

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04712

研究課題名（和文）金属材料の低温緻密化を実現するための周期的圧力下通電焼結法の開発

研究課題名（英文）Development of spark plasma sintering under cyclic pressure for low-temperature densification of metallic materials

研究代表者

北川 裕之（Kitagawa, Hiroyuki）

島根大学・学術研究院理工学系・准教授

研究者番号：00325044

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：通電焼結（SPS）中に周期的圧力を印加する方法でチタン粉末の低温緻密化を試みた。その結果、周期的圧力印加は緻密化を促進し、焼結温度600℃以下でも相対密度99%以上の緻密焼結体を得られることを確認した。さらに、500℃、600℃という低温で焼結した焼結体は高温で焼結した焼結体と同等もしくはより大きな最大引張強度、破断伸びを示した。以上の結果から、周期的圧力下での通電焼結により、600℃以下の低温でも十分な機械的強度を有する緻密なチタン焼結体の作製が可能であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、新規な通電焼結法により金属材料の低温緻密化に取り組み、チタンにおいて従来の温度よりも十分に低い500℃で延性を有する緻密焼結体の作製に成功した。本研究成果は、チタン以外の他の金属材料への適用が十分に見込めることから、新しい組織・物性を持つ金属材料製造につながることを期待される。また、複合材料の分野では、低温プロセスという特徴はマトリックスと強化材間の化学反応を回避できるという利点につながり、新しい複合材料の製造へ発展する可能性もある。

研究成果の概要（英文）：Low-temperature sintering of titanium powder was performed by applying cyclic pressure during spark plasma sintering (SPS). The cyclic pressure application enhanced densification of titanium and dense sintered materials with relative density over 99% were obtained even at the sintering temperatures below 600℃. Furthermore, ultimate tensile strength and elongation to failure of the low temperature (500 and 600℃) sintered materials were equal to or greater than those of the high-temperature sintered materials. These results indicate that the SPS under cyclic pressure enable us to prepare dense sintered titanium with sufficient mechanical strength even at low temperatures below 600℃.

研究分野：材料工学

キーワード：粉末冶金 通電焼結 チタン

1. 研究開始当初の背景

通電焼結法 (SPS) は通電加熱を特徴とする加圧焼結法であり、原料粉末と型・パンチによる自己発熱を利用して焼結を行うため、短時間焼結が可能な焼結法として知られる。チタンおよびその合金は、軽量かつ高強度であることに加え、優れた耐食性を持つ重要な工業材料である。このため、SPS プロセスに関してもチタンおよびチタン合金に関する研究は多数報告されている。一般的な SPS においては、緻密なチタン焼結体を得るための焼結温度は 800~900 °C であり^{1,2)}、これはチタンの相変態温度付近かそれ以上である。相変態温度よりも十分に低い温度での焼結としては、高圧力 SPS (555 MPa) により Ti-6Al-4V を 650 °C でほぼ完全緻密化した報告例がある³⁾。われわれの研究グループは、SPS 時に周期的な圧力を印加する方法がチタンの低温緻密化に有効であるという結果を得ている⁴⁾。この結果によれば、本プロセスにおいて条件を最適化すれば、600 °C 以下の焼結温度でも緻密な焼結体が得られる可能性がある。

SPS を用いたチタンの焼結において、焼結温度のさらなる低温化は、結晶粒微細化による強度の向上およびチタン特有の相変態を経ない組織の作製につながることを期待される。さらに、融点の違いや母材と強化材との化学反応により複合化できなかった材料に対しても低温焼結は有効であると考えられ、プロセスの低温化により新たな複合材料の作製も見込まれる。このように、低温焼結の実現は、チタンの新機能発現、新規材料の開発に繋がることも期待できることから、材料工学的に興味深いと言える。

2. 研究の目的

本研究では SPS 時に周期的な圧力を印加する方法により、従来よりも十分に低い温度でチタンの緻密焼結体を得ることを目的とした。焼結温度は 300~700 °C とし、周期的な圧力下で焼結した。得られたチタン焼結体の密度、組織および機械的特性を評価した。

