



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	遠心燃焼合成法によるNi-Al合金の鑄造とステンレス鋼への同時接合
Author(s)	大参, 達也; 桐原, 和彦; 工藤, 昌行
Citation	日本金属学会誌, 64(5), 347-350 https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.64.5_347
Issue Date	2000-05
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74672
Type	journal article
File Information	1-9.pdf



遠心燃焼合成法による Ni-Al 合金の鑄造と ステンレス鋼への同時接合^{*1}

大 参 達 也 桐 原 和 彦^{*2} 工 藤 昌 行

北海道大学大学院工学研究科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 64, No. 5 (2000), pp. 347-350
Papers from JIM Fall Meeting (1999)
© 2000 The Japan Institute of Metals

Casting of Ni-Al Alloy and Simultaneous Joining to Stainless Steel by Centrifugal Combustion Synthesis

Tatsuya Ohmi, Kazuhiko Kirihara^{*2} and Masayuki Kudoh

*Division of Materials Science and Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido University,
Sapporo 060-8628*

Combustion synthesis and casting of Ni-25 mol%Al alloy and simultaneous joining to stainless steel, in the field of centrifugal force, have been investigated. In order to produce the Ni-Al alloy in the liquid state, the thermite type combustion synthesis process was adopted. In this process, the reaction temperature can be varied arbitrarily by changing the mixing ratio of the reactants, Ni, Al and NiO. In the present experiments, a cylindrical block of stainless steel was embedded in the basal part of a green compact of the reactants. The green compact was set in a centrifugal caster, and the combustion synthesis reaction was induced in the field of centrifugal force. This process, the centrifugal combustion synthesis, was successfully applied in joining the Ni-Al alloy and the stainless steel. On the other hand, joining did not succeed in the absence of a centrifugal force or close contact between the stainless steel and the green compact.

(Received December 16, 1999; In Final Form February 15, 2000)

Keywords: combustion synthesis, thermite reaction, centrifugal force, casting, joining, nickel-aluminum alloy, intermetallic compound, stainless steel, solidification

1. 緒 言

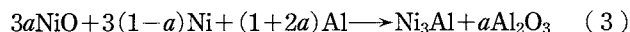
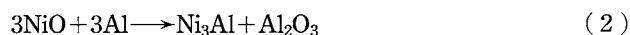
金属間化合物には高温構造材料や機能性材料として優れた特性を持つものがある。これらの材料を実際に使用する際には、成形加工、あるいは異種材との接合などの工程が必要となる。しかし、常温での加工性が劣るため通常の金属材料加工法の適用が困難となる場合が多い¹⁾。

本研究は、金属間化合物の合成と鑄造、および異種材との接合を一工程で行う方法として、燃焼合成法²⁻⁶⁾と遠心鑄造法を組み合わせた手法を検討した。本手法は、燃焼合成反応によって熔融状態の金属間化合物を合成すると同時に、熔融金属間化合物と異種金属基材とを遠心力による加圧下で接触させることによって接合するものである。ここでは本手法を「遠心燃焼合成法」と呼ぶことにする。本研究では、金属間化合物として、研究例が多く参照可能なデータが比較的揃っている Ni_3Al ²⁻⁶⁾を、また接合の相手材としてステンレス鋼を用い、遠心燃焼合成法による接合材の製造の可能性、および接合を可能にするための必要条件について基礎的な検討を行った。

2. 実 験 方 法

2.1 テルミット型燃焼合成法

遠心燃焼合成法において金属間化合物の鑄造を可能にするためには、燃焼合成反応の段階で、流体状態の生成物を得る必要がある。しかし、Ni と Al を出発原料とする通常の燃焼合成反応(式(1))では、生成物を熔融させるのに十分な反応熱を得ることができない⁴⁾。そこで、本研究ではテルミット型燃焼合成反応^{7,8)}を採用した。テルミット型燃焼合成反応は、金属酸化物とアルミニウムから金属間化合物を生成するテルミット型合成反応(式(2))⁸⁾と燃焼合成反応とを所定の割合で組み合わせた反応であり、式(3)のように表される。



ここで、 a はテルミット型合成反応の割合を示している。

燃焼合成反応およびテルミット型合成反応における生成物 1 mol 当たりの反応熱を比較すると、前者では 153.1 (kJ/mol)、また後者では 554.9 (kJ/mol) であり、後者では前者の 3.6 倍の反応熱が得られる。したがって、テルミット型燃焼

^{*1} 1999年11月21日日本金属学会秋期大会において発表

^{*2} 北海道大学大学院生(Graduate Student, Hokkaido University)

