

セラミックスのグリーン状態での接合法の開発と複合形態賦与への応用

徳島大学 工学部 機械工学科

教授 佐藤 倂介

(平成10年度 研究開発助成 AF-98005)

キーワード: セラミックス, グリーン体, 接合

1. 研究の背景と目的

セラミックスはその優れた特性から多方面での実用化が期待されているが、現状では加工コストが高く、経済的観点から、また、複合構造体の一体化技術がないため多様なニーズに応じられないことなどから、その利用は限られたものとなっている。

このような現状をふまえ、非可塑性粉体のフレキシビリティに富んだニヤネットシェイプ成形を目的とし、粉体と低融点ワックス混合体を用いた成形法と繊維吸収体を用いた脱脂法とを組み合わせた成形・加工法を提案し、多くの成果を得た。

本研究では加工のフレキシビリティをさらに増すため、成形体をグリーン状態で押出し、その後押し出されたグリーン体を溶融接合することにより複合構造体を成形する加工法を提案する。

2. 同種セラミックスの接合

セラミックスの複雑な形状の製造には一般に焼結後研削加工が行われる。しかしセラミックスは高硬度のためダイヤモンド工具での研削加工になり加工速度および加工コストの低減には限度がある。また多量生産には射出成形がしばしば用いられるが、加工できる製品には制限があり、しかも多種少量生産には不向きである。そこで比較的単純な形状のセラミック部品を接合し、複雑形状の成形体を成形する技術が望まれる。

真崎ら[1]はアルミナのディスク形圧粉体とリング形圧粉体のグリーン密度を変え、焼結時の収縮差を利用してディスクとリングとの接合を検討している。ここではワックス系スラリーを用いた成形法の一環としてアルミナグリーン体をグリーン状態で接合する成形法を検討する。

2.1 粉体

アルミナ粉体は、市販の AES-11 と AES-23 (住友化学) を用いた。AES-11 は $0.3\mu\text{m}$ にピークを持つモノモーダルな粒度ピークを持つ粉体である。一方 AES-23 は $0.28\mu\text{m}$ 及び $1.4\mu\text{m}$ にピークを持つバイモーダルな粒度を持つ粉体である。

2.2 ワックス

パラフィンワックス 75wt%とマイクロラインワックス 25wt%を混合した混合ワックスをメインワックスとし、使用したワックス組成はオレインオリゴマー5wt%、ステアリン酸 0.2wt%、残りをメインワックスとした。

2.3 試験片の作成

吸収脱脂法の詳細は文献[2-4]に示している。アルミナ粉体と低融点ワックスを適量混合し、低温加熱しスラリー状態とする。このスラリーから直径 50mm、厚さ 20mm の円板状グリーン体を作成し、適当なワックス量まで第1ステージの脱脂を行う。その後、脱脂した円板状のグリーン体を3枚重ね積層ピレットとして 320K の温水中で直径 8mm に押出す。この押出し材に対し接合を行い、その後第2ステージの脱脂を行い、引き続き 1923K、1h で焼結を行った。

