粉体の圧縮成形に関する研究 (第 2 報¹⁾) 塩化カリウム粉体の臼圧縮における下杵への圧力伝達岡田 寿太郎, 福森 義信
京都大学薬学部²⁾Studies on the Compaction of Powders. II.¹⁾ Pressure Transmission to the Lower Punch in the Die Compression of Potassium Chloride Powder

JUTARO OKADA and YOSHINOBU FUKUMORI

Faculty of Pharmaceutical Science, Kyoto University²⁾

(Received May 7, 1973)

To study the compression characteristics of powders, 0.15—3.0 g of potassium chloride powder (42—65 mesh) was poured into the cylindrical die of 8.02 mm inside diameter, and compressed from one side by the upper punch under a constant upper punch pressure (about 1000 kg/cm² in the maximum). After compressing for 10 min, the thickness of powder bed and the lower punch force were measured. By Janssen's theory, where the ratio K of the horizontal to the vertical pressure and the coefficient μ of friction on the die wall are regarded as constant, the ratio P_L/P_U of the lower to the upper punch pressure should increase monotonously with the decrease of the thickness of powder bed at the constant diameter of powder bed. When a constant weight of potassium chloride powder was compressed, the ratio P_L/P_U varied complicatedly with the increase of upper punch pressure. These functions were determined from the assumption of K and μ as the functions of pressure, and from the comparison of the pressure-porosity relationship in hydrostatic compaction with that in die compaction. Using these functions, partial revision of Janssen's equation was made.

緒 言

一般に、粉体を圧縮成形する方法としては、等方圧すなわち静水圧による方法³⁾と、打錠のように臼圧縮する方法との二種類がある。静水圧圧縮では壁面摩擦の影響が無く、粉体層は均一な応力下にあり、空隙率は静水圧の大きさのみによって決定されるがゆえに、空隙率と圧縮圧(静水圧)の関係(圧縮曲線と称す)を粉体の示す特性と見なすことができる。一方、臼圧縮では壁面摩擦のため粉体層は均一な応力下になく、応力分布や密度分布を生じる。

Janssen⁴⁾の理論によると、円筒容器中の粉体を上杵によって片側圧縮(圧力 P_U)した場合、下杵へ伝達される圧力 P_L は (1) 式で与えられる。⁵⁾

$$P_L/P_U = \exp(-4\mu KH/D) \quad (1)$$

(1) 式は Fig. 1 に示したように、厚さ dh 、直径 D の微小厚さの円板に作用する上面での垂直圧 P 、下面での垂直圧 ($P+dp$)、および、壁面摩擦のために生ずる摩擦力 μKP (μ は壁面と粉体との摩擦係数、 K は水平圧と垂直圧との比でありいずれも定数と見なす) に、それぞれが作用する面積をかけて平衡式をつくり、 $h=0$, $P=P_U$

1) 第 1 報: J. Okada, Y. Fukumori, *Chem. Pharm. Bull.* (Tokyo), **22** 493 (1974).

2) Location: Yoshida-Shimoadachi-cho, Sakyo-ku, Kyoto.

3) W.R. Morgan, R.L. Sands, *Metals and Material*, **3**, 85 (1969).4) H.A. Janssen, *Z.-V.D.I.*, **39**, 1045 (1895).5) K. Schneider, *Chemie Ing. Techn.*, **41**, 51 (1969).

Fig. 1. Pressure in the Bed of Powder

は、その傾向は実測値とよく一致する。⁸⁾

以上述べたように、粉体の自重のみによる場合から、高压圧縮まで、 K, μ が一定と見なされる粉体においては、軸方向の圧力は、Janssen の理論によって、その変化傾向が十分説明されるわけである。しかし Nelson⁹⁾ が指摘しているように、薬剤粉末の打錠においては、 P_L/P_u (以下下杵への圧力伝達率と称す) は、 P_u の上昇にともない (1) 式のような単調な変化をしない。著者が塩化カリウムについて測定した結果においても、下杵への圧力伝達率が上杵圧の上昇にともない減少する場合があります、(1) 式で十分には説明されない傾向を示した。

著者は、低压から高压にいたるまで果して K および μ が一定であろうかという疑問を持ち、同時に (1) 式で説明不十分である理由が、 K および μ を一定とみなした点にあると考えた。そこで、 K, μ を圧力の関数として表現しようと試みた。

