

126 ホットプレス法で作製した窒化ケイ素セラミックスの高温強度特性

帝京大学理工学部 ○森 要 田村信之 内山 晃 渡邊太一郎[院]

1 緒 言

前報では直接窒化法で作製した窒化ケイ素を粉砕した主剤を使用してホットプレス法で独自に作製した窒化ケイ素セラミックスの高温強度特性や高温強度信頼性に関する報告を行った¹⁾。

本研究では、主剤の粉末だけを変化させ、イミド熱分解法²⁾で作製した緻密な主剤を使用して、ホットプレス法でモノリシック窒化ケイ素を独自に作製した。その強度特性および強度信頼性に及ぼす試験温度と主剤の影響について報告する。また、市販のガス圧焼結窒化ケイ素の結果とも比較対照している。

2 モノリシック窒化ケイ素の作製と実験方法

図1は、独自に作製したモノリシック窒化ケイ素の製造プロセスのフローチャートである。昨年報告した主剤は、電気化学工業製窒化ケイ素粉末 (SN-9FW, α 化率 91%) であったが、本研究の主剤は、宇部興産製窒化ケイ素粉末 (SN-E10, α 化率 95%) である。図1に示すように、助剤、混合方法、成形方法、焼結条件等の製造プロセスはほぼ同一条件である。図2は焼結前のグリーン (白い豆腐のように見える) と焼結後の焼結体の例である。

作製した角型の焼結体から試験片の採取位置を把握しながらプレス方向が板厚方向になるように試験体采取了。標準の研削加工条件に従い³⁾、JIS1601 に準じた厚さ 3 ± 0.05 、幅 4 ± 0.05 、長さ 40 ± 0.5 mm (以下 JIS 試験片と呼ぶ) の試験片に仕上げた。強度評価面は試験片長手方向に #800 砥石で最終的に仕上げられている。負荷速度も JIS と同一の 0.5 mm/min で、室温強度は島津製オートグラフ (AG-5000B) を用

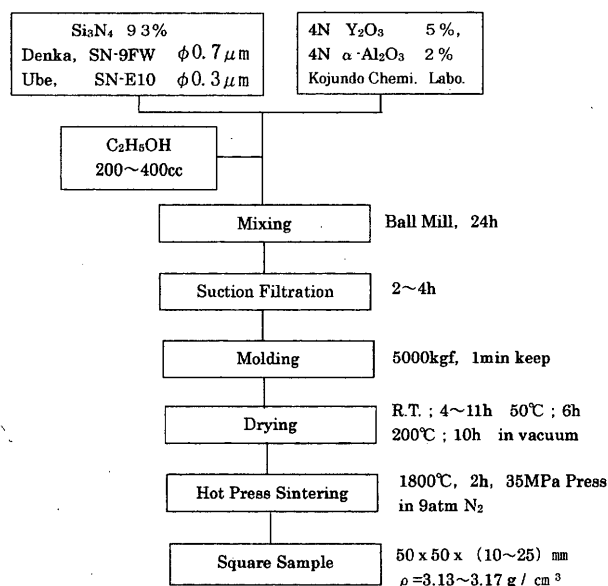


Fig.1 Fabrication process of monolithic silicon nitride.

い、高温強度は電気油圧サーボ式疲労試験機に高温炉を組み合わせた試験機で評価した。なお、詳細な焼結方法や試験片作製、高温強度評価方法については昨年の報告¹⁾に記述している。

3 強度特性評価結果および考察

図4は、昨年報告した電気化学工業製の主剤 (SN-9FW) の結果を再掲しており、強度信頼性に及ぼす試験温度の影響をワイブル確率紙にまとめている。図5は、宇部興産製の主剤 (SN-E10) を用いて作製した窒化ケイ素の結果である。窒化ケイ素開発の目標と比較の便宜のためにいずれも市販のガス圧焼結材の結果も示している。オープンマークは室温、ハーフソリッドマークが 1000°C 、ソリッドマークが 1200°C の結果を示している。製造プロセスはほぼ同一であるが、主剤の影響が明らかに認められ、宇部興産製の主剤を用いた

