

最近のSPS情報およびSPS接合技術

株式会社エヌジェーエス

鵜田 正雄

1. はじめに

放電プラズマ焼結（SPS）技術の進歩・普及は SPS 装置ハードウェアに大きく依存する。学術研究用には多種多様な専門的 SPS 装置、産業界向けへは最終製品の製造コストを重視した生産システム装置が共に第五世代の「カスタム SPS」とし登場し技術普及を加速しつつある。SPS 焼結法の評価は近年日本のみならず米国・欧州・中国・アジア諸国、更に・BRICs のブラジル・ロシア・インドなどへも広まり全世界的に高まってきた。これらを背景に 2013 年 5 月 20-22 日モスクワで「第 1 回日露 SPS ワークショップ」の国際会議を開催した。パルス通電による新たな研究の萌芽も随所に見受けられ、一方国内では SPS 接合法の応用技術が進んできている。

本講演ではこれら最近の SPS 技術動向について紹介する。

2. 第 1 回日露 SPS ワークショップ in MOSCOW

5 月ロシア/モスクワで「第 1 回日露 SPS ワークショップ（“Advanced Technologies of Electromagnetic Field Assisted Consolidation of Materials”）」が Hotel Milano にて開催された。モスクワ工業物理大学（MEPHI）、ロシア科学アカデミー、ニジノブゴロド大学、ヨッフエ物理研究所その他約 60 名の参加者 22 件の発表があり活発な討論が行われた。日本からは、SPS 研究会会長・東北大学金属材料研究所後藤教授、（独）物質・材料研究機構つくば NIMS 目（サッカ）博士が日本の最先端 SPS（ECAS）技術について招待講演を行い、NJS/シンターランド社鵜田が SPS（ECAS）の冒頭講演を行った。今後、日露の SPS 技術交流が活発化されていくことが大いに期待されている。ロシア MEPHI Prof.E.G.Grigoryev 米国サンディエゴ大学 Prof.E.A.Olevsky らから High-voltage electric pulse consolidation=Flash Sintering（FS）技術の発表があった。この分野は5年程前から研究者が増え興味深い傾向である。同大学にて FS 装置の見学も行った。ジャパックス社における”第 1 世代の SPS（放電焼結加工）”で様々なパルス電流発生の方法が試みられている¹⁾²⁾。瞬間緻密化焼結法（Flash Sintering）はそのひとつである。1960 年代世界に先駆け「Flash sintering」はジャパックス Dr.井上社長と東工大学長（当時教授）齋藤進六先生が研究を行った。「単発大電流を瞬間的に被加工材料へ流し瞬時（数秒で）に緻密化焼結を行う」手法である。原理は放電エネルギー $W=1/2CV^2$ の関係から大容量コンデンサー（数百 μF ファラッド）へ低電圧（1~10KV）で充電し短絡回路で大電流を印加する。もうひとつは小容量（100 μF 以下程度）のコンデンサーに高電圧（20~50KV）充電し大電流を発生させる方式がある。当時ジャパックスでは前者の方式を選択していた。また同様の回路を使って高電圧放電現象の観測、放電衝撃圧力成形や電磁成形法などの研究開発も行っていた。1968 年米国ロッキードミサイル社へ放電焼結の技術輸出は日刊工業新聞記事「～数秒で」の記述の FS ベースであった。現在この FS 技術について日本ではさほど注目されていないが、海外ではロシア、米国、ポーランド、インド、イタリーなど研究者が増え論文もでてきている³⁾。日本では NIMS の海外研究者が手掛けていた。

