



(19)

österreichisches  
patentamt

(10)

AT 413 509 B 2006-03-15

(12)

# Patentschrift

- (21) Anmeldenummer: A 9008/2001 (51) Int. Cl.<sup>7</sup>: B28B 3/26  
DE01/004415 B29C 47/16
- (22) Anmeldetag: 2001-11-23
- (42) Beginn der Patentdauer: 2005-08-15
- (45) Ausgabetag: 2006-03-15

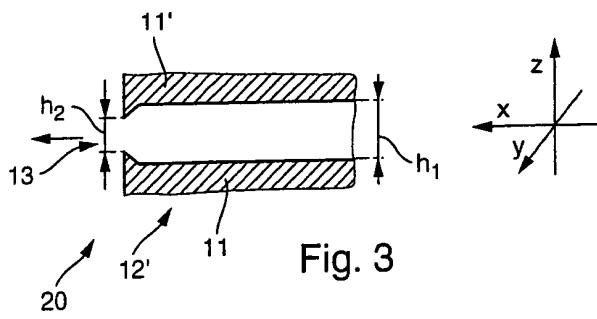
(30) Priorität:  
09.02.2001 DE 10105896 beansprucht.

(56) Entgegenhaltungen:  
JP 62-290502A JP 05-179309A  
US 6106268A

(73) Patentinhaber:  
ROBERT BOSCH GMBH  
D-70469 STUTTGART (DE).

## (54) DÜSE, INSbesondere ZUR EXTRUSION VON KERAMISCHEN GRÜNFOLIEN

- (57) Es wird eine Düse zur Herstellung von Flachprofilen, insbesondere eine Breitschlitzdüse zur Extrusion keramischer Grünfolien, vorgeschlagen, die einen schlitzförmigen Düsenauslauf (20) aufweist, der in einer Austrittsöffnung (13) mündet. Dabei verengt sich die Höhe des schlitzförmigen Düsenauslaufes (20) beginnend in einem Abstand von 1 mm bis 5 mm vor der Austrittsöffnung (13) bis hin zu der Austrittsöffnung (13). Bevorzugt ist der Düsenauslauf (20) von einer ersten Lippe (11) und einer dieser gegenüber angeordneten, zweiten Lippe (11') gebildet, die außerhalb der unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung (13) zumindest bereichsweise einen konstanten ersten Abstand ( $h_1$ ) und an der Austrittsöffnung (13) einen zweiten, gegenüber dem ersten Abstand ( $h_1$ ) kleineren Abstand ( $h_2$ ) aufweisen, wobei sich der erste Abstand ( $h_1$ ) der Lippen (11, 11') in dem Bereich der unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung (13) linear auf den zweiten Abstand ( $h_2$ ) verengt.



Die Erfindung betrifft eine Düse zur Herstellung von Flachprofilen, insbesondere eine Breitschlitzdüse zur Extrusion von keramischen Grünfolien mit einem schlitzförmigen Düsenauslauf, der in einer Austrittsöffnung mündet.

- 5 Zur Extrusion von beispielsweise polymergebundenen keramischen Flachprofilen, d.h. Folien bzw. Grünfolien, wird üblicherweise eine Extrusionsanlage mit einer Breitschlitzdüse eingesetzt, die eine aus der Kunststofftechnik bekannte Düsenbauart aufweist. Solche Düsen bestehen, wie in Figur 1 dargestellt, aus einem Zulauf, einem Verteilerkanal mit einem Drosselfeld und einem Düsenauslauf bzw. einem Mundstück mit einer variablen Spalthöhe, d.h. einer sogenannten "Flex-lip", mit der die Dicke der extrudierten Flachprofile einstellbar ist.
- 10

