

金属粉の抵抗焼結特性

Resistance—Sintability of Metallic Powders

明智 清明*・原 善四郎*

Kiyooki AKECHI and Zenshiro HARA

各種金属粉の抵抗焼結特性——すなわち抵抗焼結の際の挙動および抵抗焼結体の金属組織、物理的・機械的性質——を、抵抗焼結機の電気的特性および通電中の焼結体の温度上昇過程、電気抵抗減少過程、推定到達温度と焼結体の諸性質との関係によって比較・検討し、金属粉の抵抗焼結の難易を考察した。その結果、チタン粉が最も抵抗焼結特性が良好であることが明らかとなった。

1. は し が き

加圧下の金属粉に直接に大電流を通電するとき、金属粉に発生するジュール熱によって金属粉を焼結する方法を抵抗焼結法と呼ぶ。この方法は金属粉を空気中で極短時間内に緻密な金属塊に成形・焼結できる特長があり、興味ある粉末冶金技術のひとつである。筆者らはこの方法について研究しているなかで、当然のことながら金属粉の種類によって健全な焼結体が容易に得られる粉末と得にくい粉末があることを経験した。つまり金属粉の種類によって抵抗焼結中の挙動や生成する抵抗焼結体の物理的・機械的性質がさまざまに異なるのである。そこでこのような抵抗焼結にかかわる金属粉の特性を“金属粉の抵抗焼結特性 (resistance—sintability)”と呼ぶことにする。複合材料を含め各種金属・合金材料を抵抗焼結法で製造するには金属粉の抵抗焼結特性とそれを支配する要因を把握しておく必要がある。本報では抵抗焼結実験のデータにもとづいて各種金属粉の抵抗焼結特性を比較し、金属粉の抵抗焼結特性を支配する要因について検討を加えた。

2. 金属粉の抵抗焼結特性比較の方法

噴霧Al粉(低真空乾燥処理粉とミキサーかく拌処理粉)、Ti粉(Na還元粉と水素化物分解粉、両者とも未処理粉)、電解Fe粉(還元処理粉)、電解Ni粉(還元処理粉と未処理粉)の4元素7種類の金属粉の抵抗焼結特性を比較する。対象金属粉の種類、粒度、前処理ならびに各金属元素の物理的性質をTable 1にまとめて示す。なお、以下の記述に際して、Na還元Ti粉をTi(N)粉、水素化物分解Ti粉をTi(H)粉、還元処理電解Ni粉をNi(re)粉、未還元処理電解Ni粉をNi(no)粉と表わす。これらの金属粉をほぼ同様の抵抗焼結条件(無気孔焼結体の体積 $2.7\sim 3.2\text{cm}^3$ 、加圧力 $1.2\sim 1.3\text{t/cm}^2$ 、設定電流実効値80%、設定無負荷二次電圧6.9V)で抵抗焼結

する際の挙動および抵抗焼結体の諸性質を以下のように比較する。

(1) 使用した抵抗焼結機(容量45kVA、最大加圧力3t)の電気的特性を検討する。

(2) 各粉末を抵抗焼結する際の入力値の時間的変化から、温度上昇の時間的変化を求め¹⁾比較する。同等の抵抗焼結条件のもとで、温度上昇の速い粉末ほど焼結の進行が速いと考えられる。

(3) 各金属粉の抵抗焼結中の電気抵抗値の時間的変化ならびにその際の金属粉の固有電気抵抗率の時間的変化を求め²⁾比較する。このことから同一の抵抗焼結条件のもとでの焼結の進行の度合いを比較することができる。

(4) 融点 T_{mp} に対する到達温度 T の比較で示す相対到達温度 T/T_{mp} (T, T_{mp} は絶対温度)に対する各種抵抗焼結体の物理的・機械的性質の依存性を比較する。この比較を行うのは、各粉末に対して融点との比率からみて等価の入力が入ったときの抵抗焼結体の物理的・機械的性質を比較することによって、抵抗焼結法に対する金属粉の適性を比較できるからである。

