研究報告

初期嵩密度分布が成形体および焼結体の 均質性に及ぼす影響について

牧 野 和 孝,^{*1} 昌 子 智 由^{*1}
菅 原 司^{*1}

The Effect of Initial Bulk Density Distribution on The Homogeneities of Powder Compact and Sintered Powder Compact

by

K.MAKINO, T.SHOJI and T.SUGAWARA

Recently, the ceramics are used in various fields. Especially, electro ceramics which have specific electric function are taken notice. Then, electro ceramics manufacturing process become more and more important in industry. The ceramics manufacturing process consists of various kinds of unit operations, and can be considered as combination of forming process and sintering one. However, basic relation between forming process and sintering one has not yet been elucidated. In other words, the effect of the homogeneity of initial bulk density distribution in the forming cell on the homogeneity of bulk density of powder compact or sintered powder one has not yet discussed.

In this paper, the effects of initial bulk density distribution on the bulk density distributions of powder compact and sintered powder one are experimentally discussed by using the X-ray radiograph system. As the result, these bulk density distributions of powder compact and sintered one are greatly effected on the initial bulk density.

Key Words : Bulk Density Distribution, X-ray Radiograph, The Homogeneity of Powder Compact, The Homogeneity of Sintered Powder Compact

1. は じ め に

現在、様々な分野でセラミクスは使用され、特に特殊な機能を有するエレクトロセラミクスは有用視され

ている。そのため、これらエレクトロセラミクスを製造する製造プロセスの役割は大きいものとなっている。このエレクトロセラミクス製造プロセスはいく種類かの単位操作の組み合わせによって構成されるが、基本的には粉体成形操作と焼結操作とによって構成されている¹⁾²⁾。現在のところ、この粉体成形操作と焼結操作との基本的な相互関係、つまりは成形セルへの粉体の充填による嵩密度の均質性が粉体成形体や焼結体の均質性にどのような影響を及ぼすのか充分には解明されていない。

平成3年8月28日受付

^{*1} 秋田大学鉱山学部資源・素材工学科, 〒010 秋田市手形学園町1-1

^{†1} Department of Chemical Engineering for Resources, Mining College, Akita University 1-1 Tegata Gakuencho, Akita 010, Japan

Fig.2.1 Conceptual and section diagrams of forming cell.

Fig.2.2 Conceptual diagram of X-ray radiograph system.

そこで、本研究ではこの点に着目し、粉体成形操作での成形セルへの原料粉体供給時の嵩密度の均質性が、粉体成形体および焼結体の均質性にどのような影響を与えるかを、X線透視撮影法を用いて実験的に解明した。その結果、以下の興味深い知見を得たので報告する。

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置

圧縮成形セルはFig.2.1に示すようにプランジャー、上部セル、下部セル、補助セルから構成される。また、粉体層の密度分布をX線透視撮影して測定するために圧縮成形セルの材質はアクリル樹脂とした。

測定に用いたX線透視撮影装置はFig.2.2に示すようにX線発生装置、X線シールドボックス、X線フィルム、および試料（テスト試料、成形体、焼結体）とリファレンス用試料から成り立っている。

また、嵩密度分布データ解析で用いる画像処理システムは、Fig.2.3に示すように画像処理装置、TVカメラ、ディスプレイモニタ、プリンター、コンピュータから構成されている。

Fig. 2.3 Conceptual diagram of image processing system.

2.2 実験方法

本研究では実際に使用されているファインセラミクス粉体のチタン酸バリウム (BaTiO_3 , $\rho_P = 5.158 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, $D_P = 120 \mu\text{m}$) を供試粉体として使用した。

最初に Fig.2.4 に示すように上部セルと下部セルからなる圧縮成形セルに供試粉体を一点充填する。圧縮成形セルへの粉体供給点は嵩密度分布を変化させるために圧縮成形セル中心から 0, 8, 16mm の 3 点とした。

次に、圧縮成形セルよりあふれた粉体を一定方向からかきとり、テスト試料とする。そして、これを初期状態として X 線透視撮影を行う。撮影後、この初期状態の圧縮成形セルに補助セルをはめ込み、プランジャーを挿入し圧縮応力 (30.6MPa 一定) 万能試験機により加えて成形体を作成する、そして、成形体を電気炉にて焼成した。

上述のようにして得られた初期状態と成形体および焼結体のそれぞれに対して X 線透視撮影を行い、X 線透視像に嵩密度測定法³⁾を適用し、嵩密度分布を得る。

2.2.1 試料に付けた印について

初期状態と成形体および焼結体との嵩密度分布の関

- ① Funnel support
- ② Funnel
- ③ Upper cell
- ④ Down cell
- ⑤ Test powder

Fig. 2.4 Section diagram of apparatus at the pow powder filling.

