

규칙입자의 충전
-치밀질 탄화규소 소결체의 제조(제 1 보)-

문병훈 · 남건태 · 최상욱
인하대학교 무기재료공학과
(1994년 6월 30일 접수)

A Study on Packing of Regular Particles
-Preparation of Dense Sintered Silicon Carbide (1)-

Byung-Hoon Moon, Gun-Tae Nam and Sang-Wook Choi
Dept. of Ceramic Eng., Inha Univ.
(Received June 30, 1994)

요 약

구형, 원주형 및 육각주형 등의 단일 크기 입자들의 입자충전 실험을 행한 결과, 입자크기/용기크기의 비가 1/10 이하로 낮아질수록 벽효과(wall effect)가 차츰 감소하였다. 구형입자의 충전은 주로 육방형 배열로서 충전밀도가 59.5%이었으나, 모양계수가 1.0인 원주형과 육각주형 입자는 각각 이보다 큰 63.5%와 63.0%를 나타내었는데, 모양계수가 증가함에 따라 충전밀도는 감소하였다. 2종 크기입자의 배합에서는 단일 입자의 충전에서 보다 약 15% 더 큰 충전밀도를 보였고, 3종 크기입자 배열에서는 최대 충전밀도가 86%로서 단일 입자의 충전 때보다 약 24%, 2종 크기입자의 충전 때보다 약 9% 더 치밀하였다. 최밀 충전밀도를 나타내는 2종 크기입자의 크기 비와 혼합비는 1 : 1/10과 60 : 40%이었고, 3종 크기입자의 크기 비와 혼합비는 1 : 1/10 : 1/400과 60 : 20 : 20%이었다.

ABSTRACT

This study aims at finding the closest packings of regular shape particles such as sphere, circle rod and hexagonal rod type. As the ratio of particle size to container lowered to less than 1/10, the wall effect decreased gradually. The tap density of spherical particles with almost orthorhombic arrangement was 59.5%, while those of circle rod and hexagonal rod type particles were 63.5% and 63.0% respectively. And it was decreased with increasing the aspect ratio of regular particles. The tap density of binary mixtures was larger than that corresponding to the monosized particles packing by about 15%. The tap density of ternary mixtures was larger than that of corresponding to the packing of binary mixtures by about 9%. This work employed the binary mixture of 60% coarse particles and 40% fine particles with size ratio of 1.0 to 1/10 and the ternary mixture of 60% coarse particles, 20% medium and 20% fine particles with size ratio of 1 : 1/10 : 1/400 respectively.

1. 서 론

요업체의 치밀화는 기계적 특성이나 열적 특성 등에 큰 영향을 미치게 된다¹⁻⁴. 이러한 치밀화는 소결 조건도 중요하지만 이에 못지 않게 입자의 충전성도 중요하다.

입자의 충전성(充填性)에 영향을 주는 요인으로는 입자의 크기와 혼합비율 이외에도 입자의 모양이라 할 수 있다⁵⁻⁷. 따라서 입자의 크기, 모양, 부피 및 길림이가 일정한 규칙입자의 충전성은 이들 특성치가 일정하지 않은 불규칙 입자, 즉 분쇄물 충전성의 경향을 파악하

는데 중요하다⁸⁻¹⁰. 규칙입자중에 가장 간단한 모양인 구형에 대하여는 이론적으로나 실험적으로 보고¹¹된 바 있으나, 구형입자 이외의 다른 규칙입자에 대한 충전율은 보고된 바가 없다.

따라서 본 연구에서는 3종의 규칙입자인 구형(球形), 원주형(圓柱形) 및 육각주형(六角柱形)의 조립자(粗粒子)와 구형의 중간립자(中間粒子)와 미립자(微粒子)를 사용하여 일차적으로 그 충전성을 조사하고자 하였으며, 나아가 요업 분쇄물(예 : SiC 입자)과 같은 불규칙 입자충전(粒子充填)(제 2보)의 model로 응용하고자 하였다.

