アルミナ射出成形品の品質に及ぼす因子の影響*

福 本 功** 銘 莉 春 栄**

Effect of Factors on Quality of Alumina Injection Molding Product

Isao FUKUMOTO and Shunei MEKARU

Injection molding has an advantage used in making of complicated 3 dimensional products. The ceramics injection molding process is mainly composed of four stages. Namely these are the kneading of mixture, the molding process, the degreasing process and the burning process. Each process has many parameters. To obtain the optimum condition for getting a consistently high strength of the product, an S/N analysis developed by Dr. Taguchi was adopted. The optimum condition for obtaining high strength and quality of products could be accomplished by setting seven factors and two or three levels for each factor. Bending strength depends on the degreasing rate and sintering temperatures. And hardness in product depends only on the factor of sintering temperature. As the sintering temperature rises, the bending strength and hardness of product increase to high values, which lead to a small pore inside the product. In particular, alumina ceramics characteristic is drastically improved by sintering temperature higher than 1823 K.

Key words: ceramics, alumina, injection molding, design of experiments, SN ratio, orthogonal array

1. 緒 言

アルミナセラミックスは、硬度が高く、高温環境にも耐え、かつ腐食しないなどの材料特性をもつため、機械材料として最近急激に使われ始めている。また、セラミックスの射出成形は、複雑形状の加工が可能なることから付加価値の高い加工技術である。しかし、成形プロセスは混練、成形、脱脂、そして焼成と種々の工程と多くのパラメータを含んでいることから複雑である。またセラミックスの原料はサブミクロンの微粉末から構成され、粉末のみでは成形が不可能であることから、バインダの選択¹⁾²⁾と混練のプロセスが極めて重要である。さらに、成形品の高い寸法精度と機械的強度の向上、そして成形品の品質の安定は最適な加工条件に大きく左右される³⁾。

そこで、本研究においては、セラミックスパウダとバインダ、そして混練の段階による実験データのばらつきを防ぐ目的で、バインダを含んだ状態でペレット化され市販されているセラミックス材料としてアルミナコンパウンドを用いた。そして最終的な成形品に至るプロセスでの成形品の品質に影響を与える因子について解析を行い、最適成形条件について検討を行った。

すなわち、実験計画法による分散分析、そしてSN比解析によるパラメータ設計の手法を取り入れ、アルミナ射出成形品が機械材料として特に要求される曲げ強度と硬さに及ぼす因子の分析と最適成形条件について検討を行った。その結果、成形品の曲げ強さと硬さに及ぼす因子が特定され、さらにSN比解析から得られた最適成形条件を用いての確認実験において、成形品の曲げ強度と硬さの改善が認められた。

次に、焼成のプロセスにおけるセラミックス粒子の焼結による効果を定量的に把握するため、焼成温度を変化させたとき、成形品の品質がどのように改善されるか検討を行ったので報告する。

2. SN比解析

2.1 望大特性とSN比

特性の分類には大きく分けて、望小特性、望目特性、望大特性があるが⁴⁾、本研究においては、できるだけ曲げ強度と硬度の高い成形品を得たいとの考えから望大特性としての曲げ強度と硬さを取り挙げた。

そこで、特性値を改善する方法として、意図的に条件を変化させることによって、その効果が特性値に対して有利に作用するのかあるいは不利に働いたのかを知る必要がある。すなわち、特性値をその分類に対応したSN比(dB)に変換しなければならない。それにより、各要因の特性値に対する影響度を定量的に把握することができる。望大特性においては、その変換式は次式⁵⁾で与えられる。

$$\eta = -10 \log \left[\frac{1}{n} \left(\frac{1}{y_1^2} + \frac{1}{y_2^2} + \cdots + \frac{1}{y_n^2} \right) \right] \quad (1)$$

ここで、 $y_1, y_2, \dots, y_n$ は n 個の望大特性値である。

2.2 因子と水準

曲げ強度と硬さに影響を与える因子と水準を設定し、二水準1因子、三水準7因子の直交表 $L_{18}(2^1 \times 3^7)$ にそれぞれ割付けを行った。射出成形は同一条件で連続20ショット成形し、その後の16~20回までの5ショットを実験材料として用いた。

3. 実験装置および方法

3.1 供試材料

本実験に供するセラミックス材料は、バインダを含んだ状態で市販されている射出成形用アルミナコンパウンド(出光石油化学(株)CIM-2001)を用いた。なおアルミナ粉末の純度は99.6%、平均粒径は0.60 μm である。

