アルミナ顆粒粉の加圧流動成形

高橋 清造^{☆1}, 金井 浩^{☆1}, 中川 威雄^{☆2}^{☆1} 日本大学生産工学部, 〒275 習志野市泉町1-2-1.^{☆2} 東京大学生産技術研究所, 〒106 港区六本木7-22-1.

Press Powder Flow Compaction of Alumina Granule

Seizo Takahashi^{☆1}, Hiroshi Kanai^{☆1} and Takeo Nakagawa^{☆2}^{☆1} Col. Ind. Tech., Nihon University, 1-2-1 Izumi-cho, Narashino 275.^{☆2} Inst. Ind. Sci., University of Tokyo, 7-22-1 Roppongi Minato-ku, Tokyo 106.

Received January 11, 1993

Deep cup shaped compact were formed by a uniaxial hydraulic press from alumina granule granulated with small amount of resin binder PVA (Polyvinyl Alcohol) after admixing liquid paraffin. This granule could be automatically filled into a die cavity. In the case of green compact formed from granule with the sufficient flowability, the densified powder flowed from the bottom to the cup wall during compaction, and the difference in partial density of green compact could be reduced. This is caused by reason that liquid paraffin affects the lubrication between powders during compaction. When the difference in partial density of green compact was small, the diameter of sintered compact along the bottom to cup wall was shrinked uniformly from green compact.

1 はじめに

セラミックスの優れた耐熱性, 高強度, 電気絶縁性を活用した機械部品としての用途は増加しつつある。セラミックス部品の製造方法は粉末冶金法が唯一の方法であり, 粉末射出成形を含めて, 各種の成形方法が行われている。セラミックス粉末の成形法のうち乾式プレス成形法は従来から広く行われており, 樹脂バイндаによって造粒されたセラミックス粉末の顆粒粉を金型プレス成形している。成形に際し成形体が発生する欠陥や焼結時に起る欠陥の多くは, 成形時の顆粒粉

間および顆粒粉と金型との間の摩擦にともなう顆粒粉の流動・移動が不十分であることに起因する。もし成形中の顆粒粉が金型内において流動できたならば, 成形体内部の密度分布は減少し, 焼結時に発生する欠陥の多くは解消でき, 成形できる成形体の形状は従来の乾式プレス成形法より大きく拡大できる。

加圧流動成形法は著者の一人である中川らが開発した成形法であり^{1)~4)}, 乾式プレス成形法と同様に自動給粉のできる顆粒粉を成形する。本成形法の特徴は少量の樹脂バイндаで造粒された顆粒粉に液状バイ

ダを添加混合した顆粒粉を乾式法にて単軸プレス成形する。成形時の顆粒粉は添加された液状バインダの潤滑効果により粉末間の摩擦および粉末と金型の摩擦が減少し、成形途中の顆粒粉は成形体内の高密度部から低密度部へ流動し、成形体内部の密度差が少なく、かつ得られた成形体は高密度である。

本報は酸化物系セラミックスのアルミナ顆粒粉を加圧流動成形実験し、焼結体の寸法収縮について検討した結果について報告する。生粉末は粉碎された微粉末であり焼結性が優れていることを考慮し、成形体の高密度化よりは本成形法による成形体内部の密度分布の均一化を目的に成形実験を行い、得られた成形体は焼結し、収縮後の焼結体の直径を評価した。

2 実験方法

Fig.1 に本成形法の概略を示す。成形に使用した供試粉末は PVA (ポリビニルアルコール) によって造粒された顆粒粉であり、平均粒径は約 $100\mu\text{m}$ (Table 1) となっている。顆粒粉は液状バインダとして流動パラフィンを最大 10wt% まで添加後に成形した。成形は単軸の油圧プレスを使用し、12gf の顆粒粉を成形圧: 98 MPa~294MPa にて 10sec 間保持するフローティングダイ法とした。金型の潤滑はステアリン酸亜鉛アルコール溶液を塗付した。成形体は Fig.2 に示した薄肉カップであり、カップ壁の肉厚は 3mm となっている。成形体の評価は外観の観察、成形体全体の密度測定、成形体

