

УДК 621.744

**В. В. Ивженко, И. П. Фесенко, Н. В. Новиков,
Т. А. Прихна, В. А. Попов, Г. Ф. Сарнавская** (г. Киев)

Исследование влияния параметров инжекционного литья на физико- механические свойства керамики на основе нитрида алюминия

Представлены результаты исследования инжекционного литья термопластичных масс на основе нитрида алюминия и парафина. Изучено влияние параметров литья на физико-механические свойства материалов на основе нитрида алюминия с добавкой оксида иттрия. Методом инжекционного формования получен плотный материал с трещиностойкостью $3,0\text{--}3,1 \text{ МПа}\cdot\text{м}^{1/2}$ и пределом прочности при изгибе $280\text{--}320 \text{ МПа}$. Показано, что уровень физико-механических свойств керамики на основе AlN, полученной по технологии инжекционного формования, зависит от соотношения основных параметров процесса литья: давления, температуры и вязкости термопластичной массы.

Ключевые слова: нитрид алюминия, инжекционное формование, термопластичное связующее, плотность, предел прочности при изгибе, трещиностойкость.

Введение. Изделия из материалов на основе нитрида алюминия широко используют в приборостроении, электронной технике, металлургии, машиностроении благодаря уникальному сочетанию физико-механических свойств AlN (высокие жаропрочность, износостойкость, теплопроводность, диэлектрические характеристики).

Получение изделий сложной формы из нитрида алюминия наиболее перспективно с использованием технологии инжекционного формования (ИФ). Метод ИФ заключается в формировании монолитного изделия определенной формы из порошковых смесей и состоит из пяти этапов [1—3]: подготовка порошков необходимых гранулометрического состава и морфологии частиц; получение гомогенных смесей порошков с пластифицирующими веществами; выдавливание через инжектор пластифицированной порошковой массы в пресс-форму, рабочая полость которой соответствует конфигурации формуемого изделия; удаление пластификатора; уплотнение заготовок при температурах спекания порошков.

Целью настоящей работы было исследование влияния параметров инжекционного литья на физико-механические свойства керамики на основе нитрида алюминия.

Методика эксперимента. В работе использовали порошок AlN (Донецкий завод химических реактивов, Украина), синтезированный прямым азотированием алюминиевого порошка в среде азота, содержащий в % (по массе): Al — 65,1; N — 33,3; O — 0,5; C — 0,73; Fe — 0,02; Si — 0,006; Ni — 0,03. Частицы AlN слабофрагментированы с азимутальным разориентированием фрагментов (рис. 1), удельная поверхность порошка AlN — $2,0 \text{ м}^2/\text{г}$. В каче-

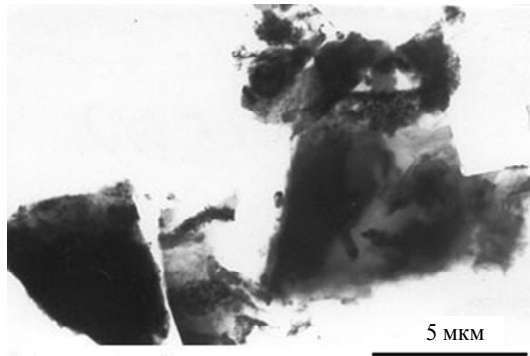


Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение частиц порошка AlN.

стве активатора спекания использовали оксид иттрия марки ИТО-Н производства Киргизского горно-обогатительного комбината. Для получения дисперсных систем из исходных порошков применяли планетарный активатор МПФ-1 (“Гефест”, Санкт-Петербург, Россия) со стальными барабанами объемом 1 л и стальными шарами. Порошок AlN размалывали в течение 4 мин, после чего в него вводили 5 % (по

массе) порошка Y_2O_3 и смешивали в течение 3 мин. Средний размер частиц полученной шихты составлял 1,2 мкм, удельная поверхность — $4,2 \text{ м}^2/\text{г}$.

