

緻密なセラミックス基複合材料の製造に向けた化学気相含浸プロセスの構築

| | |
|---------|---|
| 著者 | 嶋 紘平 |
| 学位授与年月日 | 2017-03-23 |
| URL | http://doi.org/10.15083/00075752 |

審査の結果の要旨

氏名 嶋 紘平

航空宇宙分野における次世代エンジン材料として、軽量かつ高温酸化環境での機械強度に優れる SiC/SiC セラミックス基複合材料 (Ceramic Matrix Composite ; CMC) が期待されている。本複合材料の機械特性・化学特性は SiC 繊維織物に内在する空隙により大きく左右されるため、繊維織物内の空隙に SiC を高密度に充填する化学気相含浸 (Chemical Vapor Infiltration ; CVI) プロセスの開発が必要である。化学気相含浸プロセスは、BN がコーティングされた SiC 繊維上に SiC を析出させ、SiC 繊維の織物を一体化・緻密化するプロセスである。本プロセスは数 μm 程度の繊維間空隙を充填するのに百時間程度の時間が必要とされており、含浸と同時にプロセス時間の短縮も求められる。

本論文は、「緻密なセラミックス基複合材料の製造に向けた化学気相含浸プロセスの構築」と題し、上記課題に対して CVI プロセスの反応速度論を基に反応メカニズムを詳細に解析し、最適プロセスの概念設計を検討したものであり、全部で7章からなる。

第1章は序論であり、本研究の背景、目標、CVI プロセスの概要、既往の研究などをまとめている。第2章は研究手法であり、本研究で使用した製膜装置、反応メカニズム解析手法についてまとめている。

第3章では、本検討の根幹をなす反応速度論を検討するための解析手法の構築に関しまとめている。製膜には、原料物質が反応器内の気相中で分解した複数の物質が関与しており、それぞれを切り分けて解析するためにアスペクト比が1000に及ぶ深遠なトレンチ構造の形成手法を独自に発案し実現している。これにより、反応性の異なる複数の物質を個別に解析できることを示した。複数の製膜物質を詳細に、かつ、独立して解析する手法は過去になく、本論文のオリジナルな成果の1つである。次章以降で明らかにしている反応機構は、本トレンチ構造を活用したことにより初めて得られたものである。

第4章では、自作した高アスペクト比トレンチ構造を用いて得た表面反応解析結果についてまとめている。供給した原料自身が基材表面で反応し SiC が形成される経路、および気相で発生した原料の分解物が基材表面で反応し SiC が形成される経路があることを特定した。また、実際の繊維束内では原料分解の副生成物である塩素が基材表面に吸着し製膜を阻害していることを見出した。これらの結果をもとに、表面反応モデルを導出した。繊維織物内には sub- μm の

小さな空隙と数十 μm の大きな空隙が混在しているが、解析結果からそれぞれの空隙を充填するのに適した製膜物質が異なることを明らかにし、それぞれに最適な反応条件を導出した。高アスペクト比トレンチ構造により明らかになった反応機構は、これまでの理解と異なるものであり、本プロセスの本質的な解明と最適設計に向け、大きく前進した。

第5章では、CVIの初期成長機構を解析しまとめている。本プロセスはBNを下地とする繊維表面へのSiC形成により開始されるため、前章で解析したSiC上のSiC形成とは異なる現象が起きている。特に繊維織物の深部では原料供給開始後に一定時間成長が進まない成長遅れが存在することを明らかにした。深部でのSiC形成が進まない間も、外周部では形成が進むため、本現象は緻密な充填を著しく阻害するが、高濃度の原料供給によりこれを回避できることを見出した。また、BN界面ではCが過剰形成されることも明らかにし、プロセス温度の低温化により解決することも提示した。これまで繊維深部での初期成長挙動を検討した例はなく、自作した高アスペクト比トレンチ構造を使用した初期成長解析結果をもとにプロセス条件を変調する新規な制御手法を提案した。

第6章では、高密度充填を実現するための追加措置についてまとめている。前章までに反応機構を解析し最適プロセス条件を導出したが、第4章にて得た、sub- μm 空隙と数十 μm 空隙では最適な製膜物質が異なるとの知見をもとに、基材をポーラスメンブレンで包み込むことにより充填に不向きな反応性の高い製膜物質をトラップし、充填に向く低反応性物質のみを供給する手法を提案し、有害種を99%除去することに成功している。本研究により可能となった高密度充填セラミクス複合材料は破断強度が向上していることも示している。また、これまでの知見をもとに、初期成長、sub- μm 空隙の充填、数十 μm 空隙の充填の各段階でのプロセス条件を最適化し、高い充填率を確保しながら、プロセス時間を20時間程度まで低減できることを示した。

第7章は総括であり、CVIプロセスによるSiC高密度充填の利点および課題、組成制御手法などについてまとめ、今後の展望を述べている。

このように、本論文はCVIプロセスによるSiC形成における速度論解析、初期成長解析を通じた本質的理解を通じて、最適プロセス設計を試みたものであり、マテリアル工学への貢献は大きい。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。