をカップ底とカップ壁とに切断分割後の各部の密度測定による成形体内部の密度差について行った。脱バインダは 350°C で 2hr 保持する加熱分解法であり、焼結は 1480°C の 3hr 保持とした。

3 実験結果および考察

3.1 成形体内の密度分布

Table 2 は各成形圧について流動パラフィンの添加量を変化させて得られた成形体の外観を観察した結果を示す。流動パラフィンの添加量が多く、成形圧が高い場合には成形体から流動パラフィンのしみ出しが起る。Fig.3 は成形体全体の密度と流動パラフィン添加量との関係を示す。各成形圧について流動パラフィンの添加にともなう成形体密度の上昇が認められ、成形圧が 196MPa では流動パラフィンの添加量が 7.5wt% の場合に最高密度の成形体を得られた。成形圧が 196MPa, 294MPa で流動パラフィン添加量が 10wt% の場合、成形体の密度が低下するのは、後述する成形体内の気孔率 (Fig.12) はほぼ 0 となり、添加された流動パラフィンは成形体の密度上昇を抑制するためであると考えられる。

Table 2 Evaluation to formability and defect of green compact by changing in compacting pressure and content of liquid paraffin.

Compacting pressure (MPa)	Content of liquid paraffin (wt%)				
	0	2.5	5.0	7.5	10.0
98	◎	◎	◎	◎	◎*
196	◎	◎	◎	◎	△*
294	◎	◎	◎	◎*	◎*

◎: Good green compact formed

△: Cracking on cup wall

*: Exuding liquid paraffin from green compact

Table 1 Particle size distributions of alumina granule with 3wt% PVA.

Size distribution ($\mu\text{m}/\text{wt}\%$), Mean: $100\mu\text{m}$					
+212	212/150	150/106	106/75	75/53	-53
0	10.8	32.0	32.8	12.5	11.9

Fig.1 Process diagram of Press Powder Flow Compaction from alumina powder.

Fig.2 Dimension of formed green compact. (mm)

成形体内の密度分布を検討するため、得られた成形体をカップ底とカップ壁とに切断分割し、カップ底とカップ壁の密度を測定した結果はFig.4~Fig.6に示す。成形圧が98MPaの場合 (Fig.4), 流動パラフィンの添加にともないカップ底の密度は上昇するが、流動パラフィンの添加量が10wt%では低下する。カップ壁の密度は流動パラフィンの添加にともない上昇し、とくに流動パラフィンの添加量が10wt%において急上昇を示す。その結果、カップ底とカップ壁の密度差は著しく減少した。成形圧が196MPa, 294MPaの場合 (Fig.5, Fig.6), 流動パラフィンの添加量に対するカップ底およびカップ壁の密度はある量の流動パラフィン添加

において最大値となった。実験結果から流動パラフィン添加量が7.5wt%, 10wt%で成形体内の密度差は減少することが分かった。

3.2 粉末の流動性

成形途中の粉末の流動性を検討するために成形体内の密度分布と成形圧との関係を示すとFig.7~Fig.9になった。流動パラフィンの添加なし、添加量が7.5wt%および10wt%の結果である。Fig.7に示した流動パラフィンの添加がない場合には、成形圧が高い294MPaにおいてもカップ底とカップ壁との密度差は減少しない。Fig.9に示した流動パラフィン添加量が10wt%では、

Fig.3 Relation between green density and content of liquid paraffin.