В работе использовали термопластификатор на основе парафина и воска. Соотношение компонентов составляло, % (по массе): 94 парафина, 6 пчелиного воска. Подготовку термопластичных масс выполняли на трехскоростном смесительном устройстве объемом 2 л установки для горячего шликерного литья [4]. Исследовали термопластичные массы с различной концентрацией связующего — 32,4 и 34,4 % (по объему), при этом их вязкость при температуре 65 °С составляла, соответственно, 26 и 20 Па·с. Изучение процесса инжекционного литья при давлении 2—9,5 МПа проводили на установке для инжекционного литья термопластичных масс, имеющей систему вакуумирования рабочего объема [5]. Эксперименты при давлении 0,5 МПа проводили на установке для шликерного литья. Инжекционное литье осуществляли путем заполнения металлической пресс-формы термопластичной массой, разогретой до заданной температуры, и выдержки под давлением на протяжении времени необходимого для охлаждения массы в форме. В работе использовали формы для получения изделий размером $32 \times 45 \times 6,3 \text{ мм}$ (объем $9,1 \text{ см}^3$) и $6 \times 6 \times 40 \text{ мм}$ (объем $1,4 \text{ см}^3$). Время выдержки под давлением после инжектирования массы в пресс-форму было определено на основании ранее проведенных исследований [6] и составляло 8—10 с. При исследовании процесса оценивали изделия на наличие таких типичных для технологии горячего шликерного литья дефектов, как недолив и неслитины [2]. Недолив — это дефект, вызванный отвердением литейной системы до полного заполнения объема формы, неслитины — результат неполноценного слияния нескольких потоков шликера из-за их сильного охлаждения и затвердения поверхностных слоев вещества литейной системы.

Отгонку связующего из образцов термопластичных материалов осуществляли в вакуумных шкафах СНВС-4,5 в засыпке из оксида алюминия. Полученные порошковые заготовки спекали в печи ЭСШВ-1.2,5/22 И1 с вольфрамовым нагревателем в среде азота под давлением 0,12 МПа в специальной засыпке при температуре 1800 °С и выдержке 60 мин.

Плотность и пористость материалов определяли по методике, регламентированной ГОСТ 20018—74. Определение характеристик прочности термопластичных материалов проводили на универсальной испытательной машине UTS-100, а спеченных материалов — на универсальной испытательной машине Р5 методом трехточечного изгиба на призматических образцах размером $5 \times 5 \times 35 \text{ мм}$ при расстоянии между опорами 30 мм. Скорость нагружения

составляла $6,5 \cdot 10^{-5}$ м/с. Трещиностойкость керамических образцов определяли по методу Эванса и Чарльза [7].

Результаты и обсуждение. При проведении экспериментов установлено, что при температуре в рабочем цилиндре ниже 60°C и исследуемых давлениях формования ($0,5\text{--}9,5$ МПа) инжектирования термопластичной массы в пресс-форму не происходит. При температурах выше 82°C наблюдается значительное вспучивание термопластичной массы в питателе установки. Поэтому исследования проводили в интервале температур $60\text{--}82^\circ\text{C}$. В таблице приведены результаты исследования влияния температуры, давления формования при инъекционном литье на характер дефектов в модельных образцах из термопластичных материалов на основе порошка нитрида алюминия и парафина с концентрацией связующего 34,4 и 32,4 % (по объему).

Влияние режимов инъекционного литья и характеристик термопластичных масс на характер дефектов в модельных образцах из термопластичных материалов на основе порошка нитрида алюминия и парафина

Состав	Характеристика термопластичной массы	Температура формования, $^\circ\text{C}$	Давление формования, МПа	Дефект
1	Состав шихты, % (по массе) — $95 \text{ AlN} - 5 \text{ Y}_2\text{O}_3$	60	0,5	Нет заполнения
			2	Недолив
			9,5	Недолив
	Средний размер частиц порошка — 1,2 мкм	62	0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов
			9,5	Нет дефектов
	Объемное содержание порошка — 65,6%	68	0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов
			9,5	Нет дефектов
	Объемное содержание связующего — 34,4 %	76	0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов
			82	Нет дефектов
Вязкость — $20 \text{ Н}\cdot\text{с}/\text{м}^2$	76	0,5	Нет дефектов	
		2	Нет дефектов	
		82	Нет дефектов	
2	Состав шихты, % (по массе) — $95 \text{ AlN} - 5 \text{ Y}_2\text{O}_3$	60	0,5	Нет заполнения
			2	Недолив
			9,5	Недолив
	Средний размер частиц порошка — 1,2 мкм	62	0,5	Нет заполнения
			2	Неслитини
			9,5	Неслитини
	Объемное содержание порошка — 67,6 %	68	0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов
			9,5	Нет дефектов
	Объемное содержание связующего — 32,4 %	76	0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов
			82	Нет дефектов
Вязкость — $26 \text{ Н}\cdot\text{с}/\text{м}^2$	76	0,5	Нет дефектов	
		2	Нет дефектов	
		82	Нет дефектов	
			2	Нет дефектов
			0,5	Нет дефектов
			2	Нет дефектов