Die Extrusion von insbesondere keramischen Profilen unterscheidet sich jedoch in zwei Punkten grundlegend von der Kunststoffextrusion. Zum Einen ist die Viskosität bzw. im Fall strukturviskoser Stoffe, bei denen die Viskosität von der Schergeschwindigkeit abhängt, präziser die 15 Strukturviskosität, extrudierter keramischer Massen höher als die von Kunststoffen und zum anderen hat eine keramische Masse im allgemeinen eine Fließgrenze. Weiter ist bei der Extrusion von keramischen Flachprofilen zu beachten, dass die nachfolgenden Weiterverarbeitungsschritte, wie beispielsweise ein Entbinden oder ein Sintern, sehr empfindlich auf in den extrudierten Flachprofilen eingefrorene Spannungen reagieren.

- 20 Dazu erläutert Figur 2 das Geschwindigkeitsprofil einer mit einer üblichen Breitschlitzdüse extrudierten keramischen Masse im Düsenauslauf für verschiedene stark ausgeprägte Viskositäten der extrudierten keramischen Massen, wobei erkennbar ist, dass die Fließgeschwindigkeit an den Rändern der Düse jeweils Null und in der Mitte maximal ist. Die Viskosität bzw. Strukturviskosität der extrudierten keramischen Masse ist dabei durch den sogenannten Fließexponenten  $m$  charakterisiert, der definiert ist durch:
- 25

$$\dot{\gamma} = \Phi \tau^m$$

- 30 wobei  $\dot{\gamma}$  der Gradient der Fließgeschwindigkeit, d.h. die Schergeschwindigkeit in der extrudierten Masse,  $\Phi$  die Fluidität und  $\tau$  die Schubspannung ist. Entsprechend gilt für die Viskosität bzw. Strukturviskosität  $\eta$  der keramischen Masse:

$$\eta = \Phi^{-\frac{1}{m}} \dot{\gamma}^{\frac{1}{m}-1}$$

- 35 In Figur 2 ist erkennbar, dass die Schergeschwindigkeit  $\dot{\gamma}$  im Mittelpunkt des Düsenauslaufes Null und am Rand maximal ist. Die Schergeschwindigkeit an den Rändern der Düse wird mit  $\dot{\gamma}_w$  bezeichnet. Die Wandscherrate  $\dot{\gamma}_w$  errechnet sich bei gegebenem Volumendurchsatz  $\dot{V}$  zu:

$$\dot{\gamma}_w = 2(m+2) \frac{\dot{V}}{H^2 B}$$

- 40 wobei  $m$  wieder der Fließexponent der extrudierten Masse und damit ein Maß für die Strukturviskosität für diese Masse ist, und wobei  $H$  die Höhe der Breitschlitzdüse am betrachteten Ort und  $B$  deren Breite ist.

Aus Figur 2 ist insbesondere entnehmbar, dass bei einem Vorhandensein einer Fließgrenze bzw. bei einem hohen Fließexponenten  $m$  eine Scherung des extrudierten Materials nahezu ausschließlich im Randbereich der Düse auftritt. Diese Scherung bewirkt im Fall extrudierter, 45 polymergebundener keramischer Massen eine Orientierung der diesen Massen zugesetzten Bindermoleküle, was bei einer nachfolgenden Aufbautechnik der extrudierten Flachprofile, beispielsweise einem Bedrucken mittels Siebdruck bzw. einer Lamination, eine erhebliche Nachschrumpfung der extrudierten Flachprofile hervorrufen kann. Da weiter durch die unterschiedlichen Schergeschwindigkeiten sich ein Grad der Molekülorientierung in den extrudierten Flachprofilen einstellt, der über die Dicke dieser Folie nicht konstant ist, kann eine derartige Nach-

50

55

schrumpfung bzw. Relaxation, die mit einer makroskopischen Formänderung verbunden ist, in der Regel nicht vollständig ablaufen. Somit bleiben bisher stets innere Spannungen zurück, die sich bei nachfolgenden Druckschritten bzw. Laminationsschritten als unerwünschte Geometrieveränderungen (Schrumpf) bemerkbar machen. Weiter tritt bei einem nachgeschalteten Sintern häufig auch eine blätterteigartige Delamination im Bereich der Folienoberflächen auf.