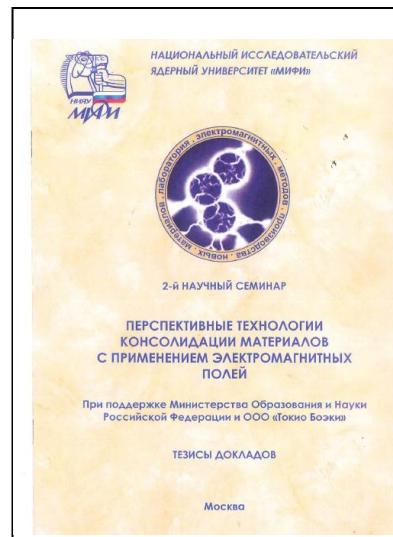


図 1 第 1 回日露 SPS ワークショップ（左：モスクワ工業物理大学入口にて 右：開催プログラム）

Advanced technologies of electromagnetic field assisted consolidation of materials. Second Scientific Workshop Abstracts. Moscow, May 20-23, 2013 This collection contains abstracts of the Second Scientific Workshop on consolidation of powder materials using electromagnetic fields. The First Workshop in this seminar series took place on June 24-27, 2012 at the MERNI recreation facility "Volga", located in the Vidugorskii Gulf of Tver region. The seminars are held in the framework of the project on the creation of a key research and educational laboratory at the National Research Nuclear University, combining cutting-edge methods of electromagnetic consolidation of materials in a unified organizational structure. The laboratory is founded in compliance with the Decree N220 of the Government of the Russian Federation under the guidance of Prof. E.A. Olevsky. The Second Workshop includes the reports mainly dedicated to the technology of spark plasma sintering, which is currently the most promising electromagnetic method of processing and which enables in many cases the fabrication of materials with unique properties. Several papers are devoted to the closely related high voltage compaction technology, which has also a significant potential among advanced materials consolidation techniques. Перспективные технологии консолидации материалов с применением электромагнитных полей. 2-й Научный семинар Тезисы докладов. Москва, 20-23 мая 2013 г. Сборник содержит тезисы докладов 2-го научного семинара, посвященного работам исследователей в области консолидации порошковых материалов с применением электромагнитных полей. 1-й семинар в этой серии состоялся 24-27 июня 2012 г на базе отдыха МИФИ «Волга», расположенной в Видюгосинском заливе, Тверской области. Семинары проводятся в рамках создания научно-образовательной лаборатории в МИФИ, объединившей передовые методы электромагнитной консолидации материалов в единой организационной структуре. Создание лаборатории под руководством проф. Е.А. Олевского осуществляется в соответствии с Постановлением N220 Правительства Российской Федерации. Семинар в основном включает доклады и сообщения, посвященные технологии спарк-плазменного спекания, являющейся в настоящее время наиболее перспективной среди электромагнитных методов обработки и позволяющей во многих случаях производить материалы с уникальными свойствами. Несколько докладов посвящены смежной технологии высоковольтного компактирования, обладающей также существенным потенциалом в области передовых методов консолидации материалов. Abstracts are published based on authors' proofreading Тезисы докладов издаются в авторской редакции © National Research Nuclear University «МФН», 2013 © Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», 2013	ПРОГРАММА СЕМИНАРА/ SEMINAR PROGRAM 20 мая 2013, Понедельник May 20, Monday 9:45-10:00 Олевский Е.А. Открытие семинара Olevsky E.A. Introduction 10:00-11:00 Токита М. Передовые технологии в искровом плазменном спекании (ИПС/спекание, активируемое электрическим током) в Японии/ <u>Tokita M. Recent advanced Spark Plasma Sintering (SPS/ECAS) technology in Japan</u> 11:00 – 11:10 Coffee break 11:10-12:10 Дудина Д.В. Химические аспекты электроимпульсного спекания: возможности и проблемы контроля микроструктуры синтезируемых материалов/ Dudina D.V. Chemical aspects of Spark Plasma Sintering: possibilities and challenges of microstructure control of the synthesized materials 12:10-13:20 Обеденный перерыв/Lunch break 13:20-14:20 Гото Т. Применение искрового плазменного спекания/ <u>Goto T. Application of Spark Plasma Sintering</u> 14:20 – 14:30 Coffee break 14:30-15:30 Лаптев А.М. Достижения и проблемы моделирования спекания порошковых материалов с прямым нагревом электрическим током/ Laptev A.M. Achievements and problems in modeling of sintering of powder materials with direct heating by electric current
