

粒子形状による粉体物性の変化

蓑嶋 裕典，尾谷 賢，内山 智幸
篠原 邦夫*，高屋敷一仁*，浦 哲也*

The Effect of Particle Shape on the Mechanical Properties of Powder Bed

Hironori MINOSHIMA, Masaru OTANI, Tomoyuki UCHIYAMA
Kunio SHINOHARA*, Kunihito TAKAYASHIKI*, Tetsuya URA*

抄 録

粒子形状が粉体の力学的特性に与える効果を検討した。ハイブリダイザーを用い、ステンレス粉体を段階的に粒子形状調整を行い、形状をフーリエ変換を用いた方法で定量的に評価した。さらに、得られた粉体の各種粉体物性を測定し、粒子形状が粉体物性に及ぼす効果を検討した。その結果、内部摩擦係数と剪断付着強度は、球形化に伴う咬み合い効果の低下により減少した。また、安息角とタッピング試験による圧縮度の測定から、球形化に伴い流動性が改善されることが認められた。これらより、粒子形状の粉体物性への効果は、物性が高次になるに従い小さくなることが推定された。

1. 緒 言

粉体材料の開発および粉体を扱う製造プロセスの設計等において、粉体の諸特性を十分に把握することが重要である。流動性、充填性、分散性等の粉体としての諸特性、すなわち二次特性には、その粉体を構成する粒子の特性、すなわち一次および準一次特性が影響する。一次および準一次特性には、粒子径および分布、形状、密度、帯電性および濡れ性等の表面特性等があり、これらと粉体の二次特性との関連を研究した報告は多い^{1)~4)}。しかし、粒子形状と粉体特性の関係については、その重要さは認識されているものの、粒子の形状調整の困難さから報告は少ない^{5,6)}。

既報⁷⁾において、著者らは近年開発された高速気流中衝撃法を用いたハイブリダイザーが粒子の球形化機能を有することに着目し、本法による各種粉体の粒子形状調整を試みた。その結果、操作条件により段階的な粒子形状の調整が可能であることを報告した。

本報告では、本法により調整されたステンレス粉体を用い、

粉体層の力学的特性に及ぼす粒子形状の効果を実験的に検討した。

2. 実 験

2.1 試 料

試料にはステンレスの水アトマイズ粉(ST-AT316L-100, (株)福田金属箔粉工業製)を用いた。試料の密度は、7,900kg/cm³であり、粒子形状は図5(a)に示す様に不定形である。

これを、あらかじめふるいにより粒度を44μm以下に揃え用いた。調整された原料粉のレーザ回折法による粒度分布を図1に示した。図1において、粒度分布上で44μmより大きな粒子が存在するのは、ふるいでは短径により篩われることによる影響と考えられる。

2.2 装置および方法

(1) 粒子形状の調整方法

粒子形状の調整には、図2に示した市販のハイブリダイザー(NHS-0型, (株)奈良機械製作所製)を用いた。詳細は既報^{7,8,9)}の通りである。本研究では投入時の処理時間の誤差を

*北海道大学大学院工学研究科物質工学専攻

防ぐため、所定のロータ回転数に達した後、試料を圧入できる様に装置を一部改良した。

本装置を用い、既報⁷⁾と同様に処理時間、周速および仕込量を変化させ、粒子形状の調整を行った。

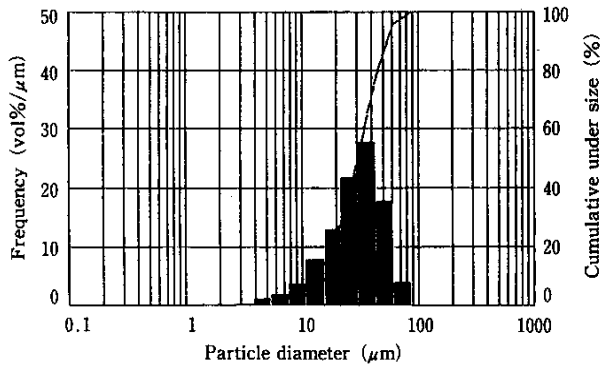


図1 原料の粒度分布

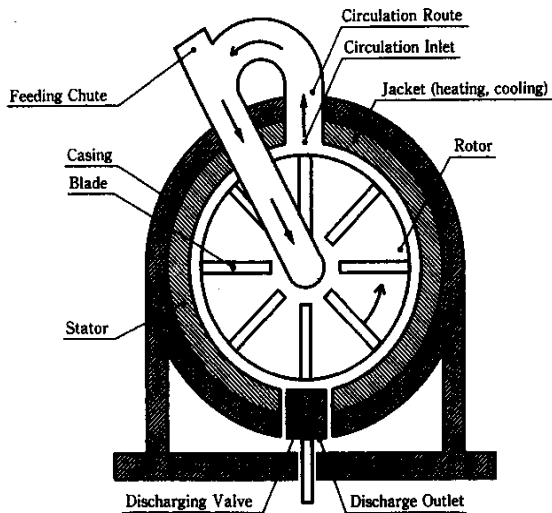


図2 ハイブリダイザーの概要

(2) 各種粉体特性の測定方法

上記により段階的に粒子形状を調整された試料を用い、下記の方法で各種粉体特性の測定を行った。

粉体層の力学的特性として、剪断強度を平行平板式によるパウダーベッドテスタ（株）三協パイオテック製PTHN-13BA型）により測定した。この際、剪断強度は空隙率を揃えるために所定の予圧密を5分間行った後、予圧密応力より低い範囲で垂直応力を変化させ測定を行った。また、ハイブリダイザー処理60sまでの試料では、予圧密で空隙率を揃えることが不可能であったため、同一の垂直応力で種々の空隙率に対する剪断応力を測定し、これを補外して同一空隙率に対する剪断強度を求めた。

