研究報告

微粉粉体層の付着力に及ぼす凝集性の影響*

Effect of Agglomeration Phenomenon on Adhesion Force of Powder Bed

椿 淳一郎**
Jun-ichiro TSUBAKI

加藤 啓一***
Keichi KATO

神保 元二**
Genji JIMBO

1. はじめに

一般に微粉体は凝集体を形成し易く、さまざまな粉体挙動においても、この凝集体を単位として挙動する場合が多い。ところが、この凝集体の大きさは、置かれている力学的条件によって比較的容易に変化するため、凝集体が粉体挙動に及ぼす影響を定量的に把握することは、なかなか難しい問題である。

粉体層の様々な挙動については、流体透過に関して実験的研究^{1,2)}がなされているが、粉体層の付着力測定に及ぼす影響については、ようやく研究が開始された段階である^{3,4)}。われわれは、粉体の凝集状態と付着力の関係を知る目的で、一次粒子径より十分に大きい目開きのふるいを用いて、凝集状態の異なる粉体層を形成し、付着力の測定を行なった。また、粉体層への予圧密荷重を様々に変えることにより、充てん時の凝集状態がどのように変化し、凝集状態の変化によって付着力がどのように変化するか、について検討を行った。

2. 実験方法及び供試粉体

付着力の測定には Fig.1 に示す、吊り下げ式付着力測定機(コヒテスター)を用いた。セル寸法は内径 50 mm,

Fig.1 吊り下げ式付着力測定装置

深さ 20 mm である。付着力は、まず以下に述べる充てん方法によって粉体をセルに充てんし、所定の荷重で10分間予圧密した後、粉体層上面をすり切り、2 mm/min の一定速度で可動セルを引張り、層が破断した時の引張り応力として求めた。粉体層の空隙率は、層の破断後試料重量を秤量し、これとセル体積から求めた。また、予圧密応力は 0~200 g/cm² とした。

粉体試料には、標準粉体 JIS 11 種の関東ローム粉 (2.0 μm)、石灰石粉 (1.7 μm)、熔融アルミナ粉 (ホワイトアランダム #8000, 1.3 μm) を用いた。試料の充てんには、スパチュラーとふるいを用いた。ふるいを通しての充てんは、1 枚のふるいを通して凝集粒子径に分布を持たせた場合と、目開きの異なる 2 枚のふるいによって凝集粒子径をそろえた場合の、2 通りの方法で行った。試料ごとの充てん条件は、Fig. 3, 4, 5 の図中にそれぞれ示したが、関東ローム粉の場合は 8 通り、石灰石

Fig.2 凝集粒子径分布 (関東ローム粉)

Key Opening of Sieve (μm)

○	500—710
●	710—1000
⊙	1000—1410
⦿	2000—2830

昭和56年7月29日受付

*1981年7月、粉体工学会夏期シンポジウム、函南

**名古屋大学工学部化学工学科 〒464 名古屋市中千種区不老町

TEL 052-781-5111(内)3379

***住友化学工業株式会社

Fig. 3 粉体層空隙率と付着力 (関東ローム粉)

Key	Opening of Sieve (μm)
■	— 63
□	— 350
○	— 1000
●	500—710
◐	710—1000
◑	1000—1410
⊙	2000—2830
△	Feed with Spatula

粉, 熔融アルミナ粉の場合は3通りに変化させた。目開きの異なる2枚のふるいをを用いた場合の, 凝集粒子径分布の一例を Fig. 2 に示したが, 図からも明らかなように, 凝集粒子の大きさは非常によくそろっている。凝集粒子径は凝集粒子の2次元映像より, Feret 径を代表径として求めた。測定個数はふるい目開きの組合せが, 500—710, 710—1000, 1000—1410, 2000—2830 μm において, それぞれ500, 300, 200, 50個であった。

また, 以下の解析に用いるため凝集粒子内の空隙率 ϵ_{intra} を次の方法で求めた。凝集粒子はふるい面上で一種の転動造粒によって形成され, 形が球に近いことから, 凝集粒子を球と近似して平均体積を求め, これと凝集粒子数百~千個の秤量から求めた平均重量より, 凝集粒子内空隙率 ϵ_{intra} を求めた。

3. 実験結果

それぞれの試料の付着力 σ_z と層全体の空隙率 ϵ の関係を, Fig. 3, 4, 5 に示した。われわれはこれまで粉体層

Fig. 4 粉体層空隙率と付着力 (石灰石粉)

