陶磁器泥漿の噴霧乾燥処理と粉体成形に 関する研究 (第2報)

河嶋千尋・村田順弘

(東京工業大学窯業研究所)

Fundamental Studies on the Spray Drying and Semi-dry Press of Ceramics, (II)

By Chihiro KAWASHIMA and Yorihiro MURATA

(Ceramic Laboratory, Tokyo Institute of Technology.)

は し が き

第1報では¹⁾粘土泥漿の噴霧乾燥装置と乾燥粉体の性質、特に顕微鏡的観察について報告したが、本報告では主として噴霧乾燥処理過程の実験結果について報告する。

噴霧乾燥装置の主なる機能は、(1) 高速回転体の有する遠心力を利用して粘性体を微細な液滴とする部分、(2) 一たん微細化した霧体の液滴を乾燥せしめる部分、(3) 乾燥した微粉を集積捕獲する装置の三つの過程に大別できる。これらのうち、粘性液体を霧状液滴とする部分は実際問題としても最も重要であって、これによって乾燥粉体の粒子の大きさ、粒度分布、粉体の形状と性質などの物理的性質が本質的に支配せられるのみならず、回転体の単位時間当りの泥漿処理量が噴霧乾燥装置の容量と能力などをも決定する標準ともなる。この意味で高速回転体の遠心効果を到用して霧状液滴を得る機構の解明は、本研究における重要な課題であることがわかる。本報では高速回転体の周辺速度、回転体の形状、泥漿が流動する内面の曲率と先端における切刃角度と方向、粘土泥漿の粘性と水分百分率などが粉体におよぼす影響、および飛散粉体の運動学的考察、回転体内面における粘土泥漿の流動などについての観察と考察結果について報告する。

I. 粉体の飛散状態とその分布

飛散した霧状液滴は回転体の有する遠心力と同回転体の形状、または使用される泥漿などによって種々異なった分布を示すが、粉体の大きさと同分散状態については、さらに詳細に検討しなければ単なる観測のみでは明確に判定することはできない。故に本実験では主として下記のような方法で粒子の分散状態をしらべ、これらの分散状態と上記の種々なる外部条件との相関関係を検討した。

次に、粘土泥漿がある分布をもって乾燥せられる場

合の過程は、実際的にはかなり複雑したものであるが、これは次のように大別せられる。

- (1) 回転体の内面における泥漿の粘性流動
- (2) 乾燥現象を伴う液滴の飛散運動

すなわち、実際には回転体内面に沿って流出する泥漿の運動には乾燥条件が入るので、飛散するまでの時間は短時間ではあるが泥漿の粘性係数が時間とともに変るものと考えられるので、これを一義的には運動を論ずることはむづかしい。飛散粒子についても、乾燥による粒子質量が変化することは当然で、しかもこの場合は粒子に作用する空気抵抗も相当量のもと考えられるので、複雑ではあるが両者の運動を総括して次のような実験的観察を行った。

第1図に示すように遠心噴霧回転機の回転子から800 mm 距てて幅 1.8 cm の赤色紙テープを半径方向に水平に張り、この状態で回転機を回転して処理泥漿を流入する。数秒後にテープを取りはずし顕微鏡下で数十倍の拡大で、目盛付対眼鏡を用いて目盛巾 0.15 mm、長さ5.0 mm 内に落下している粉体個数を計算する。なお粉体個数は測定距

Fig.1 Schematic Diagram of Particle Distribution

離において任意の2箇所を読み、その平均を採った。その1例を示すと第1表のようになる。また、第2図に示すように回転体の回転中心下に原点を置き左方に負、右方に正の距離をとると、回転体は高速度であるから半径方向の粒子分布はいずれの方向においても同等と見做される。第1表A), B)は回転体の形状を変えた時の結果であって、その形状は第3図に図示してあ

