

種々のスラリー評価に基づくセラミックス シート成形用スラリーの最適化に関する研究

小宮, 優衣 / KOMIYA, Yui

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学研究科編

(巻 / Volume)

65

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2024-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00030651>

種々のスラリー評価に基づく セラミックスシート成形用スラリーの最適化に関する研究

RESEARCH ON OPTIMIZATION OF SLURRY PREPARATION CONDITIONS FOR CERAMIC SHEET FORMING BASED ON VARIOUS SLURRY EVALUATIONS

小宮優衣

Yui KOMIYA

指導教員 森隆昌

法政大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程

In our previous reports, we indicated that sedimentation and drying tests, which can simulate the particle concentration process of a slurry, are effective in predicting green body density for aqueous tape casting. Thus, in this study, we investigated the relationship between the slurry properties and the green sheet density for non-aqueous slurries whose solvent was water/ethanol mixture. The relative viscosity, sediment density, and dried sediment density were measured for slurry characterization. It was shown that the packing fraction of the green sheet increased with an increase in ethanol amount in the mixed solvent. For the slurries used in this study, both the relative viscosity and the packing fraction of the dried sediment had a good connection to the packing fraction of the green sheet.

Key Words : Mixed solvents , Slurry , Ceramic

1. 緒言

粒子が液体に分散されているスラリーは、積層セラミックスコンデンサーや電子部品の基板等の製造で使用されている。その中でもシート成形プロセスは、スラリーをフィルムの上にシート状に塗布して成形し、その後乾燥、焼結工程等を経て製品となる。しかしこのプロセスでは、焼結行程で成形体中に含まれる空隙や欠陥を完全に除去することができない。そのため成形体の段階で欠陥のない均質で緻密な構造を作る必要がある。そしてこの成形体を得るためにはスラリー調製を工夫することが重要となる。

過去に我々の研究室では、成形体密度を予測するにはスラリーの粒子濃縮過程を模擬できる沈降試験と乾燥試験が有効であると報告した[1][2]。しかしながら、溶媒組成が乾燥過程で変化するスラリーにおいては、試験中に溶媒組成が変化しない沈降試験ではなく、乾燥試験でしか成形体の充填率を予測できないのではないかと考えられる。セラミックスシート成形では混合溶媒を用いたスラリー調製が行われることがあり、混合溶媒を用いたスラリーでも成形体密度を的確に予測できることは重要である。これまでに様々な混合溶媒[3][4]を用いたシート成形の研究[5]が行われているが、成形体密度を精度よく予測できるスラリー評価法は確立されてはならず、先述の通り、我々が提案する沈降試験についても、懸念される点がある。

そこで本研究は、混合溶媒スラリーについて様々な方法で評価するとともにシート成形を行い、混合溶媒スラリーを用いたシート成形体の密度を予測する方法を確立することを目的とする。

2. 実験方法

(1) スラリー調製と成形

試料粉体にアルミナ粉末 (AES-11E, Al_2O_3 , 平均粒子径 $0.48 \mu\text{m}$, 密度 $= 3.96 \text{ g} \cdot \text{cm}^3$, 住友化学), 分散媒はエタノール (富士フィルム和光純薬) とイオン交換水の混合溶媒, 分散剤にポリカルボン酸アンモニウム溶液 (PCA, 有効成分 40%, $\text{Mw}=6000\text{-}10000$, 中京油脂), バインダーにポリビニルアルコール (PVA, $\text{Mw}=72000\text{-}86000$, 富士フィルム和光純薬) を用いた。

分散媒を任意の比率で混合し超音波バス中で 3 分間混合した後, 分散剤に加えた。これを超音波バス中で 5 分間混合し, 分散剤溶液を作製した。得られた溶液と試料粉体を 1 h ボールミル混合したスラリーを 5 分間真空脱泡, その後バインダー溶液と抑泡剤 (ノブコ 267-A, サンノブコ) を添加した後超音波バス中で 5 min 混合した。PCA 添加量は 4 mg/g-powder , PVA 添加量および抑泡剤添加量はそれぞれアルミナ粒子に対して $0.5 \text{ mass\%}$, $0.3 \text{ mass\%}$ 添加した。

完成したスラリーを用いてシート成形およびスチールカップにて乾燥成形を行った。シート成形はドクターブ

レード法を用いて厚みは 1.0 mm とし、スチールカップに投入したスラリーは 20 g とした。水 - エタノール混合比率については、11 種類（全溶媒に占める水の割合 0.65 ～ 1.0）検討した。