合成反応では、両反応の割合によって反応熱を広範囲にわたって変化させることができる。

また、テルミット型燃焼合成反応では金属間化合物と同時に酸化物(本研究の場合は Al_2O_3)が生成する。遠心燃焼合成法における遠心力は、金属間化合物と酸化物との密度差に基づく二層分離を促進する役割を果たすと考えられる。

2.2 遠心燃焼合成法

本研究で用いた縦型遠心铸造装置の铸型部分の模式図を Fig. 1 に示す。遠心燃焼合成に供する試料は、Al, Ni, NiO の各粉末から調整した円柱状の圧粉体の底部に JIS 規格 SUS304L ステンレス鋼の円柱を埋め込んだものである。圧粉体の直径および質量はそれぞれ 20 mm および 30 g である。またステンレス鋼の直径は 15 mm で、質量は 5, 10, 15 g の 3 水準とした。使用した原料粉末は市販の噴霧アルミニウム粉(平均粒径 100 μm , 純度 99.5 mass%), カーボニルニッケル粉(平均粒径 5 μm , 純度 99.8 mass%), および酸化ニッケル粉(平均粒径 5 μm , 純度 97.0 mass%) である。これらの粉末に少量のエタノールを加えて混合し、ステンレス円柱を埋め込んだ状態で金型成形した。粉末の配合は、式 (3) に基づいて Ni-25 mol% Al 合金 (Ni_3Al の化学量論組成) が生成するように調整した。なお、圧粉体成型時の温度は室温、また成形圧力は約 470 MPa である。

遠心燃焼合成実験では、試料に遠心力を加えた状態で、12 g の Ni-25 mol% Al 合金溶湯を試料に接触させることにより燃焼合成反応を励起した。着火材として用いた Ni-Al 合金溶湯は遠心铸造装置の上に設置した電気炉内で燃焼合成したものである。なお、試料最外部における遠心力の重力倍数は 93 G である。また、実験は大気中雰囲気で行った。

テルミット型合成反応の割合 α の値は、ステンレス鋼を埋め込んだ試料では 0.4、着火材生成用の圧粉体では 0.35 とした。これらの値は、圧粉体のみから成る試料を用いた予備実験の結果に基づいて設定したものである。

また、比較実験として以下の実験を行った。

(1) 通常重力下での燃焼合成-接合実験。本実験では、ステンレス鋼が下になるように、圧粉体試料を立てた状態で反応させた。

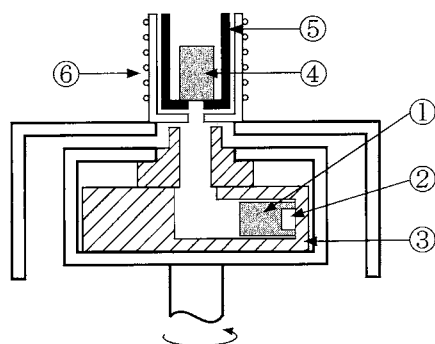


Fig. 1 Schematic illustration of experimental apparatus. ① green compact, ② stainless steel block, ③ alumina mold, ④ green compact for ignition, ⑤ graphite crucible, ⑥ electric furnace.

(2) 圧粉体とステンレス鋼の一体成形を行わず、遠心力のみで両者を接触させて行った燃焼合成-接合実験。この実験では、圧粉体とステンレス鋼の軸心がずれないようにステンレス鋼の直径を 20 mm とした。

実験により得られた試料は、長手方向に切断して組織を観察し、ステンレス鋼の端面と Ni-Al 合金との接合界面に着目してその健全性を調査した。

3. 実験結果および考察

3.1 テルミット型燃焼合成により生成した Ni-Al 合金の組織

圧粉体のみを試料を通常重力下で反応させた実験の結果を Fig. 2 に示す。本実験では、生成した Al_2O_3 のほとんどが上部に分離し、ほぼ Ni-Al 合金のみから成る铸塊が得られた。この铸塊のマクロ組織を Fig. 2(a) に、また光学顕微鏡によるミクロ組織を (b) に示す。組織の顕出にはマーブル試薬を使用した。Fig. 2 によると、铸塊中には微細なデンドライト状の組織が分散している。これらの組織は、初晶として晶出した NiAl デンドライトの一部が残存したものである。Fig. 2(b) において、黒い相が NiAl、白い相が Ni_3Al である。Fig. 2(b) では、 Ni_3Al 相による浸食の結果、NiAl デンドライトの幹の芯部のみが残存している組織や側枝の内部が NiAl と Ni_3Al との斑状になっている組織が観察される。これらの組織は、NiAl デンドライト晶出後の包晶反応 ($\text{NiAl} + \text{液相} \rightarrow \text{Ni}_3\text{Al}$)⁹⁾、あるいは温度低下に伴う NiAl 相からの Ni_3Al 相の析出によって生じたものと推測される。

