

# B06 セラミックスラスタの高信頼性および大推力化に向けたセラミックスとチタンの異材ろう接技術の研究

○藤井剛、戸部裕史、佐藤英一（JAXA）  
Go Fujii, Hirobumi Tobe, and Eiichi Sato (JAXA)

Key Words: hydrazine, MMH, MON-3, bipropellant, ceramics, silicon nitride, jointing, titanium alloy

## 1. 目的および背景

### 1.1 セラミックスラスタ

二液式エンジン／スラスタは、インジェクタから噴出された燃料（主にヒドラジン、モノメチルヒドラジン）と酸化剤（主に四酸化二窒素）がチャンバ内で混合し、自己着火する。燃焼により生成した高温の分解ガスがノズルから高速に噴出し、推力を得る仕組みである。二液式スラスタは一液式触媒スラスタと比較して比推力が高く、主に静止衛星の軌道投入用アポジキックエンジンや、軌道制御／姿勢制御用小推力スラスタに使用されている。

二液式エンジン／スラスタのキー技術の一つとして、燃焼器が挙げられる。一般的に燃焼温度が高いと比推力が向上するため、燃焼器には耐熱温度が高い材料が適用される。現在、燃焼器にニオブ合金を適用したスラスタが広く普及しており、またさらに耐熱温度が高い貴金属系の材料を燃焼器に使用したスラスタも製品化されている。日本では、日本独自の技術として燃焼器に窒化ケイ素系セラミックスを適用したスラスタの研究開発を行っており、2009年に打ち上げられた金星探査衛星「あかつき」の軌道変換用 500N エンジンにセラミックス製燃焼器が初めて適用されている。

セラミックス製燃焼器には窒化ケイ素系セラミックスが使用されている。窒化ケイ素系セラミックスの物性についてニオブ合金と比較したものを表 1.1 に示す。

窒化ケイ素系セラミックスの特長としては、主に以下の3点が挙げられる。

#### (1)耐熱温度が高い

窒化ケイ素系セラミックスの耐熱温度は約 1500℃と、二液式スラスタの燃焼器に一般的に使用されているニオブ合金の耐熱温度（1300℃）よりも高い。一般的に燃焼温度が高いと比推力が高く、また燃焼器の冷却に使用する推薬（フィルム冷却）の量も減らせるため、スラスタの高比推力化が期待できる。

#### (2)熱伝導率が良い

窒化ケイ素系セラミックスの熱伝導率はニオブ合金と比較して大きい。そのためチャンバから逃げる熱が大きく、燃焼中の燃焼器の温度はニオブ合金と比較して低く抑えられる。結果としてフィルム冷却流れの流量を抑えることができ、高比推力化につながる。

#### (3)曲げ強度が強い

ニオブ合金と比較して常温、および高温時の曲げ強度が強い。そのため燃焼中に高温にさらされるスラスタにおいては強度上のマージンが十分確保される。

表 1.1 窒化ケイ素系セラミックスとニオブ合金の比較

窒化ケイ素系セラミックス		ニオブ合金 (C103)
3400	密度 [kg/m <sup>3</sup> ]	8870
738	曲げ強度 @室温 [MPa]	640
468@1500℃	曲げ強度 @高温 [MPa]	76@1370℃
64.0	熱伝導率 [W/m <sup>2</sup> *K]	41.9
1500	耐熱温度 [℃]	1300
なし	コーティング	耐酸化コーティング

近年、軌道制御／姿勢制御用小推力スラスタについては 20N 級が広く適用されているが、より小推力の 10N 級の二液式スラスタのニーズが高まっている。その理由は、特に通信衛星で軌道上サービスを途切れさせないようにするため、マヌーバー中の指向精度維持のための精密姿勢制御が求められている点にある。さらに近年、衛星寿命の長寿命化、およびペイロード比の向上につながるスラスタの高比推力化が求められている。

これらを踏まえ、JAXA ではこれまでに MMH 二液用の 10N 級二液式スラスタの研究開発に取り組んで

きており、燃焼器に耐熱温度が高いセラミックスを適用して性能向上を目指している。これまでにインジェクタの種類による性能特性の把握、スラスタ性能やスラスタ寿命に利くインジェクタパラメータの把握等を行ってきた。[1]

