

DCパルス通電加熱焼結法による異種金属素粉末の  
加圧反応焼結特性\*中村 保<sup>\*1</sup>, 田中繁一<sup>\*1</sup>, 早川邦夫<sup>\*1</sup>  
今泉晴樹<sup>\*2</sup>, 西村昌樹<sup>\*3</sup>, 村越靖久<sup>\*4</sup>Pressure Sintering Characteristics with Chemical Reaction between  
Dissimilar Metal Powders by DC Pulse Resistance-Sintering ProcessTamotsu NAKAMURA<sup>\*5</sup>, Shigekazu TANAKA, Kunio HAYAKAWA,  
Haruki IMAIZUMI, Masaki NISHIMURA and Yasuhisa MURAKOSHI<sup>\*5</sup> Department of Mechanical Engineering, Shizuoka University,  
3-5-1 Johoku, Hamamatsu-shi, Shizuoka, 432-8561 Japan

A DC pulse resistance-sintering process is introduced to reduce the long processing time in the net shape sintering process of parts including intermetallic compounds by a hot-pressing (HP) process with chemical reaction between copper and aluminum powders and titanium and aluminum powders. By the DC pulse resistance-sintering mixed powder materials are sintered directly by a phenomenon of microscopic electric discharge between the particles using a DC pulse generator under a punch pressure in a graphite die. The powder mixtures of Cu-33 at % Al and Ti-50 at % Al were milled by a mechanical alloying (MA) process. The MA powder mixtures were sintered using the DC pulse resistance-sintering process. It has been confirmed that the mechanical properties obtained in a short processing time of only about 10 min by the resistance-sintering processes are as same as those in a long processing time of 2-3 hours by the HP process.

**Key Words:** Powder Metallurgy, Sintered Materials, Hardness, Nonferrous Metal, Intermetallic Compound

## 1. 緒言

金属間化合物は、強度、耐食性あるいは耐熱性等の優れた材料特性を有するため、通常の金属や合金からなる材料では耐えられない高温あるいは激しい腐食環境下等での適用の可能性が高い材料として注目を集めている。しかし、金属間化合物は、常温で延性が乏しく成形加工が困難なため、実用材料としての普及が遅れている。このような難加工材料の成形法として、粉末成形法が有望である<sup>(1)</sup>。

2種類以上の成分素粉末を焼結過程中に反応させる焼結を反応焼結<sup>(2)</sup>と呼ぶ。型内で加圧しながら反応焼結を行う「加圧反応焼結法」は、つぎのような特徴を有するため、金属間化合物を含有する製品の形状付与技術として有望な方法と考えられる。

(1) ニアネットシェイプ成形が可能

(2) 粉末同士の結合の強化と反応の促進が可能

(3) ポア閉鎖と均質組織による高密度化・高強度化が可能

著者らは、既報<sup>(3,4)</sup>において、ホットプレス(HP)を用いてCu-AlおよびTi-Al素粉末の加圧反応焼結により金属間化合物を含有する焼結成形体の製造法の開発を試みてきた。Cu-Al素粉末を単純混合のみで加圧反応焼結した場合には、加圧・加熱中に融点の低いAl成分が型隙間から溶出し、成形が不可能になった。

そこで、融点の異なる2種類の金属を融解することなく、固体状態で緻密な混合組織を形成させるため、メカニカル・アロイング(Mechanical Alloying, 以下MA)法を用いた<sup>(5,7)</sup>。これにより、MA粉末ではAl成分の溶出が抑制された。また、単純混合粉末の場合より低い温度の500°Cでも金属間化合物が生成され、硬さHV=700程度の焼結体が得られることが確認された。しかし、HPによる焼結では、昇温時間・焼結時間を含めて数時間を要するため、きわめて生産性が低いという課題が残る。

最近、放電プラズマ焼結(Spark Plasma Sintering, SPS)法と呼ばれる新しいDCパルス通電加熱焼結法が

\* 原稿受付 2001年1月10日。

<sup>\*1</sup> 正員, 静岡大学工学部(☎432-8561 浜松市城北3-5-1)。<sup>\*2</sup> 静岡大学工学部。<sup>\*3</sup> アスモ(株)。<sup>\*4</sup> フジユニバース(株)。

E-mail: tmtnaka@ipc.shizuoka.ac.jp

注目されている。SPS法は、HP法等と同様な固体粉末圧縮焼結法であるが、ジュール熱によってダイスおよび試料を高温に直接加熱して焼結する方法である。また、圧粉体粒子間隙に直接パルス状の電気エネルギーを投入し、火花放電により瞬時に発生する放電プラズマを利用して粉体表面を活性化させる作用があるといわれている<sup>(8)</sup>。そのため、従来のHP法と比べ加熱効率が良く、非常に短い時間で焼結が可能になる等の利点があるといわれている。黒鉛製の型を用いた場合、焼結中に保温する役割も担う。

敵ら<sup>(9)</sup>および小林ら<sup>(10)</sup>は、ボールミルまたはMA混合したTi-Al粉末をSPS法によって加圧反応焼結を行い、種々のTi-Al金属間化合物の形成過程を解明している。しかし、焼結成形体がどの程度の機械的特性を有するかについては、まだ明らかにされていない。

本研究では、MA法によって混合したCu-AlおよびTi-Al素粉末をSPS法を用いて加圧反応焼結を行い、HP法の場合と比較して焼結成形体がどの程度優れた機械的特性を示すかについて検討する。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試粉末素材 本実験では、供試粉末材料

Table 1 Powders used

Element	Process	Nomen	Mesh	Size( $\mu\text{m}$ )
Al	Atomization	At-100	-100	< 149
Cu	Electrolytic deposition	MD-1	-325	< 45
Ti	HDH	TC459	-325	< 45

