

学位論文の要旨

氏 名

シャリフ ムハマド アクタール

学位論文題目

熱分解法によるセラミック基複合材料の製造と特性評価に関する研究

本論文では熱分解法によってセラミック基複合材料を作成し、それらの物理的・機械的特性を評価した。

第1章は、序論である。セラミック材料の特性、フェノールの樹脂の熱分解による β -SiCの開発および酸化ジルコニア・ベースのセラミックスの硬化メカニズムについて述べた。また本研究の主な目的であるセラミック基複合材料の製作方法についても示した。

第2章では、ユニークな多孔質構造を持った多孔質セラミック基複合材料を得るためのプリフォームの作成について調べた。フェノール樹脂、Si粉末および ZrO_2 ナノ粉末を混合し、真空中、850°Cで熱分解した。乾式混合法は湿式混合法より ZrO_2 粒子の凝集が起こりやすく、また直径 $10\mu m$ ～数 $100\mu m$ の空洞が形成され、曲げ強さは約14MPaになった。一方、エタノールによる湿式混合法では、直径 $0.8\mu m$ ～ $10\mu m$ の空洞が形成され、 ZrO_2 粒子も均一に分布した。この方法による曲げ強さは、56MPaであった。

第3章では、フェノール樹脂/Si粉末/ ZrO_2 粉末を850°Cで熱分解したのち、Arガス中、50MPaの条件下1200°C、1300°Cおよび1350°Cで10分間HIP処理し、得られた多孔質複合材料の特性を詳細に調べた。HIPによって熱分解で得られたプリフォームの密度は高くなり ($3.28 \sim 3.48g/cm^3$)、空洞は約50%減少した。1350°CでのHIPにおいては、X線回折により β -SiCの形成が確認され、また走査型電子顕微鏡観察においてもファセットを伴う β -SiC結晶の成長が観察された。 β -SiCの形成および成長は、マトリックスの密度を増加させ、ビッカース硬さを増加させた (最大: 13.99GPa)。

第4章では、 β -SiCの形成を調べた。ノボラック-タイプフェノール樹脂とSi粉末を混合し、真空中、850°Cで熱分解したのち、Arガス中、50MPaの条件下1300°C、1350°Cおよび1400°Cで10分間HIP処理した。 β -SiCの核はガスSiOとCO分子の反応によって形成され、その後ファセットの成長で β -SiCの結晶が形成されること、1400°Cでは β -SiCウィスカーも形成されることが明らかになった。HIPによる β -SiCの形成および成長によって密度は増加し、ビッカース硬さの増加につながった。

第5章では、 β -SiCの形成に及ぼすプリフォームの影響について検討した。プリフォームは、フェノール樹脂とSi粉末の混合物を真空中、650°Cと750°Cで熱分解して作製した。その後、1400°CでHIP処理した。750°Cで熱分解した方が650°C熱分解より β -SiCの結晶化率が高いという結果が得られた。これは、高温では炭化と多孔質化が促進されることによると考えられる。

第6章では、多量（70、80および90mass%）の部分安定化ZrO₂（TZ-3YS）粉末、Si粉末およびフェノール樹脂を混合し、熱分解した後にHIP処理して得られた多孔質複合材料の特性について調べた。X線回折により、Siの融点より低い温度でも β -SiCの形成が確認された。走査型電子顕微鏡では、数 μ mの球孔がマトリックスに一様に分布することが観察された。90 mass% TZ-3YSを用いた場合、5.49g/cm³の密度および13.78GPaのビッカース硬さが得られた。

第7章では、TZ-3YS基複合材料の硬さと破壊靱性に及ぼす β -SiCの影響について調べた。本研究においては、密度5.75g/cm³（TZ-3YS：6.05 g/cm³の95%）、ビッカース硬さ29.63GPa（SiC：28GPaより若干高い、TZ-3YS：10-12GPaの3倍高い）、破壊靱性10.60MPa m^{1/2}（TZ-3YS：8MPa m^{1/2}より高い）のものが得られた。X線回折と走査型電子顕微鏡観察結果によると、破壊靱性の向上は、t-ZrO₂からm-ZrO₂への相変態だけでなく、高いヤング率を有する β -SiCが分散することによるクラック抑制効果によるためと考えられる。

