

氏 名	李 在 光
学位(専攻分野)	博 士 (エネルギー科学)
学 位 記 番 号	エ ネ 博 第 109 号
学位授与の日付	平 成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	エ ネ ル ギ ー 科 学 研 究 科 エ ネ ル ギ ー 応 用 科 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	液相焼結法による SiC/SiC 複合材料の製作と接合に関する研究

論文調査委員	(主 査) 教 授 香 山 晃 教 授 山 寄 鉄 夫 教 授 木 村 晃 彦
--------	--

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、炭化珪素 (SiC) セラミック繊維と SiC ナノ粒子を用いる革新的なセラミック繊維強化セラミック複合材料 (以下 SiC/SiC) の開発と接合法の開発をプロセス開発を基本として研究した結果をまとめたものであり、7章からなっている。

第1章は序論であり、セラミック繊維強化によりセラミック本来の脆さを克服しようとする努力について述べ本研究の背景と目的を記述している。セラミック複合材料、なかでも SiC/SiC の航空宇宙分野、先進ガスタービン、第4世代原子炉、先進核融合炉等の利用を目指した、超極限環境用材料開発では画期的な進展がみられており、実用化を視野に入れた成形法、接合法および被覆法開発を材料開発の進行と同期させて進めることの重要性を述べている。

第2章では安定供給が確保されている SiC ナノ粒子の特性評価法について述べ、SiC や SiC/SiC の製造プロセス検討における重要な材料パラメーターとして X 線回折法 (XRD) による結晶子直径の導出、フーリエ変換赤外線分光法 (FT-IR)・X 線光電子分光法 (XPS) による粒子表面の化学組成の分析、電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) による一次粒子の粒度分布と凝集状態の解析等の結果をまとめている。調査した SiC ナノ粒子は4つのタイプに大別できると結論し、それぞれのタイプの特徴とプロセス設計上での留意点について関係を述べている。

第3章では代表的な4つのタイプの SiC ナノ粒子と酸化物系焼結助剤を混合し液相焼結法 (LPS) により供試材を作製した結果について述べ、焼結体の形成過程や代表的な物性値に及ぼす SiC ナノ粒子特性の影響を整理し、プロセス設計の基礎を提供している。供試材の密度・曲げ強度・弾性定数のデータベースの整備を行い、供試材の表面観察や破断面観察によりマクロ組織と物性値との相関についても論じている。さらに、粒子表面や内部の遊離炭素や遊離シリカの状態を大気暴露や酸洗などの処理で制御し、粒子表面組成と焼結体の物性との相関についても述べている。これらの成果に基づき、助剤の種類や配合の最適化を行い焼結体の物性値を大幅に改善することに成功している。

第4章では第2と第3章の結果に基づき、SiC/SiC を作製し、評価している。本研究では複合材料の製造と接合法における柔軟性を実現させるため液相焼結法 (LPS) とポリマ含浸焼成法 (PIP) との複合プロセス (LPS+PIP) について検討しており、優れた高温強度を有する SiC 繊維 (チラノ SA) を強化繊維とし、ポリカルボシラン (PCS) をセラミックス前駆体として用いている。LPS+PIP 法ではプロセス条件の最適化により LPS 法よりも低温かつ低圧条件下でも高性能な SiC/SiC を作製できることを示し、繊維被覆の損傷を最小に抑え、繊維束内の SiC マトリックス形成を促進させることが要件であることを示している。

第5章では SiC/SiC 同士、または SiC/SiC と異材との接合法を検討した結果について述べている。第4章の成果を基礎とし、LPS 法・PIP 法での接合継ぎ手の作製を行い、突合せ継ぎ手と重ね継ぎ手の製造におけるプロセス条件の柔軟性を論じている。LPS 法を基礎とする場合には接合用助剤の配合、温度、時間、圧力などの接合条件を制御することで多様な接合継ぎ手形状や継ぎ手特性に対応することが可能であることを示しており、PIP 法を基礎とする場合には SR350 樹脂の