Результаты экспериментов показали, что инжектирование термопластичной массы состава 1 происходит без видимых дефектов в модельных образцах при температурах процесса 62—82 °С. При температуре процесса 60 °С в образцах наблюдаются такие дефекты, как недолив и неслитины. При уменьшении концентрации связующего на 2 % (состав 2) и увеличении вязкости массы с 20 до 26 Н·с/м² эффективная температура инжектирования повышается и процесс происходит без видимых дефектов только при температурах 68 °С и выше. С увеличением давления инжектирования наблюдается повышение эффективности процесса — заполнение рабочего объема прессформ происходит при температуре 60 °С и давлении 2—9,5 МПа. Однако при этом наблюдается неполное заполнение объема формы или неслияние потоков массы.

На основании полученных результатов можно сделать вывод, что основными параметрами, определяющими эффективность инъекционного литья, являются температура формования, вязкость термопластичной массы, зависящая от концентрации связующего, и, в меньшей степени, давление формования.

На рис. 2 представлены результаты исследования зависимости плотности термопластичных материалов на основе порошка нитрида алюминия с различной концентрацией связующего от температуры процесса при различных давлениях формования. Плотность материалов увеличивается на 0,5—1,5 % при увеличении давления формования с 0,5 до 2—9,5 МПа. Незначительное (~ 0,5 %) увеличение плотности наблюдается при увеличении температуры формования с 68 до 82 °С. Наиболее существенный вклад в увеличение плотности термопластичного материала и, следовательно, увеличение коэффициента упаковки вещества вносит такой параметр как концентрация связующего — при уменьшении его содержания в термопластичной массе на 2 % плотность увеличивается на 4—5 %.

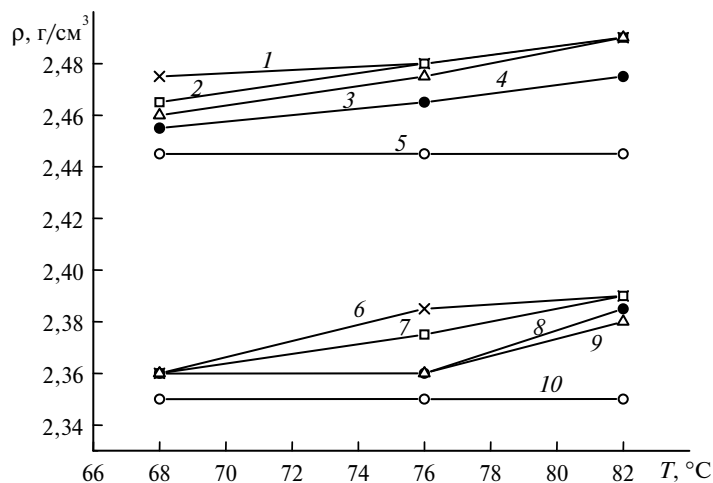


Рис. 2. Зависимость плотности термопластичных материалов составов 2 (1—5) и 1 (6—10) от температуры процесса при различных давлениях формования: 0,5 (5, 10), 2 (4, 8), 3, 5 (9), 7 (2, 7), 9,5 (1, 6) МПа.

На рис. 3 приведена зависимость предела прочности при изгибе термопластичного материала состава 2 от давления формования при различных температурах процесса. С увеличением давления формования от 0,5 до 2—9,5 МПа

при температурах процесса 68 и 76 °С прочность материала увеличивается на 15—25 %. Однако при температуре процесса 82 °С наблюдается определенное ее уменьшение при давлениях формования 7 и 9,5 МПа.