タッピング試験はストローク18mm,1回/sの条件で、また、安息角は注入法によりそれぞれA.B.D粉体測定器（株）筒井理化学機器製）により測定した。

2.3 粒子形状の評価方法

粒子形状の評価法として、本研究では粒子形状と粉体の力学的特性との関連を定量的に考察する目的から、投影粒子像の輪郭曲線のフーリエ級数を利用する方法を用いた。フーリエ級数を用いる一般的な方法は、粒子輪郭点の動径を回転角に対しフーリエ変換するものであるが、凹状粒子の場合、同一動径に対し複数の輪郭点持つことがあるという欠点があった。そこで、本研究では投影粒子輪郭像の周長LをN等分し、分割された周上の各点のx, y座標 (P_{dx}(n), P_{dy}(n); 1, 2, … N-1) それぞれについて、基点 (P_{dx}(0), P_{dy}(0)) から輪郭に沿った長さに対するフーリエ展開を行う方法¹⁰⁾を用いた。ただし、その距離を角度で表現するためLを2πに対応させた。従って、j番目の輪郭点の角度θ_dおよび距離L_dはそれぞれ次式で表される。

$$\theta_d = \frac{2\pi j}{N} \dots\dots\dots (1)$$

$$L_d = L \frac{\theta_d}{2\pi} \dots\dots\dots (2)$$

ただし、j = 0, 1, … N - 1, 0 ≤ θ_d ≤ 2πである。

この様な方法により、P_{dx}, P_{dy}それぞれから得られるフーリエ級数および係数は次式で示される。

$$x(\theta_d) = \sum_{j=0}^{N-1} \{ a_x(j) \cos(j\theta_d) + b_x(j) \sin(j\theta_d) \} \dots\dots\dots (3)$$

$$y(\theta_d) = \sum_{j=0}^{N-1} \{ a_y(j) \cos(j\theta_d) + b_y(j) \sin(j\theta_d) \} \dots\dots\dots (4)$$

$$a_x(j) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} P_{dx}(i) \cos\left(\frac{2\pi ij}{N}\right) \dots\dots\dots (5)$$

$$b_x(j) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} P_{dx}(i) \sin\left(\frac{2\pi ij}{N}\right) \dots\dots\dots (6)$$

$$a_y(j) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} P_{dy}(i) \cos\left(\frac{2\pi ij}{N}\right) \dots\dots\dots (7)$$

$$b_y(j) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} P_{dy}(i) \sin\left(\frac{2\pi ij}{N}\right) \dots\dots\dots (8)$$

ここで、粒子像のマクロな輪郭を表現するため、級数の第1項の組のみを用いると次式となる。

$$x(\theta_d) = a_x(1) \cos(\theta_d) + b_x(1) \sin(\theta_d) \dots\dots\dots (9)$$

$$y(\theta_d) = a_y(1) \cos(\theta_d) + b_y(1) \sin(\theta_d) \dots\dots\dots (10)$$

(9)および(10)式は、θ_dが0~2πまで変化すると軌跡はx,y座標軸をβだけ回転することにより次式の様な楕円となるので、これを当該粒子の近似形状とした。

$$\frac{X^2}{(BC-AD)^2/(C^2+D^2)} + \frac{Y^2}{(BC-AD)^2/(A^2+B^2)} = 1 \dots\dots\dots (11)$$

ただし、

$$A = a_x(1) \cos \beta + a_y(1) \sin \beta \dots\dots\dots (12)$$

$$B = b_x(1) \cos \beta + b_y(1) \sin \beta \dots\dots\dots (13)$$

$$C = a_y(1) \cos \beta - a_x(1) \sin \beta \dots\dots\dots (14)$$

$$D = b_y(1) \cos \beta - b_x(1) \sin \beta \quad \dots\dots\dots (15)$$

$$\beta = -\frac{1}{2} \tan^{-1} \left[\frac{2\{a_x(1)a_y(1) + b_x(1)b_y(1)\}}{a_x(1)^2 + b_x(1)^2 - a_y(1)^2 - b_y(1)^2} \right] \quad \dots\dots\dots (16)$$

ここで、楕円の長軸半径 a_e および短軸半径 b_e は次式で示される。

$$a_e = \sqrt{\frac{(BC-AD)^2}{C^2+D^2}} \quad \dots\dots\dots (17)$$

$$b_e = \sqrt{\frac{(BC-AD)^2}{A^2+B^2}} \quad \dots\dots\dots (18)$$

従って、その短長軸比を形状指数 k とした。

$$k = \frac{b_e}{a_e} \quad \dots\dots\dots (19)$$

また、この近似楕円と輪郭座標との半径方向の差の標準偏差を近似楕円と等周長円の半径で除した値を表面粗度に対応する変動係数 C_v とし、セミマクロな形状評価に用いることができる。すなわち、

$$C_v = \frac{\sqrt{\frac{1}{N} \sum (r_d - r_e)^2}}{r_c} \quad \dots\dots\dots (20)$$

