

X線回折実験用粉末試料充填装置の開発

○熊澤克芳¹⁾日影達夫²⁾涌井義一¹⁾鷲見高雄¹⁾小塚基樹¹⁾

¹⁾ 工学研究科・工学部技術部 装置開発技術系

²⁾ 工学研究科・工学部技術部 分析・物質技術系

1. はじめに

X線回折実験に使用される粉末試料は、ガラスキャピラリーと呼ばれる極細管に詰められ用いられる。ガラスキャピラリーは、直径0.1mm~0.3mm、肉厚0.01mmのサイズのもので主に用いられ、ガラス製であるため脆くて折れやすく、割れやすい。そのため、これまで充填方法は手作業などで行なわれ試料の種類によっては長時間を有することが往々にしてある。そこで、我々は実験の効率化を図るため短時間に試料を充填できる装置を開発することとし、試料充填装置を考案・試作し評価実験を行った。

以下に、その結果について報告する。

2. 装置の概要

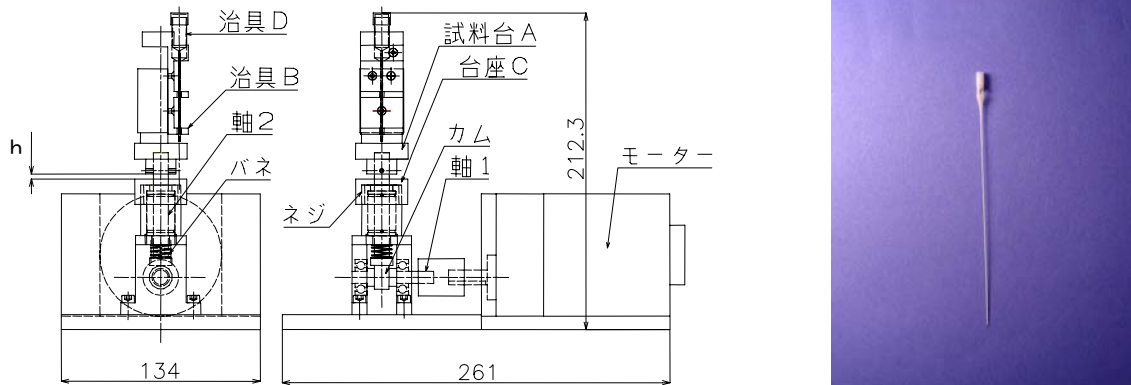


図1 装置概要とガラスキャピラリー

容器に粉体を充填する方法はいろいろな方法が考えられるが、試作した実験装置は、粉体を容器に入れ、この容器を一定の高さより硬い板の上などに落として衝撃を与え、充填する方法である一般的なタップ振動を用いた。実験装置の概要とガラスキャピラリー（φ0.3）の写真を図1に示す。原動機には、可変速インダクションモーター（Panasonic M81A25GV4L）と減速機を使用し回転速度を0から577rpmまで可変できる。軸2に取り付けられた試料台Aは、バネによりカムに押し付けられている。モーターの回転により、軸1に取り付けたカムにより押し上げられ、カムを外れると自重とバネの力により落下し、その落下は、台座Cにより止められる。台座Cは、ネジにより落下高さを0から5.5mmまで変えられ、衝撃の強さを変えることができる。

ガラスキャピラリーは、割れやすく長さがまちまちであり直接固定することが難しい。そのため、キャピラリーが入るPVC（直径2.0 mm、肉厚0.5 mm）、あるいはSUS製の極細管（直径0.8 mm、肉厚0.1 mm）とアクリル製の筒でできた治具Dとキャピラリーが飛びでないためのテフロンのキャップを考案した。治具Dはさらに硬質ナイロン製の治具Bにより固定し、試料台Aに取り付けられる。

3. 実験方法

粉体の見かけ比容積は、粉体の集合体としての性質のうちもっとも簡単に測定され、一般に広く使用されている。粉体の見かけ比容積は、粉体を秤量し容積目盛りをほどこした容器に入れ、その容積を読めば測定される。本実験においても見かけ比容積を測定し評価することとした。実験は主に直径0.3 mmのガラスキャピラリー（リンデマンガラス TOHO）を用いて行った。キャピラリーに電子天秤で秤量した一定量のX線回折実験用標準試料（SRM 674 a, NIST）・アルミナ（ α - Al_2O_3 ）を入れ、実験装置に取り付けた筒状の治具Dに入れ、実験装置を一定の回転数で一定時間振動させる。そのときの最下部よりの充填試料の高さを測定するわけであるが、測定物が治具Dの中にあるためそのまま測定することは困難である。そのため、装置を1分間ずつ振動させ、そのつど治具Dよりキャピラリーを取り出し、充填状態をプライス盤主軸に取り付けた拡大鏡で観察しながらマグネスケールで底辺からの充填高さを測定した。また、渦電流式変位センサを用いて振動波形を測定した。

