

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6597620号
(P6597620)

(45) 発行日 令和1年10月30日(2019.10.30)

(24) 登録日 令和1年10月11日(2019.10.11)

(51) Int.Cl.	F I		
C O 4 B 35/58	(2006.01)	C O 4 B 35/58	O 1 4
B 2 3 B 27/14	(2006.01)	B 2 3 B 27/14	B
B 2 3 C 5/16	(2006.01)	B 2 3 C 5/16	

請求項の数 7 (全 26 頁)

(21) 出願番号	特願2016-545494 (P2016-545494)	(73) 特許権者	000002130
(86) (22) 出願日	平成27年8月21日 (2015.8.21)		住友電気工業株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2015/073532		大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号
(87) 国際公開番号	W02016/031714	(74) 代理人	110001195
(87) 国際公開日	平成28年3月3日 (2016.3.3)		特許業務法人深見特許事務所
審査請求日	平成30年2月21日 (2018.2.21)	(72) 発明者	諸口 浩也
(31) 優先権主張番号	特願2014-175073 (P2014-175073)		兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友
(32) 優先日	平成26年8月29日 (2014.8.29)		電気工業株式会社 伊丹製作所内
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国 (JP)	(72) 発明者	原田 高志
			兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友
			電気工業株式会社 伊丹製作所内
		(72) 発明者	久木野 暁
			兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友
			電気工業株式会社 伊丹製作所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 焼結体、焼結体を用いた工具、および焼結体の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含み、
 前記第1化合物は、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ を含み、
 前記 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ におけるa、b、xおよびyは、それぞれ、 $0.01 \leq a \leq 0.70$ 、 $0.01 \leq b \leq 0.55$ 、 $0.06 \leq a+b \leq 0.88$ 、 $0.005 \leq x \leq 0.6$ 、 $0.4 \leq y \leq 0.995$ 、および $0.5 < x+y \leq 1$ を満たし、かつ
 前記第1化合物は、TiとNとからなる結晶構造中に、Al、SiおよびOが固溶した構造を有する、焼結体。

【請求項2】

前記焼結体における第1化合物の含有量は、10体積%以上100体積%以下である、請求項1に記載の焼結体。

【請求項3】

前記焼結体は、第2化合物、第3化合物、第4化合物および第1金属からなる群より選択される1種以上をさらに含み、

前記第2化合物は立方晶窒化ホウ素であり、

前記第3化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、

前記第4化合物は、周期表の第4族元素、第5族元素および第6族元素からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上

の元素との化合物であり、

前記第1金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選ばれる1種以上からなる金属である、請求項1または請求項2に記載の焼結体。

【請求項4】

請求項1から請求項3のいずれか1項に記載の焼結体を用いた工具。

【請求項5】

請求項1から請求項3のいずれか1項に記載の焼結体の製造方法であって、

Ti、AlおよびSiの各元素を含む第1粒子を準備する工程と、

前記第1粒子を処理して、Ti、Al、Si、OおよびNの各元素からなる第2粒子を作製する工程と、

前記第2粒子を焼結して、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を作製する工程と、を備え、

前記第2粒子を作製する工程は、

前記第1粒子を加熱する工程と、加熱後の前記第1粒子を急冷する工程と、を備える、焼結体の製造方法。

【請求項6】

前記焼結体を作製する工程の前に、前記第2粒子と第3粒子とを混合する工程を含み、前記第3粒子は、第5化合物、第6化合物、第7化合物および第2金属からなる群より選択される1種以上からなる粒子であり、

前記第5化合物は、立方晶窒化ホウ素であり、

前記第6化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、

前記第7化合物は、周期表の第4族元素、第5族元素および第6族元素からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、

前記第2金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選択される1種以上からなる金属である、請求項5に記載の焼結体の製造方法。

【請求項7】

前記混合する工程は、前記第2粒子と前記第3粒子との混合粒子における前記第3粒子の含有量を90体積%以下として実行する、請求項6に記載の焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、焼結体、焼結体を用いた工具、および焼結体の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来より、焼結体からなる工具を用いて、鋼、鋳物などの切削加工が行われている。切削加工時において、工具の刃先は高温環境に曝されるため、工具は、耐摩耗性と耐欠損性といった特性はもちろん、耐酸化性も求められる。このような特性が期待される焼結体として、Ti、AlおよびNからなる焼結体が知られている。

【0003】

たとえば、特開平05-078107号公報(特許文献1)には、メカニカルアロイニング(MA)法を用いて $Ti_{0.5}Al_{0.5}N$ からなる粉末を作製し、これを焼結して $Ti_{0.5}Al_{0.5}N$ からなる焼結体を製造することが開示されている。特開平10-182233号公報(特許文献2)には、物理気相成長(PVD)法を用いて $Ti_{1-x}Al_xN$ ($x=0.05\sim0.70$)からなる粉末を作製し、これを焼結して窒化チタンアルミ基焼結体を製造することが開示されている。特開2007-131493号公報(特許文献3)には、燃焼合成(SHS)法を用いてTi、AlおよびNからなる混合物を作製し、これを焼

10

20

30

40

50

結してAl添加TiNバルク体を製造することが開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開平05-078107号公報

【特許文献2】特開平10-182233号公報

【特許文献3】特開2007-131493号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、上述のようなTi、AlおよびNからなる焼結体では、耐酸化性の点で、要望される性能にまで向上させることが難しい傾向にある。

【0006】

そこで、ここでは、耐摩耗性および耐欠損性に優れ、かつ耐酸化性にも優れた焼結体、焼結体を用いた工具、およびその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の一態様に係る焼結体は、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む、焼結体である。

【0008】

本発明の一態様に係る工具は、上記のTi、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を用いた工具である。

【0009】

本発明の一態様に係る焼結体の製造方法は、Ti、AlおよびSiの各元素を含む第1粒子を準備する工程と、第1粒子を処理して、Ti、Al、Si、OおよびNの各元素からなる第2粒子を作製する工程と、第2粒子を焼結して、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を作製する工程と、を備え、第2粒子を作製する工程は、第1粒子を加熱する工程と、加熱後の第1粒子を急冷する工程とを備える。

【発明の効果】

【0010】

上記によれば、耐摩耗性および耐欠損性に優れ、かつ耐酸化性にも優れた焼結体、これを用いた工具、およびその製造方法を提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】第3の実施形態に係る焼結体の製造方法を説明するためのフロー図である。

【図2】処理工程を説明するためのフロー図である。

【図3】第4の実施形態に係る焼結体の製造方法を説明するためのフロー図である。

【発明を実施するための形態】

【0012】

[本発明の実施形態の説明]

最初に、本発明の実施形態を列挙して説明する。

【0013】

(1)本発明の一態様に係る焼結体は、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む。

【0014】

Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物は、Ti、Al、Si、OおよびNからなる化合物(以下、「TiAlSiON化合物」という)を有することができ、これにより、高い耐摩耗性と高い耐欠損性のみならず、高い耐酸化性を有することができる。したがって、本発明の一態様に係る焼結体は、耐摩耗性および耐欠損性に優れ、かつ耐酸化性にも優れるという特性を有することができる。

10

20

30

40

50

【0015】

〔2〕上記焼結体において好ましくは、第1化合物は、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ を含み、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ におけるa、b、xおよびyは、それぞれ、 $0.01 \leq a \leq 0.70$ 、 $0.01 \leq b \leq 0.55$ 、 $0.06 \leq a+b \leq 0.88$ 、 $0.005 \leq x \leq 0.6$ 、 $0.4 \leq y \leq 0.995$ 、および $0.5 < x+y \leq 1$ を満たす。これにより、焼結体はさらに上記特性に優れる。

【0016】

〔3〕上記焼結体において、第1化合物の含有量は、10体積%以上100体積%以下であることが好ましい。焼結体における第1化合物の含有量が10体積%未満の場合、焼結体の上記特性が低下する傾向がある。

10

【0017】

〔4〕上記焼結体は、第2化合物、第3化合物、第4化合物および第1金属からなる群より選択される1種以上をさらに含むことが好ましい。第2化合物は立方晶窒化ホウ素であり、第3化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、第4化合物は、周期表の第4族元素、第5族元素および第6族元素からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、第1金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選ばれる1種以上からなる金属である。この場合、第2化合物、第3化合物、第4化合物および第1金属のそれぞれの組成や焼結体中での含有割合を適宜調整することにより、焼結体の種々の特性のバランスを調整することができ、もって様々なニーズに対応した焼結体を提供することができる。

20

【0018】

〔5〕本発明の一態様に係る工具は、上記焼結体を用いた工具である。上記焼結体は、耐摩耗性、耐欠損性および耐酸化性といった特性に優れるため、これを用いた工具もまた、これらの特性に優れることができる。したがって、本発明の一態様に係る工具は、従来と比して長寿命を有することができる。

【0019】

〔6〕本発明の一態様に係る焼結体の製造方法は、Ti、AlおよびSiの各元素を含む第1粒子を準備する工程と、第1粒子を処理して、Ti、Al、Si、OおよびNの各元素からなる第2粒子を作製する工程と、第2粒子を焼結して、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を作製する工程と、を備え、第2粒子を作製する工程は、第1粒子を加熱する工程と、加熱後の第1粒子を急冷する工程とを備える。

