粉粒体の凝集性 (第 1 報) 凝集力の測定方法¹⁾

福沢 寿, 木村真太郎

東邦大学薬学部²⁾

Cohesion of Particulate Solids. I. Measuring Method for Cohesive Force¹⁾

HISASHI FUKUZAWA and SHINTARO KIMURA

Faculty of Pharmacy, Toho University²⁾

(Received June 28, 1971)

A quantitative method was devised for measuring the interparticle cohesive force in a loosely packed powder bed. A particulate solid was packed in a vessel without applying an external compressive force. A small disk with thin layer of an adhesive agent on its lower surface was placed on the surface of the packed bed applying a slight pressure so that the surface particles of the bed would stick to the disk. The disk was then pulled out and the minimal force, F_t , required to remove the particles sticking to the disk from the surrounding particles was measured by a torsion balance.

The apparent cohesiveness, α_c , is defined by the equation $\alpha_c = F/W$, where F is ($F_t - W$) and W is the weight of the particles sticking to the disk.

The effect of disk area, load, and nature of adhesive agent on the values of F were measured and the optimal conditions were determined as 0.24 cm² of disk area, 400 mg/cm² of load, and petrolatum as the adhesive agent.

It is suggested that the force, F , obtained by this method is the total value of four type forces, that is, adhesive force, f^A , leaning force, f^L , entanglement force, f^E , and defacing force, f^D .

製剤学の分野において、錠剤などのように粉末薬品の凝集性がうまく利用されている例もあるが、通常粉末薬品を原料とした製剤の製造工程においては凝集現象が障害となっている場合が多い。

したがって粉末薬品の凝集性は製剤の品質、ぶどまり、コストなどに密接に関係する重要なファクターであると考えられる。

粉粒体の付着、凝集性の概念についてこれまで厳密な定義はなされていないが、ここでいう付着あるいは凝集性は神保³⁾の定義に従う。

従来行なわれて来た粉粒体の凝集性の測定方法を大別すると、試料を圧縮し、できた成形物の破断強度から求める方法と、圧縮せずに評価する方法とに分けることができる。

Ashton⁴⁾らの2分割セル法、中島⁵⁾らの引っ張り試験法、篠原⁶⁾の折断試験法および土質力学の分野で多く用いられている剪断試験法は前者に属すと考えられるが、これらの方法においては最そ充てん状態で堆積している粉粒体層の凝集性の評価ができないか、あるいは圧縮力ゼロに補外して求めなければならない。粉粒体は圧縮されることにより空げき(隙)率変化、粒子間接触面積変化を伴い、精度よく補外することはむずかしいと思われる。

粉粒体の多くの性質の中で、工業的に重要な特性たとえば、流動性、かさ密度、飛散性などは最そ充てんあるいはそれに近い状態における凝集性と直接関連があり、この状態における凝集性を知ることの意義は大きい。

1) 化学工学会第35年会で発表, 東京, 1970年4月.

2) Location: 542-Miyamacho, Funabashi-Shi, Chiba.

3) 神保元二, 薬剤学, 30, 1, (1970).

4) M.D. Ashton, R. Farley, F.H.H. Valentin, *J. Sci. Instrum.*, 41, 763 (1964).

5) 中島裕夫, 後藤圭司, 田中達夫, 化学工学, 30, 946 (1966).

6) 篠原邦夫, 粉体工学研究会誌, 臨時号, 42 (1966).

野上⁷⁾らの流動層法, Carr⁸⁾の振動ふるい法, Lowes⁹⁾らの傾斜安息角法, Benarie¹⁰⁾の回転粘度計法などは後者すなわち最そ充てん状態における一種の凝集性の評価方法であると考えられる。

しかしながらこれらの方法においては見掛け上の現象による評価であるので凝集性を粒子1個当り, または接点当りの力として表現することは困難である。

粉粒体の凝集性は早川¹¹⁾, 神保³⁾ および金庭¹²⁾の指摘するところの二次的特性の範ちゅうに入るが, 粒子1個当り, あるいは1接点当りの平均凝集力として表現されるならば, 一次物性のように取り扱うことができ, 粉粒体に特有の種々の高次物性を解析する有力な基礎特性たり得ると思われる。

