接着しているかを、各部位個別に微小せん断試験などにより調査→解析班にデータ提供.



①被覆後SiCサンプルの外観

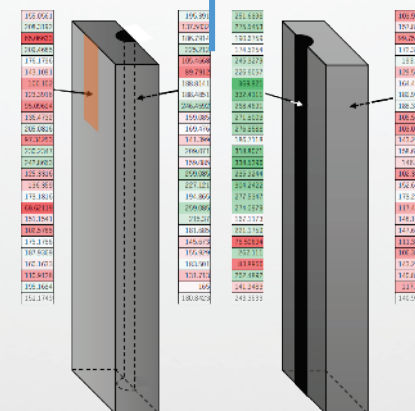


②被覆後の表面観察結果



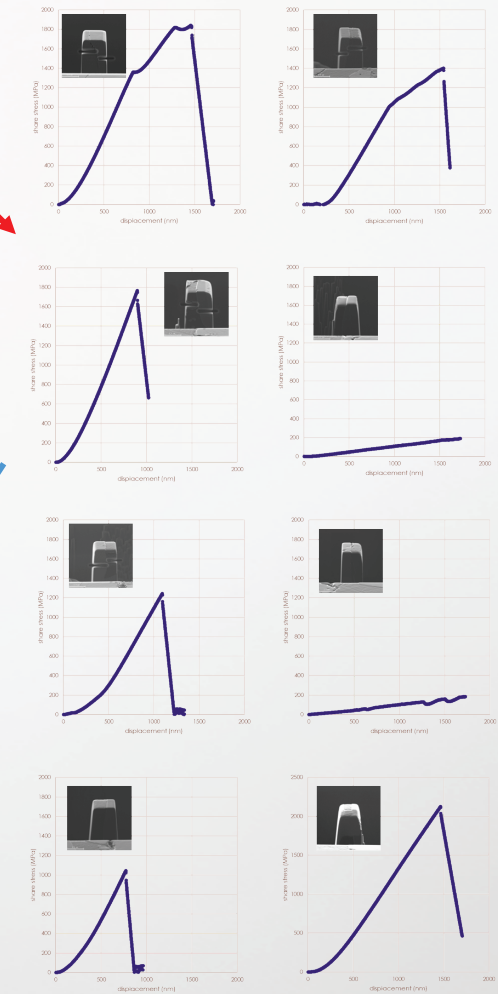
③微小せん断試験模式図

機械学習データ



⑤強度マップ

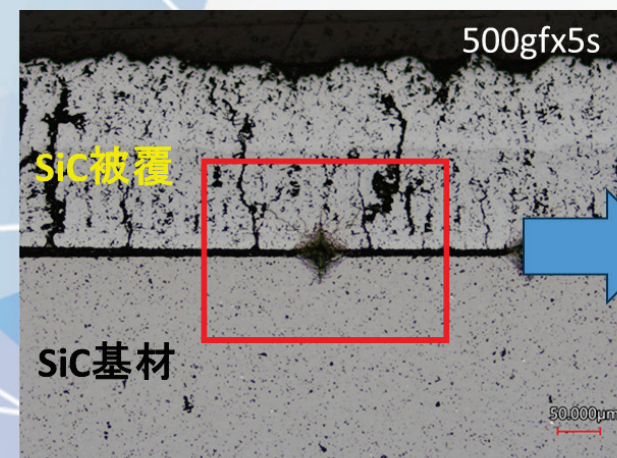
細かいところでは10um間隔で試験



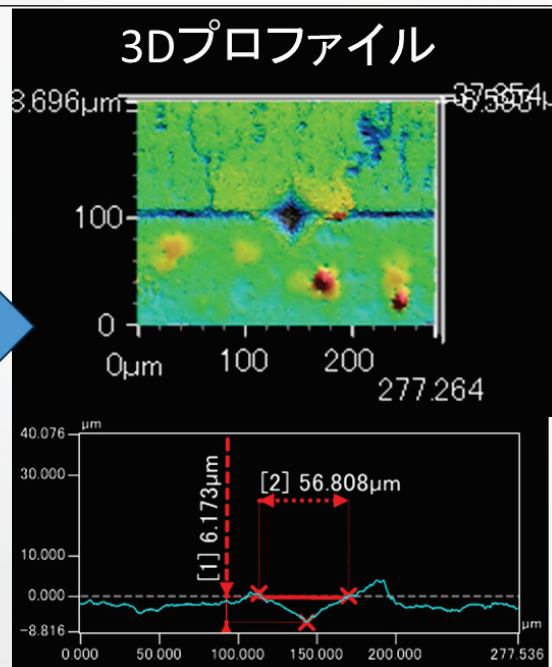
④微小せん断試験結果

被膜強度・密着性への高温環境効果

● 高温破壊靱性

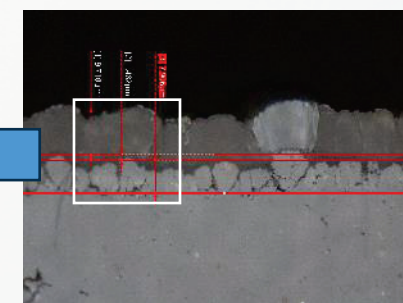
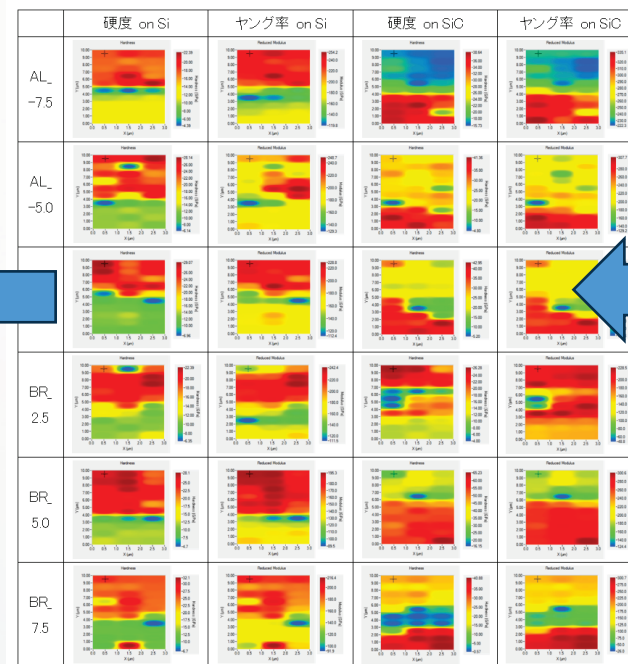


界面に圧子を押し込み、界面剥離が開始する荷重から靱性評価。



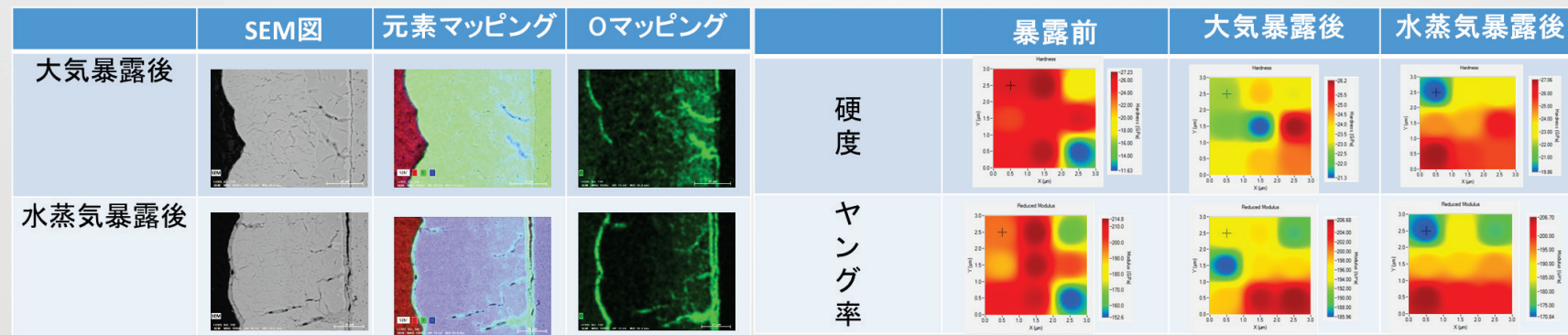