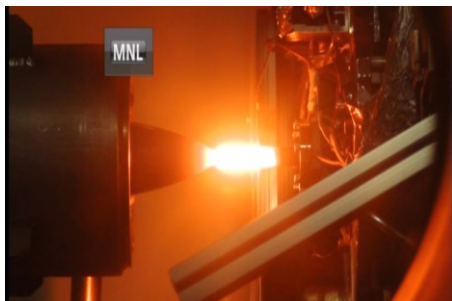


図 1-1 10N 級セラミックスラスタ



図 1-2 セラミック製燃焼器

## 1.2 10N 級セラミックスラスタの課題

10N スラスタの燃焼器をセラミック製にする場合、チタン合金製のインジェクタとセラミック製燃焼器の接合が課題となる。一般的に、宇宙機用推進系では宇宙機の長期運用中の不具合ポテンシャルを減らすため、継手や接合部には溶接が採用されている（ただし海外では機械継手も採用されている）が、金属とセラミックの接合技術は確立されていない。現在の 10N セラミックスラスタの接合部を図 1-3 に示すが、上記の理由により現在は、機械継手を採用したコンフィギュレーションを検討している。主に信頼性の観点で、ユーザーからは適切な高温強度と耐久性を有した信頼性の高い接合技術の確立が求められている。またインジェクタと燃焼器の接合部には酸化剤が直接接触するため、耐酸化性も求められる。

そこで本研究では、耐酸化性および高温強度、耐久性を有したセラミックと金属の接合技術を確立し、主に 10N スラスタの Ti 合金製インジェクタとセラミック製燃焼器の接合への適用を目指すことを目的とする。



図 1-3 燃焼器とインジェクタの接合部

## 2. セラミックと金属の接合技術

### 2.1 セラミックの接合の難しさ

一般的に、セラミックは高融点、脆性材料、低線膨張係数といった特徴がある。特に高融点で耐熱温度が高いという特徴は、スラスタに適用する場合は燃焼温度の高温化、すなわち高比推力につながるため、大きな利点である。一方で、セラミックと金属の接合を考えた場合、上記特徴は逆にデメリットになる。すなわち、母材が高融点の場合は溶接を始めとする融接法の適用が困難であり、脆性材料の場合は圧接法の適用が困難となり、適用可能な接合方法が限られる。また線膨張係数が金属と比較して 1/3 程度と低いため、セラミックと金属を接合した場合に熱収縮量の違いにより接合部界面近傍に応力が発生し、接合強度を弱めることが考えられる。

本研究では、接合方法としてろう接に注目した。ろう接は母材より低い融点を有するろう材を用い、その溶融により母材間隙に毛管作用で流入し、母材同士を接合する方法である。そのため母材の溶融または加熱による材質の劣化が少なく、融接法に比較し低温で行われるため欠陥や応力発生が抑制される、という特徴があり、金属だけでなくセラミックをはじめとする非金属の接合にも広く用いられている。

### 2.2 研究のアプローチ

セラミックと金属のろう接技術の確立に向けては、ろう材の選定が最も重要である。セラミックと金属のろう接技術としては、過去の研究で Ag 系ろう材を用いた研究がおこなわれており、スラスタノズル部への適用の目途付けを得ている[2]。しかし、今回接合の対象としている 10N スラスタの Ti 合金製インジェクタとセラミック製燃焼器の接合においては、接合箇所がインジェクタ近傍に位置するため、インジェクタから噴出した酸化剤が接合部に接触し、接合部が酸化剤により酸化される。そのため、Ag 系ろう材においては耐酸化性が課題となるため、代替ろう材を選定する必要がある。本研究では、耐酸化

性を持つろう材として Au 系ろう材に着目した。Au 系ろう材は宇宙用としてはロケット用エンジンのノズルスカート冷却管などの宇宙用部品にも広く適用されている。図 2-1 に、先行研究で使用した Ag-Ti 系、および本研究で第一候補に考えている Au-Ti 系の状態図を示す[3]。Au 系ろう材は Ag 系ろう材と比較して耐酸化性を持つが、一方で液相になる温度は Ag 系ろう材が 800°C 程度なのに対し、Au 系ろう材は 1100°C 付近に存在する。そのため Au 系ろう材のろう付け温度は Ag 系ろう材と比較して高く、接合部の応力発生が課題となる。