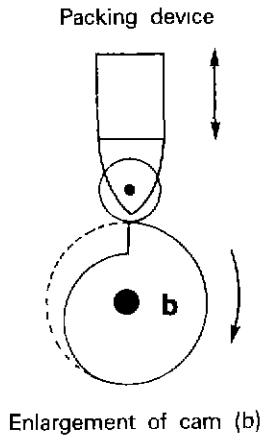
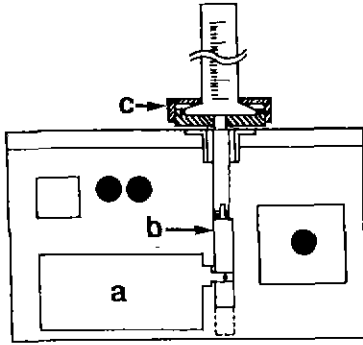


Fig. 1. Schematic diagrams of packing device.
(a) Moter (b) Cam (c) Container holder

2. 실험방법

2.1. 충전 실험장치

입자충전에는 Fig.1과 같이 packing device를 만들어 사용하였다. 이것은 자유낙하에 의한 상하운동으로 충격을 줄 수 있는 것으로서 낙하거리 2 cm, 회전수가 60

rpm이며, 1회전에 1충격이 되게 하였다. 그리고 이 기구의 상단에는 눈금 실린더를 놓고 holder로 이것을 고정시킬 수 있게 하였다.

2.2. 입자의 특성

조립의 규칙입자로는 Table 1과 같은 특성을 갖는 청동제의 구형, 원주형 및 육각주형을 사용하였고, 중립자(S1)는 평균입자지름 403.6 μm, 미립자(S2)는 평균입자지름 9.7 μm인 구형의 청동 분말을 사용하였다.

2.3. 입자의 충전

입자의 충전은 일정량의 조립자, 중립자 및 미립자를 차례대로 눈금 실린더(500 ml)에 넣고 packing device에서 충격회수를 변화시키면서 부피가 일정하게 될 때까지 충전을 행한 후 눈금을 읽어서 충전밀도(입자만의 부피×100/용기의 부피, %)를 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 단일 입자의 충전

입자의 크기와 용기크기에 따른 충전밀도의 영향을 알아보기 위하여 모양계수가 1.0인 구형(S), 원주형(C₁₀) 및 육각주형(H₁₀)의 규칙입자를 충전한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 용기/입자의 크기비가 10 이상이 될 때 충전밀도의 변화는 아주 적었는데 이러한 wall effect에 대한 결과는 McGeary의 보고¹³⁾와 비슷하였다. 그리고 모양계수가 1.0인 3종의 규칙입자를 wall effect가 비교적 적도록 하기 위하여 용기의 지름/입자의 지름비가 약 10이 되는 500 ml 눈금 실린더를 사용하여 충격회수를 달리하여 충전한 결과를 Fig. 3에 나타내었다.

충전밀도의 변화는 구형의 경우, 초기에 충전이 완료되었으나, 원주형이나 육각주형의 경우는 충격회수가

Table 1. Characteristics of Coarse Regular Particles

	Symbol	Size (mm)	Equivalent diameter (mm)		Surface area (mm ²)	Volume (mm ³)	Sphericity (Ψ _s)	
			Dv	Ds				
Particle shape	Sphere	S	4.50	4.50	63.6	47.7	1	
	Circle rod type	C10	4.50	5.15	5.51	95.4	71.6	0.873
		C15	6.75	5.90	6.36	127.2	107.4	0.859
		C20	9.00	6.49	7.11	159.0	143.1	0.832
	Hexagonal rod type	H10	5.00	5.91	6.43	129.9	108.3	0.846
		H15	7.50	6.77	7.43	173.2	162.4	0.831
H20		10.00	7.45	8.30	216.5	216.5	0.806	

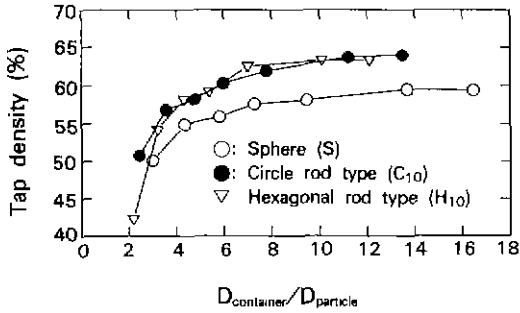


Fig. 2. Dependence of tap density of monosized regular particle on the ratio of particle size/container size.