In der JP 62 290 502A wird die Herstellung dünner, folienartiger Grünplatten mittels Extrusion unter Verwendung einer Breitschlitzdüse geoffenbart, wobei sich die Höhe des schlitzförmigen Düsenauslaufes in der Nähe der Austrittsöffnung kontinuierlich zur Austrittsöffnung hin verengt.

Diese Verengung beginnt genau 60 mm vor der Austrittsöffnung, wodurch es ebenfalls zu den oben beschriebenen unerwünschten Scherungen des extrudierten Materials kommt.

In der US 6 106 268A sowie in der JP 05 179 309A sind ebenfalls Vorrichtungen geoffenbart, die zwar eine Verengung in einer Leitung aufweisen, diese sich jedoch bereits vor der Austrittsöffnung befindet und die Leitung anschließend mit konstantem Innendurchmesser bis zur Austrittsöffnung fortgeführt wird. Bei derartigen Ausgestaltungen der Leitung kommt es ebenfalls zu den oben beschriebenen Nachteilen durch Scherungen des extrudierten Materials.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war die Bereitstellung einer Düse zur Herstellung von Flachprofilen, die die vorgenannten Nachteile vermeidet und insbesondere eine homogenere Schergeschwindigkeit und einen homogeneren Gradienten der Molekülorientierung über die Dicke der extrudierten Flachprofile gewährleistet.

Die erfindungsgemäße Düse zur Herstellung von Flachprofilen hat gegenüber dem Stand der Technik den Vorteil, dass die damit hergestellten Flachprofile bei einem nachgeschalteten Tempern eine gegenüber dem Stand der Technik deutlich verringerte anisotrope Schrumpfung aufweisen. Weiter tritt auch eine insgesamt geringere Nachschrumpfung bei anschließend Druckschritten bzw. bei einer Lamination auf. Zudem ist vorteilhaft, dass durch die erfindungsgemäße Ausgestaltung der Düse bei einem Sintern der hergestellten Flachprofile keine blätterteigartige Delamination zu beobachten ist, und dass auch keine sogenannten "Rattermarken" durch "stick-slip" auftreten, d.h. eine unruhige schuppenartige Oberfläche des Extrudats, die durch Unstetigkeitsstellen in der Fließkurve beim Extrudieren verursacht worden ist.

Darüberhinaus ist vorteilhaft, dass abgesehen von der erfindungsgemäßen Modifikation des Düsenauslaufes, weiterhin ansonsten aus dem Stand der Technik bekannte Breitschlitzdüsen zur Extrusion von keramischen Grünfolien bzw. Kunststofffolien eingesetzt werden können. Dadurch, dass lediglich der in einem Abstand von 1 mm bis 5 mm vor der Austrittsöffnung der Düse befindliche Bereich des Düsenauslaufes durch eine besondere geometrische Ausgestaltung verändert wird, ist eine erfindungsgemäße Düse weiter einfach herstellbar und in bestehende bzw. bekannte Extrudieranlagen integrierbar. Damit ist der Aufwand zur Fertigung der erfindungsgemäßen Düsen vergleichbar mit dem für bekannte Düsen und es fallen keine nennenswerten Investitionen in neue Extrudieranlagen an.

Vorteilhafte Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus den in den Unteransprüchen genannten Maßnahmen.

So ist besonders vorteilhaft, wenn der Düsenauslauf von einer ersten Lippe und einer dieser gegenüber angeordneten, zweiten Lippe gebildet ist, die zunächst außerhalb einer unmittelbaren Umgebung der schlitzförmigen Austrittsöffnung zumindest bereichsweise einen konstanten ersten Abstand und an der Austrittsöffnung dann einen zweiten, gegenüber dem ersten Abstand kleineren Abstand aufweisen, wobei sich der erste Abstand in dem Bereich der unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung linear auf den zweiten Abstand hin verengt. Besonders vorteilhaft ist, wenn dieses lineare Verengen von dem ersten Abstand auf den zweiten Abstand mit einem Steigungswinkel erfolgt, der an den Fließexponenten der jeweils extrudierten keramischen Masse angepasst ist.

