論文・Paper

窒化アルミニウム焼結体の摩耗特性

岩佐美喜男・村尾 勉*

(大阪工業技術試験所)
(*現在: タツタ電線(株))

窒化アルミニウム焼結体を 1700°~2000°C の温度範囲でホットプレス法により作製した。その摩擦摩耗特性をピンオンディスク法で測定し、また摩耗の摺動速度依存性をサバン式試験法により調べた。

焼結体の特性としては、ホットプレス温度 1700°C では気孔が多く、破壊靱性、ビッカース硬度はかなり低かった。1800°C 以上ではほぼ一定値に達するが、ホットプレス温度とともに粒子成長が激しくなっている。

ピンオンディスク法により測定された SiC ディスクに対する摩擦係数、比摩耗量はホットプレス温度とともに上昇した。マイルドな摺動条件では微小な結晶粒子よりなる摩耗粉が固体潤滑作用を示すのではないかと考えられる。

サバン式試験法によれば各焼結体の比摩耗量はある摺動速度より急速に増加し、明確なピークを示す。このピークの高さはホットプレス温度とともに低下する。高速での摩耗は連続的な微小破壊によると考えられ、それゆえ、破壊靱性やビッカース硬度の高い焼結体ほど摩耗しにくいと考えられる。

(1985 年 7 月 10 日受付)

Wear of Hot-Pressed Aluminum Nitride

Mikio IWASA and Tsutomu MURAO*

(Government Industrial Research Institute, Osaka
Midorigaoka 1-chome, Ikeda-shi 563)
(*Now with: Tatsuta Electric Wire & Cable Co., Ltd.)

Aluminum nitride ceramics were fabricated by hot-pressing at 1700°-2000°C, and their friction and wear properties were measured with a pin-on-disk tester. The sliding velocity dependence of wear was also investigated with a Sawin-type tester. AlN hot-pressed at 1700°C has some residual porosities, so its fracture toughness and Vickers hardness are relatively low. But they become almost constant for AlN hot-pressed above 1800°C. Substantial grain growth was observed with increasing hot-pressing temperature. The friction coefficient and specific wear rate measured with the pin-on-disk tester increased with increasing hot-pressing temperature. Wear particles consisting of small AlN grains may act as a solid lubricant when sliding conditions are relatively mild. The specific wear rate measured with the Sawin-type tester was low at low sliding velocities, but showed a sharp maximum at the high velocity region. The peak is lower for AlN hot-pressed at higher temperatures. The wear in this region is supposed to be caused by the small fractures at contact points. As a result, AlN ceramics with higher fracture toughness and hardness show higher wear-resistance.

[Received July 10, 1985]

Key-words: Aluminum nitride, Friction and wear, Pin-on-disk tester, Sawin-type tester, Solid lubrication

1. 緒 言

セラミックスはその優れた高硬度、高耐摩耗性の応用として、軸受等の摺動部材としての実用化が期待されている¹⁾。そのためにはセラミックスの基礎的な摩擦摩耗

特性の評価が非常に重要であり²⁾、著者らはピンオンディスク法試験機などにより各種セラミックスについて摩擦摩耗の測定を続けている³⁾。

窒化ケイ素、炭化ケイ素、アルミナ、ジルコニアの 4

種のセラミックスについてはすでに報告しており^{4),5)}、本報では窒化アルミニウム (AlN) についての測定結果を述べる。AlN は高い熱伝導率を持つので IC 基板などに使用されようとしているが⁶⁾、かなり高強度な焼結体も出現しており、機械構造材料としての応用も当然考えられる⁷⁾。

AlN の焼結法にはホットプレス、常圧焼成、反応焼結などが考えられるが^{8),9)}、ここでは助剤無添加で密な焼結体を得られるホットプレス法を採用した。ホットプレス温度を変化させることにより、その組織や物性と摩擦摩耗特性の関係を検討した。

前記 4 種のセラミックスについてその相互間の摩擦係数、比摩耗量をピンオンディスク法で測定した結果、SiC ディスクに対する場合に摩擦係数、比摩耗量が最も低く、SiC 自身はほとんど摩耗しないことが明らかになっている⁵⁾。そこで AlN セラミックスについては SiC ディスクに対する測定だけを行うこととした。