である。ただし、 l_e は楕円の周長、 r_d は輪郭点までの半径、 r_e は近似楕円の半径であり、それぞれ次式で与えられる。

$$l_e = 4a_e \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - \left(1 - \frac{b_e^2}{a_e^2}\right) \sin^2 \theta_e} d\theta_e = 2\pi r_c \quad \dots\dots\dots (21)$$

$$r_d = \sqrt{P_{ax}^2 + P_{ay}^2} \quad \dots\dots\dots (22)$$

$$r_e = \sqrt{\frac{a_e^2 b_e^2}{a_e^2 - (a_e^2 - b_e^2) \cos^2 \theta_e}} \quad \dots\dots\dots (23)$$

3. 結果および考察

3.1 粒子形状の評価

既報⁷⁾において、同様な方法で銅粉体(水アトマイズ法、(株)福田金属箔粉工業製)の粒子形状調整を試みた。得られた粉体のSEM写真を図3に示す。

その際、画像処理から直接粒子投影像の面積と周長を求め、それらが等価な楕円の短長軸比を形状指数として評価した(以後、直接法と称する)。しかし、この直接法では粒子輪郭は隣り合う画素を折れ線で結ぶため、本来の滑らかな輪郭より周長が長く測定され、得られた形状指数が小さくなり補正の必要があること、また、形状の定義からマイクロな表面粗度とマクロな形状指数が相互に影響を及ぼす、という欠点があった。

この銅粉体に対し、上述のフーリエ変換を用いた方法(以後、フーリエ法と称する)により形状指数 k を求め、直接法による結果と比較して図4に示した。

図4はハイブリダイザー処理により、処理時間に伴い球形化が進行している経緯を示している。処理時間1,800sの銅

粒子(図3(d))は、視覚的には十分球形度が高い。しかし、直接法では $k = 0.60$ と上述の要因から低い値を示している。一方、フーリエ法では $k = 0.93$ と大きく改善されており、フーリエ法が粒子形状の評価法として優れていることが確認された。

3.2 粒子形状の調整

ハイブリダイザーにより、ステンレス粉体を周速80m/s、仕込量10cm³/Batchにおいて、処理時間を変化させた際のステンレス粒子のSEM写真を図5(a)~(d)に示した。これを定量的に評価するため、形状指数 k を用い処理時間による変化として図6に示した。図中には既報⁷⁾の銅粉体による結果を併記した。

図6より、銅粉体と同様にステンレス粉体も処理時間の増加に伴い球形化が進行するが、ステンレス粉体は銅粉体に比較し球形化の進行が穏やかである。これは両者の展延性の差によるものと考えられる。この様に、より段階的に粒子形状を調整するためには、銅粉体に比較し展延性の小さなステンレス粉体が適切であることが認められた。

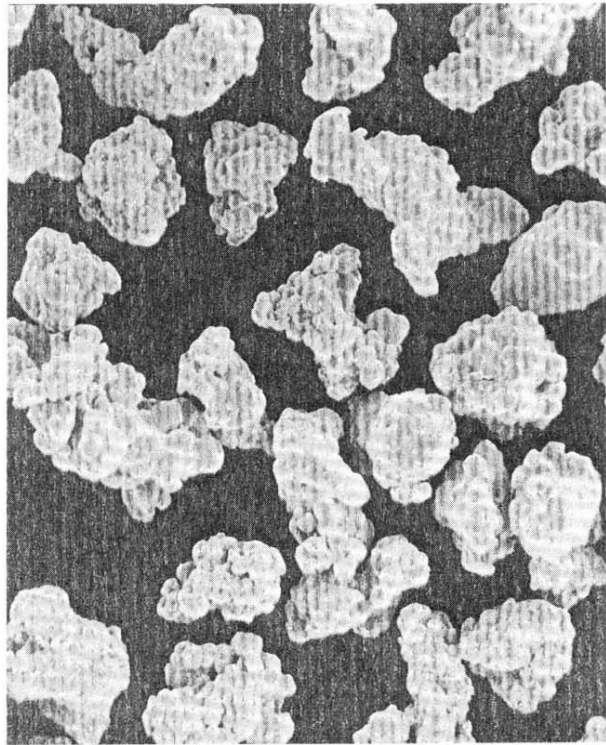
3.3 粒子形状による粉体特性の変化

(1) 内部摩擦係数と剪断付着強度

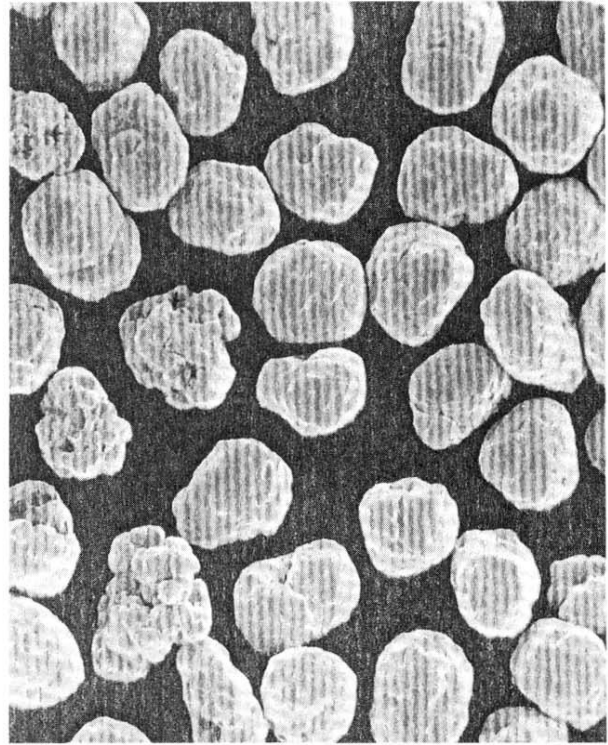
上記の様に調整された、段階的に形状の異なるステンレス粉体の粉体特性として、まず、静的特性である剪断強度を測定した。得られた破壊包絡線は粒子形状によらずクーロン粉体を示す直線で表され、流動性の良い粉体であることが伺えた。また、この破壊包絡線の傾きで示される内部摩擦係数 μ_i を図7に、 y 切片で示される剪断付着強度 C_s を図8に、それぞれ形状指数 k との関係として示した。