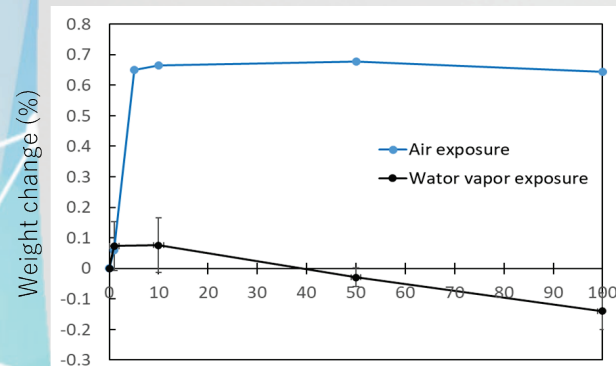
● 高温硬度、ヤング率

機械学習データ



高温(800℃)でハイスループット・ナノインデント試験により被膜性能をマップ化。

● 1400℃高温水蒸気・大気暴露試験



プロセスインフォマティクスによる成膜技術の探索

成膜実測値

Laser Power_density (W/cm²)
Deposition_temp. (°C)
Pressure (Pa)
Carrier_gas Flow_rate (sccm)
Precursor temp. (°C)
Deposition_time (min)
Laser F



シミュレーション

Gas flow rate at the position (m/s)
Gas temp. at the position (°C)
Gas density at the position (g/m³)
Gas Pressure at the position (Pa)
Wall shear stress (Pa)

