粉体の充てん構造と破断強度*

荒 川 正 文**

Packing Structure and Tensile Strength in Powder Bed

by

Masafumi ARAKAWA

(Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji)

In order to obtain the interparticle force of powder, there exists a method of measuring a tensile strength necessary to fracture the compressed powder bed. The results obtained by this method show certain fluctuation in magnitude of the tensile strength, greatly depending on packing structure of powder. Because of lack of quantitative representation on the packing structure, the powder phase has been assumed as rather homogeneous. Accordingly the cohesion force (interparticle force) is generally estimated through the following procedures; firstly a relationship between porosity of powder and average number of contact with the nearest neighbours is established experimentally using the matters packed up irregularly from uniform sphere-particles, and then the cohesion force per one contact is assigned to individual particle dividing the macroscopic tensile strength by the total number of contact.

It is, however, questionable whether or not the above assumption holds for the actual powders. In order to reconsider it, the micropore distribution of the powder samples whose porosity was artificially controlled was measured by means of a mercury porosimeter. It was found from this experiment that a powder has a structure packing up heterogeneously of aggregations with which finer particles condensed together. A close attention was directed to a relation between tensile strength and structure of the fractured surface. For this course, two groups of powder matters were tentatively prepared which had been granulated to arbitrary size from fine particles with well known size distribution, and the tensile strength of the compressed powder bed was measured both for normal powder and those granulated ones. Furthermore their fractured surface was observed by means of optical microscope. The result seemed to suggest that the fracture in the compressed powder bed caused by tensile starts from the part at which a relatively large pore resulted from the heterogeneous packing was found. Further support was given through the following experiments. As a two dimensional packing model, polystyrene pieces, which have the dimensions of 1~5 mm in size and heterogeneous shape, were floated compactly on the water and the fracture process with tensile was directly observed. It became more confident that the fracture propagates infectiously through the route where the heterogeneous packing structure is remarkable.

The fact that the heterogeneity of packing within powder has a great influence on the tensile strength was also supported by the observation of the fractured surface of powders in which mica, subjected to surface treatment with hydrophobic material, was mixed in a certain ratio.

From these experiments described above, it can be concluded that when Rumpf's equation is applied onto the results of tensile strength of the compressed powder bed, the interparticle force is underestimated for individual particle.

(Received Feb. 12, 1980)

キー・ワード：粉体粒子付着・凝集力，引張破断法，充てん構造

1 緒 言

粉体粒子間の付着・凝集力は，充てん，圧密，流動，混合，輸送など粉体の諸特性に関係する基礎的な量の一つとして重要である。したがって多くの測定法¹⁾

があるが，粉体充てん体の引張破断による方法は関連する粉体現象も多いので比較的良好に利用されている。これは普通，適当な形状諸元の2分割セルに試料粉体を充てんして，その引張強さを測定するもので，試料の充てん圧密と同じ方向に引張る方式と，圧密方向に直角に破断する方法に大別できる。前者にはてんびん

* 原稿受理 昭和55年2月12日

** 正 会 員 京都大学化学研究所 宇治市五ヶ庄

法、傾斜角法²⁾⁵⁾などがあり、後者はいわゆる Farley-Valentin 法に代表される。どちらにしても引張破断では粉体の充てん構造によってきまる2次的な値しか得られないから、粉体粒子間の相互作用力として定義するには破断面における平均的な粒子接触点一個あたりに換算して比較するほかはない。しかし、破断面での粒子の充てん状態や接触状態を知ることはきわめて難しいので、試料充てん層全体の空げき率を用い、さらに球形均一粒子群の不規則充てんの実験結果から得られた空げき率と平均接触点数の関係を適用して Rumpf 式⁶⁾により一接触点あたりの力を求めるのが一般的な方法である。この場合、(i)粒子は球形で均一な大きさ、(ii)充てん層は全体が一樣な構造、(iii)破断は全断面にわたって同時におこる、などの仮定をおく。これらの仮定が実際の粉体層の破断時にどの程度成立するかを検討するために2、3の実験を行った。

2 実 験

2・1 粉体層の充てん構造と引張強さ

(1) 試料 Table I に示した重質炭酸カルシウム P-30、コランダム研削材 (WA 2500, WA 4000) などを用いた。コランダム研削材は比較的そろった粒子群であるが、炭酸カルシウムはかなり粒度分布が広い。⁵⁾ また、これらの試料を高湿度で振動造粒し 110℃で24時間乾燥したものを Table I のような粒度にふるい分けたものを凝集2次粒子試料とした。

(2) 装置と方法 粉体層引張強さの測定は島津粉体付着力測定装置 ED-2000 を用いた。⁶⁾ 試料充てんせ

Table I. Particle size of sample powder and tensile strength of powder bed with the porosity.