著者らは粉粒体の凝集性の原因とそれに影響を及ぼす要因について研究することを目的とし, 本報においてはまず凝集力の定量的な測定方法と測定条件について報告する。

実験の部

装置および測定方法 Fig. 1 に示すように測定装置は 0.2 mg までの目盛のあるトーションバランスと底部に表面を平らに研磨した真ちゅう円板を付したアルミニウム製秤量皿および, 試料を垂直に上下するジャッキおよびその上に乗せた大型の気ほう水準器とからなる。

Fig. 1. Apparatus for Measurement of Cohesion

1: torsion dial, 2: balance beam, 3: hook;
4: aluminium pan, 5: brass disk, 6: water-level, 7: jack, 8: plastics vessel

円板に粘着剤を塗布し, 円板下面が水平になるように調節してバランスビームのフックにつり下げる。ビームが水平になるようにトーションダイヤルを調節し, 重量目盛 W_0 (アルミ皿, 円板および粘着剤の重量) を読み取る (Fig. 2a)。次に加圧用分銅を秤量皿に置き, ビームを傾ける (Fig. 2b)。

試料層は, 直径約 3 cm, 深さ約 1 cm の底のある円柱状プラスチック製容器に目の荒いふるいを通してわずかに過剰に充てんし, 振動を加えないように注意しながら過剰分をナイフでカットし, 容器のへりと同一の高さの見掛け上平らな面にならしたものである, これを円板直下の水準器上に置き, 徐々に垂直に上昇させて円板と接触させ, さらに上昇を続け, ビームを水平にする (Fig. 2c)。

加圧用分銅の重量 m はフックにつり下げられている皿および円板の合計重量よりも小さいので, このとき分銅重量 m のみ円板に接触している試料層に加わる。

加圧用分銅を去り, じょじょにトーションダイヤルを反時計方向に回転すると円板は上方に引っ張られる (Fig. 2d)。粒子を粘着した円板が試料層表面から離れた瞬間にダイヤルの回転を止め, 円板を引っ張り上げるのに要した力 W_1 を読み取る (Fig. 2e)。再び時計方向にダイヤルを回転し, ビームを水平にもどしたときの重量目盛 W_2 。

Fig. 2. Operation of the Apparatus

- Pan, disk and adhering agent are weighed together.
- A loading weight is placed on the pan, the torsion dial being kept at the position of reading in a.
- Lift up the sample bed, so that its surface makes contact with the disk and the balance beam returns to its zero-position.
- A loading weight is removed from the pan and beam is pulled up by rotating the torsion dial.
- Reading is made when the disk springs upward.
- Pan, disk, adhering agent and particles stuck on the disk are weighed together.

7) 野上 寿, 仲井由宣, 杉原正泰, 薬剤学, 24, 11 (1964).

8) R.H. Carr, *Chem. Eng.*, 18, 163 (1965).

9) T.M. Lowes, M.G. Perry, *Rheol. Acta*, 4, 166 (1965).

10) M.M. Benarie, *Brit. J. Appl. Phys.*, 12, 514 (1961).

11) 久保輝一郎, 水渡英二, 中川有三, 早川宗八郎, “粉体理論と応用”, 丸善, 1962, p. 199.

12) 金庭延慶, 粉体工学研究会誌, 8, 47 (1971).

を記録すれば、 W_2 は円板、皿、粘着剤、粒子の重量である (Fig. 2f).

粘着剤の粘着力が粒子間の凝集力よりもはるかに大きいので、粘着剤と粒子との間で生ずる破断が無視できると仮定 (仮定 1) すると、1 個の粒子を粒子層表面から取り出すのに必要な力 f_i は、任意の粒子の凝集力を f 、その自重を w とすれば、 $f_i = f + w$ で表わされる。

