

1K06 極超音速飛行における可変機構の耐熱性・気密性向上に関する研究 特にスタティックシールについて

○東野和幸(ネツ),佐原亮二,Arkapol Saengdeejing(物材機構),中村秀一,原田修,鈴木芳雄,高間茂樹(ネツ)

Kazuyuki Higashino (NETS), Arkapol Saengdeejing, Ryoji Sahara (NIMS)
Shuichi Nakamura, Osamu Harada, Yoshio Suzuki and Shigeki Takama (NETS)

Key Words: High Temperature, Static Seal, Hypersonic Speed

Abstract

Scramjets flying at hypersonic speeds, thermal protection methods for parts other than the combustor (intakes and nozzles) are a major issue, and there are very few results and previous studies on oxidation-resistant high-temperature seals that apply thermal protection of internal flow and moving parts, we conducted research on the basic technology of heat-resistant sealing for incoming high-temperature air (1400°C).

I 高温シール研究開発

方針と目標

本研究の目標は高温環境下で使用するバルブ等で実現している摺動部シールの温度の上限を 600°C から 1400°C 程度に大きく引き上げることにより、極超音速飛行の温度環境に適合する超高温シール設計技術確立することにある。具体的には、超高温酸化雰囲気における気密性を確保することを目的に、従来の高温用のパッキン素材である膨張黒鉛やカーボン繊維等に代わり、耐酸化性に優れるニッケル系合金や白金系等を使用する必要がある。また、例えば、軸と軸封装置を同一の材料とすることにより、線膨張係数の違いによる気密性能の低下を防止することができるが、繰り返し使用することによる気密性能の劣化や摺動抵抗の増加を低減するためには、シール面の変形量を弾性変形の範囲に極力限定する必要がある。

実施項目

1)有限要素法による弾塑性解析を適用したシール部形状の最適化に関する検討,基本形状を設定し、締め付けや圧力の負荷等によるシールの変形量と応力分布を弾塑性解析によって評価した。評価の対象とする基本形状としては、第一ステップとしてスタティックシールを評価の対象とした。シールと軸が接触して気密をとるリップ部の形状については、シール部の幅、相対接触角度や先端半径等のパラメータが応力レベルに与える影響を検討し、材料と温度や圧力等の環境条件に対し、最適なシール部の形状を選

定するための現象を解明するとともに基準を確立した。

また、超高温環境下に適用する材料について、熱力学特性を理論的に明らかにするための基盤技術の構築を進めた。すなわち、計算手法そのものの妥当性を確認するものであり、本研究では Ni 系および Pt 系合金を対象に、第一原理計算と統計力学的な手法を合わせた計算手法による自由エネルギー計算を行うことにより、定量的にその手法の妥当性を確認するものである。

2)シール部のクリープやサイクル疲労等による気密性能への影響評価

基本形状のシールを製作し、高温環境下における気密性能を評価する。特に、高温環境下ではリップ部のクリープやサイクル疲労等による変形と気密性能の劣化が懸念されることから、シール部の応力レベルの設定と寿命に関するデータを取得する。また、シール材料の候補のうち、ハステロイ X 等を対象にベースデータを取得した上で、白金相当の超耐熱合金を選定した。本実施項目を通じて得られるデータについて、耐熱合金のクリープやサイクル疲労等による変形に関する貴重なデータであり、今後の活用が期待できる。

また、クリープ寿命を確保しつつ、シールに必要な面圧を十分に確保することを目的に、高温においても耐力を維持できる素材を用いたスタティックシールを対象に、約 1400°C までの高温環境下で荷重をかけてシール部の高温差リーク量を把握した。同時に、加工技術確立することもできた。