みを使用する条件と PCS 樹脂にナノ粒子を充填する条件での検討より比較的容易に接合継ぎ手は作製できる事、PIP 法では後者での条件最適化により高性能の継ぎ手が出来ることを示している。

第6章はプロセス最適化の成果に基づき作製した接合材を用いて行った接合強度評価法の検討と、評価結果について述べている。接合強度評価法として微小試験片を用いるせん断試験法、非対称4点曲げ試験、引張試験を提案し、強度評価の出来ることを示しており、SiC/SiCの突合せ継ぎ手において初めて引張試験による継ぎ手強度特性評価に成功している。

第7章は総括であり、SiC ナノ粒子の特性を活用した SiC 単体や SiC/SiC の作製において用途に応じたプロセス設計の柔軟性が得られることを示している。さらに、これらの知識の接合法への応用により、異材継ぎ手を含む多様な接合継ぎ手形状において高性能な継ぎ手を製作できることを示しており、高性能 SiC/SiC を用いる構造体の製造技術の実現の可能性をはじめて示すことに成功している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、高温・中性子照射等の苛酷環境下での使用を想定した炭化珪素系長繊維強化型炭化珪素基複合材料（以下 SiC/SiC）の作製法及び接合法の開発に関して研究した成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

SiC ナノ粒子は同種の β -SiC 微粒子であっても製造条件に起因する結晶子の大きさ、粒子表面の化学組成、一次粒子の粒度分布と凝集状態等によって4つのタイプに大別できることを示した。また、それぞれのタイプの特徴とプロセス設計上での留意点を述べ、SiC/SiC の作製や接合の際の SiC ナノ粒子の選択の重要性を示している。代表的な4つのタイプの SiC ナノ粒子と酸化物系焼結助剤を混合し液相焼結法（LPS）により供試材を作製し、プロセス設計の基礎を提供した事が特記される。

粒子表面や内部の遊離炭素・遊離シリカの状態を大気暴露や酸洗などの処理で制御し、粒子表面組成と焼結体の物性との相関について説明した。これらの成果に基づき、助剤の種類や配合の最適化を行い焼結体の物性値を大幅に改善することに成功した。さらに、優れた高温強度を有する SiC 繊維（チラノ SA）を強化繊維、ポリカルボシラン（PCS）をセラミックス前駆体として用いて液相焼結法（LPS）とポリマ含浸焼成法（PIP）との複合プロセス（LPS+PIP）について検討して SiC/SiC 複合材料を作製し、プロセス条件の最適化により LPS 法よりも低温かつ低压条件下でも高性能な SiC/SiC を作製できることを示した。繊維被覆の損傷を最小に抑さえ、繊維束内部での SiC マトリックス形成を促進させたことが改善の機構である。

LPS 法・PIP 法での接合継ぎ手の作製を行い、LPS 法を基礎として多様な接合継ぎ手形状や継ぎ手特性に対応させ、SiC/SiC の接合及び異材との接合に成功した。接合条件を最適化して接合層の厚さを平均 $3.5\mu\text{m}$ 以下に抑え、既往の研究では実現できなかった優れた接合層を持つ接合材を作製した。その接合材について接合面に垂直な方向の引張および接合面に平行な荷重によるせん断と曲げを用いて接合強度評価を行った。特に引張による SiC/SiC の接合強度評価はこれまで定量的な評価が行われておらず、本研究独自の成果である。本研究の試験結果は加圧焼結による接合法の有用性を示すもので、一連の強度評価試験からプロセス技術としての成立性を示した。

以上、要するに本論文は超耐環境性構造材料としての SiC/SiC の開発において炭化珪素ナノ粒子の基本特性制御から接合材の評価にいたる幅広い領域で材料科学としての理解や技術の体系化に貢献した。よって、本論文は博士（エネルギー科学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成17年2月16日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。