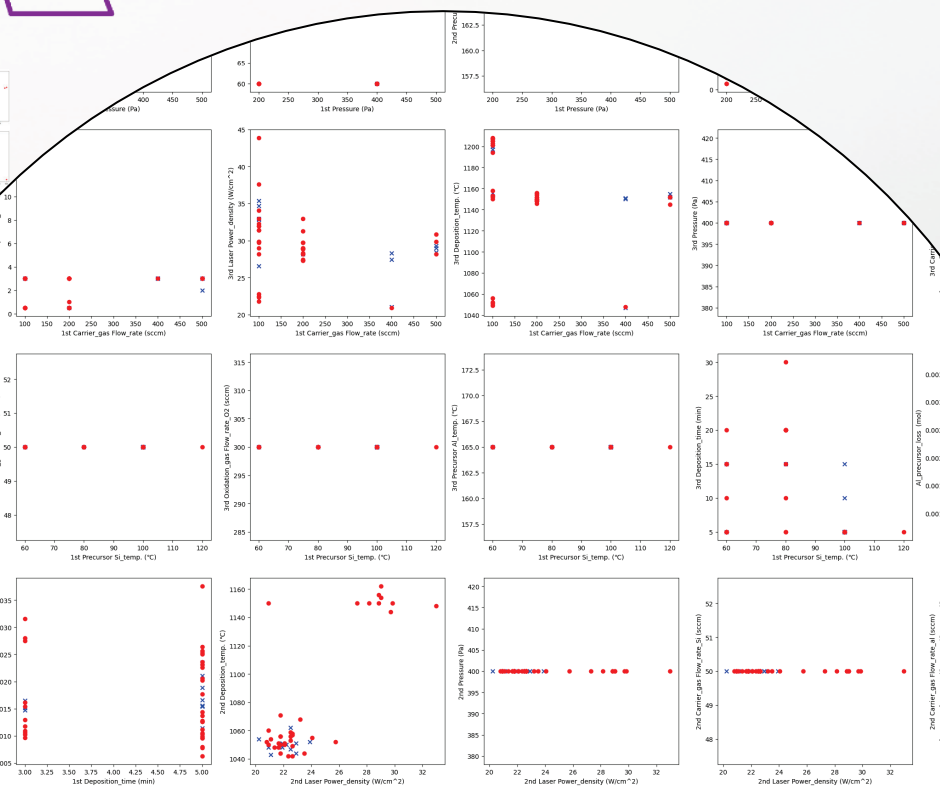
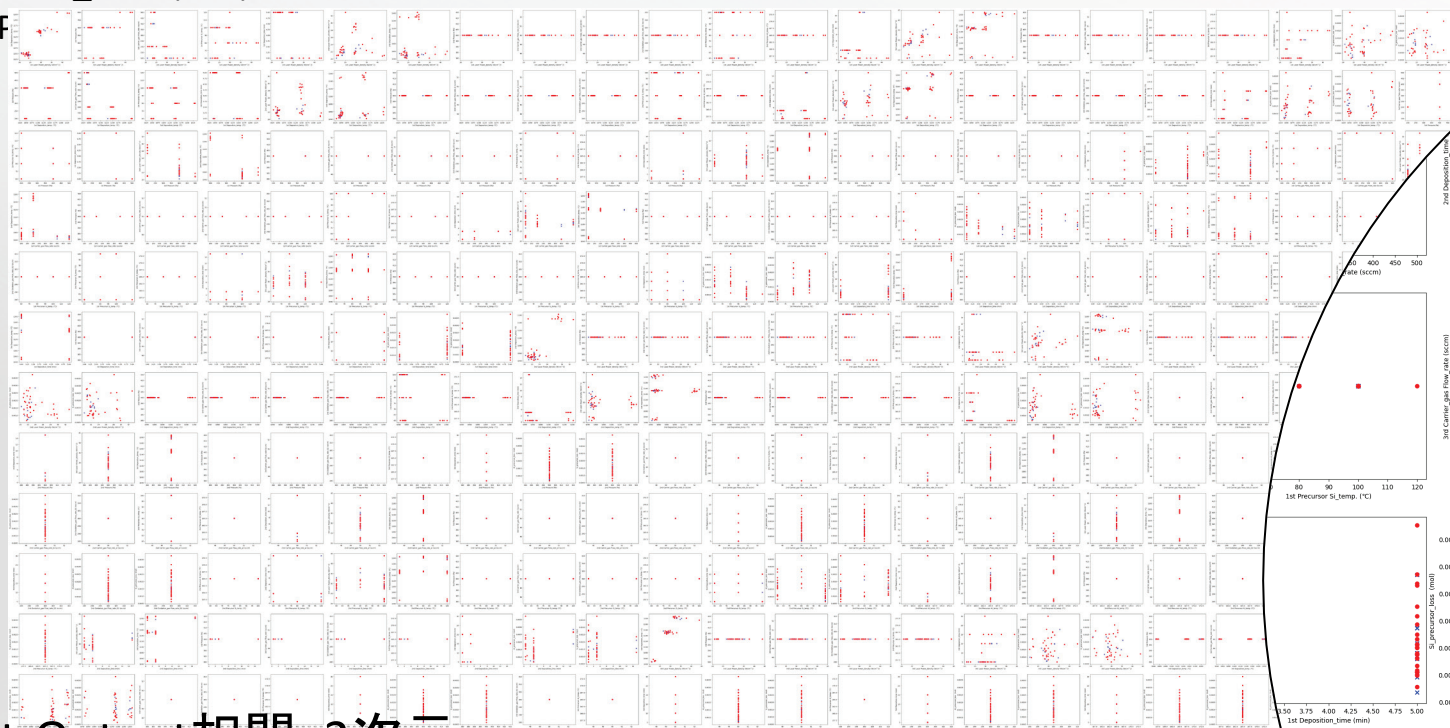