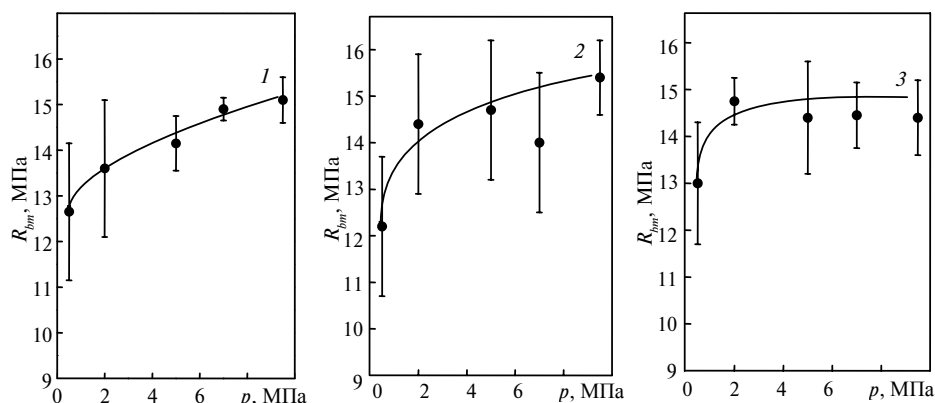


Рис. 3. Зависимость предела прочности при изгибе термопластичного материала состава 2 от давления формования при различных температурах процесса: 68 (1), 76 (2), 82 (3) °С.

Такой характер зависимости предела прочности при изгибе от давления формования при температуре процесса 82 °С связан с явлением упругого последействия [4]. На рис. 4 представлена зависимость изменения размеров образцов из термопластичного материала на основе нитрида алюминия от давления формования при различных температурах процесса. С увеличением давления усадка образцов уменьшается, а при давлениях 7—9,5 МПа и температуре процесса 82 °С она уменьшается более чем в четыре раза. В результате упругого последействия напряжения, которые возникают в объеме модельного образца термопластичного материала, приводят к появлению микротрещин и снижению прочности.

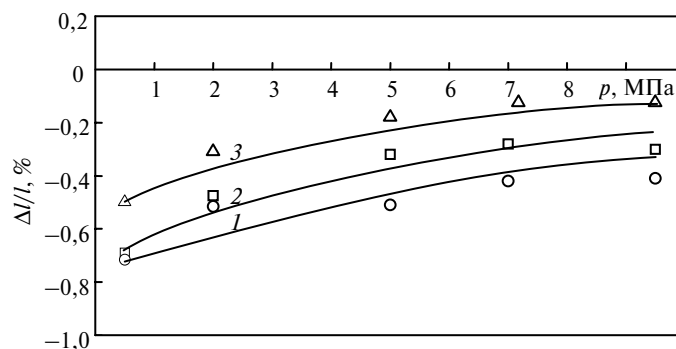


Рис. 4. Зависимость изменения размеров образцов из термопластичного материала состава 2 при охлаждении пресс-формы от давления формования при различных температурах процесса: 68 (1), 76 (2), 82 (3) °С.

На основании проведенных исследований можно заключить, что оптимальной температурой инъекционного литья термопластичной массы на основе нитрида алюминия является температура 76 °С.

Спекание материала на основе нитрида алюминия с добавкой Y_2O_3 происходит с образованием алюмоиттриевого граната $Y_3Al_5O_{12}$ [8]. Необходимый

для этого кислород отбирается при спекании порошковой композиции из объема частиц нитрида алюминия, т. е. имеет место очистка кристаллической структуры нитрида алюминия от примеси кислорода. В процессе перекристаллизации через жидкую фазу происходит растворение мелких зерен AlN и рост крупных. На рис. 5 представлена микроструктура полученного нитрид-алюминиевого материала с включениями закристаллизовавшейся жидкой фазы на границах зерен AlN.