研究成果概要

1)有限要素法による弾塑性解析を適用したシール部の形状の最適化に関する検討と熱力学特性を理論的に明らかにするための第一原理解析と統計力学的な手法を合わせた解法の実施。シールの基本形状を50種ほど設定し、締付や圧力の負荷等によるシールの変形量と応力分布を弾塑性解析によって評価することにより、候補となる形状を5種(シール形状3種、締め代1~2種)に絞りこんだ。気密をとるシール部の形状については、シールの幅、相対接触角度や先端半径等のパラメータが応力レベルに与える影響を解析し、現象を解明する重要パラメータを把握した上で、材料と温度や圧力等の環境条件に対しシール部形状を1種(R型;加工容易のため円弧としている)、素材をハステロイX、白金に絞り込みした。また、高温環境下に適用する材料について、熱力学特性を理論的に明らかにするため量子力学からの基盤解析技術の構築を行った。試験データが豊富なNi-Al-Ti系合金を対象に、第一原理計算と統計力学的な手法を合わせた解析手法による自由エネルギー計算を行うことにより、素材選択の幅を広げることを目指すとともにその手法を提示した。主にハステロイXについて、従来のシール使用温度600℃までの高温サイクル試験をリソース許容範囲(日程、ガス類)も考慮しつつ、かつ弾塑性解析結果10回でもシール面圧に変化ないことも加味し、可能回数を求めるため安全率を加味し36サイクルまで行いリークが生じないことを確認した。なお、従来の酸化雰囲気でない高温シール(膨張黒鉛などのパッキン)の使用回数は10回程度が上限である。耐酸化性シールの最高温度800℃付近におけるハステロイXを素材とする供試体の熱変形量と応力の分布に関する弾塑性解析を行い、さらに1250℃(融点1350℃)までの高温サイクル試験を上記と同様の理由で11回くりかえし試験を行い、外部リークがまったくなかった。かつ試験後点検でも異常なかった。次にコスト削減もあったので約1400℃を対象に形状パラメータをしぼりこんだ白金シール1種で供試し約7分間リークがないことも確認した。シール部の形状はきわめて重要であり、R型を最終的に選択することとしたが、アーム部内部歪において塑性域が30%以内程度に収まるように考慮するとともに、アームの断面において全面が塑性域とならない形状に絞った。図1に本研究における弾塑性解析モデル図2に弾塑性解析で導入した供試シールの解析条件を示す。内圧が高圧になるほどシール面圧は高くなりシール性はよくなる。またシール

材とシールを保持するフランジはハステロイXとして同質素材としたが、白金の場合にはコスト削減面もあり、モリブデンやセラミックとして高温での線膨張差の影響が少なくなるように設計を行った。