Key	Opening of Sieve (μm)
■	— 350
□	— 1000
●	710—1000

Fig. 5 粉体層空隙率と付着力 (熔融アルミナ粉)

Key	Opening of Sieve (μm)
■	— 350
□	— 1000
●	710—1000

の付着力測定結果は, 片対数紙上にプロットし次の実験式で整理してきた^{5,6)}。

$$\sigma_z = \exp(-a\epsilon + b) \quad \dots\dots(1)$$

また、本学会の物性グループ会で測定された全データも片対数紙上にプロットされ、よい直線性を示している⁷⁾。そこで本実験においても、測定結果を片対数紙上にプロットしたが、Fig. 3, 4, 5 から明らかなように、いずれの試料においても全空隙率範囲にわたって1本の直線で測定結果を代表することはできず、空隙率と付着力の関係が一つの実験式では表わせないことを示している。しかし、空隙率範囲ごとに見てみると、初期の充てん方法の影響が無くなる範囲、関東ローム粉、熔融アルミナ粉では $\epsilon \leq 0.73$ 、石灰石粉では $\epsilon \leq 0.69$ 、においては測定範囲が狭いという問題はあるが、測定結果は(1)式によって整理されることを示している。更に空隙率の大きい範囲、関東ローム粉では $0.73 \leq \epsilon \leq 0.8$ 、石灰石粉では $0.69 \leq \epsilon \leq 0.78$ 、熔融アルミナ粉では $0.73 \leq \epsilon$ 、においては初期の充てん方法によって(1)式の定数 a 、 b の値は異なるものの、測定結果はやはり(1)式の形で整理される。しかし、更に高空隙率範囲においては、Fig. 3, 4 から明らかなように測定点は直線性を示さず、(1)式では整理されなくなっている。この傾向は凝集体の影響が強い程大きく、目開きの小さなふるいで充てんした場合と熔融アルミナ粉の場合には、上述した中間の空隙率範囲の実験式で整理されることがわかる。

以上より、空隙率に対する付着力の測定結果は、凝集体の影響が非常に強い場合を除けば、(1)式の形で整理されることがわかる。また RUMPF の式も、Fig. 3, 4 から明らかなように、片対数紙上ではほぼ直線となっていることから、(1)式はかなり一般性のある実験式であると思われる。

関東ローム粉と石灰石粉の場合は、凝集状態の違いによって、とくに高空隙率域において、付着力が著しく変化している。それに対して、熔融アルミナ粉の場合は他の試料ほど顕著な違いは認められなかった。各試料の空隙率に対する付着力を比べてみると、ほぼ等しいにもかかわらず、熔融アルミナ粉の場合は凝集粒子を作りにくかった。これは熔融アルミナ粉の場合、付着性は他の試料とほぼ同じでも、凝集性は非常に小さいことを示している。そのため形成された凝集粒子の強度も小さく、他の試料ほど凝集状態の違いが付着力に影響を及ぼさないと考えられる。

Fig. 3 の関東ローム粉の結果で、凝集状態の影響について少し詳しく見てみる。まず充てん方法の違いによる影響について見てみると、層全体の空隙率が等しい場合の付着力は、凝集粒子径がそろっている場合に最も小さく、スパチュラーで充てんした場合や凝集粒子径が広い分布を持つ場合はそれより大きくなり、凝集粒子径を小

さくして行くと更に大きくなっていく。ふるい目開きの組合せが、500—710, 710—1000, 1000—1410 μm の場合には形成される凝集粒子径が、Fig. 2 に示したように明らかに異なるにもかかわらず、3つの付着力は一致してしまい、凝集粒子径の影響が表われていない。ふるい目開きを 2000—2830 μm と大きくすると、形成される凝集粒子も弱くなり、多くのものが充てん時に壊われ、粒度分布のある凝集粒子を充てんした場合と同じになっていると考えられる。

試料充てん時の凝集状態の影響は、予圧密荷重が小さく、凝集状態が充てん時の状態に近い高空隙域ほど大きく、関東ローム粉においては付着力の測定値に2桁近い差異があることがわかる。予圧密荷重を次第に大きくして空隙率を小さくして行くと、凝集粒子径がそろっている程空隙率の減少に対して付着力はある所まで急激に増大し、ある空隙率になると充てん時の凝集状態によらず付着力は一致してくる。この付着力が一致してくる点、関東ローム粉では $\epsilon = 0.725$ 、でのデータを用いて付着力と空隙率の関係を RUMPF の式と RIDGWAY and TARBUCK の式から求めてみると、Fig. 3 に示すように、計算に用いた点の空隙率より小さな空隙率範囲にお

