# 放電プラズマ焼結法による粉体押出し成形

 同志社大学 理工学部 機械システム工学科 准教授 藤原 弘
(平成 24 年度一般研究開発助成 AF-2012023)

キーワード:メカニカルミリング,チタンアルミ合金,調和組織材料

#### 1. 研究の目的と背景

放電プラズマ焼結(Spark Plasma Sintering: SPS)法 は、特殊なパルス電圧・電流を印加することにより金属ま たはセラミックス粉末を一軸加圧により固化成形する固 体圧縮焼結法である.加圧方向と垂直方向では成形性に自 由度があり様々な形状の板状焼結体を作製できるが、加圧 方向に対しての形状制御に関する報告は少ない.本研究で は、Ti-Al 合金粉末を利用して、SPS の加圧軸方向に押出 し加工および焼結を同時に行う粉体押出し成形について 詳細に検討を行った.

Ti-Al 合金は軽量耐熱材料として期待されているが、 室温延性が乏しいため、利用範囲が限られている.常温で のTi-Al合金の機械的性質を改善させる手法として、メ カニカルミリング(Mechanical Milling: MM)とSPS 法の組 み合わせによる調和組織制御が知られている<sup>1,2)</sup>.調和組 織制御とは,延性に富む粗大結晶粒の周りに高強度な微細 結晶粒をネットワーク状に配置させる組織制御であり,高 強度かつ高延性を示すことが知られている<sup>1,2)</sup>. ネットワ ーク部に Ti- 48mo1%A1 合金を, そして分散部に純 Ti を 配置した Ti- 48mo1%A1/純 Ti 複合調和組織材料は、従来 のTi- 48mo1%A1 合金焼結体より高強度かつ高延性を示す ことを著者らは明らかにした<sup>3,4)</sup>.しかしながら、これま での SPS の焼結体形状はディスク状のみであり, 今後の応 用に際して利用範囲が限定される.一方で、阿部ら5はこ のようなディスク状焼結体を再び SPS 内での超塑性押出 し加工によりアスペクト比の大きなエンジンバルブ状 Ti - Al 合金成形体を作製している. そこで本研究では, SPS 内で焼結と押出しを同時に行うことができる押出し焼結 を考案し, Ti- 48mo1%A1/純 Ti 複合調和組織材料の棒状焼 結体の作製およびその微細組織と機械的性質について調 査を行った.

### 2. 実験方法

本研究では、平均粒子径200 µm の純Ti 粉末(純度99.8%、 福田金属箔粉工業社製) と平均粒子径260 µm の Ti-48 mol%A1 (以後, Ti-A1 とする) 合金粉末(福田金属箔粉工 業社製) を用いた. FRITSCH 社製遊星型ボールミル装置 (P-6) を用いて、SKD11 製のミリング容器でTi-A1 合金 粉末とSUJ2 製ボールを54 ks の MM 処理を行い、平均粒子 径80.5 µm の Ti-A1 合金粉末を得た<sup>3)</sup>. 次に、得られた Ti-A1 合金 MM 粉末と純Ti 粉末をTi-A1 体積率が16.5 vol% となるように混合し、36 ks の MM 処理を行い、Ti-A1/Ti 複合 MM 粉末を作製した. この Ti-Al/Ti 複合 MM 粉末を図 1 の模式図に示すようにグラファイト製のパンチ-ダイセ ットに封入し,住友石炭鉱業社製 SPS 装置 (SPS-510L) に よって押出し焼結を行った.焼結温度 1073 Kまで昇温し, 昇温後に 100 MPa まで加圧することで,上部パンチの φ5 mm の穴から上部の穴付スペーサー (内径 φ 7 mm)の内部 に押し出すようにして, Ti-Al/Ti 複合調和組織材の押出 し焼結体を作製した.



図1グラファイト製押出し焼結用パンチ - ダイセット の模式図

本実験で用いた上部パンチと下部パンチの詳細な形状 を図 2(a),(b)にそれぞれ示す.また,押出し焼結時の詳細 な温度および圧力履歴を図 3 に示す.この押出し焼結では 昇温後の加圧速度(平均 0.1 MPa/s)が重要であり,早す ぎるとグラファイト製のダイが破損する.また,比較用材 料として,焼結温度 1073 K, 3.6ks 保持,圧力 100MPa の条件で従来 SPS 法による φ 15 mm のディスク状の Ti-Al/Ti 複合調和組織焼結体も作製した.焼結体は日本電 子 社 製 走 査 型 電 子 顕 微 鏡 (Scanning Electron Microscopy: SEM, JSM-7001FD) およびエネルギー分散 型 X 線 分 析 装 置 (Energy Dispersive X-Ray Spectrometer: EDS) 解析を用いて微細組織観察を行い, 相の同定にはリガク社製 X 線回折装置 (Smart Lab) を 用いた. 機械的性質はマツザワ社製ビッカース硬さ試験 (VMT-7) を用い,荷重 196.1 N,時間 10 s の条件で測 定した.





図 2 押出し焼結用上部 (a) および下部 (b) パンチの 詳細 (単位:mm)



図3 押出し焼結時における温度および圧力履歴

## 3. 研究成果

図3に示すように焼結温度1073 K, 1.8 ks 保持, 圧力 100 MPaの条件で作製した押出し焼結体の外観写真を図 4に示す. 断面形状が φ5 mm で長さ約48 mmの円柱形 状の押出し焼結体が得られた.