Sample	D_p (μm)	Porosity	F (g/cm^2)
CaCO_3 P-30	5.3	0.50	13.2
	5.3	0.54	12.6
	5.3	0.56	10.2
	5.3	0.58	9.3
	5.3	0.60	6.2
	(100)	0.50	7.1
	(300)	"	5.4
	(500)	"	6.2
	(850)	"	5.0
	(1500)	"	5.7
WA 2500	4.8	0.55	3.7
	4.8	0.57	3.2
	(500)	0.55	1.5
	(800)	"	1.4
	(1500)	"	2.1
WA 4000	3.1	0.50	23.2
	3.1	0.55	20.8
	3.1	0.58	16.7
	3.1	0.60	10.8
	(800)	0.50	23.0
	(800)	0.55	21.2
	(800)	0.60	8.8

Fig. 1. Schematic diagram of the apparatus for measurement of tensile strength of powder bed.

(a) CaCO_3 P-30 (b) Colundum WA #4000

Fig. 2. Change of pore size distribution of powder bed with the porosity.

ルは圧縮と同一方向に引張る上下2分割方式で破断後に上部粉体層のはく離、落下などが生じても関係なく破断時の力を電子てんびんの読みとして知ることができるになっている。試料層の空げき率を変えて各5回ずつ測定した平均値を Table I にあわせて示してある。また、破断面はすべて写真撮影し、巨視的な構造を観察した。

試料充てん層の空げき率分布を水銀ポロシメータにより測定し、空げき率の変化にともなう充てん構造の

差異を検討した。結果の例を Fig. 2 に示しておく。

2・2 水面粒子膜による粉体層破断過程のモデル実験

(1) 試料 種々の形状の発泡ポリスチレン粒子および表面を疎水化して水面に浮くようにしたマイカ粉体（投影径 1~5 mm）を用いた。

(2) 装置と方法 実験装置は Fig. 3 のような長さ 80 cm, 幅 40 cm, 深さ 8 cm のアクリル樹脂製水槽で、内部に高さが順に低くなる仕切板 A, B, C を設け、ポンプで水流を循環させる。水槽中に幅 12 cm,

Fig. 3. Schematic diagram of the apparatus for observation of fracture process.

長さ 20 cm で中央で左右に離れる 2 次元充てんセルを設け、仕切板 AB 間に試料粒子を少しずつ散布して水流によりセル中に順次充てんし 2 次元粒子膜をつくる。下流側の仕切板 C には網をつけて粒子の流出を防ぐ。充てん後、押え板 D で押して充てん状態を適当に設定し、右側のセル（流入側）をゆっくりと引張って充てん層をも破断させ、同時にその過程を上方から連続的に撮影する。得られた写真について粒子層の破断過程を観察した。2 次元充てん状態およびその破断過程の例を Fig. 4, 5, 6 に、セルの隔離による粒子接触数 N の変化を Fig. 7 に示す。 N_0 は最初の粒子接触点数で、破断過程の写真を終りから逆にたどって求めた 2 次元破面に最初の充てん時に存在する粒子接触点数である。図中の記号は粒子形状や充てん状態の異なる系を示している。

3 結果と考察

3・1 粉体層の構造と引張破断

粉体層の引張破断力 σ から粒子 1 接点あたりの平均

Fig. 4.

Fig. 5.

Fig. 6.

Fig. 4, 5, 6. Two dimensional packing model on the water (a) and the fracture process with tensile (b), (c).

Fig. 7. Change of particle contact number with the separation of cell.

付着・凝集力 F_{ad} を求めるのは Rumpf らによる (1) 式がよく用いられる。

$$\sigma = F_{ad}N = \frac{9}{8} \cdot \frac{(1-\varepsilon)n}{\pi D^2} F_{ad} \quad (1)$$

ここで、 N は破断力に関係した全粒子接触点数、 ε は試料粉体層の空げき率で、 D は試料粒子を均一球形と仮定したときの直径である。 n は均一球形粒子のランダム充てん時の粒子一個あたりの平均接触点数で、たとえば Ridgway らの式によって ε との関係が示される。

