

# 導電性材料によるフラット発熱体の技術開発

小松崎 和久\* 児玉 弘人\* 富田 玄隆\*

## 1. はじめに

フラットヒータは、床暖房をはじめとする様々な分野で用いられており、その使用温度域は数 10 から 800 以上と非常に幅の広いものとなっている。

我々は現在、酸素リークセンサー素子へ適用するフラットヒータ用絶縁材として、パルス通電焼結法を用いた高熱伝導率セラミックスの作製に取り組んでいる。

一般にパルス通電焼結法は、焼結時間が極めて短いため結晶粒径の成長が抑制され緻密化できる、難焼結材に必要なバインダーが少量化できる等の特徴から各機関において種々の研究が行われている。セラミックスをはじめとする焼結体の高熱伝導率化には、結晶粒径、気孔率（緻密化）、結晶粒界の不純物等の制御が重要となる。

そこで本研究では、アルミナ粉末のパルス通電焼結を行い、熱伝導率に関与する因子に対する焼結条件の影響を調べたので報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1. パルス通電焼結法によるバルク化

出発原料に純度 99.999%，結晶粒径 2～3μm のアルミナ粉末（高純度科学研究所）を用い、パルス通電焼結機（住友石炭鉱業(株)SPS-1050）により固化成形した。焼結は、アルミナ粉末 5.3g を直径 20mm×高さ 40mm のグラファイト製焼結型に充填し、上下一軸方向に圧力 40MPa となる荷重を加え、6 Pa 程度の真空排気の後、パルス状の直流電流を上下パンチに通電する一連の手順により行う（図-1 にパルス通電焼結機の構成と焼結型を示す）。焼結条件は、表-1 に示す様に焼結温度 1500 に達する昇温速度および焼結温度に達した後のその温度の保持時間（焼結保持時間）を変化させ、加圧力は 40MPa 一定とした。得られる焼結体は、直径 20mm×高さ 3mm 程度の円盤形状である。

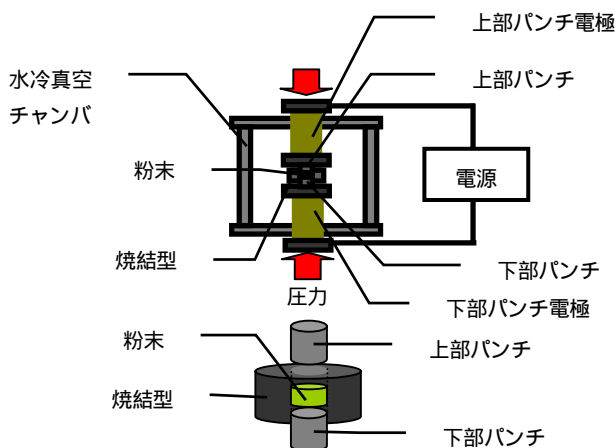


表 - 1 アルミナ粉末のパルス通電焼結条件

|       |                                                                                                 |
|-------|-------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 焼結温度  | 1500( )                                                                                         |
| 昇温速度  | 5, 10, 20, 50, 100[ /min] (保持時間: 0, 30[min])<br>10, 100[ /min] (保持時間: 0, 3, 5, 10, 30, 60[min]) |
| 保持時間  | 0, 30[min] (昇温速度: 5, 10, 20, 50, 100[ /min])<br>0, 3, 10, 30, 60[min] (昇温速度: 100[ /min])        |
| 加 圧 力 | 40[MPa]                                                                                         |
| 雰 囲 気 | 真空                                                                                              |

### 2.2. アルミナ焼結体の特性評価方法

パルス通電焼結法により得られた焼結体に対し、ケミカルエッチングを施した後、走査型電子顕微鏡（FE-SEM）による表面観察を行い、結晶粒径を求めた。結晶子径は、X 線回折測定（X 線波長: CuKα 線 0.15418nm, 管電流: 30mA, 管電圧: 30kV）を行い、Scherrer の式（シェラー定数を 0.9 とした）を用い、（113）面より見積もった。また、焼結体の乾燥および水中質量を精密天秤にて測定し、アルキメデス法により見掛け密度を算出した。得られた密度と純アルミナの理論密度の比から相対密度を算出した。機械的強度としては微小ビッカース硬さ試験機を用い、荷重 9.8707N, 保持時間 15s の条件で 5 点測定した平均の硬さを求めた。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1. 焼結体の相対密度

