超微粉炭の流動性

—昭和41年11月12日 石炭科学会議講演—

資源技術試験所 本間寅二郎・山 本 満
岩田 博行・増 田 薫

I. 緒 言

燃料および原料としての立場から石炭と石油を比較してみると、石油の方が優れているばかりでなく、運搬、貯蔵、使用などの面からみても多くの有利さが認められ、かつ価格が低廉で供給が潤沢であるので、エネルギー資源として石炭にとって代りつつある。しかし石油資源にも限度があり、全世界の将来のエネルギー需要の増大に対しては、十分な供給を期待することは困難である。

一方石炭はその量において石油とはけた違いに巨大であり、まだまだ潜在能力を十分に有していると考えられるので、その固有の劣性を改善し、改質、利用の途を開発することにより、未開拓の潜在能力を十分に発揮させることも可能であると考えられる。

ここにおいて筆者らは、超微粉炭の問題をとり上げ¹⁾、その利点を十分に活用することによつて、石炭の処理技術および利用技術の開発を試み、特に流体化を目標として研究を開始した^{2,3)}。しかし着手後日なお浅く、実験資料もまだ充分とはいえないので、ここでは石炭の流動性に関する二、三の基礎的研究結果^{4,5)}についてその概略を報告したい。

II. 超微粉炭の内部摩擦角

1. 概 要

超微粉炭の流動特性を研究するにあたり、内部摩擦角の測定は貯蔵、供給などの技術を解決する上に重要である。従来粉体の内部摩擦角は主に砂、粘土などに関して研究された土質力学として体系的に発展しているが、理論的には未知のところが多く残されている。とくに微粉炭にいたつてはその報告はほとんどない。

粉体の摩擦角に類する他の測定対象としては、安息角、壁面摩擦角、すべり角、内部回転角などがあるが⁶⁾、それらの測定法は必ずしも定まっておらず、またそれら相互の関連性もあまり研究されていないので、本研究においては、一面せん断による内部摩擦角の測定を行なった。またこのせん断法におけるせん断

Fig. 1 Schematic diagram of direct shear apparatus

箱内部の粉体の運動についても多少観察したので報告する。

2. 実験装置および測定法

Fig. 1 に実験装置の概略を示す。一面せん断試験機は真鍮製の二つの円筒状せん断箱（直径 60mm）と、下部のせん断箱をずらすためのウォーム歯車とモータから成っている。ずり変位は水平方向のダイヤルゲージ（最小目盛 1/100mm）によつて測定され、ずり速度は無段変速機により変えられる。上部せん断箱に作用するせん断抵抗は、プルベイング・リング（最大重量 100 kg）によつて測定される。垂直荷重はアームにより分銅荷式で、最小 0.1 kg/cm² ~ 最大 4.0 kg/cm² である。

測定に際してはクーロンの経験法則による次式によつて内部摩擦角を求めた。

$$\tau = \sigma \tan \phi_i + C \quad (1)$$

ただし、 C = 付着力、 σ = 垂直荷重、

τ = せん断抵抗、 ϕ_i = 内部摩擦角

3. 供試試料

実験試料としては三菱美唄粉炭を用い、これをあらかじめ奈良式粉碎機により粗砕し、さらに振動ミルを用いて10分間粉碎した後ジェットシーブによりふるい分けたものである。その主な性質は Table 1 に示すとおりである。かさ比重はせん断箱中における垂直荷重をかける前の値である。

4. 実験結果および考察

Table 1 Physical properties of various fine coal

Sample size	Density*	Sp. gr. of particle	Void (%)
74~63 μ	0.67	1.47	54.5
63~40 μ	0.64	1.62	60.5
40~32 μ	0.62	1.68	63.1
-32 μ	0.54	1.78	69.7

* Apparent density of powder in shearing box.