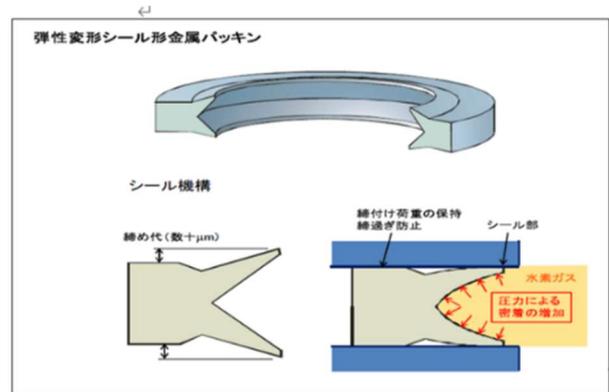


図1 弾塑性解析モデル

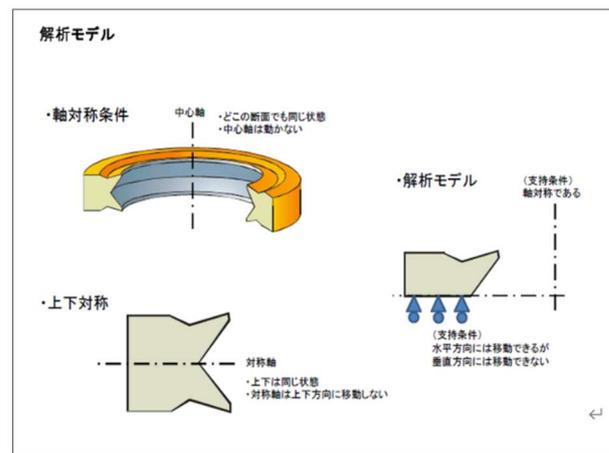


図2 モデルの解析条件

図3に弾塑性解析モデルの代表例として、シール部の形状がR型、フラット型、丸型の3種について示す。なお、フラット型は熱変形追従性の面で劣ることが明らかとなったため、ハステロイX、白金シールについて熱変形も考慮し追従性がよく加工も比較的容易なR型にしぼり、ハステロイX製を選択し、一方1400℃試験は白金を用いた。供試シールから150mm以上離れた治具配管はコストと入手性も考慮し、インコ601やモリブデンとした。この治具接合部については約1400℃で長時間(7分以上)たつと溶融し多少の外部リークが発生した。φ1.6のPt-Re熱電対も1400℃では複数測定不可となった。

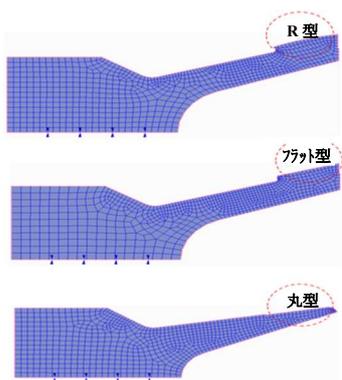


図3 シール形状 (R型,フラット型,丸型)

図4は、シール材が Hastelloy X で、形状が R 型の場合の 1093℃ (物性が明らかな温度を選定) における弾塑性解析の結果を示しており、この結果から、高温試験に供するシール部の形状を選択した。なお、シール部の形状を選択する際の基準として、塑性域のなかに弾性域が残っていて熱歪を抑えていること、また、シール部を含むアームの締め代が片側で 50 ミクロンを超えると内部応力が全般的に急に高くなることを明らかにした。その閾値を超えないこととしている。

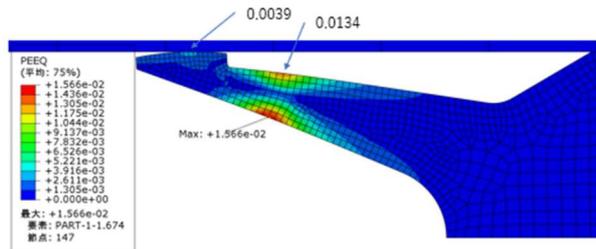


図4 解析結果例 (R型 Hastelloy X, 1093℃; 数字は等価塑性歪)

1400℃における白金 (Pt) の物性については、信頼できる試験値が見当たらないので、II で提示した第一原理計算と統計力学を用い、合金の高温における物性値の予測を行った。詳細は添付資料 II に示すが、既に公表されている高温環境下におけるデータとの整合性もよく貴重な高温物性解析手法である。

2) シール部のクリープやサイクル疲労等による気密性能への影響評価。

Hastelloy X, L605 を素材とするシール 5 種を試作し、クリープやサイクル疲労等による変位の高温試験及び熱サイクル試験を行い、先に行った弾塑性解析の結果を検証するとともに、リークがないことを確認した。1400℃の高温試験を、入手性を考慮し白金 (Pt) を素材とするシールを選択した。図5は高温試験系統図である。炉冷却水、炉冷却窒素ガスライン、供試体酸化防止の窒素ガスライン、ヘリウムによる

リークチェックライン、各計測系、安全弁等から構成している。供試シール内圧について～1400℃までの温度で高圧ガス保安法により 0.8MPaG を超えない範囲の設定をした。