2.4 実験結果および考察

a) 母材

母材を決めるため表1に示す3種類の粉体について吸収脱脂法を用い焼結体を作成し、それぞれの曲げ強度を求めた。

表 1. 粉体の混合割合

Symbol	AES11/wt%	AES23/wt%
M1	100	0
M2	25	75
M3	0	100

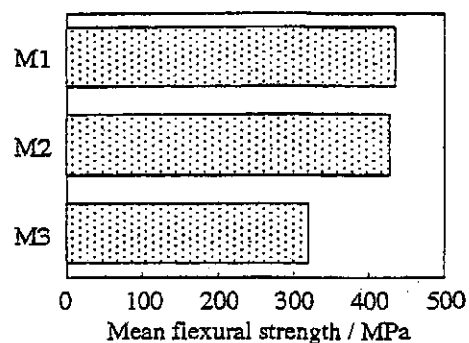


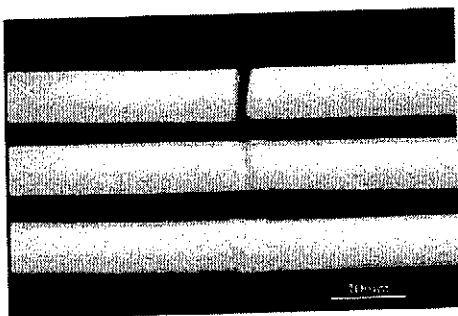
図 1 曲げ強度の比較

その結果を図1に示す。なお、曲げ試験はスパン30mm、クロスヘッド速度1mm/minで試験した。また試験に際し焼結体の表面加工は行わない。

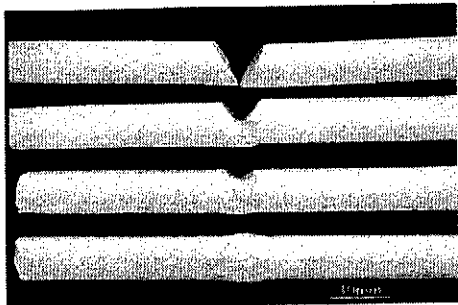
M1が最も高い曲げ強度になるが、M1は微粒であるため脱脂が困難である。AES-23に少量のAES-11を加えたM2はM1に近い高い強度が得られ、脱脂も粗粒を含むため容易であるのでM2を接合母材として用いることにした。

b) 接合法

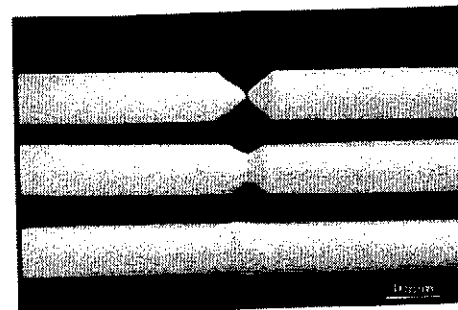
接合部の開先形状はI形、V形およびX形の3種類とした。接合状況を図2に示す。接合後、接合部の余分の部分をキシレンを用い取り除いた。キシレンで余分な部分を取り除いた様子を図3に示す。また焼結後の様子を図4に示す。



(a)



(b)



(c)

図2 接合の様子

(a) I開先 (b) V開先 (c) X開先

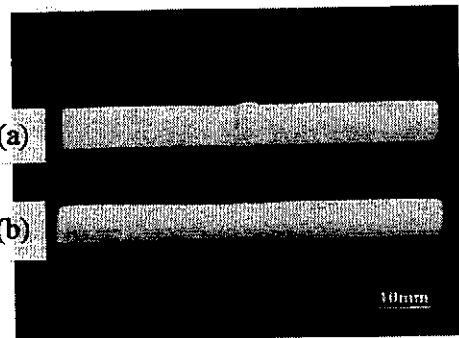


図3 キシレンによる接合部の修正

(a) 接合試験片, (b) キシレンによる修正した試験片

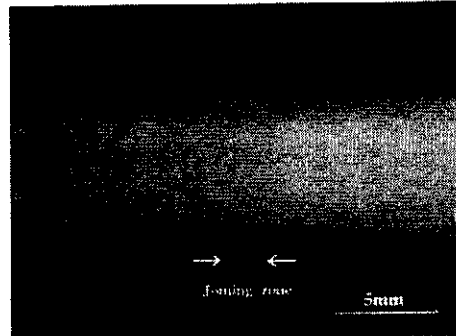


図4 修正後の焼結体

c) 接合体の曲げ強度

接合体と母材との平均曲げ強度の比較を図5に示す。接合体の焼結後の曲げ強度はいずれの開先形状に対しても母材強度の60%以上の強度を得ることが出来た。開先形状による影響は少ないが、X開先の場合が強度のばらつきが最も少ない。X開先に対する母材、接合材および接合・脱脂後、CIPを行った後焼結した試験片の曲げ強度の比較を図6に示す。