21 мая 2013, Вторник May 21, Tuesday 9:30-10:30 Самуйлов С.Д. Электроимпульсное компактирование (брикетирование) дисперсных металлических материалов/ Samuylov S.D. Electric pulse compaction of dispersed metallic materials 10:30 – 10:40 Coffee break 10:40-11:40 Олевский Е.А. Основы спарк-плазменного спекания/ Olevsky E.A. Fundamentals of Spark-Plasma Sintering 11:40-12:40 Сакка Ё. Технология спекания, активируемого электрическим током: моделирование и разработка – Деятельность в НИМ (Национальный институт материаловедения, Япония)/ <u>Sakka Y. Electric current activated/assisted sintering technology: modeling and development – Activity at NIMS (National Institute for Materials Science, Japan)</u> 12:40-14:00 Обеденный перерыв/Lunch break 14:00-15:00 Чувильдеев В.Н. Проблемы экспериментального и теоретического исследования процесса электроимпульсного плазменного спекания/ Chuvildeev V.N. Experimental and theoretical research on Spark Plasma Sintering process 15:00 – 15:10 Coffee break 15:10-16:10 Григорьев Е.Г. Закономерности высоковольтной электроимпульсной консолидации порошковых материалов/ Grigoryev E.G. Regularities of high-voltage electric pulse consolidation of powder materials 17:00-20:00 Banket/Seminar dinner	22 мая 2013, Среда May 22, Wednesday 10:00-11:00 Мали В.И. Консолидация сплошных и пористых материалов с использованием Spark Plasma Sintering/ Mali V.I. Compaction of solid and porous materials using spark plasma sintering 11:00 – 11:10 Coffee break 11:10-12:10 Батаронов И.Л. Механизмы электропластической деформации металлов/ Bataronov I.L. Mechanisms of electroplastic deformation of metals 12:10-14:00 Обеденный перерыв/Lunch break 14:00-15:00 Белявин К.Е. Электроимпульсное спекание пористых порошковых материалов/ Belyavin K.E. The electric discharge sintering of porous powder materials 15:00-16:00 Коробейников С.М. Поведение жидкостей при импульсном напряжении/ Korobeynikov S.M. Breakdown and prebreakdown processes in liquid dielectrics 23 мая 2013, Четверг May 23, Thursday 10:00-11:00 Гуталенко Ю.Г. Физика и практика электроконсолидации под давлением вольфрамокарбидных материалов и композитов/ Gutsalenko Y.G. Physics and Practice of electrical consolidation OF tungsten carbide materials and composites under pressure
11:00 – 11:10 Coffee break 11:10-11:25 Деменюк В.Д. Сравнительный анализ и оптимизация обработки слоисто-порошкового композита с аморфной структурой методами низковольтной и высоковольтной консолидации/ Demenyuk V.D. Comparative analysis and optimization of processing of laminated tape-powder composites with amorphous structure by methods of low- and high-voltage consolidation 11:25-11:40 Ильяна А.М. Влияние электрического тока на процесс спарк-плазменного спекания/ Ilyina A.M. Influence of the electric current on the spark-plasma sintering processing 11:40-11:55 Юрлова М.С. Получение композитов на основе Fe-TiC методом спарк-плазменного спекания/ Yurlova M.S. Fabrication of Fe-TiC powder composites by spark plasma sintering 11:55-12:10 Александрова Е. В. Мультимасштабное моделирование процесса спарк-плазменного спекания в среде COMSOL Multiphysics/ Alexandrova E.V. Multiscale modeling of Spark Plasma Sintering via COMSOL Multiphysics 12:00-14:00 Обеденный перерыв/Lunch break 14:00-15:00 Ошкадеров С.П. Использование метастабильных фазовых и структурных превращений в сталях для решения некоторых проблемных задач практического материаловедения/ Oshkaderov S.P. Employment of metastable phase and structural transformations in steels for solution of some problems in metal-working industry	15:00-15:15 Богачев И.А. Изготовление реакторной феррито-мартенситной ДУО стали методом спарк-плазменного спекания/ Bogachev I.A. Reactor ferritic/martensitic ODS steel production using Spark Plasma Sintering technique 15:15-15:30 Лебедева Л.Ю. Структура широкония и циркониевых сплавов, полученная высоковольтной электроимпульсной консолидацией/ Lebedeva L. Y. Structure of zirconium and zirconium alloy consolidated by high voltage electric discharge consolidation 15:30-15:45 Барышев Г.К. Обеспечение автоматизированного контроля плотности в процессе холодного прессования порошков/ Baryshev G. K. Automatic diagnostics of powder density in the consolidation process