3.2 接合界面の健全性に及ぼす遠心力の影響

Fig. 3 に、通常重力下で作製した比較材の組織の一例を示す。用いたステンレス鋼の質量は 15 g である。Fig. 3(a) は縦断面のマクロ組織写真、(b) はステンレス鋼と Ni-Al 合金の界面の拡大写真である。本試料では、ステンレス鋼と Ni-Al 合金の間に空隙が存在しており、両者はほとんど接合していない。

次に、15 g のステンレス鋼を用いた遠心燃焼合成材のマクロ組織を Fig. 4(a) に示す。本試料では、ステンレス鋼の一部が Ni-Al 合金中に溶け込み、長さが約 1.5 mm 減少し

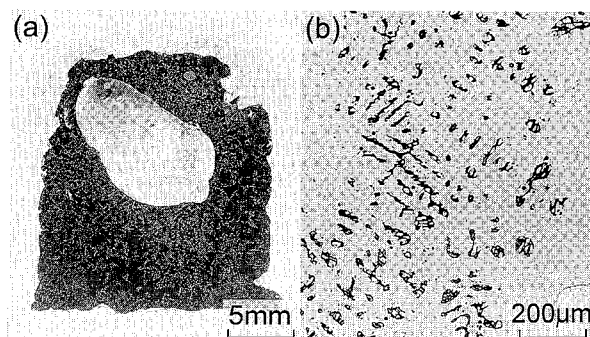


Fig. 2 Macrostructure (a) and microstructure (b) of the Ni-25 mol% Al alloy ingot produced by the thermite-type combustion synthesis process under gravitational acceleration 1 G.

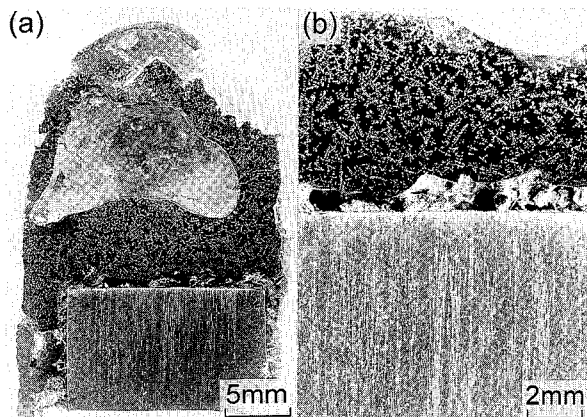


Fig. 3 Structure of a specimen produced by the thermite-type combustion synthesis without centrifugal force. The mass of the stainless steel block was 15 g. (a) Macrostructure; (b) magnified image of the interface between the Ni-Al alloy and the stainless steel.

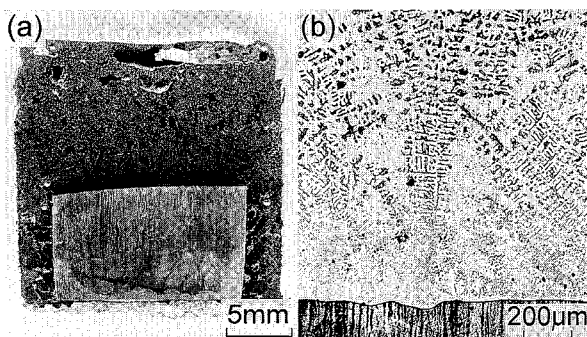


Fig. 4 Structure of a specimen produced by centrifugal combustion synthesis. The mass of the stainless steel block was 15 g. (a) Macrostructure; (b) microstructure near the interface.