(5) 上記の4項目ならびに粉末の前処理の必要性、抵抗焼結の際の挙動の安定性等を含めて、総括的に各種金属粉の抵抗焼結特性を判断する。

3. 抵抗焼結機の電気的特性からみた最適入力条件

前節(2)に示した抵抗焼結の際の入力値を規定する因子として、実験に用いる抵抗焼結機の電気的特性が重要である。

抵抗焼結法においては金属粉を内面に絶縁膜を施した金型型穴に装入し、その上下に通電・加圧並用のパンチ(クロム銅合金製)を装着し、そのまま抵抗焼結機の両電極間にはさんで抵抗焼結を行う。使用した抵抗焼結機では両電極に接続したブスバーに、200V、50Hz電源から溶接用変圧器(二次側1巻)によって降圧された低電圧・大電流が流れる。二次側電気回路の構成はブスバー、電極、パンチ、金属粉、パンチ、電極、ブスバーとなって

* 東京大学生産技術研究所 第4部

Table 1 Fabrication method, pretreatment and particle size of used metallic powders and the physical properties of those metals

Element	Al		Ti		Fe	Ni	
	Al (dried)	Al (mixed)	Ti (N)	Ti (H)		Ni (re)	Ni (no)
Powder							
Fabrication method	atomized		Na-reduced	dehydrated	electrolytic	electrolytic	
Pretreatment	dried for 1 hr at 120°C in 5×10^{-2} torr	mixed for 6 min	no	no	reduced for 30 min at 500°C in H_2	reduced for 30 min at 500°C in H_2	no
Particle size (mesh)	-150	-150	-60	-350	-325	-350	-350
Density (g/cm ³)	2.7		4.5		7.9	8.9	
Electrical resistivity ($\mu\Omega \cdot \text{cm}$)	2.7		45~50	55~60	9.7	6.8	
Specific heat ① (cal/g·deg) ② (cal/cm ³ ·deg)	① 0.215 ② 0.581		① 0.124 ② 0.558		① 0.106 ② 0.834	① 0.104 ② 0.926	
Crystal structure and phase transformation	FCC S → L 660		HCP (α) $\alpha \rightarrow \beta$ 882 BCC (β) $\beta \rightarrow L$ 1670		BCC (α) $\alpha \rightarrow \gamma$ 910 FCC (γ) $\gamma \rightarrow \delta$ 1400 BCC (δ) $\delta \rightarrow L$ 1540	FCC S → L 1453	
(S: Solid phase) (L: Liquid phase) (°C)							

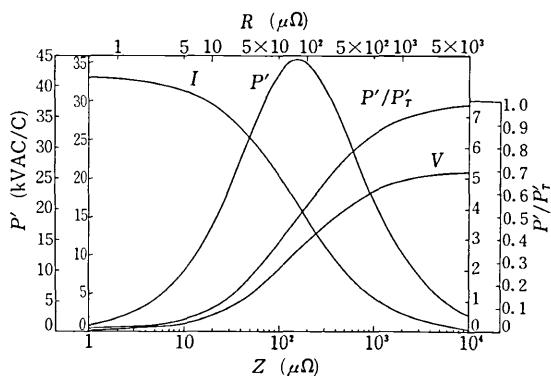


Fig. 1 Dependence of current (I), voltage (V), power input into powder system (per a cycle) (P') and power efficiency P'/P_T on impedance (Z) or electrical resistance (R) of powder. P_T : total power input (per a cycle) into the secondary current.

