粒子形状による成形体の充填構造変化

笈田幹弘・篠原邦夫・Boris Golman

北海道大学大学院工学研究科物質工学専攻, 060-8628 札幌市北区北13条西8丁目

Variation of Packing Structure of Powder Compact with Particle Shape

Mikihiro OIDA, Kunio SHINOHARA and Boris GOLMAN

Division of Materials Science and Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido University,
Nishi 8, Kita 13, Kita-ku, Sapporo-shi 060-8628

Material characteristics of powder compact are closely related to the packing arrangement of particles. In this paper, the effect of particle shape was investigated on the non-uniform packing structure. In the experiments, the shape of stainless steel particles was modified by changing the operational conditions of rotational impact blending and differently shaped particles were consolidated under piston press. The packing structure of the powder bed was expressed by void-size distribution. As a result, it has been clarified that the void-size distribution becomes narrow as the particle shape gets elongated, and the local voidage decreases. Thus, a uniform packing structure is apparently attained.

[Received March 15, 1999; Accepted May 17, 1999]

Key-words : Particle shape, Void-size distribution, Packing structure, Uniformity

1. 緒 言

粉粒体を原料とするセラミックスなどの成形材料を作製するとき、緻密で強度の大きいことや乾燥又は焼成の過程での収縮や変形をできるだけ少なくすることが要求される。したがって、重要なこととして成形体が緻密であり、その充填構造が均一であるということが挙げられる。

また、これまで成形材料を構成する粒子の大きさの影響については広く研究されてきたが、粒子の形状の影響についてはほとんどなされていないのが現状である。

そこで既報¹⁾において、粒子成形層の圧密特性として、粒子形状による垂直方向の圧力分布及び空隙率分布変化が検討された。その結果、粒子が球形に近くなるに従い、圧力の伝播割合が増大し、局所空隙率分布が減少することが分かった。すなわち、粒子の球形化が均一充填層の形成に有効である。これまで充填構造を解析するにあたって、成形層全体での平均的総括空隙率、層内位置により変化する局所空隙率などマクロに検討されてきたが、本研究では更にミクロに粒子径オーダーの空隙径の存在確率分布²⁾で充填構造を表す方法を用い、ミクロ構造に及ぼす粒子形状の効果を検討した。

2. 基礎的考察

Alonso ら²⁾は、球形粒子の充填層断面で、ある大きさ χ_3 の球形の空隙を当てはめられる確率 $P_3(\chi_3)$ として空隙存在確率分布（以下、空隙径分布と呼ぶ）を定義し、等しい大きさの球のランダム充填について理論的に求め、次式で表した。

$$P_3(\chi_3) = (1-v) \exp \left\{ -\frac{v}{1-(v/v_{HCP})} [(1+\chi_3)^3 - 1] \right\} \quad (1)$$

ただし、 v は充填率、 v_{HCP} は六方最密充填構造の限界充填密度であり、 χ_3 は3次元における空隙径である。更に、この3次元分布から、充填層の任意の断面に現れる2次元的な円形空隙の大きさ χ_2 の確率分布 $P_2(\chi_2)$ を導き、次式で表した。

$$P_2(\chi_2) = \int_{\chi_2}^{\infty} P_3(\chi_3) Z(\chi_3, \chi_2) d\chi_3 \\ = \frac{3v(1-v)}{1-(v/v_{HCP})} \int_{\chi_2}^{\infty} (1+\chi_3)^2 \sqrt{1-\left(\frac{\chi_2}{\chi_3}\right)^2} d\chi_3$$

$$\times \exp \left\{ -\frac{v}{1-(v/v_{HCP})} [(1+\chi_3)^3 - 1] \right\} d\chi_3 \quad (2)$$

すなわち、 $P_2(\chi_2)$ は、充填層断面空隙に χ_2 と等しいかそれ以上の直径の円形空隙を当てはめられる確率を与える。したがって、充填率 v と最大充填密度 v_{HCP} が分かれば、(2)式から断面の空隙径分布を算出できる。

本研究では、非球形粒子の充填層断面の空隙径分布について検討する。したがって、粒子形状により限界充填率が異なる。そこで、(2)式において v_{HCP} を v_m と書き換え、その粒子形状における限界充填率とすると、空隙径分布は、(2)式から(3)式で示される。

$$P_2(\chi_2) = \frac{3v(1-v)}{1-(v/v_m)} \int_{\chi_2}^{\infty} (1+\chi_3)^2 \sqrt{1-\left(\frac{\chi_2}{\chi_3}\right)^2} \\ \times \exp \left\{ -\frac{v}{1-(v/v_m)} [(1+\chi_3)^3 - 1] \right\} d\chi_3 \quad (3)$$