理 論 の 部

粉体を圧縮したときの空隙率が、等方応力成分のみにより決定されると仮定する。静水圧圧縮においては、等方圧縮であるから加圧 (P) が等方応力に等しい。それで P と空隙率 (ϵ) との関係 (圧縮曲線) を求めておけば、これを用いて ϵ から逆に P を推定することができる。

臼圧縮においては臼壁面の摩擦のため、粉体層は均一な応力下ではなく、同一荷重下でも、粉体層が高くなるほど (充填量が多いほど)、平均空隙率 $\bar{\epsilon}$ は大となる。西原¹⁰⁾ および明田¹¹⁾ によると、圧縮曲線で充填量が零に外挿した圧力が、壁面摩擦のない均一な応力下の圧縮圧に相当する。

粉体を連続体と考えると、その微小部分には、一般に互いに垂直な方向に主応力 P_1, P_2, P_3 が作用する。最大主応力を P_1 とする。明田¹¹⁾ によると臼圧縮では $P_2 = P_3$ である。そして等方応力成分 P_m は (3) 式で与えられる。

$$P_m = (P_1 + P_2 + P_3)/3 = (P_1 + 2P_3)/3 \quad (3)$$

したがって最小主応力 P_3 は (4) 式で与えられる。

$$P_3 = (3P_m - P_1)/2 \quad (4)$$

上述の「零に外挿した圧縮状態」において、上杵圧 (P_u) が最大主応力 P_1 に相当し、この状態での空隙率 ϵ

から、 $h=H, P=P_L$ まで積分することによって求められる。ただし粉体の自重を無視する。また、(1) 式は、軸に垂直な任意の断面上では、応力は均一に分布していると仮定している。 K の値は便宜上主動土圧係数に等しいとされる場合もあるが、⁶⁾ 一般的には等しくない。^{5,7)} Schneider⁵⁾ は、polyethylen などの高分子物質の粉体を上杵圧 1134—22680 kg/cm² のもとで圧縮し、受圧ピン方式の壁面圧計によって実測した K の値は 0.4 であり、一方、せん断試験から求めた主動土圧係数は 0.2—0.3 の範囲であり、測定した荷重範囲内では K および摩擦係数 μ は一定となり、(1) 式が成立するという結果を得た。また、円筒容器中の粉体層上面に荷重がかかっていない場合、Janssen の式は、(2) 式になる。⁴⁾

$$P = (D\gamma/4\mu K) \cdot \{1 - \exp(-4\mu K h/D)\} \quad (2)$$

ここで γ は粉体のかさ密度、 P は上面からの深さが h の断面上の垂直圧である。(2) も、 K や μ が一定である場合に

6) 三輪茂雄, “粉粒体工学,” 朝倉書店, 東京, 1972, p. 172.

7) D.F. Bagster, *Powder Technol.*, **4**, 235 (1970/71).

8) J.H. Shaxby, J.C. Evans, *Trans. Faraday Soc.*, **19**, 60 (1923); 葛岡常雄, 荒井雅夫, 磯部 滉, 日本機械学会誌, **59**, 209 (1956); 青木隆一, 森 芳郎, 化学工学, **24**, 926 (1960).

9) E. Nelson, S.M. Nagqvi, L. W. Busse, T. Higuchi, *J. Am. Pharm. Associ.*, **43**, 596 (1954).

10) 西原利夫, 郡利 矩, 谷 哲郎, 機械学会論文集, **21**, 208 (1954).

11) Y. Aketa, H. Tsuwa, *Technol. Reports Osaka Univ.*, **18**, 489 (1968).

から推定される等方圧が P_m に相当する。故に (4) より P_3 を計算し、(5) 式により近似的に K が求められる。

$$K \approx P_3/P_U \quad (5)$$

このようにして K を P の関数として表わすことができるから、Janssen 理論に準じて、 μ を P の関数として表わすことが可能である。詳細は考察の部で述べる。

実験の部

1. 測定試料 試料は、主として塩化カリウム 42—65 メッシュのフラクションであり、一部 100—115, 200—250 メッシュを用いた。調整方法は前報と同じである。

2. 静水圧圧縮 Fig. 2 に静水圧による圧縮装置の略図を示す。ゴム袋中に約 3 g の粉体を充填し、アスピレーターで空気をぬきとり、木綿糸で口をしばったものをオートクレーブ中のエタノールに浸け、圧縮ポンプにより最大 800 kg/cm² まで圧縮する。一定圧力下で 10 分間放置後成形体を取り出し、空隙率を測定した。

