

# 真空下粒子群の安息角

田谷 嘉浩, 加賀 壽

## Angle of repose on particles under high vacuum

Yoshihiro Taya and Hisashi Kaga

### 要 旨

高真空雰囲気下で安息角が測定できる装置を作製し、平均粒径 $450\mu\text{m}$ から $40\mu\text{m}$ のガラス、銅、アルミナ球形粒子について、大気圧から $1\times 10^{-3}\text{Pa}$ の圧力下で測定した。その結果、真空下では大気圧下に比べ安息角は小さくることがわかった。またその要因について、四重極型質量分析計により残留ガスの分圧を測定し検討した結果、粒子に吸着している $\text{H}_2\text{O}$ の脱離が影響していることがわかった。

### 1. 緒 言

真空は、粉体の乾燥や保存の手法として、従来より一般的に利用されている。近年では、バルク材を対象としていたCVDやスパッタ等による薄膜形成など、高真空を利用した加工法を粉体に用いるようになってきた。粉体にこれらの加工を行う場合、粉体を攪拌などにより流動させる事が不可欠である。

加賀ら<sup>1), 2)</sup>は、粉体の機械的複合化の一手法であるメカノフュージョンを、 $10^{-2}\text{Pa}$ オーダーの高真空下で行える装置を開発し、複合化に真空が有効であると報告している。その中で、真空が複合化に有効な理由の一つとして、高真空下のメカノフュージョン処理では粉体表面から $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{H}_2$ などのガスが発生し、それによる粒子表面の清浄化をあげている。また吉野ら<sup>3)</sup>は、真空下のメカノフュージョンにおいて、粒子の乾燥による流動性向上を示唆しているが、明らかにされていない。この様に、真空中では材料表面から吸着ガスの脱離や摩擦係数が増大する<sup>4)</sup>ことが知られており、これらの現象は粉体の流動性に大きな影響を与えると思われる。しかしながら、真空中の粉体の流動性に関する報告はほとんどないのが現状である。

流動性の指標として、安息角が手軽な方法として用いられる。そこで本研究では、大気圧から $1\times 10^{-4}\text{Pa}$ の真空雰囲気下で安息角が測定できる装置を作製し測定した。また、四重極型質量分析計を用いた残留ガス分圧測定により、雰囲気圧力が安息角に及ぼす影響を検討したので報告する。

### 2. 実験方法

#### 2.1 試料

実験に用いた試料粉体の平均粒子径と真密度を表1に、粒度分布及びSEM写真を図1及び図2示す。試料は加熱等の乾燥は行わず、室温常圧で保存した物をそのまま実験に用いた。

表1 試料粉体の平均粒子径と真密度

試料粉体	ガラスビーズ A	ガラスビーズ B	ガラスビーズ C	アルミナ	銅
平均粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	457	117	63	47	41
真密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	2.49	2.49	2.47	3.77	8.93