Table 2 Milling condition

Frequency (Hz)	12
Diameter of ball (mm)	11
Number of ball	20
Weight of mixed powder	10.000
Ball / powder weight ratio	10.9
Milling time (h)	24

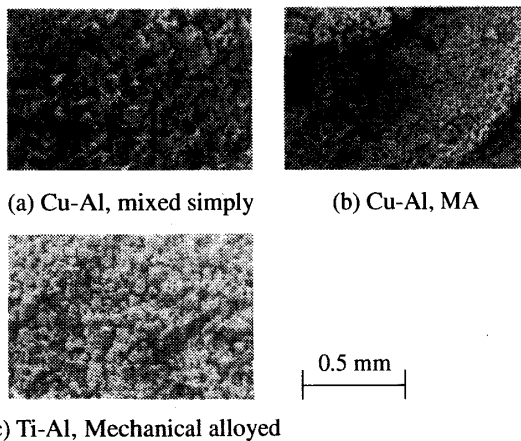


Fig.1 Micrographs of powders by SEM

として表1に示すような工業用純アルミニウムアトマイズ粉末 At-100(<149 $\mu\text{m}$ )、工業用純銅電解粉末 MD-1(<45 $\mu\text{m}$ )、および水素化脱水素微粒化(HDH)チタン粉末 TC459(<45 $\mu\text{m}$ )を用いた。Cu-Al素粉末の混合率を種々変更して反応焼結を試みた結果、金属間化合物 $\gamma_2$ 相を形成する成分割合としてCu-33at%Alが適当であることが確認された。一方、Ti-Al素粉末の場合には、金属間化合物TiAlを形成する成分割合としてTi-50at%Alが適当であることが確認された<sup>(3,4)</sup>。

MAの前に単純混合を行った。単純混合法ではCu, Al素粉末、あるいはTi, Al素粉末をそれぞれ定量してガラス製のV型混合容器に入れ、粉末の酸化を防止するため容器内をアルゴンガスにより置換し、30min回転させ混合を行った。

MAには、振動ボールミルを使用した。ボールミルは、傾斜軸が回転することにより振動する振動板に容器を取付けて使用する。単純混合粉末を内容器に入れ、酸化を防止するため、容器内を真空脱気・アルゴンガス置換を数回繰返し、アルゴンガス雰囲気にして水冷しながらミリングを行った。ミリング条件を表2に示す。ボールをトルエンで超音波洗浄したのち、ミリング中、粉末が容器やボールに凝着するのを防ぐため、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛0.05g(粉末量に対し0.5%)を使用した。図1にCu-Alの(a)単純混合粉末と(b)MA粉末、および(c)Ti-AlのMA粉末のSEM写真を示す。MA粉末は、単純混合粉末に比べて微細かつ均一に混合できていることがわかる。

図2は、Ti-Alの両混合粉末のX線回折結果を示す。

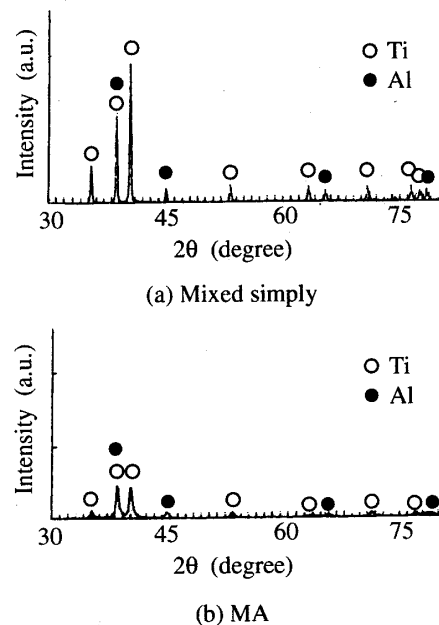


Fig.2 X-ray diffraction of Ti-Al powder

(b)のMA粉末では、(a)の単純混合粉末に比べて、TiおよびAlの回折角に対するピーク値が全体に低くなり、アモルファス化が進みつつあると考えられる。

**2.2 ホットプレスによる加圧焼結方法** 図3は真空ホットプレスの概念図を示す。炉内で加圧と焼結を同時に行うことができる。加熱は黒鉛棒ヒーターによる試料の外部加熱方式、加圧は炉体上部にある加圧ラムで行い、最高加熱温度2300°C、最大加圧力200kNである。真空度は $10^{-3}$  Torr程度である。真空雰囲気中での焼結では、粉末の酸化を防止でき、粉末中あるいは表面に付着しているガスを除去できる。また、加圧と焼結を同時に行うことにより、大気圧反応焼結で生じやすいポアと膨れを抑制することが可能である。ダイスは、内径10mm、高さ60mmである。粉末の凝着を防ぐため、粉末素材とパンチおよびダイス内面をBN(窒化ホウ素)で潤滑した。MA粉末は、成形後の寸法が直径20mm、高さ5mmになるように秤量した。

図4は加圧・加熱パターンを示す。まず、 $t=t_1$ (5min)で設定面圧 $p_1$ まで加圧する。その後、1hかけて、 $t=t_2$ で設定温度 $T_1$ に達するまで加熱し、面圧 $p_1$ を一定のまま、その温度を $t=t_3$ まで2h保持する。その後、ホットプレス炉内で自然冷却した。本研究では、加圧面圧 $p_1$ を30-70および30-500MPa、焼結温度を500-800°Cの範囲で変更し、焼結保持時間2hとした。工具材質は、焼結温度500-600°Cでは、ダイスSKD61(HRC60)、パンチSKH51(HRC60)を用いた。焼結温度700-800°Cで