いる。いまパンチおよび金属粉部分を粉末系と呼び、他の部分を給電系と呼ぶ。粉末系、給電系および全系のインピーダンス、電圧、消費電力をそれぞれ $Z, V, P', Z_0, V_0, P_0; Z_T, V_T, P_T$ で表わすと、

$$P' = V_T^2 Z / (Z + Z_0)^2$$

となり、粉末系の消費電力は $Z = Z_0$ のとき最大 ($V_T^2 / 4Z_0$) となる。つまり粉末系の電気抵抗が給電系のそれに等しいとき、粉末系に最大の入力を与えられることになる。使用した抵抗焼結機の Z_0 は短絡試験の結果(巻数

比 28. 無負荷時二次電圧 6.9 V, 負荷時定格一次電圧 180 V, 設定電流実効値 98%, 一次電流 1450 A, 二次電流 40500 A, 力率 49.0%) から求めると、 $Z_0 = 160 \times 10^{-6} \Omega$ となる。後述する実験では設定電流実効値は 80% であった。この場合の粉末系入力、電流、電圧ならびに全系入力に占める粉末入力の占める割合と、粉末系インピーダンスとの関数を Fig. 1 に示した。最大入力となる粉末系の電気抵抗値は上記インピーダンス値に力率を乗じて $78.4 \times 10^{-6} \Omega$, 最大入力は 44.6 kVA となる。

Fig. 1 から金属粉の抵抗焼結の際の入力の大小と金属粉の電気抵抗との関係についてつぎのように考えることができる。

(1) 抵抗焼結しようとする加圧下金属粉 (圧粉体) および抵抗焼結中の金属粉の電気抵抗が高いほど、回路の全消費電力に占める粉末加熱電力の割合 (P'/P_T) が大きくなる。

(2) しかし金属粉の電気抵抗が高すぎると、金属粉への入力が減ったと見え加熱されたとしても昇温速度が遅く、金型やパンチへの熱放散が多くなって粉末加熱の真効率は悪くなる。

(3) 金属粉の電気抵抗が低すぎても、粉末系への入力が少なくなって粉末が加熱されていないばかりか電力は給電系で消費されエネルギー効率が低下する。

(4) したがって金属粉の抵抗焼結を効率よく行うには粉末系に最大入力が入るような電気抵抗値 (本実験での

場合約 $80 \times 10^{-6} \Omega$ 程度) を粉末系が有すること (および抵抗焼結中にその値を持続すること) が重要である。

4. 各種金属粉の抵抗焼結特性の比較

4.1. 抵抗焼結中の温度上昇過程

抵抗焼結中の各種金属粉抵抗焼結体の入力にもとづく推定到達温度の時間的変化を Fig. 2 に示す (Al に関しては処理による相異は認められなかった)。

ごく初期を除くと, Ti(H)粉が最も温度上昇が急激で Fe 粉が最もゆるやかである。0.08秒 (4 サイクル) までのごく初期では Ni(re) 粉が最も温度上昇が速い。このことは, 使用抵抗焼結機の固有インピーダンスとの関連から, 粉末に対する単位時間当たりの入力が増大となる焼結体(圧粉体)の電気抵抗 R_m (本実験で用いた試片形状・寸法の場合, 最大入力を与える電気抵抗率 ρ_m は $\sim 160 \mu\Omega \cdot \text{cm}$) が存在するという事実にもとづいている。すなわち Ni(re) 粉圧粉体の抵抗焼結初期における電気抵抗率は他の金属粉に比してきわめて低く $\sim 240 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ であり (Fig. 3 参照), 上述の ρ_m に近い。また Ti(H) 粉が全期にわたって温度上昇が急激な理由としてはつぎの二点が挙げられる。ひとつは, Fig. 4 に示されるように固有抵抗率が大きくかつその温度依存性が急激で, しかも β 相では ρ_m と等しい $160 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ となってほとんど変化しないことである。もうひとつは Table 1 に示されるように, 単位体積当たりの比熱が最も小さいことである。

4.2. 抵抗焼結中の電気抵抗値減少過程

各種金属粉抵抗焼結体の抵抗焼結中の電気抵抗率 ρ^* の時間的変化を Fig. 3 に示す。また固有抵抗率 ρ の時間的変化を Fig. 4 に示す。Fig. 3 の ρ^* の初期値は, $\text{Ni(re)} < \text{Ni(no)} < \text{Fe} < \text{Ti(H)} < \text{Ti(N)} < \text{Al}$ の順に大きくなっていく。一方, Fig. 4 の ρ の上昇は, $\text{Al} < \text{Ni} < \text{Fe} < \text{Ti(N)} < \text{Ti(H)}$ の順に大きくなっていく。

