研 究

パルス通電加圧焼結 (PCPS) 法による中空焼結体の作製とその中子材料

長柄 毅一^{☆1}, 横田 勝^{☆2}, 野瀬 正照^{☆2}^{☆1} 富山県工業技術センター中央研究所, 〒933-0981 高岡市二上町 150. ^{☆2} 国立高岡短期大学, 〒933-8588 高岡市二上町 180.

Fabrication of Hollow Shaped Compact by Pulse Current Pressure Sintering Process and Characteristics of the Core Materials

Takekazu Nagae^{☆1}, Masaru Yokota^{☆2} and Masateru Nose^{☆2}^{☆1} Toyama Industrial Technology Center, 150 Futagami-cho, Takaoka 933-0981.^{☆2} Takaoka National College, 180 Futagami-cho, Takaoka 933-8588.

Received July 30, 1998

SYNOPSIS

The ceramics cores were applied for the Pulse Current Pressure Sintering (PCPS) method in order to consolidate the hollow shaped compact of the Al-12mass% Si powder. In this process, the aluminum alloy powder was densified due to the shrinking of the core and plastic flow of the aluminum alloy powder itself. After sintering of hollow compact under the most suitable condition, the density was reached to 2.65g/m³ which is the 99% of relative density for the Al-12mass%Si alloy.

We tried to use various kinds of ceramics for the core material. As a result, we found that the h-BN had best characteristics for the core, because it was easy to be compressed and broken down to be removed after sintering treatment.

KEY WORDS

Pulse Current Pressure Sintering, core, hollow shaped compact, near-net-shape

1 緒 言

地球環境への負荷の低減という観点から,自動車部品をはじめとして産業機械や家電品等の部品の軽量化に対する要求が高まっている。軽量化のための手法としてアルミニウム合金やチタン合金のような比強度の高い材料を選択し,これを中空形状のような構造にして重量を減らすという手法がひとつの有効な手段であると考えられる。アルミニウム材料の比強度,比弾性率の向上については,急冷凝固法による合金製造法など各方面で研究が進められており,いまでは引張強度が1000MPaを越える合金も開発されている¹⁾。一方,こうしたアルミニウム合金粉末は粉末表面の酸化皮膜や吸着ガスの影響により常圧焼結法やホットプレス等従来の方法では焼結が困難であり,形状の制限される押出しや粉末鍛造による成形法以外の手法についてはほとんど研究されていない。ところで,パルス通電加圧焼結法(PCPS=Pulse Current Pressure Sintering 法)がアルミニウム合金粉末の焼結に有効であることが見いだされている²⁾。一軸加圧型焼結法である本法ではやはりそのままでは中空形状の部品をニアネットシェイプで作製することは難しいが,鑄造法に用

いられる中子を適用することにより中空形状品を高密度に成形することができ,このことについてはすでに報告している³⁾。Fig.1に試作した中空形状歯車の外観形状を示す。本法では,このような複雑形状中空形状品でも一工程でしかも高密度に焼結することが可能である。前報では, h-BN 圧粉成形体を中子として, A2014 アルミニウム合金粉末およびインコネル 625 合金粉末の焼結をおこない, 相対密度 98% 以上のものが得られることを報告した。今回, h-BN 以外にグラファイトやアルミナ, そしてタルクやパイロフィライト等の天然鉱石を中子として試用し, その中子としての圧粉特性, 崩壊性等に関する評価を行った。さらにこれらの中子を用いてリング形状焼結体や中空形状品を試作し, 緻密化の機構について検討した。

2 試料及び実験方法

中空体本体となるアルミニウム合金粉末には, Al-12mass%Si 合金アトマイズ粉末を用いた。また, 中子材料としては窒化ホウ素 (h-BN) のほか, グラファイトやアルミナ, あるいはタルク, パイロフィライトといった天然鉱石粉末についても中子と

しての特性を検討し、中空体試作を行うとともに、焼結時における中子の収縮特性を評価するためにリング状の試料製作も行っている。

中空体ならびにリング形状品作製の工程をFig.2に示す。まず、密度比が50~55%となるように中子をプレス成形する。このときの成形圧力は4MPaであった。ただし、アルミナについてはこの圧力で圧粉してもその後のハンドリングが容易にできる強度にならなかったため、98MPaで圧粉成形し、これを中子とした。試料粉末はこの圧粉体中子とともに、図のようにグラファイトダイス中に充填した。これを放電プラズマ焼結装置(住友炭鉱業(株)製SPS-1050)にセットした後、7~10Paに排気し、昇温速度100K/min、所定の温度で5min保持し、加圧力49MPaの条件で焼結実験を行った。得られた焼結体は、中子を除いた後、水中に浸漬してアルキメデス法によ

Fig.1 An example of the near net shaped compact of the gear prepared by PCPS process using a ceramics core.