は、SPSと共用のグラファイト製ダイスとパンチを使用した。

**2.3 放電プラズマ焼結による加圧反応焼結** 図5はSPS装置の概念図を示す。一軸の油圧加圧機構(最大50kN)を有する本体の真空炉内に、通常は黒鉛製のダイスとパンチをセットする。MA粉末は、成形後の形状が直径15mm、高さ5mmになるように秤量してダイス内に充填し、黒鉛工具と粉末素材にDCパルス電流を流して加圧反応焼結を行った。標準的には、熱電対による温度測定と制御は焼結体から1mm離れた黒鉛ダイス内部で行った。

図6は加圧・加熱パターンを示す。まず、 $t_1$ (1-3min)で設定面圧 $p_1$ まで加圧する。さらに、 $t_1-t_2$ (2または7min)で設定温度 $T_1$ まで加熱し、面圧 $p_1$ 一定のまま、その温度を $t_2-t_3$ まで(2-15min)保持する。焼結後、SPS炉内で自然冷却した。本研究では、加圧面圧 $p_1$ を30-70MPa、焼結温度 $T_1$ を500-800°Cの範囲で変更した。

**2.4 焼結体の機械的特性の評価方法** 加圧反応焼結により得られた焼結体は、相対密度、硬さ、圧縮強度、組織観察、X線回折により機械的特性等の評価を行った。相対密度については、焼結体の実際の密度 $\rho$ と、各単純混合粉末の計算密度を便宜的な真密度 $\rho_0$ とし、その比 $\rho/\rho_0$ で定義した。これは、生成した金属間化合物が一種類ではなく、その生成割合も変化するため、真密度を同定することが困難なためである。このような便宜的な真密度 $\rho_0$ を用いたため、生成した焼

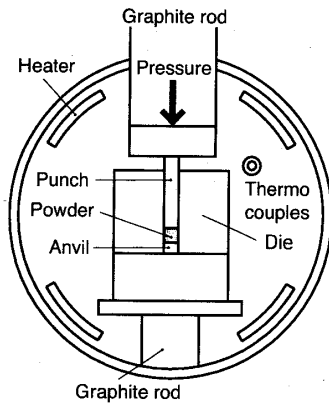


Fig. 3 Hot Press Chamber

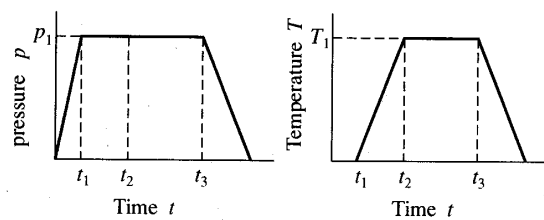


Fig. 4 Sintering pattern by HP

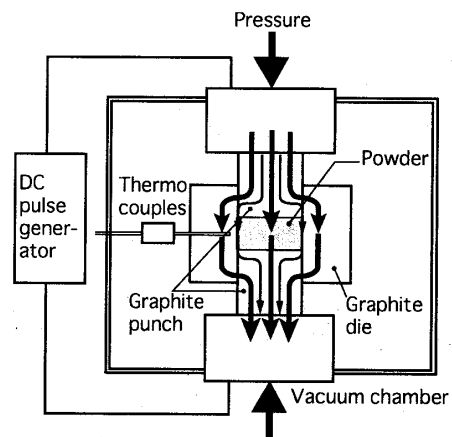


Fig. 5 Principle of SPS

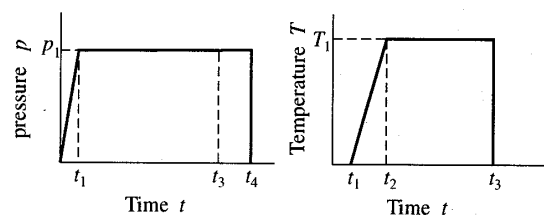


Fig. 6 Sintering pattern by SPS

結体の相対密度  $\rho/\rho_0$  が100%を超える場合が現れる。

硬さは、マイクロビッカース試験によって焼結体断面の5ヶ所で測定し、その平均値を用いた。

圧縮試験は、100MN 万能試験機を使用し、テフロン+マシン油潤滑で行った。本研究で得られた焼結体は、ほとんどが脆性的に破壊したため、圧縮破壊応力  $\sigma_f$  によって評価した。

走査型電子顕微鏡 (SEM) により焼結体の粉末同士の接合と反応の様子を観察した。また、焼結により生成された各組織の生成相について、その組成を調べるため、エネルギー分散型 X線装置 (EDM) により、定量分析を行った。さらに、反応相にどのような金属間化合物が生成されているかを調べるため、X線回折による構造分析を行った。

**2.5 粉末中心部の温度測定** 図5に示したように、SPSでは焼結体から1mm離れた黒鉛ダイス位置で温度制御を行っている。この黒鉛ダイスの温度測定位置とMA粉末中心部との温度差について調べた。図7は、Cu-33at%AlのMA粉末を加圧反応焼結中に両者