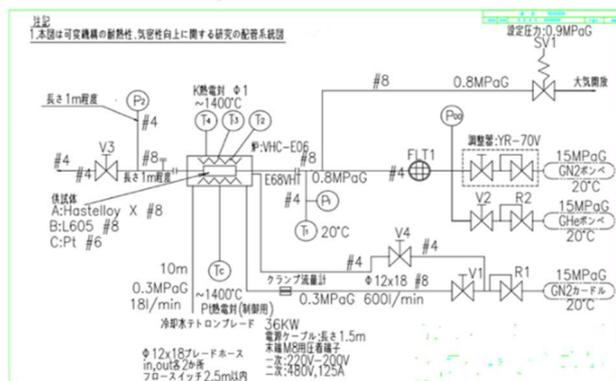


図5 高温試験の系統図

図6は供試シールと熱電対による测温状況を示している。高温炉の熱流束の焦点は約φ20mm程度と狭く、この焦点に熱流束を効率よく集めて昇温させるため、図6に示す位置に断熱材を入れている。また、炉内ヒータの冷却は窒素ガスで行うため、供試シールに窒素ガスが当たらないように石英管でさえぎり、アルミナ管内部に Hastelloy X 管に供試シールを設置している。供試シールの酸化を防止するために低圧窒素ガスを Hastelloy 管外に流し、供試シールを設置した Hastelloy 管の内部は弁で窒素ガスを封じ切っていて、高温状態における圧力減圧を測定してリークの有無を確認している。加えて、昇温前と降温後に Hastelloy 管の内部にヘリウムガスを 0.8MPaG で封入して圧力を測定し、常温時に供試シールからリーク状況がないことを確認している。

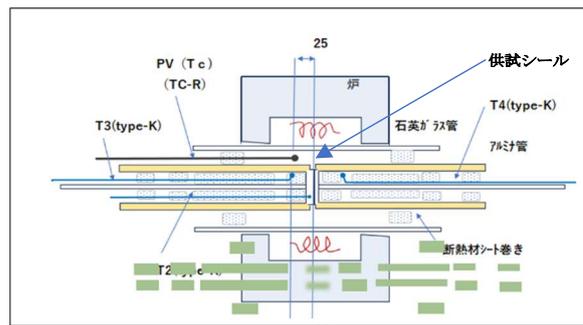


図6 供試シール (Hastelloy X) と熱電対による测温状況

アルミナ管内部は断熱材を入れている。Hastelloy X 管がシール内圧を保持している。図7は JAXA 角田宇宙センターにおいて高温試験及び熱サイクル試験を実施した状況を示す。供試シールをセラミック管 (白い管) で挟み込み、透明な石英管が外側を覆

っている。温度は炉制御用 Pt 合金の熱電対 1 点、シール近傍フランジ部 1 点（シールから 1 mm 程度離れた金属部の温度）、さらに 25mm 程度シールから離れた位置で、封入した窒素ガスの温度を上下流で K 型熱電対で測定している。

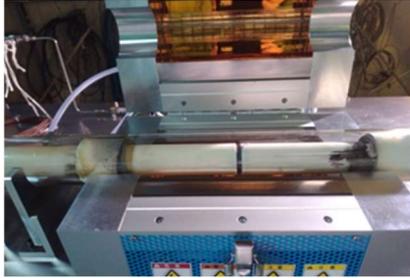


図 7 高温炉と供試シール (JAXA 角田宇宙センターにて)

透明石英管で炉冷却ガスが供試シールにあたらないようにし、白い管はセラミック管で供試シール以外を輻射熱から防御している。

本データはシール部の形状が R 型の場合であり、36 回の熱サイクルをかけたが試験中も試験後もリークは無かった。なお、400℃では耐力が常温の値と近いので 400℃から 800℃の範囲で温度を変化させた。図 8 にも試験状況全体を示す。