## Zeichnungen

Die Erfindung wird anhand der Zeichnungen und in der nachfolgenden Beschreibung näher erläutert. Es zeigt Figur 1 eine aus dem Stand der Technik bekannte Breitschlitzdüse zur Extrusion keramischer Grünfolien, Figur 2 das Geschwindigkeitsprofil extrudierter Massen in dem

5 Düsenauslauf der Düse gemäß Figur 1 als Funktion des Fließexponenten  $m$  und Figur 3 ein erfindungsgemäßes Mundstück einer Breitschlitzdüse gemäß Figur 1 im Schnitt. Die Figur 4 erläutert als Ausschnitt aus Figur 3 die Definition des Steigungswinkels  $\alpha$ .

## 10 Ausführungsbeispiele

Die Erfindung geht zunächst aus von einer Breitschlitzdüse 10 zur Extrusion keramischer Grün-

15 folien, wie sie prinzipiell aus dem Stand der Technik bekannt ist. Insbesondere weist eine solche bekannte Breitschlitzdüse 10 gemäß Figur 1 einen Zulauf zur Zufuhr der durch eine Aus-  
trittsöffnung 13 austretenden fließfähigen Masse und einen nachgeschalteten Verteilerkanal mit einem Drosselfeld auf, der in einen Düsenauslauf 20 bzw. ein Düsenmundstück mündet. In diesem Düsenauslauf 20 ist eine erste Lippe 11 und eine dieser gegenüber angeordnete zweite Lippe 11' vorgesehen, die zunächst einen ersten Abstand von beispielsweise 1,5 mm voneinander aufweisen, der sich dann vor der Austrittsöffnung 13 auf einen kleineren zweiten Abstand

20 von beispielsweise 0,5 mm verengt, wobei dieser zweite Abstand dann nach dem Verengen bis zu der Austrittsöffnung 13 konstant bleibt. Insofern ist gemäß Figur 1 bisher vorgesehen, dass der Abstand der ersten Lippe 11 von der zweiten Lippe 11' in der unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung 13 konstant ist.

25 Die Figur 2 zeigt das Geschwindigkeitsprofil einer keramischen Masse in dem Düsenauslauf 20 in einem Bereich 12, der an der Austrittsöffnung 13 endet, wobei auf der x-Achse die Fließge-  
schwindigkeit und auf der z-Achse die Höhe aufgetragen ist. Insbesondere ist die Fließge-  
schwindigkeit null am Ort der Wände der Lippen 11, 11'.

30 Aus Figur 2 geht hervor, dass der Gradient der Fließgeschwindigkeit, d.h. die Schergeschwin-  
digkeit in der Masse, vor allem in der Nähe der Wände bzw. Rändern der Düse 10, d.h. an den Lippen 11, 11', besonders groß ist. Dieser Effekt ist besonders ausgeprägt bei Massen, die einen hohen Fließexponenten  $m$  aufweisen bzw. bei Massen, die eine Fließgrenze besitzen.