30

【0020】

本発明の一態様に係る焼結体の製造方法によれば、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を製造することができる。このような第1化合物は耐摩耗性、耐欠損性および耐酸化性といった特性に優れ、もって第1化合物を含む焼結体は、これらの特性に優れることができる。

【0021】

〔7〕上記製造方法において好ましくは、焼結体を作製する工程の前に、第2粒子と第3粒子とを混合する工程を含む。第3粒子は、第5化合物、第6化合物、第7化合物および第2金属からなる群より選択される1種以上からなる粒子である。第5化合物は、立方晶窒化ホウ素である。第6化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物である。第7化合物は、周期表の第4族元素、第5族元素および第6族元素からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物である。第2金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選択される1種以上からなる金属である。この場合、焼結する工程において、第2粒子と第3粒子との混合物が焼結されることになり、製造された焼結体は、上記第1化合物に加え、所望の第2化合物を有す

40

50

ることができる。このため、焼結体の種々の特性のバランスを所望に調整することができ、もって様々なニーズに対応した焼結体を製造することができる。

【0022】

〔8〕上記製造方法において好ましくは、混合する工程は、第2粒子と第3粒子との混合粒子における第3粒子の含有量を90体積%以上として実行する。これにより、第1化合物の有する特性を十分に維持したまま、第2化合物の有する特性が付加された焼結体を製造することができる。

【0023】

[本願発明の実施形態の詳細]

以下、本願発明の実施形態について詳細に説明する。

10

【0024】

本明細書において「金属」とは、特に説明がない限り、「Co」のような1種の金属元素からなる単体金属に限定されるものではなく、「CoSi₂」のような2種以上の金属元素からなる合金を含む。また、本明細書において「化合物」とは、1種以上の金属元素と1種以上の非金属元素とからなる化合物を示す。なお、非金属元素としては、B、C、NおよびOが挙げられる。

【0025】

また、本明細書において記載される化学式において特に原子比が規定されない場合は、各元素の原子比は必ずしも等比となるものではなく、従来公知の原子比が全て含まれるものとする。たとえばTiNと記す場合、TiとNとの原子比は1:1が含まれる他、2:1、1:0.95、1:0.9、1:0.3等が含まれ、TiZrNと記す場合、TiとZrとNの原子比は25:25:50が含まれる他、従来公知の原子比が全て含まれるものとする。

20

【0026】

第1の実施形態

第1の実施形態に係る焼結体は、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体である。ここで、焼結体とはバルクであって、塊状の形状を有するものであり、薄膜(被膜)とはその形状が異なる。また、焼結体と薄膜とはその形状が異なることによって、その特性のみならず、その使用目的、製造方法も異なる。なお、一般的に薄膜の厚みは5μm程度であり、また、100μm以上の厚みを有する薄膜は実質的に製造できないのに対し、焼結体の厚みは100μm以上とすることができる。

30

【0027】

Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体は、後述する製造方法によって製造され得る新規なものであり、従来のTi、AlおよびNからなる焼結体(以下、「TiAlN焼結体」ともいう)とはその構成が大きく異なる。

【0028】

具体的には、従来のTiAlN焼結体は、Ti、AlおよびNからなる化合物(以下、「TiAlN化合物」という)を含む。このようなTiAlN化合物は、通常、TiとNとからなる結晶構造中に、Alが固溶した構造を有している。これに対し、第1の実施形態に係る焼結体が備える第1化合物は、Ti、Al、N、SiおよびOからなる化合物(以下、「TiAlSiON化合物」という)を含む。このTiAlSiON化合物は、TiとNとからなる結晶構造中に、さらにAl、SiおよびOが固溶した構造を有している。なお、上記第1化合物が意図しない不可避不純物を含んでもよいことはいうまでもない。

40

【0029】

第1の実施形態に係る焼結体は、上記第1化合物を含むことにより、高い硬度と高い耐摩耗性のみならず、高い耐酸化性を有することができる。これは、TiAlSiON化合物からなる第1化合物が高い耐摩耗性と高い耐欠損性を有し、かつTiAlN化合物よりも耐酸化性に優れていることによる。

【0030】

50

また、第1の実施形態に係る焼結体において、第1化合物は、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ を含み、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ におけるa、b、xおよびyは、それぞれ、 $0.01 \leq a \leq 0.70$ 、 $0.01 \leq b \leq 0.55$ 、 $0.06 \leq a+b \leq 0.88$ 、 $0.005 \leq x \leq 0.6$ 、 $0.4 \leq y \leq 0.995$ 、および $0.5 < x+y \leq 1$ を満たすことが好ましい。第1化合物が上記組成比を満たすTiAlSiON化合物を含むことにより、焼結体はさらに高い耐酸化性を有することができる。その理由としては、本発明者は以下のように考察する。

【0031】

すなわち、第1化合物が $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ を含み、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ におけるa、b、xおよびyがそれぞれ上記範囲を見たす場合に、第1化合物中に含まれるAlが熱力学的に安定なAl酸化物の皮膜を形成し、ならびにSiがAl酸化皮膜を緻密化させることにより、焼結体の上記特性がさらに向上する。

10

【0032】

また、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ におけるa、b、xおよびyは、それぞれ、 $0.30 \leq a \leq 0.70$ 、 $0.10 \leq b \leq 0.20$ 、 $0.01 \leq x \leq 0.30$ 、 $0.80 \leq y \leq 0.99$ を満たすことがより好ましい。この場合、上記特性が顕著に向上する。

【0033】

ただし、第1の実施形態に係る焼結体における第1化合物の含有量は10体積%以上100体積%以下であることが好ましく、16体積%以上であることがより好ましく、20体積%以上であることがさらに好ましく、40体積%以上であることが特に好ましく、なかでも50体積%以上であることが好ましい。焼結体における第1化合物の含有量が10体積%未満の場合、焼結体の上記特性が低下する傾向がある。これは、焼結体におけるTiAlSiON化合物以外の化合物、金属等の含有量が増加することによると考えられる。

20

【0034】

また、第1の実施形態に係る焼結体は、第2化合物、第3化合物、第4化合物および第1金属からなる群より選択される1種以上をさらに含むことが好ましい。

【0035】

第2化合物は、立方晶窒化ホウ素である。第3化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物である。第4化合物は、周期表の第4族元素(Ti、Zr、Hf等)、第5族元素(V、Nb、Ta等)および第6族元素(Cr、Mo、W等)からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物である。また、第1金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選ばれる1種以上からなる金属である。

30

【0036】

焼結体が第2化合物、第3化合物、第4化合物および第1金属からなる群より選択される1種以上(以下、便宜的にこれらを「第1化合物以外の他の特定物質」ともいう)を含む場合、これらは、第1化合物同士の間面に存在することとなる。すなわち、第1化合物以外の他の特定物質は、焼結体中において、1つの第1化合物よりなる粒子とこれと隣り合う他の第1化合物よりなる粒子との間に存在する。

40

【0037】

第1化合物よりなる粒子の界面に第1化合物以外の他の物質よりなる粒子が存在することにより、各第1化合物同士が強固に結合されることとなるため、焼結体はさらに耐欠損性に優れることとなる。これは、第1化合物と第2化合物とを含む焼結体が、第1化合物の原料となる第2粒子(後述)と、第1化合物以外の他の特定物質の原料となる第3粒子を混合して焼結することによって作製されるものであり、この場合に、焼結中に第2粒子と第3粒子との界面に反応生成物が生じ、これによって、結果的に第1化合物と第2化合物とが強固に結合されるためである。

50

【0038】

また、焼結体に第1化合物以外の他の特定物質が含まれることにより、第1化合物の特性に起因する特性に加え、さらに第1化合物以外の他の特定物質に起因する特性を有することができる。したがって、第1化合物以外の他の特定物質の組成を適宜調整することにより、焼結体は、様々な切削条件に必要とされる各ニーズに柔軟に対応することができる。

【0039】

たとえば、焼結体が立方晶窒化ホウ素(第2化合物)を含む場合、立方晶窒化ホウ素は極めて高い硬度を有するため、この焼結体は、第1化合物の界面に第2化合物を有することに起因する耐欠損性の向上に加え、第2化合物を有することに起因する高い硬度を有することができる。

10

【0040】

上記第3化合物の具体例としては、 SiB_4 、ホウ化アルミニウム(AlB_{12})などのホウ化物、炭化ケイ素(SiC)などの炭化物、窒化アルミニウム(AlN)、窒化ケイ素(Si_3N_4)などの窒化物、酸化ケイ素(SiO_2)、酸化アルミニウム(Al_2O_3)などの酸化物が挙げられる。