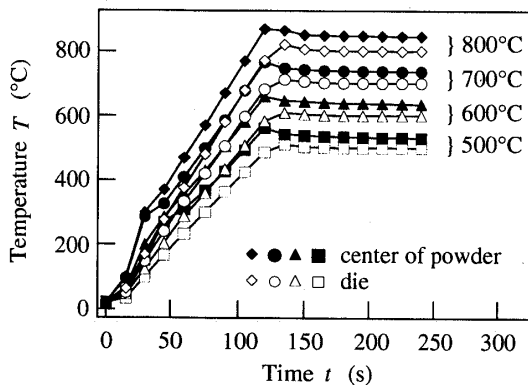


Fig. 7 Difference of temperatures measured at die and center of powder

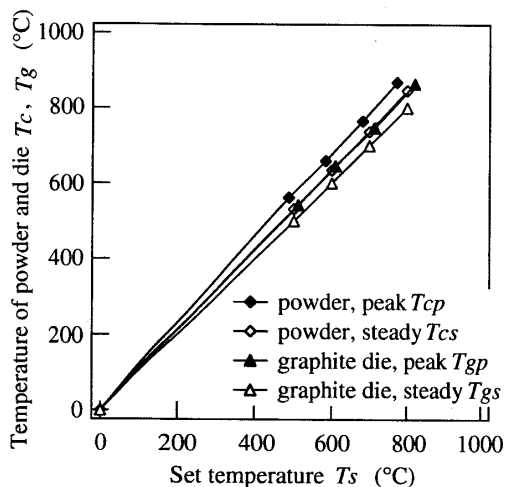


Fig. 8 Calibration curves on temperature

の温度を同時に測定した結果である。焼結温度  $T_s=500, 600, 700$  ならびに  $800^\circ\text{C}$ 、昇温時間は2minで行った。いずれの焼結温度でも、温度上昇の過程ですでに粉末中心部温度  $T_c$  とダイス温度  $T_g$  に差が現れる。パンチを通じて粉末にパルス電流が流れ、少し遅れてダイスがジュール加熱され高温となるためと考えられる。ダイスが設定温度  $T_s$  に達する直前に温度ピークが現れ、設定温度より、ダイス温度で  $10\text{--}20^\circ\text{C}$ 、粉末中心部温度で  $60\text{--}70^\circ\text{C}$  高くなり、約60秒後に定常状態となる。定常状態においても、ダイス温度  $500^\circ\text{C}$  に対して粉末中心部温度は  $532^\circ\text{C}$ 、 $800^\circ\text{C}$  では約  $850^\circ\text{C}$  であり、 $32\text{--}50^\circ\text{C}$  の温度差がある。

図8は、SPSによる温度設定値  $T_s$  と粉末中心部温度  $T_c$  およびダイス温度  $T_g$  の関係を示す。設定温度に達したときの粉末中心部ピーク値  $T_{cp}$  と黒鉛型ピーク値  $T_{gp}$  および定常値  $T_{cs}$ 、 $T_{gs}$  について示した。ピーク値および定常値ともに、設定温度とほぼ直線関係にあり、この図を用いて設定温度から粉末中心温度を推定可能である。Ti-50at%Al粉末の焼結でも、図8と同様な温度校正線図が得られることが確認されている。

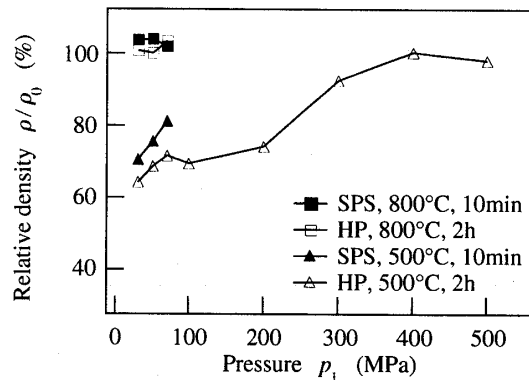


Fig. 9 Influence of pressure on relative density of Cu-33at%Al sintered

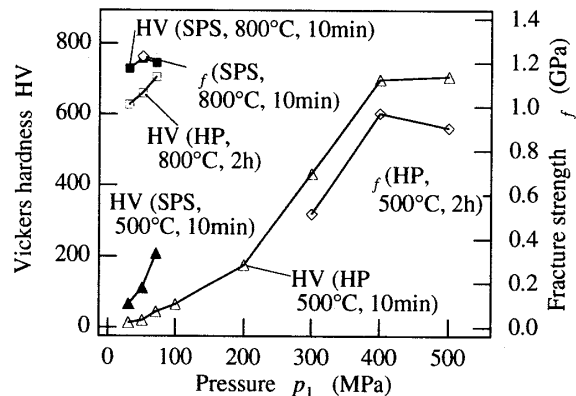


Fig. 10 Influence of pressure on Vickers hardness and fracture strength of Cu-33at%Al sintered

### 3. 焼結体の特性に及ぼす面圧の影響

図9および10は、Cu-33at%AlのMA混合粉末をSPS装置およびHP装置により焼結した成形体の、相対密度 $\rho/\rho_0$ に及ぼす面圧 $p_1$ の影響、ならびにビッカース硬さHVと圧縮破壊応力 $\sigma_f$ に及ぼす面圧 $p_1$ の影響を示す。ここで、HPの条件は焼結温度500と800°C、熱処理時間2h、面圧 $p_1=30-500\text{MPa}$ であり、SPSの条件は焼結温度500と800°C、昇温時間 $t_1-t_2=2\text{min}$ 、保持時間 $t_2-t_3=10\text{min}$ である。

両図において、面圧 $p_1$ の増加に伴う相対密度 $\rho/\rho_0$ と硬さHVおよび圧縮破壊応力 $\sigma_f$ の増加はよく対応している。すなわち、560°CのHPにおけるHVおよび $\sigma_f$ は、 $p_1$ の増加に伴い顕著に増加し、 $p_1=400\text{MPa}$ 以上でHV=700、 $\sigma_f=1\text{GPa}$ となるが、これは $\rho/\rho_0$ が $p_1$ とともに顕著に増加するためと考えられる。SPSの場合、500°Cでは、HV=100-200程度の低い値であるが、800°Cでは、 $p_1=30-70\text{MPa}$ の低面圧でもHV=700以上、 $\sigma_f=1.2\text{MPa}$ という高い値を示している。相対密度 $\rho/\rho_0$ をみても、500°Cでは $\rho/\rho_0=70-80\%$ と低いが、800°Cでは $\rho/\rho_0=100\%$ に達している。HPでも、800°Cでは

