

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：82670

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14868

研究課題名（和文）局所フラッシュ焼結によるセラミックAM法の開発

研究課題名（英文）Development of Ceramic AM Method by Local Flash Sintering

研究代表者

大久保 智（Okubo, Satoshi）

地方独立行政法人東京都立産業技術研究センター・開発本部物理応用技術部機械技術グループ・副主任研究員

研究者番号：30757349

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はバインダーレスのセラミックス付加製造（AM）法を確立するため、高温下で電場を印可することで焼結時間が短縮できるフラッシュ焼結法の応用に着目した。フラッシュ焼結をAMに応用する方法として、針状電極を用いてセラミックス粉末を局所的で選択的に焼結を行える局所フラッシュ焼結システムを構築した。従来のフラッシュ焼結では圧粉成形体が用いられてきたが、本研究により荷重の負荷によって粉末層でもフラッシュ焼結が可能となったことが明らかとなった。しかし、粉末層厚さ1mm以下では大気放電により焼結が困難であった。局所フラッシュ焼結法のAM応用には大気放電への対策課題が残った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では針状電極/リング状電極および針状電極/板状電極の組み合わせでフラッシュ焼結実験が行われ、針状電極/板状電極の組み合わせでのみフラッシュ焼結が確認された。これはフラッシュ焼結の焼結機構が、通電によるジュール発熱の物理的効果によるものであることを支持している。また、粉末層厚さ1mm以下での大気放電は、大気の絶縁抵抗が粉末の電気抵抗よりも小さくなることが原因であり、粉末材料の微細化などによって通電パスを増加させることで解決すると考えられる。したがって、今後の改善によって局所フラッシュ焼結によるバインダーレスセラミックスAMの実現が期待される。

研究成果の概要（英文）：To establish a binder-less ceramic additive manufacturing, this study focused on the application of flash sintering, which can shorten the sintering time by applying an electric field at high temperature. To apply flash sintering to AM, a local flash sintering system was constructed that can selectively sinter ceramic powder locally using a needle electrode. Although conventional flash sintering has used pressed compacts, it was clear that flash sintering occurs even in the powder layer as long as a load is applied. However, sintering was difficult due to atmosphere discharge at powder layer thickness of 1 mm or less. The application of the local flash sintering method to AM still has issues to be considered for atmospheric discharge.

研究分野：アディティブマニュファクチャリング

キーワード：Additive Manufacturing フラッシュ焼結

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、付加製造 (AM: Additive Manufacturing) 技術の発展により、従来技術では製造不可能な複雑形状や多様な材料を直接造形することが可能であることから、従来のものづくりの在り方を変革すると期待されている。中でもセラミックス AM はエネルギー、電気通信、医療、建築、自動車、航空宇宙、化学など使用される分野も多岐に渡っており、その市場規模は年々拡大している。しかしながら、セラミックス AM はスラリーやバインダー混合体を材料とした光造形法の開発に成功している程度であり、未だ開発の初期段階にある。光造形法では、脱脂処理と本焼結工程による生産効率の低下、厚肉部品の脱脂不足、焼結工程での変形、バインダーの劣化による低リサイクル性などが問題となっている。このような課題を受けて、バインダーを必要としない直接焼結造形法によるセラミックス AM の実現が期待されている。その主流であるレーザー焼結法は、レーザーの吸収効率が低いことや割れの発生など多くの課題が山積している。レーザー焼結法で発生する割れは、セラミックス粉体にレーザーを照射することによる急激な温度上昇とそれに伴う膨張が原因である。この課題を解決するためには、急激な温度上昇を抑制した焼結法の開発が重要である。そこで、本申請では焼結時に強い電界を印加することで低温での焼結が可能であるフラッシュ焼結法 (M. Cologna et. al.: J. Am. Ceram. Soc., 2010) に着目した。申請者のこれまでの研究の結果、局所電界を与えることでセラミックス粉体を数秒で局所的に焼結させることに成功している。本研究では、この局所フラッシュ焼結を応用した新規直接焼結法により、これまで困難であったバインダーレスの直接焼結セラミックス AM 法の確立という学術的「問い」の解決を目指す。