35 Die Figur 3 zeigt in Abwandlung von Figur 1 einen erfindungsgemäßen Düsenauslauf 20 einer Breitschlitzdüse zur Extrusion keramischer, insbesondere polymergebundener Grünfolien mit einer ersten Lippe 11 und einer zweiten Lippe 11', der in einer schlitzförmigen Austrittsöffnung 13 mündet. Der Düsenauslauf 20 gemäß Figur 3 unterscheidet sich von Figur 1 dadurch, dass sich die Höhe des schlitzförmigen Düsenauslaufes 20 beginnend in einer unmittelbaren Um-  
40 gebung 12' der schlitzförmigen Austrittsöffnung 13 bis hin zu der schlitzförmigen Austrittsöffnung 13 kontinuierlich und linear verengt. Insofern weisen die Lippen 11, 11' zunächst einen konstan-  
ten ersten Abstand  $h_1$  voneinander auf, der sich dann in der unmittelbaren Umgebung 12' der Austrittsöffnung 13 linear auf den zweiten, kleineren Abstand  $h_2$  verengt.

45 Auf diese Weise wird der Düsenauslauf 20 gemäß Figur 1 mit einem langen planparallelen Mundstück in dem Bereich 12 der endgültigen Schlitzhöhe ersetzt durch einen schneidenähnli-  
chen Auslauf des Mundstückes in einem Verengungsbereich, der die unmittelbare Umgebung 12' der Austrittsöffnung 13 bildet. Der schneidenförmige Verengungsbereich 12' unmittelbar vor der Austrittsöffnung 13 führt somit zu einer Formgebung der extrudierten Flachprofile auf die gewünschte Dicke  $h_2$  erst unmittelbar vor der Austrittsöffnung 13. Da weiter vor diesem Veren-  
50 gungsbereich 12' die Höhe des Düsenauslaufes, d.h. der erste Abstand  $h_1$  größer als in dem Bereich 12 gemäß Figur 1 ist, führt dies dort zu einer verringerten maximalen Schergeschwin-  
digkeit  $\dot{y}_w$  und damit auch zu einem verringerten Schergeschwindigkeitsgradienten.

55 Durch den schneidenförmigen Verengungsbereich 12' in dem Düsenauslauf 20 gemäß Figur 3

- wird der Scherströmung dort eine Dehnungströmung überlagert, die zwar ebenfalls eine Orientierung von beispielsweise in der polymergebundenen keramischen Masse enthaltenen Polymermolekülen bzw. Bindermolekülen in x-Richtung bewirkt, diese Dehnung ist jedoch homogen über die Foliendicke, d.h. homogen bezüglich der z-Richtung. Insbesondere muss sich nun die gesamte extrudierte Masse verformen und es können nicht, wie bei einer Scherströmung, durch eine Fließgrenze Bereiche entstehen, die nicht fließen. Insgesamt wird daher durch die erfindungsgemäße Düsengeometrie der Gradient der Bindermolekülorientierung in den extrudierten Flachprofilen verringert.
- 10 Eine besonders vorteilhafte Ausgestaltung der Erfindung sieht vor, dass das lineare Verengen von dem ersten Abstand  $h_1$  auf den zweiten Abstand  $h_2$  in dem Verengungsbereich 12' mit einem Steigungswinkel  $\alpha$  erfolgt, für den zumindest näherungsweise gilt:
- $$\tan \alpha = m + 2$$
- 15 wobei  $m$  wieder der Fließexponent der durch die Austrittsöffnung 13 austretenden beispielsweise keramischen polymergebundenen Masse ist. Die Definition von  $\alpha$  ergibt sich auch aus Figur 4.
- 20 Durch die erläuterte Wahl des Winkels  $\alpha$  wird erreicht, dass die Dehnungsgeschwindigkeit und die Schergeschwindigkeit in dem Düsenauslauf 20 in der gleichen Größenordnung liegen. Insbesondere wird dadurch erreicht, dass die Dehngeschwindigkeit in dem schneidenförmigen Verengungsbereich 12' gleich der maximalen Schergeschwindigkeit, d.h. der Wandschergeschwindigkeit, ist.
- 25 Im Übrigen sei erwähnt, dass der erste Abstand  $h_1$  zwischen den beiden Lippen 11, 11' zwischen 250 µm und 40 mm liegt und insbesondere 250 µm bis 2 mm beträgt, und dass der zweite Abstand  $h_2$  an der Austrittsöffnung 13 zwischen 70 µm und 10 mm liegt und insbesondere 70 µm bis 1 mm beträgt. Insofern setzt das Verengen von dem ersten Abstand  $h_1$  auf den zweiten Abstand  $h_2$  je nach Einstellung dieser Werte und dem Steigungswinkel  $\alpha$  üblicherweise in einem Abstand von 1 mm bis 5 mm vor der Austrittsöffnung 13 ein. Dieser Bereich definiert den Verengungsbereich 12' bzw. die unmittelbare Umgebung der schlitzförmigen Austrittsöffnung 13. Die Breite der Breitschlitzdüse 10 kann bis zu 4 m erreichen.
- 30 Abschließend sei noch betont, dass der erste Abstand  $h_1$  und damit einher gehend auch der zweite Abstand  $h_2$  in bekannter Weise in der Düse 10 variabel einstellbar ist.