3. 実 験

3.1 粒子形状の調整

試料には、ステンレス水アトマイズ粉(福田金属箔粉工業製, ST-AT316L-100)を用いた。粒子形状の調整には既報³⁾と同じく、図1に示す表面改質装置ハイブリダイザー(奈良機械製作所製, NHS-0型)を用いた。その操作条件を変化させることにより、図2に示す5種類の粒子形状を有する粉体をそれぞれ調製した。その後、粉体の粒度をそろえるため、ふるいにかけて、平均粒子径を65 μm にした。粒子形状の評価は、既報⁴⁾において定義された粒子輪郭座標のフーリエ変換による近似楕円の短長軸比により行い、これを形状指数 K とした。したがって、 K が1に近づくと球に近くなることを意味する。このようにして形状調整された試料の形状指数とハイブリダイザーの操作条件の関係を、表1に示した。

3.2 圧密成形

グラファイトの型枠に、総括空隙率 ε_0 に相当する所定量の試料を投入し、粉体圧縮試験装置(ジャコム製, JMT-42A型)を用いて一軸ピストン圧縮を行い、直径20 mm、層厚10 mmの円柱状成形体を作製した。圧縮は、10 mm/minの一定歪み

速度とした。これを、種々の形状粒子について行った。

3.3 粉体層の焼結

本実験で使用した粉体試料を圧縮し、そのまま型枠からはず

Fig. 1. Experimental apparatus for modification of particle shape.

Fig. 2. Stainless steel particles of different shapes prepared by Hybridizer.

すと壊れてしまう場合があるので、粒子同士が軽く接触する程度に焼結し、成形体を作製した。真空中で焼結温度を1100°Cとし、いびつな粒子は保持時間を短く、球形粒子は長くした。これは、いびつな粒子は粒子同士の接触面積が大きいので付きやすく、球形粒子は接触面積が小さいので付きにくいからである。

3.4 成形体断面構造の画像処理

成形体にエポキシ樹脂を含浸し硬化させ、成形体上面及び底面の研磨を行った。続いて、顕微鏡により研磨面の局所画像(図3)を処理機に取り込んだ。処理画像は、成形体上面において中心から半径方向 r に5点、成形体底面においても同様である。なお、各点で取り込んだ画像の大きさは、800 μm 四

(a)

(b)

Fig. 3. Images of cross section of powder compacts of differently shaped particles; (a) $K=0.663$, (b) $K=0.917$.

Table 1. Shape Index of Stainless Steel Particles for Operating Conditions with Hybridizer

Peripheral Velocity (m/s)	Treatment Time (s)	Shape Index (-)
0	0	0.663
70	5	0.719
80	5	0.755
80	60	0.839
80	180	0.917

Fig. 4. Illustration of simulation of size distribution of circular voids.

方である。次に、この局所画像を二値化し、粒子部分と空隙部分に分けた。そしてその粒子部分の面積率を測定し、それから局所空隙率 ε を算出した。その際、測定した10点の局所空隙率 ε の平均値が総括空隙率 ε_0 と一致するように、二値化のレベルを調整した。

3.5 空孔径分布測定

二値化した局所画像において空孔径の存在確率分布 $P_2(\chi_2)$ の測定を次の手順で行った。まず、ある直径の円をランダムな位置に10000回発生させ、その径の円が空隙部分に当てはまる割合として存在確率を求めた。次に、発生させる円の直径を変化させて同様に存在確率を求めていった（図4参照）。したがって、空隙が大きければ空孔径分布は広くなる。また、空孔径分布が狭いということは、空隙の大きさがそろっているの、より均一な充填構造と考えられる。

4. 結果及び考察

4.1 総括空隙率による空孔径分布の変化

ミクロな充填構造に及ぼす総括空隙率の効果を検討するために、同一粒子形状指数 K 及び同一局所空隙率 ε において、総括空隙率 ε_0 の異なる成形体の空孔径分布を測定した。大小二種類の粒子形状指数についての実験結果を図5、図6に示した。横軸は、空孔径を平均粒子径で割って無次元化した値 χ で示しており、縦軸は、それぞれの空孔径の空孔の存在確率を表している。 z は成形体の厚さによる上面から軸方向の無次元距離を示す。 r は成形体の半径による中心から半径方向の無次元

Fig. 5. Size distribution of circular voids with equal local voidage for shape index 0.917 and $v_m=0.690$.

Fig. 6. Size distribution of circular voids with equal local voidage for shape index 0.663 and $v_m=0.563$.

