研 究

鉄圧粉体の寸法変化に及ぼす潤滑剤の影響*

黒 木 英 憲**, 林

桂***

Hidenori Kuroki and Katsura Hayashi: Effect of Powder Lubricants on Dimensional Change of Iron Powder Compacts.

The dimensional changes in the axial direction of iron powder compacts (10 mm diameter, 10 mm height) pressed under 2–8 t/cm² (196–784 MPa) were measured along the process of production; these are, after unloading, ejecting, dewaxing at 600°C (873 K) for 30 min and sintering at 1100°C (1373 K) for 60 min in cracked-ammonia.

When 0.7 wt% of powder lubricant was added to iron powder, the magnitude of the axial spring-back was larger than that observed when die-wall was lubricated. But, each powder lubricant did not give appreciable difference in magnitude.

Some compacts swelled in dewaxing. Greater swelling was observed on compacts pressed under high pressure using lubricants which were viscous in the molten state.

Shrinkage by sintering grew large with the increase of the sum of spring-back and swelling. But, this tendency disappeared when the sum surpassed 3%.
(Received April 22, 1981)

I 緒 言

圧粉体の寸法変化、とくに焼結収縮の異方性は、焼結機構を解明する上のみでなく、焼結機械部品の精度向上を図る上でも重要問題であるから、前報¹⁾では鉄粉に一般的潤滑剤であるステアリン酸亜鉛を混合し、成形した円柱状圧粉体の寸法変化を調べた。

その結果として、圧粉体と焼結体の寸法差を焼結による寸法変化量とすれば、それが軸方向では収縮であり、高圧成形試料ではその収縮が成形時のスプリングバックによる膨張を埋め合わせるように顕著に起こること、径方向では種々の寸法変化が軸方向に比べてはるかに小さく、膨張と収縮の対応関係も明らかでないことなどを指摘した。ところで、スプリングバックは加圧成形に伴って起こるから、その工程で用いる潤滑条件の影響は詳しく調査しておく必要がある。潤滑剤の量を変えた測定は前報のステアリン酸亜鉛で済ませた。しかし、ステアリン酸亜鉛では残滓が製品外に出て焼結炉に損傷を与えることが欠点とされており、この点でステアリン酸カルシウムの方がよいとの考えもある²⁾。そこで、本報では市販の各種ステアリン酸塩も含め、軸方向寸法変化に及ぼす潤滑剤の影響を調査した。

II 実験方法

II-1 試料作製の標準条件

標準的な試料の作製法は前報と同様であるから、以下

概要を記す。まず、原料粉末として粒子形状の単純な電解鉄粉（東邦亜鉛社製 PM 250: -100 mesh）を用い、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛 0.7 wt% を加えた。混合は凝集しがちな潤滑剤粒子を分散させるため、石油ベンジンによって湿式で行なった。他に原料粉末として噴霧鉄粉（神戸製鋼社製 300 M: -100 mesh）および鉍石還元鉄粉（Höganäs 社製 NC 100-24: -100 mesh）、潤滑剤として Table 1 の各種ステアリン酸塩についても調査した。

成形は内径 10 mm の超合金製金型で両押しによって行ない、圧力 2–8 t/cm² (196–784 MPa) で高さ約 10mm の円柱形試料を作製した。脱ろうは分解アンモニア気流中で 600°C (873 K) – 30 min、焼結も同じ雰囲気中で 1100°C (1373 K) – 60 min、いずれも所定温度に保持した炉に直接試料を送り込んだ。

II-2 寸法測定法

粉末の加圧から焼結終了までの間、Table 2 に示すように各段階で寸法が変化する。そのうち、直接測定する H_U , H_G , H_D および H_S には前報と同様にデジタル電気マイクロメータ（最小読み 0.001 mm）を用いたが、除荷スプリングバック量 ($H_U - H_F$) は前報のものを改良した Fig. 1 の装置で測定した。すなわち、上下のパンチ

* 昭和55年5月本協会春季大会にて発表、昭和56年4月22日受理

** 広島大学工学部機械系、〒724 広島市西条町下見

*** 広島大学大学院（現在京都セラミック K. K.）

Table 1 Stearates used.

