



Title	高压焼結法による窒化ケイ素セラミックスの製造とその特性評価に関する研究
Author(s)	山田, 哲夫
Citation	大阪大学, 1983, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/33724">https://hdl.handle.net/11094/33724</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名・(本籍)	山	田	哲	夫
学位の種類	工	学	博	士
学位記番号	第	6198	号	
学位授与の日付	昭和	58年	10月	5日
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当			
学位論文題目	高压焼結法による窒化ケイ素セラミックスの製造とその特性評価 に関する研究			
(主査)	教 授 小泉 光恵			
論文審査委員	教 授 塩川 二朗	教 授 庄野 利之	教 授 庄司啓一郎	
	教 授 三川 禮	教 授 舛林 成和		

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、高純度微粒子  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末の製造プロセスの開発、高压焼結技術の適用による助剤無添加高密度  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体の作製、高圧力下における  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の焼結機構・相転移機構の解明及び助剤無添加高密度  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体の熱的・機械的性質の評価を行なった結果について論じたものであり、6章から構成されている。

第1章においては、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  セラミックス開発の意義および本研究の目的などを述べている。

第2章においては、シリコンジイミドの熱分解による高純度微粒子  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末の合成について記述している。工業的規模におけるイミドの製造プロセスとして、液相界面反応法を開発すると共に、粉末の焼成条件の精密な制御により、生成粉末の結晶相、粒子形態などの特性を任意に変化させることができることを述べている。

第3章においては、高压焼結法による助剤無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体の作製、変形機構図による作用圧力の評価及び相転移と緻密化との相関に基づく  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の焼結機構について記述している。高压下における  $\alpha-\text{Si}_3\text{N}_4$  の緻密化過程は、3段階に分けてモデル化できることを明らかにしている。

第4章においては、助剤無添加高密度  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体の熱的・機械的性質について記述している。無添加高密度焼結体のビッカース硬度は、室温において  $23 \text{GN/m}^2$ 、 $1200^\circ\text{C}$  において  $14 \text{GN/m}^2$  と高い値であり、その破壊靭性値  $K_{IC}$  は、室温から高温まで一定の値 ( $3.8 \text{ MN/m}^{3/2}$ ) で変化しないことを明らかにしている。また、焼結体の機械的強度の発現には、焼結過程における相転移が重要な役割を果たしていることを論じている。

第5章においては、焼結体製造プロセスの最適化、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の相転移機構及び無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体と

通常の添加物含有焼結体との比較の結果を記述している。粉末特性および焼結圧力が粒子間結合に大きな影響をおよぼすことを明らかにし、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の  $\alpha$  相から  $\beta$  相への相転移は、高圧下においては常圧下と異なり固相内において進行することを見出している。また、助剤無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体には、添加物含有焼結体にみられる高温での急激な硬度低下、 $K_{1c}$  の上昇などの機械的性質の劣化がなく、またその熱伝導度は、添加物含有焼結体よりも高いことを立証している。

第6章では、得られた結果を総括して本論文の結論を述べている。

### 論文の審査結果の要旨

近年、技術革新を担う新素材として、ファインセラミックスの開発研究が活発に行なわれており、の中でも、熱効率を一層高めるために熱機関の作動温度を 1200 °C にするための高温高強度エンジニアリングセラミックス材料の開発研究が注目を集めている。窒化ケイ素セラミック材料 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) は、高温高負荷下で使用されるエンジニアリングセラミックスの有力候補として期待されている材料である。この  $\text{Si}_3\text{N}_4$  は、共有結合性が強く、拡散係数が非常に小さいことに起因して、優れた材料特性を有する反面、焼結して単独組成の高密度焼結体を製造することは著しく困難であることが知られている。したがって、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の高密度焼結体を作製するには、通常、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  などの酸化物を焼結助剤として添加する必要がある。これらの添加物は、焼結を促進させる効果がある反面、焼結体の粒界にガラス相として析出し、この粒界相の高温における軟化の為に、焼結体の機械的性質が劣化することが知られている。そこで、焼結活性の高い原料粉末の合成及び強度低下の原因となる添加物を使用しない新しい焼結技術の開発により、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  本来の優れた特性を有する高温高強度材料を製造する作成プロセスを確立することが非常に重要な課題となっている。本論文は、今迄皆無であったこの種の研究に際し、出発原料粉体の作製、新しい焼結技術の開発と焼結体の特性評価というファインセラミック材料の開発研究にとって重要な三本柱について、著者が行なった研究をまとめたものであり、主要な成果を要約すると、次の通りである。

- (1) イミド熱分解法による高純度微粒子  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末の工業的製造プロセスの開発実験に成功すると共に、焼成条件の精密な制御により、生成する粉末の結晶相及び粒子形態を任意に変化させることを可能にしている。
- (2) 助剤無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末の高圧焼結を行ない、その高密度焼結体の作製に成功している。また、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  の変形機構図を作成し、作用圧力の評価を行なうと共に、高圧力下における相転移と緻密化との相関に基づく焼結機構の解明を行なっている。その結果、粒子の破碎、再配列及び塑性流動による緻密化の後に、相転移を伴なった物質移動による緻密化が進行することを明らかにしている。
- (3) 助剤無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  粉末の熱間静水圧焼結を行ない、理論密度の 94% の嵩密度を有する焼結体を作製することに成功している。次にこの技術の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体製造への適用範囲を検討し、助剤無添加  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の場合には焼結圧力を上げること、現状の焼結圧力の場合には少量の焼結助剤を添加すること

が有効であることを示唆している。

- (4) 高圧力下における $\text{Si}_3\text{N}_4$ の相転移機構を検討し、相転移が印加圧力により促進されることを見出している。
- (5) 硬度及び $K_{IC}$ の測定により、助剤無添加 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 焼結体の機械的性質の評価を行ない、この材料には、高温における機械的性質の劣化がほとんどないことを見出している。また、焼結体の機械的強度の発現には、焼結過程における相転移が重要な役割を果たしていることを明らかにしている。
- (6) 熱定数の測定により、無添加 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 焼結体の熱的性質を評価し、この材料が添加物含有焼結体よりも高い熱伝導度を示し、エンジニアリングセラミックスとして望ましい特性を有していることを見出している。

以上のごとく本論文は、高性能窒化ケイ素セラミックスの製造に適した原料粉末及び焼結体の製造プロセスを明らかにすると同時に、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ セラミック材料のエンジニアリングセラミックスとしての特性評価についても貴重な成果を見出している。高温高強度窒化ケイ素セラミックス製造について多くの有益な知見を提出し、ファインセラミックス製造技術の発展に貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。