The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	放電プラズマ焼結法による黒鉛と高融点材料の接合に関する研究
Author(s)	大國, 友行
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/34471
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　大國　友行　）	
論文題名	放電プラズマ焼結法による黒鉛と高融点材料の接合に関する研究

論文内容の要旨

本研究では黒鉛の耐熱性を維持しながら、強度の向上、金属との反応抑制、耐プラズマ性の向上等を目的とし、黒鉛と高融点材料の接合を検討した。高融点材料としては、窒化アルミニウム(AlN)、炭化ケイ素(SiC)、タングステン(W)を選定した。その接合方法として、短時間で効率的なプロセスである放電プラズマ焼結法(SPS)を採用し、高温・高圧下での接合を検討した。本論文は全8章で構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べた。

第2章では黒鉛/AlN複合テープ層を中間層として、黒鉛とAlNテープ層の接合を検討した。得られた黒鉛/AlN接合体は黒鉛基材とほぼ同等のかさ密度でありながら、見掛け曲げ強さで約2倍の強度を示し、軽量かつ高強度な接合体であることを示した。

第3章では黒鉛板とAlN粉体の焼結接合を検討した。AlNに焼結助剤としてY_2O_3を添加し、SPSにて焼結温度を1800 ℃および1900 ℃とした場合、黒鉛板とAlNが接合することが認められた。その接合機構は、まず焼結助剤として添加したY_2O_3とAlN表面に存在するAl_2O_3が1800 ℃付近でAl-Y-O融液を生成させ、黒鉛の開気孔に挿入された後、冷却過程においてAl-Y-O相は固化し、黒鉛の開気孔内にとどまることで黒鉛とAlNが物理的に接合するというモデルで説明できた。なお、接合体の引張強さは、Y_2O_3を10 mass%添加し1900 ℃にて焼結した場合19 MPaであり、高い接合強度を示した。

第4章では、第3章にて提案されたAl-Y-O相の浸透現象に基づく新たな接合方法を利用して、黒鉛板とAlN板の接合を検討した。このとき黒鉛板とAlN板の中間層には、黒鉛/AlN複合テープ層、もしくはAlNテープ層を使用した。その接合機構として、AlN焼結体とテープ層の接合ではAlN同士が焼結することで、また、黒鉛とテープ層の接合では、黒鉛とAlN焼結体との間に存在する空隙をテープ層が埋め、1800 ℃以上でテープ層やAlNに含まれるAl-Y-O相が溶融し、黒鉛に浸透して接合する機構が示された。

第5章では、黒鉛板とSiC粉体の焼結接合を検討した。4点曲げ試験により接合強度を測定した結果、室温と比較し、1300 ℃での接合強度は約1.5倍に向上した。これは破断が生じる黒鉛部分の強度が、高温下で増加したためと考えられた。その接合機構として、圧力下で黒鉛の開気孔内にSiC粉体が挿入され、SiC層中のSiC粒子と焼結し強く結合することで接合することを示した。

第6章では黒鉛上にmmオーダーの厚いW層の接合をするために、SPSにより、SiC粉体を中間層とした黒鉛板とW粉体の焼結接合を検討した。その結果、得られた焼結後のW層の厚みは約1 mmであった。接合機構として、SiCとWは生成した反応相を介した化学的な接合であること、さらにSiCと黒鉛は、高圧下で黒鉛の開気孔内に挿入されたSiC粉体が上部SiC層と焼結する接合であることを示した。

第7章では、黒鉛と高融点材料接合体の応用展開について述べた。大型品作製の可能性を検討するために、直径60 mm、厚さ6 mmの円盤状接合体の作製を実施した。得られた接合体に反りや亀裂はなく、大型品への適用の可能性が示された。

第8章では本研究の総括を行い、得られた知見と成果を纏めた。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（大國　友行）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主　査	教授	内藤　牧男
	副　査	教授	田中　敏宏
	副　査	教授	藤原　康文
	副　査	准教授	阿部　浩也

論文審査の結果の要旨

黒鉛を高融点材料と接合することにより、機械的強度の向上、金属との反応抑制、耐プラズマ性の向上等、黒鉛の特性向上とその応用展開が期待できる。本研究では、高融点材料として窒化アルミニウム（AlN）、炭化ケイ素（SiC）、タングステン（W）を選定し、短時間で効率的な焼結プロセスである放電プラズマ焼結法(以下、SPSと呼ぶ)を用いて、高温・高圧下での黒鉛との接合を検討している。得られた主な成果は、次の通りである。

1)黒鉛/AlN複合テープ層を中間層とした場合の、SPSによる黒鉛板とAlNテープ層の接合方法を調査している。その結果、得られた黒鉛板/AlN接合体のかさ密度は黒鉛とほぼ同等であるが、AlNテープ層の接合により、その曲げ強さは黒鉛の約2倍になることを明らかにしている。

2)焼結助剤としてY_2O_3を添加したAlN粉体と黒鉛板との焼結接合を調査している。その結果、SPSの処理温度を1800℃、1900℃に設定した場合、黒鉛板とAlNが良好に接合することを示している。両者の接合は、Y_2O_3とAlN表面に存在するAl_2O_3が1800℃にてAl-Y-O融液を生成し、黒鉛板の開気孔に浸透後、冷却に伴う固化により形成されると考察している。

3)上記で示したAl-Y-O相の黒鉛板への浸透固化現象を利用した、黒鉛板とAlN板の接合方法を調査している。その結果、黒鉛板とAlN板の中間層として黒鉛/AlN複合テープ層、またはAlNテープ層を用いた場合、黒鉛板とAlN板とが良好に接合することを示している。両者の接合は、AlN板とテープ層間ではAlN同士が焼結することにより、また黒鉛板とテープ層間ではテープ層やAlN板中に含まれるAl-Y-O相が溶融し、黒鉛板中に浸透して行われるものと考察している。

4)黒鉛板とSiC粉体との焼結接合を調査している。その結果、1300℃での4点曲げ試験による接合強度は、室温と比較して1.5倍に向上することを示している。その原因として、破断が生じた黒鉛部分の強度が、高温下で増加するためであると考察している。さらに両者の接合は、SPSによる圧力下で黒鉛板の開気孔内に一部のSiC粉体が挿入され、黒鉛板表面のSiCと焼結するためであると考察している。

5)黒鉛板表面に、mmオーダの厚みのW層を接合するための調査をしている。その結果、SiC粉体を両者の中間層とした場合、約1mm厚のW層を接合できることを示している。その接合は、SiCとW間では生成した反応相を介した化学的な結合によること、さらにSiCと黒鉛板間では、SPSの高圧処理により黒鉛板の開気孔内に挿入されたSiC粉体が、黒鉛板表面のSiCと焼結することにより生じると考察している。

6)黒鉛と高融点材料の接合体の応用において重要な、大型品作製の可能性を調査している。その結果、焼結条件の最適化などにより、直径60mm、厚さ6mmの円盤状接合体の作製に成功している。

以上のように本論文では、黒鉛の持つ特性向上とその応用展開に資するために、SPSにより黒鉛と高融点材料の接合を試みている。その結果、AlN, SiC, Wとの良好な接合を実現するとともに、その接合機構について基礎的な知見を得ており、材料工学の発展に寄与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。