空隙率は、水銀圧入式ポロシメーターにより 1000 kg/cm² までの水銀圧入量 V_{1000} (cm³) を測定し、(6) 式から計算した。

$$\varepsilon = V_{1000}/(V_{1000} + W/\rho) \quad (6)$$

ここで、 W は成形体重量 (g)、 ρ は真比重 (g/cm³) であり、空気比較式比重計によって測定した値は $\rho = 1.988$ である。

3. 白圧縮 前報と同じ装置によった。ただし一定荷重下で 10 分間放置後の上杵圧、下杵圧、粉体層の厚さを測定した。

この場合、空隙率は (7) 式で与えられる。

$$\varepsilon = 1 - 4W/(\pi D^2 \rho H) \quad (7)$$

ここで、 D は臼内径 (8.02 mm)、 H は粉体層の厚さである。

結果と考察

1. 静水圧圧縮曲線

塩化カリウム粉体を静水圧圧縮した場合の静水圧と空隙率の関係を Fig. 3 に示す。粒子径が小さいほど空隙率は大きくなるが、800 kg/cm² ではほとんど差がない。

2. 白圧縮曲線

塩化カリウム 42—65 メッシュ粉体を 0.15—3.0 g 充填し、上杵により片側圧縮した場合の上杵圧と空隙率の関係を Fig. 4 に示す。臼壁面の摩擦のため、充填量が多いほど大きな空隙率を示す。

3. 充填量を零に外挿した場合の白圧縮曲線

横軸に充填量を取り、縦軸に空隙率の対数を取り、各上杵圧ごとに Fig. 4 のデータをプロットしたのが Fig. 5 である。これを充填量零に外挿して空隙率 (ε_0) を知ることができる。

4. 軸と直角方向への圧力伝達 (圧力の関数としての K の計算)

静水圧圧縮曲線 (Fig. 3) と、上杵圧 P_1 と充填量を零に外挿した場合の空隙率 (ε_0) との関係をまとめて示したのが Fig. 6 である。

これを用いて $P_1 = 100, 200, 400, 600, 800, 940$ (kg/cm²) に相当する ε_0 を与える静水圧 (P_m) を読みとり、(4) 式に代入して P_3 を計算し、最大主応力 P_1 と最小主応力 P_3 との関

Fig. 2. Schematic Diagram of Hydrostatic Compaction Apparatus

Fig. 3. Relationship between Hydrostatic Pressure and Porosity in the Hydrostatic Compaction of Potassium Chloride Powder

mesh; —○—: 42—65; —●—: 100—115;
—○—: 200—250

Fig. 4. Relationship between Upper Punch Pressure and Porosity in the Die Compaction of Potassium Chloride Powder

mesh: 42-65

the weight of powder (g);

—○—: 3.000; —●—: 2.500; —●—: 2.000;
—○—: 1.500; —○—: 1.000; —●—: 0.750;
—●—: 0.500; —●—: 0.250; —○—: 0.150

Fig. 5. Relationship between the Weight of Powder and Common Logarithm of Porosity at the Constant Upper Punch Pressure

upper punch pressure (kg/cm²);

—○—: 0; —●—: 100; —●—: 200;
—●—: 400; —○—: 600; —○—: 800;
—●—: 1000

Fig. 6. Relationship between Upper Punch Pressure or Hydrostatic Pressure and Porosity

—○—: die compaction

—●—: hydrostatic compaction

Die compaction curve is extrapolated to the zero weight of powder.

Fig. 7. Relationship between Minimum and Maximum Principal Stress

係を図示すると Fig. 7 のとおりである。

Fig. 7 を見ると、高圧になるにしたがって傾き 45° の直線に近づくが、明田ら¹¹⁾ が金属粉体について測定した結果と一致する。

つぎに、(5) 式により求めた水平圧力伝達率 (K) を、最大主応力 (P_1) に対してプロットすると Fig. 8 のとおりである。

Fig. 8. Relationship between the Ratio of Minimum to Maximum Principal Stress and Maximum Principal Stress

Fig. 8 から明らかなように, K は P_1 の関数であり, いま 2 次式 (8) で近似することにした.

$$K = K_0 + b_1 P + b_2 P^2 \quad (8)$$

最小自乗法で求めた常数 K_0 , b_1 , b_2 の推定値は (9) のとおりである.

$$\left. \begin{aligned} K_0 &= 0.225 \\ b_1 &= 9.10 \times 10^{-4} \\ b_2 &= -0.361 \times 10^{-6} \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

5. 上杵圧 (P_U) と下杵圧 (P_L) との関係

Fig. 9 は測定値である上杵圧と下杵圧の関係を示したものである. Spencer¹²⁾ によると, 充填量が一定である場合, 上杵圧と下杵圧の関係は, 原点を通る直線で表わされる.¹³⁾ しかし, Fig. 9 においては, 充填量が 0.15—3.0 g の範囲でいずれも直線にはならない. 充填量が 0.5 g の場合, 上杵圧が 600 kg/cm² 以下の圧力範囲で傾き (下杵への圧力伝達率) が減少し, 600 kg/cm² 以上では増加する傾向を示している. これは Nelson⁹⁾ らの結果とよく一致する.