Table I に示したように、粉体層単位面積あたりの破断力 F は空げき率 ε が小さいほど大きい。これらの値に Rumpf 式を適用して求めた破断面粒子の一接点あたりの平均付着・凝集力 F_{ad} は比較的密充てんに近い空げき率たとえば ε が 0.45~0.55 程度の範囲ではほぼ一定であるが、 ε が増すと F_{ad} は急に小さくなり、とくに凝集性の強い微粉体ではこの傾向が著しい。本実験に用いた炭酸カルシウムおよびコランダム充てん層の粒子間げき径は Fig. 2 からわかるように 20~5 μm の大きな空げきと、1~0.1 μm の微小空げきの 2 種からなり、 ε が 0.60 では大きい空げきが約 30% であるが、 ε が小さくなるにつれて大きい空げきは減少し ε が 0.5 ではほとんどない。これは、著者らが粉体のタップ充てん過程の解析から推定したように、凝集性の強い微粉体の充てんでは凝集粒子単位で形成される大きな空げきと一次粒子間の小さい空げきが混在し、充てんの進行によって凝集粒子は破壊され均質な一次粒子充てん層に移ってゆくことを示している。粒子間の凝集力は物質によって異なるから、Table I のように凝集性の強い炭酸カルシウムでは造粒試料充てん層の破断力が、同じ空げき率の一次粒子充てん層のそれよりはるかに小さく疎充てんの値に近いが、比較的凝集力の小さいコランダムの造粒物は密充てんでは破壊されて一次粒子群に近くなるため非造粒試料の値と同じ程度になる。

これらの試料の破断面の写真、Fig. 8 によると、造

Fig. 8. Fractured surface of powder bed ($\varepsilon=0.50$).

粒粒子はかなり圧密された状態でも破断面には(b)のように造粒体の存在が明りょうに認められ、部分的に充てんが不均一になっていることがわかる。一方、造粒していない試料(a)では充てん層内に圧力により多くのすべり面が形成され、破断は均一平面ではなく、これらのすべり面に沿って生じていると考えられる。

以上のような充てん層内の大きな空げきやすべり面などの構造不整部分が破断過程に与える影響を見るために次のような 2 次元粒子膜によるモデル実験を行った。

3・2 水面粒子膜モデルによる破断過程の観察

Fig. 4, 5, 6 はそれぞれ比較的均一な球形粒子群、いろいろの形状と大きさの粒子混合系、球形粒子群中に疎水化処理をした棒状粒子を混合した系である。いずれも(a)は充てん状態、(b), (c)は破断過程の一部である。このような水面膜での粒子間凝集力は水の表面張力によるもので、浮遊粒子の質量に比較してかなり強いので一度分離した粒子が再凝集するようなことを防ぐために中性洗剤を少量添加して表面張力を下げている。ここに例として示したもののほかに、球形不均一粒子、柱状粒子、柱状一球形混合系などについても実験している。それらの結果をまとめると次のようになる。Fig. 9 に示したように

(i) 球形均一粒子的の場合、破断は粒子あたりの接触数の少い部分、たとえば Fig. 9 の六方最密充てん状態の粒子群が単位となり、その粒界に沿って進む。

(ii) 充てん構造中に大きな空げきがあればそれをつなぐ形で進む。

(iii) 破断は一度に全面で生じるのではなく、充てんセルの隔離距離につれて進行する。すべての観察結果

Fig. 9. Schematic diagram of fracture and heterogeneity of packing structure.

を、充てんセルの間隔と粒子接触点の減少度 N/N_0 の関係として整理すると Fig. 7 のようになり、平均粒子径と同じ程度の隔離で約50%の接触点が離れるが、試料によっては粒子径の10倍ほど離れても部分的には付着しているときがある。

これらの結果は粒子の運動に対する抵抗の大きい水面でのものであり、また引張速度の影響もあるから直接、粉体充てん層の破断現象に対応させることはできないが、認められる現象は乾燥粉体充てん系でも充分考えられるものである。なお、疎水化マイカ粉体の場合は2次元セルの隔離によって層全体の構造がゆるんで流れ、ちょうど、砂のような流動性のよい粗粉体の破断の際と類似の状態となった。ポリスチレンに比べて粒子密度はるかに大きく粒子の運動力が強いために表面張力による凝集力が無視できることによると思われるが、これも粉体充てん層の場合と同様の現象である。

3.3 充てん層中の不均一構造の存在と破断

Fig. 6 に示した棒状粒子の存在は球形粒子の充てん系における粒子接触点の少い部分、すなわち一種の構造不整と見なせる。3次元の粉体充てん構造では、粒子に対して親和性の少い薄片におき変えれば、その部分での粒子接触点は減り破断強度は低下するであろう。表面を疎水化処理したマイカ粉(径1mm程度)を少量混合した粉体の破断に要する力を測定すると、マイ