第8章では全ての研究の成果を総括した。

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第280号	氏名	シャリフ ムハマド アクタール
審査委員	主査	末吉 秀一	
	副査	戸谷 真之	鮫島 宗一郎
		中村 祐三	
学位論文題目	Studies on the Fabrication and Characterization of Ceramic Matrix Composites via Pyrolysis Route (熱分解法によるセラミック基複合材料の製造と特性評価に関する研究)		
審査要旨	<p>提出された学位論文及び論文目録等を基に学位論文審査を実施した。本論文は、熱分解法によるセラミック基複合材料の製造と特性評価についてまとめたもので、全文8章より構成されている。</p> <p>第1章は序論であり、セラミック基複合材料に関する従来の研究とその問題点および本研究の意義、目的を述べている。</p> <p>第2章では、多孔質構造を有するセラミック基複合材料を得るためのプリフォームの生成方法について調べた。原材料としてフェノール樹脂、Si 粉末及び ZrO₂ 粉末を用い、それらの配合比率、混合法（湿式および乾式）の影響について調べ、これらの条件によって空洞の大きさや素地組織が異なることを明らかにした。</p> <p>第3章では、第2章で得られたプリフォームを熱間等方圧加圧焼結（HIP）して得られた複合材料の微細構造と機械的性質について調べ、素地にはβ-SiCが形成されること、それに伴って素地の密度および硬さは増加することを明らかにした。</p> <p>第4章では、フェノール樹脂と Si 粉末の混合粉末を熱分解させることによって、β-SiC の生成機構を調べ、1350 °CではSiO₂ガスとCOガスの反応によってβ-SiCの核が生成され、その後のファセットの成長で大きな結晶に成長すること、1400 °Cを超えるとβ-SiCのウィスカーも形成されることを明らかにした。</p> <p>第5章では、β-SiCの生成に及ぼすプリフォーム条件の影響について調べ、750 °Cでプリフォームを行うと、β-SiCの結晶化が促進されること、これにはフェノール樹脂の熱分解が大きく関与していることを明らかにした。</p> <p>第6章では、多量の部分安定化ZrO₂粉末、フェノール樹脂およびSi粉末の熱分解複合化について調べ、数μmの球状空孔が均一に分散した複合材料が得られることを明らかにした。</p> <p>第7章では、部分安定化ZrO₂基複合材料の硬さと破壊靱性に及ぼすβ-SiCの影響について調べ、β-SiCの分散は硬さや破壊靱性を増大させること、これにはZrO₂の相変態およびβ-SiCのき裂伝播抑制効果が関係していることを明らかにした。</p> <p>第8章は総括である。</p> <p>以上本論文は、熱分解法によるセラミック基複合材料のプロセッシングおよび得られた複合材料の特性におよぼす諸因子の影響について明らかにしており、廃棄プラスチックを利用した新しいセラミック基複合材料の開発に対し、工学上有用な指針を提供している。</p> <p>よって、審査委員会は博士（工学）の学位論文として合格と判定した。</p>		

最終試験結果の要旨

報告番号	理工研 第280号	氏名	シャリフ ムハマド アクタール
審査委員	主査	末吉 秀一	
	副査	戸谷 真之	鮫島 宗一郎
		中村 祐三	

平成20年2月4日に行われた論文発表会において、学位論文の内容について質疑応答を行った。以下に質疑応答の主なものを示す。

- 「多孔質セラミックにおけるポロシティの役割はどのように考えているか？ その影響はポロシティのサイズによって異なるのか」
答：ポロシティの存在は、固体/液体/気体の分離ができること、熱伝導を妨げる効果があること、音や振動を減衰させること、材料が軽くなること等、さまざまな効果が期待できる。目的に応じてポロシティの比率および大きさを適切にコントロールする必要がある。また、強度を重視する場合、ポロシティは小さく、かつ量も少なくすることが重要である。
- 「複合材料中に SiC が生成されているが、そのメカニズムはどのように考えているか」
答：フェノール樹脂を熱分解すると H₂、CO₂、CH₄、H₂O、C、CO 等のガスが発生する。この中の CO ガスと SiO ガスが反応して SiC が核生成され、その後ファセットの成長に伴って大きな結晶になる。温度が高い場合、ウィスカーも生成される。
- 「フェノール樹脂を熱分解しなくても CO ガスと SiO ガスさえあれば SiC ができるのか」
答：実験していないのでわからないが、できる可能性はある。ただ、熱分解で発生した他のガス成分が何らかの影響を及ぼしていることも考えられるので、これについてはもっと詳細な検討が必要と考える。
- 「部分安定化 ZrO₂ 基複合材料の硬さと破壊靱性は高いが、強度はどうか。ポアサイズはいくらか」
答：強度試験は行っていないので明言できないが、強度も高いと予想される。その根拠は、破壊靱性が高いので、欠陥サイズが大きくなれば強度も高くなると考えられるからである。この複合材料のポアサイズは ESEM による観察結果によるとナノオーダーであった。したがって、この複合材料は、硬さや破壊靱性が高いだけでなく、強度も高いと考えられる。
- 「HIP 後のカプセルになぜ電解研磨を施したのか」
答：セラミックは機械的な切断、研磨を行うと損傷を受けやすい。このような加工過程での損傷は材料の機械的性質にも影響を及ぼすので、できるだけ損傷を少なくする方法として機械的力を受けない化学的研磨法を採用した。
- 「このような熱分解法で作成したセラミック基複合材料の適用分野は」
答：多孔質材料としてはフィルター、液体/気体セパレーター、バイオマテリアル、断熱・耐熱材料、センサー等に利用できる。また、高い硬さおよび破壊靱性を有する材料は、構造部材の軽量化に寄与できる。

その他多くの質疑応答が行われたが、いずれに対しても明瞭かつ適切な回答がなされた。

以上の結果から、4名の審査委員は、申請者が大学院博士後期課程の修了者として十分な学力ならびに見識を有するものと認め、博士（工学）の学位を与えるに足る資格を有するものと認定した。