図2 第1回日露SPSワークショップ講演プログラムとタイムスケジュール

3. SPS 接合法の現状

3.1 概要

図2にSPS接合法の通電基本形のクローズド方式とオープン方式を示す。固相拡散接合が容易にできるSPS接合法は従来の接合法に属さない新しい接合方法で①粉体と粉体②粉体と固体③固体と固体④箔体と箔体⑤箔体と固体⑥箔体と粉体の組み合わせ自由で、同時焼結接合、傾斜接合および固体接合が可能である^{4),5)}。表1はその種類と特徴をまとめたものである。従来接合法である[I]機械接合法, [II]接着剤法および[III]化学的接合法では、異種材料接合問題の要因に材料物性差(熱膨張係数,弾性係数,材料強度,原子結合様式,高温物性)および接合面現象(濡れ,拡散,生成物強度,界面構造)などが挙げられてきた。良質の接合材を作製するには、強固な接合界面をいかに形成するか、熱膨張差,弾性差に起因する残留応力をいかに緩和するかが重要である。パルス通電のSPS接合法を応用するとこれら諸問題の解決策を見出すことができる。

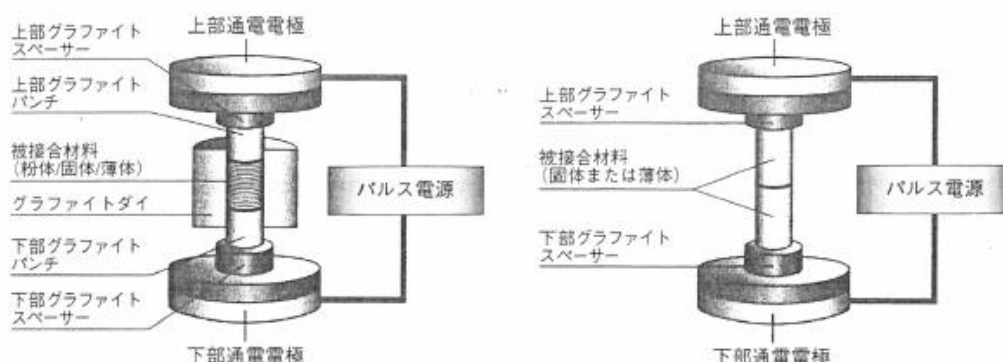


図2 SPS 接合法の基本通電経路 (左:クローズド方式 右:オープン方式)

表 1. SPS 接合法の種類と特徴

SPS接合法の種類	被接合材料		接合または傾斜層の内容
	材質	接合組合せ	
①SPS焼結接合	金属・セラミックス・サーマット・ポリマー	粉体-粉体 粉体-固体 固体/粉体/固体	● 焼結温度、融点の異なる2種以上の単一組成材料をその粉体粒子の中で、それぞれの材料に適合した焼結温度条件(温度傾斜場)を発生させ同時に粉体から焼結で接合する方法。 ● 異種金属の同時焼結接合、金属-セラミックス、金属-サーマット、セラミックス-セラミックスなどの同時焼結接合が可能。
②SPS傾斜接合		粉体-粉体 粉体-固体 粉体-箔体 (固体-固体)	● 両端の材料が、異なる材質、熱膨張係数を持ち、中間層に両端と同一材質の混合組成を1層以上挟み熱応力緩和型などの傾斜接合する方法。 ● 両端の材料が、異なる材質、熱膨張係数を持ち、中間層に両端と異なる材質の混合組成を1層以上挟み熱応力緩和型などの傾斜接合する方法。 ● 全体が同一材質で中間層に両端と異なる粒度配合した傾斜組成を1層以上挟み傾斜接合する方法。 ● 全体が同一材質または異なる材質で表から裏まで傾斜構造の気孔率をもつ多孔質体をつくる方法。 ● 耐摩耗性、耐食性、電気特性などの傾斜をつくる焼結接合方法
③SPS固体接合		粉体-粉体	● 固体と固体を重ね合せ、直接固相接合する方法。仮接合後、常圧炉中にて短時間の相互拡散熱処理を行うことで容易に母材強度と同等の機械的性質を得ることができる。 ● 接合加工時に温度傾斜をもたせない場合が多い。 ● 多段ブロック接合や大面積の接合も可能。
④SPS箔体接合		箔体-箔体 箔体-固体 固体/箔体/固体	● 数十-数百ミクロン程度の箔体を複数積層重合し一体化する接合方法。 ● 中間層に箔体を挟んで固体と固体を接合する場合を含める。

3.2 SPS 接合法の応用例

SPS固相拡散接合法の特徴的な最近の代表応用事例を以下に示す。健全な大形状接合体が確実に得られるようになったことは近年の重要な技術進歩である。図3写真①の大形アルミブロックサンプルは外形寸法300mm x300mm上下2枚の大形アルミ材料が、SPS接合法により一体化された例である。サンプル写真上面のラインはフライス加工によって生じた機械切削痕跡で接合時のパーティング合せ面では無い。写真②は曲がり穴流路構造を内臓したφ230x45mm t 大形水冷盤(SUSステンレス鋼)の例である。接合体ブロック上面の白色線蛇行形状部分に、予めSUS本体内面部の上下半割面を機械切削で加工した曲がり溝部を示す。この溝とSPS接合により連続曲がり孔の密閉流路を形成できる。接合後Heガスによる漏れ検査でもリークは無い。2ヶ所の黒色チューブはIN/OUT配管口取り付け部である。このアルミ構造体は電気自動車搭載用パワーデバイス冷却盤その他各種モータや電子機器の高効率冷却ユニットとし実用が期待されている。その他写真例については講演時に紹介する。