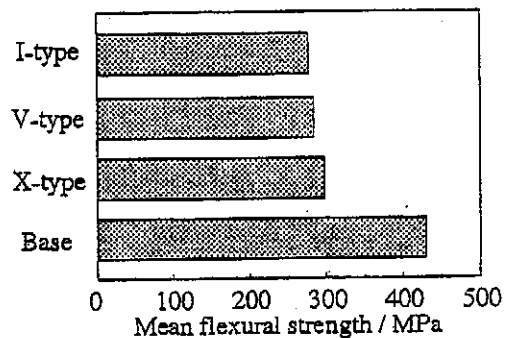


図5 曲げ強度の比較

2.5 接合による製品例

本接合法を用い接合後、焼結した例を図7に示す。

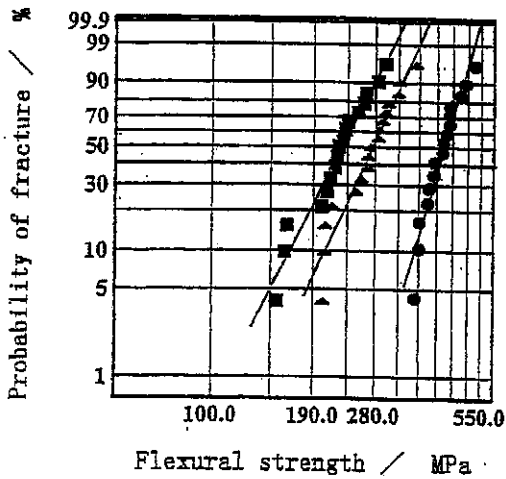


図 6 曲げ強度のワイブルプロット

● 母材 ▲ Xタイプ (CIP) ■ Xタイプ

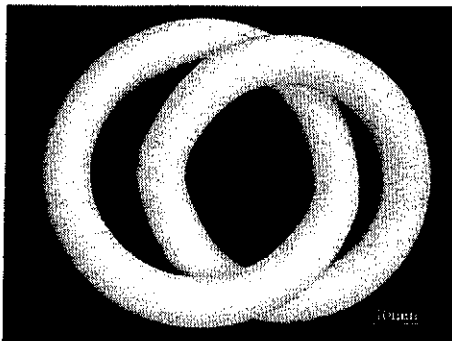
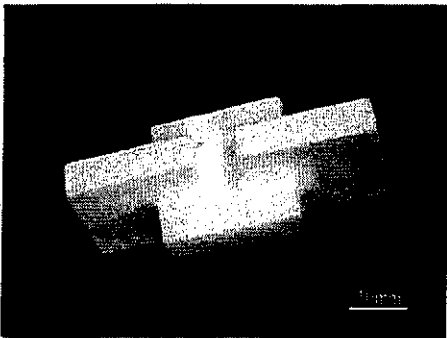
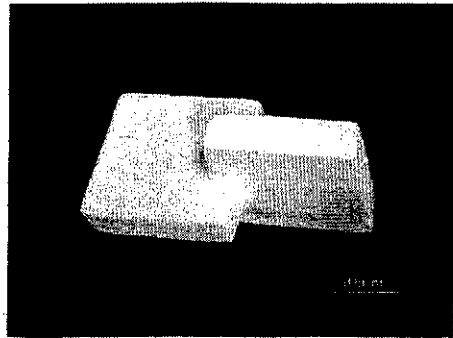


図 7 接合焼結体の例

3 異種材の接合

異種材の接合が出来れば、その利便性は非常に高くなる。ここではアルミナと生体セラミックスとして注目されているハイドロキシアパタイトとの接合について検討する。

3.1 粉体

異種材をグリーン状態で接合後、焼結体を作るためには、それぞれの焼結温度が同じであることが必要である。ここで用いたアルミナ粉体は、 $0.22\mu\text{m}$ にピークを持つ、超微粒子高純度アルミナ TM-DR (大明化学工業) である。一方、アパタイトは TM-DR とほぼ同じ焼結温度である粗粒の 200N (平均粒径 $20\mu\text{m}$) (太平化学産業) である。

