顆粒強度の直接および間接測定*

武井 明彦**, 黒須 一夫**, 仙名 保**
久野 洋**

A. Takei, K. Kurosu, M. Senna and H. Kuno: Direct and Indirect Measurements of Granule Strength.

A method for the direct measurement of compressive strength of a single granule was developed and applied to model spherical granules with different sizes and strengths. A ball mill method was also used for evaluating granule strength for practical purposes. For a series of equal sized granules prepared by the same method, the rate of size reduction by ball-milling varied linearly with the compressive strength of a single granule on log-log plots.

(Received October 16, 1978)

I 緒 言

顆粒は微粉体の成型過程に不可欠な一段階であり、窯業、電子材料、薬剤など多くの分野で広く用いられている。顆粒の最も重要な特性のひとつである強度は、単一顆粒を直接に測定することにより、最も信頼性の高い値が得られ、実際そのような方法により顆粒強度のばらつきをチェックした例はある¹⁾。しかし、同方法はかなりの手数がかかるため、実際には顆粒強度は集合顆粒のバルクの性質により、間接的に評価されることが多い^{2), 3)}。本報の目的は、上述のような得失を有する両方法の結果の相関関係を追究し、簡単な測定法によって、信頼性の高い顆粒強度の値を得ることにある。すなわち、等速昇圧法による圧縮破壊強度測定装置を考案し、単一顆粒強度を測定するとともに、ボールミルによる摩砕抵抗を求め、両者を顆粒の粒度、密度などをパラメータとして比較検討した。

II 実験方法

II-1 顆粒の調製

軽質炭酸カルシウム(白石工業(株)製“PC”, 平均粒径約 2 μm , 紡垂形) 300 g に、ポリビニルピロリドンとコーンスターチを重量で 2:1 の割合で含む種々の濃度の結合剤水溶液 150 g を加え、混練機(宝工機製マイクロスピードミキサー MS-5)により、約 900 rpm で 10 min 混練した。得られたペーストを、所定の目開き(Table 1 参照)を有する篩から木製へらにより押出し、混練機の回転刃の代わりにとり付けた、凹凸のある回転円板上で球

に近く整形した。室温で 24 hr, ついで 60°C で 3 hr 乾燥して得られた顆粒を、回転ボールミル用磁製ポット中で、ボールなしで 1 hr 回転させてさらに整形し、分級したものを試料とした。試料は Table 1 に示すように、初期粒度の異なる a~d 4 系列で、各々の系列には、結合剤中の固体濃度を变化させて得た 3~5 段階の強度の異なる顆粒が含まれている。

II-2 顆粒の見かけ密度の測定

顆粒の見かけ密度 ρ_0 は、Carlo Erba 社製水銀ポシメータ用のガラス容器を用い、0.01 atm 以下に減圧した状態で水銀を導入し、常圧に戻すことによる、水銀ピクノメトリーにより求めた。この方法によれば、7.5 μm 以下の開空孔は、顆粒内空孔として測定される。

II-3 単一顆粒強度の直接測定法

単一顆粒強度測定装置の略図を Fig. 1 に示す。ロードセル I の受圧部に一粒の試料顆粒 H をのせ、カウンターバランス J により、自重によるモーメントを除去した加重ビーム E を静かにおろした。つぎに、ドレーン A のついた定ヘッド貯水槽 B より、コック C を経て、ビームに吊るした受水器 D に定流量の水を注入し、顆粒を徐々に圧縮し、そのとき顆粒にかかる力をロードセルの出力としてレコーダーで記録した。顆粒圧縮の状態は、ビーム中央付近に設けた透明の観察窓 G より、低倍率顕微鏡 F により観察し、破壊点をマーカーによりチャート上に記録した。測定は一種類の試料に対し、40~50 個の顆粒に

* 昭和53年5月本協会春季大会にて一部発表、昭和53年10月16日受理

** 慶応義塾大学工学部応用化学科、〒223 横浜市港北区日吉3-14-1

Table 1 Concentration of binder, mean diameter and compressive strength of granules.

No.	Concentration of binder solution (wt%)		Compressive strength (g)			
	PVP	Corn starch	a	b	c	d
1	7.0	14.0	390	538	1280	597
2	3.5	7.0	290	301	664	—
3	1.8	3.5	102	166	288	248
4	0.88	1.8	56	—	233	—
5	0.44	0.88	26	103	123	190
mean diameter (mm)			0.77	1.09	1.54	2.19
opening of the mesh for extrusion (mm)			0.84	1.19	1.68	2.38

Fig. 1 Apparatus for measuring compressive strength of a single granule.
A: Overflow drain, B: Reservoir, C: Valve, D: Bucket, E: Beam, F: Microscope, G: Window, H: Sample (single granule), I: Load cell, J: Counterbalance.