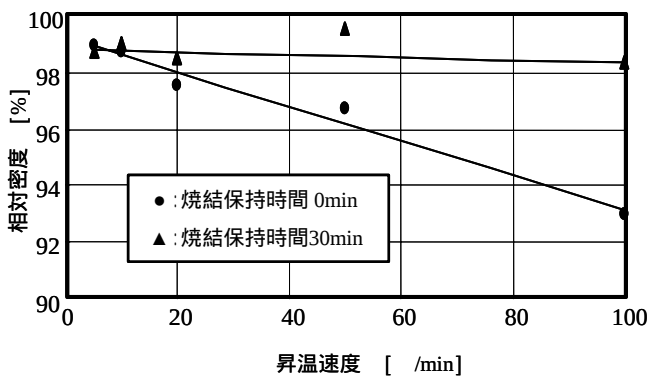
アルミナ焼結体の相対密度と焼結条件の関係を図-2に示す。（a）に示す相対密度と昇温速度の関係からは、焼結保持時間0min, すなわち昇温速度のみの影響をみた場合、昇温速度が小さくなるにつれ相対密度は増加した。しかし、焼結保持時間として比較的長い30minをとるとその傾向は著しく小さくなった。また、（b）に示す相対密度と焼結保持時間の関係からは、焼結温度を比較的速い100 /minとした場合、焼結保持時間が長くなるにつれて相対密度は増加するが、昇温速度を10分の1の10 /minとするとその傾向は著しく小さくなった。これは昇温速度が小さく、焼結保持時間が長い程、緻密化に費やす時間が増してより大きなエネルギーを与えることができるためである。今回の結果は、昇温速度50 /min以上、焼結保持時間5min、焼結温度1450 以上で98%超の相対密度を得た他者の結果と一致しており、パルス通電焼結法はその焼結条件を最適化すれば、緻密化の視点において高熱伝導率化に有効と思われる。

### 3.2. 焼結体の結晶粒径

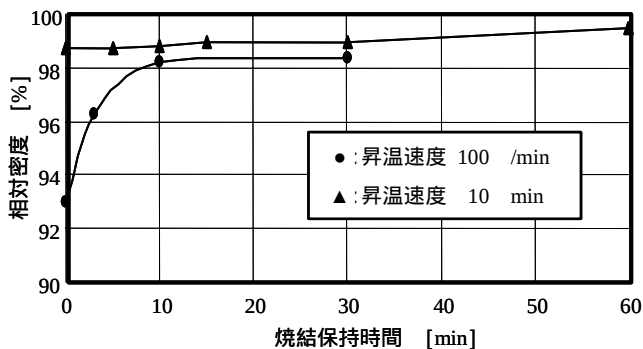
図-3に結晶粒径と焼結条件の関係として、焼結プロ

グラムおよび結晶面のSEM像を示す。結晶粒は、昇温速度が小さく、焼結保持時間が長い程成長しており、昇温速度が小さく焼結保持時間が長い場合の結晶粒はかなり成長していた。この結果は前述の相対密度と同様の傾向を示している。(113)面により求めた結晶粒径は、焼結条件による相違はみられず65nm程度であり、焼結前粉末のそれとも変わらなかった。

パルス通電焼結法により得られた焼結体の結晶粒はホットプレス法を用いた場合よりも大きくなるとの報告もあることから、焼結条件を最適化したパルス通電焼結法は結晶粒径の視点においても高熱伝導率化に有効と思われる。



(a) 昇温速度と相対密度の関係



(b) 焼結保持時間と相対密度の関係

図-2 相対密度と焼結条件の関係

### 3.3. 焼結体のビッカ-ス硬さ

図-4にビッカ-ス硬さと焼結条件の関係を示す。ビッカース硬さは昇温速度が小さく、また焼結保持時間が長いほど大きな値を示し、相対密度および結晶粒径との相関関係が認められた。ビッカース硬さは焼結条件により差が生じるが、その最適化により本研究で目標としている酸素リークセンサー絶縁部用構造材として十分な強度となることが分かった。