り焼結密度を測定した。また、中空体についてはビッカース硬度の分布測定により局所的な硬さのばらつきが無いことを確認し、光学顕微鏡による組織観察を行った。さらに、焼結体と中子、そしてダイスの温度差がどのくらいになっているかを確認するために熱電対をダイス内部の試料に直接挿入し、温度をモニターする実験を行った。

ところで、中子は試料のアルミニウム合金粉末の焼結過程での収縮に伴い、中子自身は焼結しなくても粒間のすべりにより体積が収縮しなくてはならない。この収縮の挙動を調べるために、4MPaで圧粉した中子原料粉末を金型にいれ、インストロン型強度試験機を用いて5mm/minで加圧、35kNまで負荷をおこない、変位-荷重曲線を調べた。セラミック粉末の金型への投入量は、35kN負荷したときの圧粉体厚さが粉末の種類によって変わらず一定となるように予備試験から求め、それぞれ秤量して投入した。

さらに、中子に求められる重要な特性として、焼結後の中子除去の容易さがあげられる。これを評価するために、中空体を作製するときの焼結条件と同条件にてPCPS法により中子粉末を加圧昇温し、得られた成形体の圧縮強度試験を行った。

3 実験結果ならびに考察

3.1 Al-12mass%Si 合金中空焼結体の作製

Al-12mass%Si 合金において、焼結体が緻密化する最適焼結条件を調べるために、種々の温度で焼結した中空体の密度を測定した。Fig.3に得られた中空焼結体の密度測定結果を示す。中子を用いずに同条件で焼結した中実焼結体の密度変化も併せて示した。630Kで焼結実験を行った場合はAl合金の収縮がまだほとんど起こっていないので、中空体と中実体の

Fig.2 Process for making the hollow shaped and the ring shaped compacts by PCPS process.

密度がほとんど変わらない。ところが、680Kで焼結した試料においては中実体の密度 2.63g/m^3 に対し中空焼結体の密度 2.59g/m^3 と低く、若干の開きがある。さらに焼結温度を高くすると中空焼結体の密度は中実焼結体の値に近づき、780Kで

Fig.3 Change in the sintered densities for the consolidated solid and the hollow shaped compacts by PCPS process.

Fig.4 Microstructures of the Al-12mass%Si atomized powder and the sintered body by PCPS process.

2.65g/m^3 とほぼ同じ値となった。なお、この値は Al-12mass%Si 合金の真密度 2.66g/m^3 (計算値) にほぼ等しい。このときの中実体の光学顕微鏡組織写真を原料粉末の組織写真とともに Fig.4 にしめす。欠陥のない緻密な組織であることがわかる。また、結晶粒も粗大化せず、アトマイズ法により得られた粉末の組織と同程度の微細結晶粒組織となっていた。

ところで、PCPS法においては、焼結工程の温度制御はグラフアイトダイスに挿入された熱電対から得られる情報によって行われる。したがって、実際の試料温度との間に大きな差があることも考えられ、場合によっては試料の硬さなどの特性がばらつく危険性がある。そこでまず、試料の Al-Si 粉末及び h-BN 中子の焼結中の温度測定を行った。結果は Fig.5 に示すとおりである。ダイス温度すなわち焼結過程制御温度 780K に対し、中子 (図の②の部分) 並びに試料側面部 (図の③) の温度は 10K 高く、試料底部 (図の④) は 10K 低い温度であった。従って、試料側面と底部の温度差は 20K 程度であった。これは、試料側面部では焼結電流が流れやすく、試料自身がジュール加熱により昇温するが、電気伝導度の小さい材料でつくられた中子の下部にあたる中空試料底部においては試料側面部と比較して電流が流れにくく、ほとんど周囲からの熱伝導によって加熱されるため、側面部との温度差が生じるものと考えられる。

measurement points

- ① temperature of die ② temperature of core
- ③ temperature of side in the Al-Si alloy
- ④ temperature of bottom in the Al-Si alloy

Fig.5 Change in temperatures of the graphite die, the Al-12mass%Si alloy powder portion and the h-BN core during PCPS process.

そこで、試料内部の温度のばらつきが、焼結体の機械的性質の均一性に影響を及ぼしていないかを調べるために硬さ分布測定を行った。測定箇所および結果をFig.6に示す。測定箇所は、焼結体断面の底部A-B、側部C-D、上部E-Fの中心線上とした。このように、中空体のビッカース硬度はHV52±3とばらつきも小さく、焼結現象の進行の程度が均一な焼結体が得られた。試料内部の温度差はこの場合、硬さのばらつきには影響をほとんど及ぼさなかったといえる。

3.2 中子の緻密化機構と崩壊性

本法で用いる中子材料に求められる条件としては、加圧したときに体積なるべく大きく減少すること(圧縮性)、そして、焼結加工後、容易に焼結体から取り除けること(崩壊性)があげられる。まず、中子となるセラミック粉末の圧縮性について評価するために行った、荷重-変位曲線作成実験の

Fig.6 Vickers hardness distribution of the sintered hollow shaped compacts by PCPS process.