したがって総数 n 個の粒子を粘着したプレートを引っ張り上げるのに必要な力 F_t は、粒子がいっせいに層表面から分離されると仮定 (仮定 2) すると (1) 式で表わされる。

$$F_t = \sum_{i=1}^m f_i + \sum_{i=1}^n W_i \quad (1)$$

m は円板に付着した粒子総数 n 個の中で実際に破断に関与した粒子数、すなわち破断面に存在する粒子数である。

さらに円板に付着した粒子が試料層表面の第 1 層に限られると仮定 (仮定 3) すると、すべての粒子は破断面に存在し、 $m=n$ であるから (1) 式は (2) 式のように書ける。

$$F_t = \sum_{i=1}^n f_i + \sum_{i=1}^n w_i \quad (2)$$

ここで改めて $\sum f_i$ を F 、 $\sum w_i$ を W と書けば (2) 式は (3) 式のように書き換えられる。

$$F = F_t - W \quad (3)$$

ところで、 $F_t = W_1 - W_0$ 、 $W = W_2 - W_0$ であるから (3) 式によって F を求められるが、仮定 3 が成り立つならば F は n に比例し、しかも n は測定時に毎回異なるので F による凝集性の表現は適当ではない。

神保¹³⁾ は自重 w と付着力 f との比をもって見掛けの付着性 α を定義している。そこで同様に自重 w と凝集力 f との比、 f/w をもって見掛けの凝集性 α_c を定義する。

特に試料が微粉体の場合、 n の測定は困難であり、したがって f 、 w とともに求めることができないが、 $F = \sum f_i = n\bar{f}$ 、 $W = \sum w_i = n\bar{w}$ であるから、 $\alpha_c = \bar{f}/\bar{w} = F/W$ となり n が不明であっても求めることができる。実際には 1 回の測定ごとに α_c を計算し、50—100 回のくり返しを行なって α_c の平均値 $\bar{\alpha}_c$ を求めた。

本実験において前述の仮定 2 が成り立つために、円板と試料表面とは互に平行で、かつ水平でなければならない。そうでない場合には両者が接触したとき、Fig. 3 に示すようにフックとの連結点 C は円板の重心の鉛直線上からはずれ、点 C' へ移動する。この状態で円板が引っ張り上げられた場合、 C は重心の鉛直線上にもどるまでは水平に移動する結果、 B' から破断が開始され A' の方向に進行し、したがって破断はいっせいに起らない。

円板を厳密に水平に保つことは困難であるが、以下の方法によって簡易的に一定の範囲内の傾きにおさえることができる。

ジャッキ上に気泡水準器を用いて水平に保ったガラス平板を置き、上昇させて測定用円板と接触させる。Fig. 3 に示したように円板が水平でない場合、点 A 、 B 、 C 、 O はそれぞれ A' 、 B' 、 C' 、 O' に移動する。 $\triangle OCC'$ および $\triangle ABA'$ は直角三角形であると見なせば、 $\overline{CC'}$ はほぼ $\overline{OC} \tan \theta$ である。そこで C 点の水平移動距離をカセットメーターで測定すれば θ を求めることができるが、本実験においては θ が 1 度以内であればその影響を無視できると考え、 $\overline{OC}$ は 2.75 cm のものを用いたので $\overline{CC'}$ は 0.05 cm 以内になるように調節した。

試料 実験に用いた試料を Table I に示す。乳糖、バレイショデンプンは局方品で、JIS 標準ふるいで分級して用いた。

ガラスビーズは東芝製 G.B 704K、702K および 701K を蒸留水で洗浄して用いた。すべての試料は約 70° 3 時間乾燥したのちシリカゲル上に保存し、使用時に取り出して直ちに測定を行なった。

結 果

粘着剤降伏値の影響

粘着剤の性質によって値が変化するかどうか、また測定に適する粘着剤の条件を知る目的で降伏値の異なる 4

Fig. 3. Examination of Horizontality of the Disk

If the disk is not horizontal, point c moves to c' when the disk is brought in to contact with horizontal glass plate. Horizontality of the disk is known by measuring the distance cc' .