図7より、球形化の進行に伴い μ_i は減少している。篠原¹¹⁾ は均一球形粒子をモデルとした考察から μ_i は、粒子の表面摩擦係数のみならず粉体層での粒子の配列状態、すなわち咬み合いの度合いにより異なり、空隙率の関数として表すことができることを報告している。本研究の場合、図7の様に同一空隙率においても μ_i の減少が見られたことは、粒子の表面状態に変化がないとした場合、球形化により咬み合いの度合いが減少したためであると考えられる。

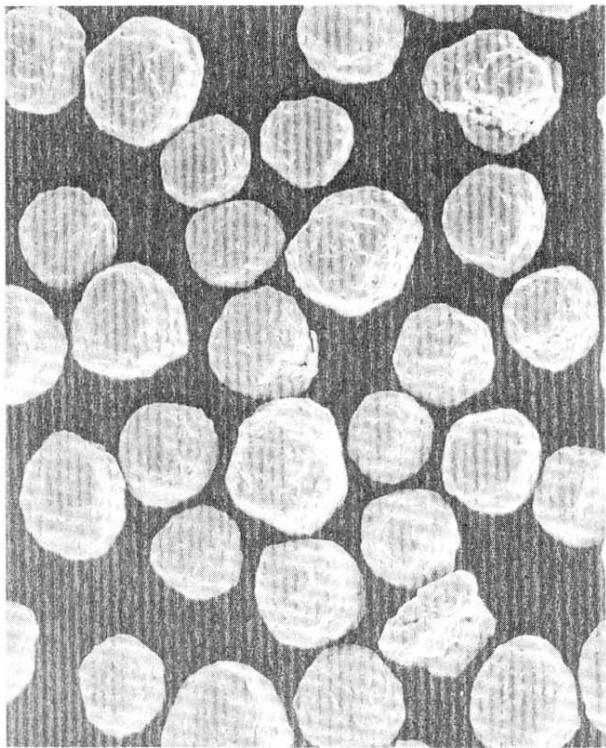
また、図8より剪断付着強度 C_s は原料粉で幾分高いを示したものの、球形化に伴う有意な差は認められず、原料粉を除きほぼ一定値を示した。ハイブリダイザー処理の際、球形化に伴い若干の粉砕が発生し、平均粒径が43 μm から30 μm へと低下したが、この粒径の低下は同一空隙率における剪断試験において、粉体層中の粒子間の接触点数の増加を意味し、その結果 C_s は増加傾向を示す要因となる。しかし、球形化の進行に伴う咬み合い効果の減少が剪断付着強度の低下を生じさせたことにより、図8の様な結果となったものと推測される。



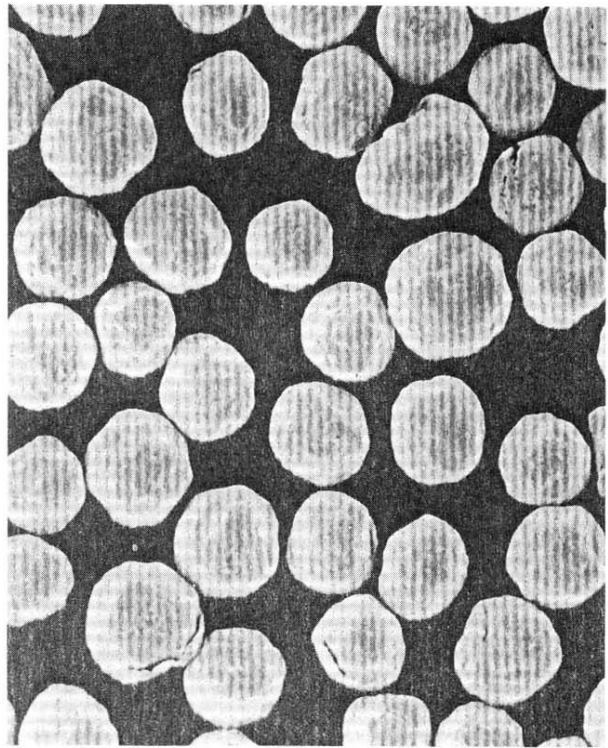
(a) $t=0$ (原料)