本研究では、Au 系ろう材についてまずはぬれ性評価によりろう材成分の最適化を行い、その後選定したろう材を使ってろう接の温度条件最適化を行っている。

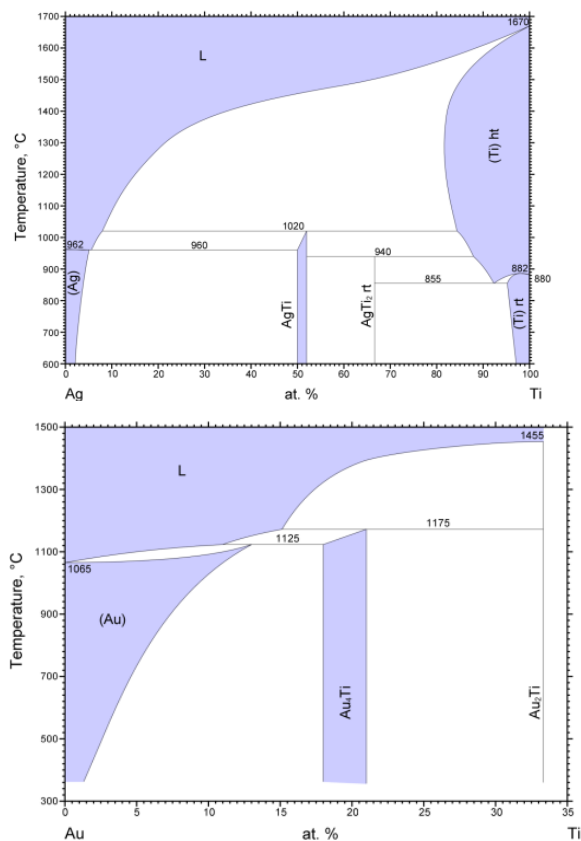


図 2-1 状態図 (上 : Ag-Ti 系、下 : Au-Ti 系)

### 3. セラミックスとチタンのろう接トライアル

#### 3.1 Au 系ろう材候補の選定

Au 系ろう材成分の最適化にあたり、市販されている Au 系ろう材で耐酸化性を持つろう材を基準に、ぬれ性評価を行った。市販されているろう材としては Au-3Ni-0.5Ti (wt%) が挙げられる。このろう材については、温度 60 度の 60% 硝酸における耐性が確認され

ており、スラストに求められる耐酸化特性を有していると考えられる。このろう材成分を基準に、ぬれ性と接合強度の向上を目指して、市販の Au-3Ni-0.5Ti を合わせて以下の 4 種類のろう材を準備した。

- Au-3Ni-0.5Ti (市販品)
- Au-3Ni-1.5Ti
- Au-3Ni-3Ti
- Au-6Ni-6Ti

市販品以外のろう材の作成にあたっては、JAXA が所有するアルゴンアーク溶解炉でろう材成分を混ぜ合わせ、その後圧延することにより所定の厚みを有するろう材を製作した。図 3-1 に今回製作した 3 種類のろう材を示す。製作の結果、Au-3Ni-1.5Ti についてはアルゴンアーク溶解炉による熔融、および厚さ 50μm までの圧延に成功したが、Au-3Ni-3Ti と Au-6Ni-6Ti は圧延の際に圧下率 20% 以下でろう材に割れが発生し、その後の圧延工程に回すことができなかった。これは Ti 添加量が多いと脆化の特徴を有する Au-4Ti 析出物の割合が増加し、割れが生じたと考えられる。



図 3-1 製作したろう材  
上 : Au-3Ni-1.5Ti  
左下 : Au-3Ni-3Ti 右下 : Au-6Ni-6Ti

次に Au-3Ni-0.5Ti と Au-3Ni-1.5Ti の酸化特性を把握するため、DSC (Differential Scanning Calorimetry, 示差走査熱量計) を用いて融点の測定と酸化による重量測定を行った。その結果を図 3-2 に示す。図 3-2 の中で、熱流束の変曲点が固相と液相の境界にあり、融点に相当すると考えられる。図 3-2 から明らかなように、Ti 添加量を 0.5wt% から 1.5wt% に増やすことで融点が 1020°C 付近から 1040°C 付近に上昇し、また温度上昇に伴う質量増加量が増えていることから、酸化が生じやすい傾向にあることがわかる。したがって、今回候補にした Au-Ni-Ti 系ろう材の選定にあたっては、ぬれ性や接合部強度が確保できる範囲で、