【0041】

上記第4化合物の具体例としては、ホウ化チタン(TiB_2)、ホウ化ジルコニウム(ZrB_2)、ホウ化ハフニウム(HfB_2)、ホウ化バナジウム(VB)、ホウ化ニオブ(NbB_2)、ホウ化タンタル(TaB_2)、ホウ化クロム(CrB_2)、ホウ化モリブデン(MoB)およびホウ化タングステン(WB)などのホウ化物が挙げられる。また、炭化チタン(TiC)、炭化ジルコニウム(ZrC)、炭化ハフニウム(HfC)、炭化バナジウム(VC)、炭化ニオブ(NbC)、炭化タンタル(TaC)、炭化クロム(Cr_3C_2)、炭化モリブデン(Mo_2C)、および炭化タングステン(WC)などの炭化物が挙げられる。また、窒化チタン(TiN)、窒化ジルコニウム(ZrN)、窒化ハフニウム(HfN)、窒化バナジウム(VN)、窒化ニオブ(NbN)、窒化タンタル(TaN)、窒化クロム(Cr_2N)、窒化モリブデン(MoN)、および窒化タングステン(WN)などの、1種の金属元素と窒素とからなる窒化物が挙げられる。

20

【0042】

また、上記第4化合物の他の具体例としては、窒化チタンジルコニウム($TiZrN$)、窒化チタンハフニウム($TiHfN$)、窒化チタンバナジウム($TiVN$)、窒化チタンニオブ($TiNbN$)、窒化チタンタンタル($TiTaN$)、窒化チタンクロム($TiCrN$)、窒化チタンモリブデン($TiMoN$)、窒化チタンタングステン($TiWN$)、窒化ジルコニウムハフニウム($ZrHfN$)、窒化ジルコニウムバナジウム($ZrVN$)、窒化ジルコニウムニオブ($ZrNbN$)、窒化ジルコニウムタンタル($ZrTaN$)、窒化ジルコニウムクロム($ZrCrN$)、窒化ジルコニウムモリブデン($ZrMoN$)、窒化ジルコニウムタングステン($ZrWN$)、窒化ハフニウムバナジウム($HfVN$)、窒化ハフニウムニオブ($HfNbN$)、窒化ハフニウムタンタル($HfTaN$)、窒化ハフニウムクロム($HfCrN$)、窒化ハフニウムモリブデン($HfMoN$)、窒化ハフニウムタングステン($HfWN$)、窒化バナジウムニオブ($VNbN$)、窒化バナジウムタンタル($VTaN$)、窒化バナジウムクロム($VCrN$)、窒化バナジウムモリブデン($VMoN$)、窒化バナジウムタングステン(VWN)、窒化ニオブタンタル($NbTaN$)、窒化ニオブクロム($NbCrN$)、窒化ニオブモリブデン($NbMoN$)、窒化ニオブタングステン($NbWN$)、窒化タンタルクロム($TaCrN$)、窒化タンタルモリブデン($TaMoN$)、窒化タンタルタングステン($TaWN$)、窒化クロムモリブデン($CrMoN$)、窒化クロムタングステン($CrWN$)、および窒化モリブデンクロム($MoWN$)のような、2種の金属元素と窒素とからなる窒化物が挙げられる。また、酸化チタン(TiO_2)、酸化ジルコニウム(ZrO_2)、酸化ハフニウム(HfO_2)、酸化バナジウム(V_2O_5)、酸化ニオブ(Nb_2O_5)、酸化タンタル(Ta_2O_5)、 Cr_2O_3 、酸化モリブデン(MoO_3)、および酸化タングステン(WO_3)などの酸化物が挙げ

30

40

50

られる。

【0043】

上記第1金属の具体例としては、Co、Niなどの上記に列挙される単体金属の他、 $CoSi_2$ 、 Ti_3Al 、 $TiAl$ 、 $TiAl_3$ 、 $TiSi_2$ 、 Ti_5Si_3 、 Ti_5Si_4 、 $TiSi$ 、 Ti_3Si などの合金が挙げられる。

【0044】

第2の実施形態

第2の実施形態に係る工具は、第1の実施形態に係る焼結体を用いた工具である。上述のように、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体は、硬度、耐久損性および耐酸化性といった特性に優れるため、これを用いた工具もまた、これらの特性に優れることとなる。

10

【0045】

第2の実施形態に係る工具としては、たとえば、エンドミル、フライス加工用刃先交換型切削チップ、旋削加工用刃先交換型切削チップを例示することができる。また、工具は、その全体が上記焼結体により構成されていてもよく、その一部（たとえば、刃先部分）が上記焼結体により構成されていてもよい。

【0046】

工具の全体が上記焼結体からなる場合、焼結体を所望の形状に加工することにより、工具を作製することができる。また、工具の一部が上記焼結体からなる場合、工具を構成する基体の所望の位置に焼結体を接合することにより、工具を作製することができる。なお、焼結体の接合方法は特に制限されないが、基体から焼結体が離脱することを抑制する観点から、基体と焼結体との間に、基体と焼結とを強固に結合させるための接合層を介在させることが好ましい。

20

【0047】

第3の実施形態

第3の実施形態に係る焼結体の製造方法は、Ti、AlおよびSiの各元素を含む第1粒子を準備する工程（準備工程）と、第1粒子を処理して、Ti、Al、Si、OおよびNの各元素からなる第2粒子を作製する工程（処理工程）と、第2粒子を焼結して、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を作製する工程（焼結工程）と、を備える。また、上記処理工程は、第1粒子を加熱する工程（加熱工程）と、加熱後の第1粒子を急冷する工程（急冷工程）とを備える。以下、各工程について、図1および図2を用いながら説明する。

30

【0048】

（準備工程）

図1を参照し、まず、ステップS1の準備工程において、Ti、AlおよびSiの各元素を含む第1粒子を準備する。

【0049】

第1粒子は、第1化合物の原料となる原料粒子である。特に、第1化合物を構成するTi、Al、Si、OおよびNのうちのTi、AlおよびSiといった金属元素は、第1粒子のみから供給される。このため、第1粒子は、少なくとも、目的とする第1化合物の組成と同様のTi、AlおよびSiの組成比を具備する必要がある。一方、第1化合物を構成するTi、Al、Si、OおよびNのうちのOおよびNといった非金属元素は、第1粒子から供給される他、後述する処理工程での雰囲気（窒素雰囲気等）からも供給され得る。このため、第1粒子は、必ずしも、第1化合物の組成と同等のOおよびNを有する必要はない。

40

【0050】

第1粒子として、特定の組成を有する1種の原料粒子を用いることによっては、第1化合物におけるTi、AlおよびSiの狙いの組成比を具備することが難しい場合には、組成の異なる2種以上の原料粒子が混合された第1粒子を用いればよい。

【0051】

50

上記原料粒子としては、たとえば、Ti粒子、Al粒子、Si粒子などの1種の元素からなる粒子、Ti、AlおよびSiのうちの2種または3種の元素からなる粒子が挙げられる。上記2種の元素からなる粒子としては、Ti₃Al、TiAl、TiAl₃などのTiおよびAlからなる粒子、TiSi、Ti₃Si、TiSi₂、Ti₅Si₃、Ti₅Si₄などのTiおよびSiからなる粒子、AlSi合金などのAlおよびSiからなる粒子が挙げられる。上記3種の元素からなる粒子としては、TiAlSi合金などが挙げられる。

【0052】

また、上記原料粒子として、Ti、AlおよびSiからなる群より選択される1種以上の窒化物、酸化物、酸窒化物からなる粒子が挙げられる。具体的には、TiN、TiO₂、TiO、TiONなどのTiの窒化物、酸化物または酸窒化物からなる粒子、AlN、Al₂O₃、AlONなどのAlの窒化物、酸化物または酸窒化物からなる粒子、Si₃N₄、SiO₂、SiONなどのSiの窒化物、酸化物または酸窒化物からなる粒子、SiAlON、Si₂Al₃O₁₃などが挙げられる。

10

【0053】

原料粒子として、Ti、AlおよびSiの各元素のうち2種以上の元素からなる原料粒子を用いた場合、後述する処理工程において、より均一な組成の第1粒子を生成することができる。また、第1粒子として、Ti、AlおよびSiからなる群より選択される1種以上の窒化物、酸化物、酸窒化物からなる原料粒子を用いた場合、後述する処理工程で第1粒子に付与すべきNおよびOの量を容易に調整することができる。

20

【0054】

また、第1粒子の平均粒径は10 μm以下であることが好ましい。このような粒径の第1粒子を用いた場合、後述する処理工程において、粒子間の反応性をより高めることができ、目的とする組成の第2粒子を多く含む粒子を作製することができる。本明細書において、粒子の平均粒径とは、レーザー回折法などの公知の粒度分布測定法により測定された粒子の粒度分布に基づくメディアン径をいう。

【0055】

本工程において準備された第1粒子は、後述する処理工程に供するために加圧成形されることが好ましい。加圧成形の方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。

30

【0056】

(処理工程)

次に、図1のステップS2の処理工程において、第1粒子を処理して、Ti、Al、Si、OおよびNの各元素からなる第2粒子を作製する。本工程は、第1粒子を加熱する工程(加熱工程)と、加熱後の第1粒子を急冷する工程(急冷工程)とを備える。これについて、図2を用いながら説明する。

【0057】

図2を参照し、まず、ステップS21の加熱工程において、第1粒子が加熱される。この加熱工程により、第1粒子における不足分のNが付与される。なお、「不足分のN」とは、第1粒子における窒素元素の組成比と、第1化合物におけるTiAlSiON化合物の狙いの組成比との差に相当する。

