

報告番号	※ 甲 第 11026号
------	--------------

## 主 論 文 の 要 旨

論文題目 炭化ホウ素セラミックス接合体の作製及び力学的特性評価に関する研究

氏 名 関根 圭人

### 論 文 内 容 の 要 旨

近年の地球環境問題や国内外のエネルギー安全保障の観点から省エネルギー・省資源に優れ、なおかつ、将来にわたり持続的な経済発展のために、これまで、幅広い産業分野において様々なセラミックスが開発され、また実用化されてきた。中でも、炭化ホウ素( $B_4C$ )は高硬度、高剛性および低密度という優れた特性を有する重要な非酸化物セラミックスである。例えば、半導体製造に欠かせないシリコンウエハー上の回路露光装置は回路の微細化・高密度化による高速可動のため軽量・高剛性材料が求められるとともにウエハーサイズの大型化によるセラミック部材の大型化が必須となっている。それ以外の分野でも、スペースデブリシールドなどの保護部材としての応用が期待されており、炭化ホウ素への期待は大きい。この様なニーズに応じていくには、従来のセラミックス一体成形技術では設備投資や歩留低下などのコストの面で対応が困難になりつつある。それに対して、比較的小さな部材を接合することで大型部材を製造する技術の確立は、大型化や形状任意性を容易に付与できる可能性があり、コスト面のみならず、省エネルギー・省資源の観点からも重要なセラミックス製造技術開発のアプローチであると考えられる。また、接合技術を応用することにより、炭化ホウ素の低靱性を改善することで、衝撃損傷軽減により保護部材としての特性向上の可能性を秘めている。

そこで、本研究では、高速可動部材大型化への対応や保護部材に対する衝撃損傷軽減を目指して、炭化ホウ素セラミックスの接合技術及びそれを応用した、炭化ホウ素セラミックスの積層構造体の開発に取り組み、接合強度に与える接合材の影響ならびに接合方法等と衝撃を含む力学的特性との関係について詳細に検討・考察を行った。

「第1章 緒論」では、本研究の背景、目的、意義等を述べた。

「第2章 炭化ホウ素セラミックス接合のエネルギー論的検討」では、大型・複雑形状を有する炭化ホウ素セラミックスを製造するための1つの手段として、炭化ホウ素と5種類の純金属接合材との付着仕事を指標とした熱力学的検討ならびに炭化ホウ素セラミックスの接合実験により、接合メカニズムを詳細に検討した。その結果、接合が可能であったアルミニウム(Al)、銅(Cu)、金(Au)は付着仕事と良い相関が見られたのに対して、銀(Ag)と錫(Sn)では接合できず、顕著な相関は認められなかった。接合界面の観察から、銀はほぼ完全に蒸発した可能性が高く、錫は蒸発により一部しか接合面に残存していないため、十分な接合強度が得られなかったことが推察された。これらのことから、アルミニウム、銅および金は炭化ホウ素との反応性が低いあるいは反応速度が遅く、固相と液相で存在することで付着仕事の理論で説明できたと考えられる。そして、炭化ホウ素セラミックスの接合材として、純金属の中ではアルミニウムが最適であることを明らかに

した。

「第3章 アルミニウムを接合材とする炭化ホウ素セラミックス接合体の力学的特性に及ぼす接合条件の影響」では、第2章で得られた成果をもとに、アルミニウムを接合材とした炭化ホウ素セラミックス接合体の力学的特性に及ぼす接合条件(接合時間、温度、雰囲気、接合界面性状及び圧力)の影響について詳細な実験を行い、最適な接合条件について検討した。1000℃、2 h 真空中で接合した試料の組織は緻密で、界面には亀裂や気孔はほとんど観察されなかった。また、炭化ホウ素接合界面の微小亀裂の中にアルミニウムが深く浸透し微小亀裂を埋めるとともに、 $\text{AlB}_2$ 、 $\text{Al}_3\text{BC}$ 、および  $\text{Al}_3\text{B}_{48}\text{C}_2$  の存在が確認された。一方、1000℃、72 h 真空中で接合した試料の接合部にアルミニウムは存在せず、大部分が  $\text{Al}_3\text{B}_{48}\text{C}_2$  となっていた。また、多くの空隙が存在していた。接合時間が長くなるほど、4点曲げ強度が低下したことを考え合わせると、炭化ホウ素とアルミニウムの反応が進行しアルミニウムが少なくなるほど、空隙により接合面積が低下したことから接合部と炭化ホウ素との熱膨張係数差による残留応力を緩和できなかったことが強度低下の原因と考えられた。さらに、真空中では、接合温度がアルミニウムの融点(660℃)を超える 700℃から 1000℃では、いずれの試料においても母材から破断し、高い接合強度を有する接合界面が形成されていることがわかった。しかし、1100℃では、接合部から破断する試料も認められ、接合強度がやや低下していること、さらに 1200℃では接合できなかった。これは、アルミニウムの蒸発によるものと考えられる。一方、Ar 雰囲気中では、真空中と同様にアルミニウムの融点以上の 700℃から接合可能であったが、母材から破断し高い接合強度を示す試料と接合部から破断する低い強度の試料が混在して強度のばらつきが大きくなった。また、真空中とは異なり 1200℃以上の温度においても接合できることがわかった。Ar 雰囲気中では接合部に空隙が観察されたことから、雰囲気ガスが完全に抜けきらないこと、アルミニウムの蒸発が抑制されたことが要因であると示唆された。接合前の表面粗さ Rz 1.7  $\mu\text{m}$  以下の接合試料では接合面ではなく母材から破断し、高い接合強度が得られた。鏡面研磨を施して接合前の表面粗さ Rz 0.1  $\mu\text{m}$  とした試料では、接合界面に微小亀裂が存在せず、アルミニウムが炭化ホウ素と直接接触し接合していることが確認された。前述した表面粗さ Rz 1.7  $\mu\text{m}$  以下の試料にはアルミニウムが浸透した微小亀裂が存在し、アルミニウムの浸透によるアンカー効果によって高い接合強度が維持されることが分かった。また、接合圧力も接合に大きな役割を果たしており、12 kPa 以上の接合圧力をかけることで、母材相当以上の高い接合強度が得られた。反対に、12 kPa 未満では接合前に存在していたであろう空隙が抜けきれず、接合面積低下により接合強度が低下することがわかった。これらの結果から、温度 700℃~1000℃、時間 2 h 以下、真空中、接合前の表面粗さ Rz 1.7  $\mu\text{m}$  以下及び接合圧力 12 kPa 以上の条件で、母材相当の接合強度を有する炭化ホウ素セラミックス接合体が得られることがわかった。