4. 実験結果

試料台Aが落下するストロークを1 mmから3.5 mmまで、モーターの回転数を変速目盛で2から10まで変えて測定を行った。しかしながら、衝撃の強さ（ストローク）と回転数の違いによる明確な関係は見られなかった。図2にストローク3.5 mm、モーター回転数574 rpmで0.43 mgの粉末試料を充填したときの充填時間と充填の変化の1例を示す。見かけ密度は測定値と計算により求めた。見かけ密度の逆数が見かけ比容積である。時間経過とともに充填が進行していくのがわかる。

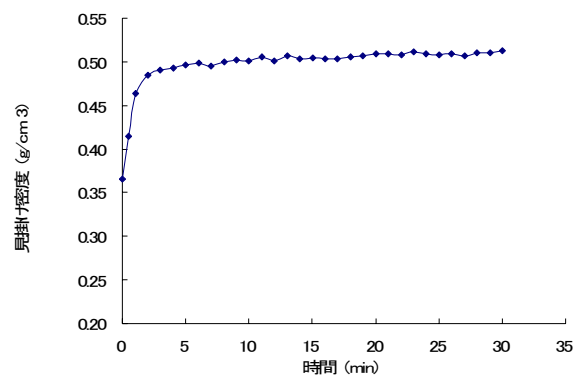


図2 充填時間と見かけ密度

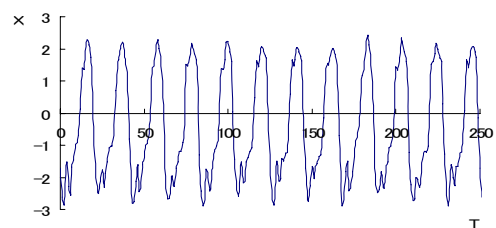
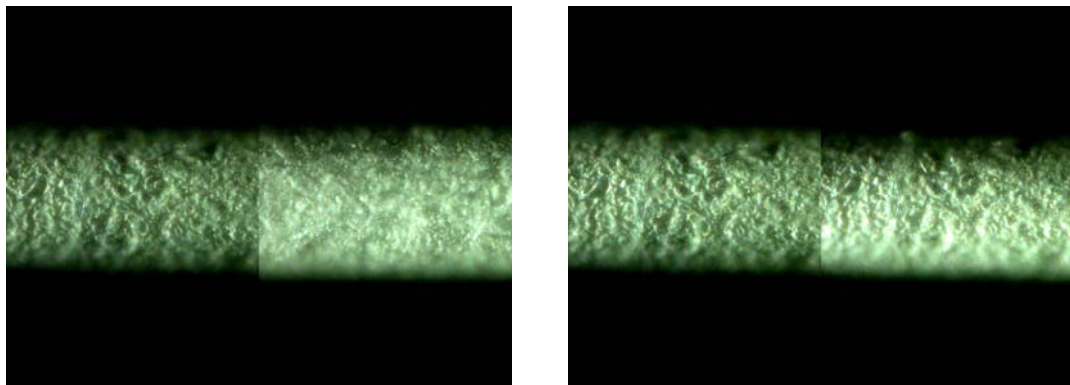


図3 振動波形（3.5 mm, 574 rpm）

図3に同条件の振動波形を示す。図4は、充填条件の異なる充填後のキャピラリーをキーエンス（株）のデジタルマイクロスコープで300倍に拡大し、比較した写真である。2枚とも左側はストローク1.5 mm・187 rpmで充填したキャピラリーを拡大したものである。



1.5 187rpm 2.5 310rpm 1.5 187rpm 3.5 574rpm

図4 充填条件の違う充填状態の比較

見かけ密度の計算値に充填条件による差はあるが、この拡大写真ではあまり大きな差は確認できない。試作した充填装置は、おおむね10分で一様にキャピラリーに充填できることがわかった。

5. X線回折実験

粉末試料充填装置の最終的な評価法として、キャピラリーに充填した粉末試料を実際にイメージングプレートX線回折装置RAXIS-IV (Rigaku) を使用してX線回折実験を行った。CuK α 線(45kV-45mA)で直径0.3mmのキャピラリーに静止状態で10分露光したものである。その結果のデバイリングを図5に示す。粉末X線回折実験において良い試料とはデバイリング上の強度が、均一になる試料である。図6に示したグラフは、図5のデバイリングの原点を中心に6ピクセル(1ピクセルは100ミクロン)水平方向に切り出したデータを積分し1次元化したデータと、原点を中心に全体を1次元化したデータを比較したものである。