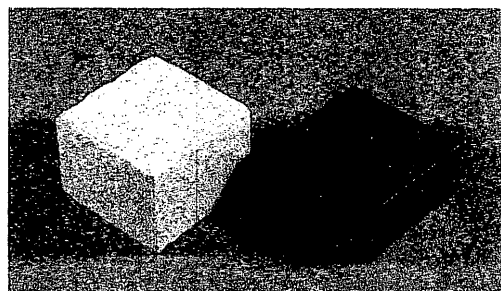


Fig.2 Green (left) and sample (right)

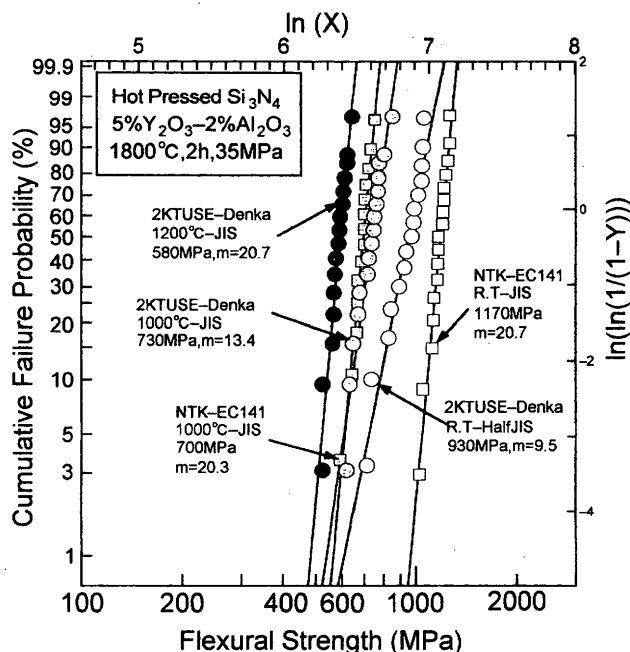


Fig.3 Effects of testing temperature on the flexural strength distribution of fabricated monolithic silicon nitride using the main powder of Denka SN-9FW.

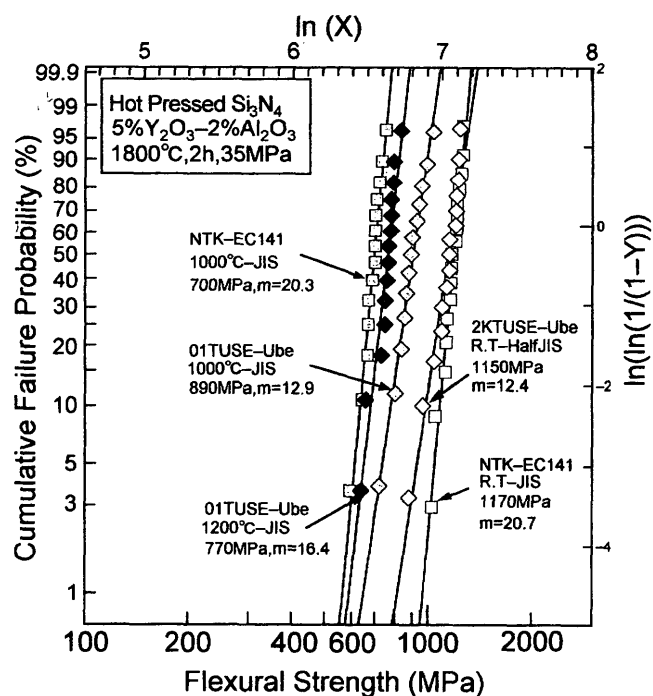


Fig. 4 Effects of testing temperature on the flexural strength distribution of fabricated monolithic silicon nitride using the main powder of Ube SN-E10.

本年の結果の方が室温から高温まで強度が著しく高い。

強度信頼性（ワイブル係数 m 値で評価する）は室温と1000°Cでは本年の宇部興産製の主剤の方が優れているか、ほぼ同等の結果であるが、1200°Cでは電気化学工業製の主剤の方が良い結果になっている。この研究の目標にしてきた市販のガス圧焼結材との比較では、本年の結果は、室温ではほぼ匹敵する結果であるが、1000°C、1200°Cの強度は明らかに著しく凌駕している。特に、1200°Cの強度は、市販のガス圧焼結材の1000°Cの結果より明らかに高い結果がえられた。強度信頼性に関しては室温から1200°Cまで市販のガス圧焼結材よりまだ少し劣っている。

