電子写真におけるトナーの定着に関する研究*

(第2報, トナーの熱定数の評価とその影響)

三 矢 輝 章^{*1}, 熊 谷 雄 五^{*2}
藤 原 重 隆^{*3}, 熊 坂 隆 夫^{*1}A Study of Toner Fusing for Electrophotography
(2nd Report, Evaluations of Toner Thermophysical Properties
and Discussions of the Effects)Teruaki MITSUYA, Yuugo KUMAGAI,
Shigetaka FUJIWARA and Takao KUMASAKA

The thermophysical properties of toner are required for temperature analyses and evaluations of fusing performance of the toner. However, the thermophysical properties have not been thoroughly observed. The effective thermal diffusivity and conductivity of the toner powder in standard atmosphere were measured. To solve the problem of preparing the specimen, an assumption of semi-infinite length for the specimen was employed. To obtain the measured value effective for the fixing process, irradiative heat flux was employed. In this manner, the following points were noted: the toner thermophysical properties are sensitive to air between the toner particles, toner particle diameter, quantity of carbon in the toner and molecular Weight of resin; and higher thermal diffusivity and conductivity raise toner-paper interface temperature.

Key Words: Thermophysical Properties, Thermal Diffusivity, Thermal Conductivity, Toner, Fusing, Electrophotography, Air, Molecular Weight, Carbon

1. 緒 言

情報処理速度の高速化に伴い電子写真方式を用いたプリンタの印字速度の高速化が求められている。この課題を解決するには、トナーを記録紙に固着させる定着装置の最適設計法の確立が急務である。そのため、定着の基本的現象解析が必要となる。

トナーは常温で粒径5~25 μmの粉体である。トナーの融解、記録紙への固着という定着過程を規定する因子の一つに、定着時における記録紙上に画像としてたい積したトナー層の内部温度がある。トナーの温度場を明らかにする場合、トナーのたい積厚さが数十 μmであるため直接測定は困難で、熱伝導方程式を解く方法が用いられる。著者らは、上記定着現象解析の第1段階として、線形を仮定した定着時のトナー層内部の非定常温度場を、有限要素法を用いて計算し前報⁽¹⁾にて報告した。

熱伝導方程式を解く場合、物性定数としての熱定数、すなわちトナーの熱拡散率および熱伝導率を知る必要

がある。解析では、トナーは記録紙上のたい積層⁽¹⁾⁽²⁾として取扱われる。したがって、計算に用いる熱定数には、空気中の粒子層としての有効熱拡散率や有効熱伝導率が必要となる。また、それらの有効熱定数は、固着強さ(定着強度)⁽¹⁾に大きく影響を与えると考えられる定着時におけるトナーと記録紙の界面近傍の温度を規定する。したがって、トナーの熱定数そのものが、トナーの定着特性を評価する指針になり得る。定着がトナーの相変化の過程であることを考慮すれば、熱定数の厳密な評価には、相変化に伴う非線形特性をも必要とする。しかし、トナーが粉体であるため試料成型に相当の困難が伴うなどのことから、常温の粉体状と言えどその熱定数測定に関する報告の例はなく、概略値さえ十分に明らかにされていないのが現状である。

以上述べた背景に対し、本報では、トナーの熱定数評価の第1段階として、常温近くの空気中における粉体状トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率の測定を行い、それらに与えるトナーの諸因子の影響について述べ、これらの熱定数が定着に与える影響についても検討する。

2. 主 な 記 号

a : 熱拡散率 m^2/s

* 原稿受付 平成元年10月23日。

^{*1} 正員, (株)日立製作所日立研究所 (●319-12 日立市久慈町4026)。^{*2} 日立化成工業(株)山崎工場 (●317 日立市東町4-13-1)。^{*3} (株)日立製作所日立研究所。

$\bar{D}$: 平均粒径 μm
 H : ふく射熱流束 W/m^2
 L : 試料の長さ mm
 l : 温度応答測定位置 mm
 M : 分子量
 $\bar{M}_w$: 重量平均分子量
 R : 炭素配合比
 T : 温度 $^{\circ}\text{C}$
 t : 時間 s
 λ : 熱伝導率 $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$
 δ : ふく射光照射時間 s
 θ : 温度上昇 $^{\circ}\text{C}$