Fig. 2.5 Position mark of sample.

連性を得るためには、それぞれ同一の位置での嵩密度の測定を行う必要がある。そこで初期状態と成形体の同一の位置に印を付けることで測定位置を合わせる。初期状態の試料そのものには印を付けられないので、Fig.2.5のように下部セルに鉛で印を付ける。また、成形体には直接傷を付け、これを印とした。

2.3 嵩密度測定法による解析

嵩密度の定量的な測定法は粉粒体層にX線を透過させるとX線はその進行方向に存在する粉粒体によって吸収され、その透過率がLambert-Beerの法則に従うとすることを基礎としている。

このことからLambert-Beerの法則よりテストセルおよびリファレンスセルに対するX線透過率はそれぞれ次式で求められる。

$$\frac{I_r}{I_0} = \exp \{-K\rho_P l(1-\epsilon_0)\} \quad (1)$$

$$\frac{I_t}{I_0} = \exp \{-K\rho_P L_t(1-\epsilon)\} \quad (2)$$

ここで、 I_r 、 I_t はそれぞれリファレンスセル任意の厚さ l の位置並びにテストセルの任意の位置におけるX線透過強度である。

また、 K は粉体固有の吸光係数、 ρ_P は粒子密度、 ϵ_0 と ϵ はそれぞれリファレンスセルとテストセルの空間率を示している。

Eqs.(1)、(2)より次式を得る。

$$-K\rho_P = \frac{\ln(I_r/I_0)}{l(1-\epsilon_0)} = \frac{\ln(I_t/I_0)}{L_t(1-\epsilon)} \quad (3)$$

Eq.(3)より

$$\epsilon = 1 - (1-\epsilon_0) \frac{l}{L_t} \frac{\ln(I_t/I_0)}{\ln(I_r/I_0)} \quad (4)$$

X線撮影像の濃淡度が、それぞれのセルでのX線透過強度 I_r 、 I_t に対応するので、テストセルの任意の位置における空間率 ϵ が求めることができる。

実験では画像処理システムでテストセルおよびリファレンスセルの濃淡度を読み取り、計算によって空間率を求める。そして空間率より嵩密度を求める。

3. 実験結果および考察

Figs.3.1~3.4は測定されたX線撮影像である。これらX線撮影像より粉体供給点近傍が他の領域と比較して、著しく密度が高いことがわかり、そこに着目して解析した。

それを模式的に表わしたものが、Fig.3.5である。この模式的に表わした図の測定領域に、嵩密度測定法を用いて嵩密度分布を求める。

また、Fig.3.5では ρ_0 は特定の点の嵩密度、 ρ_m は嵩密度の最大値、 ρ は任意の点の嵩密度、 X は特定の点から任意の点までの距離、 L は測定領域を示している。そして、 L_0 は試料の末端から測定領域内の特定の点までの距離である。

また、Figs.3.1~3.3に示されているX線撮影像より、初期状態の嵩密度分布は粉体供給点の嵩密度が高く、それぞれ特徴のある嵩密度分布が生じている。その特徴のある嵩密度分布が、これらのX線撮影像より、圧縮されても成形体に残存していることがわかる。同様にFig.3.4に示してある成形体と焼結体のX線撮影像

Fig. 3.1 X-ray photographs of initial packing state and powder compact.
(powder supply point: 0mm)

Fig. 3.2 X-ray photographs of initial packing state and powder compact.
(powder supply point: 8mm)

Fig. 3.3 X-ray photographs of initial packing state and powder compact.
(powder supply point: 16mm)

Fig. 3.4 X-ray photographs of powder compact and sintered powder compact.
(powder supply point: 8mm)

Fig. 3.5 Measurement region of bulk density distribution.