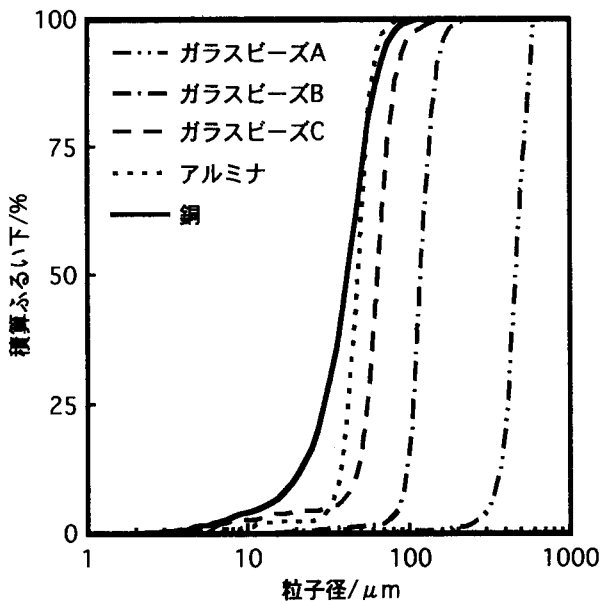


図1 試料粉体の粒度分布

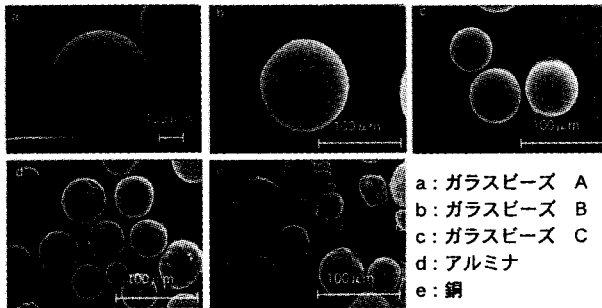


図2 試料粉体のSEM写真

2.2 実験装置

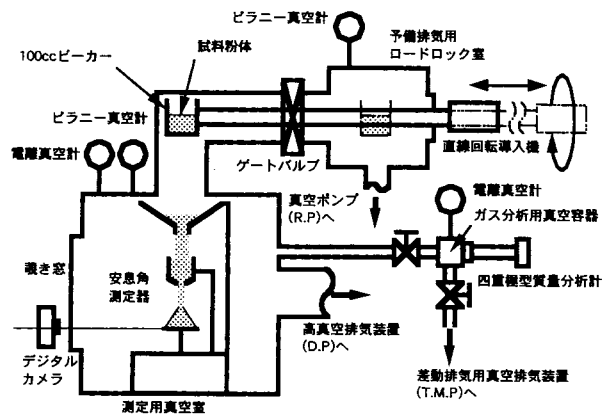


図3 実験装置の概略図

図3に実験装置の概略を示す。測定用真空室と予備排気用ロードロック室は、それぞれ鍛造アルミニウム及びステンレスで製作した。測定用真空室の到達真空は $1 \times 10^{-4}$  Paで、大気圧から $1 \times 10^{-4}$  Paの圧力下で実験が可能である。また、測

定用真空室には差動排気を用いた四重極型質量分析計を付属し、分圧の測定が行えるようにした。

2.3 実験方法

試料は、ガラスビーズとアルミナが150 g、銅については300 gを100ccビーカーに自然落下にて充填し、振動を与えないように表面を軽く均してロードロック室に挿入した。その後、測定圧力が $1 \times 10^0$  Pa以上の時はロードロック室で測定圧力まで排気し、測定圧力が $1 \times 10^{-1}$  Pa以下では $5 \times 10^{-1}$  Paまで予備排気をした。次に、予め測定圧力になっている測定用真空室上部まで搬入し、再度測定用真空室を測定圧力に調整した後ビーカーを回転させて試料を落下させ、安息角を測定した。安息角の傾斜角度は、測定用真空室外部からデジタルカメラで撮影したデジタル画像を、CADにより計測した。図4に安息角測定中の一例を示す。安息角の測定は、再現性のある物は3回それ以外は6回行い平均をそれぞれの値とした。また、四重極型質量分析計による測定用真空室の残留ガス分圧測定は、試料落下直前に行った。

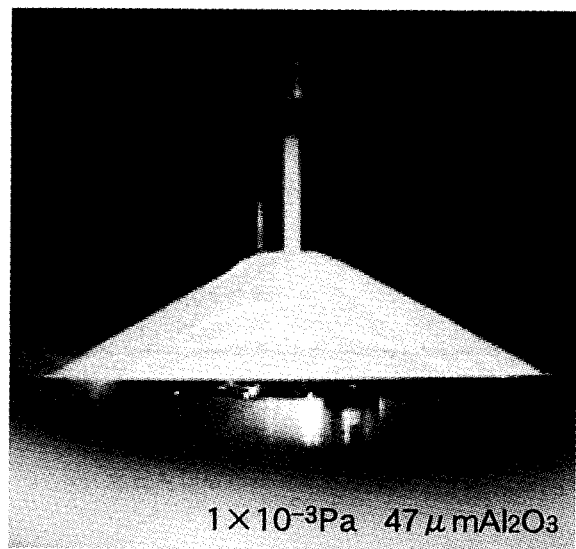


図4 安息角測定の一例

3. 実験結果及び考察

安息角と測定雰囲気圧力の関係を図5に示す。

真空下の安息角は、全試料において大気圧に比べ小さくなった。銅を除くすべての粒子で低真空の $1 \times 10^4$  Paで急激に小さくなり、中真空では圧力の低下とともに徐々に小さくなる。更に、高真空である $1 \times 10^{-3}$  Paで再び急激に小さくなる。

