

導電性材料によるフラット発熱体の技術開発(まとめ)

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において、数 10 から 800 以上と非常に幅広い温度域で用いられている。

我々は、これらに関連する技術開発として、パルス通電焼結法なる手法を用い、

廃材を用いた発熱部材の作製および評価

アルミナ焼結体の高熱伝導率化の検討および評価を行った。

パルス通電焼結法とは、焼結時間が極めて短く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を有する新しい焼結技術である。

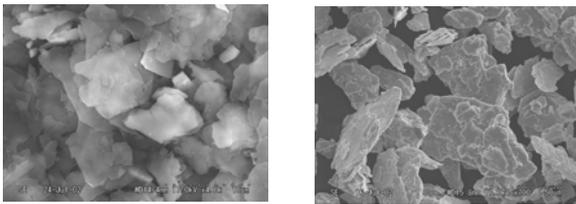
2. 廃材を用いた発熱部材

2-1 ニッケルコーティングセリサイト粒子

廃材を用いた発熱素材として、鱗片状の積層鉱物であるセリサイト粉体の表面に無電解めっき法によりニッケル合金皮膜を施したニッケルコーティングセリサイト粒子(以下、ニッケル-セリサイト複合粒子)を作製した。

ここでは、セリサイト粉体には化粧品とするには粒度が粗く、通常、廃棄処理されるものを、また、皮膜となるニッケル合金には使用済みつき浴に含まれるものを用いた。このようにして得られる導電体粒子は、めっき条件により導電率を多様に変えることができる。

今回、発熱材料として用いたセリサイト粒子の平均粒径は5 μ m程度、ニッケルめっき皮膜の厚みは0.2 μ m程度であった。図-1(a)にセリサイト粉体の、図-1(b)にニッケル-セリサイト複合粒子のSEM写真を示す。



(a) セリサイト粉体 (b) ニッケル-セリサイト複合粒子 (×700)

図-1 セリサイト粉体およびニッケル-セリサイト複合粒子のSEM写真

2-2 ニッケル-セリサイト複合粒子のバルク化

発熱体作成にあたり、ニッケル-セリサイト複合材料のバルク化を行った。図-2の模式図に示すようバルク化されたニッケル-セリサイト複合材料中のニッケル合金が抵抗発熱体となり、電流は接する粒子のニッケル合金層に沿って流れる。バルク化には図-3に構成

を示すパルス通電焼結機(住友石炭鉱業(株)SPS-1050)を用いた。焼結手順は、ニッケル-セリサイト複合粒子をグラファイト製焼結型(内径30mm×高さ40mm)に充填し、一軸方向の荷重を加え、真空引きした後、on-off比

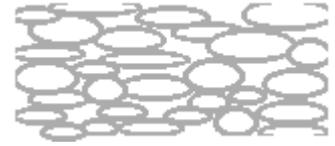


図-2 ニッケル-セリサイト複合材料発熱体の模式図

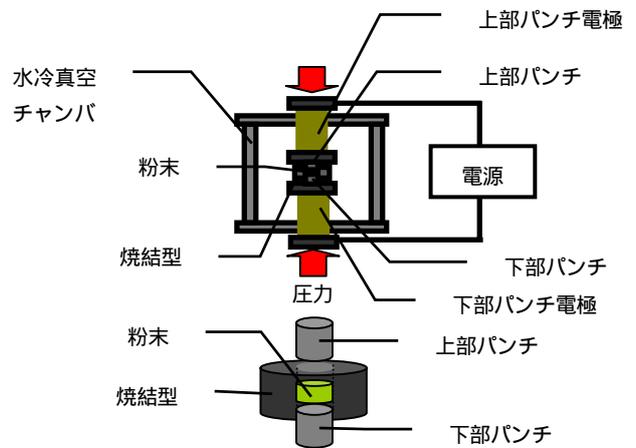


図-3 パルス通電焼結機の構成と焼結型の説明図

1:12のパルス電流を通電することにより行う。

2-3. 発熱特性試験の結果

ニッケル-セリサイト複合材料のバルク化を行う最適焼結条件は、昇温速度100 $^{\circ}$ C/min、焼結温度1000 $^{\circ}$ C、保持時間5minであり、得られたバルク体寸法は、直径20mm、厚さ1.2mmの円盤状であった。