Table 1

A) Disk : 30, Slip : 41.9% Water, $R_{\max}$: 170 cm, Standard Deviation $\sigma = 4.06 d_m$							
Distance from Center	Number of Particles			Cumulative No. of Particles	Cumulative % of Particles	Percent of Particles	Mean Diameter of Particles
$L(d_m)$	n_1	n_2	$\bar{n}$ (mean)	Σni	Σni (%)	Ni (%)	d_m (μ)
11	0	0	0	0	0	0	300
10	0.5	1.0	0.7	0.70	0.806	0.80	250
9	1.0	1.0	1.0	1.70	1.956	1.15	200
8	1.0	1.5	1.25	1.95	2.245	1.44	200
7	1.5	2.0	1.75	3.70	4.260	2.01	200-250
6	3.0	4.0	3.5	7.20	8.290	4.03	150-200
5	5.0	4.0	4.5	11.70	13.460	5.18	150-200
4	4.0	6.0	5.0	16.70	19.220	5.76	150
3	5.0	7.0	6.0	22.70	26.200	6.90	100-150
2	7.0	6.0	7.5	30.20	34.750	8.63	100
1	8.0	8.0	8.0	38.20	43.900	9.21	50-100
0	10.0	11.0	10.5	43.45	50.000	12.08	50

B) Disk : 0-66, Slip : 41.9% Water, $R_{\max}$: 160 cm, Standard Deviation $\sigma = 2.06 d_m$

Distance from Center	Number of Particles			Cumulative No. of Particles	Cumulative % of Particles	Percent of Particles	Mean Diameter of Particles
$L(d_m)$	n_1	n_2	$\bar{n}$ (mean)	Σni	Σni (%)	Ni (%)	d_m (μ)
6	0	0	0	0	0	0	250
5	1.0	2.0	1.5	1.5	1.7	1.7	200
4	3.0	3.0	3.0	4.5	5.1	3.4	150
3	5.0	6.0	5.5	10.0	13.6	6.3	100-150
2	9.0	9.0	9.0	19.0	21.6	10.2	100
1	15.0	17.0	16.0	35.0	39.8	18.2	50-100
0	17.0	19.0	18.0	44.0	50.0	20.4	50

A : 15-I Disk B : 30-I Disk

Fig.2 (a) Photograph of Viscous flow of Clay Slip along the inside Surface of Rotating Disk.

る。また第1表の結果から粉体の密度曲線と累積分布曲線を描くと第2図のようになり、回転体の形状によって飛散粒子の分布状態が相当に違うことがわかる。第1表で粒子の大きさ d_m は 50μ から 300μ の範囲にわたって分布されるが、この粒子の大きさは落下沈積する間に常温でもほとんど乾燥されるが、テープ上に附着すると多少変形を起しているので正確な値ではない。しかし、球状を保持している点には違いはなく、したがってその平均値も相対的値として充分信頼度を

Fig.2 (b) Relations between Scattered Distance and Cumulative percent of Particles in various Rotating Disk.

認めてよい。また、粒子は回転中心から遠方になるにしたがって大きくなり、粒子箇数の密度は疎となる。これは後に述べるように、分散粒子群の諸条件が回転子

Fig.3 Relations between Scattered Distance and Cumulative Percent of Particles in Various Rotating Disks.

Table 2 Size and Dimmension of Rotation Disk.

Reference No.	No. of Disk	Angle		R_1 mm	d mm	No. of Hole	D mm	D_1 mm	H mm
		α	β						
1a	30-I	30°	66°20'	25.0	2	4	40.3	22.0	8.5
1b	15-I	15°	66°20'	25.0	2	4	40.3	22.0	9.0
2	60-I	60°	90°	23.0	2	4	40.0	22.0	13.5
3	60-0	120°	90°	23.0	2	4	40.0	22.0	16.5
4	30-A	30°	79°40'	25.0	2;3	2 resp.	40.0	22.0	12.5

4箇、直径は2 mm であり切刃角は内側から 30° に入れている。Disk 15-I は切刃角を 15° にしたもので他は同じである。また 60-I は曲率半径を 23 mm に取り、切刃先端面に対して直角になるよう内面を製作し、極小粒子の飛散を小さくするために設計製作したものである。また切刃角は内側から 60° である。60-0 は外側から 60° の切刃を入れたものである。30-A は上記の各 Disk の中間程度の深さを持つようにして、泥漿流入口の大きさを径 2 mm と 3 mm との 2 種類としてそれらの影響を検討せんとしたものである。

III. 粒子分布におよぼす回転子の影響

第4図は上記の種々な形状をした回転子を使用して粘土泥漿を処理したときの粒子の分布を示す。図中縦軸には粉体個数の累積百分率を取り、目盛は $100 \int_{-\infty}^t \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{t^2}{Z}\right) dt$ であり、横軸は粒子の飛

