

## 粉末冶金法による優れた特性を有するアルミニウム合金の創成

日大生産工(院) ○北村 翼

日大生産工 久保田 正広

## 1. 緒言

低炭素社会への取り組みにおいて、構造材料の軽量化は重要な役割を担っている。代替材料として、比重が鉄の3分の1と軽量のアルミニウム( $Al: 2.70g/cm^3$ )を使用することで、軽量化の効果を発揮するため、数多くの合金が開発されてきた。日本工業規格の1000系から7000系などのアルミニウム合金は、耐摩耗性や溶接性などの様々な特性を改善することで利用範囲を広げてきた。一般に金属材料は、高温になると組織が変化して著しい強度低下を示す。本実験では、多様な特性がある中、耐熱性に注目する。耐熱性アルミニウム合金とされる2000系( $Al-Cu$ )合金の場合でも約 $130^\circ C$ を超えると急激な強度低下を示す<sup>1)</sup>。したがって、アルミニウム合金は高温域で使用される部材には不向きである。アルミニウムの耐熱性の向上を図るためには、アルミニウムに高い融点を有する遷移元素を添加することが良いとされている。しかし、平衡状態図によればアルミニウム中への遷移金属の最大固溶限は一般的に低い<sup>2)</sup>。よって、高い融点の遷移元素を添加した新しいアルミニウム合金の開発が望まれる。しかし、一般に使用される1000系から7000系の合金は溶解鑄造法によって製造されている。溶解鑄造法の欠点として、比重および融点の組合せによって組織の不均一性が高くなること、平衡状態図より添加元素を固溶させるには限界があることが挙げられる。つまり、溶解鑄造法は製造途中で液相状態を介することで、合金設計上で複数の制約を受ける<sup>3)</sup>。一方で、粉末冶金法は、粉末のまま合金化して焼結することで、固相状態での合金化および成形が

可能なプロセスである。つまり、平衡状態図、融点および密度の制約を受けない。これにより、溶解鑄造法では作製不可能な合金や本来示さない特性を付与した合金の開発が期待できる。粉末冶金による材料作製の主な流れは、粉末の混合、成形工程、焼結工程の3つである。それぞれの工程には、いくつもの異なる手法があり、複数の工程を同時に行うことが可能な特殊なプロセスが開発されてきた。本研究では、粉末の作製および混合の工程をメカニカルアロイング(Mechanical Alloying: MA)法で行い、加圧成形および焼結の工程を放電プラズマ焼結(Spark Plasma Sintering: SPS)で行う。Fig. 1に粉末冶金法のプロセスとMAおよびSPSの関係を示す。上記の二つのプロセスを組み合わせたプロセスはMA-SPSプロセスと呼ばれる。MA法は、1970年にJ.S.Benjaminによって考案された手法

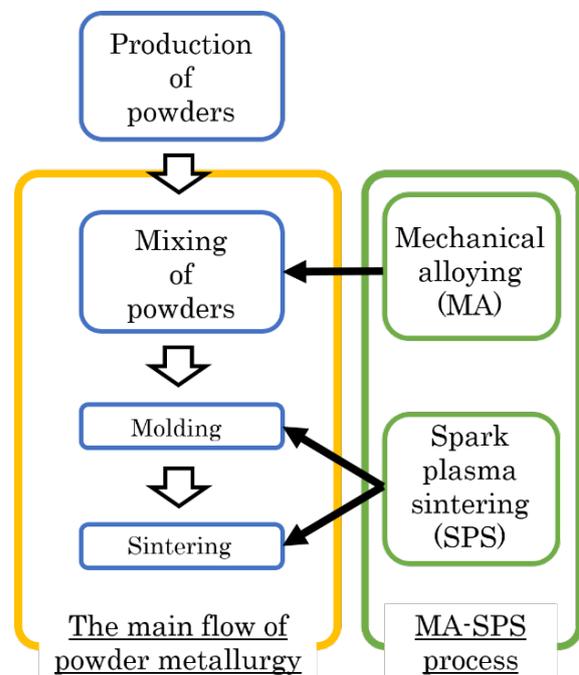


Fig. 1 Relation between main flow of powder metallurgy and MA-SPS process.