3.2 成形プロセス

射出成形は日精樹脂工業(株)製の射出成形機(PS10E1 ASE)を用い、実験計画法の直交表による割付けに従い成形加工した。成形の手順はホッパよりペレットを投入し、シリンダで加熱を行い、バインダを溶解した後スクリーで流れを作り金型へ充てんする。図1は得られた成形品(グリーン)を示す

* 原稿受付 平成8年4月15日

** 正 会 員 琉球大学工学部(沖縄県中頭郡西原町字千原1番地)

Fig. 1 Green product

Fig. 2 Bending test method

が、A, B 部を切断して試験片として供した。その後、脱脂においては、ファイン社製脱脂炉 SHKS-1 を用いて室温より 623 K まで所定の加熱速度で脱脂を行った。焼成はシリコニット高熱工業製電気炉 DSPSH-28 を用いて所定の焼成温度に 4 時間保持後炉冷を行い、最終的な成形品を得た。

3.3 材料試験

機械的性質の評価としては硬度試験と三点曲げ試験を行った。硬度試験は試験片の表面をダイヤモンド研磨で鏡面に仕上げた後マイクロビッカース硬さ試験機（明石 MVK-G 1）を用いて荷重 2.94 N で行った。次に、曲げ試験においてはセラミックス材料は硬度が高くぜい性破壊を起こしやすいため、ポンチの押込みの際、試験片の支点間の中心とポンチの中心がずれるとデータのばらつきを招く。そこで、両中心を合わせる方法として、ポンチの中心部をテストピースの支点間の中央部に確実にセッティングさせるため図 2 に示すジグ B を用いた。まず A の支持台にはめ込んだ状態のジグ B の凹部に、クロスヘッドに装着されたポンチ C を入れる。それから C を持ち上げ B を取り除き、次に支点としての役割をする 2 個のピン D を支持台 A の溝の部分に載せ、その間に試験片を渡して再度 C を下降させて荷重を加え試験を行う。曲げ試験機は、島津製作所製のインストロン型万能試験機を用いる。なおクロスヘッドスピードは 0.5 mm/min である。また曲げ強さ σ は次式を用いて求めた。

$$\sigma = \frac{8PL}{\pi d^3} \quad (2)$$

ただし、 P : 破断荷重 (N), L : 支点間距離 (mm), d : 試験片の直径 (mm) である。

次に、成形品の気孔率を知る手掛かりとして、吸水率の測定

Table 1 Factor and level

	Factor	Level		
		1	2	3
A	Sintering temperature K	1 673	1 773	—
B	Injection speed %	14	44	74
C	Injection pressure %	44	64	84
D	Mold temperature K	301	309	317
E	Cylinder temperature K	393	403	413
F	Cooling time s	15	35	55
G	Degreasing speed K/h	5	30	55

 Table 2 Orthogonal array L_{18} in bending and hardness test

									Bending strength		Hardness	
									y MPa	η dB	y HV	η dB
1	A	B	C	D	E	e	F	G	145.73	43.27	988.50	59.90
2	1	1	2	2	2	2	2	2	109.08	40.76	863.75	58.73
3	1	1	3	3	3	3	3	3	118.97	41.51	865.86	58.75
4	1	2	1	1	2	2	3	3	116.33	41.31	844.28	58.53
5	1	2	2	2	3	3	1	1	236.67	47.48	795.43	58.01
6	1	2	3	3	1	1	2	2	101.63	40.14	948.97	59.55
7	1	3	1	2	1	3	2	3	92.42	39.32	812.33	58.19
8	1	3	2	3	2	1	3	1	171.50	44.69	923.37	59.31
9	1	3	3	1	3	2	1	2	102.61	40.22	752.90	57.53
10	2	1	1	3	3	2	2	1	237.16	47.50	1 361.68	62.68
11	2	1	2	1	1	3	3	2	150.73	43.56	1 473.43	63.37
12	2	1	3	2	2	1	1	3	133.28	42.50	1 503.54	63.54
13	2	2	1	2	3	1	3	2	162.97	44.24	1 420.88	63.05
14	2	2	2	3	1	2	1	3	156.80	43.91	1 431.12	63.11
15	2	2	3	1	2	3	2	1	160.72	44.12	1 376.85	62.78
16	2	3	1	3	2	3	1	2	155.53	43.84	1 415.23	63.02
17	2	3	2	1	3	1	2	3	148.96	43.46	1 455.60	63.26
18	2	3	3	2	1	2	3	1	217.85	46.76	1 317.26	62.39

