ポリヒドロキソ Al 錯体-EDTA 複合ゲルからの α アルミナの低温析出に及ぼすフッ化物の影響

(信州大院総合理工¹・信州大工²) ○高橋 麟太郎¹・山口 朋浩²・樽田 誠一²

Effect of fluoride on low-temperature formation of α -alumina from polyhydroxoaluminum-EDTA composite gels

(¹Graduate School of Science and Technology, Shinshu University, ²Faculty of Engineering, Shinshu University) ○Rintaro Takahashi¹, Tomohiro Yamaguchi², Seiichi Taruta²

The effect of fluoride on low-temperature formation of α -alumina from polyhydroxoaluminum-EDTA composite gels was investigated. Composite gels containing fluorides, such as AlF_3 and MgF_2 , lowered the transformation temperature to α -alumina by as much as 300°C . The product obtained from the composite gels containing EDTA and MgF_2 (0.5 mol%) after heat treatment at 800°C transformed into a single phase of α -alumina. The morphology of α -alumina particles changed, depending on the species of fluoride. AlF_3 additive led to the formation of spherical α -alumina particles (about $1\ \mu\text{m}$) although MgF_2 additive led to plate-like particles (about $3\ \mu\text{m}$).

Keywords : Polyhydroxoaluminum Complex; Alumina; Sol-gel; Low-temperature Transformation; Fluoride

Al_2O_3 の熱力学的安定相である α アルミナは、遷移アルミナを経て $1100\sim 1200^\circ\text{C}$ で生成する。このような高温域では焼結が同時に起こるため、セラミック原料粉末としての特性や焼結体の性質を低下させるなどの悪影響を及ぼす。本研究では、 α アルミナへの転移温度を低温側にシフトさせることを目的とし、 AlF_3 や MgF_2 などのフッ化物を添加したポリヒドロキソ Al 錯体 (PHA) 複合ゲルからの低温 α 化条件を調査した。

PHA 水溶液に EDTA $\cdot 2\text{NH}_4$ (1.6 mol%) と AlF_3 や MgF_2 などのフッ化物を添加・混合し、ロータリーエバポレーターを用いて減圧乾燥した後、 60°C で 24 h 保持して PHA 複合ゲルを作製した。この複合ゲルを $600^\circ\text{C}\sim 1100^\circ\text{C}$ で 3 h 仮焼してアルミナ試料を得た。これらを XRD および SEM を用いて分析し、低温 α 化に及ぼすフッ化物の影響を調査した。

フッ化物を添加していない PHA ゲルを仮焼すると、 900°C 付近で α アルミナがわずかに析出しはじめたが、 AlF_3 を添加して作製した PHA 複合ゲルを仮焼した場合、 α アルミナが析出しはじめる温度は 600°C 付近まで低下した。このような現象は MgF_2 を添加した場合にも生じ、これらのフッ化物には α アルミナへの転移温度を低温側にシフトさせる効果があることがわかった。EDTA と MgF_2 (0.5 mol%) を共添加して作製した PHA 複合ゲルを 800°C で仮焼したとき、生成物は α アルミナの単一相となった。 α アルミナ粒子の形態は AlF_3 添加系では $1\ \mu\text{m}$ 程の球状であったのに対し、 MgF_2 添加系では $3\ \mu\text{m}$ 程に成長した板状であった。 AlF_3 は 600°C 付近で、 MgF_2 は 900°C 付近で熱分解して気相フッ化物を生成する。これらよりもより分解温度の低い NH_4F と FeF_3 を添加種として作製した複合ゲルからのアルミナ試料には、約 $3\ \mu\text{m}$ と $500\text{-}600\ \text{nm}$ の大きさが異なる α アルミナ粒子が観察された。このことから、 α アルミナ粒子の微細化にはフッ化物の分解挙動が影響していることが示唆された。