Name	Formula	Melting temp. ³⁾	Vaporizing temp.	Viscosity*	Source
Aluminium st.	$\text{Al}(\text{OH})_2(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	155°C	350-450°C	— mPa·S	Sakai Chemical Co.
Calcium st.	$\text{Ca}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	150	440-490	—	
Lithium st.	$\text{Li}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	220	460-500	111	
Magnesium st.	$\text{Mg}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	159	360-400	349	
Zinc st.	$\text{Zn}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	120	390-440	0.56	
Cobalt st.	$\text{Co}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	125	360-480	7.3	Kanto Chemical Co.
Chromium st.	$\text{Cr}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	98	250-490	3.7	
Copper st.	$\text{Cu}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	125	290-320	0.34	
Iron st.	$\text{Fe}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	—	340-410	5.6	
Nickel st.	$\text{Ni}(\text{C}_{18}\text{H}_{35}\text{O}_2)_2$	155	300-340	12.8	

* 測定はすべての潤滑剤が溶融状態にあって蒸発温度よりは低い 250°C (523 K) の大気中で行ない、回転円板式粘度計 (島津製作所製レオメータ RM-1) を用いた。

に腕を取り付け、上パンチの腕には2個のダイヤルゲージを、測定子がパンチ中心に関して対称となる位置に固定し、それらの測定子を下パンチの腕に当てた。各ダイヤルゲージについて加圧時と除荷時の読みの差を取り、上下パンチの弾性変形量を差し引いて除荷スプリングバック量を求めた。この加圧の際、所定圧力に達すると同時に圧粉体寸法はほぼ所定値に達するが、正確にはその後1min以上わたってわずかな減少傾向を示すため、それがほぼ収まる2minをもって加圧保持時間とした。

脱ろう後の試料表面では、主として円筒面に潤滑剤の残滓が付着していた。しかし、寸法を測定する加圧面には少量しか付着していなかった。その厚さは潤滑剤の種類によっても異なるが、せいぜい脱ろうによる膨張量の数%であるから、軸方向寸法変化の大勢には影響しない。もちろん、焼結後はこれらの残滓は全表面から消失していた。

試料は同一条件で4個作製し、各データはその4個に関する測定平均である。

以上の実験とは別に、膨張計による測定も行なった。その場合は試料を10mm角の立方体に成形し、押棒式膨張計で5gf (0.049 N) の測定荷重をかけ、10°C/minの速度で加熱した。

III 実験結果および考察

試料の作製工程において、軸方向寸法はTable 2のように H_P から H_S まで順次変化するが、とくに型抜き後の H_G は、圧粉体が金型外に出て初めて人の視覚に触れる状態での寸法であるから、これを基準にして各工程段階における寸法を表示したのがFig. 2である。同図は、各種潤滑剤を0.7wt%ずつ添加し、あるいは型壁潤滑のみを施し、いずれも6t/cm² (588 MPa) で成形した試料のうち、特徴的な挙動を取るものを掲げる。ここで横軸には加圧 (P) から焼結終了 (S) までの5段階*を取り、縦

Fig. 1 Measurement fixture for axial spring-back of cylindrical iron powder compact in unloading.

Table 2 Stages of production.

	Pressed	Unloaded	Ejected	Dewaxed	Sintered
	(Green)				
Stage					
Height	H_P	H_U	H_G	H_D	H_S

* 前報ではステアリン酸亜鉛のみで粉末潤滑を行ない、軸方向では、型抜き後の圧粉体と焼結体の寸法差 ($H_S - H_G$) から焼結による寸法変化率 $\{(H_S - H_G)/H_G\} \times 100$ を求めた。その場合の焼結寸法変化の中には脱ろうによる寸法変化 (膨張となることが多い) も含まれていたが、後述するようにステアリン酸亜鉛で潤滑した場合には脱ろうによる変化が小さいため、一括して焼結寸法変化と見なしても差し支えなかった。しかし、本報では、ステアリン酸カルシウムなどのような他の潤滑剤を混合したところ、上記の寸法変化率が膨張となる場合もあり、脱ろうによる寸法変化が無視できないので、脱ろう工程と焼結工程の寸法変化を分けて調査した。

Fig. 2 Effect of lubricants on the change of the height of cylindrical compacts in the process of production.