グラフから、多少バックグラウンドが高く低角度側にシフトしているがほぼ同じ回折データが得られている事がわかる。

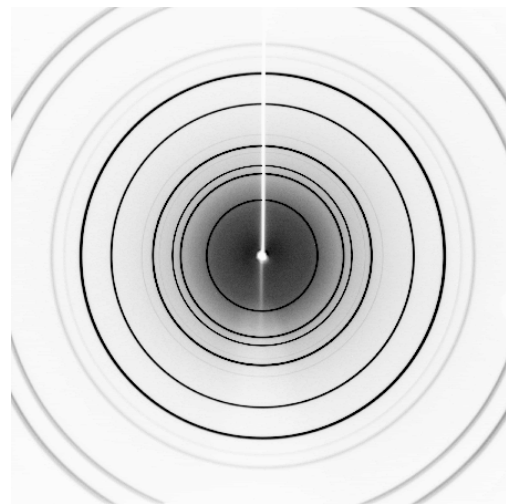


図5 デバイリング

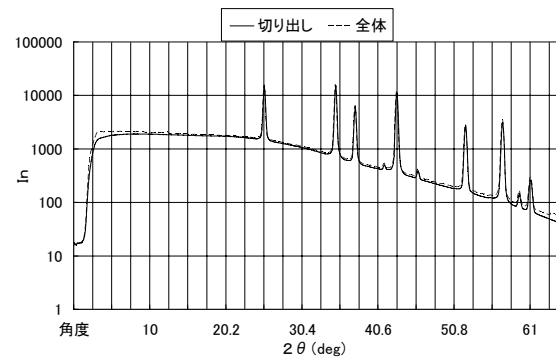


図6 1次元化回折データ

6. まとめ

粉体粒子の個々の性質と、集合体の示す性質との間の定量的関係は、まだ十分に解析されているわけではなく、集合体の性質を表す量として、

見掛け比容積：単位質量の粉体が充填されて占める容積

見かけ密度：見掛け比容積の逆数

空隙率：充填された粉体の占める容積に対する粉体層中の空隙の容積の割合

などの諸量が使用されているが、実際には容器

に粉体を充填する方法によって測定値が非常に変動し、測定が困難となっている。図7に文献[1]より種々の粒度の α アルミナのタップ充填による見掛け密度の変化を示す。容積の目盛りをほどこした直径1 cmの試験管に微粉体をいれタップ充填したときのタップ回数と見掛け密度の関係は、回数が増すとともに粒子の付着力、ひっかかり、摩擦などに打ち勝って圧密が進行し最終見掛け密度に近づくことが報告されている。本研究においても見掛け密度による評価を試みたが、充填容器はガラスでしかも極細管であり内容積が一定ではなく、さらに筒状の治具に入るといった装置の構造のためか充填高さの再現性の良い結果がえられなかったため、見掛け密度に関しては概念的なものにとどまった。しかし、時間（タップ回数）とともに圧密が進行していくことは拡大観察と数十本のガラスキャピラリーに充填できたことより確認された。また、粉末試料充填装置の最終的な評価法として行った粉末X線回折実験によりこの装置がX線回折実験用粉末試料充填装置として十分な性能であることが証明された。

最後に、開発したX線回折実験用粉末試料充填装置はタップ充填式であるため騒音が激しい。機会があれば改良するつもりでいる。

この研究は、平成16年度奨励研究（「X線回折実験用粉末試料充填装置の開発」

課題番号：16919079）に採択されて行っている。

謝辞

この研究を行うにあたりご協力・ご助言いただいた工学部・工学研究科マテリアル理工学専攻応用物理学分野坂田研究室並びに高田昌樹氏（JASRI）、加藤健一氏（JASRI）に厚くお礼申し上げます。また、快く測定機器をお貸しいただいた駒井慎一氏と工学部・工学研究科化学・生物工学専攻応用化学分野薩摩研究室の皆様には感謝の意を表します。

参考文献

- | | | |
|--------------|-------------|---------|
| [1] 超微粒子応用技術 | 日本粉体工業技術協会編 | 日刊工業新聞社 |
| [2] 粉体 理論と応用 | | 丸善株式会社 |
| [3] 振動応用技術 | | 工業調査会 |

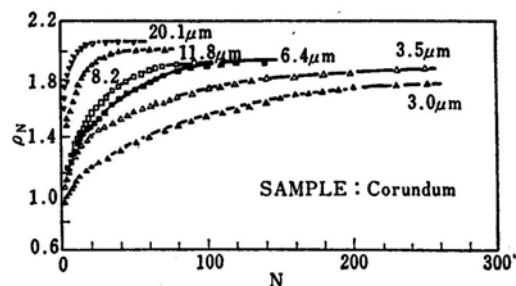


図7 種々の粒度の α アルミナのタップ充填による見掛け密度の変化