6. Janssen の理論による考察 (μ , K が定数の場合)

Janssen の理論に基づいた (1) 式は, 下杵への圧力伝達率と粉体層の厚さとの関係を示しているが, 両辺の対数をとると (10) 式になる.

$$\ln (P_L/P_U) = -4\mu KH/D \quad (10)$$

Janssen は μK を定数とみなしているので, μK の値を推定するため, (10) 式に従って, P_L/P_U の対数を H/D に対してプロットしたのが Fig. 10 である.

最小自乗法によって求めた μK の値は 0.149 となる. しかし Fig. 10 から明らかなように, 全体的には直線状であるが, 一定充填量でのデータは, 直線からのずれが著しく, 直線と直交する傾向がある.

Fig. 11 は, $\mu K = 0.149$ として, 測定値である P_U と P_L を使って (10) 式から計算した粉体層厚さ H を, その測定値に対してプロットしたものである. 一定充填量では, 上杵圧が増加すると厚さ H の測定値は当然減少しているが, 著者の実験によると, (10) 式から計算した H は, 増加する傾向が著しく, 不合理なことが分る.

7. 壁面摩擦係数 μ についての考察

Fig. 8 に示したように, 水平方向への圧力伝達率 K は垂直圧の増加にともない大きくなり, (8) 式により近似することができた. 今, 摩擦係数 μ が定数であると仮定すると, (8) 式を用いて, Janssen の理論により (11)

Fig. 9. Relationship between Lower and Upper Punch Pressure

the weight of powder (g);
 —○—: 0.150; —●—: 0.250; —◐—: 0.500;
 —◑—: 0.750; —⊖—: 1.000; —⊕—: 1.500;
 —⊗—: 2.000; —⊙—: 2.500; —⊞—: 3.000

(9)

12) R.S. Spencer, G.D. Gilmore, *J. App. Phys.*, **21**, 527 (1950).

13) 別所貞夫, 富岡穂一, 伊藤四郎, 薬誌, **89**, 599 (1969).

Fig. 10. Relationship between Common Logarithm of the Ratio of Lower to Upper Punch Pressure and the Ratio of the Thickness to Diameter of Powder Bed

The numbers in Fig. show the weight of powder (g).

Fig. 11. Relationship between Calculated Value and Measured Value of the Thickness of Powder Bed

the weight of powder (g);

—○—: 0.150; —●—: 0.250; —●—: 0.500;
—●—: 0.750; —○—: 1.000; —○—: 1.500;
—●—: 2.000; —●—: 2.500; —○—: 3.000

式が成立する。

$$-\frac{4\mu}{D} \int_0^H dh = \int_{P_U}^{P_L} \frac{1}{K_0 P + b_1 P^2 + b_2 P^3} dP \quad (11)$$

積分して (12) 式を得る。

$$-\frac{4\mu K_0 H}{D} = \ln \left(\frac{P_L}{P_U} \right) + k_1 \ln \left(\frac{P_L + k_2}{P_U + k_2} \right) + k_3 \ln \left(\frac{P_L + k_4}{P_U + k_4} \right) \quad (12)$$

ここで、 k_1 から k_4 までは、(13) 式から計算される常数であり、その値を (14) に示す。

$$\left. \begin{aligned} k_1 &= \frac{-b_1 - \sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}{2\sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}, & k_2 &= \frac{b_1 - \sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}{2b_2}, \\ k_3 &= \frac{b_1 - \sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}{2\sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}, & k_4 &= \frac{b_1 + \sqrt{b_1^2 - 4K_0 b_2}}{2b_2} \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

$$\left. \begin{aligned} k_1 &= -0.924, & k_2 &= 226, \\ k_3 &= -0.0760, & k_4 &= -2749 \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