3. 測定方法

3.1 測定原理 粉体の有効熱拡散率や有効熱伝導率は測定の方法により値が異なるため、測定には使用される加熱形態に合せた方法を用いる必要がある。トナーの定着には光による加熱⁽¹⁾、高温ロールによる熱圧着などが用いられるが、本報では光による加熱に即した有効熱定数の測定方法について検討する。

熱定数測定法は定常法と非定常法に大別されるが、測定が比較的簡単で測定時間が短いという利点を有する非定常法を採用する。非定常法の場合、加熱の形態に光によるふく射や固体壁、細線からの熱伝導などを用いた種々の方法が報告されている⁽³⁾⁽⁴⁾。粉体の測定において固体壁や細線を加熱源に用いた場合、微視的に見れば粉体粒子と加熱源との接触点のみ直接加熱されることになる。このような加熱はトナー定着時の加熱形態と異なるため、測定された有効熱拡散率や有効熱伝導率を上述の解析にそのまま適用することに問題がある。したがって、本報ではトナーの定着に最も近いと考えられる光によるふく射加熱を用いる。また、試料には形状に対する制約を少なくするため半無限長を仮定した。

図1に示すように、 x 方向に半無限長、 r 方向に無限長の試料を考える。試料の $x=0$ 面を一定のふく射熱流束 H でステップ状に加熱した場合の $x=l$ における温度応答 θ は、最初の温度を T_0 とすれば式(1)で示される⁽⁵⁾⁽⁶⁾。

$$\theta = T - T_0 = \frac{2H}{\lambda} \left\{ \left(\frac{at}{\pi} \right)^{1/2} \cdot \exp\left(-\frac{l^2}{4at}\right) - \frac{l}{2} \operatorname{erfc} \frac{l}{2\sqrt{at}} \right\} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$t=\delta$ において $H=0$ となる方形波パルス状に加熱⁽⁷⁾した場合の $x=l$ における温度応答は、式(1)から $t=\delta$ において同様にステップ状加熱を行った場合の解

を減算することにより与えられる。 $x=l$ において温度応答を測定し、測定された温度の時間変化から、 $\theta_2/\theta_1=1/2$ となるように2点の時刻 t_1, t_2 を選びおのの式(1)に代入し、連立させて解き、測定に用いた l および δ を代入すれば、未知数は熱拡散率 a だけになる。したがって、 a について解けば熱拡散率を算出することができる。一方、ふく射熱流束 H を測定により求めれば、この H の値および熱拡散率 a の値、そのとき用いた θ, t, l を、さらに方形波パルス状加熱を用いた場合には δ をも式(1)に代入することにより、未知数は熱伝導率 λ だけになる。したがって、これを解けば熱伝導率も算出することができる。

本測定では、 x 方向に半無限長の試料を仮定するが、長さ L の試料を半無限長と見なし得る条件は、この試料の $x=l$ における温度と式(1)に示される半無限長を仮定した場合の $x=l$ における温度との差が十分小さいことである。試料を有限長とした場合⁽⁵⁾と式(1)に示す半無限長の場合の温度応答曲線を計算し、 10^{-4}°C 以上の差が発生しないことを確認することにより、試料を半無限長とみなした。

3.2 測定装置 図2に熱定数測定装置を示す。容器の中にトナー保持部が設置され、容器の下方からハロゲンランプによりふく射熱流束が投与される。トナー保持部はクロムニッケル鋼製のボビン、遮光板およびポリエステル製の光透過フィルムより成る。ボビンと最上段の遮光板との間に光透過フィルムが挟まれた状態でボビン上端の開口位置から自然落下により、試料となるトナーが充てんされる。ふく射光は光透過フィルムの上面($x=0$)において試料に照射される。ボビンの内外径はそれぞれ18, 22 mmで、光透過フィルムの厚さは0.1 mmである。遮光板はふく射光の測定部雰囲気への漏れによる雰囲気温度上昇の防止および絞りに用いられ、最終絞り径は19 mmである。ふく射

図1 座標系

光の照射はランプの ON-OFF により行われる。光センサには接合部を黒色にした熱電対を用いた。なお、ふく射光の立上りやセンサの検知タイミングなどの遅れは測定時間に対して十分に小さいことを確認している。

温度応答の測定には素線径 0.1 mm の T 熱電対が用いられた。銅線とコンスタンタン線はそれぞれ張力がかけられた状態でボビン中心において直交するように設置され、接合部の x 方向位置はディプスマイクロメータにより 1/100 mm のオーダまで測定された。熱電