2. 研究の目的

本研究の目的は、局所フラッシュ焼結法による直接焼結セラミックス AM 技術の確立にある。本研究では、針電極とリング電極を組み合わせた局所フラッシュ焼結システムを構築する。従来のフラッシュ焼結システムは、特定形状の成形体を炉内に設置し、成形体両端に電極を付けて電界を印加する焼結機構であった。しかし、この機構では AM に必要な機構である積層と局所焼結を行うことができない。そこで本研究では、針電極とリング電極を組み合わせた局所フラッシュ焼結 AM システムを提案し、この手法の妥当性を検証する。

3. 研究の方法

(1) FEM 解析による電界シミュレーション：従来のフラッシュ焼結法では、板状の電極でセラミックスの圧粉成形体を挟みこみ、高温下で電場を印可することで焼結を行う。このときの温度とフラッシュ焼結が生じる臨界電界強度の関係は種々のセラミックスにおいて既に知られている (吉田, 山本: 粉体および粉末冶金, 2017)。本研究の局所フラッシュ焼結では針状の電極を用いるため、この電極先端付近の電界強度がフラッシュ焼結の発生に影響する重要な要素になると考えられる。そこで、種々の先端形状を持つ針状電極に生じる電界強度およびジュール発熱による過渡伝熱応答を FEM 解析し、フラッシュ焼結が可能な電極形状について検討した。

(2) 局所フラッシュ焼結システムの構築：本研究では局所フラッシュ焼結法をセラミックス AM に応用するため、焼結システムを構築する必要がある。そこで本研究では、上述のように、針電極とリング電極を組み合わせた局所フラッシュ焼結 AM システムを構築した。このシステムでは、針電極によって局所的に電界強度を高めることを可能とし、さらに、電極を水平移動することで選択溶融も可能となる。また、リング電極を用いることでリング内側の粉末層の上下移動が可能となり、積層も可能となる。このようなシステムを設計し、局所フラッシュ焼結装置を作製した。

(3) 局所フラッシュ焼結実験：イットリア添加安定化ジルコニア (YSZ) 粉末を用いて、温度 600 - 1000℃、粉末層厚さ 1 - 10mm、直流電圧 100 - 420V (相当電界強度 120 - 1200V/cm) にて局所フラッシュ焼結実験を行った。電極は針状電極とリング状電極の組み合わせの他に、図 1 のように針状電極と板状電極の組み合わせでも行った。この理由については後述する。なお、フラッシュ焼結対象は YSZ の粉末 (層)、すなわち AM における Powder Bed Fusion (PBF) 方式であり、圧粉成形体ではないことに注意する。また、粉末層は摺り切りによる積層であり、タッピングなどの充填は施さなかった。さらに、針電極側に重りを載せ、フラッシュ焼結への荷重負荷の影響も調査した。

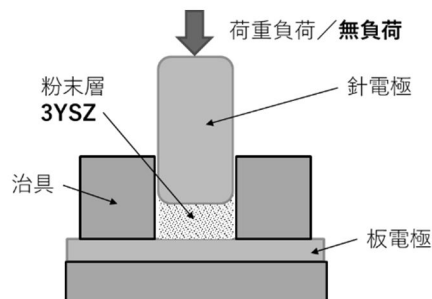


図 1 局所フラッシュ焼結システムの模式図

4. 研究成果

(1) FEM による電場 - 伝熱解析結果：FEM による電界解析により、想定される太さ 1mm の針電極において、先端の形状によらず、先端から 1mm の範囲内で 1000V/cm 以上に到達することがわかった。これは従来のフラッシュ焼結において十分に大きな電界強度である。図 2 に FEM 解析により得られた局所フラッシュ焼結時の温度変化の予測例を示す。ここでは厳密な物理現象の解析、すなわち個々の粉末が焼結や溶融により形状変化することを拡散・流体解析でシミュレーションするのではなく、粉末層を 1つのバルクとして見立てて物性を与え、電気 - 熱連成解析を行った。なお、この物性は従来のフラッシュ焼結の結果から予想される物性値を用いた。その結果、針電極の先端形状によらず、600 以上の雰囲気温度で十分にフラッシュ焼結が可能であることが予測された。ただし、この予測では粉体表面の通電は考慮されていない。そのため、粉体表面でのジュール発熱がフラッシュ焼結の支配的な駆動力である場合、圧粉成形体と PBF のような粉体層ではフラッシュ焼結の発生条件が異なる可能性が示唆された。