た。Fig. 4(b)は、ステンレス鋼の溶け込みによって生じた新しい界面の光学顕微鏡写真である。ステンレス鋼と Ni-Al 合金とは完全に密着しており、接合不良部は観察されなかった。なお、接合界面近傍の Ni-Al 合金は腐食の進行が著しく遅かったため、Fig. 4(a)では黒い領域として観察される。この高い耐食性の原因に関しては現在のところ詳細は不明だが、急冷凝固、あるいは、溶出したステンレス鋼成分の含有(後述)などの要因が考えられる。

なお、5 g および 10 g のステンレス鋼を用いた場合も、それぞれ同様の結果が得られた。すなわち、本実験の範囲内ではステンレス鋼の質量にかかわらず、遠心力を加えた場合にのみ接合が可能であった。本結果から、遠心燃焼合成法による接合過程において、遠心力が重要な役割を果たすことが確認できた。

3.3 ステンレス鋼と圧粉体との接触状態の影響

Fig. 5 は、遠心燃焼合成材の組織(a)とステンレス鋼と圧粉体との一体成形を行わなかった比較材の組織(b)を比較して示している。ステンレス鋼の質量はいずれの場合も 10 g である。Fig. 5(a)の遠心燃焼合成材では、上述したように良好な接合状態が見られる。これに対して、(b)の比較材で

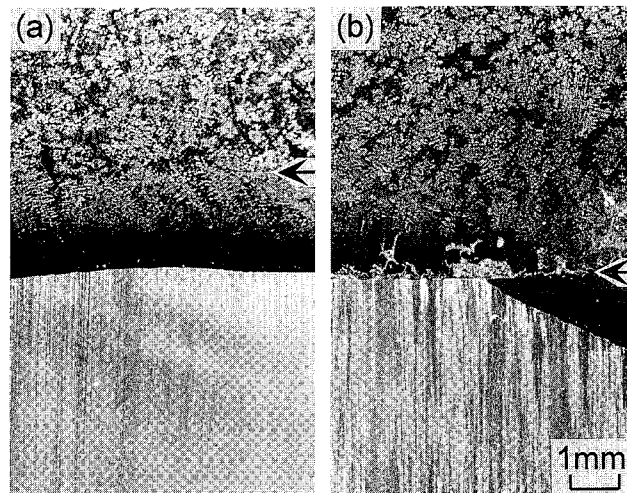


Fig. 5 Effect of the contact condition between the green compact and the stainless steel block on the soundness of the joint. (a) Centrifugal combustion synthesis using the green compact and the stainless steel block which were compacted into one piece; (b) the comparison experiment using the green compact and the stainless steel block which were separated. The mass of the stainless steel block was 10 g in each experiment. The arrow in each figure indicates the location of the initial interface between the green compact and the stainless steel.

は、ステンレス鋼の一部が局部的に著しく溶融する一方で、初期界面が接合不良の状態に残存している部分が存在する。この結果は、良好な接合を可能にするためには、ステンレス鋼と圧粉体とをあらかじめ均一に密着させておくことが必要であることを示している。

3.4 接合界面における濃度分布と硬さ分布

Fig. 6 に、遠心燃焼合成材の接合界面近傍の濃度プロファイルとミクロ組織(SEM による反射電子線像)を示す。用いたステンレス鋼の質量は 5 g である。Fig. 6 において、 $x < 0$ mm の領域がステンレス鋼である。また、 $x = 0 \sim 0.3$ mm の領域は、ステンレス鋼と Ni-Al 合金の各成分が傾斜的に分布している遷移領域である。一方、 $x > 0.3$ mm の領域は、Fe と Cr とを含有した Ni_3Al 相および NiAl 相から成っている。なお、とりわけ多量の Fe を含有している $x = 0.3 \sim 0.7$ mm の領域は、3.2 で述べた腐食の進行が著しく遅い領域に対応していた。

さらにバルク側($x > 0.7$ mm)では、Fe と Cr とがほぼ均一に分布している。Fe および Cr の平均濃度はそれぞれ約 3 mol% および約 0.7 mol% であった。また、Ni-Al 合金側全域の濃度測定においても同様の結果が得られた。テルミット型燃焼合成反応の直後では、生成した Al_2O_3 が Ni-Al 合金との密度差によって分離することにより、溶湯の流動が生じる。この結果、溶融したステンレス鋼の成分のほとんどは Ni-Al 合金液体に均一に混合したものと考えられる。

次に、Fig. 6 の試料におけるビッカース硬さ分布を Fig. 7 に示す。ここで注目されるのは、 $x = 0.6$ mm 近傍において硬さが極大となる領域が存在する点である。この領域は、前述の腐食されにくい領域に対応していた。

