

学位論文の審査結果の要旨

本学位論文では、優れた機械的性質を有する高純度で大型の炭化ケイ素（SiC）系のセラミックスを作製することを最終目的としている。カーボンナノチューブの一種であるカーボンナノファイバー（CNFs）と炭化ケイ素（SiC）粉末を、焼結助剤およびゲル化剤などともに混合しゲルキャスト法で、CNFs/SiC粉末成形体を作製し、それを常圧焼成して複合体とした。得られた複合体について、緻密化挙動、微構造変化、SiC-CNF界面反応および機械的性質について検討した。本研究は、申請者が所属する企業で製造しているSiCセラミックスが加工の際に、チッピングやかけなどの不良を発生させて大きな問題となっていることから始まったもので、工学的に大きな意義がある。

第1章では、研究の背景および既往の研究について説明し、課題と目的を明確にした。

第2章では、ゲルキャスト法によって、均一で高充填密度のCNFs/SiC粉末成形体を作製するための、CNFsとSiCの混合スラリーの調製条件を検討した。CNFsを酸化処理し、CNFsに対して分散剤を10wt% 添加し、スラリーのpHを11とすると、スラリーの粘性が低下し高分散状態になることを示した。また、スラリー中の固体濃度を75wt%とすると、スラリーは高粘性になるものの取扱が可能で、しかも高充填率の成形体を得られることを明らかにした。

第3章では、第2章で成形した1~3wt%-CNFs/SiC粉末成形体を常圧焼成して複合体とした。CNFsの添加により、SiCの粒成長が抑制され、粒子形状は板状から等軸状へ変化した。CNFsの添加量の増加に伴い破壊靱性は向上した。3wt%-CNFs/SiC複合体が最大の破壊靱性（ $5.0 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ ）を示し、SiC単体と比べ52%向上した。この向上は、SiCと密着したCNFsのブリッジング効果やプルアウト効果によるものとしている。CNFsとSiCが密着したのはCNFsとSiC粒子の間に部分的に化学結合を形成したためと考え、この界面反応について明らかにした。微構造の微細化と破壊靱性の向上によって精密加工プロセス中に発生するチッピングはほぼなくなった。

第4章では、CNFs とSiCの間の界面結合の強度を向上させるために、CNFsへのSiCコーティングを試みた。シリコン源としてSiO粉末、SiおよびSiO₂の混合粉末、SiO₂粉末を用い、アルゴン雰囲気中でCNFsとともに1600-1800℃で加熱すると、β-SiC粒子がCNFs表面に生成した。β-SiC粒子の生成量は、シリコン源としてSiO粉末を用い、1600℃で加熱した時に最も多くなった。また、CNFs表面のSiCコーティング量が増加すると、CNFsの欠陥量が増加し、pH=11の水溶液中での分散性が向上することを明らかにした。

第5章では、SiO₂粉末をシリコン源として得られたSiCコーティングCNFs を用いて、複合体を作製した。複合体中のSiC粒子およびカーボン凝集体はコーティングの調製温度が高くなるとともに小さくなった。SiCコーティングCNFsを用いた複合体の破壊靱性は $4.5\text{-}5.0 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ であり、SiCコーティングしてないCNFsを用いた複合体と同等であった。これはCNFsの欠陥がSiCをコーティングすることにより増加し、CNFsの強度劣化をもたらしたためと考察した。また、

1800°CでコーティングしたCNFsを用いた複合体の曲げ強度は551MPaで、最大となり、コーティングしていないCNFsを用いた複合体に比べ32%増加した。これは分散性が向上したSiCコーティングCNFsは複合体中に均一に分散混合し、破壊源となる大きな気孔や研磨キズを小さくしたためと考察した。

第6章では、常圧焼成して得られた複合体の緻密化挙動，微構造変化，SiC-CNF界面反応および機械的性質に関して明らかになった点を総括し、複合体の機械的性質の改善に関する展望を述べている。

以上の研究成果は、高純度化および大型化が進む半導体製造装置部材へのCNT複合SiCセラミックスの実用化に向けて、科学的小および工学的な点において有用な知見を与える。これらの内容は、博士学位論文として十分な価値を持つものと認めることができる。

公表主要論文名

- Guosheng Xu, Tomohiko Yamakami, Tomohiro Yamaguchi, Morinobu Endo, Seiichi Taruta, Isao Kubo, “Surface Modification of Carbon Nanofibers with SiC by Heating Different SiO Vapor Sources in Argon Atmosphere”, Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol.122, No.9, 822-828 (2014)
- Guosheng Xu, Tomohiko Yamakami, Tomohiro Yamaguchi, Morinobu Endo, Seiichi Taruta, Isao Kubo, “Pressureless Sintering of Carbon Nanofiber/SiC Composites and Their Properties”, International Journal of Applied Ceramic Technology, Vol.11, No.2, 280-288 (2014).