

低熱膨張・高強度複合セラミックスの製造

Fabrication of Ceramic Composites
with Low Thermal Expansion
and High Strength

甲66

1997

島田忠

氏 名(本 籍)	島 田 忠 (三重県)
学 位 の 種 類	博 士 (工学)
学 位 記 番 号	甲 第 66 号
学位授与年月日	平成 9 年 3 月 25 日
専 攻	物質工学専攻
学 位 論 文 題 目	低熱膨脹・高強度複合セラミックスの製造 (Fabrication of Ceramic Composites with Low Thermal Expansion and High Strength)
学位論文審査委員	(主査) 教授 塗 師 幸 夫 (副査) 教授 小 野 晃 明 教授 高 橋 康 隆 教授 橋 場 稔 助教授 大 矢 豊

論文内容の要旨

低熱膨脹セラミックスのうち、セラミックス母体内部に微細亀裂を持ちそれによって低熱膨脹を示す材料はその微細亀裂ゆえに低強度である。低熱膨脹であると同時に強度も高い材料を製造することが可能か、そしてそのための製造工程にはどのような工程因子が重要かが解明できれば、より機能性の高いファインセラミックスの製造材料の工業的応用範囲を拓けるのに有意義である。

本研究では第1章において、母体内に微細亀裂を有し、これが低膨脹の原因となっている素材における膨脹係数の低膨脹化および強度の向上に関する理論的背景について述べている。そして、Hasselmannの理論から出発して、耐熱衝撃温度差 ΔT は工程因子の変化により亀裂総体積に比例して変化し、大矢らの理論との一致を示した。また、耐熱衝撃性は亀裂総体積以外に、最終亀裂長、亀裂生成前後における平均の膨脹係数の比、粒径、加熱処理温度と亀裂発生温度との温度差などの影響を受けることを指摘した。

第2章では微細亀裂を含む系では見掛け上破壊表面エネルギーを大きくする働きをしており、破壊力学にもとづく定量的関係の成立を示した。ついで第3～5章においては部分安定化ジルコニアあるいはムライトをマトリックスとし、 β -ユークリプタイトあるいは、チタン酸アルミニウムを低熱膨脹化材とする複合セラミックスの製造を試み、熱膨脹率および強度を同時に向上させるための製造工程因子との関係を研究した。

第3章においては部分安定化ジルコニアをマトリックスとし、 β -ユークリプタイトを低熱膨脹化材料とした複合セラミックスを、混合比率、粉体原料の粉碎および混合時間、加熱温

度を工程因子として製造方法を検討した。その結果、熱膨張率 $1 \times 10^{-6}/K$ 以下、強度200MPaの低膨張・高強度複合セラミックスを実現した。また、微細構造上のマトリックスと低熱膨張の分散粒子の混合比率およびミリング時間が工程上の重要因子であることを明らかにした。また、本系では用いた β -ユークリプタイトの安定性を保持する必要があった。

第4章では同じく部分安定化ジルコニアをマトリックスとしチタン酸アルミニウムを低熱膨張化材とする複合セラミックスの製造を検討した。本系では部分安定化ジルコニアおよびチタン酸アルミニウムの混合比率ならびに加熱温度が製造上の最も重要な工程因子で、また、加熱の際副生成物のチタン酸ジルコニウムが製造条件に大きな影響を与えた。熱膨張率 $2 \times 10^{-6}/K$ 以下、強度400MPaの複合材料の製造を可能にした。

第5章ではマトリックスをムライト、チタン酸アルミニウムを低熱膨張化材とした複合材料の製造を試みた。ジルコニア-チタン酸アルミニウム系同様ムライトとチタン酸アルミニウムの混合比率および加熱温度が重要工程因子であることを明らかにし、熱膨張率 $3 \times 10^{-6}/K$ 以下、強度100MPaを達成した。

第6章では第2～5章で得られた低熱膨張、かつ高強度な複合セラミックスの製造工程因子と系内に生じた微細亀裂の総体積を支配している微細亀裂の数 N と亀裂の大きさ L の関係を第1章の理論により考察し、亀裂の数 N を工程因子と関係づけることが重要であると結論している。

論文審査の結果の要旨

低熱膨張セラミックスのうち、セラミックス母体内部に微細亀裂を持ちそれによって低熱膨張を示す材料はその微細亀裂ゆえに低強度である。低熱膨張であると同時に強度も高い材料を製造することが可能か、そしてそのための製造工程にはどのような工程因子が重要かが解明できれば、より機能性の高いファインセラミックスの製造材料の工業的応用範囲を広げるのに有意義である。

本研究では第1章において、母体内に微細亀裂を有し、これが低膨張の原因となっている素材における膨張係数の低膨張化および強度の向上に関する理論的背景について述べている。そして、Hasselmanの理論から出発して、耐熱衝撃温度差 ΔT は工程因子の変化により亀裂総体積に比例して変化し、大矢らの理論との一致を示した。また、耐熱衝撃性は亀裂総体積以外に、最終亀裂長、亀裂生成前後における平均の膨張係数の比、粒径、加熱処理温度と亀裂発生温度との温度差などの影響を受けることを指摘した。

第2章では微細亀裂を含む系では見掛け上破壊表面エネルギーを大きくする働きをしており、破壊力学にもとづく定量的関係の成立を示した。ついで第3～5章においては部分安定化ジルコニアあるいはムライトをマトリックスとし、 β -ユークリプタイトあるいは、チタン酸アルミニウムを低熱膨張化材とする複合セラミックスの製造を試み、熱膨張率および強度を同時に向上させるための製造工程因子との関係を研究した。

第3章においては部分安定化ジルコニアをマトリックスとし、 β -ユークリプタイトを低熱膨張化材料とした複合セラミックスを、混合比率、粉体原料の粉碎および混合時間、加熱温度を工程因子として製造方法を検討した。その結果、熱膨張率 $1 \times 10^{-6}/\text{K}$ 以下、強度200MPaの低膨張・高強度複合セラミックスを実現した。また、微細構造上のマトリックスと低熱膨張の分散粒子の混合比率およびミリング時間が工程上の重要因子であることを明らかにした。また、本系では用いた β -ユークリプタイトの安定性を保持する必要があった。

第4章では同じく部分安定化ジルコニアをマトリックスとしチタン酸アルミニウムを低熱膨張化材とする複合セラミックスの製造を検討した。本系では部分安定化ジルコニアおよびチタン酸アルミニウムの混合比率ならびに加熱温度が製造上の最も重要な工程因子で、また、加熱の際副生成物のチタン酸ジルコニウムが製造条件に大きな影響を与えた。熱膨張率 $2 \times 10^{-6}/\text{K}$ 以下、強度400MPaの複合材料の製造を可能にした。

第5章ではマトリックスをムライト、チタン酸アルミニウムを低熱膨張化材とした複合材料の製造を試みた。ジルコニア-チタン酸アルミニウム系同様ムライトとチタン酸アルミニウムの混合比率および加熱温度が重要工程因子であることを明らかにし、熱膨張率 $3 \times 10^{-6}/\text{K}$ 以下、強度100MPaを達成した。

第6章では第2～5章で得られた低熱膨張、かつ高強度な複合セラミックスの製造工程因子と系内に生じた微細亀裂の総体積を支配している微細亀裂の数 N と亀裂の大きさ L の関係を第1章の理論により考察し、亀裂の数 N を工程因子と関係づけることが重要であると結論している。