3.2 ワックス

同種材の接合において用いたのと同じ組成のワックスを用いた。

3.3 試験片の作成

2. 3で用いたのと同じである。

3.4 実験結果および考察

TM-DR と 200N の脱脂時および各焼結温度での線収縮を図 8 に示す。TM-DR と 200N とは脱脂および焼結過程を通

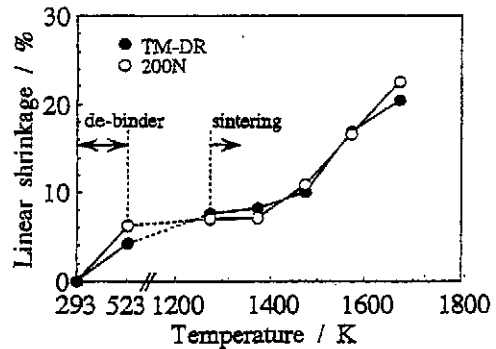


図 8 脱脂及び焼結過程における線収縮率

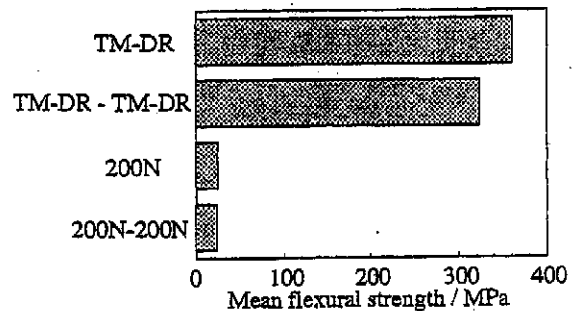


図 9 同種材の接合強度

じ線収縮にはほとんど差がない。まずTM-DRと200Nをそれぞれ同種同士で接合した。焼結後の曲げ強度を図9に示す。同種同士の接合材の曲げ強度はそれぞれの母材の曲げ強度の90%程度の高い強度が得られた。

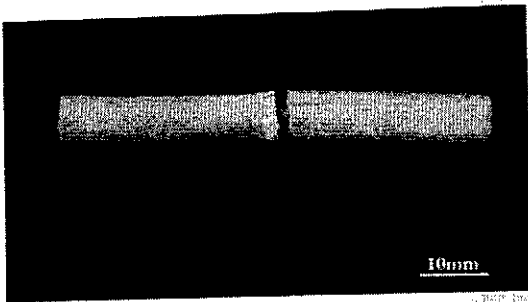


図10 TM-DRと200Nとの直接接合の脱脂時の破壊例

一方、TM-DRと200Nとの直接接合を試みたが第2ステージの脱脂後接合部から割れが生じ接合出来なかった。図10に脱脂後割れが生じた試験片の様子を示す。互いに反応しないアルミナとアパタイトを直接接合する事が出来ないので、それぞれの粉末を混合し傾斜的に接合出来るかどうか検討した。TM-DRと200Nとを混合したときの混合割合に対する

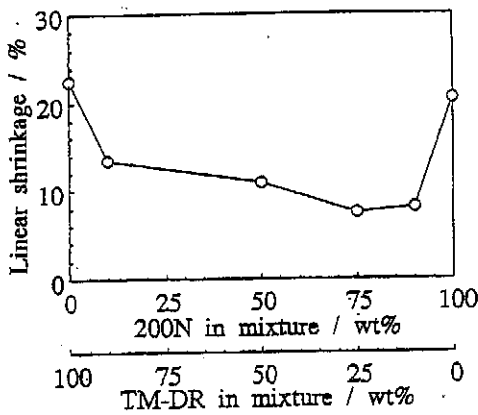


図11 TM-DRと200Nとの混合割合と焼結時の線収縮率の変化

焼結時の線収縮および曲げ強度の変化を図11および図12に示す。反応しない他の粉末が混合される事により焼結性が急激に阻害され、緻密化が起こりにくくなる。表2にここで用いた粉末の混合割合とそれに対するシンボルを示す。表2のシンボルを用い、W1とW3との接合をW1-3のように示す。図13にW1-3接合体の焼結後の様子を示す。図10から明らかのように混合材の場合、収縮量が減少するので図13において左右で試験片の太さが異なる。しかし焼結後も接合部での割れはなくきれいに接合出来た。接合材の曲げ強度を図14に示す。曲げ強度は強度の低い側に支配されるが、W1-3ではW3の強度の85%程度の強度が得られた。図15にW1-3の接合部のEPMAの分析結果を示す。接合部でアルミニウム量が