以上の結果は、高濃度の Fe ないし Cr の含有が、Ni-Al

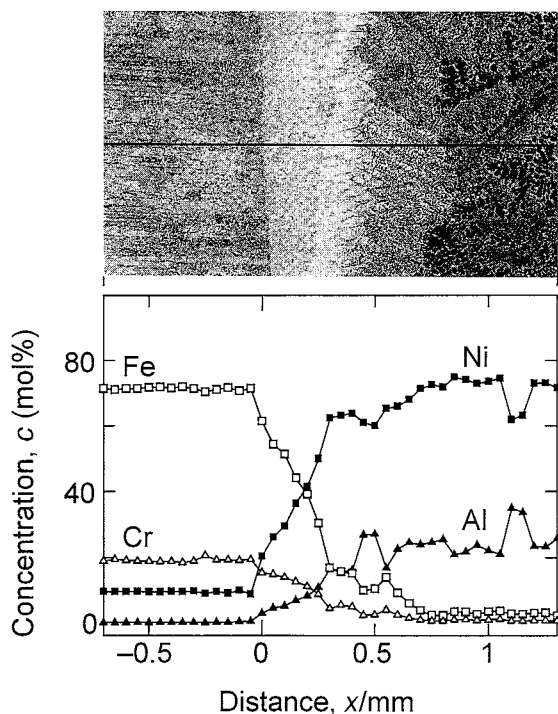


Fig. 6 Microstructure and composition profiles near the interface between the Ni-Al alloy and the stainless steel in the specimen produced by the centrifugal combustion synthesis. The mass of stainless steel block was 5 g.

合金の耐食性と硬さを向上させることを示唆している。NiAl に関しては、多量の Fe 添加によって硬さや耐食性が増加することが既に明らかにされており^{10,11)}、本研究の場合のような Ni_3Al と NiAl の共存組織に対しても同様の効果がある可能性がある。その詳細については今後の検討課題である。

4. 結 言

テルミット型燃焼合成法と遠心鋳造法を組み合わせたプロセスにより、Ni-25 mol%Al 合金とステンレス鋼との接合を試みた。得られた結果を以下に要約する。

(1) 本手法を用いることにより、Ni-25 mol%Al 合金とステンレス鋼とを接合することができる。

(2) 遠心力は、健全な接合部を形成する上で重要な役割を

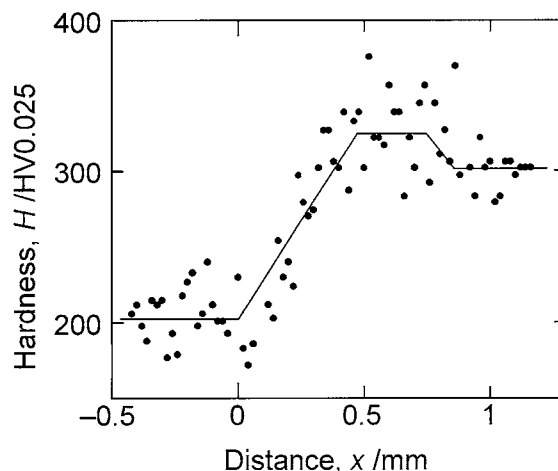


Fig. 7 Hardness profile near the interface in the specimen produced by centrifugal combustion synthesis. The mass of the stainless steel block was 5 g.

果たす。

(3) 本手法において健全な接合部を得るためには、予めステンレス鋼と圧粉体とを密着させておくことが必要である。

文 献

- 1) M. Nobuki: *Intermetallic Compounds for Materials*, ed. by Materials Science Society of Japan, Shokabo, Tokyo, (1995), pp. 41-87.
- 2) A. Bose, B. H. Rabin and R. M. German: *Powder Met. Int.*, **20**(3) (1988), 25-30.
- 3) A. Hibino: *J. Japan Inst. Metals*, **56**(1992), 1435-1443.
- 4) S. Miura, T. Ohashi and Y. Mishima: *Intermetallics*, **5**(1997), 45-59.
- 5) C. Nishimura and C. T. Liu: *Acta metall. mater.*, **41**(1993), 113-120.
- 6) X. Liang and E. J. Lavernia: *Mater. Sci. Eng.*, **A161**(1993), 221-235.
- 7) O. Yamada and Y. Miyamoto: *J. Japan Inst. Metals*, **56**(1992), 938-942.
- 8) O. Yamada and H. Matsumoto: *J.F.S.*, **67**(1995), 708-715.
- 9) M. F. Singleton, J. L. Murray and P. Nash: *Binary Alloy Phase Diagrams* (2nd. Ed.), ed. by T. B. Massalski, ASM International, (1990), pp. 181-184.
- 10) K. Matsuura, H. Jinmon, Y. Hirashima, T. I. Khan and M. Kudoh: *ISIJ Int.*, **40**(2000), 161-166.
- 11) K. Matsuura, H. Jinmon and M. Kudoh: *ISIJ Int.*, **40**(2000), 167-171.