対の出力信号は光センサの出力信号とともにペンレコーダに記録される。この出力波形の一例を図 3 に示す。記録された温度応答曲線および光センサの ON-OFF タイミングから $\theta_2/\theta_1=1/2$ を満たす t_1, t_2 および δ を読み取り、式(1)に代入して、熱拡散率を算出する。なお、図 3 中センサ出力レベルが低い期間が存在するが、これは、センサ出力を停止させたためである。

熱伝導率の算出や熱損失の見積もりに必要なふく射熱流束 H は、表面に黒色塗料を塗布した直径 18 mm、厚さ 0.25 mm の銅板を光照射面 ($x=0$) に設置してふく射光を照射し、そのときの銅板の裏面の温度上昇および銅板の比熱、比重を用いて見積もられた⁽⁷⁾。

熱伝導率は、測定された熱流束 H および熱拡散率 a 、さらに熱拡散率測定に用いた θ_1, t_1 などの測定条件を式(1)に代入し逆算することにより求められた。熱拡散率や熱伝導率の算出にはパーソナルコンピュータ (日立: LEVEL 3) が用いられた。

3.3 固体試料での測定 固体試料およびトナーの測定条件を表 1 に示す。本測定装置におけるふく射光の均一性などの装置特性を総合的に確認するため、熱拡散率が既知の固体試料の測定を行った。試料には、クロムニッケル鋼 (18Cr-8Ni) が用いられた。熱損失を最小にするため光透過フィルムは設置されず、容器内も真空 (約 90 Pa) とした。ステップ加熱による $t_1=8\sim 18$ s の測定結果 5 点を算術平均し、 $a=4.6\times 10^{-6}$ m²/s を得た。また、測定値の標準偏差は平均値に対して 8.6% であった。この測定値は文献値⁽⁸⁾ ($a=4.4\times 10^{-6}$ m²/s) と近い値を示し、本装置による固体試料の熱拡散率の測定が可能であることが確認された。

3.4 測定誤差の検討 本装置において、空気との混合状態にある粉体状のトナーを試料に用いたことに起因する誤差について検討を行う。測定条件は表 1

図 2 測定装置

図 3 出力波形例

に示すとおりである。トナーの照射光に対する吸収率は約1.0であるため、トナーの光吸収に起因するふく射熱流束 H の減少に伴う誤差は無視し得る。その他の検討すべき誤差の要因として、トナーが粉体であるため光透過フィルム上にたい積したトナーの下面は凹凸を有し、光照射位置が厳密には $x=0$ 面とならないこと、および空気雰囲気での測定のため、熱損失が存在することが挙げられる。

トナーの粒径は5~25 μm の範囲に分布し、分布の極大値は通常10~20 μm の間に現れる。すべてのトナーがこの分布の最大粒径である25 μm の真球で最密に充てんされたと仮定した場合、照射光が及ぶ最大深さは30 μm となる。この場合、球の下方ほど光吸収が多いため、等価的光吸収位置はその1/2(15 μm) 以下になる。実際には、25 μm より小径の粒子が大多数を占めるため、光吸収位置はさらに低いと考えてよい。測定位置が15 μm 減少したとして式(1)を計算し、得られた温度応答曲線と表1に示す測定条件を用いて逆算された熱拡散率および熱伝導率からの誤差の見積もりを行ったが、これに起因する誤差は3%以下であった。

次に熱損失に起因する誤差の見積もりを行った。検討には、有限要素法(解析コードADINA-T)によるシミュレーションが用いられた。本測定装置を計算領域として計算された温度応答曲線から得られた値を式(1)に代入して求めた熱拡散率とこの有限要素法計算に物性定数として用いたトナーの熱拡散率との比較を行った。その結果、熱損失に起因する誤差は、表1に示す測定条件において、-5%以内となった。

4. 測定結果および考察

4.1 トナーの有効熱拡散率と有効熱伝導率に与える因子の影響

トナーは一般に、スチレンアクリルやエポキシなどの無定形高分子から成る樹脂に帯電制御剤、着色剤などの種々の物質が混入され、粒径5~25 μm の粒子状に粉碎された粉体である。スチレンアクリル樹脂から成るトナーはスチレンアクリル系トナーと呼ばれ、エポキシ樹脂から成るトナーはエポキシ系トナーと呼ばれる。トナーはこのように種々の物質の混合物から成る粉体で、しかも粒子間には空気が存在するため、その有効熱定数に寄与する因子として考えられるものには、粒子間の空気と粒径、含有物質の熱定数とその配合比、樹脂の熱定数などが考えられる。本報では、これらの因子がトナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率に与える影響について調べ、これらの有効熱定数が定着に与える影響についても検討す