TABLE I. Materials used in Experimental Work

Material	Classificating mesh number	Particle mean diameter (μ)	Specific gravity	Porosity	Angle of repose
Lactose (A)	70—100	249	1.53	0.47	40°
Lactose (B)	145—170	137	1.53	0.49	44°
Lactose (C)	200—250	107	1.53	0.54	48°
Lactose (D)	325—	66	1.53	0.76	—
Glass beads 704K	—	142	2.45	0.41	28°
Glass beads 702K	—	72	2.45	0.43	33°
Glass beads 701K	—	6	2.45	0.59	43°
Potato starch	250—	24	1.48	0.51	42°

種の油脂を粘着剤に使用して検討した。油脂を用いたのは粒子を良く粘着し、しかも簡単にふき取ることができるので測定のくり返しが容易である理由による。

試料に平均粒径の異なる 3 種の乳糖を、また 0.24 cm² の円板と 94 mg の荷重用分銅を試作して用いた。

TABLE II. Influence of Yield Value of the Adhesing Agent

Component ^{a)}	Adhesing agent Yield value ($\times 10^3$ dyne/cm ² at 20°)	$\bar{F}$ (mg)			$\bar{W}$ (mg)			α_c		
		Lactose 70—100 mesh	Lactose 170—200 mesh	Lactose 325 mesh pass	Lactose 70—100 mesh	Lactose 170—200 mesh	Lactose 325 mesh pass	Lactose 70—100 mesh	Lactose 170—200 mesh	Lactose 325 mesh pass
I	2.13	0.61	2.25	14.06	0.98	0.82	0.23	0.62	2.76	63.46
II	1.85	0.77	1.92	18.67	0.93	0.75	0.26	0.83	2.60	77.25
III	1.65	0.58	1.70	18.26	0.84	0.75	0.23	0.69	2.41	86.78
IV	0.46	0.55	1.50	19.27	1.54	1.28	0.81	0.35	1.25	24.07

a) component I: J.P. Lanolin, component II: J.P. Lanolin 50%, J.P. White Petrolatum 50%, component III: J.P. White Petrolatum, component IV: J.P. White Petrolatum 50%, J.P. Liquid Paraffin 50%

Table II に $\bar{F}$, $\bar{W}$, α_c の測定結果を示す。

$\bar{F}$ の値は粘着剤の性質が変化しても比較的影響を受けず、試料によってほぼ一定の値を示す。 $\bar{W}$ は組成 I, II, III の粘着剤については大きな差はないが、IV に限り他の 2 倍あるいはそれ以上の大きな値を示している。これは組成 IV の粘着剤の降伏値が低いため、粒子間げきに侵入し、表面粒子のみならず、層深部の粒子も粘着した結果と思われる。 $\bar{F}$ の値に変化の少ないのは表面第一層と第二層の粒子間凝集力と、それ以下の層間凝集力との間に差がないためと思われる。

したがって組成 IV のように降伏値の著しく低い油脂を粘着剤として用いるのは仮定 3 が成立せず、表に示したように α_c が低い値となるので不適当であるが、局方白色ワセリン程度の降伏値があれば十分と思われる。

なお油脂の降伏値は平行板法を用いて 20° において測定した。

また油脂の円板への塗り方によって値が影響されるかどうか検討した結果、指先で薄く円板に塗り付けた場合と、これを約 50° で融解後放冷し、表面をなめらかにして使用した場合とについて検定し、なめらかな場合の方が $\bar{F}$, $\bar{W}$ ともに多少大きくなるが、 α_c の値に有意差は認められなかった。

円板面積の影響

バレシヨデンブン, G.B 702 を試料とし、Table III に示した 4 種の円板を用い、単位面積当りに加わる荷重を分銅重量を変えることによって 200, 400, 600 mg/cm² の 3 段階に変化して測定し、円板面積の変化による影響を見た。

Fig. 4 は円板面積 A の変化と $\bar{W}$, $\bar{W}/A$ および $\bar{W}$ の変動係数との関係を示す。

2 つの試料につき、すべての荷重の場合において $\bar{W}$ と A は直線関係にあるが、 A をゼロに補外した $\bar{W}$ の値は試料、荷重により多少異なるが、ゼロではない。これは円板の縁にはみ出して付着する試料によるものと考

TABLE III. Area of the Disk and Load applied to the Disk

Radius of the disk (cm)	Area of the disk (cm ²)	Weight placed on the pan (mg)	Load (mg/cm ²)
0.45	0.64	128	200
		256	400
		384	600
0.35	0.39	78	200
		156	400
		234	600
0.28	0.24	48	200
		96	400
		144	600
0.20	0.13	26	200
		52	400
		78	600

Fig. 4. Influence of the Disk Area on Values of $\bar{W}$, Values of $\bar{W}/A$ and Coefficient of Variation of the W

