

氏名（本籍）	関根 崇（秋田県）
専攻分野の名称	博士（理工学）
学位記番号	理博甲第5号
学位授与の日付	令和 4年 3月 22日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	理工学研究科 総合理工学専攻
学位論文題目 （英文）	TiC/AlN 基バインダレス硬質セラミックスの合成とその機械的性質 (Synthesis of TiC/AlN-Based Binderless Hard Ceramics and Their Mechanical Properties)
論文審査委員	(主査) 教授 大口 健一 (副査) 教授 林 滋生 (副査) 教授 齋藤 嘉一 (副査) 准教授 仁野 章弘

論文内容の要旨

近年、宇宙航空機器や自動車等の輸送機器産業の発展に伴い、耐熱合金や鉄系合金製の機械部品を高速・高精度で加工することが求められている。これらの合金は難削材料であるため、その加工には、高い硬さを持つ WC-Co 超硬合金製や TiC 基サーメット製の工具が用いられている。しかし、WC-Co 超硬合金は、原料となる W と Co が資源偏在リスクを抱えていることに加え、バインダとしての役目を担う Co が、硬さ、ヤング率、高温強度および耐食性を低下させる。また、TiC 基サーメットは、原料の資源的制約は比較的少ないものの、焼結時に TiC と比べて硬さや耐食性に著しく劣る Ni 等の金属バインダを添加する必要があるため、高温環境下では硬さは低下し、酸化もし易くなる。これらのことから、金属バインダなしで資源偏在リスクのない基材を焼結する「バインダレス硬質セラミックス」を開発し、高速・高精度加工用の工具材料として実用化することが切望されている。

現在、バインダレス硬質セラミックスの材料の有力候補には WC と TiC が挙げられている。WC については、資源偏在リスクはあるものの、バインダレス焼結が可能となることが知られてから、数多くの研究がなされている。TiC については、通電加圧焼結を用いればバインダレス焼結が可能であるが、破壊靱性値と熱伝導率が低く単体で工具材料とすることは困難であるため、その短所を補うべく、SiC と複合化する研究が行われている。ただし、

炭化物のみで構成されるセラミックスでは、刃先温度が極めて高くなる難削材の加工において強度の低下が懸念されるため、炭化物を高温でも硬さと強度の低下が少ない窒化物とバインダレス焼結で複合化することも、他方では試みられている。

このような形でバインダレス硬質セラミックスの開発は進められているが、TiC と SiC の複合化に関しては、焼結体の機械的性質・熱伝導率と組成比の関係、およびこの関係に対する第 3 炭化物添加の影響などを詳細に調査した研究例が少なく、WC 系セラミックスと比べて、実用化に向けた調査が十分になされていない。また、窒化物と炭化物の複合化では、耐熱性に優れる窒化物である AlN の活用が期待されているが、AlN とのバインダレス焼結に適した炭化物の探索が十分になされていない。このことから本研究では、TiC と SiC の複合化に関して未解明の上記事項について深掘りすると共に、AlN とのバインダレス焼結に最適な炭化物とその焼結条件を探索することで、難削材の高速・高精度加工を可能とする、「バインダレス硬質セラミックス」の最適焼結プロセスを提示することを目指した。その成果をまとめた本論文は、7 章から構成されており、各章の概要は以下に示す通りである。

第 1 章では、切削工具に用いられる硬質材料の現状と課題に触れ、本研究の背景と目的について述べた。

第 2 章では、バインダレス焼結による TiC と SiC の複合化を組成比と焼結温度を変えた種々の条件で試みた。そして、作製したすべての焼結体の組織、機械的性質、熱伝導率を詳細に調査し、それらを比較することで、低温でも緻密な焼結が可能で、硬さや耐食性の高い TiC-SiC セラミックスが得られる焼結条件について検討した。さらに、TiC-SiC セラミックスに、他遷移金属炭化物 (NbC, TaC, WC, ZrC) を添加することも行い、その添加が組織と機械的性質にどのように影響するののかも詳細に調査した。

第 3 章では、AlN と硬質炭化物の TiC のバインダレス焼結を組成比と焼結温度を変えた種々の条件で試み、作製したすべての AlN-TiC セラミックスの焼結性、緻密化の程度、機械的性質を調査した。その結果、AlN と TiC の緻密な焼結は困難であることが判明し、TiC 以外の炭化物の探索が必要であることが判明した。

第 4 章では、第 3 章での結果を踏まえて、WC や TiC の焼結時に添加すると、低温でも緻密化を促進する効果のある SiC を AlN と複合化する相手材料として選び、バインダレス焼結による AlN-SiC セラミックスの作製を試みた。種々の焼結条件による AlN-SiC セラミックスの組織を調査した結果、緻密な焼結を可能とする焼結条件を見出すことができた。しかし、いずれの焼結条件でも、工具材料に求められる高ヤング率と高破壊靱性値を持つ AlN-SiC セラミックスを合成することはできず、他の炭化物との複合化を検討する必要があることが判明した。

第 5 章では、ヤング率、硬さ、破壊靱性に優れる WC と AlN のバインダレス焼結を種々の条件で試みた。作製したすべての AlN-WC セラミックスの組織と機械的性質を調査した結果、1700°C での焼結であれば、WC 含有量を 1~50 mol% と大きく変えても、いずれの組成比でも緻密な焼結が可能であることが判明した。また、硬さと破壊靱性値は WC 含有

量の増加に伴い高くなり、 AlN-50 mol\%WC は純 WC に匹敵する破壊靱性値となった。これにより、 AlN とのバインダレス焼結には、WC が最適であることが判明した。