機械学習



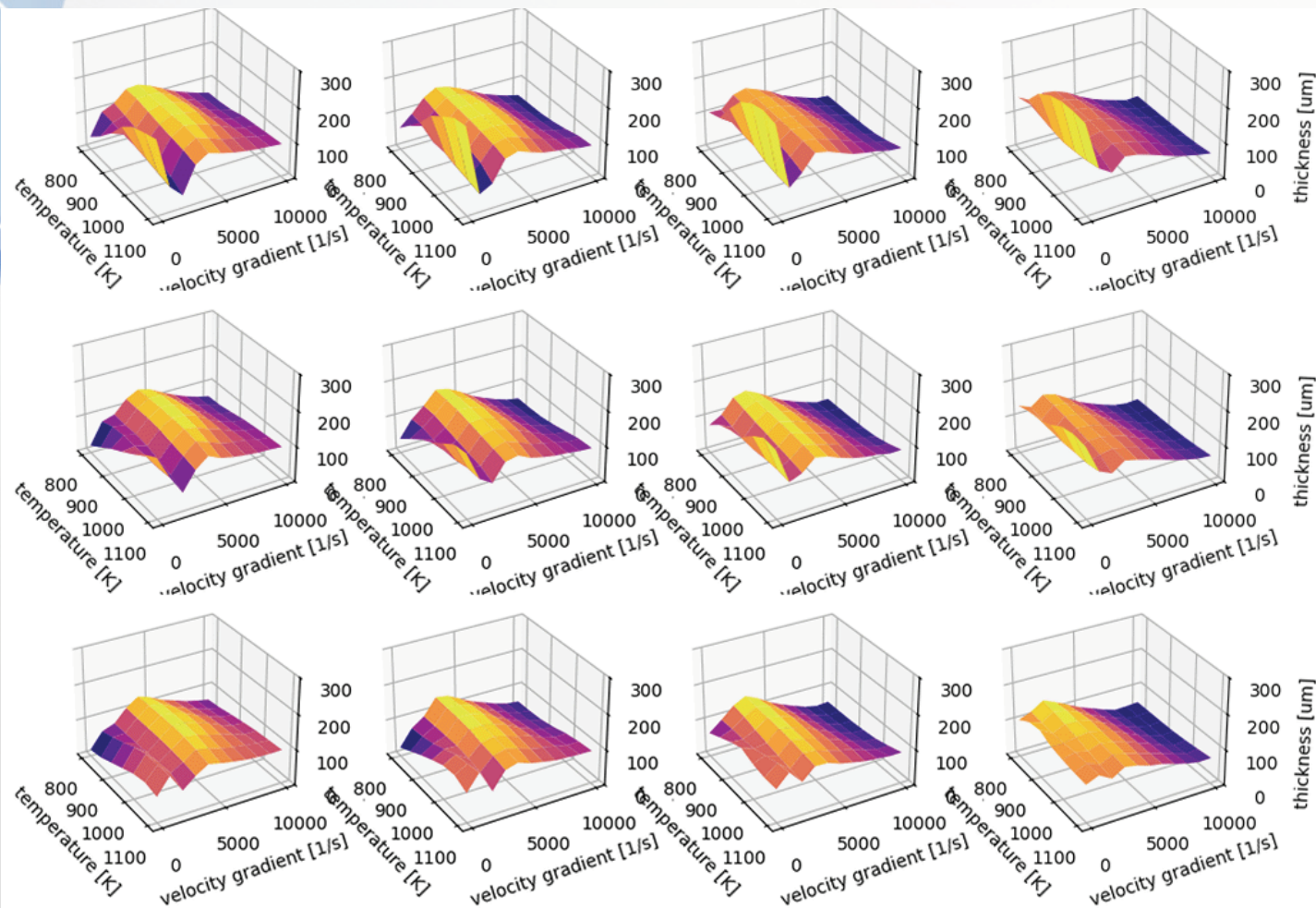
実験データ

Interfacial strength (Pa)
Young's modulus (Pa)
Thickness (m)
Hardness (Pa)