Fig. 6 粉体層予圧密応力と付着力 (関東ローム粉)

Key	Opening of Sieve (μm)
□	— 63
■	— 350
○	— 1000
○	500—710
●	710—1000
●	1000—1410
●	2000—2830
△	Feed with Spatula

Fig. 7 粉体層予圧密応力と付着力（石灰石粉）

Key	Opening of Sieve (μm)
■	— 350
□	— 1000
●	710—1000

Fig. 8 粉体層予圧密応力と付着力（熔融アルミナ粉）

Key	Opening of Sieve (μm)
■	— 350
□	— 1000
●	710—1000

いてのみ、実験結果とよく一致している。ただ、測定している空隙率範囲が狭いため、この点については今後更に検討していきたい。

Fig. 4 に示した石灰石粉の結果については、関東ローム粉の場合とまったく同様のことが言える。

熔融アルミナ粉の場合は、前述のように凝集性が弱いいため、目開き 710 と 1000 μm のふるいによって凝集粒子径をそろえた場合も、1000 μm のふるいを通して分布

を持たせた場合も、Fig. 5 に示すように付着力は等しくなる。また、空隙率をより小さくすると付着力は急激に減少してしまった。空隙率を下げるため予圧密荷重を大きくすると、破断面は固定セルと可動セル側の両方に生じ、破断時に両破断面に挟まれた V 字型の粉体が抜け落ちる現象が観察された。これは予圧密時に既に層内にスベリ面が生じているためではないかと考えられる。このため低空隙域での付着力は測定できなかった。

次に、それぞれの試料の付着力 σ_z と予圧密応力 P の関係を、Fig. 6, 7, 8 に示した。図から明らかなとおり、外部応力 P に対する付着力 σ_z は、次式、

$$\sigma_z = b' P^{a'} \quad \dots\dots(2)$$

でよく整理されることがわかる。一般に粉体層の付着力測定結果は、空隙率との関係で発表されることが多く、(2)式の一般性を裏付けることは(1)式の場合ほど容易ではないが、高温場での測定結果⁹⁾も含めてわれわれがこれまで測定してきたデータ¹⁰⁾は、(2)式がよく成立していることを示している。

また、外部応力である予圧密応力に対して付着力を整理すると、図で明かなように、層構造を表わす空隙率で整理した場合に比べて、充てん時の凝集状態の影響は小さくなっている。

4. 考 察

まず、凝集粒子径がそろっている場合に付着力が低下する原因について考えてみる。粉体層は凝集粒子を単位として構成され、引張り破断される場合も、後で述べるようにある空隙率範囲においては、凝集粒子が構成単位にもしくはそれに近い状態になっていると考えられる。また、凝集粒子径がそろっている場合は、凝集粒子を粉体層構成粒子とした時の空隙率 $\varepsilon_{\text{inter}}$ が、凝集粒子径に分布がある場合に比べて大きくなる。このため単位面積当りの構成凝集粒子同士の接触点は少なくなり、それだけ付着力が低下すると考えられる。

また、凝集粒子径がそろっているほど、空隙率の変化に対する付着力の変化割合が大きいこと、特に高空隙率範囲において顕著である点について考察してみる。粉体層の引張り破断が完全に凝集粒子単位で行なわれる高空隙率範囲においては、単位面積当りの構成凝集粒子の接触点数が、一次粒子を構成粒子とした場合に比べて極めて少なく、付着力も非常に小さくなる。この粉体層に少し予圧密荷重をかけ圧密を行うと、わずかの空隙率の減少によっても各接触点における接触面積は急激に増大するため、付着力も急激に増大すると考えられる。この破断の状態を Fig. 9 (a) に概念的に示した。さらに予圧密荷重

Fig.9 凝集粒子接触状態と破断面

を増し、空隙率を減少して行くと Fig. 9 (b) に示したように、凝集粒子の接触点での変形が進み凝集粒子同士の接触点は明確でなくなり、凝集粒子の内部にも破断面が生じてくると考えられる。この領域において凝集粒子同士の接触は、点接触から面接触に移行し破断も凝集粒子単位から、次第に一次粒子単位に移行するために、空隙率変化に対する付着力の変化割合も小さくなっていく。さらに予圧密加重を増して行くと、凝集粒子は完全に潰されてしまい、破断は Fig. 9 (c) に示すように、一次粒子単位で行なわれるようになり凝集体の影響は無くなっていく。凝集粒子径に分布がある場合は、充てん時において Fig. 9 (b) の状態により近い状態にあるため、高空隙率域でわずかに空隙率が減少した時に、付着力が急激に増大するという現象が顕著でなくなってくる。充てん時の凝集粒子径が小さくなるに従って、Fig. 9 (c) の状態は存在しなくなり、空隙率減少に対して付着力は凝集状態の影響が無くなる点まで一様に増加することになる。