を行った。すなわち、試料の乾燥重量を W_1 、煮沸した湯に 3 時間浸した後の飽水重量を W_2 とし、次式 (JIS R 2205) によって求めた。

$$\text{吸水率 (\%)} = \frac{W_2 - W_1}{W_1} \times 100 \quad (3)$$

4. 実験結果と考察

4.1 成形品の曲げ強さ

セラミックスの射出成形は、混練、成形、脱脂、そして焼成の各プロセスから構成されるが、それぞれの工程が多くのパラメータを含んでいることから複雑である。そこで、本研究においては、実験計画法を用いて実験を進めたが、本手法においては因子の選択と水準の設定がきわめて重要である。まず誤差因子として、ショット回数を選び、制御因子として、焼成プロセスから省エネルギーに直結する焼成温度、射出成形条件においては成形品のガスの巻込みに関係すると思われる射出速度、射出圧力、樹脂の粘性に影響するシリンダ温度、金型温度、そして冷却時間を選んだ。また脱脂プロセスにおいては生産能率の程度に影響を与える脱脂速度を選んだ。また、標準的なレベルとして第二水準を設定し、それぞれに対して意図的に高低の異なる水準を設定しそれぞれの条件を表 1 にまとめた。そして、それぞれの条件の組合せは表 2 に示す直交表に基づき、18 通りの L_{18} の割付けを行った。なお表中の e は誤差因子を示す。また曲げ強さと硬さの測定値とそれぞれを SN 比換算した変換値 (dB) も併記してある。次に、曲げ強さを分散分析した結果

Table 3 Analysis of variance

	<i>f</i>	<i>S</i>	<i>V</i>	ρ %
A Firing temperature	1	24.95	24.95	24.34
B Injection speed	2	0.75	0.38	—
C Injection pressure	2	6.18	3.09	5.33
D Mold temperature	2	3.25	1.63	2.42
E Cylinder temperature	2	5.96	2.98	5.11
F Cooling time	2	4.53	2.27	3.69
G Degreasing speed	2	51.1	25.55	49.87
e error	2	4.08	2.04	9.24
<i>T</i>	17	100.8	—	100

Table 4 Analysis of variance

	<i>f</i>	<i>S</i>	<i>V</i>	ρ %
A Firing temperature	1	83.2	83.2	90.3
B Injection speed	2	0.9	0.45	—
C Injection pressure	2	0.13	0.07	—
D Mold temperature	2	0.52	0.26	—
E Cylinder temperature	2	0.98	0.49	—
F Cooling time	2	0.01	0.005	—
G Degreasing speed	2	0.01	0.005	—
e error	2	3.12	1.56	9.7
<i>T</i>	17	88.87	—	100

Fig. 3 SN ratio on each level of factor on bending strength

を表3に示す。なお表中の f は自由度, S は変動, V は分散, そして ρ は寄与率を示す。これから, 脱脂速度の寄与率が最も高く, 次に焼成温度となっている。また F 検定した結果においては 5% の危険率でいずれの因子も有意との結果が得られた。さらに, それぞれの因子を SN 比解析した結果を図3に示す。まず焼成温度が 1773 K においては 44.41 dB と高い値を示すのに対し, 1673 K では 42.15 dB と小さくなっている。また射出速度においては水準間における有意差は認められないが, 射出圧力では 64% においては高い SN 比を示し, 以下金型温度では 317 K, シリンダ温度では 413 K, 冷却時間では 55

s でそれぞれ高い SN 比を示しており, 脱脂速度においては 5 K/h では 45.61 dB と最高の SN 比を示した。そこで, 曲げ強度に対する最適条件を整理すると以下の通りとなる。焼成温度: 1773 K, 射出速度: 44%, 射出圧力: 64%, 金型温度: 317 K, シリンダ温度: 413 K, 冷却時間: 55 s, 脱脂速度: 5 K/h となる。

次に, この最適条件における SN 比 η の推定値 $\hat{\mu}$ を, 有意要因である $A_2, C_2, D_2, E_3, F_3, G_1$ の各 SN 比の最適水準の平均値 $\bar{A}_2, \bar{C}_2, \bar{D}_3, \bar{E}_3, \bar{F}_3, \bar{G}_1$ と実験全部の平均 $\bar{T}$ より求めると,

$$\hat{\mu} = \bar{T} + (\bar{A}_2 - \bar{T}) + (\bar{C}_2 - \bar{T}) + (\bar{D}_3 - \bar{T}) + (\bar{E}_3 - \bar{T}) + (\bar{F}_3 - \bar{T}) + (\bar{G}_1 - \bar{T}) = 49.16 \text{ dB} \quad (4)$$