「第4章 炭化ホウ素セラミックス積層体の作製及びその衝撃破壊特性」では、第2章、第3章で得られた炭化ホウ素セラミックスの高強度接合技術を応用し、炭化ホウ素セラミックスの課題である低靱性に伴う大きな衝撃損傷を軽減することを目的として、接合面積を制御して作製された炭化ホウ素セラミックス積層体を用いて、半導体製造装置の高速可動部材で懸念される衝撃損傷や宇宙ゴミ(スペースデブリ)から太陽電池パネル・人工衛星機器を防御するデブリシールド等の保護部材としての衝撃破壊特性の向上を試みた。一体成形された炭化ホウ素セラミックス(バルク体)はコーン状亀裂と複数のラジアル亀裂を伴い、壊滅的な損傷が生じた。これに対して、接合比率 100%の炭化ホウ素セラミックス積層体は、コーン状亀裂が小さくなり、また試料形状が保持されており、損傷軽減が確認された。また、接合比率を 94%に下げることでコーン状亀裂がわずかに小さくなったが、76%から 45%の間では破壊形態の顕著な変化は認められなかった。また、接合界面は、母材部よりも優先的に破壊が生じていたことから、界面で亀裂が屈折し、一部の亀裂が停止あるいは分岐することで、2枚目以降の炭化ホウ素のコーン亀裂が小さくなり、結果として損傷が大きく低下したと推察された。これらは、いずれも接合界面での音響インピーダンスの差異による圧縮波の反射によりもたらされた効果であると考えられる。また、感圧紙による背面の圧力分布から、積層体が背面で受ける全荷重がバルク体のそれよりも小さくなるが、接合比率の違いは小さいこと、積層体背面中で圧力が負荷された面積は全荷重と同様に接合比率による差は見られず、バルク体よりも積層体の方が小さくなることがわかった。これは、バルク体よりも素積層体の方が試料の破壊で散逸するエネルギーが多く、破片(デブリ)の運動エネルギーが

小さくなったためと考えられる。一方、積層体はバルク体よりも最大圧力が大きく、また、接合比率の減少とともに最大圧力が高くなる傾向が認められた。衝撃後の飛翔体の運動エネルギーの減少がバルク体よりも積層体の方が小さく、また、接合比率の低下に伴う接合面全体としての接合強度の低下により界面や亀裂で散逸されるエネルギーが減少し、大きなエネルギーが中央部背面まで伝達されたためと考えられる。素積層体は、バルク体よりも衝撃損傷を軽減する効果が期待でき、かつ、背面側の全荷重を軽減できる一方、飛翔体が衝突した中央部に圧力が集中する傾向があることがわかった。さらに、衝撃損傷や背面側の圧力分布に対する接合比率の影響が小さいことも明らかになった。これらの知見を総合することで、衝撃に対する高い損傷性能を有する部材を設計できることが明らかとなった。

「第5章 結論」では、本論文の全体を総括し、結論を述べるとともに、本研究開発した炭化ホウ素接合体及び積層体の今後の研究・開発の方向性と解明すべき課題を明らかにした。

本研究を通して、軽量・高剛性・高硬度を有する炭化ホウ素セラミックスに接合材としてアルミニウムを用いることで、母材強度と同程度あるいはそれ以上の強度を有する炭化ホウ素セラミックス接合体を作製できることを明らかにし、その作製条件を特定した。接合技術を駆使することで、省エネルギーで大型複雑形状の炭化ホウ素セラミックスを製造できる可能性が非常に高いことを見出した。さらに、接合技術を応用した積層化技術が、炭化ホウ素セラミックスの課題である、低靱性に由来する衝撃による壊滅的な破壊を低減させる技術として非常に有効であることを明らかにした。