40

【0058】

この加熱工程においては、第1粒子からなる粉体、または第1粒子が加圧成形されることによって形成された成形体が、真空雰囲気下、窒素雰囲気下、アルゴン雰囲気下に置かれることになる。第1粒子が置かれる雰囲気をいずれの雰囲気下とするかは、第1粒子の組成により適宜選択される。

【0059】

たとえば、第1粒子がTi、AlおよびSiの各元素の他にOを含み、Oの含有量が第1化合物において狙いとされる量を満たす場合、第1粒子は、窒素ガスを含む雰囲気下に置かれることになる。また、たとえば、第1粒子がTi、AlおよびSiの各元素の他に

50

NおよびOを含み、NおよびOの各含有量が第1化合物において狙いとされる量を満たす場合、第1粒子は、アルゴン雰囲気下または真空雰囲気下に置くことができる。

【0060】

なお、第1粒子が、組成上、第1化合物において狙いとされるOの量を満たさない場合であっても、第2粒子においては狙いとされるOの量を満たすこととなることが、本発明者らの検討により分かっている。これは、第1粒子の表面に吸着されている酸素が存在し、加熱工程によってこの酸素が第1粒子に取り込まれ、その酸素量が不足分のOを満たす量に達するためである。

【0061】

加熱工程における加熱温度、気圧、各ガスの分圧は、適宜調整されるが、たとえば、加熱温度は1500以上が好ましく、気圧は0.1気圧以上が好ましい。

10

【0062】

次に、ステップS22の急冷工程において、上記加熱工程で加熱されることによりNおよびOが付与された第1粒子からなる粉体、または第1粒子の成形体が冷却される。なお、以下、上記加熱工程を経ることによってNおよびOが付与された第1粒子からなる粉体、または第1粒子の成形体を第2粒子前駆体という。

【0063】

急冷工程における第2粒子前駆体の冷却速度は、少なくとも炉冷による冷却速度よりも大きく、100 / sec以上であることが好ましく、200 / sec以上であることがより好ましい。なお、炉冷による冷却速度は通常20 / min程度である。

20

【0064】

上記急冷工程により、Ti、Si、Al、OおよびNからなる第2粒子を得ることができる。具体的には、第2粒子は、Ti、Si、Al、OおよびNからなり、かつその全てまたはその大部分はTiAlSiON化合物からなる。第2粒子中に含まれるTiAlSiON化合物の組成比は、第1化合物に狙いとされるTiAlSiON化合物の組成比とほぼ一致する。

【0065】

なお、第1粒子の成形体を用いて上記加熱工程および上記急冷工程を実行した場合、急冷工程後に得られるものは、Ti、Al、Si、OおよびNからなる構造体である。この構造体の組成は第2粒子と一致する、換言すれば、構造体は第2粒子からなるため、このように構造体を得る場合についても第2粒子を得るものとする。

30

【0066】

なお、上記構造体をそのまま後述する焼結工程に用いることもできるが、焼結効率をあげ、かつ均一に焼結を行うためには、この構造体を粉砕して粒子状の第2粒子を得ることが好ましい。この粉砕方法は特に制限されず、たとえば、公知の方法で粗粉砕し、その後、振動ミルまたは回転ミルで粉砕媒体を衝突させてさらに粉砕する方法を採用することができる。この粉砕を経ることによって、粒状の第2粒子を得ることができる。

【0067】

ステップS2の処理工程においては、上述のように、加熱工程と急冷工程を連続的に行うことにより、第2粒子を得ることができる。これは以下の理由による。すなわち、加熱工程後に急冷工程を連続して実行しない場合、狙いとされる組成を満たさない組成からなる粒子が生成される傾向がある。たとえば、加熱炉を用いて第1粒子を加熱し、その後、加熱後の第1粒子(第2粒子前駆体)を急冷工程に供することなく単に炉冷した場合、加熱された第1粒子の温度は極めてゆっくりと低下することとなる。この場合、加熱工程で生成されたTiAlSiON化合物からSiまたはAlが脱落し易くなり、結果的に、第1化合物において狙いとされる組成を満たさない粒子が生成されてしまう。これに対し、加熱工程後に連続して急冷工程を実行した場合、このような元素の抜けを効果的に抑制することができる。上記のような意図しない組成の粒子の生成を抑制することができる。

40

【0068】

上述のような加熱工程および急冷工程を連続して実行できる方法としては、(1)カー

50

ボンヒータ等の熱源を用いて所望の雰囲気下の反応室内で第1粒子を加熱し、続いて雰囲気ガスを排気した後、Arなどの冷却ガスを導入する方法、(2)第1粒子を所望の雰囲気下の反応室内で燃焼合成させる方法、(3)第1粒子を所望の雰囲気下の反応室内で高温プラズマ中に通過させる方法、などを挙げることができる。

【0069】

上記(1)の方法を用いた場合の加熱工程における好ましい条件を以下に示す。また、冷却速度も100 /sec以上とすることができ、さらには200 /sec以上とすることができる。

加熱温度：1500 以上2000 以下

気圧：0.1気圧以上

加熱時間：1時間以上。

10

【0070】

上記(2)の方法を用いた場合の加熱工程における好ましい条件を以下に示す。また、冷却速度も100 /min以上とすることができ、さらには200 /min以上とすることができる。

加熱温度：2000 以上3000 以下

気圧：1.0気圧以上

加熱時間：3秒以上。

【0071】

上記(3)の方法を用いた場合の加熱工程における好ましい条件を以下に示す。また、冷却速度も500 /sec以上とすることができ、さらには1000 /sec以上とすることができる。

加熱温度：2000 以上5000 以下

気圧：0.1気圧以上

加熱時間：0.5秒以上。

20

【0072】

なお、本工程により第2粒子が作製されるが、本工程の一回の実行で所望の組成を有する第2粒子の作製が困難な場合には本工程を繰り返し行ってもよい。また、その場合に、必ずしも同じ処理方法を繰り返す必要はなく、たとえば、上記(1)~(3)の方法を適宜組み合わせ、本工程を実行してもよい。

30

【0073】

(焼結工程)

次に図1のステップS3の焼結工程において、第2粒子を焼結して、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を作製する。

【0074】

第2粒子の焼結は、第2粒子を加圧成形した後に行うことが好ましい。また、加圧成形と同時にしてもよい。加圧成形と焼結とを同時に行う方法としては、ホットプレス(HP)法、放電プラズマ焼結(SPS)法、超高压焼結法が挙げられる。また、冷間静水圧加圧(CIP)法で成形した後、さらに熱間静水圧加圧(HIP)法を用いて焼結することもできる。なお、上記のような加圧焼結法の代わりに常圧焼結法を用いてもよい。

40

【0075】

本工程は、焼結体における第1化合物の組成が第2粒子の組成から大きく変化することを抑制するために、不活性雰囲気下で実行されることが好ましい。また、焼結時の圧力は40MPa以上20GPa以下であることが好ましく、温度は1100 以上2500 以下であることが好ましい。焼結時の温度が1100 未満の場合には、焼結が不十分となり、緻密な焼結体が得られない傾向があり、2500 を超える場合には、焼結体における第1化合物の組成が第2粒子の組成から大きく変化する懸念があるためである。また、焼結に要する時間は第2粒子の量(体積)、温度等によって異なるが、たとえば、1100 以上2500 以下の焼結温度の際には、15分以上とすることができる。

【0076】

50

上記焼結工程が行われることにより、第2粒子が焼結され、これにより、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物からなる焼結体を得ることができる。

【0077】

以上詳述した第3の実施形態に係る製造方法によれば、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物を含む焼結体を製造することができるため、高い耐摩耗性、高い耐欠損性および高い耐酸化性を有する焼結体を提供することができる。また、製造された焼結体をレーザー、ワイヤー放電などによって切断して所望の形状に加工することにより、この焼結体からなる工具、またはこの焼結体を用いた工具を提供することができる。

【0078】

第4の実施形態

第4の実施形態に係る焼結体の製造方法は、図3に示すように、焼結工程の前に、処理工程により作製された第2粒子と第3粒子とを混合する工程（混合工程）を備える点で、第3の実施形態と異なる。以下、図3を用いながらこの混合工程について説明する。なお、図3におけるステップS31の準備工程、ステップS32の処理工程、およびステップS34の焼結工程は、第3の実施形態のステップS1～S3のそれぞれと同様であるため、その説明は繰り返さない。

【0079】

（混合工程）

図3を参照し、ステップS33の混合工程において、ステップS32の処理工程により得られた第2粒子と、第2粒子と組成の異なる第3粒子とが混合される。

【0080】

第3粒子は、第5化合物、第6化合物、第7化合物および第2金属からなる群より選択される1種以上からなる粒子である。

【0081】

第5化合物は、立方晶窒化ホウ素である。第6化合物は、AlおよびSiの1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、具体的には、第1の実施形態にて詳述した第1化合物と同様の化合物が挙げられる。第7化合物は、周期表の第4族元素、第5族元素および第6族元素からなる群より選択される1種以上の元素と、B、C、N、およびOからなる群より選択される1種以上の元素との化合物であり、具体的には、第1の実施形態にて詳述した第2化合物と同様の化合物が挙げられる。第2金属は、Ti、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Al、Sn、Si、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、WおよびPbからなる群より選択される1種以上からなる金属であり、具体的には、第1の実施形態にて詳述した第1金属と同様の金属が挙げられる。