ついて行った。

II-4 摩砕法による顆粒強度の測定

顆粒のボールミル摩砕は、内径 58 mm、高さ 80 mm のステンレス製円筒容器中に、試料 30 g と直径 15 mm のスチールボール 4 個を入れ、70 rpm で回転させることにより行なった。3 min ごとに摩砕を中断し、全試料をとり出し、篩別して粒度分布を求めた。各系列の試料について、用いた篩の目開きの値をまとめて Table 2 に示す。以上の操作をくり返すことにより、粒度分布および平均粒径 D の摩砕時間による変化を調べた。

III 結果および検討

III-1 単一顆粒強度

II-3 に示した方法により測定した、個々の単一顆粒強

Fig. 2 Frequency and cumulative distribution of the compressive strength of a single granule.

度の分布の一例を Fig. 2 に示す。強度は必ずしも正規分布を示さないが、そのメジアン値 p_g を代表値として Table 1 に示した。Table 1 より明らかなように、 p_g は、同一系列内では、いずれも結合剤濃度の減少とともに規則的に減少している。

III-2 摩砕法による顆粒強度の評価

摩砕による粒度分布の変化から顆粒強度を求めるひとつの方法として、栗田と池上¹⁾は、平均粒径 D を、

$$D = \sum_i F_i w_i \quad (1)$$

ただし F_i は隣接した 2 個の篩の目開きの対数平均、 w_i

Table 2. Sieves and their openings, used for the granule size analysis.

a		b		c		d	
mesh	opening (mm)	mesh	opening (mm)	mesh	opening (mm)	mesh	opening (mm)
25	0.71	18	1.00	14	1.41	10	2.00
35	0.50	25	0.71	20	0.84	16	1.19
45	0.35	35	0.50	30	0.59	25	0.71
60	0.25	45	0.35	50	0.30	45	0.35
80	0.18	60	0.25	80	0.18	60	0.25
120	0.13	100	0.15	140	0.11	100	0.15
140	0.11	170	0.09

Fig. 3 Relation between $(1/D) - (1/D_0)$ and milling time.

は各篩上の重量分率, と定義し, $\log D$ と摩砕時間 t との直線関係の傾きを顆粒のこわれやすさの目安として用いた。しかしながら, 本実験では, $\log D$ と t との間に直線関係が見られなかったで, 式 (1) で求めた平均粒径 D の時間変化に Ritinger の式³⁾

$$\frac{1}{D} - \frac{1}{D_0} = Kt \quad (2)$$

の適用を試みた。ここで, D_0 は初期粒径, K は定数である。 $(1/D) - (1/D_0)$ を t に対してプロットしたところ, Fig. 3 に一例を示すように, いずれの場合もほぼ直線的な関係が得られ, その傾きより, 摩砕速度定数 K が得られた。 K の逆数は摩砕抵抗であり, したがって顆粒強度との相関関係が期待される。そこで, $1/K$ を単一顆粒強度 p_g に対して両対数でプロットしたところ, Fig. 4 に示すように, 各系列の顆粒について直線関係が得られた。この直線関係は,

$$\log p_g = A + B \log (1/K) = A - B \log K \quad (3)$$

と表わすことができる。したがって, 粒径が等しく, 一定の製法で調製した一連の顆粒に関しては, 摩砕実験より得られる速度定数 K の逆数を, 顆粒の相対強度の実用的尺度とすることができるが, 本報ではさらに, K の初期粒径および見かけ密度依存性を調べ, K と単一顆粒

Fig. 4 Relation between $\log p_g$ and $\log 1/K$. Fig. 5 Relation between B and D_0 .

強度との関係を追究した。

III-3 摩砕速度と顆粒の初期粒径および見かけ密度との関係

Fig. 4 で得られた直線関係の傾き, すなわち, 式 (3) の B との顆粒の初期粒径 D_0 との間には, Fig. 5 に示すように負の傾きを有する直線関係,

$$B = 0.89 - 0.24 D_0 \quad (4)$$

が得られた。一方, 式 (3) の A は, D_0 および顆粒の見かけ密度 ρ_a のいずれとも直線関係にはなかったが, A を ρ_a/D_0 に対してプロットしたところ, Fig. 6 に示すように,

$$A = 2.42 - 0.74 (\rho_a/D_0) \quad (5)$$

の関係が得られた。

III-4 総合的考察

本実験のように, 篩からの押出しによって調製した顆粒では, 篩の目開きの違いに応じて, 調製時に加えられるせん断および圧縮応力の大きさが変化すると考えられ, そのため, 見かけ密度 ρ_a と粒径 D_0 との間に, Fig. 7 に示すような比較的単純な関係が見出された。この結果は,

$$\rho_a = 1.89 - 0.21 D_0 \quad (6)$$

なる一次式で近似できる。式 (3)~(6) の関係をまとめ, 測定に手間のかかる ρ_a を消去すると,

Fig. 6 Relation between A and ρ_a/D_0 .