(b) $t=30$ s



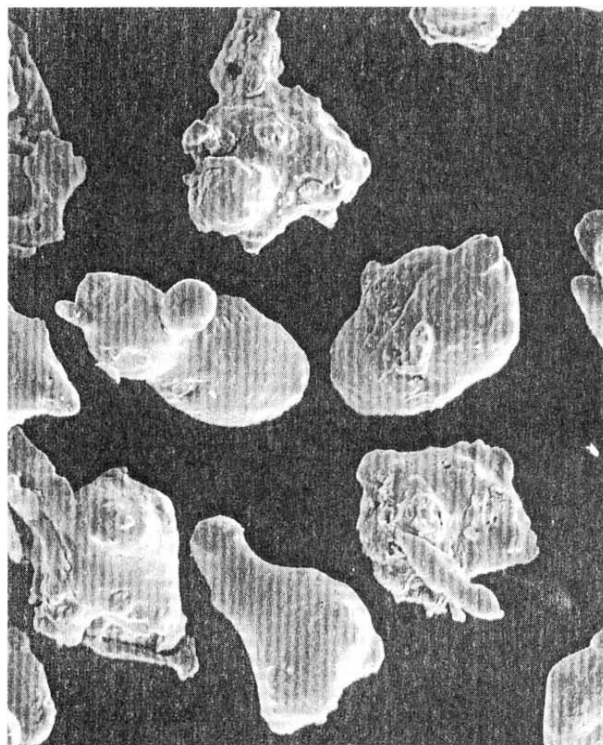
(c) $t=300$ s



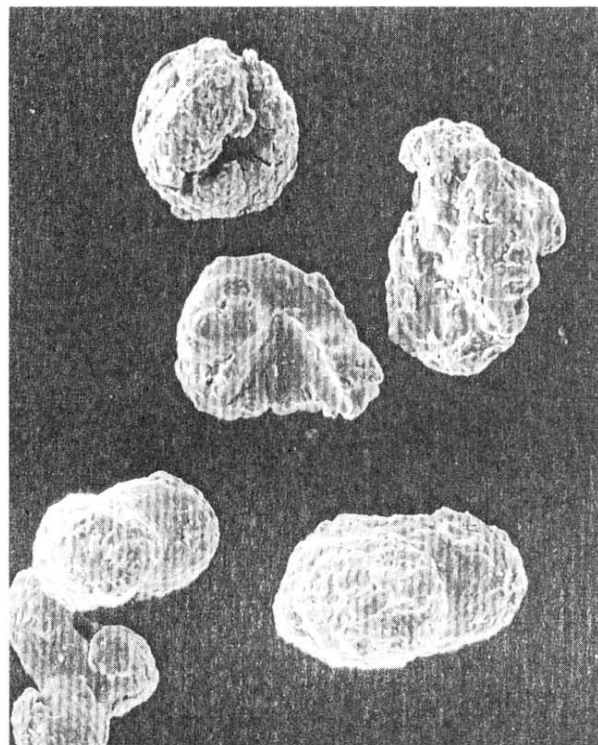
(d) $t=1,800$ s

50 μm

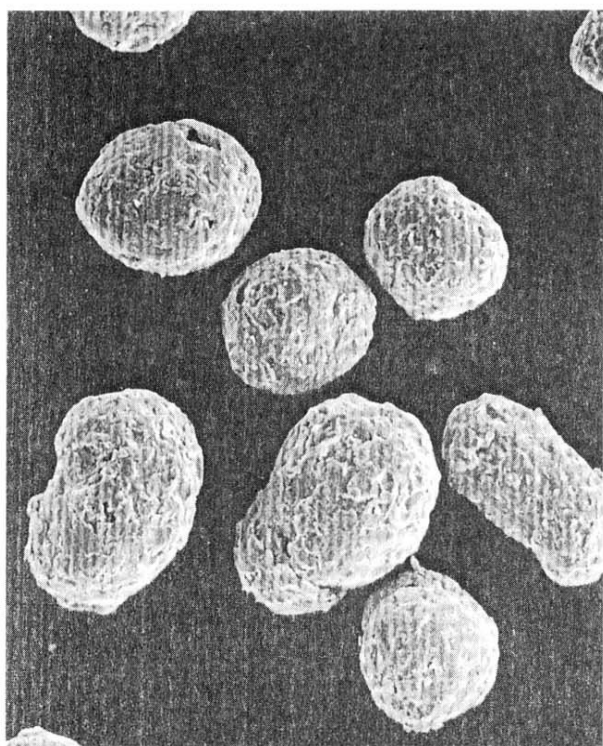
図3 銅粒子の処理時間による変化



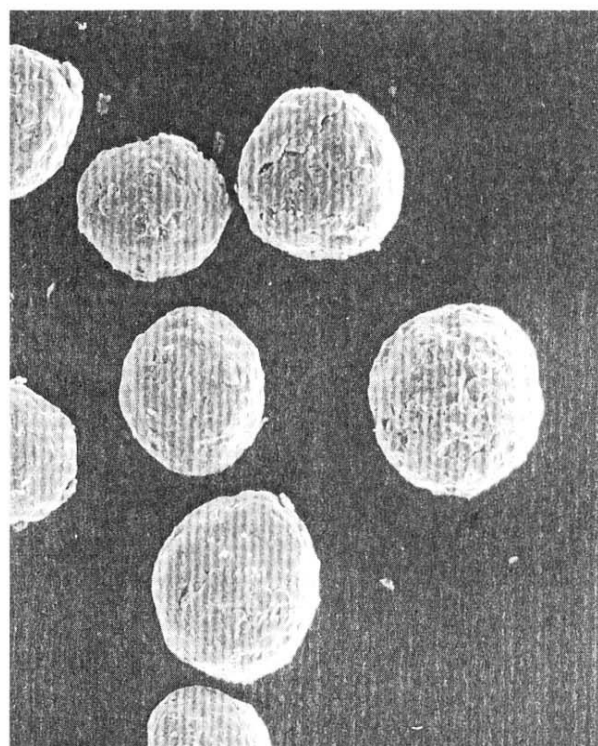
(a) $t=0$ (原料)