【0082】

第3粒子は、特に、立方晶窒化ホウ素を含むことが好ましい。たとえば、第3粒子が立方晶窒化ホウ素からなる場合、このような第3粒子と第2粒子との混合物を焼結すると、第2化合物の大部分は硬度に優れた立方晶窒化ホウ素となる。また、第3粒子が立方晶窒化ホウ素からなる場合、製造された焼結体の第2化合物において、第1化合物との界面近傍に、 Si_3N_4 を存在させることができる。この場合、両粒子（第1化合物からなる粒子と第2化合物からなる粒子）を強固に結合させることができ、粒子の脱落による摩耗を軽減させることができる。

【0083】

本工程において、第2粒子と第3粒子との混合粒子における第3粒子の含有量を90体積%以下として実行することが好ましい。第3粒子の含有量が90体積%を超える場合、焼結体中の第1化合物の割合が低くなり過ぎるために、第1化合物に由来する効果が顕著に低下する傾向にある。

【0084】

また、第2粒子と第3粒子との混合粒子における第3粒子の含有量を50体積%以下として実行することがより好ましい。特に、第3粒子が金属粒子（金属元素のみからなる粒

10

20

30

40

50

子)を含む場合、混合粒子における金属粒子の含有量を20体積%以下とすることが好ましい。混合粒子における金属粒子の含有量が20体積%を超える場合、製造される焼結体の硬度が低下する傾向にある。

【0085】

上記混合工程が行われることにより、第2粒子および第3粒子からなる混合物が得られ、これをステップS34の焼結工程において焼結することにより、第1化合物と第2化合物とからなる焼結体を得ることができる。

【0086】

ここで、本実施形態において、第3粒子のほとんどはその組成を維持したまま、第2化合物に含まれることになる。すなわち、第3粒子の組成と、第2化合物に含まれる化合物および/または金属の組成とは概ね一致する。しかし、第2化合物中には、第3粒子の組成と異なる組成の化合物も含まれる場合がある。これは、第2粒子と第3粒子との界面において、第2粒子を構成する元素と第3粒子を構成する元素とが結びつくことによって化合物が生成されるためである。

10

【0087】

以上詳述した第4の実施形態に係る製造方法によれば、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第1化合物と、第1化合物と組成の異なる第2化合物とを含む焼結体を製造することができる。このような焼結体は、第1化合物に起因する特性に加え、第2化合物に起因する特性を発揮することができる。したがって、第4の実施形態に係る製造方法によれば、高い耐摩耗性、高い耐欠損性および高い耐酸化性を有し、かつ切削条件の各種ニーズ

20

に対応した工具を提供することができる。

【実施例】

【0088】

本発明を実施例および比較例によりさらに具体的に説明する。ただし、これらの実施例および比較例により本発明が限定されるものではない。

【0089】

[検討1]

上述の準備工程、および処理工程を実行することにより、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第2粒子を作製し、その特性について評価した。

【0090】

実施例1～58

(準備工程)

第1粒子として、下記表1に示す原料粒子A、原料粒子Bおよび原料粒子Cとが混合された原料粒子を準備した。たとえば、実施例1においては、原料粒子AとしてのTi粒子、原料粒子BとしてのAl粒子、および原料粒子CとしてのSi粒子を、混合割合(原料粒子A:原料粒子B:原料粒子C)が質量比で80:10:10となるように混合させることにより、第1粒子を準備した。なお、実施例1～58において準備された各第1粒子の平均粒径は、表1に示す通りであった。そして、準備した各第1粒子を加圧成形することにより、第1粒子からなる成形体を作製した。

30

【0091】

40

【表 1】

	第 1 粒子								
	A		B		C		混合比(wt%)		
	組成	粒径(μm)	組成	粒径(μm)	組成	粒径(μm)	A	B	C
実施例 1	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 2	Ti	45	Al	45	Si	45	80	10	10
実施例 3	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 4	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 5	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 6	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 7	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 8	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 9	Ti	45	Al	45	Si	45	80	10	10
実施例 10	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 11	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 12	Ti	45	Al	45	Si	45	80	10	10
実施例 13	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 14	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 15	Ti	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 16	Ti	10	Al	10	Si ₃ N ₄	10	80	10	10
実施例 17	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si	10	80	10	10
実施例 18	TiN	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 19	Ti	10	Al	10	Si ₃ N ₄	10	80	10	10
実施例 20	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si	10	80	10	10
実施例 21	TiN	10	Al	10	Si	10	50	25	25
実施例 22	Ti	10	Al	10	Si ₃ N ₄	10	80	10	10
実施例 23	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si	10	80	10	10
実施例 24	TiN	10	Al	10	Si	10	80	10	10
実施例 25	Ti ₃ Al	10	Si ₃ N ₄	10	-	-	90	10	0
実施例 26	Ti ₃ Al	45	Si ₃ N ₄	10	-	-	90	10	0
実施例 27	Ti ₃ Al	10	Si ₃ N ₄	1	-	-	90	10	0
実施例 28	Ti ₃ Al	10	Si	10	-	-	88	12	0
実施例 29	Ti ₃ Si	10	Al	10	-	-	40	60	0
実施例 30	Ti ₃ Si	10	Al ₂ O ₃	10	-	-	40	60	0
実施例 31	Ti ₃ Si	10	AlN	10	-	-	40	60	0
実施例 32	Ti	10	AlSi	10	-	-	20	80	0
実施例 33	TiN	10	AlSi	10	-	-	20	80	0
実施例 34	Ti	10	SiAlON	10	-	-	50	50	0
実施例 35	Ti ₃ Al	10	SiO ₂	10	-	-	50	50	0
実施例 36	Ti	10	AlN	10	SiO ₂	10	20	60	20
実施例 37	Ti	10	AlN	10	SiO ₂	10	20	60	20
実施例 38	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	50	25	25
実施例 39	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	50	25	25
実施例 40	Ti	10	Al	10	Si	10	94	3	3
実施例 41	Ti	10	Al	10	Si	10	96	1	3
実施例 42	Ti	10	Al	10	Si	10	96	3	1
実施例 43	Ti	10	Al	10	Si	10	58	4	38
実施例 44	Ti	10	Al	10	Si	10	55	4	41
実施例 45	Ti	10	Al	10	Si	10	63	1	36
実施例 46	Ti	10	Al	10	Si	10	42	16	42
実施例 47	Ti	10	Al	10	Si	10	37	21	42
実施例 48	Ti	10	Al	10	Si	10	37	16	47
実施例 49	Ti	10	Al	10	Si	10	38	58	4
実施例 50	Ti	10	Al	10	Si	10	47	52	1
実施例 51	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	61	2	37
実施例 52	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	65	2	33
実施例 53	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	62.5	0.5	37
実施例 54	Ti	10	Al	10	SiO ₂	10	60	20	20
実施例 55	Ti	10	Al	10	SiO ₂	10	60	20	20
実施例 56	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	46	18	36
実施例 57	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	49	18	33
実施例 58	Ti	10	Al ₂ O ₃	10	Si ₃ N ₄	10	49	21	30

【 0 0 9 2 】

(処理工程)

次に、作製された成形体を用いて処理工程を実行することにより、Ti、Al、Si、OおよびNからなる第2粒子を作製した。各実施例における処理工程としては、(1)カーボンヒータ等の熱源を用いて所望の雰囲気下の反応室内で第1粒子を加熱し、続いて雰

10

20

30

40

50

囲気ガスを排気した後、Arなどの冷却ガスを導入する方法（表2において「ガス急冷」と示す）、（2）第1粒子を所望の雰囲気下の反応室内で燃焼合成させる方法（表2において「燃焼合成」と示す）、（3）第1粒子を所望の雰囲気下の反応室内で高温プラズマ中に通過させる方法（表2において「高温プラズマ」と示す）のいずれかの方法を用いた。各実施例における処理工程の条件を下記表2に示す。

【0093】

【表 2】

	処理条件					
	方法	温度	原料ガス	加熱時間	ガス圧	冷却速度 [°C/sec]
実施例 1	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 2	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 3	ガス急冷	1500°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 4	ガス急冷	1400°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 5	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	0.1 気圧	100
実施例 6	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	0.05 気圧	100
実施例 7	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 8	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 9	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 10	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	10 気圧	200
実施例 11	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 12	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 13	高温プラズマ	3000°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 14	高温プラズマ	4500°C	窒素	0.5 秒	0.1 気圧	1000
実施例 15	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	500
実施例 16	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 17	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 18	ガス急冷	1800°C	窒素	1 時間	3 気圧	100
実施例 19	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 20	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 21	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 22	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 23	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 24	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 25	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 26	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 27	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 28	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 29	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 30	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 31	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 32	燃焼合成	3000°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 33	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 34	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 35	燃焼合成	2500°C	窒素	15 秒	100 気圧	200
実施例 36	ガス急冷	1800°C	アルゴン	1 時間	1 気圧	100
実施例 37	ガス急冷	1800°C	真空雰囲気	1 時間	1 気圧	100
実施例 38	ガス急冷	1800°C	アルゴン	1 時間	1 気圧	100
実施例 39	ガス急冷	1800°C	真空雰囲気	1 時間	1 気圧	100
実施例 40	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 41	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 42	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 43	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 44	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 45	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 46	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 47	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 48	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 49	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 50	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 51	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 52	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 53	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 54	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 55	高温プラズマ	4500°C	窒素	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 56	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 57	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000
実施例 58	高温プラズマ	4500°C	アルゴン	1 秒	0.1 気圧	1000