この推定値を曲げ強度に換算すると 285 MPa となり, 5.91 dB の利得の改善がなされる。次に, 危険率 5% の信頼限界を含めて推定される SN 比の存在範囲 μ は,

$$\mu = \hat{\mu} \pm \sqrt{F_{\alpha}^1(0.05) \times \frac{V_e}{n_e}} = 49.16 \pm 2.31 \text{ dB} \quad (5)$$

となる。ただし, $F_{\alpha}^1(0.05) = 5\%$ F 分布表の F 値, V_e = 誤差分散, n_e = 有効反復数である。ここで, 前記の最適条件で確認実験を行ったところ, 平均で 272 MPa となり信頼限界の 5% 以内に入り, 高い信頼性で制御されていることが認められた。

4.2 アルミナ成形品の硬さ

セラミックス成形品の特徴は高い硬度にあるが, 射出成形においては, 多くのプロセスとパラメータがからんでいるため, 硬度においても特に影響を与える因子を特定することはきわめて難しい。そこで, 前述の方法と同様に実験計画法と SN 比解析を用いて検討を行った。まず, 前述の因子と水準を設定した L_{18} 直交表を用い, 得られた成形品のビッカース硬さを測定し, SN 比解析を行い, その結果を表2に示す。そこで, 分散分析した結果を表4に示すが, 成形品の硬さに対する寄与率は焼成温度のみが 90.3% と非常に高い値を示し, セラミックス粒子の焼結が極めて重要であることを示している。またそれぞれの因子に対する SN 比解析をした結果を図4に示すが, 焼成温度においては, SN 比においても有意差が認められるが, その他の因子においては有意差が認められない。そこで, 有意要因である焼成温度 A の最適水準の平均値 $\bar{A}_2$ と実験全部の SN 比の平均値 $\bar{T}$ より求めた最適条件における SN 比の推定値 $\hat{\mu}$ を求めると

$$\hat{\mu} = \bar{T} + (\bar{A}_2 - \bar{T}) = \bar{A}_2 = 63.02 \text{ dB} \quad (6)$$

となり, 硬さに換算すると $HV = 1420$ を示し, 2.15 dB の利得改善がなされたことになる。次に, 危険率 5% の信頼限界も含めて推定される SN 比の存在範囲は $\mu = 63.02 \pm 2.96 \text{ dB}$ となり, 確認実験においても $HV = 1473$ の値が得られ硬さの改善が認められた。

Fig. 4 SN ratio on each level of factor on hardness

4.3 成形品の曲げ強さと硬さ

アルミナセラミックスの成形品は硬さが高く、機械的強度も高いことが要求されるが、両者の要求を満たすことはきわめてむずかしい。その理由として、セラミックスの成形においては、使用原料がサブミクロン単位の微粉末を用い、かつ最終的な焼結までに至る複雑なプロセスに依存しているためと思われる。すなわち、機械的強度としての曲げ強さは成形品内部のクラックの存在とその大きさに左右されることが予想され、また硬さにおいては、金属のようなほぼ均一に熔融凝固した材料とは異なり、セラミックスにおいては、粒子の焼結による空孔の存在がある程度避けられないと思われる。そこで、機械的強度と硬さに対する対応関係も金属材料の場合とはいくぶん異なることが考えられる。

そこで、本項においては、セラミックス成形品における曲げ強さと硬さとの関係について考察した。すなわち、前述の曲げ強さと硬さの実験で有意な因子とされた脱脂速度と焼成温度の実験で得られたデータを用い、横軸に材料のビッカース硬さ、縦軸に曲げ強さを取り整理した。その結果を図5に示す。図から、大きく分けると4グループに分類できることがわかる。すなわち、ビッカース硬さが1400以上の場合と以下のグループ、そして曲げ強さが150 MPa以上と以下のグループに分類