### 4. まとめ

アルミナ粉末のパルス通電焼結結果、昇温速度が小さく、焼結保持時間が長い程、「相対密度」および「結晶粒径」は増加した。このことから、焼結条件を最適

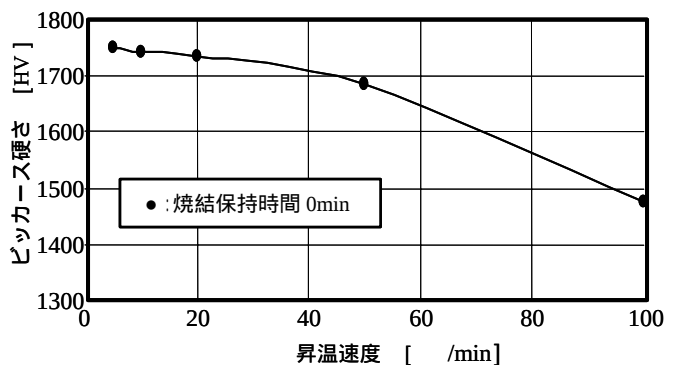
化したパルス通電焼結法により、アルミナ焼結体の高熱伝導率化を図れる可能性がある。

### 5. 今後の予定

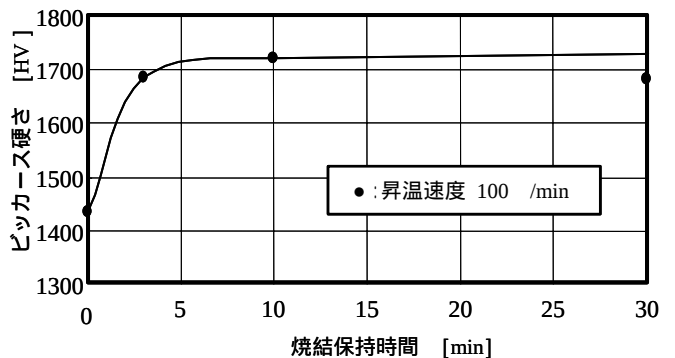
- ・パルス通電焼結法により固化成形したアルミナ焼結体の熱伝導率をレーザーフラッシュ法により測定する。
- ・酸素リークセンサー素子に適應するヒータを作製する。

### 参考文献

- 1) 玉里信幸：アルミナの緻密化，機械的性質及び微細構造に対する放電プラズマ焼結条件の影響，第3回SPS研究会講演要旨集，46
- 2) 久保田正広，金子純一，菅又信：メカニカルグライディング法と放電プラズマ焼結法による工業用純アルミニウムの特性，日本大学生産工学部研究報告A，11-20

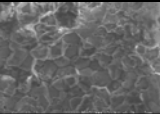
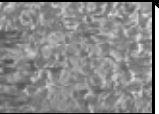
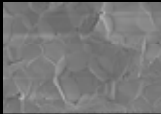
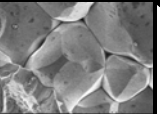
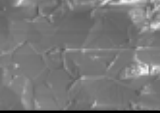
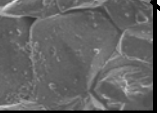
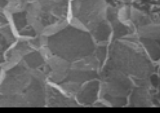
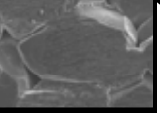
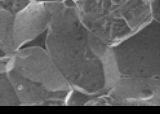
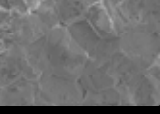
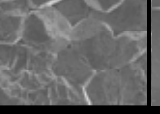
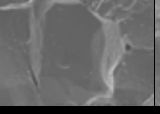
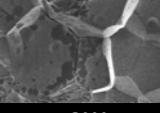
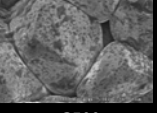


(a) ビッカース硬さと昇温速度の関係



(b) ビッカース硬さと焼結保持時間の関係

図-4 ビッカース硬さと焼結条件の関係

|                  |                   | 焼 結 保 持 時 間                                                                                  |                                                                                             |                                                                                             |                                                                                              |                                                                                                |                                                                                               |
|------------------|-------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------|
|                  |                   | 0<br>[min]                                                                                   | 3<br>[min]                                                                                  | 5<br>[min]                                                                                  | 10<br>[min]                                                                                  | 30<br>[min]                                                                                    | 60<br>[min]                                                                                   |
| 昇<br>温<br>速<br>度 | 100<br>[<br>/min] | <br>× 6000  | <br>× 2000 |                                                                                             | <br>× 2000 | <br>× 3500  |                                                                                               |
|                  | 50<br>[<br>/min]  | <br>× 6000  |                                                                                             |                                                                                             |                                                                                              | <br>× 3500  |                                                                                               |
|                  | 20<br>[<br>/min]  | <br>× 3000  |                                                                                             |                                                                                             |                                                                                              | <br>× 3500  |                                                                                               |
|                  | 10<br>[<br>/min]  | <br>× 3000  |                                                                                             | <br>× 2000 | <br>× 2000 | <br>× 2500  | <br>× 2000 |
|                  | 5<br>[<br>/min]   | <br>× 3000 |                                                                                             |                                                                                             |                                                                                              | <br>× 3500 |                                                                                               |