Fig. 3 の ρ^* の時間的変化は, はじめ高い値であるものが急激に低下し, その後はほぼ一定値になることを示している。ただし Ni(re) 粉は初期と後期で ρ^* がほとんど変わらない。また Fe の場合には ρ^* の急激な低下の後 ρ^* は高く, 時間とともになだらかに低下している。Al 粉の場合には, 初期段階で ρ^* の低下しない時間が約 0.1 秒間存在している。

ρ^* の初期段階での値は, 絶縁性酸化皮膜の影響のある Al を除くと, ρ の低いものほど低く, また, 同元素粉に関しては粉末表面の酸化皮膜の影響の少ないもの (たとえば Ni(no) に比して Ni(re)) や, 粒子内部が緻密なもの (たとえば, Ti(N) 粉のスポンジ状粒子に比して Ti(H) 粉は緻密) の方が, 低い傾向を示している。

焼結体の温度上昇を速める条件をまとめるとつぎのようになる。第一に単位体積当たりの比熱の小さい粉末で

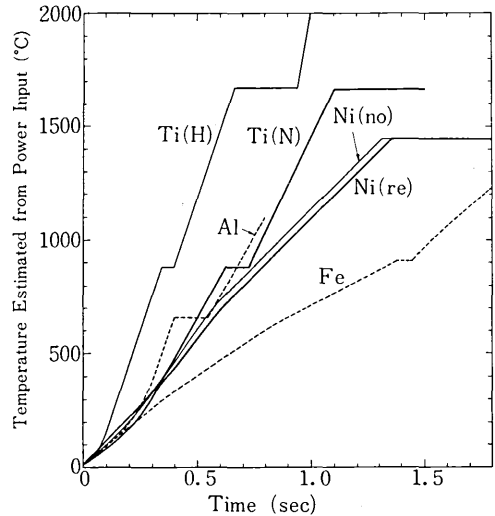


Fig.2 Dependence of temperature estimated from power input on electrical charge time (set up current level: 80%, pressure: 1.2~1.33t/cm²).

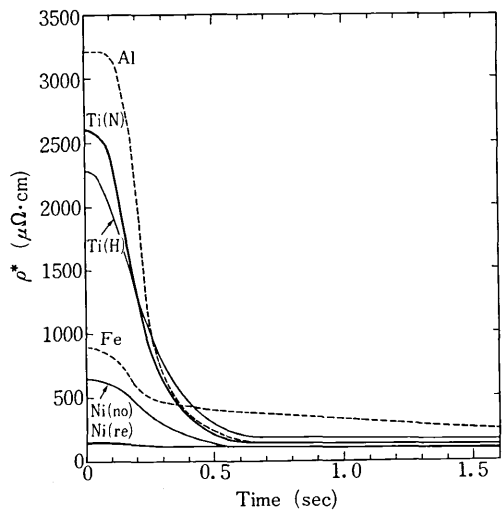


Fig.3 Changes of electrical resistivity ρ^* during resistance-sintering.

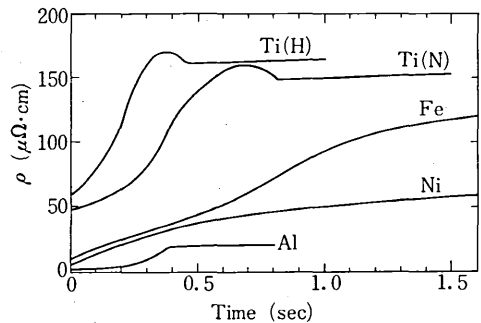


Fig.4 Changes of specific electrical resistivity ρ during resistance-sintering.