1) ずり変位にともなうせん断抵抗の変化

せん断抵抗とずり変位との関係は、その一例を示せば Fig. 2 (a), のとおりである。この図の横軸は円筒状せん断箱の直径に対するずり変位の割合を示し、かつ用いたせん断速度は 3 %/min である。

Fig. 2 (a) は -32 μ の超微粉を例にとり、垂直荷重をそれぞれ 0.2, 0.4, 0.8 kg/cm² とした場合であるが、いずれもずり変位の増加につれてせん断抵抗は漸次増加し、ある一定値に近づくことを示している。

2) ずり変位と垂直変位の関係

Fig. 2 (b) は -32 μ の超微粉について、ずり変位と垂直変位の関係をプロットした例である。この場合上下のせん断箱中に充填された粉体層の高さは、20 mm である。

図からずり変位の初期においては垂直変位の変化も大きいが、次第にゆるやかになる。しかしせん断抵抗

Fig. 2 Plots of direct shear tests

が最大値に達してもなお垂直変位は増加する。すなわち粉体層は圧縮されるような傾向を示す。この傾向は湿炭の場合ほど強いようである。

3) 内部摩擦

それぞれの粒度について、垂直荷重(σ)に対するせん断抵抗(τ)の関係を Fig. 3 に示しているが、いずれもよい直線性を示し、これらの直線の勾配から内部摩

Fig. 3 Internal friction of various powder

擦係数 $\tan \phi_i$ を求めた。またせん断抵抗軸との交点から付着力 C を求めた。

超微粉炭(-32 μ)の場合、 $\tan \phi_i$ は 0.6, C は 70 g/cm² であつて、市販の小麦粉などに比較すればかなり小さい値であるが、土質力学関係で用いられている標準砂⁷⁾ と比べるとやや大きくなっている。また粒度別にみると内部摩擦角は細くなるほど、すなわち超微粉化されるほど減少するが、反対に付着力は細かいほど大きくなっている。

4) 水分の影響

超微粉に限らず一般に粉粒体に水を加えた場合その性状は、水分の増加にともない不連続体から連続体に変化する傾向がある。一面せん断試験機を用いてその過程を -32 μ の粒子について観察した結果が Fig. 4

Fig. 4 Influence of water on the shearing resistance

に示すとおりである。 A は水が少ないため全体にしん透せず、水に接触した粒子のみが付着して造粒作用を生じ、見掛けの粒径が大きくなった状態である。 B はさらに水分が増し、造粒がたがいに付着し合つて大きくなり、やがて全体が一つの団塊にいたる状態である。これは粒子間の空隙を水が飽和した状態であつて、これ以上水分が増すと再び団塊はくずれて C のスラリー状になる。

Ⅲ. 超微粉炭堆積層の流れ曲線

1. 概 要

超微粉炭のように極微細粉がふんわりと堆積しているか、または適当な速度で吸い込まれる気流によつて流動化されている状態においては、その流動学的性状は近似的には液体に似た条件が成立するものと考えられるが粉体層においては、安息角、内部摩擦角、粘着力、凝集力などの力学的現象が存在するために、この類似をどこまでも押し進めることは不可能であり⁹⁾、今後の研究にまつべき未解決の点が非常に多く残されている。

このような見地から流動性を表示する一法として、ストーマ粘度計を改良して、超微粉炭の粘性抵抗および降伏値の測定を行なつたものである⁹⁾。流動性におよぼす因子は多種多様であり、かつ不連続なものであるため一般的な関係式を導くことはきわめて困難であり、また再現性も比較的低いのであるが、実用上の要求があるため、あえて不十分ながら実測結果とその一応のまとめを報告する次第である。