HV=600-700、 $\rho/\rho_0=100\%$ に達することがわかる。

一方、図11はTi-50at%Al焼結体の硬さに及ぼす面圧の影響を示す。HPの条件は焼結温度550°C、熱処理時間2h、面圧 $p_1=50-400\text{MPa}$ であり、SPSの条件は焼結温度800-900°C、昇温時間 $t_1-t_2=5\text{min}$ 、保持時間 $t_2-t_3=10\text{min}$ 、面圧 $p_1=30-70\text{MPa}$ である。 $p_1=50\text{MPa}$ では、550°CのHPにおいて、SPSの焼結温度800-900°Cと比較して、硬さがHV=76と低い。一方、SPSの場合低い面圧 $p_1=50\text{MPa}$ でも、焼結温度900°CでHV=615を示す。しかし、HPでも、面圧の上昇に伴い硬さは顕著に増加し、400MPaでHV=659まで達している。

Cu-33at%Al成形体の最大硬さがHV=700に対して、Ti-50at%AlではHV=660とやや低いが、いずれもSPSを用いることにより、HPと同等の焼結体を1/5程度の面圧で、15minという短時間に得ることができるとわかる。

### 4. 焼結体の特性に及ぼす温度の影響

図12は、Cu-33at%AlのMA粉末のSPSおよびHP焼結の設定温度 $T_s$ に対する硬さHVの変化を示す。同一

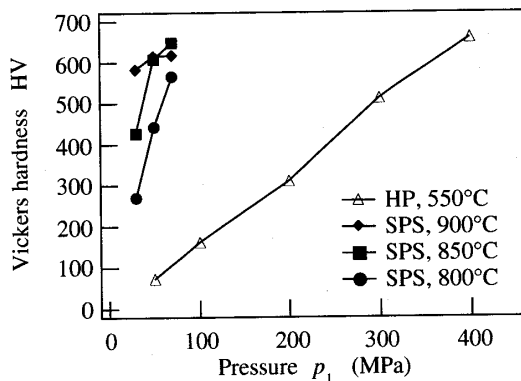


Fig.11 Influence of pressure on Vickers hardness of Ti-50at%Al sintered

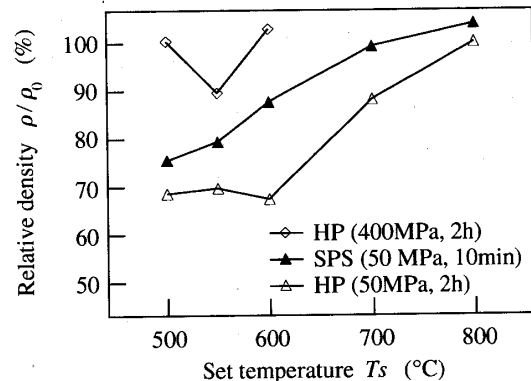


Fig.13 Influence of set temperature on relative density of Cu-33at%Al sintered

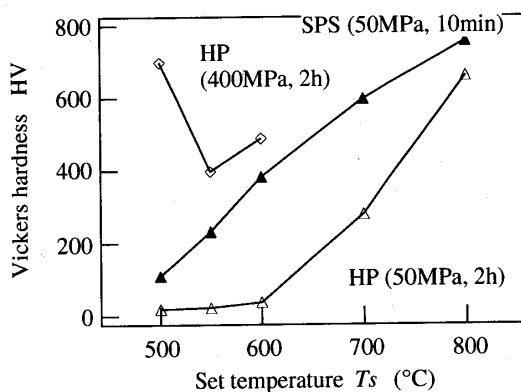


Fig.12 Influence of set temperature on Vickers hardness of Cu-33at%Al sintered

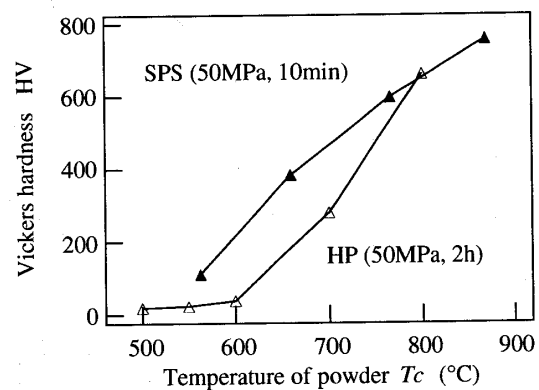


Fig.14 Influence of powder temperature on Vickers hardness of Cu-33at%Al sintered

面圧 $p_1=50\text{MPa}$ では、SPSの方がHPよりも温度上昇に伴うHVは高い値を示すが、 $800^\circ\text{C}$ ではかなり接近している。高面圧のHPでは、 $500^\circ\text{C}$ でHVが最大700から温度上昇に伴いかえって減少している。

これらの硬さの変化は、面圧の影響と同様に、図13に示す相対密度 $\rho/\rho_0$ の変化と良く対応している。

図14は、図8の校正線図を用いてSPSの設定温度から粉末中心部ピーク値 $T_{cp}$ を推定し、硬さHVをこの温度 $T_{cp}$ で整理し直したものである。HPの場合と必ずしも一致しないが、かなり接近した値を示している。これらの傾向は、相対密度 $\rho/\rho_0$ でもほぼ同様であった。したがって、面圧が同一ならば、SPS、HPともに、焼結特性は第一近似的に温度によって律せられていると考えられる。