○●: 200 mg/cm²
 △▲: 400 mg/cm²
 □■: 600 mg/cm²
 ○△: Potato starch
 ●▲: Glass beads 702 k

Fig. 5. Influence of the Disk Area on $\bar{F}$ Value and its Coefficient of Variation

○●: 200 mg/cm²
 △▲: 400 mg/cm²
 □■: 600 mg/cm²
 ○△: Potato starch
 ●▲: Glass beads 702 k

えられ、エッジ効果と呼ぶ。

単位面積当りの粒子付着量 $\bar{W}/A$ はしたがって A が大なる場合には一定の値になるが、小なる場合、図のようにエッジ効果が著明に現われてくる。なお W の変動係数は A の変化によってほとんど影響されない。

Fig. 5 は $\bar{F}$ および F の変動係数と A との関係を示す。

前述の3つの仮定が成立するならば、 $\bar{F}$ は $\bar{W}$ に比例し、その $\bar{W}$ は Fig. 4 に示したように A と直線関係にあるので、 $\bar{F}$ と A とは直線関係でなければならないが、実際には図のようにそのような関係はみられない。

試料層表面は見掛上平坦にならしてあるが、微視的に見てなお多少のおうとつが存在すると思われる。したが。

って粒子は円板全面に均一に付着することではなく、特に円板が大きくなるに従って不均一性は増大するものと思われる。この不均一性は各粒子の凝集力の合力の作用点と引っ張り力の作用点との不一致を喚起し、いっせいに破断されない確率が增大する。

F の変動係数の連続的な上昇と、 $\bar{F}$ が直線的に増大しない原因は以上の理由によるものと思われる。

したがって $\bar{\alpha}_c$ は Fig. 6 に示したように A が大なる場合比較的低い値となるので、 A はなるべく小さく一定に保つことが必要である。しかしながら極度に小さな円板の使用は F , W ともに測定装置の最少目盛以下の値となり、かえって図のように変動係数が大となる。そこで A は 0.24 cm^2 程度が適当と考え、以後これを使用した。

Fig. 6. Influence of the Disk Area on $\bar{\alpha}_c$ Value and its Coefficient of Variation

○●: 200 mg/cm²
 △▲: 400 mg/cm²
 □■: 600 mg/cm²
 ○△□: Potato starch
 ●▲■: Glass beads 702 K

Fig. 7. Influence of the Load on $\bar{W}$ Value and its Coefficient of Variation

○: Lactose (A) ●: Glass beads 701K
 △: Lactose (B) ▲: Glass beads 702K
 □: Lactose (C) ■: Glass beads 704K
 ×: Potato starch

荷重の変化による影響

7 種の試料と 0.24 cm^2 の円板を用い、これに 7 段階の荷重を加えて検討した。

$\bar{W}$, $\bar{F}$, $\bar{\alpha}_c$ およびそれらの変動係数と荷重との関係を Fig. 7, 8, 9 に示す。

円板が試料層表面に接近するとき、まず最突出粒子から円板に接し、荷重はこれらの粒子に集中すると考えられる。したがって荷重が増大するにつれ、これらの粒子は試料層および粘着剤層中に押し込まれる。その結果最突出粒子以外の粒子も粘着剤に接触するようになり、円板表面に沿って粒子数が増大する。これを水平方向の粒子数増大とすると、これの外に垂直方向の増大も考えられる。

すなわち、荷重の加わった部分の層が多少圧縮され、空げき率が減少し、凝集力が増大するために層表面で破断が生じないで、より内部に生ずる場合である。

Fig. 7 に示すように $\bar{W}$ が荷重の増大に従って上昇する現象は水平方向と垂直方向の粒子の増大に起因するが、粒子を粘着した円板を顕微鏡で観察し、パレイショデンプン、G.B 701 など、比較的小さい試料において、荷重の大なる場合のみ垂直方向の粒子の増大が認められたが、その他の場合にはまれであった。

$\bar{W}$ の変動係数は荷重の変化によって大きな変化を示していない。

$\bar{F}$ は荷重の増大によって Fig. 8 に示したように上昇するが、これは水平方向の粒子の増大に起因し、垂直方向のそれによらない。したがって $\bar{W}$ の増大する割合よりも小さいので $\bar{\alpha}_c$ は Fig. 9 に示すように減少する傾向を示している。