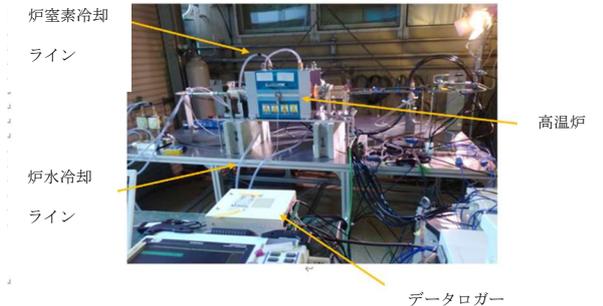


図 8 高温試験状況 (JAXA 角田宇宙センターにて実施)

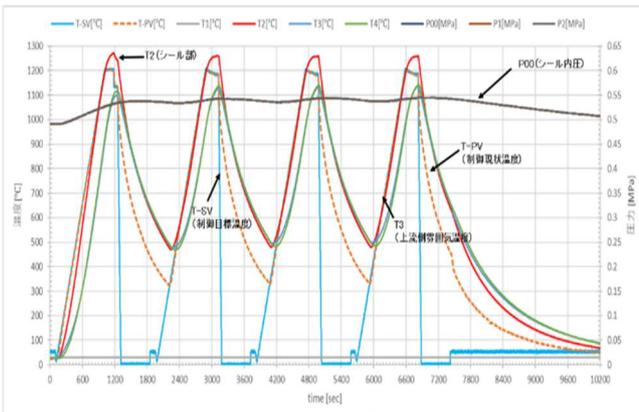


図 9 (a) 高温サイクル試験データ例 (11 回サイクル)

500℃～1250℃サイクル試験を 1 1 回繰り返して、気密性に問題がないことを確認した。(シールはハステロイ X)

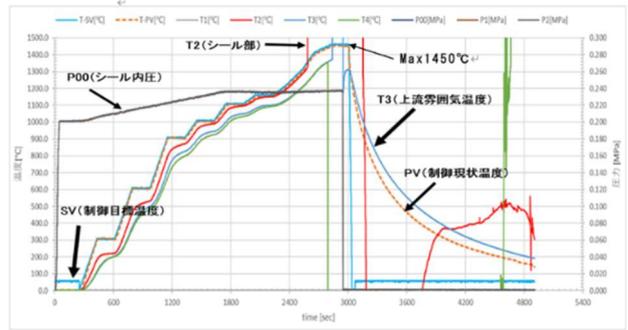


図 9 (b) 高温試験データ例 (約 1400℃ 白金シール)

上図に示すように 1400℃試験。7 分以上シール気密性は良好で定常維持。その後高温のため、治具配管どうしの接合部から若干のリークあった。ここは供試シールから 150 mm 程度はなれている。治具配管はコスト低減のため白金ではなく、シール保持器(マニホールド)含めセラミックやモリブデンとし 150 mm 程度以上のはなしインコ 601 の治具配管と異材接合した。高温のため長秒時 (7 分以上) では治具同士の接合部溶融がおき若干リークが発生した。また、K 熱電対は 1300℃付近で溶融したが、制御温度センサー (Pt-Re φ 3. 2) はいきており、供試シールとの温度差は 10～50℃以内にあり、図 9 (b) 供試シール温度は 1400℃に達している。

まとめ

- 1) 有限要素法による弾塑性解析を適用したシール部の形状の最適化に関する検討。弾塑性解析結果を踏まえてシール部の形状の候補を 50 種類から選択し、そのうちの 5 種類 (シール形状 3 種, 締め代 1～2 種) についてシールの供試品を試作した。また、II で示す量子力学の観点から Ni 系および Pt 系合金について、第一原理計算及び統計力学を基盤とする熱力学計算を行い、高温環境下に於いて示す特性を理論的に明らかにするとともに、白金シールを素材とするシールの設計を進めた。白金シールによる 1400℃の高温試験を複数実施し、7 分以上の高温定常データとのデータ取得ができ、外部リークによる内部減圧なしの良好な結果がえられた。
- 2) シール部のクリープやサイクル疲労等による気密性能への影響評価