図15に、設定温度 $T_s$ に対する圧縮破壊応力 $\sigma_f$ の変化を示す。SPSでは温度 $T_s$ の増加にともない $\sigma_f$ も顕著に増加し、 $800^\circ\text{C}$ で $\sigma_f=1.2\text{GPa}$ に達している。一方、 $p_1=400\text{MPa}$ のHPでは硬さと同様、 $500^\circ\text{C}$ で最大 $1\text{GPa}$ から温度上昇に伴いかえって減少している。

一方、図16は、Ti-50at%Al焼結体の相対密度に及

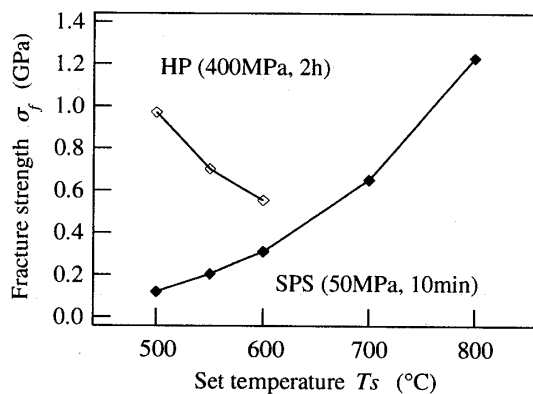


Fig.15 Influence of set temperature on fracture strength of Cu-33at%Al sintered

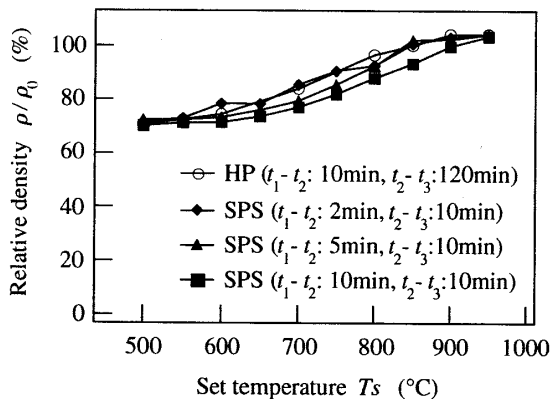


Fig.16 Influence of set temperature on relative density of Ti-50at%Al sintered

ばず設定温度の影響を示す。HPとSPSはほぼ同様の傾向を示す。焼結温度 $500^\circ\text{C}$ において、HPおよびSPSともに相対密度 $\rho/\rho_0=70\%$ であるが、温度の上昇とともに増加し、焼結温度 $950^\circ\text{C}$ において、HPおよびSPSともに $\rho/\rho_0=100\%$ に達する。

図17は、Ti-50at%Al焼結体のビッカース硬さHVおよび圧縮破壊応力 $\sigma_f$ に及ぼす温度の影響を示す。温度上昇に伴うHVおよび $\sigma_f$ の増加は、HPおよびSPSともに、相対密度 $\rho/\rho_0$ と同様の傾向を示している。焼結温度 $500^\circ\text{C}$ において $HV=100$ 、 $\sigma_f=0.1\text{MPa}$ から、 $850^\circ\text{C}$ から急激に増加し、 $900$ および $950^\circ\text{C}$ においては、 $HV=600$ 、 $\sigma_f=2.4\text{MPa}$ 程度にまで達している。

以上の結果より、SPSはHPと比較して低い面圧下でも焼結温度を高くすることでHPと同等の機械的特性を有する焼結体が得られることが確認できた。

## 5. 焼結特性に及ぼす焼結時間の影響

図18は、Cu-33at%AlのMA粉末のSPSおよびHPによる焼結体の硬さHVに及ぼす焼結保持時間の影響を示したものである。SPSによれば、設定温度 $800^\circ\text{C}$ では、昇温時間 $2\text{min}$ 、保持時間 $10\text{min}$ 以内の非常に短い

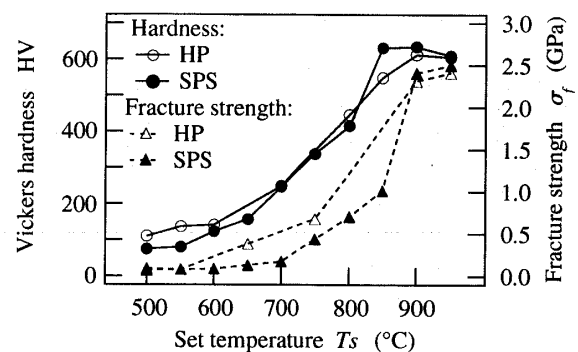


Fig.17 Influence of set temperature on Vickers hardness and fracture strength of Ti-50at%Al sintered

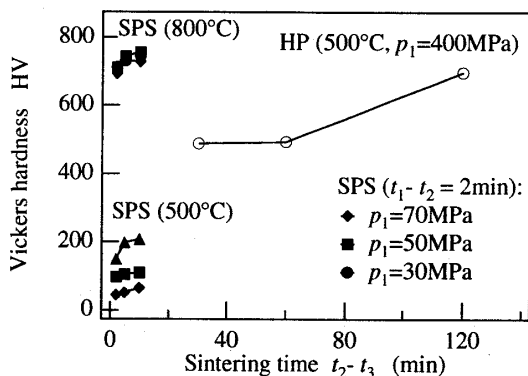


Fig. 18 Influence of sintering time on Vickers hardness of Cu-33at%Al sintered

時間で、 $HV = 700$ 以上の硬さが得られている。これに対して、HPでは、 $500^{\circ}\text{C}$ 、 $400\text{MPa}$ の焼結条件で、焼結保持時間60minまでは $HV=500$ であり、120minでようやく硬さが $HV=700$ に達することがわかる。すなわち、HPでは $HV=700$ に達するのに、昇温時間1hおよび保持時間2hを必要とすることになる。