できる限り Ti 添加量を抑えたらろう材成分の設計を進める必要があることがわかった。

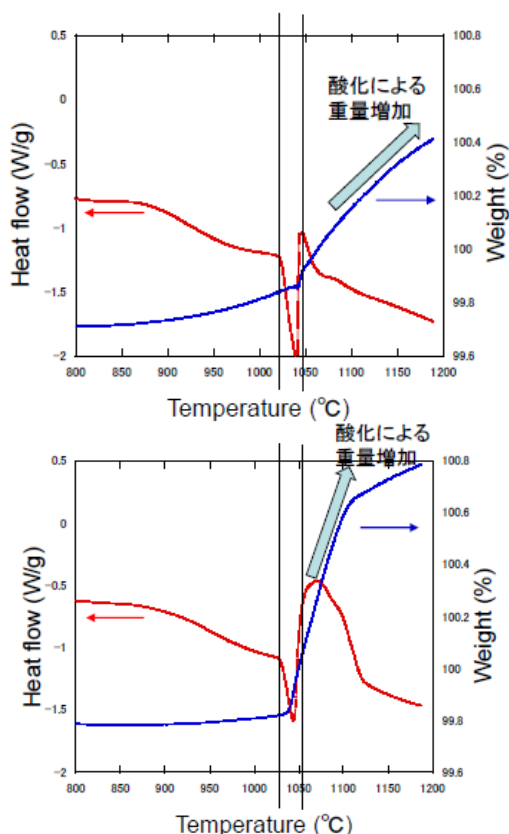


図 3-2 融点測定と酸化による質量測定  
上：Au-3Ni-0.5Ti (wt%)  
下：Au-3Ni-1.5Ti (wt%)

### 3.2 ろう材のぬれ性評価

次に選定したろう材を純 Ti とセラミックスのぬれ性について評価した。評価方法としては、それぞれの材料について約 10mm 立方のテストピースを準備し、それらの間にろう材を挟んで所定の温度に加熱し、ぬれ性を確認した。ろう付け温度としては、3.1 項で確認したろう材の融点測定の結果から、確実にろう材が液相になる 1150°C に設定し、最高温度での保持時間は 20 分とした。

図 3-3 に純 Ti とセラミックスを直接ろう接させた場合のぬれ状況を示す。両条件ともろう材は濡れ広がっており、ぬれ性は確認できたが、接合はしていなかった。これは純 Ti とセラミックスの線膨張係数の際により残留応力が発生し、接合しなかったと考えられる。Ti 系金属の線膨張係数は一般的に  $8.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  付近にあるのに対し、窒化ケイ素系セラミックスは  $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  付近にあり、その差は 3 倍弱である。そのため、ろう接の過程で接合部界面に残留応力が発生し、破断に至ったと推定される。



図 3-3 ぬれ性評価結果 (直接ろう接)  
左：Au-3Ni-0.5Ti、右：Au-3Ti-1.5Ti

この結果を踏まえ、接合部界面に発生する応力を抑制するため、線膨張係数が純 Ti とセラミックスの中間にあり、かつ融点がろう付けの最高保持温度として設定した 1150°C 以上にあるニオブを中間層として間に挟み、それぞれを接合する方針とした。またろう接過程での残留応力発生を抑制するため、ろう付け後の冷却過程において焼鈍し効果による残留応力低減を期待して 800°C 1 時間で保持する工程を入れてぬれ性評価を行った。

ニオブを中間層として挟んだ場合のぬれ性評価の結果を図 3-4 に示す。図 3-4 は接合部界面のろう材の状態を確認するため、ろう接後に接合部を強制的に剥がした状態である。両条件ともろう材は濡れ広がっており、手では簡単に取りれない程度の接合部強度を持つことが確認でき、接合部界面の残留応力の発生が抑制されていることが確認できた。

これらの結果から、Ti とセラミックスの接合技術として Au-Ni-Ti 系を用いたろう接の目途付けを得ることができ、温度条件設定の最適化によりスラスト接合部に求められる接合部強度を確保できる接合技術の見通しを得た。