2. 実験装置

粉体層を機械的に攪拌するということは、ある種の固体混合装置や粉体供給装置においてときにみかけることがあるが、このような場合は攪拌トルクとか攪拌動力の算定に基準をおいたものである。また一般に粉体の堆積層のような集合体において、厳密な意味で流体と同様の流れ曲線を測定できるか否かという問題については、まだ疑問が残されているが、粉体の流動性を解明する上の一つの手段として関連性は認められる。そこで、本研究における実験装置として、ストーマ粘度計の釣鐘型ロータの代りに、直鋸製のねじり羽根型ロータを2枚直交してつけたものを用いた。(図省略)。この変形ストーマ粘度計が、流れ曲線を与える性能があるか否かを検討する目的で、ニュートン液体(蔗糖溶液)によつて、その回転速度 N と回転に要する荷重 w の関係をくらべて、グラフにプロットしたものが Fig. 5 である。すなわちこの羽根型ロータの場合でも、比較的低速度においては釣鐘

Fig. 5 Flow curve of sugar solution

型ロータの場合と同様に原点をとる一次直線をニュートン液体の流れ曲線として与えることが確認できた。

3. 実験結果および考察

1) 流れ曲線

実験試料としては、前節 Table 1 に示すものと同様のものを用いた。

Fig. 6 は縦軸にせん断応力、横軸にずり速度をとつて各粒度別にプロットしたいわゆる流れ曲線の一例である。一般にこの流れ曲線において、原点をとる直

Fig. 6 Flow curve of various fixed bed of powder

線がニュートン流体であり、原点をとらずせん断応力軸を交さる直線の場合にはビンガム塑性流体とされているが、図によると各粒度ともせん断応力軸に交さし、しかもそれに対して凸形を示しており、流動学的には非ビンガム塑性体とみなすことができる。またこのように粉体層に外力をかけると、初期においては見掛け粘度は小さく、外力が強くなるにつれて粘度

も上昇する傾向を示し、ダイラントな性質を有することが認められた。

2) 降伏値

前述の Fig. 6 に示すように粉体層においてはせん断応力がある値に達するまでは全く流動を示さず、その変形はわずかの弾性変形（図に示されていない）のみであるが、この限界を越すと超過分の力に対しては流動を示している。すなわち、降伏値が存在しているがこの値は一般に他の流体と比較して著しく高い値を示し、しかも -32μ の粉体層において 52ダイン/cm^2 、 $63\sim 74\mu$ においては 110ダイン/cm^2 となっており、粒度が大なるほど比例的に増加している。

3) 塑性粘度

塑性粘度の変化を外力（この場合せん断応力）を横軸にとつてプロットしたものが Fig. 7 である。

Fig. 7 Plastic viscosity of various fixed bed

図より一般に外力の増加につれて塑性粘度も上昇していることを示しているが、超微粉炭の場合には粘度がある一定値に近づきつつあり、塑性流体に近い性状を示すことがわかる。

4) 泥しよの流動性

Fig. 8 は -32μ の超微粉炭の表面含有水分の変化と流動性の関係を示したものである。Fig. 6 における乾炭基準の場合と比較して異なる点は一般にせん断応力軸に対して凹形を示し、擬塑性流体にぞくすることである。すなわち外力に対して見掛け粘度は一時的には増加するが、次第に減少する傾向を有することを示しており、これは水分による一時的な空隙率の減少、圧縮性の増大によるものと考えられる。

Fig. 8 Effect of water content on fluidity

IV. 超微粉炭流動層の流動性

1. 概要

一般に粉体の中に適当な方法で気体を吹き込むと各粒子は気体中に浮遊し、粒子間の摩擦は減少し、息角は0となり粉体は液体のように自由に流れるようになる。このように粉体の性質の変化は実際に粉体を取扱う上に大きな効果をもたらすものであり、特に輸送の容易さ、連続工程の制御の容易さ、高い熱伝導性の付与、有効表面積の増大などの効果が期待され、利用価値は大きい。

前述の実験結果より、超微粉の堆積層においては水分がその流動性に大きな影響を与えること、また流体化する際には、そのみかけ粘度よりも降伏値の減少が最も重要であると考えられるので、この堆積層をさらに流動層にまで発展させ、この場合の内部摩擦抵抗および降伏値について測定を行なった。