一般に、抵抗体を発熱させるには、電流のパスを決定したうえで電圧を加える必要がある。ここでは、サンドブラスト法にてバルク体の不要部分を削り落とし、図-4に示す形状に加工した後、発熱特性試験を行った。

図-5に電圧を加え充分時間が経た試験体の温度分布を、図-6に昇温特性を、また、図-7に電力密度と発熱温度の関係を示す。

この結果、本実験範囲において400 $^{\circ}$ C程度の発熱を示したが、同様に本実験範囲において電力密度と発熱温度は直線関係を示したことから、さらに高温の発熱



図-4 サンドブラストにて成形したニッケル-セリサイト複合材料発熱体

*材料応用部

体となることが認められた。

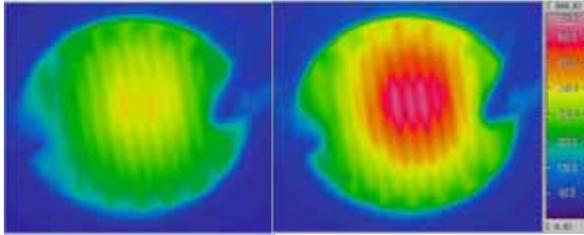


図-5 ニッケル - セリサイト複合材料発熱体の温度分布

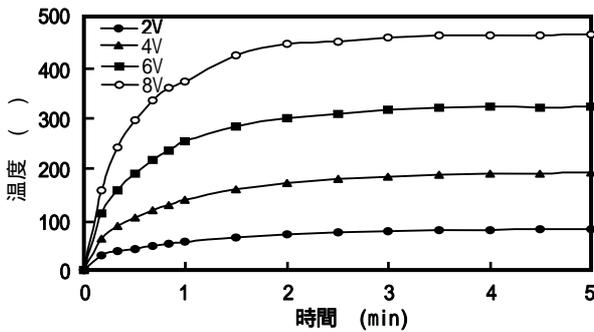


図-6 ニッケル - セリサイト複合材料発熱体の発熱特性

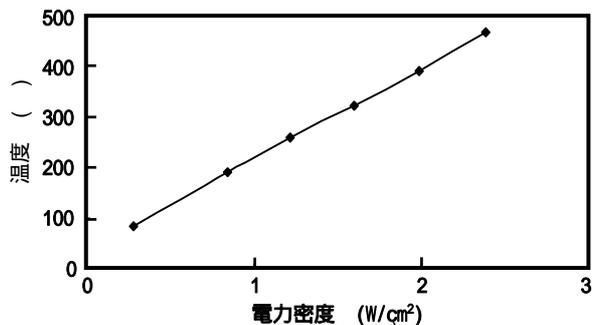


図-7 ニッケル - セリサイト複合材料発熱体の発熱温度と電力密度の関係特性

3. アルミナ粉末の高熱伝導率化

セラミックス焼結体等の高熱伝導率化には、結晶粒径、気孔率（緻密化）、結晶粒界の不純物の制御等が重要であり、我々はフラットヒータ用絶縁材として、アルミナを対象に前述のパルス通電焼結を用い、熱伝導率に關与する因子に対する焼結条件の影響を評価した。

3-1 パルス通電焼結法によるアルミナ粉末のバルク化

出発原料に純度 99.999%、結晶粒径 2~3 μm のアルミナ粉末（高純度科学研究所）を用い、パルス通電焼結機により固化成形した。アルミナ粉末 0.5g をグラファイト製焼結型（内径 10mm × 高さ 40mm）に充填した後、前述 2-2 項と同様の手順にて行った。焼結条件は、表-1 に示す様、焼結温度 1500 に達する昇温速度および焼結温度の保持時間を変化させ、加圧力は 40MPa

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 ~ 100[/min]
保持時間	0 ~ 30[min]