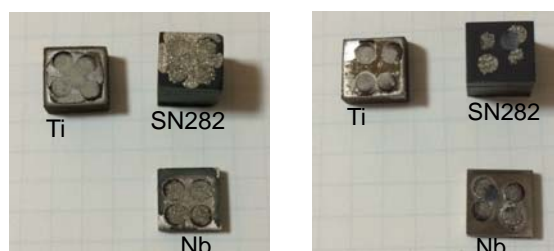


図 3-4 ぬれ性評価結果 (Nb 中間層あり)  
左：Au-3Ni-0.5Ti、右：Au-3Ti-1.5Ti

### 4. 今後の計画

今後、選定したろう材候補を使用して、温度条件の最適化、および接合部の強度評価を行う計画である。

ろう付け時の温度条件は、発生応力を緩和するという目的で非常に重要である。図 4-1 にろう付け時の一般的な温度プロファイルを示す。主なパラメータ

としては最高温度、最高温度保持時間、冷却方法の3種類がある。このうち最高温度については、ろう材が完全に液相になる温度を上回りつつ、金属とろう材の反応が進みすぎないように、できる限り低い温度で設定する必要がある、その温度の見極めが重要である。また最高温度保持時間としては、保持時間が長すぎるとろう材が酸化して固まり濡れ広がらない、あるいは金属とろう材の反応が進みすぎて接合しない、という事象が確認されている。そのためろう材が適当な範囲で濡れ広がりつつ、酸化して固まらないような温度を見極める必要がある。また冷却方法については、ろう付け工程の冷却時の接合部界面での応力発生緩和を狙い、中間温度で保持した場合の接合部強度への影響を評価する計画である。

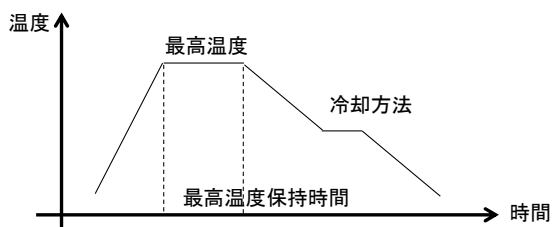


図 4-1 ろう付け時の温度プロファイル

現在進めているろう付け温度条件最適化に向けたトライアルの結果、セラミックスとチタン合金の接合する目的を得ており、現在詳細な組織観察等を進めている。

上記によりろう付け温度条件が最適化されると、次にその工程でスラスタに適用可能な接合部強度を有するかを評価する。Ag 系ろう材を用いた先行研究 [2] では、4 点曲げ試験の結果セラミックスの割れにより破断することが確認されており、十分な接合強度が確保されていることが明らかになっている。また酸化剤 (MON-3) のガス雰囲気へ曝露した後の試験片で 4 点曲げ試験を行った結果、若干接合部強度は低下したが、150MPa 以上の高い強度を保持していることが明らかになっている。Au 系ろう材においても常温、および高温条件下での 4 点曲げ試験を計画しており、これらによりスラスタ接合部に求められる強度を有しているかを評価する。

## 5. まとめ

本研究では、耐酸化性および高温強度、耐久性を有したセラミックスと金属の接合技術を確立し、主に 10N スラスタの Ti 合金製インジェクタとセラミックス製燃焼器の接合への適用を目指し、Au-Ni-Ti 系

ろう材についてぬれ性評価によりろう材成分の最適化を行った。その結果、以下が明らかになった。

- ① Au-Ni-Ti 系ろう材の選定にあたってはろう材の酸化を抑えるため、ぬれ性や接合部強度が確保できる範囲で、できる限り Ti 添加量を抑える必要がある。
- ② Ti とセラミックスを直接ろう接した場合、ろう材の濡れ広がり確認されたが、主に線膨張係数の差による接合部界面に大きな応力が発生し、接合部強度は低下する。
- ③ Ti とセラミックスの間にニオブを中間層としては置いた場合、接合部界面の発生応力は低下し、スラスタ接合部に求められる強度を有する可能性がある。

本研究としては引き続き、ろう接工程の温度条件最適化、および接合部の強度評価を行い、10N セラミックススラスタへの適用可否を評価する方針である。

## 参考文献

- [1] G.Fujii, et al., 「Research and development status of 10N MMH/MON-3 bi-propellant ceramic thruster」, Space Propulsion 2016
- [2] 戸部, 他, 「セラミックス/金属接合スラスタの開発」, 第 60 回宇宙科学技術連合講演会
- [3] Yibin Xu, Masayoshi Yamazaki, and Pierre Villars: *Inorganic Materials Database for Exploring the Nature of Material*: Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 11RH02.