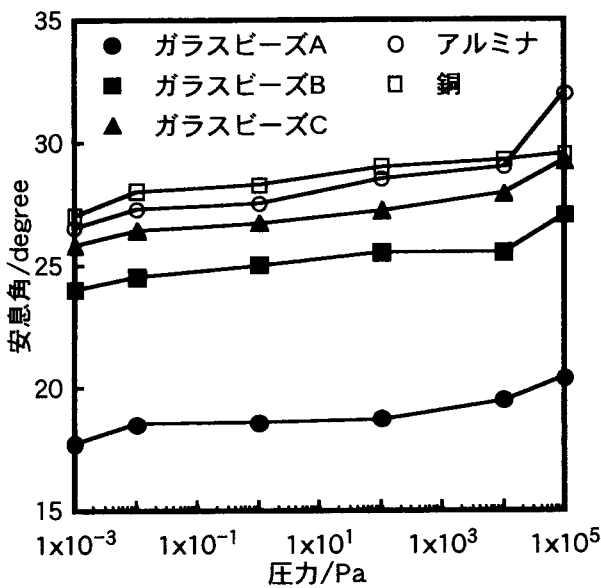


図5 安息角と測定雰囲気気圧の関係

昇は、ない場合に比べ顕著である。これらの  $H_2O$  分圧上昇は、 $H_2O$  の室温での蒸気圧が  $1 \times 10^3 Pa$  近傍にある<sup>5)</sup> こととよく一致する。

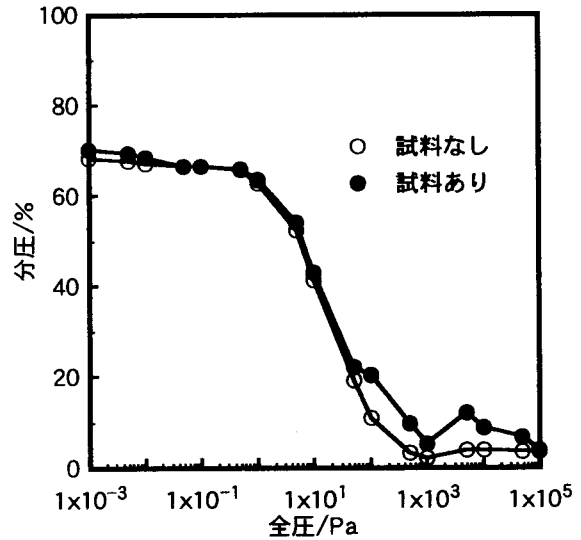


図7 測定用真空室の  $H_2O$  分圧の比較

図7に、 $H_2O$  分圧と、測定用真空室にアルミナ試料を入れた時の  $H_2O$  分圧を比較した結果を示す。試料が入っている測定用真空室内の  $H_2O$  分圧は、 $1 \times 10^2 Pa$  までの低真空で数%程度多く、試料から  $H_2O$  の脱離が起きていることが分かる。 $1 \times 10^1 Pa$  から  $1 \times 10^{-1} Pa$  までの中真空では、両者にあまり差はなく、 $1 \times 10^{-2} Pa$  以下の高真空で再び試料の入った測定用真空室内の  $H_2O$  分圧が大きくなる。

以上のことから下記のことが考えられる。

安息角の  $1 \times 10^4 Pa$  での変化は、粒子表面の蒸気圧で蒸発する付着水やエネルギーが弱い吸着水が急激に脱離して、それに伴い粒子間の付着力が大きく減少した結果と思われる。これに反し、銅に変化がみられなかったのは、吸着エネルギーが弱い付着水が微少であったためと考えられる。中真空中で変化が少ない理由として、低真空で脱離した吸着水に比べ吸着エネルギーの強い吸着水が、圧力に伴い徐々に脱離していった結果と思われる。また、 $1 \times 10^{-3} Pa$  で安息角が大きく変化するの、低真空で徐々に脱離した吸着水が、この圧力で脱離しやすくなった結果と思われる。海保ら<sup>6)</sup> は、安息角が付着水の2分子層吸着膜を形成する水分まで一定でそれを越えると急激に上昇すると報告している。このことから、上記の圧力変化に伴う安息角の変化は、2分子層吸着膜より上部の