元距離を表す。また、図中には(3)式により v_m を仮定してフィッティングした曲線を示した。大空孔の当てはまる数は少なく、縦軸は対数のため、ばらついて見える。その結果、総括空隙率 ε_0 の変化によらず、空孔径分布はほぼ同一であった。また、一つの成形体内において異なる場所であっても局所空隙率が同じであれば、空孔径分布もほぼ同一であった。したがって、既報¹⁾で述べられた垂直方向の圧力分布から、総括空隙率 ε_0 の変化は局所空隙率の分布に影響を与えることが分かったが、空孔径の存在確率の測定結果から、ミクロな充填構造には、 ε_0 はほとんど影響を与えないことが分かった。すなわち、局所空隙率が同じであれば、ミクロな充填構造も同じであることが分かった。

4.2 局所空隙率による空孔径分布の変化

同一粒子形状において、局所空隙率の異なる場合の空孔径分布を、図7、図8、図9、図10、図11に示した。その結果、局

Fig. 7. Void size distribution with shape index 0.663 and $v_m=0.563$ for different local voidages.

Fig. 8. Void size distribution with shape index 0.719 and $v_m=0.623$ for different local voidages.

Fig. 9. Void size distribution with shape index 0.755 and $v_m=0.652$ for different local voidages.

Fig. 10. Void size distribution with shape index 0.839 and $v_m=0.676$ for different local voidages.

Fig. 11. Void size distribution with shape index 0.917 and $v_m=0.690$ for different local voidages.

所空隙率が大きくなると、分布が広がった。これは、粒子間の空隙が大きくなったためである。したがって、総括空隙率よりも局所的な空隙率の違いの方が、空隙径分布に大きな影響を与えることが分かった。また、図中にはそれぞれ(3)式によりフィッティングを行い、それぞれの粒子形状における限界充填率 v_m を算出した。

4.3 粒子形状による空隙径分布の変化

同一の局所空隙率において、粒子形状の異なる空隙径分布を測定し、結果を図12に示した。これから、形状指数 K の増加に伴い、分布も広がることが分かる。これは、形状のいびつな粒子は発生する空隙の形もいびつで細長く、粒子形状が丸いものは、空隙形が点対称に近いので、同一局所空隙率の場合、より大きな空隙が当てはまるためと考えられる。

また、形状指数 K が0.663の空隙径分布が他の4種の粒子形

Fig. 12. Void size distribution for different particle shapes, the local voidage of which ranges in between 0.376 and 0.397 depending on K .

Fig. 13. Variation of v_m with particle shape.

状に比べて大きく離れているのは、ハイブリダイザーで処理していない原料の粒子であるためと考えられる。なぜなら原料の粒子は、図2に示すように粒子表面の凹凸が激しく、同一の局所空隙率にするにはより大きな圧力で成形されているため空隙はある種の配向を持ち、細長い空隙ができやすいためである。

4.4 粒子形状による限界充填率の変化

図12で種々の形状指数 K について得られた限界充填率 v_m の値を、図13に示した。 K の増加に伴い、 v_m も増加した。これは、粒子が球形になるに従い、より最密に充填されることを示している。このことは、同一圧縮圧において球形粒子の方が圧力伝播しやすく¹⁾、均一に詰まりやすいことから分かる。また、 K が1のとき v_m が六方最密充填時における充填率0.736となるように両者の関係の実験式を作成すると(4)式になった。

$$v_m = 0.736 + 0.366 \ln K \quad (4)$$

5. 結 言

異形粒子成形層のミクロな充填構造の変化を、空隙存在確率分布によって評価した。その結果、以下の知見が得られた。

(1) 粒子成形体の充填構造の変化は、空隙存在確率分布により表現でき、総括空隙率は局所空隙率分布に影響を与えるものの、ミクロな充填構造には影響を与えないことが分かった。

(2) 局所空隙率の減少により、空隙の大きさが小さくなり、空隙存在確率分布は狭くなる。

(3) 形状指数 K の減少によって細長い空隙になり、空隙存在確率分布が狭くなる。したがって、円形で表現される空隙の存在確率による定義では、同一局所空隙率ではいびつな粒子ほど見掛け上均一な充填構造になることが分かった。

(4) 形状指数 K の増加とともに限界充填率が増加することが分かった。したがって、粒子が球形になるに従い、より最密な充填が可能となることが確認された。

謝 辞 本実験を遂行するに当たり、有益な助言とハイブリダイザー及び焼結装置を使用させて頂いた北海道立工業試験場の養嶋裕典氏、内山智幸氏、宮腰康樹氏に御礼申し上げます。

文 献

- 1) M. Otani, H. Minoshima, W. Hino and K. Shinohara, *J. Ceram. Soc. Japan*, **105**, 1099-102 (1997) [in Japanese].
- 2) M. Alonso, E. Sainz, F. A. Lopez and K. Shinohara, *Chem. Eng. Sci.*, **50**, 1983-88 (1995).
- 3) M. Otani, H. Minoshima, T. Ura and K. Shinohara, *Adv. Powder Tech.*, **7**, 291-303 (1996).
- 4) M. Otani, H. Minoshima, T. Uchiyama, K. Shinohara, K. Takayashiki and T. Ura, *J. Soc. Powder Tech. Japan*, **32**, 151-57 (1995) [in Japanese].