## Patentansprüche:

- 40 1. Düse zur Herstellung von Flachprofilen, insbesondere Breitschlitzdüse zur Extrusion von keramischen Grünfolien, mit einem schlitzförmigen Düsenauslauf, der in einer Austrittsöffnung mündet, *dadurch gekennzeichnet*, dass sich die Höhe des schlitzförmigen Düsenauslaufs (20) beginnend in einem Abstand von 1 mm bis 5 mm vor der Austrittsöffnung (13) bis hin zu der Austrittsöffnung (13) verengt.
- 45 2. Düse nach Anspruch 1, *dadurch gekennzeichnet*, dass das Verengen ein kontinuierliches Verengen ist.
- 50 3. Düse nach Anspruch 1 oder 2, *dadurch gekennzeichnet*, dass der Düsenauslauf (20) von einer ersten Lippe (11) und einer dieser gegenüber angeordneten, zweiten Lippe (11') gebildet ist, die außerhalb der unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung (13) zumindest bereichsweise einen konstanten ersten Abstand ( $h_1$ ) und an der Austrittsöffnung (13) einen zweiten, gegenüber dem ersten Abstand ( $h_1$ ) kleineren Abstand ( $h_2$ ) aufweisen, wobei sich der erste Abstand ( $h_1$ ) der Lippen (11, 11') in dem Bereich der unmittelbaren Umgebung

der Austrittsöffnung (13) linear auf den zweiten Abstand ( $h_2$ ) verengt.

- 5 4. Düse nach Anspruch 3, *dadurch gekennzeichnet*, dass das lineare Verengen von dem ersten Abstand ( $h_1$ ) auf den zweiten Abstand ( $h_2$ ) mit einem Steigungswinkel ( $\alpha$ ) erfolgt, für den zumindest näherungsweise gilt:

$$\tan \alpha = m + 2$$

10 wobei  $m$  der Fließexponent einer durch die Austrittsöffnung (13) austretenden fließfähigen Masse ist.

- 15 5. Düse nach Anspruch 3 oder 4, *dadurch gekennzeichnet*, dass der erste Abstand ( $h_1$ ) zwischen 250  $\mu\text{m}$  und 2000  $\mu\text{m}$  und der zweite Abstand ( $h_2$ ) zwischen 70  $\mu\text{m}$  und 1000  $\mu\text{m}$  liegt.

- 20 6. Düse nach einem der vorangehenden Ansprüche, *dadurch gekennzeichnet*, dass der Düsenauslauf (20) in einer unmittelbaren Umgebung der Austrittsöffnung (13) schneidenförmig ausgebildet ist.

- 25 7. Düse nach einem der vorangehenden Ansprüche, *dadurch gekennzeichnet*, dass der erste Abstand ( $h_1$ ) und/oder der zweite Abstand ( $h_2$ ) variabel einstellbar ist.