カ添加量によって粉体層の強度は変化する。このような粉体層破面を観察すると Fig. 10 のようにマイカ粒子および反対側の破面に移ったマイカの痕跡が明りょうに認められ、またマイカ粒子の表面には粉体粒子はほとんど付着していないことがわかる。破面に存在したマイカ粒子の数と粉体層の凝集力の関係を、マイカ添加量、空げき率をパラメータにして示すと Fig. 11 のようになり、粒子が多いほど、また空げき率の小さいほど崩れやすいことがわかる。破面に存在するマイカ粒子が多いほど粒子間凝集力の作用する数が減るから強度の減少は当然である。しかし、空げき率が小さく密充てんになるほど強度が低下するのは充てん過程でマイカ粒子が圧密する力に直角方向に配列しやすいためと考えられる。大きな薄片粒子が混在する粉体層に一方から力を加えると、薄片粒子上部(力の加わった側とする)には力が作用するが、下部の粒子群にはその力は直接加わらない。上部の微粒子群を伝わってきた力は大きな板状粒子により支えられるから平均的に分散されてしまうためである。したがって薄片粒子周囲の粒子群より空げき率の大きい部分が薄片粒子の下に生じ、さらに力が加わったときにその部分に薄片粒子が傾いてゆく。このようにして加圧力の方向にちょうど平行な粒子以外は次第に直角方向に配列すると思われる。このような配向粒子が密充てんの場合ほど多いことは破面の観察からわかる。

4 結 論

以上の実験結果から以下のようなことが結論される。

- (1) 粒子間凝集力の効果が無視できない微粉体の充てん層ではその構造は均質ではなく、2次元あるいはもっと高次の凝集粒子が単位になった大きな空げきと、凝集粒子内の1次粒子の空げき、すなわち小さい空げきが混在している。圧密によって凝集粒子は破壊されて比較的均質な一次粒子群の充てんになるが、この過程で粒子群のすべりなどによる不整面が発生することがある。
- (2) 粉体層の破断はこのような空げきや粒子群のすべりによるような不整部分を伝って生じる。
- (3) 粉体層の破断は全断面で同時におこるのではなく、相対的な付着・凝集力の弱い部分から順に進行する。

以上のような結果から、粉体層の破断応力に、全断面均一に存在する平均的な粒子接触点が一斉に離れるという考えに基づく Rumpf 式を適用して求めた個々の粒子間付着力は、実際の力をかなり過小評価することになると考えられる。もちろん、粉体成形の強度測定のような実用的な意味で行われる粉体層破断実験はこれら充てん構造の不均一性も含めた評価であるから、以上の結論は引張破断法の実用性を論じているのでは

Fig. 10. Fractured surface of powder bed with hydrophobic mica powder.

Fig. 11. Influence of hydrophobic mica particle for tensile strength of powder bed.

なく、たとえば遠心法、振動板法その他原理の異なる測定法による粒子間作用力の相互比較などについてのものである。

本実験を行うについて水銀ポロシメータにより粉体充てん層の空孔率分布を測定していただいた(株)島津製作所、林田和弘氏に感謝する。

(昭和54年10月25日 第17回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Zimon, A. D., "Adhesion of Dust and Powder"(1969) PLENUM Press.; 久保他編“粉体—理論と応用”改訂版, p. 324~339 (1979) 丸善; 荒川正文, 色材, **48**, 165 (1975) など
- 2) 荒川正文, 粉体工学会昭和52年度秋期例会講演要旨集, p. 14 (1977).
- 3) Farley, R., and F. H. H. Valentin, Trans. Inst. Chem. Eng., **43**, 193 (1965).
- 4) Pietsch, W., and H. Rumpf., Chem. Ing. Tech., **39**, 885 (1967).
- 5) 檀上和美, 粉体工学会誌, **15**, 491 (1978).
- 6) Ridgway, K., and K. J. Tarbuck, Brit. Chem. Eng., **12**, 384 (1967).
- 7) 矢野省三, 白波瀬 弘, 林田和弘, 荒川正文, 粉体工学会昭和54年春期研究発表会講演要旨集, p. 78 (1979).
- 8) 荒川正文, 材料, **16**, 319 (1967).
- 9) 荒川正文, 岡田隆夫, 水渡英二, 材料, **14**, 764(1965); **15**, 151 (1966); 荒川正文, 表面, **4**, 443 (1967).