2. 実験装置

流体により吹き上げられて固体粒子が運動している流動層で、諸種の粘度測定法の変形を応用して、みかけ粘度を測定した例は二三ある^{10)~12)}が本研究においては Fig. 9 に示すように、直径 50mm のガラス管を用い底から多孔板をとおして窒素ガスを吹き込んで流動粉体層をつくり、そのみかけ粘度の測定を行なった。測定にはストーマー粘度計を改造して、回転軸に $30 \times 26 \times 0.3 \text{mm}$ の鉄製矩形板を取りつけたものを用いた。

3. 実験結果および考察

1) 気体透過速度と圧力損失

静止した粉体層に下方から気体を吹き込んでその速度を大きくしてゆくと徐々に流動化が起ってくる。最初非常に低い速度では、気体は少しも粉体の攪拌を起さず層を透過するだけであるが、少し速度を増すと層

Fig. 9 Schematic diagram of apparatus for apparent viscosity test

は膨張を始める。粉体の全部がちょうど気流によつて浮んだときの圧力低下は粉体層の重さに等しい。このとき気体と粉体とは混合して液体状の一つの相を形成し、ほぼ水平ななつきりした表面をもつ、気体の速度がさらに高くなると流動粉体層の厚みが増すだけで、圧力低下はほとんど一定に保たれ変化しない。さらに流速が増すと粉体層内部に次第に気泡を発生し始め、その中には過剰の気体がふくまれるようになり、つぎに粒子は気流に乗って懸濁液のように流れ、最後には粒子は吹き上げられ、飛散するようになる。この間に粉体中を流れる気体の圧力低下 Δp と吹き込む流速 u との関係は Fig. 10 に示すようになる。

Fig. 10 Diagram of fluidized bed

図は 100~200mesh および 35~48mesh を例として示したものであるが、超微粉炭 (-32μ)* の場合につ

* 以下超微粉炭とよぶ。

いても、これらの例より流速の小さい部分において同じ傾向の状態図が得られた。粉体全体が浮かび上り、自由な流動運動を開始する最小速度 u_{mf} までは圧力損失 Δp はほぼ u に比例して上昇し、流動状態では大体一定値を示し、粉体層の全重量に等しい。 u_t から粉体は飛散を起し、飛散開始後は Δp は u の 2 乗に比例して急激に上昇する。なお超微粉については、 $u_{mf} = 0.3 \text{ cm/sec}$, $u_t = 3.0 \text{ cm/sec}$, $\Delta p_{cont.} = 18.5 \text{ mm}$ であった。

2) 気体透過速度と膨張度

粒度別による気体透過速度と粉体層の膨張との関係は流速が u_t より小さい範囲内では、各粒度とも流速に比例し、

$$V = V_0(1 + \alpha u) \quad (2)$$

なる実験式が成立する。ここで V_0 は気体をとおさないときの粉体層の体積であり、 α は膨張率ともいえる定数であつて、粒子径の小さい程大きな値をもち、超微粉炭の場合は $\alpha = 20$ であった。

3) 流動粉体層の流れ曲線

Fig. 11 は横軸にトルク W 、縦軸に回転数 N をとつたいわゆる流れ曲線の一例である。この場合とくに流動層の安定した状態で比較するために、流速 u は粒度によつて異なっている。

Fig. 11 Flow curve of various fluidized powder bed

図によれば全般的にみて応力軸に対して凸形を示し、堆積層の場合と同じ曲線を示しているが、この曲線を延長して横軸との交点、すなわち降伏値を求める

と、その値は非常に小さく、超微粉炭の場合 $u = 2.0$ cm/sec の条件でほとんど 0 となっている。またこの流れ曲線もほぼ直線的で、近似的にはニュートン流体とみなすことができる。

4) 気体透過速度と内部摩擦抵抗

気体透過速度と内部摩擦抵抗との関係の一例を示すと Fig. 12 のようである。この場合縦軸の回転数 N は粘度に逆比例するものであるから、近似的に流動度を表わすものと考えて差支えない。