Input-Output相関: 2次元

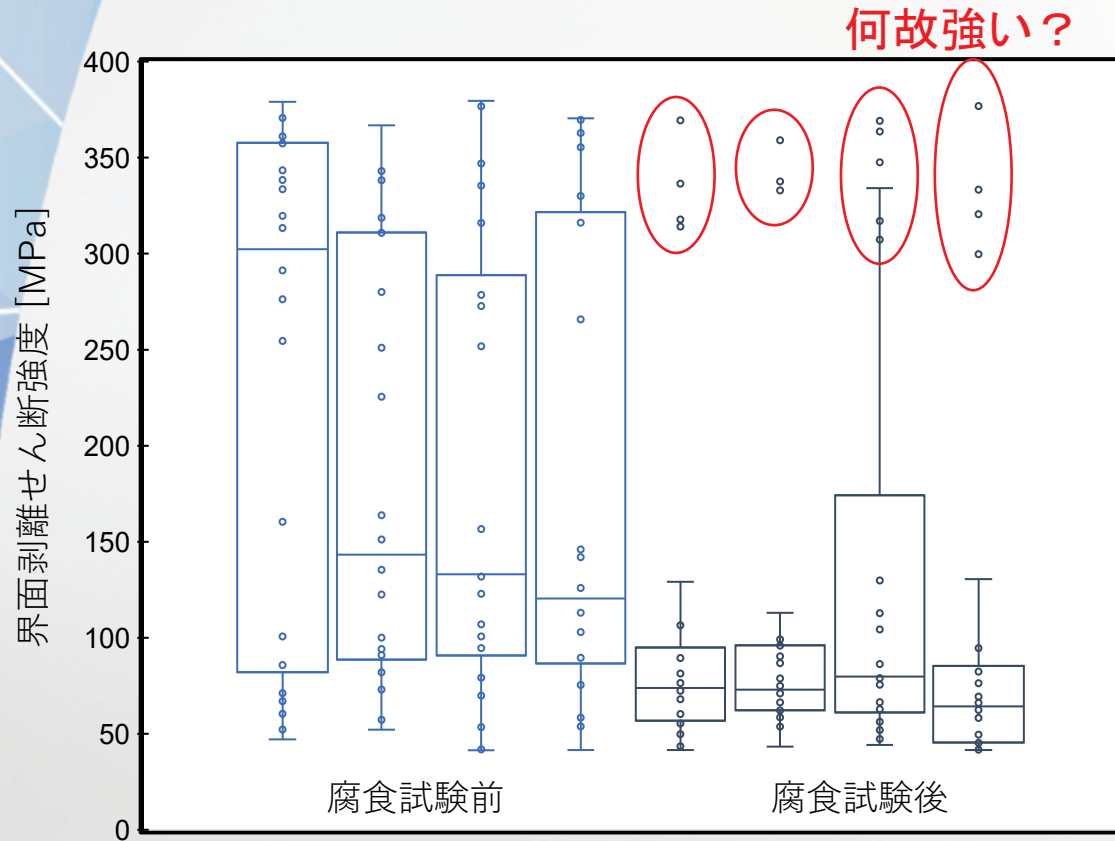
機械学習によって得られた予測曲面



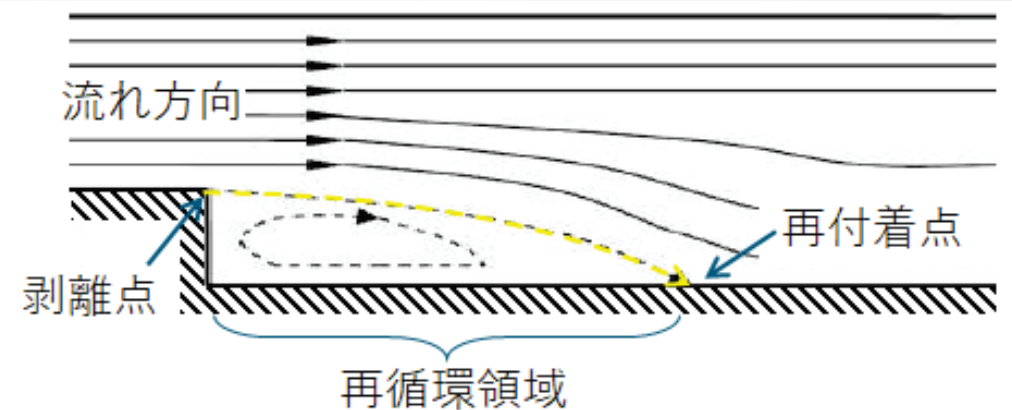
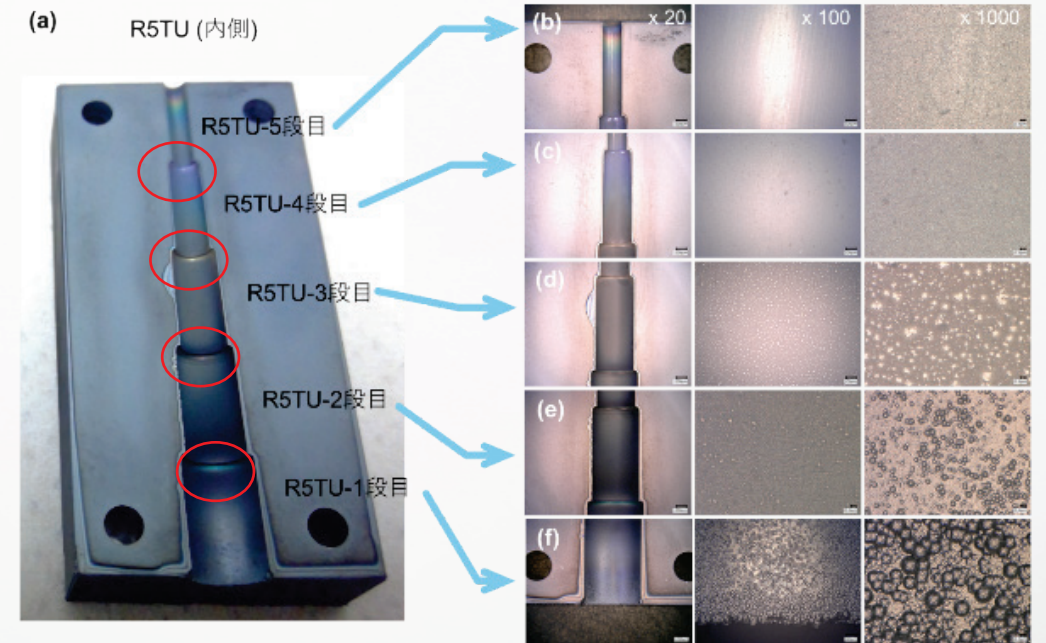
ほとんどの成膜パラメータは、被膜性能と(人間の目には)一見明確な相関があるようには見えなかった。つまり、被膜性能評価データのバラツキ(セラミックスでは一般的に認められる程度)が大きく、人間には視覚的に相関をとらえることが難しい結果となった。