Fig. 5 Plots of bending strength vs. hardness on product

Fig. 6 Micrograph of fracture surface in bending test

される。これより、曲げ強さにおいては、脱脂速度に依存し、さらに硬さにおいては、焼成温度が大きく影響を与えていることが認められる。そこで、これらの影響を定性的に把握するため、曲げ試験片においては曲げ破断面を、硬さ試験片においては任意の箇所の断面を、金蒸着を施した後、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて観察した。その結果を図6に示す。なお図中の記号 (A), (B) は焼成温度 1673 K, (C), (D) は 1773 K の場合を示し、また脱脂速度においては、(A), (C) が 5 K/h, (B), (D) が 55 K/h の場合を示している。図より焼成温度の影響としては、焼成温度が高い場合 (1773 K) において、空孔が小さくかつ少ないことから、粒子の焼結がある程度スムーズになされているため硬さの向上に寄与していると思われる。次に、脱脂速度の影響として、脱脂速度の高い場合 (55 K/h) においては、成形品内の樹脂の蒸発がきわめて急激になされるため空孔の発生、空孔の形状のくずれによるボイドの合体が促進され、さらにクラックの発生、連結 (細長いクラック) に至る様子が確認されることから、これらの内部欠陥の存在が曲げ強さの低下を招いている。逆に、脱脂速度が低い場合 (5 K/h) はクラックの発生に至るボイドの合体が少ないため曲げ強度は高いと思われる。

4.4 焼成温度が成形品の品質に及ぼす影響

アルミナセラミックスの射出成形品は、パウダをバインダと混練、成形後、焼成することにより得られることから、空孔の存在が大きな役割を果たす。また、曲げ強さと硬さを分散分析した結果でも、焼成温度の寄与率が高いことを示していることから、具体的に焼成温度が成形品の品質にどのような影響を与えているか詳細に検討した。そこで、先に得られた最適成形条

Fig. 7 Effect of sintering temperature on bending strength

Fig. 8 Effect of sintering temperature on hardness in product

Fig. 9 Effect of sintering temperature on shrinkage in product

件を用い、成形条件と脱脂速度を一定とし、焼成温度のみを変化させたとき、曲げ強さにどのような効果を与えるか検討した。図7にその結果を示す。図から、焼成温度の上昇につれて、曲げ強さはほぼ直線的に増加する傾向を示すが、焼成温度1823 K以上においては300 MPaを越え、ほぼ一様な強度を示していることが認められた。

次に、成形品の硬さと焼成温度との関係を調べた。その結果を図8に示すが、同様に焼成温度の上昇に伴い、硬度も高い値を示し、特に焼成温度1823 K以上においてはビッカース硬さはHV 1500以上の高い硬度を示した。さらに、成形品の寸法精度を知る目安として収縮率について検討した。その結果を図9に示す。この場合も焼成温度の上昇につれて、寸法の収縮率

Fig. 10 Effect of sintering temperature on water absorption in product

は増加する傾向を示すが、焼成温度1823 K以上の温度においては、収縮率は一定の値を示し、成形品の品質は安定することが認められた。また成形品の空孔率を知る手掛かりとして、吸水率の比較を試みた。図10にその結果を示すが、焼成温度の上昇につれて、吸水率は直線的に減少し、特に、焼成温度1823 K以上において、吸水率はほぼ0に近い値を示していることから、成形品の内部においても空孔の存在はきわめて少ないことが予想される。

以上のことより、アルミナ射出成形品の機械的性質は焼成温度の上昇につれて著しく改善され、特に焼成温度が1823 K以上においては、成形品の品質が安定することが見いだされた。

5. 結 言

アルミナコンパウンドを用い、射出成形品の品質に影響を与える因子について、実験計画法とSN比解析の手法を用いて検討した結果、次のことが明らかとなった。

- (1) 成形品の曲げ強さと硬さは、SN比解析による最適条件では曲げ強さで5.91 dB、硬さでの2.15 dBの利得の改善がなされ、確認実験においてそれぞれ272 MPa, HV=1473の成形品が得られた。
- (2) 成形品の硬さは、焼結の程度に影響を与える焼成温度に左右され、また曲げ強さにおいては、クラックの存在に大きく影響され、またクラックの状態は脱脂速度に大きく依存することが明らかになった。
- (3) 成形品の品質は、焼成温度の上昇に伴い著しく改善がなされ、特に、焼成温度が1823 K以上においては品質が安定する。

最後に、本研究を進めるに当たり、出光石油化学(株)より実験材料を提供して頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) M. J. Edirisinghe and J. R. G. Evans : Properties of Ceramic Injection Moulding Formulations, Part 1 Melt Rheology, J. Mat. Sci., **22**, 1, (1987) 269.
- 2) M. J. Edirisinghe and J. R. G. Evans : Properties of Ceramic Injection Moulding Formulations, Part 2 Integrity of Mouldings, J. Mat. Sci., **22**, 9, (1987) 2267.
- 3) I. Fukumoto and S. Mekaru : Development of Clay-used Ceramic Injection Moulding, ICPM-95, (1995) 496.
- 4) 田口玄一, 横山撰子 : 実験計画法 (改訂版), 日本規格協会, (1987) 148.
- 5) 同上, p. 151.