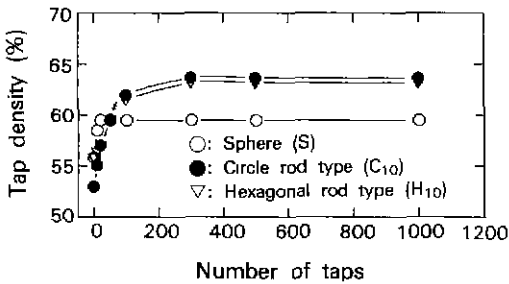


Fig. 3. Variation in tap density of monosized regular particles with increasing the number of taps.

300회 이상에서 거의 일정한 값을 보였다. 모양계수가 1.0 이상 되는 원주형과 육각주형 및 구형에 대하여 위와 같은 실린더를 사용하여 충전실험을 행하여 Table 2를 얻었다. 구형입자의 배열은 orthorhombic(충전밀도 60.5%)으로 McGeary의 보고¹¹⁾와 거의 같은 충전성이지만 모양계수가 1.0인 원주형 입자나 육각주형 입자는 충전성이 구형보다 약 3.5% 더 큰 값을 보이고, 모양계수가 클수록(2.0), 구형입자보다 더 낮은 값을 보였다. 이것은 Van Vlack의 충전이론에서 모양계수가 1.0인 원주형과 육각주형이 구형보다 edge effect와 wall effect가 더 커서 일부는 무질서한 배열이 생기겠으나 일부는 진동 등에 의한 자연스런 배열인 orthorhombic(충전밀도 90.7%)과 면(面)대 면(面) 배열(충전밀도 100%) 등이 생겨서 오히려 구형인 경우보다 약간 큰 값을 나타낼 수 있었으며,

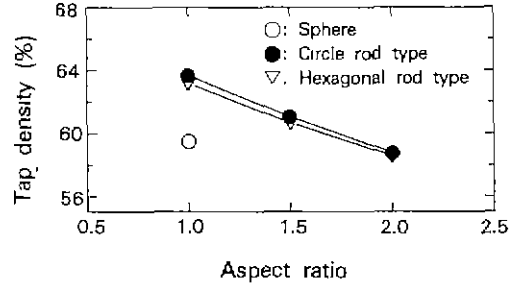


Fig. 4. Dependence of tap density of monosized particles on aspect ratio.

모양계수가 1.5와 2.0으로 커짐에 따라 edge effect와 wall effect가 더 큰 영향을 미치게 되므로 자연스런 규칙적 배열은 흐트러져 무질서한 배열로 바뀌는 경향이 있기 때문으로 생각된다.

규칙입자의 모양계수의 변화에 따른 충전밀도의 변화를 나타낸 Fig. 4를 보면 모양계수가 증가함에 따라 충전밀도는 감소(약 4.6~4.9%)하고 있는데, 이로써 모양계수의 증가는 이들 입자들의 규칙적인 배열을 무질서 배열로 만들어 충전성을 낮추어 주고 있음을 의미한다. 구형의 충전밀도인 59.5%에 해당되는 원주형과 육각주형 입자의 모양계수는 각각 1.83과 1.79로 계산되었다. 그리고 Table 2에서 규칙입자의 모양계수와 충전밀도의 관계를 다음 식으로 나타낼 수 있었다.

$$\text{원주형의 경우} : y = 63.6 - 4.8(x - 1.0) = 68.4 - 4.8x$$

$$\text{육각주형의 경우} : y = 63.1 - 4.5(x - 1.0) = 67.6 - 4.5x$$

여기서 y : 충전밀도(%)

x : 모양계수

3.2. 2종 크기입자의 충전

규칙입자의 조립인 구형, 원주형 및 육각주형에 대하여 크기비가 1/10 정도로 작은 구형의 청동분말(S1)을 여러 비율로 첨가함에 따른 충전밀도의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. 이때 최대 충전밀도를 나타내는 혼합비와 최대 충전밀도를 Table 3에 나타내었다. 구형은 조립 : 미립의 혼합비가 60 : 40일 때 최대 충전밀도인 75.8%를 보였는데 이 값은 단일 구형입자인 경우보다 약 16.3% 더 큰 값이다. 원주형 입자와 육각주형 입자에서도 모양계