次に、粉体層全体の空隙率がある値より小さくなると、空隙率に対する付着力は充てん時の凝集状態によらず一致してくる点について、考察を試みている。凝集粒子を構成単位とする粉体層の空隙率を、Fig. 10 に示すように凝集粒子内空隙率 ϵ_{intra} 、凝集粒子間空隙率 ϵ_{inter} 、粉体層全体の空隙率に分けて考える。この3つの空隙率の間には、次の関係式が成立する。

Fig.10 粉体層内空隙モデル

Fig.11 予圧密応力と粉体層内空隙率変化 (関東ローム粉)

Key	Opening of Sieve (μm)	ϵ_{intra}
○	500—710	0.695
●	710—1000	0.704
◐	1000—1410	0.725
◑	2000—2830	0.733
○	Total Void	
○—○	Inter A gglomerate Void

Fig.12 圧密応力と粉体層内空隙率変化 (石灰石粉)

Opening of Sieve (μm)	ϵ_{intra}
710—1000	0.695
●	Total void
●—●	Interagglomerate void

$$(1-\epsilon) = (1-\epsilon_{inter})(1-\epsilon_{intra}) \quad \dots\dots(3)$$

凝集粒子はふるい面上で、一種の転動造粒によって形成されるので、凝集体は相当密に充てんされているものと考えられる。そこで、圧密による粉体層全体の空隙率減

Fig. 13 粉体層空隙率と付着力 (フライアッシュ)

Key	d_p (μm)	w(wt %)
○	3.7	0.196
◐	3.7	0.544
◑	3.7	1.19
⊙	3.7	1.40
⊖	3.7	1.63
●	3.7	1.88

小は、層全体の空隙率 ε が凝集粒子内空隙率 $\varepsilon_{\text{intra}}$ よりも大きい範囲においては、凝集粒子間空隙率 $\varepsilon_{\text{inter}}$ の減少のみによって起ると考えることは妥当である。そこで、凝集粒子内空隙率 $\varepsilon_{\text{intra}}$ に、Fig. 11, 12 の図中に示した実測値を用い、(3)式より凝集粒子間空隙率 $\varepsilon_{\text{inter}}$ と予圧密応力の関係を求めてみると、Fig. 11, 12 となる。図からも明らかとなり、関東ローソ粉、石灰石粉どちらの試料においても、予圧密応力が約 150 g/cm^2 で凝集粒子間空隙率 $\varepsilon_{\text{inter}}$ がゼロとなり、凝集粒子が完全に潰され、Fig. 9 (c)の状態に達していると考えられる。Fig. 3 で関東ローソ粉の場合、充てん時の凝集状態の影響がなくなる層全体の空隙率を求めてみると0.72となり、Fig. 11 の図中に示した凝集粒子内空隙率 $\varepsilon_{\text{intra}}$ の値にはほぼ一致しており、層中の凝集粒子が完全に潰された時に、始めて充てん時の凝集状態の影響が無くなることを示している。また、石灰石粉においても、Fig. 12 の図中に示した凝集粒子内空隙率 $\varepsilon_{\text{intra}}$ の値にはほぼ等しい層全体の空隙率 ε において、充てん時の凝集状態の影響

響が無くなっていることを Fig. 4 は示している。

Fig. 13 には参考の意味で、フライアッシュ (JIS 10 種, $3.7 \mu\text{m}$) を試料とし、付着水分量を変えた場合の付着力測定結果⁸⁾を示した。図から明らかとなり、測定データは付着水分量によらず(1)式で整理され、直線の傾き a の値は、付着水分量の増加とともに大きくなっている。また、高空隙率側においては、空隙率の増加に対して付着力は急激に減少し、Fig. 3, 4 に示した関東ローソ粉、石灰石粉の結果と同様の傾向を示している。一方、観察によって付着水分量が增大すると、凝集粒子がで易くなることを確かめており、これまで述べてきた凝集状態と粉体層付着力の関係は、かなり一般性を持っていると思われる。