- 30 8. Düse nach einem der vorangehenden Ansprüche, *dadurch gekennzeichnet*, dass ein Zulauf zur Zufuhr der durch die Austrittsöffnung (13) austretenden fließfähigen Masse und ein nachgeschalteter Verteilerkanal mit einem Drosselfeld vorgesehen ist, der in den Düsenauslauf (20) mündet.

- 35 9. Verwendung einer Düse nach einem der vorangehenden Ansprüche in einer Extrudieranlage zur Extrusion polymergebundener keramischer Flachprofile oder Grünfolien.

## Hiezu 1 Blatt Zeichnungen

35

40

45

50

55

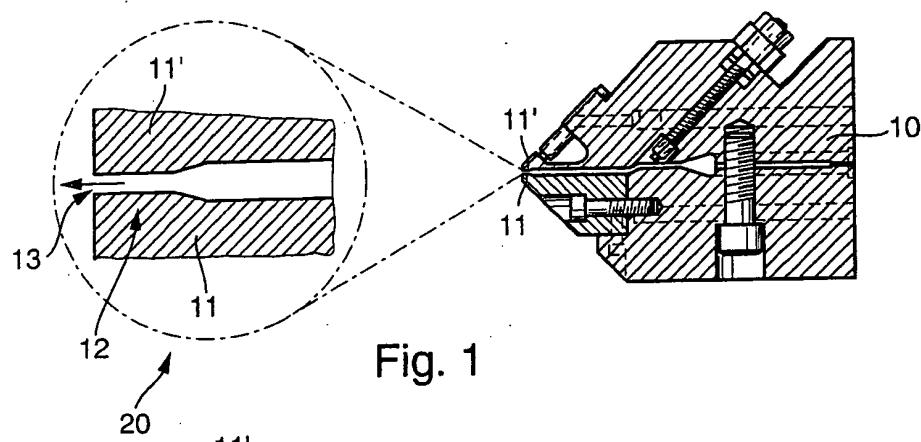


Fig. 1

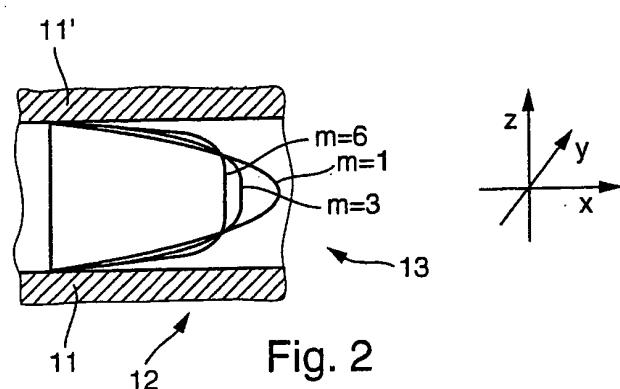


Fig. 2

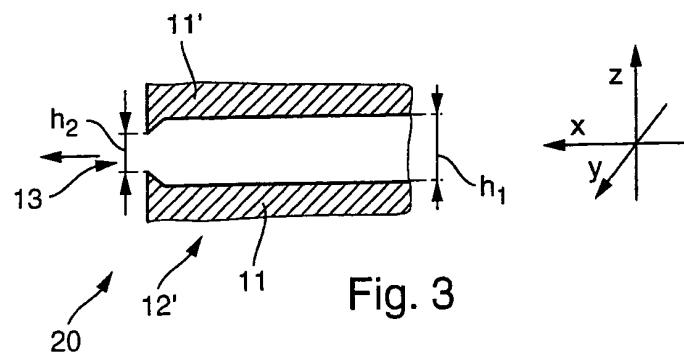


Fig. 3

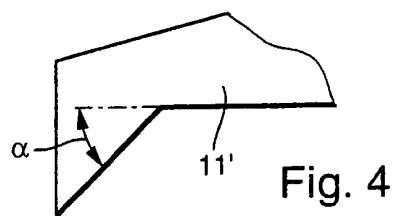


Fig. 4