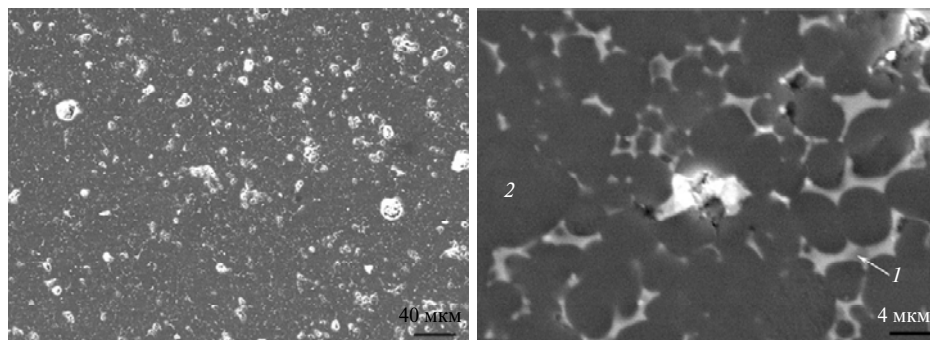


Рис. 5. Электронно-микроскопическое изображение спеченного материала из шихты, % (по массе), 95 AlN—5 Y₂O₃, полученного при давлении формования 5 МПа: 1 — иттрий-содержащая фаза; 2 — фаза AlN.

На рис. 6—8 представлены результаты исследования зависимости плотности, предела прочности при изгибе и трещиностойкости материала на основе нитрида алюминия от давления формования при инъекционном литье. При увеличении давления с 0,5 до 5—9,5 МПа плотность материала увеличивается на 2—3 %, прочность — на 20—25 %, а трещиностойкость — на 5—10 %. Максимальные значения прочности получены на образцах, инжектированных при температуре 76—82 °С и давлении 5—9,5 МПа.

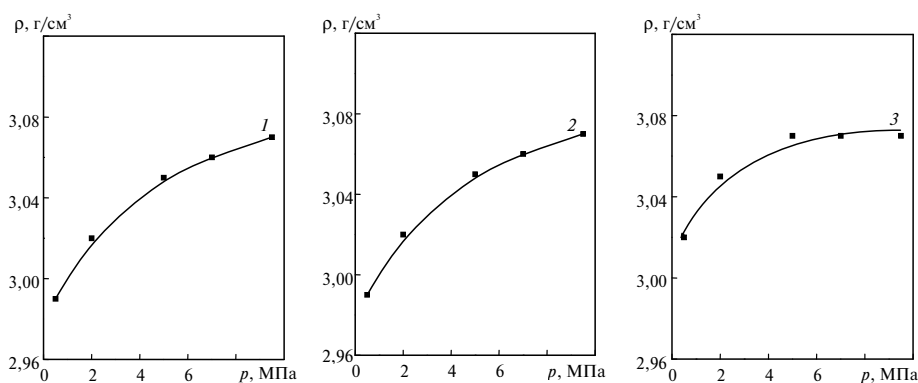


Рис. 6. Зависимость плотности материала из шихты, % (по массе), 95 AlN—5 Y₂O₃ от давления формования при различных температурах процесса: 68 (1), 76 (2), 82 (3) °С.

Достигнутый уровень физико-механических свойств исследованного материала ($\rho = 3,08\text{—}3,10 \text{ г/см}^3$, $R_{bm} = 280\text{—}320 \text{ МПа}$, $K_{Ic} = 3,0\text{—}3,1 \text{ МПа}\cdot\text{м}^{1/2}$) соответствует уровню свойств аналогичного материала, полученного методом холодного прессования с последующим свободным спеканием [9]. Таким образом, технология инъекционного формования может быть успешно при-

менена для получения изделий сложных форм из различных композиционных материалов на основе нитрида алюминия с добавками тугоплавких металлов, нитридов и карбидов.

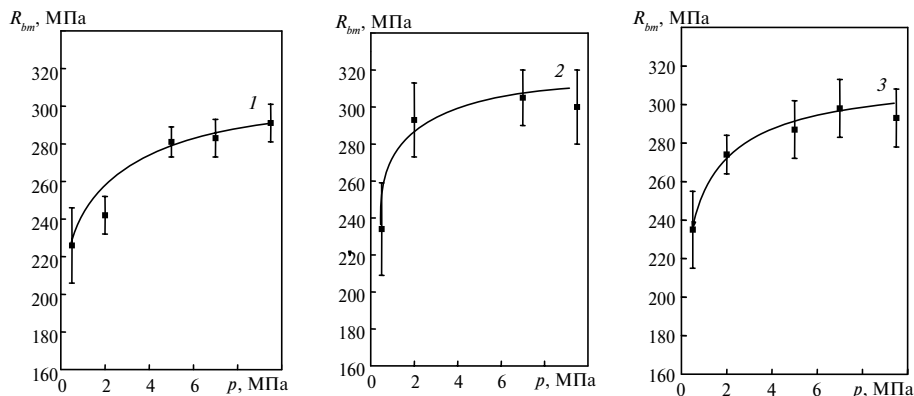


Рис. 7. Зависимость предела прочности при изгибе материала из шихты, % (по массе), 95 AlN—5 Y₂O₃ от давления формования при различных температурах процесса инъекционного литья: 68 (1), 76 (2), 82 (3) °С.