JAXA 角田宇宙センターにて、主にハステロイ X のシールで段階的に昇温試験を行い、試験中及び試験

間に於けるリークのないことや、クリープやサイクル疲労等のデータを取得した。その結果 800°Cまで昇温してもリーク等がないことや36回の熱サイクルを掛けてもリークがなくシールの形状を解析と試験で立証できた。さらに 500°C - 1250°C 11 回の高温サイクル試験でもリークがなく、点検結果も異常なしであった。手法や解析結果の妥当性も確認できた。

1400°Cにおける白金シールについても 7 分間以上高温で安定しており、リークないことを試験データで確認立証できた。

II 1400°Cの白金等の機械的特性把握のため実施した解析について

第一原理計算による超高温における状態図作成と弾性特性解析

合金状態図は全ての合金開発プロセスにとって必要不可欠なツールである。通常、状態図は計算熱力学(CALPHAD)法に基づき熱力学データベースを参照して計算されるため、熱力学データベースの構築には膨大な時間とコストがかかり、そもそもデータベースに含まれる限定的な実験データの精度に結果は依存する。特に Pt-Rh 合金のように 1400°Cという超高温における熱力学データは限られており、さらに弾性特性などの実験値がほとんど無いというが現状である。本研究では、このような従来のデータベース参照型の状態図作成を刷新し、且つ有限要素法解析に用いるインプットデータとして利用するため、実験パラメータフリーで、密度汎関数に基づく第一原理計算のみで Pt-Rh 二元系合金の状態図と弾性特性(弾性定数, 体積弾性率, ヤング率, 剛性率, ポアソン比)の温度依存性を評価した。

合金の自由エネルギー $F(V, T)$ は式(1)で評価される。

$$F(V, T) = E_0 + F_{\text{conf}}(T) + F_{\text{vib}}(V, T) + F_{\text{elec}}(V, T) + F_{\text{spin}}(V, T) \quad (1)$$

ここで V は体積, T は温度である。また E_0 , $F_{\text{conf}}(T)$, $F_{\text{vib}}(V, T)$, $F_{\text{elec}}(V, T)$, $F_{\text{spin}}(V, T)$ は各々電子系のエネルギー(ゼロケルビン), 混合エントロピーの寄与(式(2)), 格子振動の寄与(式(3)), 電子の熱励起の寄与(式(4),(5),(6)), スピンオーダーリングの寄与である。本研究では, $F_{\text{conf}}(T)$ は Bragg-Williams 近似で, $F_{\text{vib}}(V, T)$ は調和近似で評価した。 $F_{\text{elec}}(V, T)$ は電子の状態密度から評価した。なお第一原理計算の遂行には Vienna Ab initio Simulation Package(VASP)を使用した。

$$F_{\text{conf}}(T) = -TS_{\text{conf}} = -k_B T \sum x_i \ln x_i \quad (2)$$

$$F_{\text{vib}}(V, T) = k_B T \int_0^\infty \ln \left[2 \sinh \frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right] g(\omega) d(\omega) \quad (3)$$

$$F_{\text{elec}}(V, T) = E_{\text{elec}}(V, T) - TS_{\text{elec}}(V, T) \quad (4)$$

$$E_{\text{elec}}(V, T) = \int n(\epsilon) f \epsilon d\epsilon - \int^{\epsilon_F} n(\epsilon) \epsilon d\epsilon \quad (5)$$

$$S_{\text{elec}}(V, T) = -k_B \int n(\epsilon) [f \ln f + (1 - f) \ln (1 - f)] d^{-1} \epsilon \quad (6)$$