セラミックスの摩擦摩耗特性は摺動条件により当然変化する¹⁰⁾。ここでは特に摺動速度の効果を調べることにしたが、前記のピンオンディスク法試験機では高速での測定は不可能であるので、リングと平板を接触、摺動させるサバン式の試験も行った^{11),12)}。リングはかなりきびしい条件に置かれ、SiC、 Al_2O_3 、AlN 焼結体などは破損することが多いので、ち密な Si_3N_4 焼結体を用いることにした¹³⁾。

2. 実 験

2.1 試料の作製

本実験で使用した AlN 焼結体は市販の高純度 AlN 粉末 (東芝セラミックス製、平均粒径 $3.0\ \mu\text{m}$) をそのままホットプレス焼結して作製した。AlN 粉末を所定量、BN を薄く塗布した黒鉛型に充てんし、 $300\ \text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力を加える。その黒鉛型を高周波誘導により所定温度まで加熱、30 分間保持する。自然放冷後、試料を黒鉛型より取り出し、200 番のダイヤモンド砥石により各面を研削した。なお、試料形状は $20 \times 40 \times 8\ \text{mm}$ 程度の直方体であり、ホットプレス温度が 1700° 、 1800° 、 1900° および 2000°C について各々数個ずつ作製した。

2.2 物性の測定

各試料のかさ密度は蒸留水中でアルキメデス法により測定した。一部の試料を $5 \times 3 \times 40\ \text{mm}$ の試験片に切断し、Controlled Surface Flaw 法により破壊靱性 (K_{Ic}) を求めた¹⁴⁾。クラックは荷重 $5\ \text{kg}$ でスプー圧子を押し込むことにより導入し、強度はスパン $30\ \text{mm}$ の 3 点曲げ、クロスヘッドスピード $0.5\ \text{mm}/\text{min}$ で測定した。

試験片表面をダイヤモンドペーストで鏡面に仕上げた後、ピッカース硬度 (H_V) を測定した¹⁵⁾。荷重 $2 \sim 30\ \text{kg}$ を 30 秒間印加したが、いずれの焼結体でも荷重が高

くなると圧痕のまわりに四隅から放射状にクラックが発生していた。しかしながら硬度の値に対する影響は少ないようであった。

最後に、走査型電子顕微鏡 (SEM) により焼結体の微細組織を観察した。

2.3 ピンオンディスク法

回転する円板にピン状の試験片を一定荷重で押し付ける方式のピンオンディスク法試験機で、各 AlN 焼結体の摩擦摩耗特性を測定した。円板には形状 $60\ \phi \times 10\ \text{mm}$ のホットプレス炭化ケイ素 (HPSC) を用いた。 K_{Ic} を測定した後の各 AlN 試験片は、破損を防ぐためにダイヤモンド砥石でエッジを面取りし、先端を半球状に加工し、ピン試験片として使用した。円板の回転数は $34\ \text{rpm}$ であり、摺動速度は約 $8.8\ \text{cm}/\text{s}$ 、荷重は $1\ \text{kg}$ と固定し、大気中、常温で測定した。

摩擦係数 (μ) はピン取り付けアームがロードセルを押し付ける力から求められる。試験片の重量減少を摺動距離 $20 \sim 30\ \text{km}$ まで測定したが、ほぼ摺動距離に比例することが確認されたので、その直線の傾きより単位摺動距離、単位荷重当たりの摩耗体積、すなわち比摩耗量 (W_s) を計算した。試験片の摺動面は SEM により観察した。

2.4 サバン式試験法

回転するリングの円周面に平面試料を押し付け、生じる摩耗痕の幅 b を測定する。リングの直径を d 、厚さを B とすれば、摩耗体積 W は^{11),12)}、

$$W = \frac{B}{4} \left[d^2 \sin \frac{b}{d} - b \sqrt{d^2 - b^2} \right] \doteq \frac{Bb^3}{6d} \quad (1)$$

大越式迅速摩耗試験機 (東京試験機製、OAT-U 型) を一定荷重が加えられるように改造し、サバン式試験を行った。リングには形状 $16\ \phi \times 30\ \phi \times 5\ \text{mm}$ のホットプレス窒化ケイ素 (HPSN) を使用し、各 AlN 焼結体の摩耗の摺動速度依存性を調べた。荷重 P は $6\ \text{kg}$ 、摺動距離 X は、 $200\ \text{m}$ と固定し、比摩耗量 W_s を

$$W_s = W / (P \cdot X) \quad (2)$$

より求めた。摺動速度は $6 \sim 430\ \text{cm}/\text{s}$ の範囲で段階的に増加させ、途中でリングの再研削は行わなかった。平面試料上の摩耗痕の一部を SEM により調べた。