Table 2. Tap Density of Monosized Regular Particles

Particle	Sphere	Circle rod type			Hexagonal rod type		
	S	C10	C15	C20	H10	H15	H20
Tap density (%)	59.5	63.7	61.1	58.8	63.2	60.7	58.6

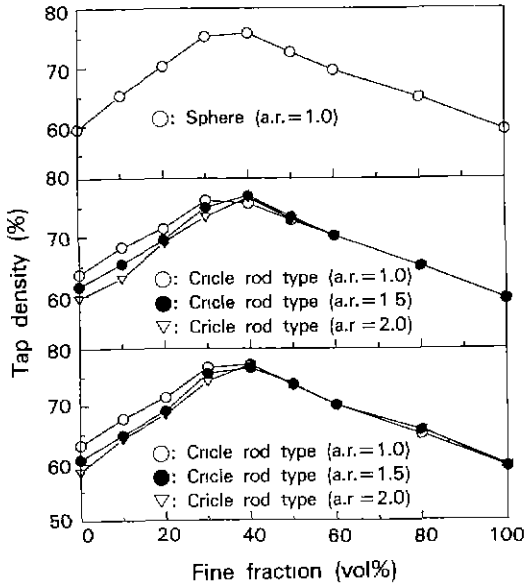


Fig. 5. Changes in Tap density of binary mixture with the addition of finer spherical particle (0.4 mm dia.) to coarse particle in packing device (size ratio; 1 : 10).

수가 1.0인 경우 이들의 단일 입자에서 보다 각각 약 12.5%와 14.0%씩 증가 되었음을 보여 주었다. 원주형과 육각주형은 모양계수가 1.0~2.0으로 증가함에 따라 단일

입자에서 볼 수 있었던 것과 같은 충전밀도의 큰 감소는 없이 일정하였으며, 둘 모두 구형입자보다 높은 값을 나타내었다. 이것은 기본 골격인 단일입자의 충전에서 나타난 edge effect와 wall effect 등으로 인한 큰 공극이 작은 입자가 충전되어 완화되었기 때문이라 생각된다.

3.3. 3종 크기입자의 충전

규칙입자의 크기비가 약 1 : 1/10 : 1/400인 조립, 중립 (S₁), 미립(S₂)을 일정비율로 혼합하여 충격으로 충전을 한 결과를 Fig. 6에 나타내었는데, 최밀 충전밀도는 구형 (S)이 86%이었고, 원주형(C₁₀, C₁₅, C₂₀)은 모양계수에 관계없이 모두 86%이었고, 육각주형의 경우 모양계수가 1.0(H₁₀)과 1.5(H₁₅)일 때 모두 85%를, 2.0(H₂₀)일 때 86%로서 이들 값을 단일입자보다 구형은 약 26.5%, 원주형은 평균 24.7% 그리고 육각주형 입자는 평균 24.1%씩 더 높았다.

위에서 얻은 결과를 이용하여 Van Vlack¹²⁾이 제안한 다음 식에 따라 edge correction과 correction factor를 계산한 결과를 Table 4에 나타내었다.

$$P_{max2} = p_c + p_m(1 - p_c) - \Delta p \tag{1}$$

$$P_{max3} = p_{max2} + p_l(1 - p_{max2}) - \Delta p' \tag{2}$$

여기서

P_{max2} : 2종 입자의 최밀 충전밀도(%)

Table 3. Max. Tap Density of Binary Mixtures ($D_f/D_c \approx 1/10$)

Particle	Sphere	Circle rod type			Hexagonal rod type		
		Aspect ratio	1.00	1.50	2.00	1.00	1.50
Composition C : F	60 : 40	70 : 30	60 : 40	60 : 40	60 : 40	60 : 40	60 : 40
Tap Density (P_{max2})	75.8	76.2	77.0	76.7	77.2	76.6	77.2