加圧力	40[MPa]
雰囲気	真空

定とした。得られる焼結体は、直径 10mm × 高さ 1mm 程度の円盤形状である。

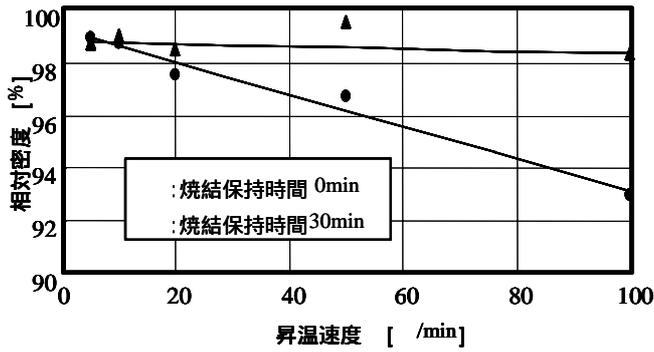
3-2 アルミナ焼結体の熱特性評価方法

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、走査型電子顕微鏡により表面観察を行い、結晶粒径を求めた。結晶子径は、X線回折測定（X線波長：CuK 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。熱伝導率は、レーザーフラッシュ装置を用いてハーフタイム法により求めた常温における熱拡散率に、先に求めた密度および比熱容量（ここでは、文献値を用いた）を乗じて算出した。また、機械的強度として、微小ピッカ - 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。

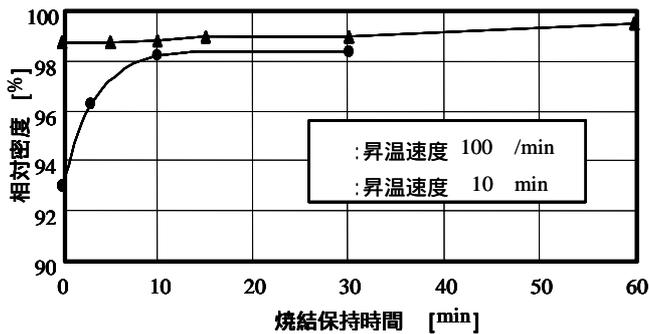
3-3 実験結果

図-8にアルミナ焼結体の相対密度と焼結条件の関係を示す。(a)に示す昇温速度との関係から、焼結保持時間 0min、すなわち昇温速度に限った影響をみると、昇温速度が小さくなるにつれ相対密度は増加するが、焼結保持時間を 30min とした場合、その傾向は著しく小さくなる。また、(b)に示す焼結保持時間との関係から、焼結温度 100 /min では、焼結保持時間 10min 付近までは相対密度は増加するが、昇温速度を 10 /min では、焼結保持時間によらずほぼ一定である。相対密度は、昇温速度が小さく、焼結保持時間が長い程、大きなエネルギーを与えることになり緻密化が促進され、焼結体の高熱伝導率化が図られることになる。また、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いる。

図-9にアルミナ焼結体の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、焼結保持時間が長くなるにつれ成長するが、その変化の割合は前述の相対密度と同様に焼結保持時間を比較的長くすると、昇温速度による差は著しく小さくなる。パルス通電焼結法による焼結体の結晶粒径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、結晶粒径においても焼結体の高熱伝導率化に有効なサイズアップが図られたものと考えられる。また、(113) 面により求めた結晶子径は、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。