【0094】

上記表 2 を参照しながら、上記(1)~(3)の各方法について、それぞれ実施例 1、8、11 を用いながら具体的に説明する。

【0095】

上記(1)の方法による実施例 1 の処理工程は、以下のように実行された。まず、ガス

10

20

30

40

50

供給部およびガス排出部を有する坩堝内に成形体を配置した。そして、坩堝内に窒素ガスを流入して、坩堝内のガス圧を3気圧とし、坩堝の周囲に配置されたカーボンヒータにより坩堝内を1800で1時間加熱した。これにより、実施例1の第1粒子は、窒素雰囲気下、1800で60分間加熱工程に供された。

【0096】

加熱工程終了後、真空ポンプにより雰囲気ガスを排気した後、Arを3気圧まで導入することにより冷却し、試料温度を室温(25)以下にまで冷却させた。このときの冷却速度は100/sec程度であった。これにより、第2粒子前駆体が急冷工程に供され、Ti、Al、Si、OおよびNからなる構造体が得られた。

【0097】

実施例2~7、16~18および36~39においても、各種条件を表2に示すように変更した以外は、実施例1と同様の方法により処理工程を実行した。

【0098】

上記(2)の方法による実施例8の処理工程は、以下のように実行された。まず、ガス供給部およびガス排出部を有する圧力容器内に成形体を配置した。そして、圧力容器内の窒素ガスの圧力を10MPa(100気圧)にまで昇圧し、タングステンフィラメント等の熱源を用いて成形体の一部を加熱させることにより、第1粒子を燃焼合成させた。このときの燃焼時間は15秒であり、加熱温度は3000であった。これにより、実施例8の第1粒子は、窒素雰囲気下、3000で15秒間加熱工程に供された。

【0099】

また、燃焼合成において、熱源は着火時に存在するのみであるため、燃焼時間経過後、圧力容器内の温度は直ちに低下し、これに伴い燃焼合成後の第1粒子(第2粒子前駆体)の温度は早急に室温にまで低下した。このときの冷却速度は200/sec程度であった。これにより、第2粒子前駆体が急冷工程に供され、Ti、Al、Si、OおよびNからなる構造体が得られた。

【0100】

実施例9、10、19~21、および25~35においても、各種条件を表2に示すように変更した以外は、実施例8と同様の方法により処理工程を実行した。

【0101】

上記(3)の方法による実施例11の処理工程は、以下のように実行された。まず、ガス圧が0.1気圧となるように圧力容器内に窒素ガスを供給しながら、圧力容器内に設けられたプラズマ発生用電極から4500の高温プラズマを発生させ、プラズマ中に第1粒子を通過させた。このときの処理時間は1秒であった。これにより、実施例11の第1粒子は、窒素雰囲気下、4500で1秒間加熱工程に供された。

【0102】

また、加熱工程後の急冷工程における冷却速度は1000/sec程度であった。これにより、第2粒子前駆体が急冷工程に供され、Ti、Al、Si、OおよびNからなる構造体が得られた。なお、急冷工程は、加熱工程が終了することによって連続的に実施された。

【0103】

実施例12~15、22~24、40~58においても、各種条件を表2に示すように変更した以外は、実施例1と同様の方法により処理工程を実行した。

【0104】

比較例1および2

比較例1においては、TiNからなる粉末を作製し、比較例2においては、TiAlNからなる粉末を作製した。具体的には、比較例1において、粒径が1μmのTiN(原子比は1:0.97)粒子を準備した。また、比較例2において、粒径が1μmのAlTiN(原子比は0.5:0.5:1)粒子を準備した。

【0105】

各粒子の特性評価

10

20

30

40

50

実施例 1 ~ 5 8 の各粒子の組成、ならびに、実施例 1 ~ 5 8、比較例 1 および 2 の各粒子の耐酸化性について確認した。

【 0 1 0 6 】

(組成)

実施例 1 ~ 5 8 で得られた第 2 粒子に含まれる生成物 (化合物) および T i A l S i O N 化合物の含有率 (体積 %) を表 3 に示す。含有される各生成物のうち、T i A l S i O N 化合物以外の化合物の組成は、粒子の断面および表面を X R D (X ray diffraction) 装置で分析することにより同定し、T i A l S i O N 化合物の組成は、E D X (エネルギー分散型 X 線分光法) を行うことにより算出した。また得られた粉末の断面が観察できるように加工を行い、走査型電子顕微鏡で粉末の断面を観察し、粉末中の色の濃淡で T i S i A l O N 化合物を判別した。その際、予め元素分析により、各化合物を特定した。さらにその視野に対し、二値化処理を行い、T i S i A l O N 化合物を定量化した。

【 0 1 0 7 】

【表3】

	第2粒子					第1化合物 含有率 (体積%)	評価 酸化開始温度 (°C)
	XRD 生成物(wt%)	$Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$					
		a	b	x	y		
実施例 1	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.05	0.90	86	550
実施例 2	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.90	87	550
実施例 3	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.85	80	540
実施例 4	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.80	72	540
実施例 5	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	82	530
実施例 6	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.60	94	530
実施例 7	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.80	84	540
実施例 8	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.90	82	550
実施例 9	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.90	72	550
実施例 10	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.60	76	530
実施例 11	TiAlSiON	0.15	0.15	0.01	0.70	100	530
実施例 12	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	85	530
実施例 13	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	77	530
実施例 14	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.60	91	530
実施例 15	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	84	540
実施例 16	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.16	0.09	0.01	0.90	91	550
実施例 17	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.09	0.16	0.30	0.50	93	530
実施例 18	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.18	0.18	0.01	0.90	78	560
実施例 19	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.16	0.09	0.01	0.90	88	550
実施例 20	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.09	0.16	0.30	0.50	81	550
実施例 21	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.35	0.34	0.01	0.90	83	700
実施例 22	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.16	0.09	0.01	0.90	81	550
実施例 23	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.09	0.16	0.30	0.50	85	550
実施例 24	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.18	0.18	0.01	0.90	75	570
実施例 25	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	92	550
実施例 26	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	82	550
実施例 27	TiAlSiON, Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	99	550
実施例 28	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.24	0.05	0.01	0.90	98	550
実施例 29	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.70	0.07	0.01	0.90	60	680
実施例 30	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.56	0.11	0.30	0.50	51	680
実施例 31	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.61	0.10	0.01	0.90	77	690
実施例 32	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.44	0.44	0.01	0.90	88	700
実施例 33	TiAlSiON, AlN, Si ₃ N ₄	0.44	0.44	0.01	0.90	82	700
実施例 34	TiAlSiON, SiAlON	0.08	0.42	0.20	0.70	91	650
実施例 35	TiAlSiON, AlN, SiO ₂	0.15	0.41	0.30	0.50	76	650
実施例 36	TiAlSiON, AlN, SiO ₂	0.70	0.15	0.50	0.50	76	700
実施例 37	TiAlSiON, AlN, SiO ₂	0.66	0.15	0.50	0.50	80	700
実施例 38	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.23	0.26	0.50	0.50	91	570
実施例 39	TiAlSiON, Al ₂ O ₃ , Si ₃ N ₄	0.23	0.26	0.50	0.50	80	570
実施例 40	TiAlSiON	0.05	0.05	0.01	0.90	100	480
実施例 41	TiAlSiON	0.01	0.05	0.01	0.90	100	460
実施例 42	TiAlSiON	0.05	0.01	0.01	0.90	100	460
実施例 43	TiAlSiON	0.05	0.50	0.01	0.90	100	550
実施例 44	TiAlSiON	0.05	0.55	0.01	0.90	100	500
実施例 45	TiAlSiON	0.01	0.50	0.01	0.90	100	490
実施例 46	TiAlSiON	0.20	0.50	0.01	0.90	100	700
実施例 47	TiAlSiON	0.25	0.50	0.01	0.90	100	650
実施例 48	TiAlSiON	0.20	0.55	0.01	0.90	100	650
実施例 49	TiAlSiON	0.70	0.05	0.01	0.90	100	680
実施例 50	TiAlSiON	0.70	0.01	0.01	0.90	100	610
実施例 51	TiAlSiON	0.02	0.40	0.05	0.50	100	600
実施例 52	TiAlSiON	0.02	0.30	0.05	0.45	100	580
実施例 53	TiAlSiON	0.01	0.38	0.01	0.50	100	530
実施例 54	TiAlSiON	0.31	0.14	0.01	0.99	100	520
実施例 55	TiAlSiON	0.31	0.14	0.005	0.99	100	480
実施例 56	TiAlSiON	0.17	0.37	0.50	0.50	100	560
実施例 57	TiAlSiON	0.17	0.34	0.50	0.45	100	520
実施例 58	TiAlSiON	0.20	0.31	0.60	0.40	100	520