しかしながら、被膜性能は、多くの場合ガス勾配に強く依存しているという判断がAIによってなされた。

AI による最適プロセス候補の提案



ガス密度が局所的に薄くなっている領域で被膜性能が高いことがわかった。多数の仮想炉内環境をモデル化し、サンプル表面のバックステップ流れを促す、あるいは積極的に温度勾配を設けて意図的なガス流を発生させることでこの最適流れを試料表面で実現できることが明らかとなった。被膜性能の向上は、ガス希薄表面に向かって原料分子の優先的な供給が起こることに起因している可能性がある。

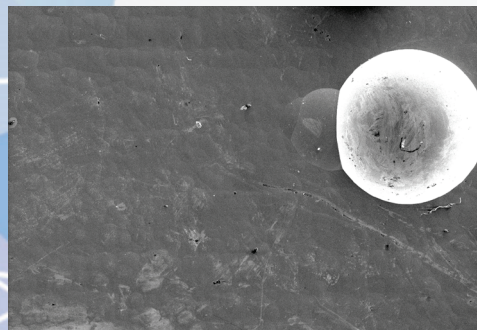


バックステップ流れ

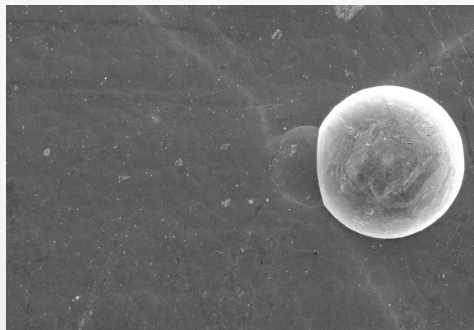
3 次元構造体の耐食性能マクロ評価

●初期CVD条件

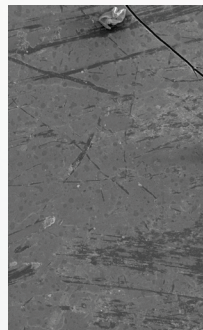
0 h



3 hrs.