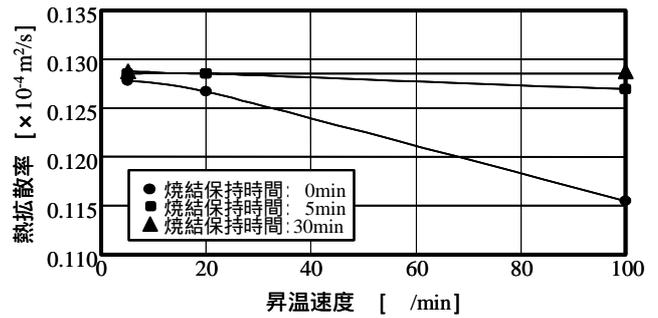


(a) 昇温速度と相対密度の関係

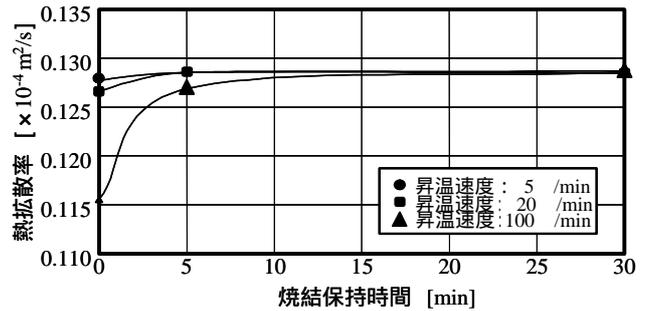


(b) 焼結保持時間と相対密度の関係

図-8 相対密度と焼結条件の関係



(a) 熱拡散率と昇温速度の関係



b) 熱拡散率と焼結保持時間の関係

図-10 熱拡散率と焼結条件の関係

図-10にアルミナ焼結体の熱拡散率と焼結条件の関係を、図-11にアルミナ焼結体の熱伝導率と焼結条件の関係を示す。ここでの熱伝導率は、熱拡散率に密度および比熱容量を乗じたものである。熱拡散率においても、昇温速度および焼結保持時間と間で前述の相対密度、結晶粒径と同様の関係を示し、その結果、得られる熱伝導率は相乗効果により大きな値を示した。今回の得られた熱伝導率の値は、焼結条件により33~39 W/(K·m)の幅が生じるが、39W/(K·m)は一般的な値に比べ2割程度大きい値であり、パルス通電焼結法を用いることにより容易に実現することが確認できた。また、今回は、比熱容量に文献値を用いたが、パルス通電焼結法で得られた焼結体の比熱は一般的な文献値を上回っていることも考えられる。

図-12に機械的強度として求めたビッカース硬さと焼結条件の関係を示す。ビッカース硬さにおいても保持時間が長いほど大きな値を示し、熱伝導率との相関関係が認められた。硬くて熱伝導率の大きいアルミナ焼結体が得られた。

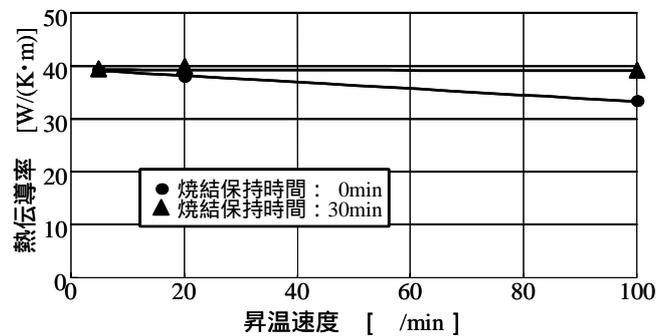
4. まとめ

廃材を用いた発熱部材

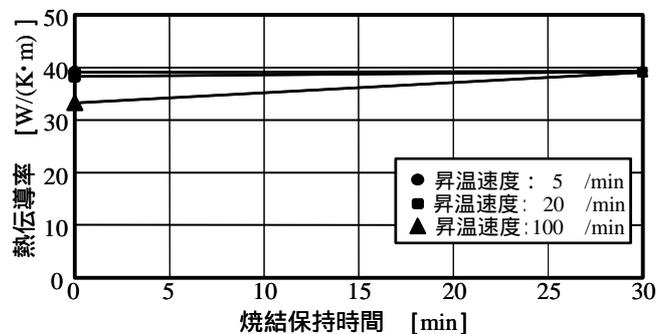
廃材から得たニッケル-セリサイト複合粒子をパルス通電焼結法によりバルク化して作製した発熱体の温度は、400 °C以上となる。