(b) $t=30$ s



(c) $t=180$ s



(d) $t=1,200$ s

50 μm

図5 ステンレス粒子の処理時間による変化

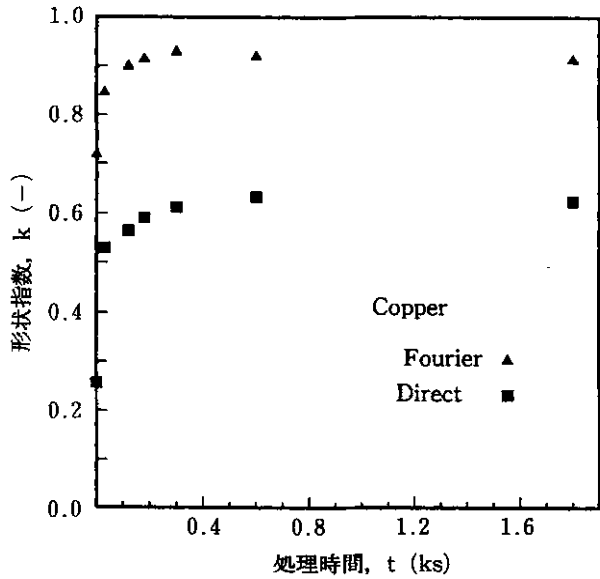


図4 直接法とフーリエ法の比較

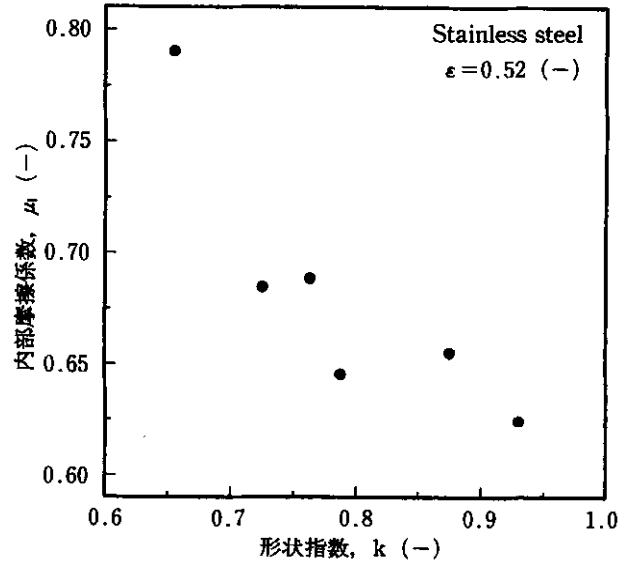


図7 球形化に伴う内部摩擦係数の変化

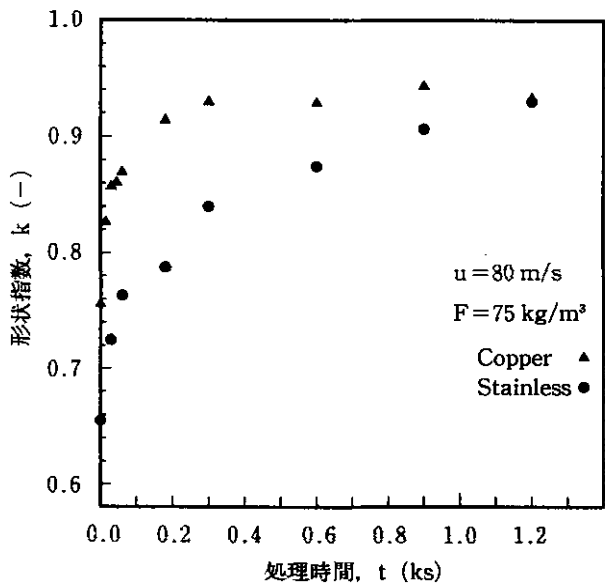


図6 処理時間による形状指数の変化

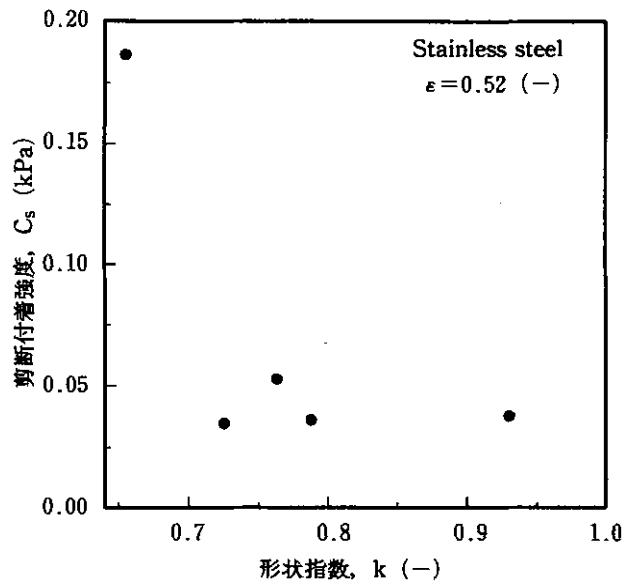


図8 球形化に伴う剪断付着強度の変化

(2) 圧縮度および安息角

準動的な特性としてタッピング試験を行った。

得られた、形状指数による密充填密度の変化を図9に示した。

図9より、球形化の進行に伴い密充填密度が増大し充填性の向上が認められた。また、タッピング試験結果を川北の式¹²⁾で整理し、その傾きから得られる圧縮度 a_r

$$a_r = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} \dots\dots\dots(24)$$