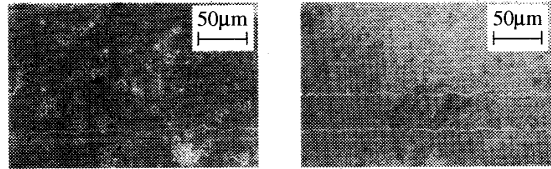
Ti-50at%Alの焼結の場合も図18と同様の焼結特性が得られ、SPS法は、直接通電加熱のため加熱効率がよく、温度を急速に上げることが可能なため、短時間で高密度、高強度な焼結体を得ることができるという優れた特徴をもつことがわかる。

## 6. 組織観察とX線回折による成分分析

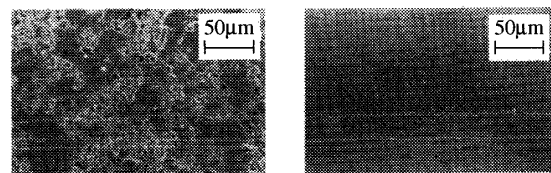
図19から21に、Cu-33at%Al焼結体のSEMによる組織観察写真を示す。図19の $500^{\circ}\text{C}$ で高面圧下でのHP焼結体の場合には、(a)面圧 $p_1=100\text{MPa}$ では、かなり多くのポアがみられるが、(b) $p_1=500\text{MPa}$ では、わずかにポアが残っている程度である。

図20の $p_1=50\text{MPa}$ でのHP焼結体の場合、(a) $500^{\circ}\text{C}$ では、かなりのポアが残っているのに対して、(b) $800^{\circ}\text{C}$ ではほとんどポアが観察されない。

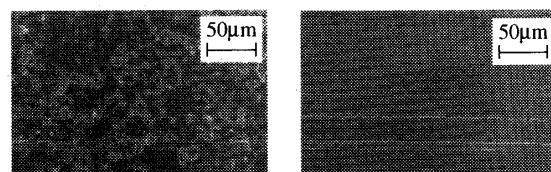
図21の $p_1=50\text{MPa}$ 、昇温時間2min、保持時間10min



(a)  $p_1 = 100\text{MPa}$  (b)  $p_1 = 500\text{MPa}$   
Fig.19 Micrographs of Cu-33at%Al sintered by HP  
(Sintering temperature:  $T_1 = 500^{\circ}\text{C}$ )



(a)  $500^{\circ}\text{C}$  (b)  $800^{\circ}\text{C}$   
Fig.20 Micrographs of Cu-33at%Al sintered by HP  
(Sintering pressure:  $p_1 = 50\text{MPa}$ )



(a)  $500^{\circ}\text{C}$  (b)  $800^{\circ}\text{C}$   
Fig.21 Micrographs of Cu-33at%Al sintered by SPS  
(Sintering pressure:  $p_1 = 50\text{MPa}$ )

におけるSPS焼結体の場合、(a) $500^{\circ}\text{C}$ では、図21(a)のHP焼結体より、ポアはかなり少ないが、まだかなり残っている。それに対して、(b) $800^{\circ}\text{C}$ では、ポアは全く観察されない。これらのポアの多少は、当然、相対密度 $\rho/\rho_0$ の大小を反映しているが、硬さHVや圧縮破壊応力 $\sigma_f$ とも相関がある。

図22は、Cu-33at%Alの $800^{\circ}\text{C}$ 、 $50\text{MPa}$ におけるHP焼結体のX線回折結果を示す。金属間化合物 $\text{Cu}_9\text{Al}_4$ のピークが主体であるが、CuAlのピークも観察される。

図23は、Cu-33at%Alの $800^{\circ}\text{C}$ 、 $50\text{MPa}$ におけるSPS焼結体のX線回折結果を示す。(a)昇温時間2minの場合には、図22と同様に、金属間化合物 $\text{Cu}_9\text{Al}_4$ のピークが主体であるが、CuAlのピークも観察される。一方、(b)昇温時間7minの場合には、金属間化合物 $\text{Cu}_9\text{Al}_4$ とCuAlのピークがほぼ同様に現れている。 $500^{\circ}\text{C}$ で

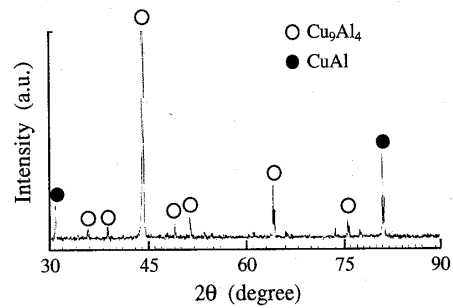
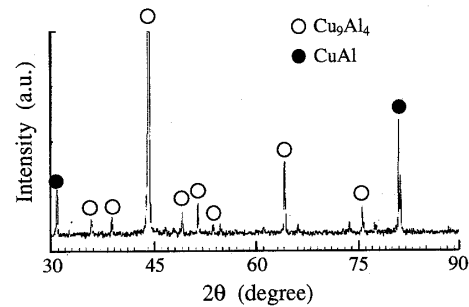
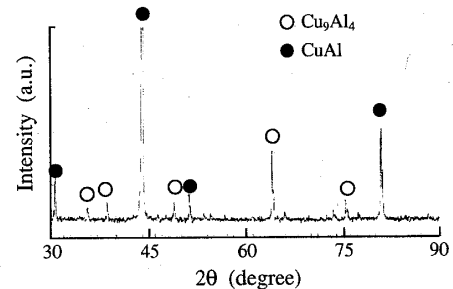