Synthesis of high performance aluminum alloy via powder metallurgy

Tsubasa KITAMURA and Masahiro KUBOTA

であり、ボールミルを用いて二種以上の金属粉末を混合・粉砕することにより合金化するプロセスである<sup>4)</sup>。MA 処理は粉末の合金化のみならず、ボール同士が衝突した際に、粉末が引き伸ばされ、さらに折りたたまれていくことで粉末が小さくなる<sup>4)</sup>。その結果、粉末には結晶子の微細化およびひずみの導入が同時に起こり、強度向上が期待される。MA とは、合金化が生じる場合に用いられる用語であり、合金化が生じない場合には、メカニカルミリング(Mechanical Milling : MM)を用いる。SPS 法は、1960 年代、日本の井上らが研究を始めた通電焼結の一種であり、1990 年から注目され始めた<sup>4)</sup>。粉末粒子間の火花放電によって、粉末表面の酸化被膜を除去し、加圧することで粒子間結合を行うバルク材作製方法である。従来の金型を加熱することで間接的に熱を加えるのではなく、粉末への ON-OFF 直流パルス通電により、試料内部の自己発熱作用によるジュール熱を積極的に利用している<sup>5)</sup>。これにより、ホットプレス焼結よりも低温域かつ短時間での焼結が可能であるため、粉末の特性をほぼ維持したまま固化成形を行える<sup>3)</sup>。また、放電点とジュール発熱点の分散による均等加熱により、効率的に均質な焼結体が得られる。上記に示したように、SPS 法では、粉末の特性をほぼ維持したまま固化成形が出来るため、MA 法で粉末に付加したひずみ等の高い特性を維持すること可能である。また、MA 処理時に粉末同士の固着を防ぐために添加するステアリン酸が化合物を形成することで、分散強化も期待できる。以上より、MA-SPS プロセスは、ひずみの導入による加工硬化、粉砕による結晶子の微細化、添加された元素による固溶強化、化合物の分散による分散強化などの効果を粉末に同時に付与でき、効率的に特性を高めることが可能なプロセスである。

本研究では、MA-SPS 法を用いることで、

アルミニウム合金に溶解鑄造法では合金化が困難な遷移元素を添加し、耐熱性に優れたアルミニウム合金の創成を目指す。耐熱性に求められる特性は、高温状態で組織が変化せず、特性を維持することである。そこで添加元素には、金属の中で最も高い融点を有するタングステン(W, 融点 3683K, 密度 19.3g/cm<sup>3</sup>)と、高融点かつ遷移金属の内でも比重の小さい部類に入るチタン(Ti, 融点 1941K, 密度 4.5g/cm<sup>3</sup>)を選択した。これらを同時に添加した三元系合金の創製を試み、作製した材料の特性を評価する。

## 2. 実験方法

本研究で作製した Al-Ti-W 合金の種類を Table 1 に示す。Al 粉末に対して、Ti 粉末および W 粉末の添加は 5mass%, 10mass%, 15mass%の各 3 条件とし、それぞれの条件を組み合わせる 9 種類の Al-Ti-W 合金とする。精密天秤を用いて純 Al 粉末(純度 : 99.9 %, 平均粒子径 : 40 μm), Ti (純度 : 99.5 %, 約 44 μm), W(純度 : 99.9%, 平均粒子径 : 2~3 μm), 焼き付き防止剤のステアリン酸 0.25 g をそれぞれ秤量した。グローブボックスを用いて、アルゴンガス雰囲気にし、総重量 10g 組合せの粉末と工具鋼製ボール 70 g (1g/1 個) を工具鋼製容器に封入した。粉末

Table 1 Type of Al-Ti-W alloy (mass%).

Alloy	Ti	W
Al - 5Ti - 5W	5	5
Al - 5Ti - 10W		10
Al - 5Ti - 15W		15
Al - 10Ti - 5W	10	5
Al - 10Ti - 10W		10
Al - 10Ti - 15W		15
Al - 15Ti - 5W	15	5
Al - 15Ti - 10W		10
Al - 15Ti - 15W		15

とボールの重量比は、1 : 7 一定とした。その後、振動型ボールミル(SPEX8000, モーター回転数 : 800rpm)を用いて、MA 処理した。工具鋼製容器と工具鋼製ボールの外観を Fig. 2 に、SPEX 内部構造を Fig. 3 に示す。本研究で使用した振動型ボールミルはモーターの動力をベルト駆動によって容器に伝えている。容器は 8 の字の軌跡を描きながら振動することで攪拌・混合する機構となっており、小型であるが高エネルギーの付与が可能である。MA 処理条件は、ボールミルのモーター回転速度を 800 rpm の一定とし、MA 処理時間は 2 h, 4 h, および 8 h の 3 条件とした。マイクロビッカース硬さ試験機 (試験力 98mN, 保持時間 20s) を用いて、15 ポイント測定し、上位および下位 1 つずつを除く 13 ポイントのデータから平均値を求めた。



Fig. 2 Tool steel vessel and tool steel balls.



Fig. 3 Vibratory ball mill (SPEX 8000 Mixer/Mills).