を比較すると、成形体の嵩密度分布が焼結されても焼結体に類似した分布が残ることがわかる。

以上のことを定量的に解析した結果を Figs.3.6～3.9 に示す。Figs.3.6～3.9は初期状態と成形体および成形体と焼結体の粉体供給点近傍の嵩密度を無次元表示比較してある。それぞれの嵩密度を比較すると、この場

合も両者間（初期状態と成形体、成形体と焼結体）の分布類似性が極めて高いことがわかる。このことより成形体と焼結体の嵩密度分布は、初期状態の嵩密度分布に依存していると考えられる。

また、これらの領域に対しての嵩密度変動分布を Figs. 3.10～3.13に示す。これによれば、初期状態、成形体、

Fig. 3.6 Dimensionless bulk density of initial packing state and powder compact.
(powder supply point : 0mm)

Fig. 3.7 Dimensionless bulk density of initial packing state and powder compact.
(powder supply point : 8mm)

Fig. 3.8 Dimensionless bulk density of initial packing state and powder compact.
(powder supply point : 16mm)

Fig. 3.9 Dimensionless bulk density of powder compact and sintered powder compact.
(powder supply point : 8mm)

Fig. 3.10 Dimensionless increment of bulk density of initial packing state and powder compact. (powder supply point : 0mm)

Fig. 3.11 Dimensionless increment of bulk density of initial packing state and powder compact. (powder supply point : 8mm).

Fig. 3.12 Dimensionless increment of bulk density of initial packing state and powder compact. (powder supply point : 16mm).

Fig. 3.13 Dimensionless increment of bulk density of powder compact and sintered powder compact. (powder supply point : 8mm).

焼結体の順にその値が著しく減少していることが実験的に明らかになった。いずれの粉体供給点にたいしても同様な傾向があることがわかる。

このことは嵩密度の不均質性を支配する因子が、粉体成形体に外部から加えるエネルギー W (初期状態<圧縮成形体<焼結体) のレベルに対応して、相違するためと考えることができる⁴⁾。すなわち、エネルギーレベル W のいちばん低い場合は、粉体粒子の移動 (粉体化学ポテンシャル μ_B)、中間のレベルの圧縮成形体では、一個粒子内部の固体の変形 (粉体を構成する固体の化学ポテンシャル μ_S) そして最高レベルの焼結体では分子の移動 (分子化学ポテンシャル μ_m) が支配的となる。これは最初は粒子の大きさ程度の空間が粒子によって占められ、次は粒子より小さな空間が、そして最後には分子オーダーの空間が分子によって占められるメカニズムが支配的となることを意味している。そのため、嵩密度変動幅が初期状態、成形体、焼結体の順で著しく減少するものと考えられる。

4. お わ り に

本研究では成形セル充填時の初期嵩密度分布が粉体成形体および焼結体にどのような影響を及ぼすかを実験的に検討した。その結果、初期嵩密度分布が粉体成形体および焼結体に対して顕著な影響を与えることを具体的に指摘した。このことは成形セルへの均質な初期充填の重要性を示唆するものであると考えられる。

Nomenclature

I_0	: X-ray intensity of incidence	[R]
I_r	: X-ray intensity penetrated through the referecnce cell	[R]
I_t	: X-ray intensity penetrated through the test cell	[R]
K	: X-ray absorption coefficient	[kg ⁻¹ ・m ²]
ρ_P	: Particle density	[kg・m ⁻³]

ϵ_0	: Powder porosity of the referece cell	[-]
ϵ	: Powder porosity of the test cell	[-]
l	: Thickness of the reference cell at voluntary position	[m]
L	: Thickness of test cell	[m]
ρ_0	: Bulk density at specified positon	[kg・m ⁻³]
ρ_m	: Maximum bulk density in measurement region	[kg・m ⁻³]
ρ	: Bulk density at voluntary positon	[kg・m ⁻³]
X	: Distance between specified positon and voluntary position	[m]
L	: Measurement resion	[m]
L_0	: Distance between edge of specimen and specified position	[m]
W	: External energy to specimen	[J]
μ_P	: Powder chemical potential	[J]
μ_S	: Chemical potential of materials composed powder	[J]
μ_m	: Molecular chemical potential	[J]

References

- 1) K. Makino : "Sozai-Bussei Handoringu No Netsu Butsurigaku", Shigen Bunka Shuppan, p297-321 (1990).
- 2) K. Makino : "Erekutoroseramikusu Sekkei Seizougaku", Nikkan Kogyo Shinbunsha (1991).
- 3) A. Higashiyama, A. Tsukada, K. Kuramitsu, K. Makino : Journal of The Society of Powder Thechnolgy, 24, No. 5, p291 (1987).
- 4) K. Makino, A. Takeishi, H. Mori, K. Murakami, K. Kuramitsu : Journal of The Association of Materials Engineering for Resources, Vol. 1, No. 1, p78 (1988).