データをFig.7に示す。アルミナ圧粉体は変位に対して負荷圧力の立ち上がりが早く、15kN 負荷時(負荷圧力49MPaに相当)においてアルミナ圧粉体の圧縮量は6.2mmであった。パイロフィライトならびにタルクは2mm変位してもほとんど負荷圧力は0に近く、そのあと急激に上昇した。15kN 負荷時のパイロフィライトの変位量は7.1mm、タルクの変位量は7.3mmであった。グラファイトやh-BNはさらに圧縮性がよく、変位が8~9mm程度変化しても負荷圧力は徐々に上昇するものの、大きくは変化しない。15kN 負荷時のグラファイト及びhBNの変位量はそれぞれ10.9mm, 11.6mmで他の3種類の中子を大きく上回った。こうしたセラミックス粉末の圧縮性の違いは各々のセラミックス粉末の形状に原因があると考えられる。Fig.8に5MPaで圧粉成形した各種セラミックスと、これらを

Fig.7 Compressive curves of powders in the graphite die for the various ceramic powders as core materials.

A-1	h-BN	B-1	graphite	C-1	talc	D-1	pyrophyllite	E-1	alumina
← pressed under 5MPa at room temperature →									
A-2	h-BN	B-2	graphite	C-2	talc	D-2	pyrophyllite	E-2	alumina
← pressed under 49MPa and heated up to 800K by PCPS →									

Fig.8 SEM photographs of the ceramic powders for the core materials after pressed under 5MPa and 49MPa.

PCPS 法にて 49MPa で加圧しながら 500°C で 5min 昇温保持したセラミックス表面の SEM 像を示す。h-BN やグラファイト粒子は扁平な形状をしており、アルミナは等軸的、パイロフィライトやタルクはこれらが混合したような形状であった。5MPa 圧粉時において h-BN やグラファイトの粒子はランダムな方向を向いているが、49MPa で圧縮後は、層状に重なっていることがわかる。タルクにも若干このような傾向はみられるがパイロフィライト、アルミナは等軸的な粒子形状であるがために 49MPa で加圧してもあまり表面の外観は変わらない。こうしたことから、アルミナ、パイロフィライト等は加

圧によって粉体粒子間距離が縮むことに伴う体積収縮だけがあるが、これに加えて h-BN、グラファイトにおいては、Fig.8 にみられるように粒子が層状に重なり体積が大きく収縮するため、体積収縮率がより大きくなる。

ところで、こうした中子中空形状品の焼結後、容易に除去できなくては生産性を低下させてしまう。そこで PCPS 法により昇温加圧した上記の試料について圧縮強度試験を行った。その結果を Fig.9 に示す。アルミナがもっとも低い荷重で破壊し、グラファイトやパイロフィライトは強度が大きく、それぞれ 2.5kN, 3.5kN で破壊した。実際にこれらの中子を使って中空体を作製し中子の除去作業を行ったが、やはり圧縮強度の高いものは硬く取り除くのが困難であった。以上のことから、圧縮性の点からみると h-BN やグラファイトが中子として優れているが、崩壊性の点からみるとアルミナが一番よく、次いで h-BN、タルクが良い。総合的には、やはり h-BN がもっとも良い材料ということになりそうであるが、コストを考えると圧縮性、崩壊性が中程度のタルクが有望であると考えられる。

3.3 中空焼結体の緻密化の機構

Table 1 に PCPS 法における中子の圧縮率と、これらの中子を用いて製作した Al-12mass%Si 合金のリング形状焼結体と中空形状焼結体の焼結密度を比較して示す。また、参考までに、Al-12mass%Si 合金粉末の圧縮率と中子を用いずに焼結した場合の焼結密度をあわせて示した。ここで、圧縮率は次のように定義される。

$$\text{圧縮率} = 100 \times (l_x - l_0) / l_0 (\%)$$

l_0 : 4MPa で圧粉成形したときの中子の厚さ (mm)

l_x : 770K で 5 分間、49MPa の圧力で PCPS 法により加熱、加圧した中子の厚さ

Fig.9 Curves of compressive test for the ceramic cores which were heated up to 780K and pressed under 49MPa by PCPS process.

Table 1 Sintered densities of the ring shaped and the hollow shaped Al-12mass%Si atomized powder compacts by using various kinds of the ceramic core materials after PCPS process.