る。なお、以下の図に示す有効熱拡散率および有効熱伝導率の測定値は、表1に示される条件における5点の測定値の算術平均で示した値で、測定値の標準偏差は平均値に対して2%以内である。

図4に市販されている種々のトナーの有効熱拡散率と有効熱伝導率の関係を示す。図4中、同一の番号が付けられた値は、同一種のトナーの測定結果である。空気中のデータ(0.1 MPa)に限れば、有効熱伝導率が大きいトナーほど、有効熱拡散率も大きい傾向を示す。これは、熱伝導率と熱拡散率の比によって定義される単位体積あたりの熱容量の変化が小さいことを示している。この傾向は、同一の相状態であれば、物質の種類が変わっても単位体積あたりの熱容量の差は小さいという一般的傾向⁹⁾に一致する。

図4には、トナーの有効熱定数に寄与する粒子間の空気の影響を検討するため、番号1および5のトナーについて真空中(約90 Pa)での測定結果を示してある。真空中では、有効熱拡散率、有効熱伝導率とも樹脂の種類によらず空気中での測定結果に比較して著しく低い値となる。これは、真空中では熱流束は粒子どうしの接触点を介してのみ伝導することによる。空気中でトナーの有効熱定数が増加する傾向は、粒子どうしの接触点のみならず、トナー粒子の表面から粒子間の空気に直接的に伝導する熱流束も相当量存在することを示すものである。したがって、空気中のたい積層としてのトナーの有効熱定数には、粒子間の空気の寄与

表1 測定条件

SPECIMEN	H(W/m ²)	δ (s)	l (mm)	L(mm)
18Cr-8Ni STEEL	4150	40	3	40
TONER	1480	30	3	40

図4 有効熱拡散率と有効熱伝導率の関係

が大きい。

上述の粒子間空気の影響から、トナーの有効熱定数には粒径が影響すると考えられる。図5に有効熱拡散率および有効熱伝導率に与えるトナーの平均粒径の影響を示す。これは、試料によらず、粒径分布は5~25 μm であるが、分布の平均値が試料によって異なることを意味する。試料には、スチレンアクリル系トナーが用いられ、樹脂の組成と分子量および含有物質の種類とその配合比は等しい。スチレンアクリル樹脂は、アクリル酸ブチルまたはメタクリル酸ブチルとスチレンの共重合体であるが、以下の検討に用いられるスチレンアクリル系トナーは、メタクリル酸ブチルとスチレンの共重合体を樹脂としたものである。なお、測定は空气中において行われた。有効熱拡散率、有効熱伝導率とも平均粒径の減少に伴って増加する傾向を示す。この原因は、粒径が小さいほど単位体積あたりの空気と接するトナー表面積が増加することおよびトナー粒子どうしの接触点が増加することにあると考えられる。

トナーの有効熱定数に与える含有物質の影響の一例として、トナーの炭素配合比を変化させて有効熱定数を測定した。図6に有効熱拡散率および有効熱伝導率に与える炭素配合比(wt.%)の影響を示す。測定は空气中において行われた。試料には、スチレンアクリル系トナーおよびエポキシ系トナーが用いられ、それぞれ、炭素配合比以外の含有物質の種類とその配合比および樹脂の組成と分子量を等しくしたものである。樹脂によらず、炭素配合比が高いほど、有効熱拡散率および有効熱伝導率とも増加する傾向を示す。この理由は、炭素の熱拡散率および熱伝導率が樹脂に比較して高いため、配合比の少量の増加でもトナーの有効熱定数に影響を与えるものと考えられる。しかし、より厳密には、トナーに混入される含有物質は炭素以外にも種々存在するため、個々の物質の影響についてはその量や種類を変化させて調べる必要がある。