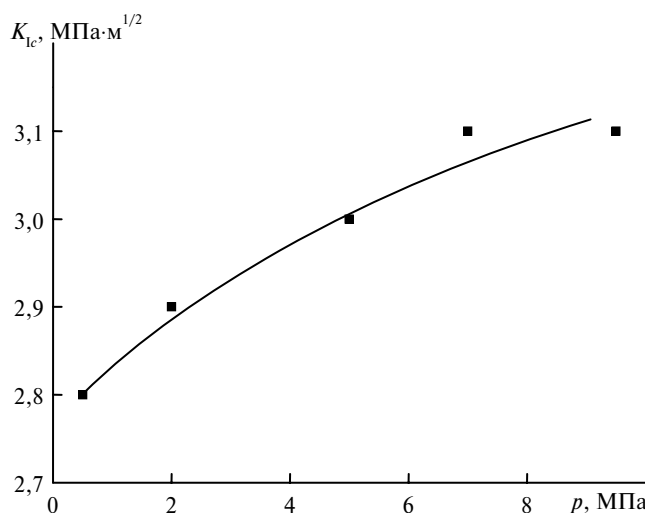


Рис. 8. Зависимость трещиностойкости материала из шихты, % (по массе), 95 AlN—5 Y₂O₃ от давления формования при инъекционном литье.

Выводы

Инжекционным формованием получены плотные материалы на основе AlN с высоким уровнем механических свойств. Исследование влияния технологических параметров инъекционного литья на физико-механические свойства материалов на основе AlN показало, что основными параметрами процесса являются вязкость термопластичной массы, температура и давление формования. Для получения максимальных значений механических свойств керамики на основе нитрида алюминия необходимо оптимальное соотношение этих величин.

Авторы выражают признательность М. Г. Лошаку, Л. И. Александровой, С. Н. Дубу за помощь при проведении исследований механических свойств материалов.

1. *German R. M.* Powder injection molding. — Princeton: Metal Powd. Industr. Fed. (MPIF), USA, 1990. — 521 p.
2. *Грибовский П. О.* Керамические твердые схемы. — М.: Энергия, 1971. — 448 с.
3. *Li Y., Huang B., Qu X.* Viscosity and melt rheology of metal injection moulding feedstocks // Powder Metallurgy. — 1999. — 42, N 1. — P. 86—90.
4. *Технологическое* исследование закономерностей инжекционного формования изделий сложной формы из технической керамики и компьютерная оптимизация процесса: Отчет о НИР / ИСМ НАН Украины. — № ГР 0101U006189. — Киев, 2005. — 153 с.
5. *Новиков Н. В., Ивженко В. В., Попов В. А. и др.* Оборудование для инжекционного литья термопластичных масс на основе керамических и металлокерамических порошков // Порошк. металлургия. — 2004. — № 9—10. — С. 119—127.
6. *Новиков Н. В., Ивженко В. В., Лецук А. А. и др.* Экспериментальные исследования и моделирование инжекционного литья изделий сложных форм из технической керамики // Сверхтв. материалы. — 2004. — № 5. — С. 3—19.
7. *Evans A. G., Charles E. A.* Fracture toughness determination by indentation // J. Amer. Ceram. Soc. — 1976. — 59, N 7—8. — P. 371—372.
8. *Фесенко И. П.* Диэлектрическая керамика с высокой теплопроводностью на основе AlN // Сверхтв. материалы — 2001. — № 2. — С. 15—20.
9. *Сербенюк Т. Б., Ивженко В. В., Свердун В. Б. и др.* Спінання композиційного матеріалу AlN—SiC // Там же. — 2006. — № 1. — С. 38—46.

Ин-т сверхтвердых материалов
им. В. Н. Бакуля НАН Украины

Поступила 14.01.08