の定常回転で一定となるためであって、当然の結果である。その際最も遠方に飛散した粒子距離を最大飛散距離 R_{max} として実測すると Disk 30 では 170 cm Disk 0-60 では 160 cm で大差ないのは興味ある点である。この事実は最大飛散距離附近における粒子はその直径も大きく (250~300 μ) 回転子の影響によるほか、ごく稀な条件の場合として遠方に飛散されたものと考えられる。それ故、粒子の分布状態を検討するにはこれらの領域を除いた微細粒子群が密に落下した部分について考察する必要がある。この点第1表から算出した標準偏差 σ は Disk 30 では 4.06 d_m , Disk 0-60 では 2.06 d_m となって粉体粒子の分布状態の相違を明かに物語っている。なお、この結果は Disk の形状が相違するほかの条件は Slip 濃度 (水分 41.9 %), 回転数 17,800 r.p.m., 同周辺速度 37 m/sec. であって外部条件は一定として得られたものである。

II. 噴霧回転子 (Rotating Disk for Atomizer) の構造

回転機の先端に取付ける回転子の形状は第3図に示すようであるが、その寸法は第2表に掲げてある。Disk 30-I は内面の曲率半径 25 mm, 泥漿流入口は

Fig.4 Relations between Particle Distributions and Typical Rotating Disks.

散距離を示している。すなわち、確率紙上に粒子個数と距離との関係を求めた。その結果各回転子について直線関係がほぼ成立する。すなわち正規分布を取る（厳密には λ^2 検定をする必要がある）。図で Disk No.30 と No.15 とを比較すると先端の切刃角が 30° 、 15° となって、他は同一形状のものであるが、粒子の飛散には相当の開きがある。すなわち内面の主曲率は同一でも切刃の大きさに左右されることを示す。深く入れたものは浅く入れたものよりも標準偏差 σ は大きい。また Disk I-60 と O-60 とを比較すると、先端の切刃角は同一で外側と内側から切刃を入れたものであるが、その相違は顕著であって、内側切刃の方が標準偏差は大きい。また内面主曲率の影響は、これら4箇の直線から大略推定すると曲率半径の小なるもの程偏差は小となる傾向を有する。なお No.I-60 と No.15 とがほぼ同一の偏差にあることが注目されるが、No.16 の Disk は後に述べるように、粘土泥漿の内面流動曲線が互に交錯して内壁に乾燥泥漿の附着を見て、泥漿の処理状態に悪い影響を与えるので実際にはこれを使用することは不利益と考える。第3表は第4図の分布曲線に関して求めた標準偏差と本装置に使用された半径 60 cm の乾燥筒内に自然落下して集積されるものと推定される粉体箇数の収量百分率を示す。

Table 3
Particle Distributions influenced by
Various Shapes of Rotating Disk

Disk No.	Standard Deviation (σ) (cm)	Max. Scattered Distance (cm)	%
O-60	20.6	160	99.7
15-I	27.5	200	97.1
I-60	29.0	160	96.2
30-I	40.6	170	86.1

第5図は回転子の種類を横軸に、縦軸はそれぞれ標準偏差と粉体の最大飛散距離をとって図示したものである。その結果から偏差と最大飛散距離とは必ずしも一致せず、前述したように粉体の分布は肉眼的の観察のみでは不十分であることがわかる。また、第3表の粉体の収量百分率は偏差の最も大きい 30-I を使用しても 86.1% で、最小偏差の Disk にあっては 99.7% である。しかし、粉体の重量百分率は後に述べる飛散距離と粉体粒子の大きさとの関係を関連せしめて計算すると、この値からやや下廻ることが判っており、かつ実際には僅少ではあるが、乾燥熱風の排風作用で逸散する粉体量をも考慮する必要がある。これらの諸点に関しては改めて後述する。

IV. 粒子分布におよぼす泥漿濃度の影響

処理泥漿の濃度が粉体分布におよぼす影響は、前記

Fig.5 Relations between Particle Distribution (Standard Deviation) and Kinds of Disks.

回転子の影響程有効なものではないことが判明した。第6図 (A) と (B) は前記と同様確率紙上に記載した結果である。(A) は Disk 60-0, (B) は Disk 30-I をそれぞれ使用し、回転数はほぼ 18,700 r.p.m で処理した結果であるが、いずれも粒子は正規分布をなし

Fig.6 Relation between Particles Distribution and Viscosity of Slip.