ここで k_B はボルツマン定数, T は温度, ω は角振動数, \hbar はプランク定数である。固溶体の原子ランダム配置

には SQS(Special Quasirandom Structure)モデルを導入した。また弾性定数 C_{ij} は式(7)

$$C_{ij} = \epsilon_{ij}^{-1} \sigma_{ij} \quad (7)$$

で求められる。ここでは歪みである。さらに体積弾性率 B , 剛性率 G , ヤング率 E , ポアソン比 ν はおのこの式(8), (9), (10), (11)で求められる。擬調和近似により格子定数の温度依存性を求め、その格子定数を使用して各温度における弾性特性を求めた。

$$B = \frac{C_{11} + 2C_{12}}{3} \quad (8) \quad G = \frac{C_{11} + C_{12} + 3C_{44}}{5} \quad (9)$$

$$E = \frac{9BG}{G + 3B} \quad (10) \quad \nu = \frac{C_{11} + C_{12} + 3C_{44}}{2G} \quad (11)$$

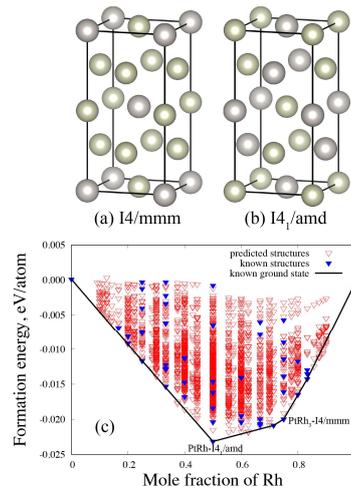


図 10 (a) I4/mmm, (b) I4₁/amd 構造, および(c)生成エネルギーの Rh 濃度依存性

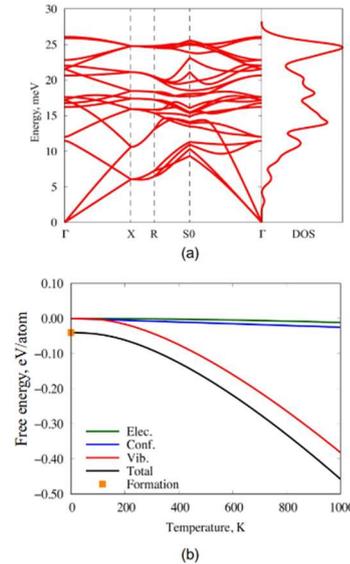


図 11 (a) I4₁/amd 構造の分散とフォノン状態密度 (DOS), (b)自由エネルギーに対する各項の寄与の例

図 10 に, Pt:Rh が 1:3 組成と 1:1 組成の規則相の例である I4/mmm と I4₁/amd の結晶構造を示す。また, ゼロケルビンにおける生成エネルギーの Rh 濃度依存性(Convex Hull, 凸胞)を示す。この Convex Hull は, 相安定性の温度依存性を評価する際に必要な基本データである。この図より PtRh(1:1 組成)では I4₁/amd

が、PtRh₃(1:3 組成)では I4/mmm が最安定構造であることが分かる。

図 11(a)に、例として I4₁/amd 構造のフォノン分散とフォノン状態密度(Density of States, DOS)を示す。さらに図 11 (b)に、相の自由エネルギーに対する各項の寄与の一例を示す。自由エネルギーの温度依存性は、フォノン計算から評価される格子振動の項の寄与が大きいことが分かる。様々な組成と結晶構造、原子配置に対して自由エネルギーを求めることで、最終的に状態図を作成する。

図 12 に、本計算で最終的に求められた Pt-Rh 合金の状態図の(a)計算値を示す。本計算で得られた状態図を MatNavi などの実験状態図と比較すると、全体的な傾向として実験を良く再現できていることが確認された。