3. 研究の方法

原料粉末には粒径 45 μm 以下のチタン粉末を用いた。粉末を内径 10 mm の WC-FeAl 超硬合金製の型に充填し、周期的な圧力印加機構を備えた SPS 装置により焼結した。周期的な圧力印加の模式図を図 1 (a) に示す。焼結は通電により加熱し最大温度を 300~700 °C に設定した。印加圧力は図 1 (b) に示すように圧力印加と除去を繰り返す 0 ⇔ 100 MPa, 0 ⇔ 300 MPa および 0 ⇔ 500 MPa とした。昇温速度は目的温度より 20 °C 低い温度までは約 50 °C/min、その後は約 10 °C/min とした。目的温度での保持時間は、0 min および 60 min とし、保持時間の効果も調査した。比較のため、通常の SPS 焼結 (一定加圧) による試料作製も行った。得られた焼結体について、密度測定、光学顕微鏡による組織観察、曲げ試験による破面観察、引張試験を行った。

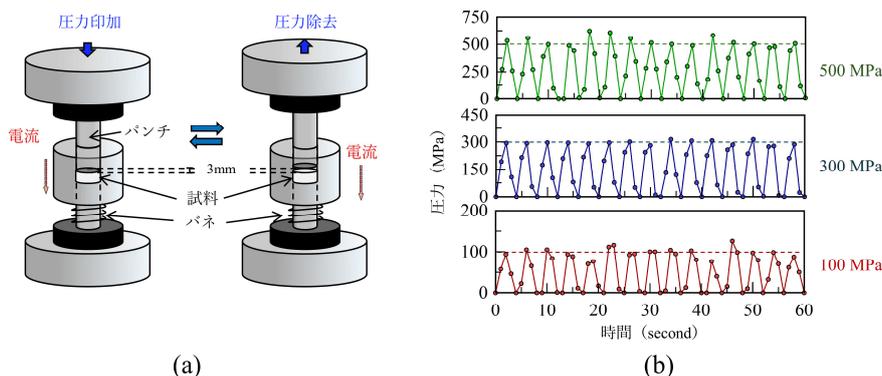


図 1 (a) 周期的な圧力下 SPS の模式図 (b) 周期的な圧力印加パターン

4. 研究成果

(1) 密度

図2に周期的または一定圧力を印加したSPSにより作製したチタンの相対密度の焼結温度依存性を示す。測定した試料は目的焼結温度での保持時間が0 minのものである。全ての圧力条件において焼結温度の上昇とともに焼結体の相対密度は増加した。また、圧力の大きさによらず周期的圧力を印加した場合は一定圧力を印加した場合よりも緻密化温度が減少する傾向にあった。具体的には、印加圧力300 MPaの場合、一定圧力印加では焼結温度600 °C以上で、周期的圧力印加では焼結温度500 °C以上で相対密度は99.5%に達した。このように、周期的圧力を印加することは、低温での緻密化に有効であると言える。

また、光学顕微鏡による観察では、焼結体に存在する気孔は相対密度の向上とともに消失していることが確認された。また、結晶粒径は焼結温度900 °Cの場合は40 μm程度であるのに対し、焼結温度500 °Cの場合は10 μm前後であり、低温焼結の場合は結晶粒の成長が抑制されていた。

(2) 曲げ破面の観察

緻密化した焼結体の粒子結合性を評価するために曲げ試験を行った。図3に周期的圧力印加効果の典型的な例として焼結温度600 °Cで100 MPaの周期的または一定圧力下SPSによって得られたチタン焼結体の曲げ破面を示す。ここで、600 °Cにおける保持時間は0あるいは60 minとした。図より、一定圧力印加と比較して周期的圧力を印加すると粒子結合性が著しく向上していることがわかる。

特に、周期的圧力で60 min保持した試料では典型的な曲げ破面が認められ、十分な延性を有していることが確認できる。焼結温度500 °Cにおいても周期的圧力300 MPaで60 min保持した場合、十分な延性を有する材料が得られた。