3. 結果と考察

3.1 焼結体の特性

AlN 焼結体のかさ密度のホットプレス温度による変化を図 1 に示した。 1700°C では 93% 程度の相対密度であるが、 1800°C 以上ではほとんど理論密度 ($3.26\ \text{g}/\text{cm}^3$) に到達している。図 2 に破壊靱性、図 3 にピッカース硬度の変化を示した。いずれも 1700°C ではかなり低く、 1800°C 以上ではホットプレス温度とともにほんの少しずつ上昇はしているが、 $K_{Ic} = 1.9\ \text{MN}/\text{m}^{3/2}$ 、 $H_V = 1350$

Fig. 1. Bulk densities of AlN ceramics as a function of hot-pressing temperature.

Fig. 2. Fracture toughness of AlN ceramics measured by controlled surface flaw method.

Fig. 3. Vickers hardness of AlN ceramics measured at load 2-30 kgf.

Fig. 4. Fracture surfaces of AlN ceramics hot-pressed at 1700°-2000°C. Bars are 5 μm.

程度であり、ほぼ飽和状態に達していると言える。

図4に各焼結体の破断面のSEM写真を示した。1700°Cの焼結体は原料粉末の様子を残しており、まだ十分に焼結が進んでおらず、多数の気孔が認められ、それが低い破壊靱性、ピッカース硬度の原因と考えられる。1800°C以上では粒内破壊が主となり、ほとんど残留気孔は認められず、ほぼ完全に密化していると言える。ホットプレス温度とともに粒子成長が進んでいる様子が観察され、2000°Cでは10 μm 以上の粒径になっている。

3.2 摩擦係数と比摩耗量

ピンオンディスク法で測定した各焼結体の摩擦係数と比摩耗量を図5に示した。1800°Cまでの焼結体では比摩耗量 $W_s = 10^{-9} \text{ mm}^2/\text{kg}$ 程度と非常に低く、SiC焼結体と同程度の耐摩耗性を示している⁵⁾。それ以上のホットプレス温度では比摩耗量も上昇していくが、2000°Cの焼結体でも $W_s = 10^{-8} \text{ mm}^2/\text{kg}$ 程度であり、 Si_3N_4 に比べれば優れた耐摩耗性を示していると言える。比摩耗量が上昇するとともに摩擦係数も上昇し、1700°Cで $\mu = 0.3$ であったものが2000°Cでは $\mu = 0.7$ 以上とかなり高くなっている。このように摩擦係数が大きく変化するのには摩擦機構そのものの変化に起因するのかもしれない。

図6に摺動面のSEM写真を示したが、ホットプレス

温度が低い焼結体の摺動面はかなり平滑であり、規則的なクラックが認められる。これは粒成長の少ない微細なAlN粒子が摺動によりそのまま摩耗粉となり、それが再び摺動面で押し固められたような状態で、一種の固体潤滑作用を示しているのではないかと考えられる。ところがホットプレス温度が上昇して粒子径が大きくなれば、摩耗粉も強固になり、逆にアブレイシブに摺動面を

Fig. 5. Coefficient of friction and specific wear rate of AlN pins sliding on HPSC disk, as a function of hot-pressing temperature.

Fig. 6. Wear surfaces of AlN pins sliding on HPSC disk. Bar is 10 μm .

摩耗させるようになると考えられる。これが1800°C, 1900°Cの摺動面にクラックから摩耗粉が剥離したような様子が認められ、2000°Cの摺動面ではクラックとそれに続くスクラッチ状の線がいくらか観察される原因ではないかと思われる。

以上により AlN 焼結体の摩擦係数, 比摩耗量がホットプレス温度とともに上昇していく理由が説明されるが, これは摺動速度や接触圧力などが比較的低い, いわゆるマイルドな摺動条件下での話であり, 破壊的な摩耗が支配するより厳しい摺動条件では当然成立しないと考えられる。

3.3 比摩耗量の摺動速度依存性

各 AlN 焼結体の比摩耗量の摺動速度依存性をサバン式試験機により測定した結果を図7に示した。10 cm/s 程度までの低い摺動速度では比摩耗量はホットプレス温度とともに上昇しており, ピンオンディスク法と同様な結果が得られた (低速域)。しかし, 摺動速度が20 cm/s を超えると各焼結体の比摩耗量は急速に上昇し, 明確なピークを示した (高速域)。

1900°Cの焼結体を例として, その摩耗痕の摺動速度による変化を図8に示した。低速域ではピンオンディスク法と同じような摺動面であり, 平坦な面に網目状のクラックが発生し, その一部は摩耗粉として剥離している。