5. 結 言

一次粒子径より十分に大きい目開きのふるいを用いて、凝集状態の異なる粉体層を形成し、さまざまな予圧密荷重条件で付着力測定を行ない、次の結果を得た。

- 1) 凝集体の影響が少ない場合、粉体層の付着力 σ_z は、層の空隙率 ε に対して、

$$\sigma_z = \exp(-a\varepsilon + b)$$

の形で整理され、予圧密応力 P に対しては、

$$\sigma_z = b' \cdot P^{a'}$$

の形で整理されることを確めた。但し a , a' , b , b' は定数。

- 2) 凝集粒子の存在によって、空隙率に対する付着力は低下し、特に高空隙率範囲において著しく低下する。また、凝集粒子径がそろっているほど、凝集粒子の影響が顕著であることがわかった。

- 3) 付着力の低下機構に対して、考察を加えた。

- 4) 粉体層を圧密し、粉体層全体の空隙率を充てん時の凝集粒子内空隙率よりも小さくすると、充てん時の凝集状態によらず付着力は一致してくることがわかった。

(謝 辞)

本研究の実験装置についてご援助いただいた、細川粉体工学研究所および粉体技術談話会に謝意を表します。

使 用 記 号

a, a' : 定数	[—]	U : ふるい下積算分布	[%]
b, b' : 定数	[—]	W : 付着水分量	[wt. %]
d_p : 一次粒子径	[μm]	ε : 粉体層全体の空隙率	[—]
d_{ag} : 凝集粒子径	[μm]	$\varepsilon_{\text{inter}}$: 凝集粒子を粉体層構成粒子とした場合の空隙率, 凝集粒子間空隙率	[—]
P : 粉体層予圧密応力	[g/cm^2]		

引用文献

- 1) 山崎量平, 神保元二: 化学工学, 38, 4, 299 (1974)
- 2) 大平治, 工藤寿美子: 薬剤学, 32, 70 (1972)
- 3) 堤香津雄, 山本英夫, 菅沼彰, 青木隆一: 化学工学協会第14回秋季大会, 1105, (1980横浜)
- 4) 荒川正文: 第18回粉体に関する討論会, 34 (1980豊橋)
- 5) Jimbo, G. and R. Yamazaki: European Symposium Particle Technology, B (1980 Amsterdam)
- 6) 今井康夫, 神保元二, 山崎量平: 化学工学協会第14回秋季大会, 1106, (1980横浜)
- 7) 大塚昭信, 檀上和美: 粉体工学会誌, 18, 8, 591(1981)
- 8) 神保元二, 椿淳一郎, 柏木誠, 曾我和文: 粉体工学会昭和56年春季研究発表会, 17, (1981大阪)
- 9) 柏木誠: 名古屋大学大学院修士論文 (1980年度)
- 10) 例えば, 曾我和文: 名古屋大学卒業論文 (1980年度)

Authors' Abstract

It is known that the method of feeding powder into split cell affects the adhesion forces of powder beds, especially in fine particle powders. But the effect of the agglomeration phenomenon on the adhesion forces has not been investigated systematically.

The adhesion forces of powder beds have been measured by a split cell type tensile strength meter. The powder beds consisted of several size agglomerations which were prepared with sieves having a larger opening size than the primary particle diameter. The void fractions of powder beds were prepared with compression. Kanto loam powder, limestone powder and fused alumina powder were used as samples and their primary diameter are several μm . It is found from these measurements that the adhesion forces of powder beds are decreased by the effect of the agglomeration phenomenon, especially in high voidage, and the adhesion forces have constant values when the void fractions of the powder bed is equal to the void fractions of the agglomerations in the powder bed. The mechanisms of the effect of agglomeration phenomenon are tentatively analysed.

List of Figures

Fig. 1	Split cell type tensile strength meter adapted the hanging strips	Fig. 7	Relationships between adhesion force and compression force (Limestone powder)
Fig. 2	Agglomerates diameter distribution of Kanto loam powder	Fig. 8	Relationships between adhesion force and compression force (Fused alumina powder)
Fig. 3	Relationships between adhesion force and void fraction of powder bed (Kanto loam powder)	Fig. 9	Model of void in powder bed consisted of agglomerates
Fig. 4	Relationships between adhesion force and void fraction of powder bed (Limestone powder)	Fig. 10	Relationships between void fractions and compression force (Kanto loam powder)
Fig. 5	Relationships between adhesion force and void fraction of powder bed (Fused alumina powder)	Fig. 11	Relationships between void fractions and compression force (Limestone powder)
Fig. 6	Relationships between adhesion force and compression force (Kanto loam powder)	Fig. 12	Contacting state of agglomerates and fracture surface
		Fig. 13	Relationships between adhesion force and void fraction of powder bed (Fly ash)