Fig. 12 Relation between gas velocity and coefficient of fluidity for various fluidized powder bed

図によれば、超微粉の場合わずかの流速でも流動度が増し、粘度が非常に小さいことを示している。また粒度が粗くなるにつれて一般に流動度は低くなるが、流速を増せば流動度を高くすることができる。しかし流動度はある一定値に近づく傾向を示す。

超微粉炭について、回転トルクを小さくし気体流速を増した場合の流動度は Fig. 13 に示すとおりで、流速の増加とともに流動度は大となるが、直線的ではなく、その増す割合は流速の増加にしたがって減少する傾向がある。本装置における回転力 20 g の場合の水の流動度は $N = 190$ r. p. m. であつて、これは $u = 1.2$ cm/sec における超微粉炭の流動粉体層における流動度とほぼ等しい。すなわち超微粉炭の粉体層に流速 1.2 cm/sec 程度の気体の上昇流を与えることにより、ほぼ水の粘度と等しい流体に変え得ることが認められた。ただし流速の増加に対する流動度の極限值は、粒

Fig. 13 Relation between gas velocity and coefficient of fluidity for fluidized bed of ultrafine coal

Fig. 14 Relation between yield value and gas velocity on various fluidized bed

度の大きな程小さく、100~200 mesh 程度になると、いかに流速を増しても水の流動度より大きくなることはない。

5) 流動粉体層の降伏値

Fig. 14 は各粒度について気体流速と降伏値の関係を示したものである。流速の増加とともに流動度が大きくなるだけでなく、降伏値も急激に減少し、超微粉の場合には $u = 0.3$ cm/sec 程度でほとんど 0 を示している。

V. 結 言

超微粉炭の流動性に関する基礎的研究として、粉体堆積層および流動粉体層について内部摩擦角、流れ曲

線、粘度(流動度)、降伏値などの測定を行なったのであるが、粉体物性という体系が確立されておらない現在、粉体の流動にあづかるこれら二三の現象を取上げたのみでは不十分な解析しかできず、むしろ独りよがりの点もあると思われる。

特に内部摩擦角に関しては、この他にも安息角、すべり角などがあつて、この角特性一つをとつても複雑なものであり、またこれら相互の関連性もまだ明白でない。また一方流れ曲線および粘度に関しても、測定法に多少の疑問があり、粘度も流動度という莫然とした表現を用いたりしたところもあつて定性的な観察にとどまつたきらいがある。そのため実験式による検討や理論的考察の段階には至らなかつたが、ここでは主に超微粉炭のもつ粉体流動現象を、他の粗い微粉と比較考察したものであつて、理論的な取扱いなどについては今後の研究課題としたい。

文 献

- 1) 本間寅二郎 日鉱誌, 80 1115. (1964)
- 2) 本間寅二郎 選炭, 15 75. (1965)
- 3) 本間寅二郎 選炭, 15 404. (1965)
- 4) 本間寅二郎, 山本満 日鉱誌, 82 239. (1966)
- 5) 本間寅二郎, 岩田博行, 増田薫 日鉱誌, 82 241. (1966)
- 6) 小野英二 粉体, 1 149. (1964)
- 7) 青木隆一 化学工学, 24 598. (1960)
- 8) 後藤廉平他 2 名 “レオロジーとその応用” Chap. 13, 共立図書, (1960).
- 9) 古川淳二, 大前島, 工化誌, 54 798. (1951)
- 10) Matheson G. L., *Ind. Eng. Chem.* 41 1099. (1949)
- 11) Kramers H., *Chem. Eng. Sci.* 1 35. (1951)
- 12) Reboux P., “Phenomenes de Fluidisation” Paris (1954) p. 90.