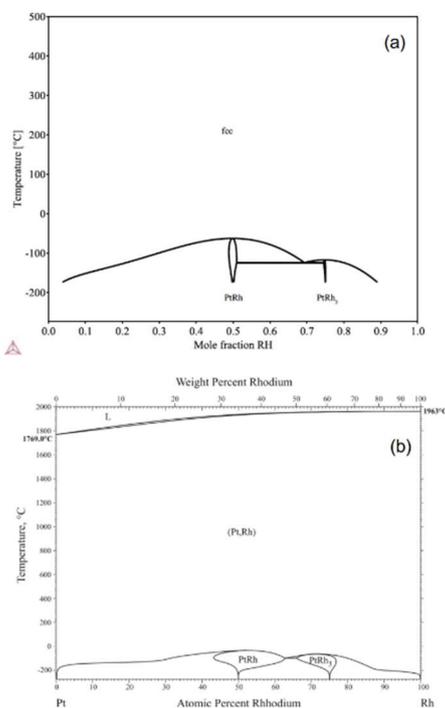


図 12 第一原理計算のみで決定した Pt-Rh 系合金の状態図

次に、弾性特性の温度依存性の計算結果について述べる。図 13 に本研究で求めた純 Pt の弾性定数 C_{11} , C_{12} , C_{44} , 剛性率 G , ヤング率 E の計算を示す。これらの値は全て、温度上昇と共に単調減少することが分かる。 G と E については Hamada らによる実験値の報告があるため、その実験値と本研究結果を比較すると、互いに良く一致していることが確認できた。

最後に本手法を用いて、高温領域における実験データの報告がほとんど無い Pt-Rh 二元系合金に対する各弾性特性、すなわち弾性定数 C_{11} , C_{12} , C_{44} , 剛性率 G , ヤング率 E , ポアソン比 ν の温度依存性を評価した。図 14 に例として 1:1 組成の結果について示す。 ν は温度上昇と共に単調増加するが、それ以外の値は温度上昇と共に単調減少することが分かった。

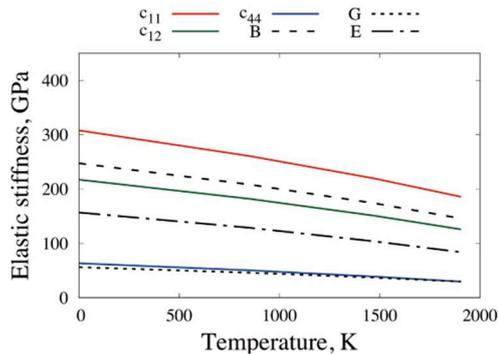


図 13 本研究で求めた純 Pt の弾性定数 C_{11} , C_{12} , C_{44} , 体積弾性率 B , 剛性率 G , ヤング率 E の温度依存性

これらの値を、有限要素法(FEM)を実行する際のインプットデータとして利用することで、本研究の FEM の精度が向上し、実験の成功へと繋がった。さらに、これまでは実験や現象論に基づいた数値解析で求められてきた高温における材料特性の定量予測について進展があった。今後の状態図作成の際に、予備的な熱力学データベースを迅速に構築することで、必要な実験データの数を減らすことが期待される。

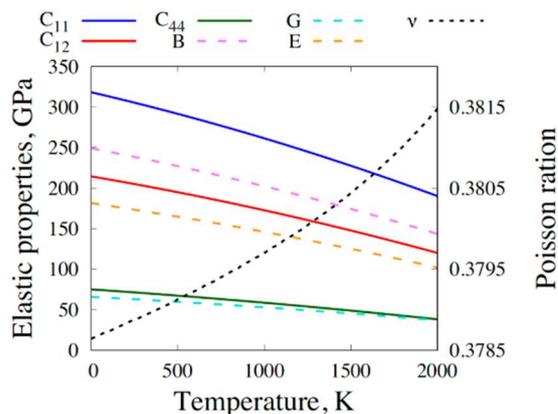


図 14 本研究で求めた 1:1 組成の Pt-Rh 二元系合金に対する弾性定数 C_{11} , C_{12} , C_{44} , 体積弾性率 B , 剛性率 G , ヤング率 E , ポアソン比 ν の温度依存性

謝辞

本研究を進めるにあたり、JAXA 角田宇宙センター小野寺 卓郎氏、前原卓哉氏の多大なるご支援に対し紙面を借りて謝辞を表します。

本研究は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究制度 JPJ 004596 の支援を受けたものである。