アルミナ粉末の高熱伝導率化

パルス通電焼結法により作製したアルミナ焼結体の密度および結晶粒径は、昇温速度が小さく、焼結



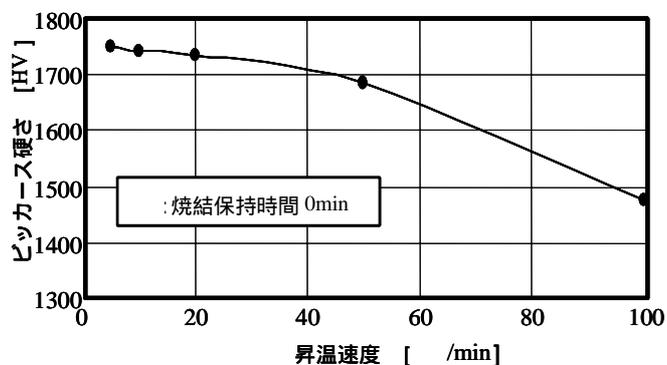
a) 熱伝導率と昇温速度の関係



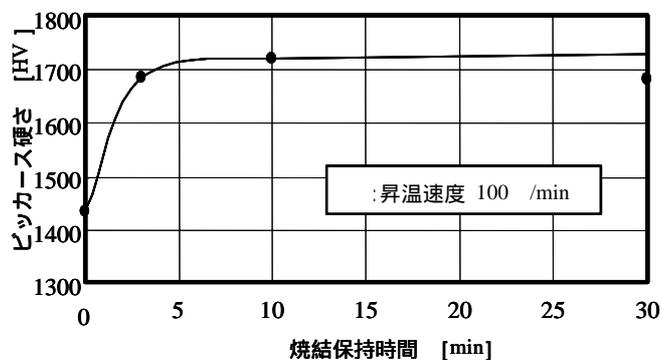
b) 熱伝導率と焼結保持時間の関係

図-11 熱伝導率と焼結条件の関係

保持時間が長い程大きくなる。本方法を用いることにより、これら因子の相乗効果による高熱伝導率化が容易に実現でき、得られる熱伝導率の値も一般的な値と比べ大きい。



(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-12 ビッカース硬さと焼結条件の関係

参考文献

- 1) 玉里信幸他：放電プラズマ焼結におけるアルミナの緻密化、曲げ強度および微細組織に及ぼす焼結圧力および昇温速度の影響, 粉体および粉末冶金第 46 巻 第 10 号別冊
- 2) 久保田正広他：メカニカルグライン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