図5 粒径の影響

トナーの有効熱定数に与える樹脂の影響を調べるため、樹脂の分子量を変化させて有効熱定数を測定した。図7に有効熱拡散率および有効熱伝導率に与える分子量の影響を示す。測定は空气中において行われた。試料には、スチレンアクリル系トナーが用いられ、含有物質の種類と配合比は、すべての試料で同一である。図7中、白抜きの点は、樹脂におけるメタクリル酸ブチルとスチレンの配合比を等しくしたトナーの測定結果である。分子量の増加に伴って、有効熱拡散率および有効熱伝導率とも増加する傾向を示す。分子量が大きいほど、樹脂の密度は増加する。本測定の結果は、高分子の場合密度が大きいほど熱伝導率が高いという一般的傾向⁽⁹⁾に合致する。したがって、樹脂の分子量の増加による樹脂そのものの熱定数の増加に依存して、トナーの有効熱定数が増加したものと考えられる。

4.2 トナー温度への有効熱定数の影響 記録紙

図6 炭素配合比の影響

図7 分子量の影響

図8 トナーと記録紙の界面の温度変化

とトナーの界面近傍の温度は定着に大きく影響し、界面の温度が高いほど定着強度は高い⁽¹⁾。トナーの有効熱定数を変化させてトナーと記録紙の界面温度の変化を計算した結果を図8に示す。計算には、有限要素法による一次元計算が用いられた。モデルは前報⁽¹⁾と同様で、トナー（たい積厚さ $15\mu\text{m}$ ）と記録紙（厚さ $80\mu\text{m}$ ）の2層から成り、トナー層の上面に $q=5.0\times 10^3\text{ J/m}^2$ のふく射熱量が投与される。また、ふく射熱流束の波形も前報⁽¹⁾と同様である。図8の横軸に示す t は熱流束が投与されてからの時間である。トナーの有効熱定数には図4に示す番号1, 7のトナーの値を用い、番号1のトナーについては真空中での有効熱定数を用いた計算結果も示してある。なお、融解に伴う非線形性については考慮されていない。

真空中の有効熱定数を用いた計算結果は、空気中の結果に比較して著しく低い温度となる。定着は空気中で行われるため、トナーの熱定数評価には空気との混合状態における値を用いる必要があることがわかる。

空気中の有効熱定数を用いた計算結果についてみれば、有効熱拡散率および有効熱伝導率が高いトナーほど極大値が高い。したがって、界面温度を高めるには、トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率を増加させればよい。

最後に、トナーの有効熱定数は種々の因子の影響を

受けるが、その有効熱拡散率や有効熱伝導率を増加させて定着強度を高めることを試みる場合には、因子が溶融粘度などの溶融特性に与える影響をも考慮する必要があることを書きとめておく。

5. 結 論

半無限長が仮定された試料にふく射加熱を適用した熱拡散率の測定法を用いて空気中の粉体状トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率の測定を試み、以下に述べる結論を得た。

(1) 有効熱伝導率が高いトナーほど有効熱拡散率も高い。

(2) トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率は、粒子間の空気の寄与により増加する。

(3) 平均粒径の減少に伴って、トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率とも増加する傾向を示す。

(4) 炭素配合比が高いほど、トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率とも増加する傾向を示す。

(5) トナー樹脂の分子量の増加に伴って、有効熱拡散率および有効熱伝導率とも増加する傾向を示す。

(6) トナーの有効熱拡散率および有効熱伝導率が高いほど、トナーと記録紙の界面温度は増加する。

トナーの有効熱拡散率と有効熱伝導率に与える諸因子の影響とトナーと記録紙の界面温度への有効熱定数の寄与について述べた。今後、高温の溶融状態での特性も考慮したより厳密な定着時の温度場の解析を行う予定である。

文 献

- (1) 三矢・ほか3名, 機論, 54-502, B(1988), 1476.
- (2) Kocher, H. S., *IEEE IAS Conf. Record*, (1979), 34.
- (3) 荒木, 機械の研究, 35-10(1983), 1121.
- (4) 荒木, 機械の研究, 35-11(1983), 1251.
- (5) Carslaw, H. S. and Jaeger, J. C., *Conduction of Heat in Solids*, 2nd Ed., (1959), 75, 112, Oxford Pr.
- (6) Kato, K., ほか3名, *J. Phys.*, E, 8-6(1975), 461.
- (7) 小林・ほか1名, 機論, 46-407, B(1980), 1318.
- (8) 伝熱工学資料, 改定第3版, (1980), 294, 297.
- (9) 甲藤, 伝熱概論, (1980), 11, 31, 養賢堂.