Powder: Electrolytic iron
Amount of lubricant: 0.7%
Compacting pressure: 6 t/cm² (588 MPa)

軸には各段階での寸法HをH_Gの百分率で表わしている。

Ⅲ-1 スプリングバック

まず、Fig. 2で加圧時(P)から型抜き後(G)までのスプリングバック過程に注目すれば、第1に粉末潤滑剤の種類が変わっても寸法変化挙動にはほとんど差がなく、また、個別データは省略するが、圧粉体の密度も0.02 Mg/m³程度しか変わらない。第2に、粉末潤滑試料では除荷(P→U)による膨張として表わされる除荷スプリングバック率が型壁潤滑のみの場合より大きい。これはすでに前報でステアリン酸亜鉛潤滑試料について認めているが、今回、他の潤滑剤を用いても同じ傾向を見出した。この原因は潤滑剤が粒子相互の金属凝着を妨げて結合力を低下させ⁴⁾、さらに閉じ込められた潤滑剤や空気が除荷によって膨張するためであろう。

Ⅲ-2 脱ろうと焼結

Fig. 2において脱ろう(G→D)による寸法変化を見ると、粉末潤滑試料のうち、とくにステアリン酸カルシウムとステアリン酸マグネシウムを用いたものが大きな膨張を示す。他方、ステアリン酸亜鉛とステアリン酸鉄を用いた試料では、ほとんど寸法変化がない。焼結(D→S)による収縮量は潤滑剤の種類であまり変わらないから、脱ろう時の膨張が焼結後の寸法を左右する。

さて、潤滑剤の種類がスプリングバック率や圧粉密度に大きな影響を与えないにもかかわらず、このように脱ろうによる寸法変化率が著しく異なるのは、潤滑剤の溶融気化時の特性が効いているためと推測される。しかし、

Fig. 3 Relation between the viscosity of each lubricant at 250°C (523 K) and the change of the height of the cylindrical compact in dewaxing.

Powder: Electrolytic iron
Amount of lubricant: 0.7%
Compacting pressure: 6 t/cm² (588 MPa)

Table 1に示す各潤滑剤の融点や蒸発温度と脱ろうによる寸法変化率との関連は見られなかったので、次に粘度をFig. 3で脱ろうによる寸法変化率に対してプロットした。ステアリン酸アルミニウムは均一に溶融しないために粘度の測定が不可能であった。また、Fig. 2で脱ろう時に大きな膨張を示すステアリン酸カルシウムは、アメ状で著しく高粘度のために測定不能であったから、Fig. 3では右上のわく外に相当する。これらの粘度値を寸法変化率と対比して考えれば、数十mPa·s以上で脱ろうによる膨張が激しくなる傾向が認められる。

他方、Fig. 2で異なる傾向を示す3種の潤滑条件について、脱ろう過程における軸方向寸法変化を膨張計で測定したところ、Fig. 4が得られた。この測定では試料形状、したがって成形金型が違い、加熱速度が遅く、かつ測定荷重も加わっているため、寸法変化量の絶対値を他

Fig. 4 Dilatometric curves in dewaxing. Specimens were compacted into the shape of cube, heated at the rate of 10°C/min and measured in the pressing direction under the load of 5 gf (0.049 N).