ところが高速域に入ると摺動面全面にわたって破壊の様子が観察され, 多分, 連続的な微小破壊により結晶粒子またはその集まりが次々と脱落していくと考えられ, それが比摩耗量が低速域に比べて高くなる原因と推定される。

高速域での比摩耗量のピークの高さはホットプレス温度とともに低下しており, 摺動面での破壊に関係する破壊靱性やビッカース硬度の高い焼結体ほど摩耗しにくいと言えるであろう。しかしながら1800°C以上の焼結体の破壊靱性, ビッカース硬度はあまり変化していないにもかかわらずピークの高さはかなり変化しており, 数値には表れないホットプレス温度による焼結度の違いが関係しているのかもしれない。

Fig. 7. The change of specific wear rate in relation to the sliding velocity, measured with the Sawin-type wear tester.

AlN/HPSN

9.7 cm/s

46 cm/s

280 cm/s

Fig. 8. Wear surfaces of AlN plates sliding against HPSN ring. The sliding velocities are 9.7 cm/s, 46 cm/s and 280 cm/s, respectively. Bars are 20 μ m.

このように高い摺動速度になると摩耗粉による固体潤滑性はほとんど働かず, 高強度, 高靱性な焼結体ほど優れた耐摩性を示すと考えられる。それゆえ, 広範な摺動条件に適する AlN 焼結体としては, 焼結助剤添加などにより焼結性を向上させ, 小さな粒子径と高い靱性, 硬度をあわせ持つち密な焼結体を作製する必要があるのかもしれない。

4. 総 括

窒化アルミニウム焼結体を1700°C~2000°Cの温度範囲でホットプレス法により作製した。その摩擦・摩耗特性をピンオンディスク法で測定し, また摩耗の摺動速度依存性をサバン式試験法により調べた。その結果, 以下の結論を得た。

(1) ホットプレス温度1700°Cの焼結体では気孔が多く, 破壊靱性, ビッカース硬度はかなり低かった。1800°C以上ではほぼ一定値に達するが, ホットプレス

温度とともに粒子成長が激しくなっている。

(2) ピンオンディスク法により測定された摩擦係数, 比摩耗量はホットプレス温度とともに上昇した。マイルドな摺動条件では微小な結晶粒子よりなる摩耗粉が固体潤滑作用を示すのではないかと考えられる。

(3) サバン式試験法によれば各焼結体の比摩耗量はある摺動速度より急速に増加し, 明確なピークを示す。このピークの高さはホットプレス温度とともに低下する。高速での摩耗は連続的な微小破壊によると考えられ, それゆえ, 破壊靱性やピッカース硬度の高い焼結体ほど摩耗しにくいと考えられる。

文 献

- 1) 竹林博明, 小松通泰, 機械設計, 29, 84-91 (1985).
- 2) 津谷裕子, “セラミックスの機械的性質”, 窯業協会編 (1979) p. 75-85.
- 3) 岩佐美喜男, 樋端保夫, 速水諒三, 材料, 33, 1389-94 (1984).
- 4) 岩佐美喜男, 樋端保夫, 吉村 茂, 小林英一, 窯協, 93, 73-80 (1985).
- 5) 岩佐美喜男, 樋端保夫, 窯協, 投稿中.
- 6) 安斎和雄, 岩瀬暢男, 杉浦康之, 東芝レビュー, 39, 500-03 (1984).
- 7) K. Komeya, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 63, 1158-59 (1984).
- 8) 酒井利和, 窯協, 86, 125-30 (1978).
- 9) 安斎和雄, 篠崎和夫ほか, “第23回窯業基礎討論会, 講演要旨集” (1985) p. 19.
- 10) 花沢 孝, “セラミックスの機械的性質”, 窯業協会編 (1979) p. 85-96.
- 11) 川田雄一, 松浦佑次, 水野正夫, 宮川松男, “材料試験”, 共立出版 (1974) p. 244-53.
- 12) 水野万亀雄, 潤滑, 25, 801-04 (1980).
- 13) 岩佐美喜男, “新材料と潤滑, 講習会教材”, 日本潤滑学会 (1985) p. 17-36.
- 14) J. J. Petrovic, L. A. Jacobson, P. K. Talty and A. K. Vasudevan, *J. Am. Ceram. Soc.*, 58, 113-16 (1975).
- 15) 岩佐美喜男, 溶射技術, 6, 1-10 (1985).