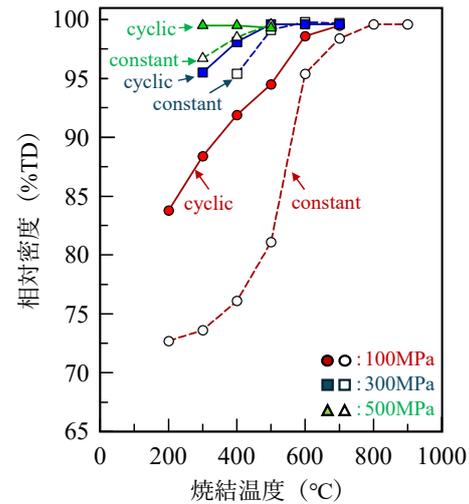


図2 周期的または一定圧力を印加したSPSにより作製したチタンの相対密度と焼結温度の関係

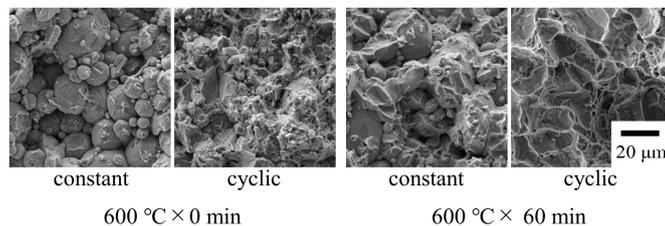


図3 100 MPaの周期的または一定圧力を印加したSPSにより作製したチタン焼結体の曲げ破面（焼結温度：600 °C，保持時間：0min および60min）

(3) 引張試験

緻密化した焼結体の機械的特性は引張試験により評価した。図4に焼結温度 700 °C, 600 °C / 周期的圧力 100 MPa, および焼結温度 500 °C / 周期的圧力 300 MPa で保持時間 60 min として作製したチタン焼結体の応力-ひずみ曲線を示す。図より、低温で焼結した焼結体は十分な延性を有していることが確認できる。また、引張強度および破断伸びは高温 (900 °C) で焼結した焼結体と同等もしくはそれ以上の値を示した。

以上のように、本研究では SPS 中に周期的圧力を印加する焼結法を検討した結果、600 °C以下という低温で、良好な機械的特性を有するチタンの緻密焼結体の作製に成功した。

【引用文献】

- 1) M. Zadra *et al.*, A. Molinari, Powder Metall., **51** (2008) 59.
- 2) M. Eriksson *et al.*, Powder Metall., **48** (2005) 231.
- 3) J. Bustillos *et al.*, Adv. Eng. Mater., **22** (2020) 2000076.
- 4) A. Suzuki *et al.*, J. Jpn. Soc. Power Powder Metall., **67** (2020) 52.

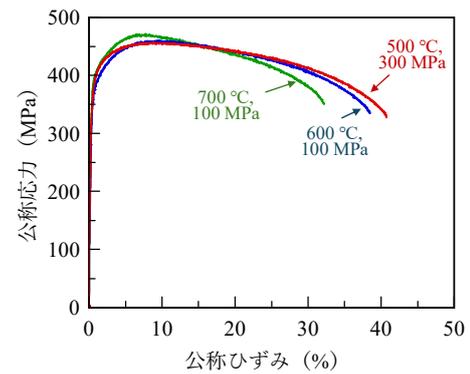


図4 周期的圧力印加 SPS により作製したチタン焼結体の応力-ひずみ曲線

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 眞鍋 奈央, 蜷川 芽衣, 鈴木 絢子, 新野邊 幸市, 北川 裕之
2. 発表標題 周期的高圧力下でのSPS法による低温での高密度Ti焼結体の作製
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会 2022年度秋季大会（第130回講演大会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nao Manabe, Ayako S. Suzuki, Mei Ninagawa, Hideki Wakabayashi, Kouichi Niinobe, Hiroyuki Kitagawa
2. 発表標題 Low-Temperature Densification of Titanium by SPS under Cyclic High-Pressure
3. 学会等名 The International Conference on Sintering 2023 (Sintering2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 眞鍋 奈央, 鈴木 絢子, 蜷川 芽衣, 若林 英輝, 新野邊 幸市, Yuanbo T. Tang, 宇多田 悟志, D. Graham McCartney, Roger C. Reed, 北川 裕之
2. 発表標題 周期的高圧力下での SPSによるチタンの低温焼結と機械的性質の評価
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会2023年度秋季大会（第132回講演大会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------