図4 押出し焼結体の外観写真



図5 押出し焼結体の SEM 組織写真

この焼結体を長手方向に切断し,押出し方向の先端部か ら内部にかけて SEM による観察を行った. 図 5(a)に焼結 体の押出し方向の先端部,(b)に先端から5 mm付近,(c) に先端部から10mm付近のSEM反射電子像写真を示す. 図 5(a)では、ほとんど焼結されておらず、MM 粉末粒子 の形状がそのまま観察される.図5(b)では、焼結されてお り Ti-Al/Ti 複合調和組織が観察されるが、多くのポアが観 察される. 図 5(c)では、ほとんどポアは観察されず緻密に 焼結されている. このように先端部から 10 mm 程度まで は密度の低い焼結体となっているが、10 mm 以降では十 分な密度を有する.図5に示すように押出し焼結によって 作製された Ti-Al/Ti 複合調和組織は, 従来の焼結体と比較 してネットワーク構造が押出し方向に対して伸長した形 状となっている.これは、上部パンチの押出し加工部の側 面からの圧力による塑性変形の影響である.図6に示すX 線回折結果よりわかるように、この押出し焼結体は純Ti, TiAl, Ti<sub>3</sub>Al から構成されていることがわかる.



図6 押出し焼結体のX線回折結果

次に、押出し焼結体の EDS 結果を図 7 に示す.図 7(a) は、先端部より 10 mm 以降の断面 SEM 反射電子像写真 であり、(b)および(c)に Al および Ti の EDS 元素マッピン グ結果をそれぞれ示す.図 7(b)および(c)に示すように、 Al 元素の分布は(a)の明るいコントラストのネットワーク 領域に対応しており、Ti 元素の分布は暗いコントラスト の分散領域で高濃度である.図 6、7 の結果より、TiAl お よび Ti<sub>3</sub>Al 相は Ti-Al 合金としてネットワーク領域に存在 しており、純 Ti は分散領域に存在していることがわかる. このことから押出し焼結体はネットワーク構造が押出し 方向に伸張しているが、従来の焼結体と同様な相構成の Ti-Al/Ti 複合調和組織を有していることが確認できる.

次に,ビッカース硬さ試験により押出し焼結体の機械的 性質を評価した.図8に,図4に示す押出し焼結体の先 端部から長手方向の距離に伴うビッカース硬さの変化を 示す.また,硬さは円柱形状の円柱側面近傍と中心部にお いて測定し,側面部は□で中心部は○で示した.図8より 先端部では硬さは低いことがわかる.これは図 5(a)に示す ように焼結密度が十分ではないためである.そして,10 mm 付近から急激に上昇し,10 mm 以降では約 220 Hv の一定の硬さを示す.また,円柱側面部と中心部において 硬さに違いはなかった.図8には,同じ1073 K,1.8 ks 保持,100 MPa の条件で SPS 焼結した従来の焼結体の平 均硬さを破線で示しており,押出し焼結により作製した Ti-Al/Ti 複合調和組織材料は,従来の焼結体とほぼ同程度 の硬さを有することが明らかとなった.以上のことより, 円柱状の押出し焼結体は,従来焼結体と同様な機械的特性 3.4)を有することが期待できる.



図 7 押出し焼結体の SEM 反射電子線像および EDS 元素マッピング結果



図8 押出し焼結体のビッカース硬さ結果

#### 4. 結論

メカニカルミリング法および放電プラズマ焼結法を用 い, Ti-48mol%Al/純Ti 複合調和組織材料の押出し焼結 体を作製した.焼結温度1073K, 1.8ks保持, 100 MPa の条件で作製した押出し焼結体の形状は, φ5 mm×48 mmの円柱形状を呈しており,押出し先端部より10 mm までは多くのポアを有し低硬度であるが,10 mm 以降は 約220 Hv の硬度を有する押出し焼結体が得られた.この 円柱状の押出し焼結体は従来法によるディスク状焼結体 とほぼ同程度の硬さを有していることが明らかとなった. 以上のように, 放電プラズマ焼結装置を用いた押出し焼 結は可能であり, 得られる押出し焼結体の機械的性質は通 常の焼結体とほぼ同じであることが明らかとなった.

## 謝辞

本研究は公益財団法人天田財団の一般研究開発助成に より行われました.ここに謝意を表します.

#### 参考文献

- H. Fujiwara, R. Akada, A. Noro, Y. Yoshita and K. Ameyama: Mater. Trans. 49 (2008) 90-96.
- 2)T. Sekiguchi, K. Ono, H. Fujiwara and K. Ameyama: Mater. Trans. 51(2010) 39-45.
- 3)H. Fujiwara, T. Kawabata, H. Miyamoto and K. Ameyama: Mater. Trans. 54(2013) 1619-1623.
- 4) H. Fujiwara, R. Yoshida, H. Miyamoto and K. Ameyama: J. Jpn. Powder Powder Met. 60(2013) 413-419.
- 5)T. Abe, H. Hashimoto, Y. Saito, Y. Nishizawa and H. Takeda: Materia Japan, 39(2000) 69-71.