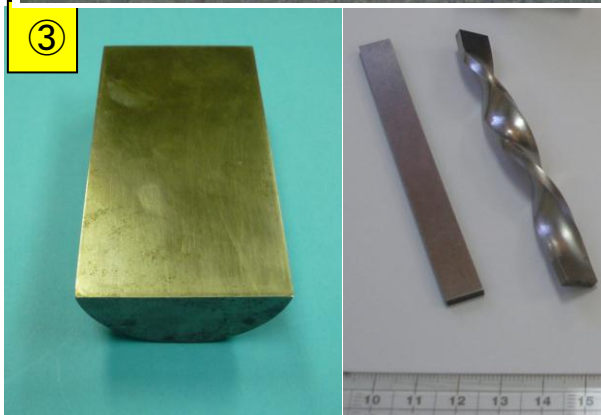
①



②



③

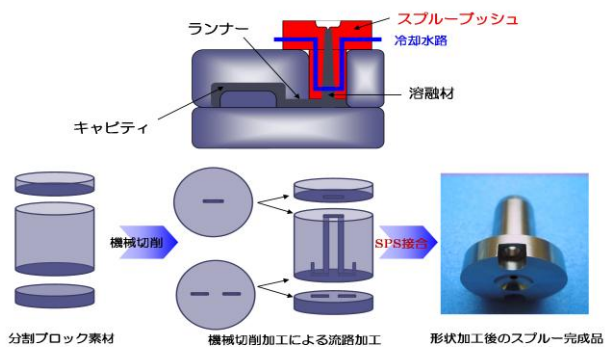


④



⑤

SPS接合法によるプラ型用冷却水路内臓スブルーブッシュ



⑥



図 3. SPS 固相拡散接合の応用例

4 まとめ

SPS 技術は「焼結」「接合」「表面改質」「合成」の四分野にまたがる材料プロセスである。

まず“第三世代の SPS”により学术界で各プロセス分野における有効な新しい加工手段であることが実証された。次に“第四世代の SPS”では、産業界に有効なあるレベルでの生産手段・基盤技術になり得る位置づけが実証された。この技術を汎用的レベルへ引き上げることが“第五世代の SPS”以降の方向性といえる。SPS 技術は SPS 装置システム（ハードウェア）と加工技術（ソフトウェア）と粉体技術を三位一体に考え夫々最適化を図るべく研究開発を進める技術である。加えて、今後は用途開発が重要であり、既存技術や生産技術・ノウハウなどを併せ理解し融合させることで真の製造技術へ発展していくものと思われる。新しい SPS 装置の出現は新しい材料研究領域を拡張し、新先進材料の創製方法の発見が次の新しい SPS 装置と製造システムを生み出す。その道のりは長い途切れることのない材料加工と装置データ蓄積および改良努力が必要である。また、例えば Flash Sintering に見られるように、先人の蒔いた種のかつての着想から有用な新技術が再び発見される可能性も大きい^{6),7)}。SPS 接合法についても今日の市場デマンドと量産コストに見合った新方式に近い将来登場してくることが期待されている。

【参考文献】

- 1) 井上潔、滝口幸男：電気加工法 理工学社 P85-92 (1969)
- 2) S.Saito and A.Sawaoka: Powder Metallurgy Int., 7 P70- (1973)
- 3) E.G.Grigoryev,,E.A.Olevsky: Proceedings of. Powder Metallurgy of World Congress 2012, 18B-S-29(2012)
- 4) Y.Miyasaka, M.Tokita, H.Karasawa, F.Nishiyama: U.S.Patent No.US6,515,250B2 (2003)
- 5) 鵜田正雄：溶接学会誌 第 73 巻 第 4 号 P40-47(2004)
- 6) S. Grasso, Y. Sakka and G. Maizza: Science and Technology of Advanced Materials, **10** (2009) 053001 (24pp)
- 7) M.Tokita: Advanced Ceramics Handbook 2nd Edition, Academic Press Elsevier Inc., pp1149–77(2013)