

## パルス通電焼結による助剤を用いない SiC の緻密化

チュー フェミン

# Densification of SiC without Additives by Pulse Electric Current Sintering Method

by Chu Fengmin

SiC は化合物として非常に安定で、耐熱・構造用セラミックスのみならず、高温電熱材料、電子材料、先端複合材料等、様々な分野で注目され、本材料の基礎、応用に関する研究が活発である。最近では、自動車用ディーゼルエンジンから排出される微粒子対策として、SiC 製フィルターの開発が注目されている。

SiC は難焼結材料として知られ、工業的には焼結を促進する目的で、ボロンや炭素などが添加されている。この焼結助剤添加で、高温での性能低下をきたす。このため、本来の SiC の特性を発揮させる目的で、助剤を用いない焼結が要望されている。

本論文では、パルス通電焼結法を適用して、焼結助剤を用いない方法で緻密な SiC の焼結体を作製するための条件指針を確立することを目的とした。特に①パルス通電焼結時の焼結条件因子である通電周波数、②材料因子である SiC の粒度、さらには、③焼結時に SiC 粒子間で Si と C を反応させる方法に着目した。このような観点から、緻密な焼結体を作製するための条件選定の指針を確立するとともに、SiC の焼結機構を明らかにするため、焼結体の粒界を高分解能電子顕微鏡観察を行った。

本論文は 1 章から 6 章までの構成となっている。以下にその構成について述べる。

第 1 章では、本研究の背景、目的、構成について述べる。

第 2 章では、パルス通電焼結時の通電周波数の SiC 焼結体への影響を、相対密度、曲げ強さ、破面観察

等から検討した。0.34, 2.4, 30  $\mu\text{m}$  の 3 種類の粒子径の SiC 粉末を用いて、周波数 0, 10, 40kHz, 焼結温度 1600 ~ 1800 $^{\circ}\text{C}$ , 加圧力 50MPa, 助剤を添加しないで、焼結体を作製した。

その結果、周波数の SiC 焼結体への影響は、相対密度、曲げ強さ、破面観察等から見られなかった。焼結体の場所による相対密度分布から、中心部の相対密度により試料端部の相対密度が高い。つまり、カーボンダイス、パンチに接する箇所の密度が高い。この結果は、焼結電流が電気抵抗の低いカーボン部品を選択的に流れ、そして発熱したカーボンで SiC 焼結体が加熱され、焼結体の外周部から焼結が進む。このように電気抵抗の大きな SiC には電気が流れないことが、通電周波数の影響が現れにくい原因となったと考えられる。SiC 焼結体の最高相対密度は 77%であった。

第 3 章では、SiC の粒子径が SiC 焼結体への影響を、相対密度、曲げ強さ、破面観察等から検討した。5 種類の粒子径の SiC 粉末を、焼結温度 1600 ~ 1800 $^{\circ}\text{C}$ , 助剤を添加しないで、パルス通電焼結装置を用いて焼結体を作製した。

その結果、焼結体の相対密度、曲げ強さの結果から、粒子径が減少すると、曲げ強さが増加した。0.34  $\mu\text{m}$  の 1700 $^{\circ}\text{C}$  での焼結体で、最大値 (330MPa) が得られた。粒子径が小さい方が、相対密度が大きくなり、緻密化が進む。最高相対密度 77% が得られた。0.34  $\mu\text{m}$  SiC 粉末を 1700 $^{\circ}\text{C}$  以上で焼結した際には、SiC の粒成長が発生した。いずれの粒度の焼結体も曲げ

試験では、SiC粒内で破壊が発生し、SiCの接触した箇所では強く接合していることが予想される。

第4章では、SiC粒子結合の機構を明確するため、粒界の高分解能電子顕微鏡観察を行った。第2章での周波数の影響を検討した焼結体、第3章での粒子径の影響を検討したSiC焼結体について、SiC粒界の微細構造と組成を検討した。

その結果、細かいSiC粒子 ( $0.34\mu\text{m}$ ) では、粒成長が観察された。粒度  $2.4\mu\text{m}$  SiC および  $30\mu\text{m}$  SiC の焼結体では、粒成長は見られず、EDS分析結果から粒界での炭素濃度が高く、炭素の偏析が見られた。この炭素は、SiCに含まれるフリー炭素、カーボン部品からの炭素と予想される。これらの炭素が粒界に偏析する事によって、SiCが焼結することが明らかとなった。

第5章では、反応焼結による焼結体の特性（相対密度、4点曲げ強さ等）と焼結条件（粒子径、SiとCの添加量、温度）との関係を明らかにし、パルス

通電焼結法による反応焼結の可能性とSiC緻密化を検討した。Si粉末とC樹脂をアセトン中で湿式混合したものをSiC粉末に0.9～28.5%変化させ添加し、焼結温度  $1400\sim 2000^\circ\text{C}$ 、パルス通電焼結法により、焼結体を作る。焼結体の相対密度と曲げ強さを測定した。

その結果、平均粒子径  $30\mu\text{m}$  の粉末は添加量を変化させても相対密度、曲げ強さの変化は見られない。粒子径  $2.4\mu\text{m}$  が小さい粉末では添加量が増加するほど、また、温度が高いほど相対密度と曲げ強さが高くなった。最高83%相対密度を得られた。X線回折の結果、通電時の電流変化から、Si粉末とC樹脂が反応してSiCとなり、また、反応熱により焼結体の中心部が加熱され緻密化している。

さらに、粒度の小さいSiCを用いて、Si粉末とC樹脂との反応によって相対密度がさらに向上する事が予想された。

第5章では、得られた結果の要約を述べる。