

Title	Synthesis, Sintering and Characterization of High-Temperature/Performance silicon Nitride Based Ceramics
Author(s)	曾, 建任
Citation	
Issue Date	
oaire:version	
URL	https://hdl.handle.net/11094/37880
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、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	曾 建 任
博士の専攻分野の学位記番号	博士（工学） 第 10265 号
学位授与年月日	平成 4 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科 プロセス工学専攻
学位論文名	Synthesis, Sintering and Characterization of High-Temperature/Performance Silicon Nitride Based Ceramics (高温高性能窒化珪素系セラミックスの合成、焼結と評価)
論文審査委員	(主査) 教授 新原 皓一 (副査) 教授 柳田 祥三 教授 横山 正明 教授 城田 靖彦 教授 高椋 節夫

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、高温高性能窒化珪素系セラミックスの開発に関して、原料粉末の合成から焼結体の高温特性の評価までの一連の基礎研究を行い、その成果をまとめたものであり、6章より構成されている。

第1章では、本研究の背景と目的について述べた。

第2章では、実験方法について述べた。

第3章では、窒化珪素-炭化珪素 (SiC) とサイアロン ($\text{Si}_{6-z}\text{Al}_z\text{O}_z\text{N}_{8-z}$; $z = 0 \sim 4.2$) の燃焼合成及びHIP焼結について述べた。燃焼反応により8~46wt%炭化珪素を含む窒化珪素-炭化珪素複合粉末と0.3~0.6のz値をもつサイアロン粉末を合成した。炭化珪素の複合化により合成の収率、さらに焼結体の高温硬度と高温強度が向上した。窒化アルミニウムを添加することにより、焼結体の粒界に存在する酸素不純物を窒化珪素格子内に取り込むサイアロンを合成することと粒界相を減らすことができた。

第4章では、窒化珪素-シリカのHIP焼結について述べた。窒化珪素に存在する最も基本的な不純物である酸素の役割を検討した。シリカの添加により、窒化珪素の緻密化が促進され、 $\alpha - \beta$ 相転移が阻害されることを見つけた。前者ではシリカの粘性流動が主因であり、後者では窒化珪素のシリカ中における拡散が律速であると解釈した。また、シリカを10wt%添加しても、1400℃でも窒化珪素の強度は劣化しないという事実を見いだした。組織観察と古典核生成理論に基づいて、この挙動は、シリカの空洞の核生成しきい値が非常に高く、しかもシリカの量にほとんど依存しないことに起因することを明らかにした。

第5章では、不連続液体における空洞核生成について述べた。粒界ガラス相中での空洞の核生成にお

ける不純物の挙動について検討した結果、既存の理論とは違い、不純物による構造欠陥を核生成サイトとして扱い、不純物の効果を簡単に計算できるモデルを提出した。このモデルによれば、ごく僅かな不純物でもシリカの空洞核生成しきい値が大きく減少することが予測され、実験結果とよく対応していた。また、この研究で初めて、粒界ガラスの物性から窒化珪素の高温寿命の予測が可能であることを示した。第6章では、本研究で得られた新しい知見を要約した。

論文審査の結果の要旨

窒化珪素系セラミックスは、ガスタービンエンジンなどに用いられる耐熱構造材料として注目されているが、その機械的性質は合成方法、焼結方法および粒界第二相の特性などに強く依存する。本論文は、窒化珪素の焼結特性および高温特性に及ぼす諸因子、特に酸素不純物の影響を明らかにし、高温でも高性能の窒化珪素系セラミックスを開発することを目的に行った研究をまとめたもので、得られた主な成果は次のとおりである。

- (1) 燃焼合成の際、炭素または窒化アルミニウムを添加することにより、窒化珪素-炭化珪素複合粉末およびサイアロン粉末が合成できることを見だし、炭化珪素の複合化により複合粉末の合成収率、さらに焼結体の高温硬度と高温強度が向上することを示している。さらに窒化アルミニウムを添加することによって、焼結体の粒界に存在する酸素不純物を窒化珪素格子に取り込み、高温の機械的性質の低下をもたらす粒界相を減らすことに成功している。
- (2) シリカの添加により、窒化珪素の緻密化が促進され、 $\alpha-\beta$ 相転移が阻害されることを見だし、前者はシリカの粘性流動が主因であり、後者はこの相転移が窒化珪素のシリカ中における拡散に律速されることに起因することを明らかにしている。また、窒化珪素の高温強度に悪影響を与えるとされているシリカを10wt%添加しても、窒化珪素の強度は1400℃の高温でも劣化しないことを見だしている。組織観察と古典核生成理論に基づいて、この挙動は、シリカの空洞の核生成しきい値が非常に高く、しかもシリカの量にほとんど依存しないことに起因することを明らかにしている。さらに、開発された窒化珪素/シリカセラミックスは、経済性に優れた高性能の高温構造材料であることを明らかにしている。
- (3) 既存の理論とは異なり、不純物による構造欠陥を核生成サイトとして扱う新しい空洞核生成モデルを提出し、このモデルを用いて、窒化珪素の粒界相であるシリカの空洞核生成しきい値に及ぼす各種不純物の影響を定量的に評価し、その有効性を示している。また、この研究で世界で初めて、粒界ガラス相の物性値から窒化珪素の高温遅れ破壊強度の予測が可能であることを見だしている。

以上のように、本論文は、高温高性能窒化珪素セラミックスの開発に関する多くの有用な知見を見だしており、セラミックス材料工学の今後の発展に寄与するところが大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。