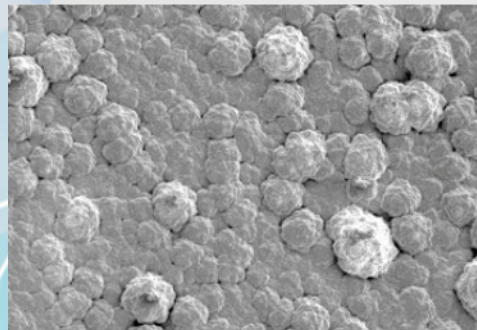


9

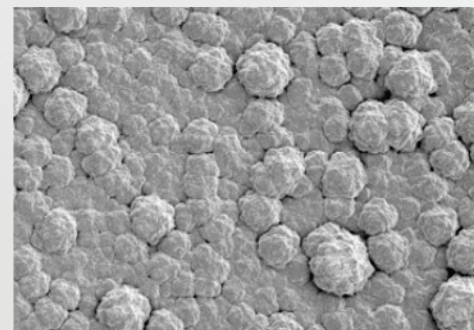


●最適化CVD条件

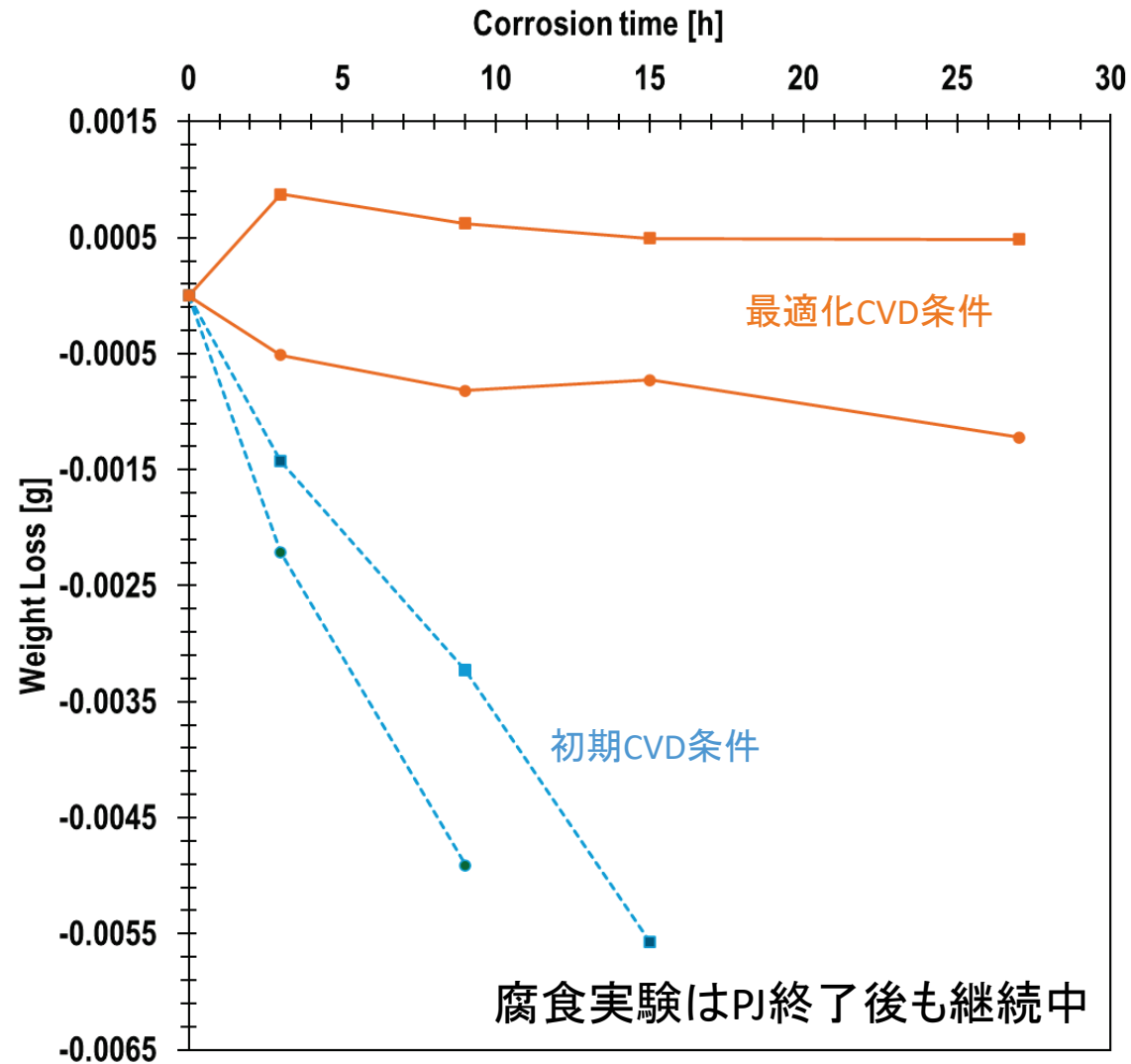
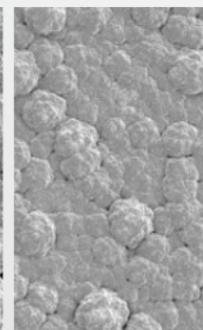
0 h



3 hrs.



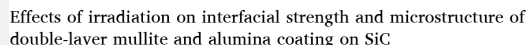
9



m

0.01 μm

- ・ 令和4年度は、国内会議3件、国際会議1件。
- ・ 令和5年度は、国内会議9件、国際会議9件、および2件の投稿論文発表。
- ・ 令和6年度は、国内会議5件、国際会議2件、および1件の投稿論文発表、1件の解説論文。



^a Institute for Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan
^b Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University, 6-6-01-2 Aramaki Aza Aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan
^c National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4-205 Sakurazaka, Moriyama-ku, Nagoya, Aichi 463-8560, Japan
^d Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Gokisocho, Uji, Kyoto 611-0011, Japan

- The irradiation effects on the interfacial strength of mullite and alumina double-layer coatings on SiC were investigated.
- A transition layer, approximately 2 μm thick, formed at the SiC/mullite interface during the coating process.
- The interfacial strength was evaluated following Si-ion irradiation using the microscale double-notch shear testing technique.
- The strength of both the SiC/mullite and alumina/mullite interfaces exhibited no significant degradation following irradiation.
- Alterations in Al-O bonding within the transition layer may contribute to the preservation of interfacial strength after irradiation.

Keywords:
SiC
Mullite
Alumina
Irradiation
Coating
Interfacial strength

Silicon nanoribbons (SNRs) exhibit high thermal and mechanical stability, as well as high carrier mobility, which are essential for high-performance electronic devices. However, the synthesis of SNRs with controlled dimensions and high purity remains a significant challenge. In this study, we report a novel synthesis method for SNRs using a chemical vapor deposition (CVD) process. The synthesized SNRs were characterized by scanning electron microscopy (SEM) and transmission electron microscopy (TEM), showing a well-defined ribbon-like structure with a width of approximately 10 nm and a length of up to 1 μm. The electrical properties of the SNRs were investigated using a four-terminal measurement setup. The results show that the SNRs exhibit a high carrier mobility of approximately 10,000 cm²/Vs, which is comparable to that of bulk silicon. Furthermore, the SNRs show excellent thermal stability, with no significant change in electrical properties after annealing at 1000 °C for 1 hour. These findings suggest that the CVD method is a promising approach for the synthesis of high-quality SNRs for electronic applications.