Fig. 7 Relation between ρ_a and D_0 .

$$\log p_g = \left(2.58 - \frac{1.40}{D_0} \right) - (0.89 - 0.24 D_0) \log K \quad (7)$$

の関係が得られる。式(7)と式(3)の比較より、式(3)の定数 A は、

$$A = 2.58 - \frac{1.40}{D_0} \quad (8)$$

と表わされる。式(7)を用いれば、出発顆粒の平均粒径

D_0 と摩砕速度定数 K とから、直ちに単一顆粒強度を求めることができる。類似の手段は、研摩材の分野などに報告例がある⁵⁾。式(3)の A, B の値、すなわち、式(8)(4)の右辺の値は、顆粒の変形機構や摩砕条件によって変化するから、顆粒強度の絶対値が必要な場合には、一連の顆粒のうち、代表的なものをを用いた予備実験により、それらの値を求めておく必要がある。したがって、粒径の異なる顆粒あるいは同一粒径でも製法の違いなどにより、見かけ密度の著しく異なる顆粒の相対強度を比較するには、摩砕抵抗のみでは十分でなく、本報に示したような単一顆粒の直接測定を行なうべきである。

結合剤を提供された三共株式会社に謝意を表する。

文 献

- 1) M. H. Rubinstein: J. Pharm. Sci., **65**, (1976), 376.
- 2) 栗田, 池上: 薬誌, **81**, (1961), 1567.
- 3) 栗田, 池上: 薬誌, **82**, (1962), 555.
- 4) たとえば, 田中達夫: 「粉体工学ハンドブック」(井伊谷鋼一編) 朝倉 (1965), 333.
- 5) 渡辺, 長山: 精密機械, **22**, (1956), 346.

新 入 正 会 員

(昭和54年5月20日現在)

氏 名	卒業学校	卒業 年度	会員番号	専 門	勤 務 先	現 住 所
赤 尾 和 彦	県立富山工業高専	昭36	01066	材 料	930 富山市石金10番地 ㈱不二越工具製造所 0764(23)5111	930 富山市神通町3丁目2-3 0764(41)2298
砂 原 将三郎	県立神戸商	昭38	23044		564 吹田市垂水町1丁目45 フィガロ技研㈱ 06(386)6512	564 吹田市垂水町1-45 フィガロ技研㈱内
近 桂一郎	東 大	昭34	15065	固体物理 結晶化学	160 新宿区大久保3-4-1 早稲田大学理工学部	112 文京区目白台3-18-23
寺 下 敬次郎	近 畿 大	昭40	34007	粉体工学	591 堺市百舌鳥梅町4丁目804 大阪府立大学工学部化学工学科 0722(52)1161	591 堺市東浅香山町2丁目89 0722(52)9138
星 俊 治	東 北 大		55021		438 静岡県磐田市新貝2630 日本楽器製造㈱金属事業部開発課 05383(2)7131	437-11 磐田郡浅羽町浅羽 1132-24
中 谷 哲 二	神 戸 大	昭40	41079	超硬合金	243-03 神奈川県愛甲郡愛川町中 津4004 内陸工業団地 東京瑞穂工業㈱ 0462(85)0388	243 神奈川県厚木市恩名1236 0462(21)6977
北 村 和 也	芝浦工大		12045		142 品川区豊町5-1-1 富士ダイヤモンド工業㈱ 03(782)2118	166 杉並区堀の内3-13-11 いずみ荘 03(315)6714
剣 持 克 彦	東 北 大	昭51	14002	金 属 材料工学	160-91 新宿区西新宿2丁目6-1 昭栄化学工業㈱ 03(344)6661	190 立川市富士見町3-54, 29- 310 0425(27)2734
曾 我 直 弘	京 大	昭32	25006	無機材料	606 京都市左京区吉田本町 京都大学工学部 075(751)2111	657 神戸市灘区篠原本町4丁目 3-23 078(861)3038
寺 石 克 弘	東 京 大 教 育 大	昭40	34008	物 理	392 長野県諏訪市大和3-3-5 ㈱諏訪精工舎 02665(2)3131	392 諏訪市大字四賀1960-2 02655(3)4184
古 林 英 夫	大 阪 大	昭26	53035	化 学	660 尼崎市大高洲町10 大阪水素工業㈱ 06(409)1081	573 枚方市茄子作1丁目4-4- 302 0720(54)0946