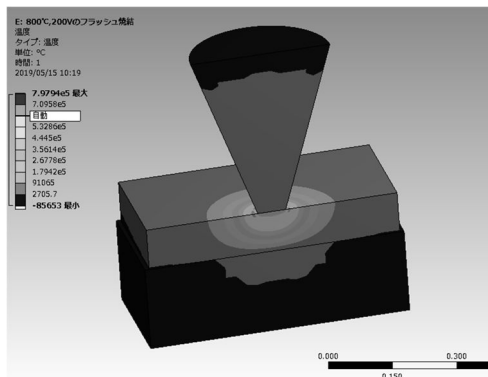


図 2 FEM 解析による局所フラッシュ焼結時の温度変化予測

(2) 局所フラッシュ焼結実験結果：

作製した局所フラッシュ焼結装置を用いて、3%イットリア添加安定化ジルコニア粉末 (3YSZ) を 1 - 10mm の厚さに積層し、温度 700 - 1000 の大気雰囲気下にて局所フラッシュ焼結実験を行った。しかし、リング状電極と針状電極の電極機構ではフラッシュ焼結は発現しなかった。これはフラッシュ焼結の発生機構が、電場による焼結の活性化エネルギーの低下などの化学的効果によるものではなく、通電によるジュール発熱の物理的効果によるものであることを支持する。そこで、リング状電極を板状電極に変え、実験を行った。荷重を負荷した積層厚さ 10 - 3mm の粉末層において局所フラッシュ焼結が生じ、緻密な焼結体を得ることに成功した(図 3)。局所フラッシュ焼結が生じたときの電流値の時間変化の例を図 4 に示す。従来のフラッシュ焼結では一定時間後電流はほとんど流れないが、局所フラッシュ焼結では一定時間後も電流が流れ続けた。これは電極中心が焼結した後も、周りに焼結が進行していることを示唆している。一方、無負荷の粉末層では、フラッシュ焼結が生じなかった。これは加圧による粉末のかさ密度の増加により、十分な導電パスが得られることを示唆している。また、積層厚さ 1mm の粉末層では電極間で大気放電が生じ、電極も溶融したため、継続してフラッシュ焼結を進行させることができなかった。さらに、10%イットリア添加安定化ジルコニア粉末においても同様の実験を行ったが、3YSZ と同様の結果となった。PBF 方式では少なくとも 1mm 以下の積層厚さで焼結できなければ実用性が低いいため、局所フラッシュ焼結法の AM 応用には大気放電への課題が残った。

本研究では、従来、圧粉成形体を試料としていたフラッシュ焼結において、加圧した粉末層でもフラッシュ焼結が可能であることを見出した。しかし、フラッシュ焼結法の AM への適用には薄い積層厚さにおける大気放電への対策の検討が必要である。

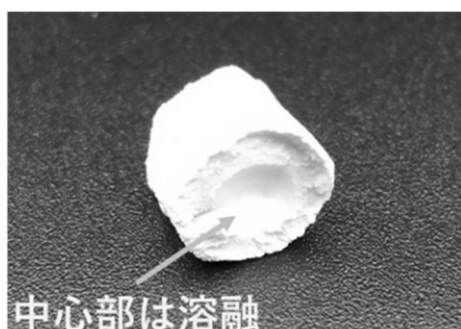


図 3 局所フラッシュ焼結体

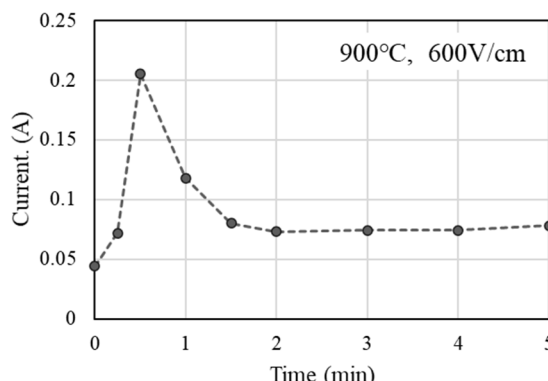


図 4 局所フラッシュ焼結時の電流変化

<参考文献>

- [1] M. Cologna, B. Rashkova and R. Raj: Flash Sintering of Nanograin Zirconia in <5 s at 850°C, Journal of the American Ceramic Society 93 (2010) 3556-3559. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.04089.x>
- [2] 吉田英弘, 山本剛久: フラッシュ焼結法によるセラミックス製造の現状と展望, 粉体および粉末冶金 64 (2017) 523-531. <https://doi.org/10.2497/jjspm.64.523>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------