を形状指数との関係として図10に示した。

圧縮度は(24)式より、タッピングによる粉体体積の変化の程度を表しており、この値が小さいほど流動性に富んでいることを示す。従って、図10より球形化に伴い圧縮度が低下し流動性が向上していることがわかる。

さらに、より動的な粉体物性として注入法による安息角 θ の測定結果を図11に示した。図11より、球形化に伴い安息角も低下し、流動性の向上が認められた。

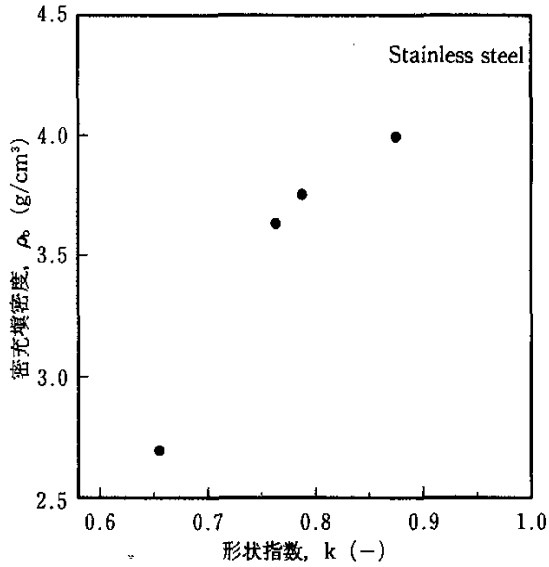


図9 球形化による密充填密度の変化

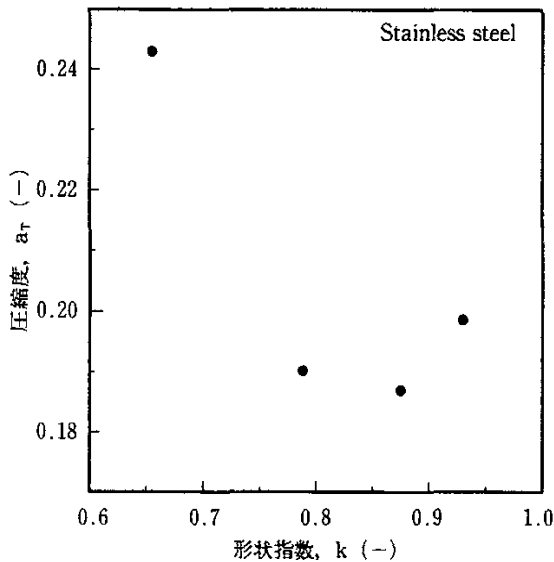


図10 球形化に伴う圧縮度の変化

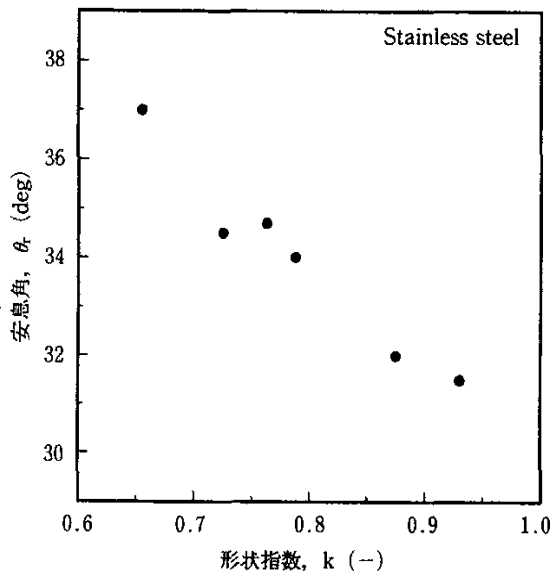


図11 球形化に伴う安息角の変化

3.4 粒子形状の各種粉体物性に及ぼす効果

以上の様に測定された各種粉体物性と粒子形状との関係を原料粉体 ($k = 0.65$) で正規化し図12に示した。

図12より、定性的ではあるが準動的、動的特性である圧縮度および安息角は静的な特性である内部摩擦係数に比較し、粒子形状の効果が小さいことが認められた。この様に、動的特性または高次特性になるほど粒子形状の効果は小さくなる傾向が認められた。

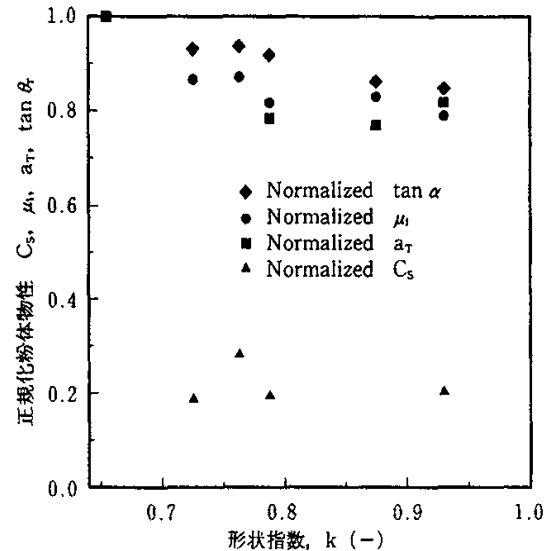


図12 球形化による各種正規化粉体物性の変化

4. 結言

ハイブリダイザーにより段階的に粒子形状が調整されたステンレス粉体の調製を試みた。さらに、得られた各種形状を有する粉体の力学的特性を測定し、粒子形状が粉体特性に与える効果を検討し、以下の結論を得た。