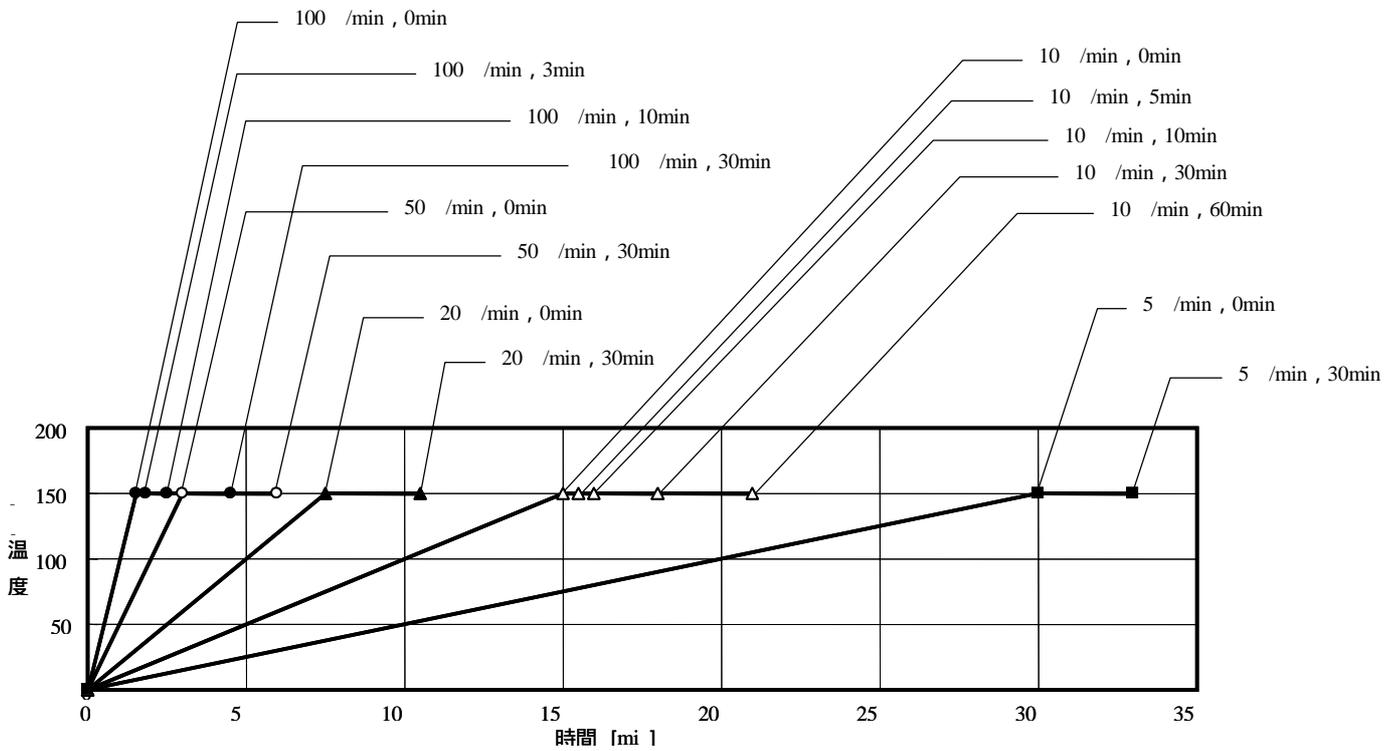
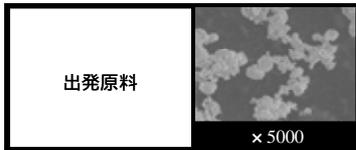
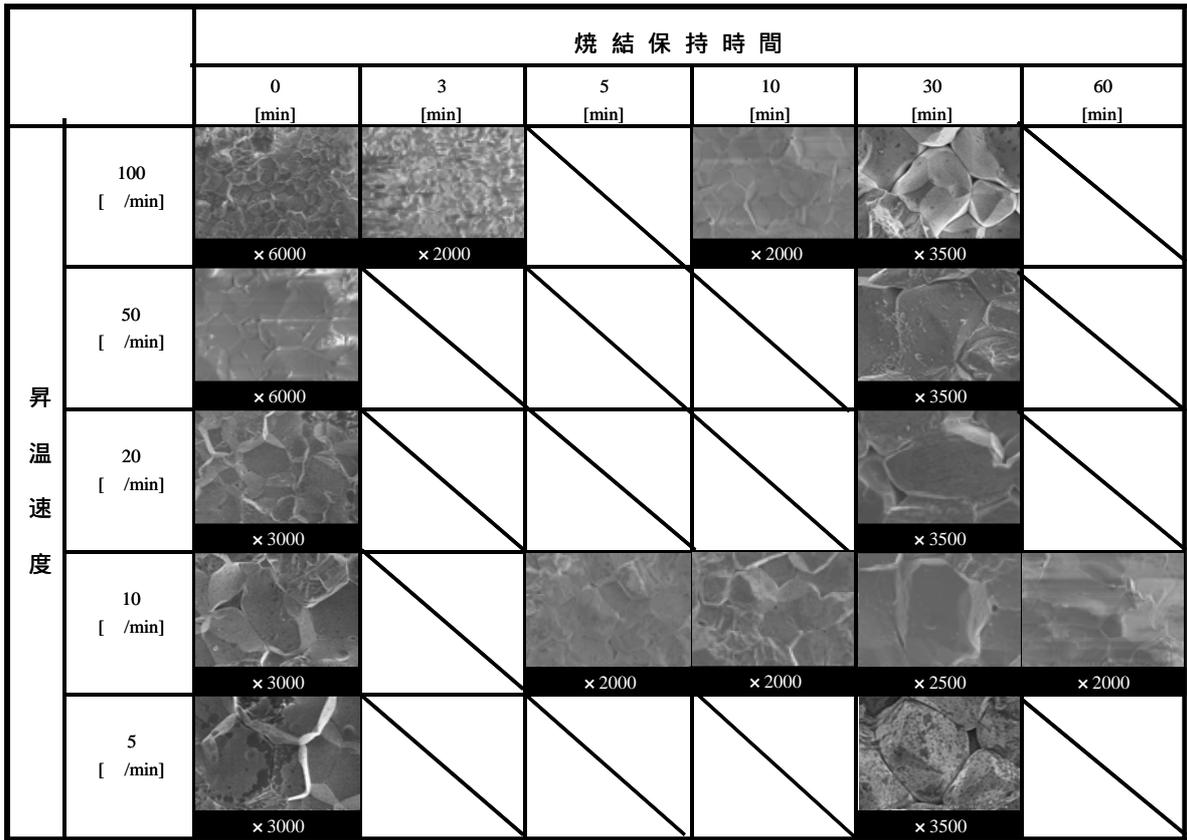


図-9 焼結プログラムと焼結体の結晶状態