SiC ceramic is a potential candidate material for use in nuclear-

Received 22 March 2024; Received in revised form 5 September 2024; Accepted 14 September 2024
Available online 15 September 2024

Evaluation of equi-biaxial strength of thin sic coatings using ring-on-ring testing and digital image correlation

¹Department of Quantum Science and Energy Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai, Japan

²Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, Japan

³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Nagoya, Japan.

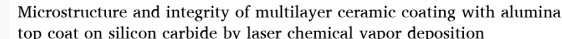
⁴Research Center for Structural Materials
National Institute for Materials Science,
Tsukuba, Japan

Sosuke Kondo, Institute for Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan.
Email: sosuke.kondo.d4@tohoku.ac.jp

MEXT Innovative Nuclear Research and
Development Program, Grant/Award
Number: JPMXD0222682488

Silicon carbide (SiC) and SiC fiber-reinforced SiC matrix composites (SiC/SiC), which are renowned for their excep-

method results in the precipitation of residual Si, C, and additives as secondary phases, which reduces oxidation and creep resistance.³ Pore formation inside the preform remains a concern even in the CMI method, which is

Ryutaro Usukawa^a, Hirokazu Katsui^{a,*}, Kazuya Shimoda^b, Sosuke Kondo^c, Mikinori Hotta^a

^c Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, 980-8577, Japan

Keywords:
Keywords
Chemical vapor deposition
Laminated coating
Microstructure
Alumina
Mullite

Thin double-layer coatings comprising a substrate by laser chemical vapor deposition of alumina top coat on the structural inter-CVD process was examined by microstructural layered structure having a dense γ -alumina temperature of 1323 K, whereas an α -alumina 1473 K. The interfaces between the SiC transition layer. The γ -alumina layer for residual defects were formed in the α -alumina induced by the high-temperature deposition those in the coatings without mullite. The double-layer coatings were experimental interfacial delamination, compared to single-layer coatings.

特集：電力・エネルギーにおける表面処理技術

セラミックス製の原子炉を目指した防食被覆技術の開発

近藤 創介^a, 且井 宏和^b, 下田 一哉^c

^c(国研)物質・材料研究機構(〒305-0047 茨城県つくば市現1-2-1)

Development of Corrosion-Resistant Coating Technology for Ceramic-Based Nuclear Reactors

Sosuke KONDO ^a, Hirokazu KATSUI ^b and Kazuya SHIMODA ^c

* Institute for Materials Research, Tohoku University (2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi 980-8577, Japan)

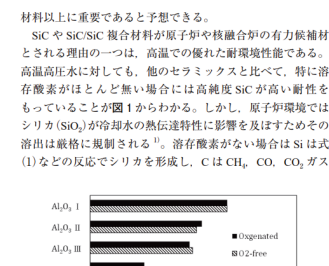
^b National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (2266-98 Anagahora, Shimoshidami, Moriyama-ku, Nagoya-shi, Aichi 463-8560, Japan)

^c Research Center for Structural Materials, National Institute for Materials Science (1-2-1 Sengen, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0047, Japan)

Keywords : SiC/SiC, CVD, Nuclear Materials, Ceramics, Corrosion

1. はじめに

2011年の福島第一原子力発電所事故では、全交流電機絶えずおよび福島第二原子力発電所でも、さまざまな燃焼炉および蒸気発生炉と水の熱化反応があり、燃焼の燃焼温度を引き上げると、炉心損傷を引き起こすことと要する。炉心損傷は現在も続いており、それがさらに進んだとしても広範囲に拡散した放射性物質が自然にまたたき放射の深刻は言うまでもない。この事故、事故後も炉心と燃料を融けるような耐熱セラミックス材料で軽水炉の炉心構造体を作成すること、および本格的に安全対策がなされた先進原子炉に適用可能なセラミックス材料の開発が待たれる。近年、炭化ケイ酸(SiC)繊維強化SiC基複合材料(SiC/SiC)は、高温で強度が低下しないことや水素と反応しないことなど



まとめ



- 被覆試験で用いた炉内ガス流のモデル化のみならず、多様な模擬実験環境を構築しシミュレーション(デジタルツイン)主導の研究加速を試みた。実験条件との相関を機械学習させることにより、AIの判断によって被膜に最適なガス流が得られる実験条件を見出すことができた。また、実際の実験でも腐食速度が2桁程度小さな被膜の生成に成功した。
- 学会や論文にて多くの成果を公表することができ、本PIグループが世界に先駆けたセラミックスでセラミックスを防食する内容は注目され、各所から人材の要望をいただき、博士課程学生(現QST、現オークリッジ研)を輩出することができた。