Powder: Electrolytic iron
Amount of powder lubricant: 0.7%
Compacting pressure: 6 t/cm² (588 MPa)

の図と比較することはできない。しかし、変化の起こる温度に注目してみよう。Fig. 4によれば、ステアリン酸カルシウム潤滑試料が加熱途中で熱膨張とは別に急激な膨張を呈し、その温度約 450°C (723 K) が、同潤滑剤の蒸発温度域 (Table 1) に相当する。また、型壁潤滑試料に比べてステアリン酸亜鉛潤滑試料が大きな膨張を見せ始めるのは約 400°C (673 K) からであり、これも同潤滑

剤の蒸発温度域に相当している。ほかに、これらの潤滑剤の融点にほぼ相当する 200°C (473 K) 以下の低温域で、若干の膨張・収縮が見られるが、寸法変化の大勢は蒸発時に決まるといってよい。

この機構として、鉄粉に混合した潤滑剤が脱ろう過程で気化する際、共存している潤滑剤融液*の粘度が高ければ、外部に通じる空孔がふさがれ、圧粉体内部で発生したガスの圧力が高まり、圧粉体全体としての膨張 (永久変形) を起こすことが考えられる。

III-3 成形圧力の影響

以上のように脱ろう時の潤滑剤による内圧上昇が寸法変化に影響するとすれば、圧粉体の多孔率すなわち密度の影響も、工場生産の際の密度変動と関連するので、調査しておく必要がある。Fig. 5 (a) ~ (c) には、それぞれに特徴的な寸法変化挙動をとる型壁潤滑およびステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム各 $0.7\text{ wt}\%$ 粉末潤滑の場合を選び、成形圧力の影響を示す。同図は縦軸に前掲 Fig. 2 と同様に各工程における寸法を H_G の百分率で取り、各圧力値における圧粉体の密度も併示している。ただし、除荷段階の寸法は繁雑を避けるため省略した。

まず型壁潤滑のみの場合 (a) は、各工程での寸法が成形圧力によってあまり変わらない。

次に、標準的な粉末潤滑剤であるステアリン酸亜鉛混合の場合 (b) は、加圧状態での寸法 (H_P/H_G) が高压側で小さい。すなわち、加圧状態と型抜き後 (H_G/H_G) との差である全スプリングバック率が、前報でも示したように高压側で大きい。この傾向はステアリン酸カルシウム (c) やその他の潤滑剤を用いても同程度に現われるので、粉末潤滑を行なった場合の特徴と思われる。型抜き後と比べて脱ろう後の寸法 (H_D/H_G) はほとんど変わらず、圧力の影響も見られないが、本焼結後の寸法 (H_S/H_G) はかなり収縮しており、その収縮量は型壁潤滑 (a) より大きく、かつ高压側で大きくなっている。

ステアリン酸カルシウムの場合 (c) は、成形圧力 6 t/cm^2 (588 MPa) 以上で脱ろう後の寸法 (H_D/H_G) に非常に大きな膨張が見られる。これは Fig. 2 で指摘したとおりであり、先述のように高粘度の潤滑剤融液が試料表面に通じる空孔をふさぐことによる内圧増大効果が、もともと空孔の少ない高压成形試料で著しく現われるのであろう。すなわち、この場合は工場生産で起こる程度の密度変動 ($\sim 0.2\text{ Mg/m}^3$)⁹⁾ によっても、脱ろう膨張がかなり増減する可能性がある。その後の本焼結による収縮量は比較的小さいため、焼結終了後も膨張が残っている。

以上要するに、ステアリン酸亜鉛は初めに述べたように炉を損傷するので、工業的に必ずしも好ましいもので

* 蒸発温度域には幅があるので、ガスと融液の共存状態があると考えられる。

Fig. 5 Effect of compacting pressure on the change of the height of cylindrical compacts in the process of production.