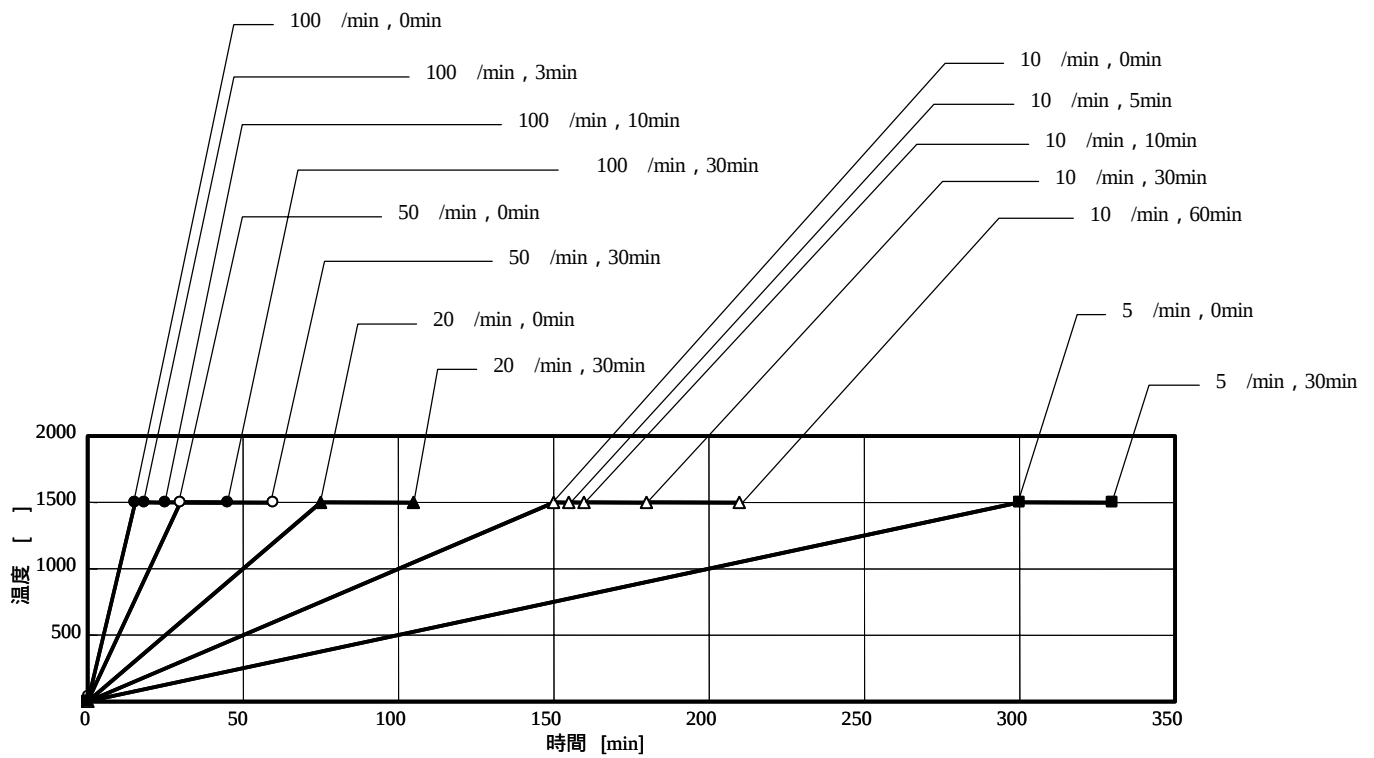
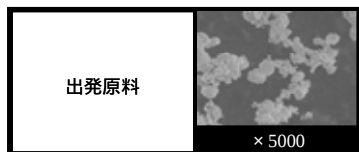


図-3 焼結プログラムと焼結体の結晶状態