Fig.5 Relation between partial density of green compact and content of liquid paraffin. (Compacting pressure: 196MPa)

Fig.4 Relation between partial density of green compact and content of liquid paraffin. (Compacting pressure: 98MPa)

Fig.6 Relation between partial density of green compact and content of liquid paraffin. (Compacting pressure: 294MPa)

各成形圧において成形体内の密度差は著しく少ない。流動パラフィンの添加量が7.5wt%の結果はFig.8に示し、成形体内の密度差は成形圧が196MPa以上では少ない。

そこで縦座標は成形体の部分密度とし、横座標は成形体のカップ底の厚さをとって図示したFig.10から粉末の流動性を考察した。カップ底の厚さは成形圧と負の比例関係があり、成形圧が高いほどカップ底は薄くなる。流動パラフィンの添加量が7.5wt%の場合、カップ底の厚さは成形圧：98MPaの5.4mmから、成形圧が上昇して196MPaとなったときの3.8mmとなり、カップ底

の密度変化は無視できるほど小さい (Fig.8) ことから、カップ底の粉末の約30wt%はカップ壁に流動したことが分かった。本実験の範囲内では、成形圧の上昇 (98MPaから196MPaに上昇) にともなう粉末の流動は流動パラフィンの添加量が7.5wt%の場合に最大であった。また成形中における粉末の流動性を調査することを目的に、成形実験に使用した金型で顆粒粉の圧粉試験を行った。流動パラフィンの添加量を変えてオートグラフによって測定したパンチストローク (圧粉速度：1mm/min) と圧粉圧力の線図をFig.11に示す。流動パラフィンの添加なしと比較して、添加量が7.5wt%，

Fig.7 Relation between partial density of green compact and compacting pressure. (Liquid paraffin: 0)

Fig.9 Relation between partial density of green compact and compacting pressure. (Liquid paraffin: 10wt%)

Fig.8 Relation between partial density of green compact and compacting pressure. (Liquid paraffin: 7.5wt%)

Fig.10 Relation between partial density of green compact and thickness of cup bottom by changing in content of liquid paraffin.

10wt%の線図は圧粉の途中において変曲点が認められ、パンチストロークに対する圧粉圧力の上昇が一時的に停滞する。変曲点での圧粉圧力は流動パラフィンの添加量が7.5wt%では110MPa, 10wt%では70MPaとなり、圧粉途中のこの変曲点で粉末の流動が始まったと考えられる。

つぎに流動パラフィンの添加量の増大にともなうバインダの体積率を計算するとTable 3 となった。総バインダ量 (vol%) は流動パラフィンの添加量が 10wt%では多量となる。しかし総バインダ量の約75%は脱バインダの容易な流動パラフィンである。また成形体内の気孔率を成形体の密度から計算により求め、成形体の密度との関係を示すとFig.11になる。流動パラフィンの添加量、成形圧の上昇とともに気孔率は減少し、Table 3 に示した流動パラフィンの体積率が気孔率の減少量とほぼ対応している。とくに成形体内の密度差が著しく少なく、成形体から流動パラフィンのしみ出しが起る、流動パラフィン添加量が 10wt%の各成形圧での成形体および流動パラフィン添加量が7.5wt%の成形圧: 294MPaでの成形体では気孔率がほぼ0となった。成形体内の密度差が少ない成形体は気孔率も少ないことが分かった。このことは添加された流動パラフィンは成形時の粉末の流動に寄与し、成形後は粉末間の気孔にほぼ充満していることを示している。すなわち、成形体の気孔を埋める程度の流動パラフィン量が添加された場合に成形体内の密度差が少ない成形体を得たことを示している。

Fig.11 Diagram of compacting pressure—punch stroke by changing in content of liquid paraffin.