【0108】

表3の「生成物」の欄に関し、たとえば、「TiAlSiON」はTiAlSiON化合物を示し、「Si₃N₄」はSi₃N₄化合物を示す。TiAlSiON化合物の組成は、「Ti_(1-a-b)Al_aSi_bO_xN_y」の欄に記す。また、TiAlSiON化合物の含有率は、「第1化合物含有率」の欄に記す。

10

20

30

40

50

【0109】

表3を参照し、実施例1～58において、焼結体がTiAlSiON化合物を含む第1化合物からなることが確認された。また、 $Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$ （ただし、 a 、 b 、 x および y は、それぞれ、 $0.01 \leq a \leq 0.70$ 、 $0.01 \leq b \leq 0.55$ 、 $0.06 \leq a+b \leq 0.88$ 、 $0.005 \leq x \leq 0.6$ 、 $0.4 \leq y \leq 0.995$ 、および $0.5 < x+y \leq 1$ を満たすことも確認された。

【0110】

（耐酸化性）

各実施例1～58、比較例1および2の各粒子を、それぞれ0.5mgずつ秤量した各試験体を準備した。この各試験体を大気雰囲気下で室温（25℃）から1400℃まで徐々に昇温しながら示差熱分析を行った。そして、各試験体の重量変化が確認された最も低い温度を酸化開始温度とした。各実施例1～58の結果を表3に示す。

10

【0111】

表3を参照し、実施例1～58の各第2粒子の酸化開始温度は、すべて460℃以上であった。一方、比較例1および2の各粒子の酸化開始温度は400℃および450℃であった。なお表3において、「酸化開始温度」が高いほど、耐酸化性に優れることとなる。

【0112】

〔検討2〕

上述の実施例1、11、27の各粒子および比較例1、2の各粒子をそれぞれ第2粒子とし、第2粒子と第3粒子とを混合する混合工程と、焼結工程を実行することにより、焼結体を作製し、その特性について評価した。

20

【0113】

実施例61～125および比較例3～6

（混合工程）

実施例61～125および比較例3～6では、表4および表5に示す第2粒子と第3粒子とを用いて混合工程を実行した。表5を参照し、たとえば、実施例61では、実施例1において作製された第2粒子と立方晶窒化ホウ素（cBN）からなる第3粒子とを、混合割合（第2粒子：第3粒子）が体積比で50：50となるように混合させることにより、混合粒子を準備した。

【0114】

（焼結工程）

次に、得られた混合粒子をタンタル製のカプセルに充填し、プレス機を用いて、下記表4および表5に示す圧力、温度および焼結時間で、焼結処理を行った。

30

【0115】

以上により、実施例61～125において、TiAlSiON化合物を含む第1化合物と第2化合物とを含む焼結体を得られた。また、比較例3～6において、第2粒子由来の化合物と、第3粒子由来の化合物とを含む焼結体を得られた。なお、各焼結体は、直径20mm、高さ1mmの円板形状を有していた。

【0116】

【表 4】

	混合条件					焼結		
	第 2 粒子	第 3 粒子		混合比(体積%)		压力	温度	時間
		化合物	粒径(μm)	第 2	第 3			
実施例 61	実施例 1	cBN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 62	実施例 1	AlN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 63	実施例 1	Al ₂ O ₃	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 64	実施例 1	TiN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 65	実施例 1	TiC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 66	実施例 1	ZrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 67	実施例 1	ZrC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 68	実施例 1	ZrO ₂	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 69	実施例 1	TaN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 70	実施例 1	TaC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 71	実施例 1	CrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 72	実施例 1	WC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 73	実施例 1	NbN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 74	実施例 1	Co	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 75	実施例 1	Cu	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 76	実施例 1	Mo	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 77	実施例 1	cBN	3	20	80	6GPa	1300°C	15 分
実施例 78	実施例 1	cBN	3	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 79	実施例 11	cBN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 80	実施例 11	AlN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 81	実施例 11	Al ₂ O ₃	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 82	実施例 11	TiN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 83	実施例 11	TiC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 84	実施例 11	ZrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 85	実施例 11	ZrC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 86	実施例 11	ZrO ₂	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 87	実施例 11	TaN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 88	実施例 11	TaC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 89	実施例 11	CrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 90	実施例 11	WC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 91	実施例 11	NbN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 92	実施例 11	Co	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 93	実施例 11	Cu	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 94	実施例 11	Mo	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 95	実施例 11	cBN	3	20	80	6GPa	1300°C	15 分
実施例 96	実施例 11	cBN	3	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 97	実施例 27	cBN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 98	実施例 27	AlN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 99	実施例 27	Al ₂ O ₃	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 100	実施例 27	TiN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 101	実施例 27	TiC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 102	実施例 27	ZrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 103	実施例 27	ZrC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 104	実施例 27	ZrO ₂	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 105	実施例 27	TaN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 106	実施例 27	TaC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 107	実施例 27	CrN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 108	実施例 27	WC	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 109	実施例 27	NbN	3	50	50	6GPa	1300°C	15 分
実施例 110	実施例 27	Co	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 111	実施例 27	Cu	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 112	実施例 27	Mo	1	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 113	実施例 27	cBN	3	20	80	6GPa	1300°C	15 分
実施例 114	実施例 27	cBN	3	80	20	6GPa	1300°C	15 分
実施例 115	実施例 27	Al ₂ O ₃	3	50	50	50MPa	1300°C	15 分
実施例 116	実施例 27	TiN	3	50	50	50MPa	1300°C	15 分
実施例 117	実施例 27	ZrO ₂	3	50	50	50MPa	1300°C	15 分
実施例 118	実施例 27	Co	1	50	50	50MPa	1300°C	15 分
実施例 119	実施例 27	-	-	100	0	50MPa	1300°C	15 分
実施例 120	実施例 1	cBN	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分
実施例 121	実施例 1	Al ₂ O ₃	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分
実施例 122	実施例 11	cBN	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分
実施例 123	実施例 11	Al ₂ O ₃	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分
実施例 124	実施例 27	cBN	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分
実施例 125	実施例 27	Al ₂ O ₃	3	9	91	6GPa	1300°C	15 分

【表 5】

	混合条件					焼結		
	第 2 粒子	第 3 粒子		混合比(体積%)		圧力	温度	時間
		化合物	粒径 (μm)	第 2	第 3			
比較例 3	比較例 1	cBN	3	50	50	6GPa	1300°C	15分
比較例 4	比較例 2	cBN	3	50	50	6GPa	1300°C	15分
比較例 5	比較例 1	Co	3	80	20	6GPa	1300°C	15分
比較例 6	比較例 2	Co	3	80	20	6GPa	1300°C	15分

【 0 1 1 8 】

各焼結体の特性評価

10

実施例 6 1 ~ 1 2 5 および比較例 3 ~ 6 の各焼結体の組成、耐摩耗性、耐欠損性について確認した。

【 0 1 1 9 】

(組成)

実施例 6 1 ~ 1 2 5 および比較例 3 ~ 6 で得られた焼結体に含まれる生成物(化合物、金属)および TiAlSiON 化合物の含有率(体積%)を表 6 に、 TiN または TiAlN の含有率(体積%)を表 7 に示す。含有される各生成物のうち、 TiAlSiON 化合物以外の化合物の組成は、焼結体の断面および表面を XRD (X ray diffraction) 装置で分析することにより同定し、 TiAlSiON 化合物の組成は、EDX (エネルギー分散型 X 線分光法) を行うことにより算出した。また得られた焼結体の断面が観察できるように加工を行い、走査型電子顕微鏡で焼結体の断面を観察し、焼結体中の色の濃淡で TiSiAlON 化合物を判別した。その際、予め元素分析により、各化合物を特定した。さらにその視野に対し、二値化処理を行い、 TiSiAlON 化合物を定量化した。