この強度特性における主剤の大きな違いは、主剤の製造プロセス（宇部製；イミド熱分解法、電気化学工業製；直接窒化法）に由来する平均粒径、粒径分布、含まれる不純物量の違いによると考えている。強度は評価温度が高温度になるほど低下しているが、強度信頼性は逆に向上した結果が得られている。試験温度の上昇に伴って強度信頼性が向上する理由は、試験温度が高くなるに伴い主剤を繋ぎ留めている助剤が至る所で軟化し、強度評価面の欠陥が増加し、その結果強度が均一化するためと考えている。

図5は、縦軸に強度、横軸に試験温度を取って、両主剤の焼結体と市販のガス圧焼結材の結果を再整理した結果である。室温、1000°C、1200°Cは平均強度とデータの上下界だけを示し、800°Cと1300°Cの結果は試験した数が少ないので、そのまま生データを示して、試験温度の影響を見ている。1000°Cの試験温度での強度を比較すると、電気化学工業製

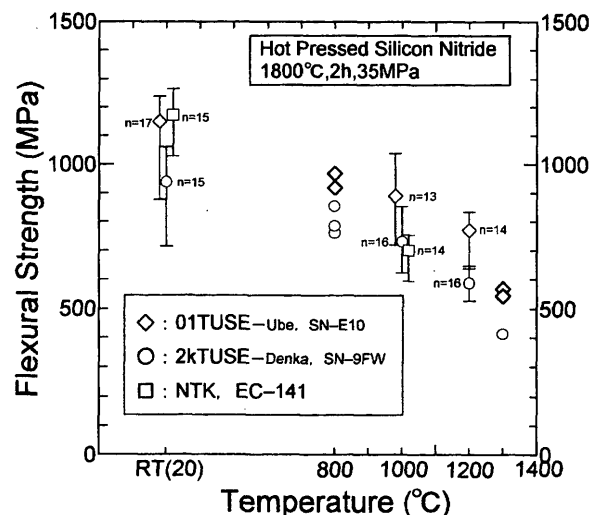


Fig.5 Effects of testing temperature on the flexural strength of fabricated monolithic silicon nitride.

の主剤を用いた焼結体と市販のガス圧焼結材の結果はほぼ等しい。宇部興産製の主剤を用いた焼結体の強度は明らかに200MPa程度高い。1200°Cでも宇部興産製の主剤を用いた焼結体の強度は約200MPa電気化学工業製の場合より高い。

1300°Cでは両主剤の強度は大きく低下するが、宇部興産製の主剤の場合はまだ500MPaの強度を保持している。なお、1300°Cの荷重変位線図には明瞭な非線形挙動が現れ、粒界部分のガラス質が軟化したことを確認したので、2本だけで試験を終了した。

5 結 言

宇部興産製の主剤（SN-E10）を用いて、独自に作製したホットプレス製窒化ケイ素について、その強度特性に及ぼす試験温度の影響を調べた。昨年度の結果と比較することで主剤の影響についても調べた。得られた結果を以下に要約する。

（1）強度、強度信頼性に及ぼす主剤の影響は著しい。イミド熱分解法で作製した主剤の方が直接窒化法の主剤より強度特性は優れている。

（2）強度特性に及ぼす試験温度の影響も顕著で、1200°Cを境にして高温側の強度の低下が著しい。一方、強度信頼性は試験温度の上昇に伴い向上する。

（3）高温強度特性が市販のガス圧焼結窒化ケイ素（NTK EC-141）を凌駕する窒化ケイ素焼結体がホットプレス法で作製できた。

なお、本研究は日本学術振興会、未来開拓学術振興事業研究プロジェクト「超強度・高信頼性・巨視融合技術」（97R1201）の助成の下で行った。また、帝京大学理工学部の青木 剛君には卒業研究として協力されたことを付記し、謝意を表します。
[参考文献] 1) 森 要、他5名、第51期材料学会学術講演会論文集、pp. 119-120、(2002)。2) 神徳泰彦，“新素材シリーズ 窒化珪素セラミックス”，宗宮重行・吉村昌弘・三友 護 共編、pp. 53-61、(1987)、内田老鶴圃。（以下省略）