Fig. 8. Influence of the Load on $\bar{F}$ Value and its Coefficient of Variation

○: Lactose (A) ●: Glass beads 701K
 △: Lactose (B) ▲: Glass beads 702K
 □: Lactose (C) ×: Potato starch
 ■: Glass beads 704K

Fig. 9. Influence of the Load on $\bar{a}$ Value and its Coefficient of Variation

○: Lactose (A) ●: Glass beads 701K
 △: Lactose (B) ▲: Glass beads 702K
 □: Lactose (C) ×: Potato starch
 ■: Glass beads 704K

G. B 704 K については著者らの方法では Fig. 8, 9 に示したように凝集力を検出することはできなかった。

以上を総括すると仮定 3 が成立するためには荷重はなるべく小さく、一定に保つ必要があるが、著しく小さい場合、やはり W および F の値が装置の最小目盛以下となる場合を生じ、図のように変動係数が上昇する傾向がみられる。そこで荷重は 400 mg/cm^2 程度が適当であろうと思われる。

考 察

この実験方法において仮定して来た事からの内、第 1 の仮定が成立していることを証明することは困難であるが、粒子 1 個の重量が数ミリグラムもするような大粒子を除けば、粘着剤の粘着力はかなり大きいので、仮定 1 は十分に成立しているものと思われる。

次に仮定 2, 3 が成立しているならば、 F と W との間に相関関係が認められなければならない。そこで種々の試料を用い、荷重および円板面積を変化して得たこれまでのデータを利用して作成した F — W 散布図の一部を Fig. 10, 11 に、全試料の相関係数を Table IV に示す。

Fig. 10. F — W Scatter Diagram

Fig. 11. F — W Scatter Diagram

F と W との間に比較的弱いながら相関関係が存在し、仮定 2, 3 が成立していると見なすことができる。

平均見掛凝集性 $\bar{a}_c$ は一定面積円板および一定荷重における F/W の平均値であるから、Fig. 10, 11 における

TABLE IV. Coefficient of Correlation between F and W

Material	Coefficient of correlation	Material	Coefficient of correlation
Lactose 70—100 mesh	0.331	Glass beads 702K	0.535
Lactose 145—170 mesh	0.504	Glass beads 701K	0.545
Lactose 200—250 mesh	0.619	Potato starch	0.570

回帰直線の勾配は、円板面積、荷重を変化して求めた $\bar{\alpha}_c$ の平均値なる意味を持つ。

円板面積、荷重など適切な条件下で測定される $\bar{\alpha}_c$ の値は回帰直線の勾配を代表するものであるから、通常物性値として凝集性を測定する場合は $\bar{\alpha}_c$ を求めれば十分である。

Table IV に示したように相関が比較的弱い原因は、荷重の大なる場合および円板面積の大なる場合のように仮定が成り立っていない場合の値も含まれていることにも起因しているものと思われる。

以上のように一定面積円板および荷重を用いるなど 2, 3 の条件下において仮定 1—3 が成立する場合において測定される F の値は (3) 式に示したように、粉粒体層表面から n 個の粒子を取り出すのに抵抗となるすべての力の総和 F_t から粒子の自重を除いたものである。そこで自重以外のすべての種類の力を、起因する機構によって以下の 4 種に分類し、それぞれのタイプの典形を Fig. 12 に示す。

- 1) 付着タイプ (Adhesive type), f^A .
- 2) 寄り掛けタイプ (Leaning type), f^L
- 3) からみ合いタイプ (Entanglement type), f^E .
- 4) 磨損タイプ (Defacing type), f^D .