あること、第二に前述の ρ_m 値に近い ρ^* でその持続時間が長いことである。

以上のような条件に最も適合しているものはTi粉である。またTi粉の場合には、温度上昇にともなう ρ の上昇は、883°Cまでの α 相内で急激であり、変態点近傍では単位時間当たり最大入力を与える ρ_m 値とほぼ等しい ρ となり、しかも β 相ではほとんど変化しないことも、急激な温度上昇に寄与するものと思われる。

4.3 抵抗焼結体の諸性質と相対到達温度 T/T_{mp} の関係

各種金属粉を同一加圧力のもとで抵抗焼結するとき、

それら金属粉が当該金属の融点との対比で対応する温度に到達したときの抵抗焼結体の物理的・機械的性質を比較することは、それら金属粉の抵抗焼結に対する適性の比較に有用である。ここでは各種金属粉の抵抗焼結試片の密度比D.R., 引張強さ σ , 伸び ϵ , 金属固体の固有抵抗率 ρ_0 に対する試片の電気抵抗率 ρ の比率 ρ/ρ_0 の各々と相対到達温度 T/T_{mp} の関係をFig.5に示す。

いずれの金属粉においても、相対到達温度上昇とともに、密度比、引張強さ、伸びは上昇し、電気抵抗は低下している。密度比は同相対到達温度で比較して、Tiが最も高く、ついでAl, Ni(no), Fe, Ni(re)の順になってお

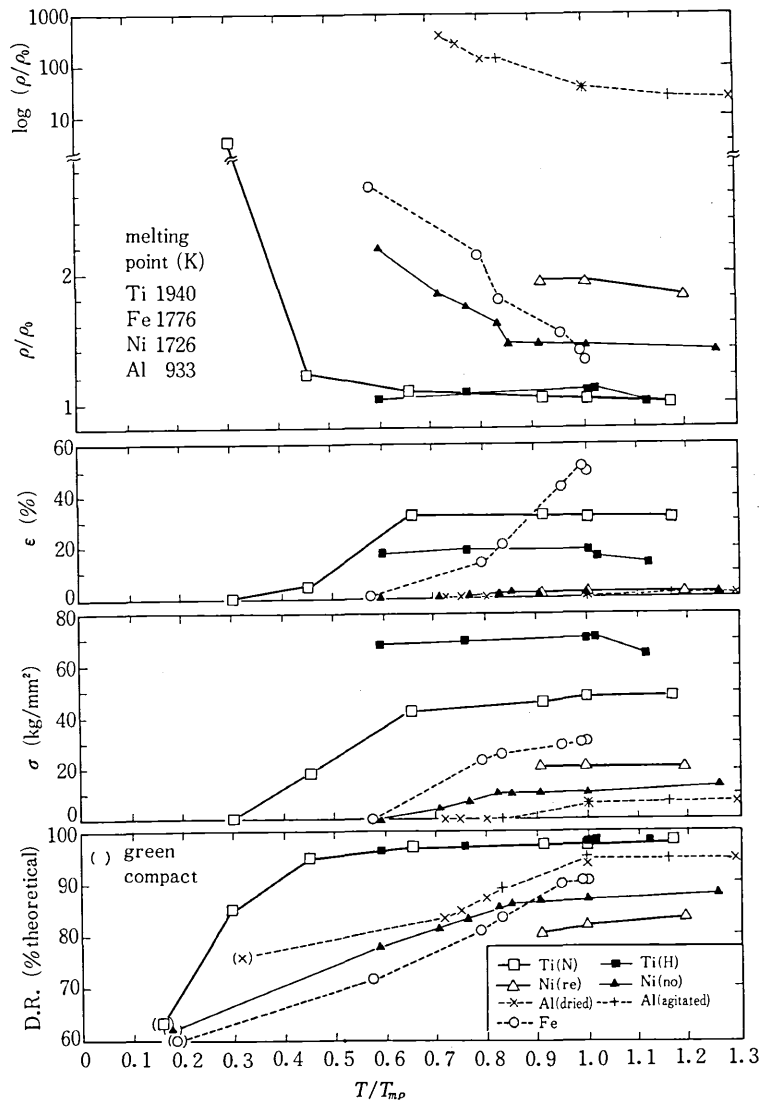


Fig.5 Dependence of density ratio (D. R.), tensile strength (σ), elongation (ϵ) and normalized electrical resistance (ρ/ρ_0) (ρ : resistivity of sintered specimen, ρ_0 : specific resistivity of solid metal) on normalized temperature (T/T_{mp}) (T : temperature estimated from power input, T_{mp} : melting point of metal, unit: K).