3.3 焼結体の寸法精度

成形体を脱バインダ後に焼結し、成形体と焼結体の外観写真を Photo.1に示す。焼結された成形体は寸法が収縮し、焼結体の形状は流動パラフィンの添加の有無によって特徴を持っている。流動パラフィンの添加なしではカップの高さは大きく、カップの上縁部は他の部分と比較して寸法の収縮が大きい。流動パラフィンの添加量が 7.5wt%, 10wt%では焼結にともなう寸法の収縮はほぼ等しく見える。焼結体の密度はFig.13に示し、相対密度は約90%となった。

つぎに、高さ方向に焼結体の直径を測定した結果は Fig.14, Fig.15に示す。測定はカップの底からカップの上縁までを4等分して行った。流動パラフィンの添加量を変化させたFig.14の場合には、Photo.1で示したように流動パラフィンの添加量が 7.5wt%, 10wt%で

Table 3 Binder volume ratio of alumina granule with 3wt% PVA and added liquid paraffin.

	Liquid paraffin (wt%/vol%)				
	0	2.5	5.0	7.5	10.0
Liquid paraffin	0	8.6	16.1	22.9	28.9
PVA and others	13.0	11.9	10.9	10.0	9.2
Total binder	13.0	20.5	27.0	32.9	38.1

PVA: $\rho=1$, Liquid paraffin: $\rho=0.9$

Fig.12 Relation between porosity of green compact and green density by changing in content of liquid paraffin and compacting pressure.

Photo.1 External appearance of green compact and sintered compact by changing in content of liquid paraffin.
(Compacting pressure: 196MPa, Sintering: 1480°C*3hr)

Fig.13 Relation between density of sintered compact and compacting pressure by changing in content of liquid paraffin.
(Sintering: 1480°C*3hr)

は、直径の相違は少ない。しかし流動パラフィンの添加がない焼結体ではカップ底の直径が太く、カップ上縁は細い。また流動パラフィンの添加量が7.5wt%の場合と10wt%の場合を比較すると、流動パラフィンの添加量が10wt%において直径は細い。これは焼結体の密度が流動パラフィンの添加量に関係しないこと (Fig. 13)、成形体の密度が流動パラフィンの添加量7.5wt%で大きい結果 (Fig.5) による。本成形法の特徴である成形体内の密度分布が少ないことは、結果として焼結体各部の寸法収縮を等しくし、焼結体の寸法精度を向上させた。

4 おわりに

アルミナ顆粒粉から加圧流動成形法によって薄肉力カップを成形し、成形体内の密度分布から成形中の粉末流動を検討した。さらに成形体内の密度分布と焼結体

Fig.14 Diameter of sintered compact by changing in content of liquid paraffin.
(Compacting pressure: 196MPa, Sintering: 1480°C*3hr)

の寸法収縮を考察して以下の結果を得た。

- 1) 流動パラフィンを添加したアルミナ顆粒粉の加圧流動成形による成形体の密度は上昇した。
- 2) 成形体のカップ壁密度は成形圧の上昇および流動パラフィンの適量添加によって急上昇し、密度上昇の少ないカップ底の密度との差は減少した。
- 3) 流動パラフィンの添加量が7.5wt%、成形圧を196MPaとした成形体は流動パラフィンのしみ出しなしで成形体内の密度差が著しく少ない。
- 4) 密度分布の少ない成形体は焼結時の寸法収縮が均一となり、焼結体の寸法精度が向上した。

謝 辞

本研究を行うにあたりアルミナ顆粒粉を提供戴いた高木産業㈱の関係各位に深謝いたします。また東大生研中川研究室の安斎正博博士および野口裕之技官から適宜助言を戴いたことに感謝します。本研究は天田金属加工機械技術振興財団の研究開発助成を受けたことを記し深謝致します。

文 献

- 1) 高橋清造, 中川威雄: 粉体および粉末冶金, 38 (1991) 804.
- 2) 高橋清造, 中川威雄: 粉体および粉末冶金, 39 (1992) 10.
- 3) 高橋清造, 中川威雄: 粉体粉末冶金協会平成3年度秋季大会概要集, 228.
- 4) 高橋清造, 中川威雄: 平成4年度塑性加工春季講演論文集, 259.