20

【 0 1 2 0 】

【表 6】

	XRD	Ti _(1-a-b) Al _x Si _y O ₂ N _z				第 1 化合物含有率 (体積%)	切削試験結果	
	生成物(vol%)	a	b	x	y		逃げ面摩耗量 (μm)	チップ崩壊量 (μm)
実施例 61	cBN, TiSiAlON, AlN, Si ₃ N ₄ , TiB ₂	0.15	0.15	0.05	0.90	41	67	10
実施例 62	AIN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.05	0.90	44	81	10
実施例 63	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	90	12
実施例 64	TiN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	71	14
実施例 65	TiC, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	69	15
実施例 66	ZrN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	71	13
実施例 67	ZrC, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	73	12
実施例 68	ZrO ₂ , TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	75	10
実施例 69	TaN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	81	14
実施例 70	TaC, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	79	11
実施例 71	CrN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	83	12
実施例 72	WC, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	76	13
実施例 73	NbN, TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN	0.15	0.15	0.05	0.90	44	82	11
実施例 74	TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN, Co, CoSi ₂	0.15	0.15	0.05	0.90	76	92	0
実施例 75	TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN, Cu	0.15	0.15	0.05	0.90	76	93	0
実施例 76	TiSiAlON, Si ₃ N ₄ , AlN, Mo, Mo ₂ N	0.15	0.15	0.05	0.90	16	94	0
実施例 77	cBN, TiSiAlON, AlN, Si ₃ N ₄ , TiB ₂	0.15	0.15	0.05	0.90	71	100	5
実施例 78	TiSiAlON, cBN, AlN, Si ₃ N ₄ , TiB ₂	0.15	0.15	0.05	0.90	47	52	10
実施例 79	cBN, TiSiAlON, TiB ₂ , SiB ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	50	64	10
実施例 80	AIN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	74	7
実施例 81	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	82	11
実施例 82	TiN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	61	14
実施例 83	TiC, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	66	15
実施例 84	ZrN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	68	16
実施例 85	ZrC, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	64	12
実施例 86	ZrO ₂ , TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	65	9
実施例 87	TaN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	79	13
実施例 88	TaC, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	77	13
実施例 89	CrN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	75	11
実施例 90	WC, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	68	16
実施例 91	NbN, TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.70	50	77	10
実施例 92	TiSiAlON, Co, CoSi ₂	0.15	0.15	0.01	0.70	82	99	0
実施例 93	TiSiAlON, Cu	0.15	0.15	0.01	0.70	82	111	0
実施例 94	TiSiAlON, Mo, Mo ₂ N	0.15	0.15	0.01	0.70	71	121	1
実施例 95	cBN, TiSiAlON, TiB ₂ , Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	18	99	8
実施例 96	TiSiAlON, cBN, TiB ₂ , Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.01	0.70	77	43	12
実施例 97	cBN, TiSiAlON, TiB ₂ , Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	47	64	12
実施例 98	AIN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	72	9
実施例 99	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	82	11
実施例 100	TiN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	60	16
実施例 101	TiC, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	64	15
実施例 102	ZrN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	70	16
実施例 103	ZrC, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	64	13
実施例 104	ZrO ₂ , TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	64	8
実施例 105	TaN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	77	14
実施例 106	TaC, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	77	15
実施例 107	CrN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	73	10
実施例 108	WC, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	69	17
実施例 109	NbN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	75	12
実施例 110	TiSiAlON, Co, CoSi ₂	0.23	0.08	0.01	0.90	82	101	0
実施例 111	TiSiAlON, Cu	0.23	0.08	0.01	0.90	82	112	2
実施例 112	TiSiAlON, Mo, Mo ₂ N	0.23	0.08	0.01	0.90	71	120	0
実施例 113	cBN, TiSiAlON, TiB ₂ , Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	18	100	7
実施例 114	TiSiAlON, cBN, TiB ₂ , Si ₃ N ₄	0.23	0.08	0.01	0.90	77	41	14
実施例 115	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	85	21
実施例 116	TiN, TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	69	19
実施例 117	ZrO ₂ , TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.90	50	89	18
実施例 118	TiSiAlON, Co, CoSi ₂	0.23	0.08	0.01	0.90	59	111	0
実施例 119	TiSiAlN	0.23	0.08	0.01	0.90	100	40	17
実施例 120	cBN, TiSiAlON, AlN, Si ₃ N ₄ , TiB ₂	0.15	0.15	0.05	0.9	8	101	18
実施例 121	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON, AlN, Si ₃ N ₄	0.15	0.15	0.05	0.9	9	109	25
実施例 122	cBN, TiSiAlON, TiB ₂	0.15	0.15	0.01	0.7	8	111	14
実施例 123	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON	0.15	0.15	0.01	0.7	9	110	16
実施例 124	cBN, TiSiAlON, TiB ₂	0.23	0.08	0.01	0.9	8	103	17
実施例 125	Al ₂ O ₃ , TiSiAlON	0.23	0.08	0.01	0.9	9	112	18

10

20

30

40

【表 7】

	XRD	$Ti_{(1-a-b)}Al_aSi_bO_xN_y$				TiNまたはTiAlN含有率(体積%)	切削試験結果	
	生成物(vol%)	a	b	x	y		逃げ面摩耗量(μm)	チッピング量(μm)
比較例 3	cBN, TiN, TiB ₂	-	-	-	-	48	131	21
比較例 4	cBN, TiAlN, TiB, AlN	-	-	-	-	47	118	20
比較例 5	TiN, Co	-	-	-	-	80	181	0
比較例 6	TiAlN, Co	-	-	-	-	80	192	0

【0122】

表6および表7の「生成物」の欄に関し、たとえば、「TiAlSiON」はTiAlSiON化合物を示し、「Si₃N₄」はSi₃N₄化合物を示す。TiAlSiON化合物の組成は、「Ti_(1-a-b)Al_aSi_bO_xN_y」の欄に記す。また、TiAlSiON化合物の含有率は、「第1化合物含有率」の欄に記す。

10

【0123】

表6を参照し、実施例61~125において、焼結体がTiAlSiON化合物を含むこと、TiAlSiON化合物が、Ti_(1-a-b)Al_aSi_bO_xN_y(ただし、a、b、xおよびyは、それぞれ、0.01 ≤ a ≤ 0.70、0.01 ≤ b ≤ 0.55、0.06 ≤ a + b ≤ 0.88、0.005 ≤ x ≤ 0.6、0.4 ≤ y ≤ 0.995、および0.5 < x + y < 1を満たすことが確認された。一方、TiAlSiON化合物の含有量は、第2粒子および第3粒子の混合割合から換算するに、わずかに減少がみられる場合が多くみ

20

【0124】

このことから、第2粒子の組成は、焼結工程の前後でかわらないものの、その界面では第3粒子との反応による反応生成物の発生が起こっており、故にその混合割合は、焼結工程前後でわずかな変動が見られたと考えられた。また、第2粒子の組成が焼成前後でかわらないことから、第2粒子に含まれるTiAlSiON化合物と、第1化合物を構成するTiAlSiON化合物は同一の化合物であり、故に、第1化合物の耐酸化性は、第2粒子の耐酸化性に依拠することが分かった。

【0125】

また、実施例61~125の焼結体において、TiAlSiON化合物以外の生成物(化合物または金属)が含まれていた。また、TiAlSiON化合物以外の生成物は、TiAlSiON化合物の界面に存在していることが確認された。

30

【0126】

(耐摩耗性および耐欠損性)

実施例61~125および比較例3~6の焼結体のそれぞれの耐摩耗性および耐欠損性について以下の方法により評価した。

【0127】

まず、各焼結体をレーザーを用いて加工してその形状をISO型番CNGA120408のチップ形状、刃先処理が-25°の角度で、幅0.15mmのチャンファー形状の切削工具を作製した。作製した各切削工具を用いて、以下の切削条件で切削試験を行い、切削工具の平均逃げ面摩耗量(μm)およびチッピング量(μm)を測定した。なお、「チッピング」とは切れ刃に生じた微細な欠けを意味し、「チッピング量」とは、切削工具の刃の厚み方向に関する欠けの幅を意味する。

40

【0128】

被削材：SCM415焼入溝付き鋼(HRC58~62)

(形状：丸棒に1cm間隔に幅2mmの溝をつけたもの)

切削速度：100m/min.

送り速度：0.1mm/rev

切込み量：0.1mm

切削油：なし

50

切削距離：4 km。

【0129】

各評価結果を表6および表7に示す。表6および表7において、「逃げ面摩耗量」が小さいほど、耐摩耗性に優れることとなる。また、「チップング量」が小さいほど、耐欠損性に優れることとなる。

【0130】

表6および表7より、実施例61～125の焼結体は、比較例3～6の焼結体と比して、耐摩耗性および耐欠損性といった特性に優れることが分かった。また、実施例110と実施例118とを比較すると、実施例110の焼結体のほうが特性に優れていた。これは、実施例118において、混合されたCo粒子の含有量(体積%)が多かったためと考えられる。

10

【0131】

今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって、制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した実施の形態ではなく請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味、および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

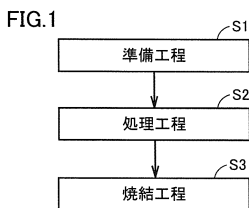
【産業上の利用可能性】

【0132】

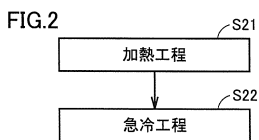
本発明に係る焼結体は、切削工具に広く利用することができる。特に、高温での硬度の高い被削材、耐熱合金からなる被削材を切削するための切削工具に好適に利用することができる。

20

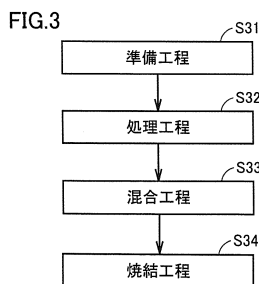
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

審査官 末松 佳記

- (56)参考文献 特開平 1 1 - 2 6 4 0 6 6 (J P , A)
特開 2 0 1 3 - 0 5 3 0 2 2 (J P , A)
特開 2 0 1 2 - 2 0 6 2 2 2 (J P , A)
H.KITA et al. , Thermal Conductivity, Strength, and Microstructure of Si-Ti-Al-O-N Porous Ceramics , Advanced Materials '93, 1 , 1 9 9 4 年 , PP.467-470

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C 0 4 B 3 5 / 0 0 - 3 5 / 8 4
B 2 3 B 2 7 / 1 4 - 2 7 / 2 0
B 2 3 C 5 / 1 6 - 5 / 2 4