Fig.22 X-ray diffraction of Cu-33at%Al sintered by HP  
( $800^{\circ}\text{C}$ ,  $50\text{MPa}$ )



(a)  $t_1-t_2: 2\text{min}$



(b)  $t_1-t_2: 7\text{min}$

Fig.23 X-ray diffraction of Cu-33at%Al sintered by SPS  
( $800^{\circ}\text{C}$ ,  $50\text{MPa}$ )

のX線回折結果も図23と同じであったため、昇温時間によって現れる金属間化合物の量的割合が異なると思われるが、それらの定量は困難である。

図24は、焼結温度900°C、面圧 $p_1=50\text{MPa}$ での下でのHPとSPSによるTi-50at%Al焼結体焼結体のSEMによる組織観察写真である。いずれもほとんどポアがみられない。これらのポアの多少は、当然相対密度 $\rho/\rho_0$ の大小を反映しているが、硬さHVや圧縮破壊応力 $\sigma_f$ とも相関がある。

図25は、900°C、50MPaでのTi-50at%AlのSPS焼結体のX線回折結果を示す。金属間化合物TiAlと $\text{Ti}_3\text{Al}$ のピークが観察される。

## 7. 結 言

メカニカルアロイングしたCu-33at%AlとTi-50at%Al混合粉末を、通電加熱焼結SPS法とホットプレスHP法によって加圧反応焼結を行い、焼結特性に及ぼす面圧、温度、焼結時間の影響等について比較検討した結果、つぎの結論が得られた。

(1) 両混合粉末ともに、HPによる温度500-550°Cでの焼結において、面圧 $p_1$ の増加に伴い相対密度 $\rho/\rho_0$ 、

硬さHVならびに圧縮破壊応力 $\sigma_f$ が顕著に増加し、 $p_1=400\text{MPa}$ 以上で、 $\rho/\rho_0=100\%$ 、HV=660-700、 $\sigma_f=1\text{GPa}$ 程度の焼結体が得られた。また、SPSおよびHPによる温度800°Cでの焼結では、 $p_1=30-70\text{MPa}$ の低面圧でも $\rho/\rho_0=100\%$ 、HV=600-700、 $\sigma_f=1\text{GPa}$ 程度の焼結体が得られた。

- (2) 両混合粉末ともに、低面圧 $p_1=50\text{MPa}$ でのSPSおよびHPによる焼結において、温度上昇に伴い強度が顕著に増加し、800-850°CではHV=600-700、 $\sigma_f=1\text{GPa}$ 以上の焼結体が得られた。
- (3) 低面圧における焼結特性は、SPS、HPともに第一近似的に温度によって律せられる。
- (4) HPでは、型を外部加熱して粉末を加熱するため、2-3hの焼結時間が必要であるのに対して、SPSでは粉末を直接加熱するため、十数分という短時間に焼結が完了する。
- (5) X線回折の結果、Cu-33at%A粉末では金属間化合物 $\text{Cu}_9\text{Al}_4$ およびCuAlが形成され、Ti-50at%Al粉末では、金属間化合物TiAlと $\text{Ti}_3\text{Al}$ が形成されていることが明らかになった。

## 参 考 文 献

- (1) 山口正治, 金属間化合物, (1984), 日刊工業新聞社
- (2) JISハンドブック, No.2, 非鉄, (1993).
- (3) Nakamura, T., Tanaka, S., Hiraiwa, M., Imaizumi, H. & Suzuki, S., *Proc. 5th ICTP*, **2** (1996), 323-326.
- (4) Nakamura, T., *Proc. 30th ISATA*, (1997), 603-610.
- (5) Nakamura, T., Tanaka, S., Hayakawa, K., Imaizumi, H. & Morita, Y., *Proc. 5th Japan Int. Symposium SAMPE*, (1997), 463-468.
- (6) Nakamura, T., *Proc. 31st ISATA*, (1998), 481-488.
- (7) Nakamura, T., Tanaka, S., Hayakawa, K., Imaizumi, H. & Morita, Y., *Proc. 6th Japan Int. Symposium SAMPE*, (1999), 432-437.
- (8) 住友石炭鉱業, 放電を用いた新しい焼結技術, 月刊ニューセラミックス (1994), 1-37.
- (9) 巖泰永・朴容浩・橋本等・鷺見新一・渡辺龍三, 粉体および粉末冶金, **43-4** (1996), 438-443.
- (10) 小林慶三・杉山明・尾崎公洋・文翠娥, 粉体および粉末冶金, **44-6** (1997), 554-559.

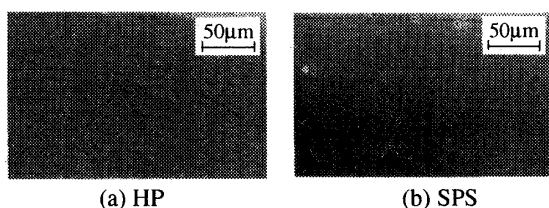


Fig. 24 Micrographs of Ti-50at%Al at 900°C, 50MPa

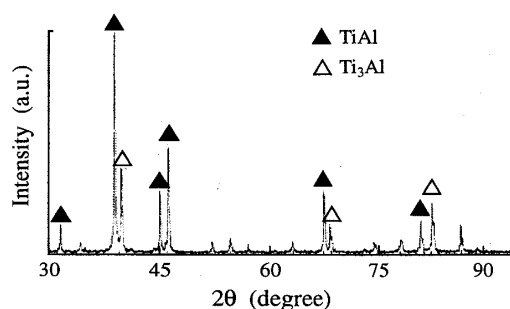


Fig.25 X-ray diffraction of Ti-50at%Al sintered by SPS