て分散されている。これらの結果を偏差、最大飛散距離、粉体の体積収率について綜括したものが次の第4表である。

Table 4 Particle Distributions influenced by Slip Concentration

(A) DISK No. 30-I

Water Content in Slip (wt. %)	Standard Deviation (σ cm)	Max. Scatter Distance (R_{max} cm)	%
64.4	28.1	130	96.7
60.6	32.8	140	93.3
55.6	32.3	160	93.4
50.9	33.8	170	92.4
41.9	40.6	170	86.1

(B) DISK No. 60-0

Water Content in Slip (wt. %)	Standard Deviation (σ cm)	Max. Scatter Distance (R_{max} cm)	%
64.4	25.4	85	98.2
60.6	24.4	95	98.6
55.6	24.1	97	98.7
50.9	23.3	120	99.0
41.9	20.6	160	99.7

第7図は粉体粒子の分散におよぼす泥漿濃度の影響を標準偏差と最大飛散距離について図示したものである。偏差は回転子の形状によって変化する。すなわち、内側から切刃を入れた比較的浅い形状をした Disk 30-I は水分百分率の増加にしたがって偏差は小となり、漸次飽和曲線を画く。また外側から 60° の切刃を入れた深い形状をとった Disk 90-0 においては水分百分率の増加に伴い偏差が増大し、60% 水分附近

Fig.7 Relation between Particle Distribution (Standard Deviation) and Slip Concentration

から飽和する傾向になる。これに反して最大飛散距離は、泥漿水分の増加にしたがっていずれも減少するが、60-0 においてはその影響が著るしく、55% 水分附近では 40% 水分の泥漿の約 1/2 となる。それ故粉体の分散を極力おさえるためには偏差の飽和領域に入る点、すなわち 30-I と 60-0 に関しても約 55~60% 水分附近の泥漿が効果的となる。しかし本質的には回転子内壁における泥漿の粘性係数が問題であるから、必ずしも水分百分率のみの影響ばかりでなく、処理泥漿の温度を高めるとか、添加剤を用いて泥漿の表面張力を小さくすれば上記と同様の結果を得られるわけである。実際問題として、これらの点は重要なことと考察される。なお、Disk の形状によって偏差が増加するものと減少するものとの2種類あることについては次のように考察する。一般には水分増加によって偏差は減少し、粒子の分散範囲は縮小される傾向にあるが (30-I, 15-I, 60-I), Disk 60-0 において増加するのは回転子の内壁の粘性流動が異常状態、例えば回転子の一流出口からの流動曲線が他の流動曲線に交錯し、その交錯領域に定常流動によらない特異な流動が見られるからである。回転子の最外層はこの交錯領域によって当然形成され、しかもこの異常層は粘性流動の悪い泥漿ほど著るしく生成される。それ故水分百分率の増加によって流動が容易となるにしたがって異常層の影響が弱くなり、第7図に示すような偏差の増大を見るわけである。

む す び

噴霧回転処理における飛散粒子の分散状態は種々の独立した因子によって影響せられるが、分散粒子群を顕微鏡観察と、いわゆる統計的処理をなすことにより次のような事実が推定された。

(1) 回転子の形状は分散におよぼす影響が極めて大きく、回転子内壁の主曲率の大なる程、標準偏差は小となり、先端切刃角の大なる程偏差は増加する傾向を有する。

(2) 処理泥漿の濃度と粘性の影響は回転子の形状ほどは大きくないが、一般には粘性流動の容易なほど標準偏差は小となり、分散範囲は縮小される。

(3) 分散粒子群の示す分布曲線は正規 (gauss)

型である。

なお、本研究の実施に当って諸設備その他全面的に絶大な御援助を与えられた日立製作所多賀工場に対して謝意と敬意を表するものである。さらに本研究は文部省科学研究費(東京工大窯業研究所)『ガスタービン用特殊耐熱材料の研究』ならびに総合研究『シェル型鋳物の基礎的研究』にも関連して実施せられたものであることを併記して、ここに深甚の謝意を表す。

文 献

- 1) 河島, 村田, 黒協, 61 [690] 605 (1953)
- 2) 噴霧乾燥装置に関する文献第1報参照
(7/10/53 受付)

Hildegard Britz作

Keramische Zeitschrift 誌 1953年8月号 398頁より轉載