Table 2 Availability of metallic powder for resistance-sintering

	Powder			
	Al	Ti	Fe	Ni
Pretreatment of powder	necessary	needless	ocasionally required	ocasionally required
Densification rate	rapid	rapid	slow	insufficient
Mechanical properties	good	excellent	excellent	good
Electrical resistance (compared with solid metal)	higher	same	same	same
Stability of resistance-sintering	bad	good	good	good
Availability for resistance-sintering	fairly good	excellent	good	fairly good

り、 $T/T_{mp} > 0.9$ ではFeはNi(no)よりも高くなっている。引張強さはTi(H)が最も高く、ついでTi(N)、Fe、Ni(re)、Ni(no)、Alの順になっている。伸びは、 $T/T_{mp} < 0.8$ では、Ti(N) > Ti(H) > Fe > Ni(no) & Ni(re) > Al、 $T/T_{mp} > 0.9$ では、Fe > Ti(N) > Ti(H) > Ni(no) & Ni(re) > Alの順になっており、 $T/T_{mp} > 1.0$ では、Ti、Feでは若干低下の傾向がみられる。 ρ/ρ_0 は、Tiが最も低く、ついでNi(no)、Fe、Ni(re)とつづき、Alは著しく高い。

いずれの性質においても、Tiは低い相対到達温度で抵抗焼結が進行し、 $T/T_{mp} \approx 0.6$ で、密度比96%以上、引張強さ、伸びもほぼ溶解材に匹敵した高い値を示し、かつ $\rho/\rho_0 \approx 1$ となっていることが注目される。

Feの場合には、 $T/T_{mp} = 1$ になるまで徐々に諸性質が向上し、引張強さ、伸び、電気抵抗は密度比の上昇に支配され、91%の密度比となる $T/T_{mp} = 1$ 近くになって引張強さ30 kg/mm²、伸び50%と優れた機械的性質を有するものとなる。しかし、 ρ/ρ_0 は1にはならない。

ここで、粒子間接触抵抗の緻密化に果たす役割について検討する。ある程度粒子間接触抵抗が存在して初期の ρ^* が高いことは、粒子間接触抵抗発熱で粒子表面部が優先的に加熱され粒子の再配列によって緻密化することに寄与する。しかも緻密化が進んで粒子間接触抵抗の寄与が少なくなってもTiのように ρ_m よりも著しく低い ρ^* とな

らない程度に粒子の固有抵抗率が高いことは、温度上昇を速めることになると考えられる。

4.4 各種金属粉の抵抗焼結特性の比較

Fig. 2~5をまとめて考察すると、単位体積当りの比熱が小さく、金属固体の室温ならびに高温における固有抵抗率が ρ_m の値程度に大きく、しかも適当な大きさの粒子間接触抵抗が存在している金属粉が、抵抗焼結の際の温度上昇が急激で、相対到達温度が低い段階で物理的・機械的性質の良好な抵抗焼結体が得られると判断される。

各種金属粉の抵抗焼結に対する各性質、各条件の評価をまとめてTable 2に示す。Tiは、粉末前処理が不必要であり、抵抗焼結の際の緻密化が良好で物理的・機械的性質がすぐれており、しかも局部的な試片の溶融が生じにくく抵抗焼結の安定性も良い。したがってTable 2の各種金属粉のなかではTi粉が最も抵抗焼結特性が優れていると結論することができる。

(1979年4月11日受理)

文 献

- 1) 明智, 原: 生産技術研究所報告, 27 (1979.3) No.8; 粉体および粉末冶金, 25 (1978), 193.
- 2) 明智, 原, 坂井, 板橋: 粉体および粉末冶金, 25 (1978), 219.