Core materials	h-BN	Graphite	Talc	Pyrophyllite	Alumina	(Al-12%Si)
Compressibility of cores (%) (*1)	40.3	37.4	30.5	30.9	33.2	(38.1)
(A) Sintered density of ring shaped Al-12%Si compacts. (g/cm ³)	2.64	2.64	2.57	2.49	2.04	(*2) 2.65
(B) Sintered density of hollow shaped Al-12%Si compacts. (g/cm ³)	2.64	2.64	2.65	2.65	2.65	

$$(*1) \text{ Compressibility} = \frac{l_x - l_0}{l_0} \times 100$$

l_0 : thickness of pressed core at 4MPa by metal mold.

l_x : thickness of core heated up to 770K and pressed to 49MPa by PCPS.

(*2) sintered density of Al-12mass%Si pellet without using core.

圧縮率がAl-12mass%Si合金よりも大きいhBNや同程度のグラフアイトにおいては、リング形状の焼結体の密度は中子を用いずに焼結した中実Al-12mass%Si合金の密度とほぼ同程度となった。しかし、圧縮率が低いタルク、パイロフィライト、アルミナを中子にした場合、リング形状の焼結体密度は中実体のものに至らなかった。一方、中空体を作製した場合、すべての中子で緻密化し、中実体の密度に匹敵するものとなった。つまり、アルミナなど圧縮率の低い材料を中子にするとリング形状のものは緻密化できないのに対し、中空形状であれば中実体と同程度の密度のものが得られるということである。この理由として、焼結加工時のアルミニウムの塑性流動が考えられるため、アルミ合金内での塑性流動を調べる実験を行った。その方法と得られた中空体の断面マクロ写真をFig.10に示す。まず中空体底部となる層を充填した後、マーカとしてグラファイト粉末を薄く堆積させる。そのうえに中子となるセラミック圧粉体をおき、アルミ合金粉末を充填する。PCPS法により焼結した後、切断し、断面を観察した。h-BNを中子とした場合、焼結後のマーカはほぼフラットな形状であったが、その他の中子においてはマーカが中空体側面部の中心上方に向かって盛り上がり、しかも中空体底部の厚さが減少している様子が観察された。この傾向はアルミナでもっとも顕著であった。これは、中空体内部でのアルミニウム合金粉末の塑性流動を示しているものであり、このために、中空体においては密度が向上することがわかる。今回試作している中空体の形状では、どの中子を選択しても緻密化を図ることができるが、アルミナ中子では底部の肉厚が薄くなるなどの問題点がある。

4 ま と め

セラミック中子を用いてAl-12mass%Siアルミニウム合金中空形状焼結体のニアネットシェイプ成形を試み、焼結体と中子の性質について以下の知見を得た。

- (1) 得られた中空形状焼結体の密度は $2.65\text{g}/\text{cm}^3$ であり、これは中子を用いずに成形した中実体にほぼ匹敵する値であった。
- (2) h-BNを用いて中空体を焼結する際のダイス温度と中空体各部の温度測定を行ったところ、ダイス温度に対して中子及びアルミニウム合金側面部の温度が高く、中子の直下に位置するアルミニウム合金底部はダイス部よりも低温であった。両者の差は20K程度であったが、ビッカース硬度の分布測定では、中空焼結体の硬度は 52 ± 3 であり、ほぼ均一であった。したがって、中空体内部での温度の若干のばらつきが均質性に影響をあまり及ぼしていないことがわかった。
- (3) 中子材料として各種セラミックスおよび天然鉱物を用いて、中空体、リング形状体の試作をおこなった。中空体を作製するなら、どの中子を用いても高密度焼結品はできるが、リング形状品を緻密化するためには扁平粒子のh-BN粉

Fig.10 Optical micrographs of the cross section of the hollow shaped compacts obtained by using various ceramic powders as core materials.

末あるいはグラファイト粉末が有効であることがわかった。

- (4) 中子の崩壊性についてはアルミナ、h-BN、タルクが優れていた。圧縮性と考えると、h-BNがもっとも中子として優れているといえるが、粉末の価格が高いため、実用上問題がある。したがって、実用的にはこのhBNにタルクやグラファイトなどの安価な粉末を混合するのが良いと考えられる。
- (5) 中空体の焼結過程において、中空体内部では粉末の大きな塑性流動が起きていることが明らかとなった。

文 献

- 1) A.Inoue, K.Ohtera, A.P.Tsai and T.Masumoto: "Aluminum-Based Amorphous Alloys with Tensile Strength above 980 MPa", Jpn. J. Appl. Phys., 27(1988)L479-L482.
- 2) 長柄毅一, 横田 勝, 野瀬正昭: "放電プラズマ焼結法による高Si-Al粉末の焼結過程と機械的性質", 粉体および粉末冶金, 44(1997)945-950.
- 3) 長柄毅一, 横田 勝, 野瀬正昭: "パルス通電加圧焼結法による中空形状焼結体の作製", 粉体および粉末冶金, 45(1998)169-171.