第 6 章では、第 5 章において、優れた「バインダレス硬質セラミックス」となり得ることが判明した、 AlN-WC セラミックス中の残留応力と焼結条件との関係を詳細に調査した。そして、その結果に基づき、残留応力をバインダレス硬質セラミックスの高靱化に活用する方法について考察した。

第 7 章では、総括として本研究のまとめと今後の課題を述べた。

論文審査結果の要旨

1 論文審査結果の要旨

近年、宇宙航空機器や自動車等の輸送機器産業の発展に伴い、耐熱合金や鉄系合金製の機械部品を高速・高精度で加工することが求められている。これらの合金は硬く、その切削加工には、高い硬さをもつセラミックス製の工具を用いる必要がある。しかし、現在、難削材加工用のセラミックス製工具には、資源偏在リスクを抱える原料が基材として使用されている。また、緻密なセラミックスを焼結するために、高温強度が基材に比べて劣る金属バインダが使用されており、刃先温度が上昇し易い難削材の高速切削加工には不向きとされている。これらのことから、金属バインダなしで資源偏在リスクのない基材を焼結する「バインダレス硬質セラミックス」を開発し、高速・高精度加工用の工具材料として実用化することが切望されている。

本論文は、破壊靱性値と熱伝導率に劣る欠点は持つものの、資源偏在リスクのない硬質材料で、且つ通電加圧焼結法を用いれば単体でのバインダレス焼結が可能な材料でもある TiC に着目し、これを基材としたバインダレスセラミックスの合成を試みたものである。すなわち、上記欠点を補うための複合化に最適な材料は SiC であると捉え、 TiC-SiC セラミックスの合成を様々な通電加圧焼結条件で行い、工具材料として相応しい特性を持つ、 TiC-SiC セラミックスの合成に最適な焼結プロセスを見出そうとしたものである。また、その一方で、 TiC-SiC のように炭化物のみで構成されるセラミックスでは、難削材の加工において強度の低下が懸念されるとして、耐熱性に優れる AlN と炭化物のバインダレス焼結を試みたものでもある。これらの成果は、全 7 章でまとめられており、各章の概要は以下に示す通りである。

第 1 章では、切削工具に用いられる硬質セラミックスの現状と課題に触れ、本研究の背景と目的について述べている。

第 2 章では、組成比と焼結温度を変えた、種々の条件でのバインダレス焼結により合成した TiC-SiC セラミックスの機械的性質と熱伝導率を詳細に調査し、工具材料に適した特性が得られる焼結条件を提示している。また、 TiC-SiC セラミックスに、他の遷移金属炭化

物を添加すれば、機械的性質や熱伝導率がさらに向上することも示している。

第3章では、AINと硬質炭化物のTiCのバインダレス焼結を組成比と焼結温度を変えて試みた結果、AINとTiCの緻密な焼結は困難であることが判明したため、AINと複合化する炭化物は、TiC以外のものから選択する必要があると述べている。

第4章では、第3章の結果を踏まえて、AINとSiCのバインダレス焼結による複合化を試み、緻密な焼結を可能とする焼結条件を見出すことはできたものの、工具材料に求められるヤング率と破壊靱性値を有するAIN-SiCセラミックスの合成には至らなかったため、AINと複合化する炭化物は、TiCとSiC以外のものから選択する必要があると述べている。

第5章では、第3・4章の結果を踏まえて、AINとWCのバインダレス焼結を種々の条件で試みている。その結果、緻密な焼結を可能とする焼結条件を見出すことと、工具材料に適した硬さと破壊靱性値を有するセラミックスの合成に成功したことから、WCがAIN基バインダレス硬質セラミックスの合成に最適な炭化物であると結論づけている。

第6章では、第5章で合成したAIN-WCセラミックス中の残留応力と焼結条件の関係を詳細に調査することで、残留応力をバインダレス硬質セラミックスの高靱化に活用する方法について考察している。

第7章では、本研究によって得られた主要な知見と今後の課題について述べている。

以上のように、本論文は、高速・高精度加工用の工具材料向けのバインダレス硬質セラミックスを合成する上で極めて有用となる多くの知見を含み、それらは、将来、加工技術の高度化に大いに貢献し得るものである。したがって、本論文は、博士(理工学)の学位論文として十分に価値があるものと認められる。

2 最終試験結果の要旨

博士論文公開審査会において、申請者が本論文について約45分の口頭発表をした後、約45分の口頭試問を実施して最終試験とした。口頭試問の内容は、以下のように要約される。

- (1) 本研究で合成したセラミックスは、従来の工具材料に対してどの程度の優位性をもつのか。特に、硬さと熱伝導率は、どのようなレベルにあるのかとの質問がなされた。
- (2) 焼結体の組織調査から、熱伝導率の向上につながるような知見は得られたか。また、焼結時の添加物は、熱伝導率に対してどのように影響するのかとの質問がなされた。
- (3) 通電加圧焼結によるセラミックスの作製は、量産に対応できるのか。また、焼結温度が1800°Cと高いが、量産する上で障害にならないかとの質問がなされた。
- (4) 通電加圧焼結により、焼結体に集合組織が形成されることはないか。また、SiCの通電加圧焼結で、六方晶構造に起因する異方性が支障となることはないかとの質問がなされた。
- (5) 結晶構造が異なるにも関わらず、TiCとSiCの回折ピークが重なるのはなぜか。また、SiCの強度比が低い原因として、積層欠陥は挙げられるのかとの質問がなされた。

このほかに、残留応力の測定法、原料粒径と焼結性の関連性、合成したセラミックスの実

用性などに関する質問がなされた。これら全ての試問に対する回答は、いずれも慎重、且つ的確であった。このため、総合的に判断して、最終試験結果を合格とした。