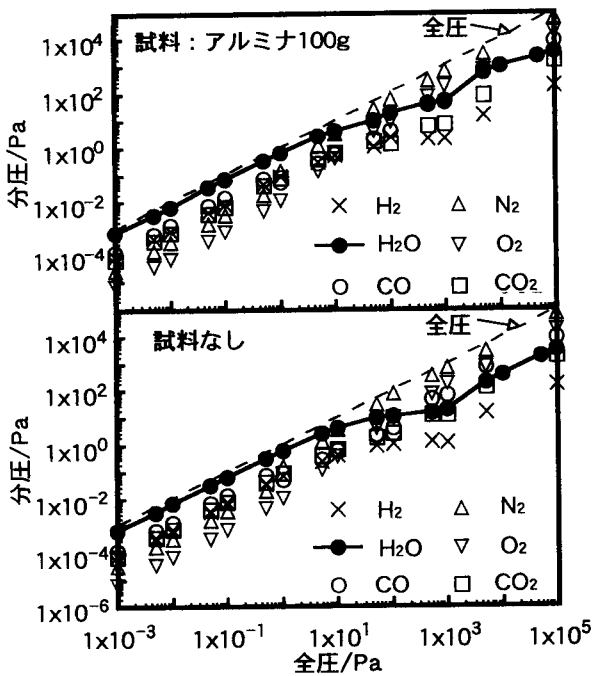


図6 測定用真空室の残留ガス分圧

図6に、四重極型質量分析計で測定した、試料が無い測定用真空室と、粉体落下直前のアルミナ試料が有る測定用真空室の残留ガス分圧を示す。尚、分圧の値は測定値が差動排気により変換された値であるため、測定用真空室圧力を全圧とした値に換算した数値を使用した。全圧  $5 \times 10^3 Pa$  まで、各ガスは圧力につれ大気圧の分圧バランスのまま低下する。全圧  $1 \times 10^3 Pa$  近傍で  $H_2O$  分圧が上昇し、 $1 \times 10^1 Pa$  からは  $H_2O$  が支配的になる。特にアルミナ試料が有る方の  $H_2O$  分圧上

吸着水の脱離で起きたものと思われる。

今回の実験では、真空下粒子群の吸着水に着目して検討を行った。しかし、本実験でも明らかなように、真空下は乾燥雰囲気であるため、粒子群の帯電も起きやすいと考えられる。今後、真空下粒子群の帯電との相関についても検討が必要とされる。

#### 4. 結 言

本実験により以下のことがわかった。  
真空下では圧力の低下に従って、安息角は小さくなる。その変化は、(1)大気から $1 \times 10^3$ Pa程度の低真空、(2) $1 \times 10^3$ Paから $1 \times 10^{-2}$ Pa程度の中真空、(3) $1 \times 10^{-2}$ Pa以下の高真空の各圧力範囲により異なり、(1)(3)で大きく(2)で微少となる。これらの結果は、粒子表面吸着水の脱離が関与している。

#### 参 考 文 献

- 1) 加賀 寿, 田谷嘉浩, 片山 博, 濱口由和 : 粉体及び粉末冶, 39 (1992), P553.
- 2) 加賀 寿, 田谷嘉浩, 片山 博, 濱口由和 : 粉体及び粉末冶, 39 (1992), P1124.
- 3) 吉野博之, 田谷嘉浩, 加賀 寿, 向井田健一 : 粉体工学会誌, 32, 12 (1995), P866~873.
- 4) 真空ハンドブック 改訂3版, アルバック・コーポレートセンター編, P57.
- 5) 真空ハンドブック 改訂3版, アルバック・コーポレートセンター編, P160~161.
- 6) 海保 守, 栗原現司, 近沢正敏, 金沢孝文 : 粉体工学研究会誌, 12, (1975) P324.