- (1) 粒子輪郭像の周長に沿った分割による x, y 座標の周長相当角についてのフーリエ級数展開により、第一項目で近似した楕円の短長軸比が形状指数として優れている。
- (2) ハイブリダイザーにより、段階的に粒子形状を調整するには、銅粉体より展延性の小さなステンレス粉体が良い。
- (3) 球形化に伴う粒子間の咬み合い効果の減少は、内部摩擦係数を低下させ、剪断付着強度の減少も推察された。
- (4) 球形化に伴い圧縮度および安息角は減少し、流動性の向上が認められた。
- (5) 粒子形状の粉体物性への効果は、準一次物性、二次物性と高次になるに従い、小さくなることが推察された。

記号

| | |
|---------------------------------------|--------------------|
| A : (12)式で定義される係数 | (m) |
| a_e : 楕円の長軸半径 | (m) |
| a_T : (24)式で定義される圧縮度 | (-) |
| a_x : (5)式によるフーリエ cos 係数 | (m) |
| a_y : (7)式によるフーリエ cos 係数 | (m) |
| B : (13)式で定義される係数 | (m) |
| b_e : 楕円の短軸半径 | (m) |
| b_x : (6)式によるフーリエ sin 係数 | (m) |
| b_y : (8)式によるフーリエ sin 係数 | (m) |
| C : (14)式で定義される係数 | (m) |
| C_s : 剪断付着強度 | (kPa) |
| C_v : 粒子輪郭の中心からの距離の変動係数 | (-) |
| D : (15)式で定義される係数 | (m) |
| k : 形状指数 | (-) |
| L : 粒子輪郭像の周長 | (m) |
| L_d : 粒子輪郭像の周長に沿った初期点からの距離 | (m) |
| l_e : 楕円の周長 | (m) |
| N : 粒子輪郭像の周長の分割数 | (-) |
| P_{dx}, P_{dy} : 粒子輪郭像の点の座標 | (m) |
| $P_{dx}(0), P_{dy}(0)$: 粒子輪郭像の初期点の座標 | (m) |
| γ_c : 近似楕円と等周長円の半径 | (m) |
| γ_d : 粒子輪郭点までの半径 | (m) |
| γ_e : 近似楕円の半径 | (m) |
| T : タッピング回数 | (-) |
| V_o : 粉体層の初期体積 | (cm ³) |
| V_∞ : 粉体層の密充填時の体積 | (cm ³) |
| X, Y, x, y : 粒子輪郭像の点の座標 | (m) |
| β : 軸の回転角 | (rad) |
| ϵ : 空隙率 | (-) |
| θ_d : 周長から変換した輪郭点の角度 | (rad) |
| θ_e : 楕円の半径の X 軸から角度 | (rad) |
| θ : 安息角 | (deg) |
| μ_i : 内部摩擦係数 | (KPa) |
| τ : 剪断応力 | (KPa) |

TICLE TECHNOLOGY, p.124, Sep.,(1990)

- 5) Tanaka, T., Y.Takayama, K.Ono:*ZAIRYOU GI-JUTU*, **6**,260(1988)
- 6) Oshima, T.,Y.I.Zhang,M.Suzuki,T.Nakagawa,,:*J. Soc.Powder Technol.Japan*, **30**,496(1993)
- 7) Otani M.,T.Uchiyama,H.Minoshima,K.Shinohara, K.Takayashiki,N.Nakao:*J.of the Soc.of Mat.Eng. for Resource of Japan*, **7**,35(1994)
- 8) Uchiyama,T.,M.Otani,H.Minoshima,S.Kamota,Y. Miyakoshi,M. Sakai,Y.Abe,H.Aiyama,I.Makino:*Reports of the Hokkaido Industrial Research Institute*, **292**,83 (1993)
- 9) Uchiyama,T.,Y.Miyakoshi,M.Otani,H.Minoshima, M.Akanuma,H.Takahashi,S.Kamota,M.Sakai:*Reports of the Hokkaido Industrial Research institute*, **293**,107 (1994)
- 10) Shibata,T and K.Yamaguchi:*Circ.Soc.Sci.Form, Japan*, **5**,3(1990)
- 11) Shinohara,k.and T.Tanaka:*Kagaku Kogaku*, **32**,88 (1968)
- 12) Kawakita,K:*J.Soc.Materials Sci.,Japan*, **19**,579 (1970)

参考文献

- 1) Arakawa, M., T. Okuda, E. Suito:*J. Soc. Materials Sci., Japan*, **15**, 33(1965)
- 2) Shinohara, K. and T. Tanaka:*J. Chem. Eng. Japan*, **8**, 50(1975)
- 3) Terashita, K., K. Furuhashi, T. Konishi and K. Miyanami:*J. Soc. Materials Sci., Japan*, **34**, 11(1985)
- 4) Rajendran, P.B., Nair, T. K. Ramanujam and M. Ramanujam:2nd. World Congress Japan, Part1 PAR-