急に変化している様子が分かる。

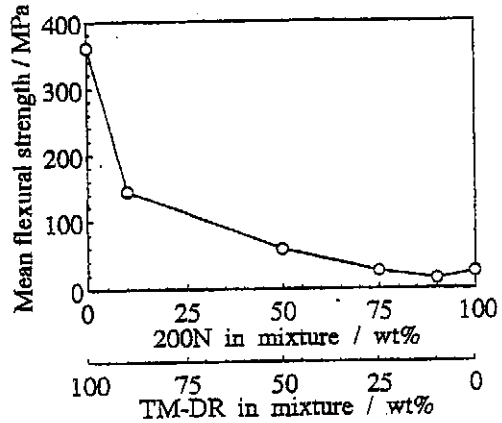


図12 TM-DRと200Nとの混合割合と焼結体の曲げ強度の変化

表2. 粉末の混合割合とシンボル

Symbol	TM-DR/wt%	200N/wt%
W1	100	0
W2	90	10
W3	50	50
W4	25	75
W5	10	90
W6	0	100

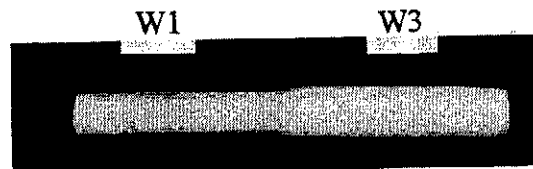


図13 W1-3の焼結後の様子

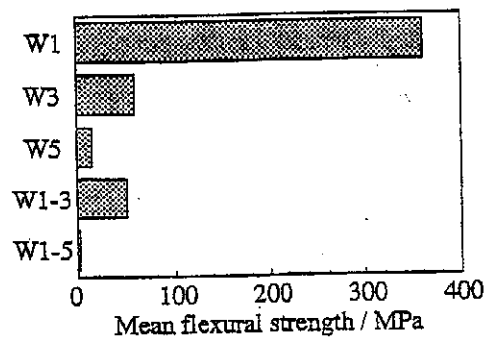


図14 接合体の曲げ強度の比較

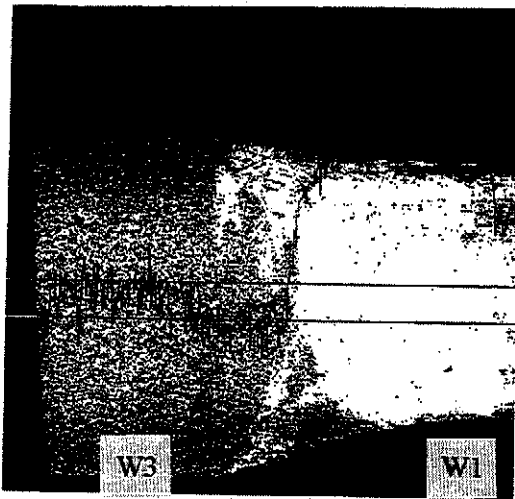


図 15 W1-3 接合部の EPMA 分析結果
(Al の分析)

一方、200N が 100wt% である w6 に対し接合した例として W4-6 の焼結体を図 16 に示す。焼結体は図に示すように出来たが、曲げ強度は非常に低くなった。

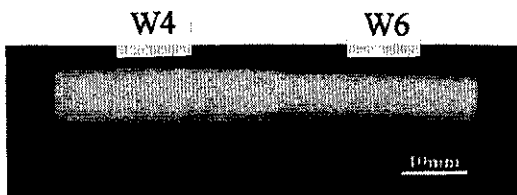


図 16 W4-6 の焼結後の様子

4. まとめ

セラミックスのグリーン状態での接合について検討し次のような結果を得た。

- 1) 同種セラミックスの場合、容易に接合する事が可能である。
- 2) 接合後の焼結体の曲げ強度は母材強度の 60% 以上の強度を得ることができた。
- 3) 焼結性の良い、TM-DR の場合には、母材強度の 90% 近い強度が得られた。
- 4) 接合を用いることにより、一般の加工では加工困難な形状が安価に加工できることがわかった。
- 5) 互いに反応しない異種同士の接合は脱脂段階で破壊が生じ接合できなかった。
- 6) 異種粉末を混合すると、焼結性が阻害され、焼結時の線収縮率が減少するとともに、曲げ強度が急激に低下する。
- 7) 異種材を混合することにより、傾斜的に接合することは可能であるが、強度は低くなる。

参考文献

- 1) 真崎他, 塑性と加工, 36-418(1995) 1331-1336.
- 2) Sato T. et al, J.Mater.Process.Technol., 73(1998) 226-233.
- 3) Sato T. et al, J.Mater.Process.Technol., 79(1998) 125-132.
- 4) Besshi T, et al, J.Mater.Process.Technol., 100(2000) 47-52.