ただし圧力の単位を kg/cm^2 とした場合である。

さて、測定値 H, P_L, P_U を用いて (12) 式から μ を計算すると一定値をとらない。従って、 μ も K と同様に圧力 (すなわち壁面に垂直に作用する圧力) の関数であると考えられ、壁面垂直圧との関係を検討するため、次に述べるような考察を行った。

Fig. 12 は厚さ H 、直径 D の円柱状粉体層に上杵圧 P_U が作用し、下杵へは圧力 P_L が伝達された状態を示したものである。(12) 式から求めた μ の値は、近似的に、一定の充填量および一定の上杵圧のもとにおける摩擦係数であり、 $\bar{\mu}$ と記す。さらに、同条件における壁面への垂直圧の平均値を $\overline{KP}$ とすると、全壁面摩擦力は $\bar{\mu} (\overline{KP}) \cdot (\pi DH)$ となり、力の平衡を考えて (15) 式が成立する。

$$\bar{\mu} (\overline{KP}) \cdot (\pi DH) = (P_U - P_L) \pi D^2 / 4 \quad (15)$$

したがって、 $\overline{KP}$ は (16) 式で表わされる。

$$\overline{KP} = (P_U - P_L) D / (4H \bar{\mu}) \quad (16)$$

(12) 式から求めた $\bar{\mu}$ 、測定値 P_U, P_L, H の値から (16) 式により計算した $\overline{KP}$ に対して $\bar{\mu}$ をプロットする

Fig. 12. Mean Pressure on the Die Wall

Fig. 14. Relationship between Calculated Value and Measured Value of the Thickness of Powder Bed

the weight of powder (g);
 —○—: 0.150; —●—: 0.250; —●—: 0.500;
 —●—: 0.750; —○—: 1.000; —○—: 1.500;
 —●—: 2.000; —●—: 2.500; —○—: 3.000

(18) 式を (17) 式に代入して積分すると (19) 式を得る.

$$-\frac{4\mu_0 K_0 H}{D} = mK_0(P_L - P_U) + \ln\left(\frac{P_L}{P_U}\right) + k_1 \ln\left(\frac{P_L + k_2}{P_U + k_2}\right) + k_3 \ln\left(\frac{P_L + k_4}{P_U + k_4}\right) \quad (19)$$

未知定数 μ_0 , m の値は, (19) 式から, 測定値 H , P_L , P_U を用いて最小自乗法により決定し, (20) に示す.

$$\mu_0 = 0.473, \quad m = 3.99 \times 10^{-4} \quad (20)$$

(20) の μ_0 , m の値を (18) に入れて μ を計算すると, Fig. 13 の実線のようにになる.

つぎに, 測定値 P_L , P_U を用い (19) 式から計算した H の値を, その測定値に対してプロットしたのが Fig. 14 である.

Fig. 14 を Fig. 11 と比較すると, はるかによく一致していることが解る.

Fig. 13. Relationship between Pressure and Coefficient of Friction on the Die Wall

the weight of powder (g);
 —○—: 0.150; —●—: 0.250; —●—: 0.500;
 —●—: 0.750; —○—: 1.000; —○—: 1.500;
 —●—: 2.000; —●—: 2.500; —○—: 3.000

と, Fig. 13 のようになる.

摩擦係数としてはきわめて妥当な値 (0.14—0.54) をとっており, Fig. 13 のように摩擦面に作用する垂直力の増加にともなって摩擦係数が減少する傾向は, 摩擦面に粘着力が作用している場合には広く認められる現象である.¹⁴⁾

8. K , μ を圧力の関数とした場合

μ も圧力の関数と考えると (11) 式に対応する積分式は, (17) 式になる.

$$-\frac{4}{D} \int_0^H dh = \int_{P_U}^{P_L} \frac{dP}{\mu(K_0 P + b_1 P^2 + b_2 P^3)} \quad (17)$$

Fig. 13 のプロットを参照して, 摩擦係数が壁面垂直圧 KP に対して (18) 式で表わされると仮定する.

$$\mu = \frac{\mu_0}{1 + mKP} \quad (18)$$

14) 曾田範宗, “摩擦の話,” 岩波書店, 東京, 1971, p. 60.

結 論

Janssen の理論において定数と仮定されている水平圧の垂直圧に対する比 K , および, 壁面摩擦係数 μ を圧力の関数とすることにより, 塩化カリウム粉体の高圧圧縮における上杵圧, 下杵圧, 粉体層の厚さを関係づける実験式 (19) を得た.

謝辞 本研究の一部に御協力された岩上育代 (旧姓服部) 学士に謝意を表します.