Powder: Electrolytic iron

はないかも知れないが、寸法精度の見地からは優れたものと言ってよい。他方、ステアリン酸カルシウム潤滑では、圧粉体の密度が変動したときに寸法変化量も変動し、精度低下をもたらすおそれがある。

Ⅲ-4 膨張率と収縮率の対応

前報で脱ろうの影響の少ないステアリン酸亜鉛潤滑の試料について、スプリングバックによる膨張率と焼結による収縮率を対比したように、ここで加圧状態から脱ろう後までの寸法変化（膨張）率と本焼結による寸法変化（収縮）率を対比してみた。いわば、スプリングバックと脱ろうによる膨張量の和と焼結による収縮量との対応関係を見たわけである。試料は各種潤滑剤を0.7 wt%用いて作製し、成形圧力を $2 \sim 8 \text{ t/cm}^2$ ($196 \sim 784 \text{ MPa}$)の範囲で変えた。

結果をFig. 6に示す。添加した潤滑剤の種類による差はあるが、各潤滑剤について見れば、膨張と収縮がほぼ比列関係にあることがわかる。つまり、圧粉体は除荷、型抜きおよび脱ろうの工程で膨張し、それを埋め合わせるように本焼結で収縮する傾向がある。ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウムなどの場合に焼結収縮がある程度以上増加しなくなる原因は、今後の検討を要するが、著しく膨張したために鉄粉粒子間の距離が大きくなり過ぎ、焼結が進み難くなるほか、残滓による焼結妨害の可能性も考えられる。なお、型壁潤滑の場合には寸法変化が小さく、すべて左上の点線内の値を取るから、一般の傾向は見出し難い。

Ⅲ-5 原料粉および潤滑剤の添加方法の影響

本実験では電解鉄粉を原料として潤滑剤は湿式で混合したが、工業的には還元鉄粉や噴霧鉄粉が多く用いられ、乾式混合が普通である。そこで、原料粉末の種類とステアリン酸亜鉛の混合方法が寸法変化に及ぼす影響も調べた。結果をFig. 6と同様な膨張対収縮の形でFig. 7に

Fig. 6 Relation between the dimensional change from pressed stage to dewaxed stage and that by sintering, in height of cylindrical compacts pressed with various lubricants.

Powder: Electrolytic iron
Amount of lubricant: 0.7%
Compacting pressure: $2 \sim 8 \text{ t/cm}^2$ ($196 \sim 784 \text{ MPa}$)

Fig. 7 Relation between the dimensional change from pressed stage to dewaxed stage and that by sintering, in height of cylindrical iron compacts pressed under $2 \sim 8 \text{ t/cm}^2$ ($196 \sim 784 \text{ MPa}$) using various powders and mixing processes.
Lubricant: 0.7% Zinc stearate

示す。同図にはFig. 6のステアリン酸亜鉛の曲線（電解鉄粉/湿式混合）も併記しているが、還元鉄粉や噴霧鉄粉に湿式混合した場合、あるいは電解鉄粉に播潰機やV型混合機で乾式混合した場合、いずれの曲線も互いにかなり近い位置を占める。すなわち、鉄圧粉体では膨張と収縮の対応が一般的に成立すると考えてよさそうである。

Ⅳ 結 言

鉄粉に各種潤滑剤を混合し、成形・脱ろう・焼結の各工程後の加圧方向の寸法変化を調べたところ、脱ろう時に大きく膨張することがあり、かつ、膨張量は、溶融時の粘度の高い潤滑剤を用いて高圧で成形した場合に大となった。また、スプリングバックと脱ろう工程の膨張との和に比例して焼結収縮を生じる傾向があるが、膨張が過大であれば、焼結収縮が頭打ちになることがあった。

終りに、潤滑剤融液の粘度を測定して下さった三菱レイヨン中央研究所の山森久嘉氏をはじめとする各位、卒業研究の一環として協力された高村直己（現鈴木自工）、脇田修（現テルモ）両氏、および有益な助言をくださった広島大学工学部機械系の片島三朗教授に厚く感謝致します。

文 献

- 黒木：粉体および粉末冶金，**27** (1980)，213.
- 内藤，田端：金属粉の成形・粉末冶金技術講座 4，日刊工業新聞社 (1964)，37.
- 菊地：油脂化学製品便覧，日刊工業新聞社 (1963)，625.
- E. Klar and W. M. Shafer: International Journal of Powder Metallurgy, **5** (1969), No. 2, P. 5.
- H. G. Taylor: *Höganäs Iron Powder Handbook*, D-30, P. 19.