次に、SPS 装置を用いて、得られた MA 粉末からバルク材を作製した。Fig. 4 に SPS 装置の全体を示す。SPS 装置は SPS 焼結機本

体、油圧装置、真空排出装置 (ロータリーポンプ, ディフュージョンポンプ), 計器類から成る。Fig. 4 の左側にあるチャンバー中に粉末を装填した黒鉛ダイをセットし、真空状態にした後、一軸方向の加圧状態で通電して焼結を行う。作製した MA 粉末 5 g を直径 20 mm × 高さ 40 mm の黒鉛型に装入し、SPS 装置チャンバー内の真空度を 10 Pa 程度に保ち、黒鉛パンチで圧力を加えて、高さ約 5 mm のバルク (SPS) 材を作製した。黒鉛パンチは、上部および下部の両方が移動する複動タイプの加圧方法である。焼結条件は、昇温速度 1.20 K / s, 焼結温度 873 K, 加圧力 49MPa, 保持時間 600 s とした。したがって、総焼結時間は、1080 s となる。また、離型剤としてカーボンペーパーを使用した。作製したバルク材を硬さ試験のためにエメリー紙で研磨後、バフ仕上げをして鏡面を得た。ビッカース硬さ試験機 (試験力 9.8N, 保持時間 20s) を用いて、15 ポイント測定し、上位および下位 1 つずつを除く 13 ポイントのデータから平均値を求める。



Fig. 4 SPS system (DR.SINTER SPS-1050).

次に、Fig. 5 に示した X 線回折装置を用いて、MA 粉末と SPS 材の化合物相の同定を行う。X 線回折装置内部は、X 線発生部、サンプルステージ、受光部から成る。X 線発生には、対陰極として銅 (Cu) が用いられている。MA 粉末の測定は、酢酸イソアミルとコロジオンの混合溶液で試料ホルダーに固定して行

う。SPS 材の測定は、SPS 材の表面を研磨した状態で試料ホルダーに固定して行う。測定は、CuK $\alpha$ 線 ( $\lambda=0.154056\text{nm}$ ) を用い、管電流 40mA、管電圧 40kV で、回折速度  $1.66 \times 10^{-2}\text{deg/s}$ 、回折角度  $20\sim 80^\circ$  の範囲で行う。



Fig. 5 X-ray diffraction apparatus.

次に SPS 材の耐熱性を評価するために、Fig. 6 に示す卓上型マッフル炉 (F-120-S) を用いて、各加熱時間に対する硬さの変化を調べるために SPS 材に対して等時加熱および等温加熱を行う。等温加熱の加熱温度は 573K、673K、773K、873K の 4 パターンとし、加熱時間は一定の 10h とする。次に、等温加熱では加熱温度を等時加熱の結果により決定する。加熱時間は累計とし、24h おきに 240h まで行い、300h 以降は 100h おきに測定し、最大 500h までとする。



Fig. 6 Muffle furnace (F-120-S).

### 3. 実験結果および考察

Al-10mass%Ti 合金へ W の添加量を変化させた場合のビッカース硬さ試験の結果を Fig. 7 に示す。一般的に MA 処理時間が長いほど、加工硬化が期待されるが、Fig. 7 から MA 処理時間が長いほど硬さは低い値を示した。MA 処理では、まず粉末は扁平化し、扁平化した粉末同士が鍛接され合体した後、粉末の微細化が起こる<sup>6)</sup>。より硬い Ti 粉末は扁平化が遅れるので、短い MA 処理では粒径を維持したままと考えられる。また、MA 処理時間が伸びるにつれ、硬さが低下している。これは Ti 粉末の扁平状となり、Al 粉末に取り込まれたとみられる。

現在、MA 処理による粉末の作製中である。

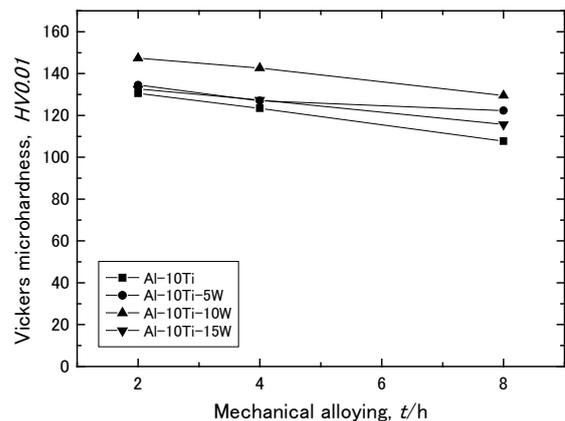


Fig. 7 Comparison in Vickers hardness of Al-10mass%Ti-xW alloy powder (x=5,10,15).

### 参考文献

- 1) 小山克己, 高強度・耐熱性アルミニウム合金, Furukawa Sky Review No.6 2010,p13
- 2) 軽金属学会, アルミニウムの組織と性質, p340
- 3) 久保田正広, MM-SPS プロセスで作製した純アルミニウムの特性, 一般社団法人軽金属学会会誌 Vol.62,No.11 (2012),pp424-428
- 4) (社)粉体粉末冶金協会, 粉体粉末冶金便覧,pp13-157
- 5) 鴫田正雄, SPS 放電プラズマ焼結法の最近の技術動向, 粉体工学会誌 Vol.30 No.11,pp793-794
- 6) 阿部俊一, Al-20mass%Ti 混合粉末のメカニカルアロイング, 日本金属学会誌 Vol. 54 No.8 (1990),pp895-902