付着タイプの力は従来より指摘されている付着力すなわち、粒子間 van der Waals 力、付着液の結合力、静電

Fig. 12. Four Typical Types of Cohesion

Fig. 13. Examples which show Co-existence of Different Type of Cohesion

- (I) The original state of packing
- (II) The case where the packing state is loose and particles are hard in nature so that movement of surrounding particles occurs without any modification and failure of the particles
- (III) The case where the packing state is dense and particles are flexible in nature so that modification of the particles occurs without movement of the surroundings
- (IV) The case where the packing state is also dense and particles are brittle in nature so that failure of the particles occurs

氣的引力，融着に起因する抵抗力で，接触状態にある微視的に平坦な面が剪断されるとき抵抗力も同じ付着力に起因すると考えられるのでこのタイプに含めた。

寄り掛けタイプの力の粒子が変形および破損しないと仮定したときに，互に寄り掛け合い関係にある粒子の内，寄り掛けられている粒子を取り出すのに抵抗となる力である。

寄り掛け粒子も被寄り掛け粒子もさらに他の粒子と同様な関係にある可能性がある。このような可能性は粒子の形態と関係があり，たとえば針状あるいは棒状粒子などの堆積層においてはこのような関係が立体的に二重，三重に生じているものと考えられる。

したがってこのタイプの力は粒子の自重と幾何学的形態に依存し，付着力の有無に無関係である。

からみ合いタイプは互にからみ合った粒子が引っ張られて変形し，からみ合いが解けるときの抵抗力で，やはり粒子間に付着力が全く存在しなくても発生する力である。

粒子表面におう(凹)部があるか，あるいは曲率にマイナスの部分があり，しかも互にからみ合った粒子が引っ張られたときに破損せず，弾性あるいは塑性変形する場合のみに生ずる。繊維状物質堆積層，たとえば綿のかたまり，の大きな凝集性は主としてこのタイプの凝集力によるものであると思われる。

磨損タイプは密に充てんされた層から粒子を取り出す場合のように，寄り掛った粒子が移動できず，寄り掛け粒子あるいは被寄り掛け粒子のどちらかが破損して取り出される場合で，接触状態にある表面の粗い粒子を，粒子間相対距離を変化せずに剪断する場合のように表面が磨損して分離されるとき抵抗力もこのタイプに含まれる。

付着タイプにおいても Fig. 12-(I) に示したように粒子内部に破損が生ずる場合があるが，付着力がゼロのときは磨損が生じない。それに引き替え，磨損タイプにおいては付着力の有無に関係なく生ずる点で前者とは異なる。

Fig. 13 に 4 つのタイプの抵抗力の内，いくつかが同時に発生する様子と，主たる抵抗力が粒子の強度と充てん状態によって変化する機構を模型的に示した。

表面におうとつのある粒子が充てんされた場合 (I)，充てんがそ(疎)で，粒子に変形が起らない場合 (II) は付着タイプと寄り掛けタイプの抵抗力が主である。充てんが密で，粒子が変形する場合 (III)，付着タイプとからみ合いタイプ，粒子自身に破損が生じる場合 (IV)，付着タイプと磨損タイプの抵抗力がそれぞれ主として発生する。

実在の粉粒体層から粒子を取り出すときに要する力 f は，充てん状態と粒子の強度的性質によって変化するが，4 つのタイプの力が多かれ少なかれ必ず含まれていると考えられるので厳密には (4) 式のごとく表わすことができる。

$$f = f^A + f^L + f^E + f^D \quad (4)$$

n 個の粒子を同時に取り出す場合の力 F は

$$F = \sum_{i=1}^n f_i = \sum_{i=1}^n (f_i^A + f_i^L + f_i^E + f_i^D) \quad (5)$$

と表わされる。

したがって著者らの方法により測定される力 F は (5) 式で定義されるところの凝集力である。

しかしながら，試験に供する粉粒体層の充てん状態がゆるい場合には磨損タイプの力が無視でき，さらに表面におうとつの多い粒子あるいは繊維状粒子を除いてはからみ合いタイプの力も無視できると思われ，したがって簡便的に，

$$F = \sum (f_i^A + f_i^L) \quad (6)$$

と表わすことができ，さらに付着力の無視できるような粒子，すなわち粒体においては，

$$F = \sum f_i^L \quad (7)$$

と表わすことができる。

粒体における凝集力が思量されたことは著者らの知る限りないが，前述のように付着力とは異なる機構で発生し存在し得る。

F または α_c で表現される凝集力または見掛凝集性が他の物性といかなる関係にあるか今後検討する予定である。

謝辞 本研究にあたり御指導賜りました千葉大学教授 仲井由宜博士に厚く感謝致します。