【128】

氏　名（本籍）	グラッソ サルバトーレ（イタリア）
学位の種類	博　　士（工　　学）
学位記番号	博　甲　第　5649　号
学位授与年月日	平成 23 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	**Advanced electric current activated/assisted sintering technology: modeling and development** （通電活性化焼結技術の高度化：モデリングとその応用）

主　　査	筑波大学教授	工学博士	目　　義　雄
副　　査	筑波大学教授	工学博士	井　上　　悟
副　　査	筑波大学教授	Ph. D.	土　谷　浩　一
副　　査	筑波大学准教授	工学博士	谷　本　久　典

論文の内容の要旨

通電活性化焼結（ECAS）は、飛躍的な材料特性の改善とエネルギー効率の大幅な削減が可能な最新粉体加工技術として、近年急速に発展している技術である。粉体は、ダイに入れられパンチにより加圧される点では、従来から良く知られているホットプレスと同じであるが、ホットプレスはダイの外からヒーターにより加熱されるのに対して、ECAS はパンチを通して試料が直接通電、加熱される。通常、大電流をパルス的に印加するが、この時、試料の電導度により、ほとんどの電流がパンチからダイに流れダイから試料が加熱される場合とパンチを通して一部の電流が試料に流れる場合がある。いずれにしても、大電流をパルス的に印加するため短時間焼結が可能であり、ナノ構造材料や特殊複合材料の作製に適していることから、特許、論文数とも近年急激に増加している。しかしながら、ECAS 基礎過程の現象の理解およびその制御技術は、必ずしも進展していない。その大きな要因は、試料温度の計測が困難なことと試料内の温度分布による微構造の不均一性にある。温度は、試料側面のダイを通して計測されるため、実際の試料温度とは異なる。さらに、試料内部とパンチに接する外側とは温度が異なり、半径方向に温度分布が存在する。そのため、印加電流、試料電導度、印加圧力などのプロセスパラメータに対する ECAS の基礎過程を理解するには、シミュレーション技術の開発が極めて重要である。

本研究では、ECAS の高度化に取り組み、印加電流、印加圧力と試料内の温度の関係をシミュレートする方法を開発した。ECAS 過程の系全体は、各構成物質の電気電導度、熱伝導度、熱容量、相対試料密度と初期条件、境界拘束条件を与えて、Maxwell の式とエネルギーバランスの式を有限要素法を用いて解析することにより、プロセスパラメータと試料温度の関係をシミュレートした。この結果を実験値と比較し、モデルにフィードバックすることでシミュレーションの信頼性を向上させた。特に、グラファイト試料を用いた実験から、パンチとダイ間のクリアランスにより、試料外側の温度とダイの温度は変化し、印加圧が低いほどこの差は大きくなることを明らかにした。また、温度計測は、クリアランスの影響のない上部からパンチを通して計測することにより温度分布が小さくなり、温度制御が容易であることを実証した。さらに、ECAS

を電導度の異なる3種類の粉末（導電性試料：WC、半導体試料：B_4C、絶縁体試料：アルミナ）に適用し、優れた特性を有するセラミックスの作製に成功した。

導電性試料であるWC粉末のECASを試みた。実験とシミュレーションから、試料表面から内部への温度分布および粒成長、密度、硬度の印加圧力の影響を詳細に検討した。温度と加圧圧力、時間の焼結パラメーターにより試料の温度分布を正確にシミュレートでき、実際に計測される表面温度から微構造、硬度分布を予測できることを明らかにした。通常、ホットプレスなどの焼結にはCoなどのバインダーを添加するが、ECASではバインダー無しでWCの焼結が可能であった。さらに、WC-ダイアモンド複合体の作製を3000K/minの高速昇温により試み、ダイアモンドが炭化することなく高密度の複合体の作製に成功し、摩擦係数が小さく、優れた耐摩耗特性を示すことを実証した。

絶縁材料としてアルミナを対象とし、市販の粉体を用いて、シミュレーションと計測温度、微構造との詳細な検討により、透光性アルミナの作製を2つの手段により試みた。1つは、2段階加圧法による作製で、初期に35MPaの圧力で昇温、加熱し、温度保持3分後に圧力を80MPaに上げた。2段加圧にすることで、温度分布の均一性が増し、透光性も増した。もう1つは、WCパンチを用いた高加圧システムの作製とその適用である。500MPaの高加圧力にすることで、通常の80MPaと比較して、ECAS温度、時間を1150℃、1～2時間から1000℃あるいは950℃、10分に低減することができ、直線透過率64％（波長645nm）の優れた透光性アルミナを得た。

半導体試料のB_4Cは、粒子を水溶液中に分散し、12Tの強磁場中でスリップキャストすることで、磁場印加方向と垂直な方向にc軸配向した成形体を作製した。これをECASすることにより、焼結添加材無しの高密度c軸配向B_4Cを作製することに成功した。電気伝導度と熱伝導度はa,b面が、硬度と靱性はc面が大きな値を示し、無配向体に比較して優れた特性を有し、顕著な方位依存性を示した。

審査の結果の要旨

通電活性化焼結（ECAS）は、新規な材料創製技術として、またエネルギー効率の優れた粉体加工技術として、急速に発展している技術である。しかしながら、温度は側面のダイを通して計測されるため、実際の試料の温度と異なり、また試料の電導度により試料表面と試料内部の温度が異なるため、均一な組織の試料作製は困難であった。本研究では、ECASの高度化に取り組み、印加電流、印加圧力と試料内の温度の関係を有限要素法によりシミュレートする方法を開発した。これをグラファイトモデル材料に適用し、プロセスパラメータ、特に、パンチとダイ間のクリアランス、昇温速度、加圧方法と圧力、温度計測位置の重要性を指摘し、均一な組織を得る手法を提案している。また、クリアランスの影響のない温度計測手段として、従来の側面からではなく、上部からパンチを通して温度計測する手法を提案した。これらの成果は、ECASの高度化に大きく寄与し、学会、産業界から高い評価を得ている。さらに、この手法を導電性試料、半導体試料、絶縁体試料に適用し、優れた特性を持つ材料創製に有用であることを実証した。焼結助剤無添加WCは難焼結体であるが、ECASでは緻密焼結体が得られ、印加電流と加圧圧力と試料内温度のシミュレートおよび微構造観察から均一な組織を得る手法を提案している。また、高速昇温によりグラファイト化無しでダイアモンドとの複合体作製に成功し、摩擦係数の小さく耐摩耗特性の優れた無添加WC-ダイアモンド複合体を得ている。絶縁材料として、アルミナの焼結の加圧力依存性を検討し、2段階加圧方法および自作の高圧用治具による高圧（500MPa）ECASにより、高速加熱での無添加アルミナ透光性焼結体の作製に成功している。さらに、低電気伝導体のB_4Cに対しては、強磁場中スリップキャストとECASにより、熱伝導、電気伝導、力学特性の方位依存性を有する配向B_4C焼結体の作製に成功している。このように電導度によって分類した系統的なECAS適用への研究、優れた特性発現手段としてECASによる具体的材料創製の提示は、高

度化によるECASの更なる発展の方向を示したもので高く評価される。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。