C: coarse particle

F: finer particle (metal spherical particles)

D_f/D_c : size ratio of finer particle to coarse particle

Table 4. Edge Correction (ΔP and $\Delta P'$) and Correction Factors (k and k') Calculated from Van Vlack's Equation¹²⁾

Binary mixture	Particle	S	C10	C15	C20	H10	H15	H20	
									ΔP
k	kv	0.865	1.1561	1.0832	1.1100	1.1510	1.2480	1.1060	
	ks	0.865	1.2369	1.1677	1.2155	1.2522	1.3697	1.2318	
Ternary mixture	$\Delta P'$	0.0085	0.0162	0.0029	0.0075	0.0114	0.0019	0.0241	
		k'	kv'	3.2256	7.0161	1.4354	4.0771	6.2876	1.0764
		ks'	3.2256	7.4971	1.5454	4.4606	6.8483	1.1802	16.6961

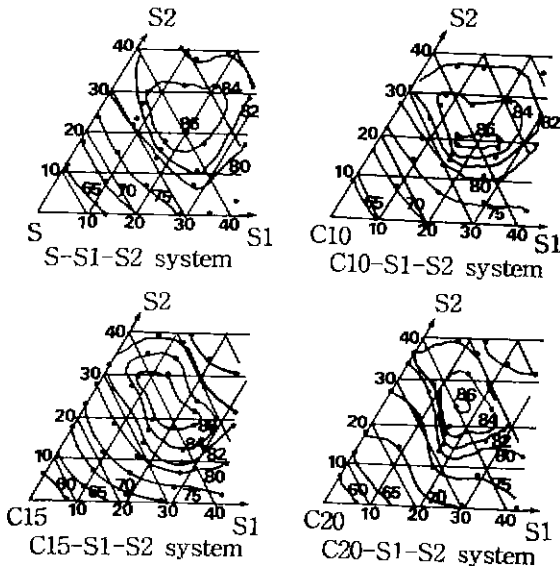


Fig. 6-1. Tap density contour of ternary system (sphere and circle rod).

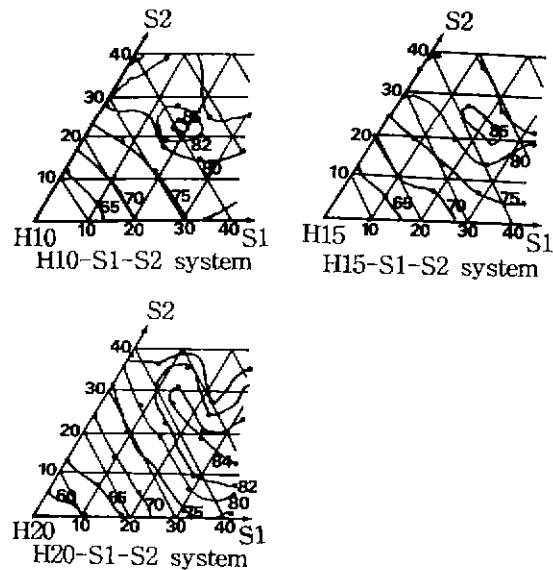


Fig. 6-2. Tap density contour of ternary system (hexagonal rod).

- P_{max3} : 3종 입자의 최밀 충전밀도(%)
- P_c : 조립의 충전밀도
- P_m : 중립의 충전밀도
- P_r : 미립의 충전밀도(3종 크기의 경우)

- $\Delta p = (d/D)k$: edge correction(2종 입자의 충전)
- $\Delta p' = (d'/D)k'$: edge correction(3종 입자의 충전)
- d : 중립의 평균지름
- d' : 미립의 평균지름
- D : 조립의 평균지름
- k : correction factor(2종 입자의 충전)
- k' : correction factor(3종 입자의 충전)

2종 크기입자의 충전에서는 모양계수가 증가함에 따라 edge correction factor 값이 증가하는 것을 알 수 있으나, 3종 크기입자의 충전에서는 뚜렷한 경향성을 나타내지 않았다.