（２）スラリーと成形体の評価

スラリー調製直後の粒子分散状態の評価に流動特性評価及び重力沈降試験を行った。成形体充填率はアルキメデス法で測定した。

３．結果

混合溶媒中の水割合が沈降試験で得られる堆積層充填率に及ぼす影響を図 1 に示す。

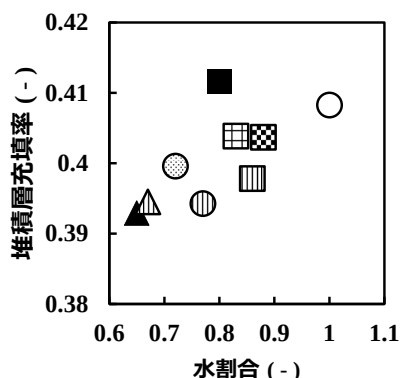


図 1 水割合と堆積層充填率の関係

図より、水割合が増加すると充填率が増加する傾向があるように見えるが、今回のスラリーではスラリーの初期濃度が同一ではないため、分散状態の違いのみが充填率に表れているわけではないので混合溶媒スラリーでも沈降試験でシート成形体密度が予測できるのかについてはさらに検討する必要がある。

図 2 に混合溶媒中の水割合がシート成形体および乾燥固化体の充填率に及ぼす影響を比較する図を示す。

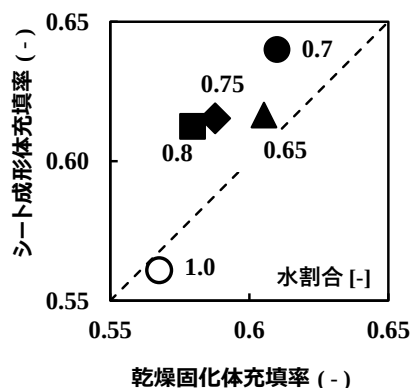


図 2 シート成形体充填率と乾燥固化体充填率の関係

図より、シート成形体の充填率と乾燥固化体の充填率との間にはよい相関が得られた。このとき相関係数は 0.735 であった。

図 3 にシート成形体の充填率とスラリーの相対粘度の比較を示す。図より、シート成形体の充填率と相対粘度との間にも良い相関が見られた。このとき相関係数は 0.692 であった。ただし、相対粘度が低い、すなわち、スラリー中の粒子が分散している水割合 65 % と 80 % について成形体充填率は、他の 3 サンプルの成形体充填率の関係から期待されるほど高くなっていない。これは乾燥過程で溶媒の組成が変わることで粒子の分散状態が変化した可能性を示唆している。

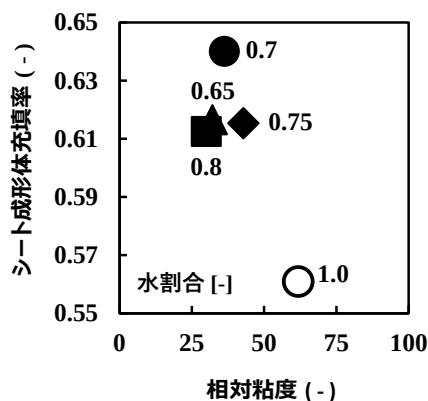


図 3 シート成形体充填率と相対粘度の関係

４．結論

今回検討したスラリーにおいては混合溶媒中の水割合が低いほど成形体の充填率は高くなった。相対粘度の低いスラリー、もしくは、乾燥固化体の充填率が高いスラリーから、充填率の高い成形体が得られた。今後、混合溶媒の組成及び分散剤・バインダー添加量を変えて様々な混合溶媒スラリーで同様の実験を行い、本研究で得られた結論の一般性を検証する。

参考文献

- 1) 岩田尚也, 湿式成形プロセス最適化に必要なスラリー特性の解明とその評価手法の開発に関する研究, 法政大学理工学研究科 博士論文, (2021).
- 2) 中澤仁志, 湿式セラミックスシート成形体密度の迅速予測法の開発, 法政大学理工学研究科応用化学専攻修士論文, (2021).
- 3) 末光瞳, お茶の水女子大学大学院 生活工学研究, 第 6 巻, 第 2 号, (2004).
- 4) 指田美和, 駒城素子, アルコール物性とその応用, お茶の水女子大 生活工学研究, 第 1 巻, 第 2 号, (1999).
- 5) Thitirat Charoonsuk, Wanwilai Vittayakorn, Naratip Vittayakorn, Panpailin Seeharaj, Santi Maensiri, Sonochemical synthesis of monodispersed perovskite barium zirconate (BaZrO_3) by using an ethanol-water mixed solvent, Ceramics International, 41, S87-S94, (2015).