4. 결 론

본 실험에서는 입자의 모양이 충전에 미치는 영향을 알아보기 위하여 규칙입자로서 구형(모양계수=1), 원주형(모양계수=1~2), 육각주형(모양계수=1~2)인 것을 사용하여 입자 충전에 대한 규칙성을 조사하여 이 자료를 model로 하여 불규칙입자인 SiC(모양계수=1.52)의 충전실험(제 2보)에 적용하고자 하였다.

이 실험에서 얻은 결론은 다음과 같다.

1) 용기크기/입자크기의 비에 따라 입자를 충전할 때 충전에 방해를 주는 한계는 10 이하일 때 큰 영향을 미친다.

2) 단일입자의 충전에서 구형입자의 충전밀도는 59.5%로서 대부분(약 88%)의 육방형 배열이었으나 약 12%의 입방형 배열이 포함되었다. 이것은 모양계수가 1.83인 원주형과 1.79인 육각주형에 해당하는 값이었다. 그리고 원주형과 육각주형인 경우 모양계수가 1.0일 때는 충전 밀도가 구형입자보다 약 3.5% 더 컸으나 두 입자의 모양계수가 2.0일 때는 구형보다 약 1.0% 낮았다.

3) 2종 크기입자의 충전에서 조립자 : 미립자의 크기 비를 1 : 1/10로 하고 그 혼합비를 60~70 : 30~40으로 하였을 때 최밀충전밀도를 보였다. 그러나 구형입자보다 원주형 및 육각주형이 약간 큰 값을 유지하였으며, 이 값은 단일 입자보다 약 12.5~16.3% 더 큰 값이었다.

4) 3종 크기입자의 충전에서 조립 : 중립 : 미립의 크기비가 1 : 1/10 : 1/400이고 조합비가 60 : 20 : 20%일 때 충전밀도는 82~86%로서 두 입자의 충전밀도보다 구형입자는 약 9.2%, 원주형 입자는 5.8%씩 더 큰 값을 보였다. 그리고 조립자의 모양에 관계없이 미립자의 크기가 조립에 비하여 1/400 크기를 사용하면 충전밀도는 비슷하였다.

감사의 글

이 연구는 인하대학교 1992년도 연구비 지원에 의하여 수행되었으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. 이준근, 세라믹스 소결, pp. 119-121, 半島出版社 (1991).
2. James S. Reed, Introduction to the Principle of Ceramic Processing, John Wiley & Sons, pp. 188-193 (1988).
3. Jingmin Zheng and James S. Reed, "Effect of Particle Packing Characteristics on Solid-State Sintering," *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**(5), 810-817 (1989).
4. R.L. Coble, "Effect of Particle-Size Distribution in Initial-Stage Sintering," *J. Am. Ceram. Soc.*, **56**(9), 461-466 (1973).
5. Junichi Kawamura, Masaki Isomoto and Kenichiro Miyaki, "Particle-Size Distribution Dependence of the Properties for Silicon Carbide Refractory," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **80**(10), 395-404 (1972).
6. Jingmin Zheng, Paul F. Johnson and James S. Reed, "Improved Equation of the Continuous Particle Size Distribution for Dense Packing," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**(5), 1392-1398 (1990).
7. Ung Up Chi, Ki Sung Han and Sang Wook Choi, "A Study on Packing of Pyrophyllite Particles," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **10**(3), 54-61 (1973).
8. O.J. Whittemore, "Shape and Density of Kaolin Grog Particles," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **59**(2), 203-210 (1980).
9. Y. Shiraki and S. Matsuoka, "Experimental Study of Packing Particles," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **60**(674), 317-324 (1952).
10. C.C. Furnas, "Grading Aggregates," *Ind. Eng. Chem.*, **23**(9), 1052-1058 (1931).
11. R.K. McGeary, "Mechanical Packing of Spherical Particles," *J. Am. Ceram. Soc.*, **44**(10), 513-512 (1961).
12. L.H. Van Vlack, Physical Ceramics for Engineers, Addison-Wesley Publishing Co. Inc., pp. 236-237 (1964).