討 論

座長 横川 親雄(京大工)

今泉(東大工 32 μ 以下の超微粉として性質を調べるのに、粒度分布、比表面積が非常に重要な影響をもたらすが、これについてのデータはありますか。

本間(資減試) 比表面積のデータは今日用意していないが、平均粒度は 19 μ で比表面積から計算で求めました。

今泉 Fig. 2 のカーブが Shearing displacement ゼロからスタートしているが、この点については………。

本間 Shearing displacement がゼロのときは stress ゼロでよいと思います。

今泉 Fig. 3 の -32 μ は大部バラツキが多いが………。

本間 他のものもバラツキが多いので、全体の実験結果から相対的にみた場合、よい方だと思います。

和田(東北大選) 32 μ 以下の粒度分布を測定することは困難である。比表面積、流動性、粒度分布などの関係を調らべるよりも、流動性を問題にした方がよいと思う。現在 mechanochemistry の研究によると粗い場合とは違つた性質になる。たとえば結晶の構造なども機械的に微粉砕された場合かなり変化する。これを問題にするとかえつて主題からはずれ混乱を起すの

で、今回は工学的な流動性を素直に取り上げた方がよい。

横川(京大工) 粉砕程度による流動性の変化を示すにはどのような方法がよいですか。

和田 この場合工学的なもので実際問題として、そのものズバリのデータを応用した方がよい。むしろこの研究は科学的な考えを工業化する方に向いている。工業化の方針を誤まるような基礎研究でなければ、あまり細かく尺度にこだわる必要はないと思います。

島野(石炭技研) 超微粉炭には興味をもっていたが、幸い資源試で研究は進められているので、石炭利用の応用方面に発展するものと期待する。われわれも応用過程で努力したいと思う。ドライばかりでなくウェットの方も研究されたい。

本間 研究の目標はあくまでも超微粉炭の有効利用とし、現在行なっている研究は応用化の基礎資料をうるためのものである。超微粉炭には他のものと異なるメリットがあるが、それを価値づけるだけでは有効利用を完全に達成することにはならない。どうしても超微粉炭でなければならないという利用法があれば、この席上で討議していただきたい。

竹下(九大) ある電機メーカーから超微粉の用途を求めてきたが、石炭を超微粉にしてくれれば、私どもで研究中のプラズマジェットに利用できるもので大いに研究してくれと述べた。超微粉をつくる装置が今後石

炭業界に必要なならば、よく研究していろいろと指導いただきたい。

Fig. 8 の % は水分なのか。また水以外にタールなどを使用したことはありますか。

本間 水分%である。水以外では実験しなかった。

吉田(資源試) この研究は超微粉を主体にしているようだが、他の粉体に応用することの意義について。

本間 この研究の最終目的は超微粉の乾式輸送にあるので、他の粉体と流動性について比較する上において意義があると思います。

吉田 超微粉でなくても空気輸送はできるとは思います。

本間 もちろん現在粉粒体の空気輸送は実用化されているが、これは非常に濃度の低いものである。超微粉の場合は流動性をそのまま利用するので、高濃度で処理量が高く、長距離輸送が可能である。

和田 石炭の灰分は超微粉になると、熔融点の高いものでも瞬間的に熔融して燃焼が容易となる。また石炭の不均質がデメリットになっているが、これも解決されると思います。

島野 外国の文献をみると、プラズマジエットは粒径が非常に影響し、少し大きいと反応が進まないように、やはり超微粉炭は絶対必要だと思います。

横川 石炭の銘柄によつて性質が違うものですか。

本間 粒径、形状、濃度などが大きな因子で、あまり銘柄にこだわる必要はない。

本田(資源試) 一般の粉体と超微粉炭とはどの位相違がありますか。

本間 土質力学的には石炭とあまり相違はない。

本田 利用面でのプラズマジエットについて、われわれは -100mesh で処理しているが、あまり微粉だと不利な面もあり、費用の点にも問題があるので考えてみたい。

杉村(石炭技研) Fig. 4 の横軸の水分 % は風乾の場合ですか。

岩田 45°C 位で乾燥したもので、石炭の固有水分は考えていない。

杉村 粗い粉で Fig. 4 のような実験はしましたか。

岩田 微粉でないといけないと思います。

宮下(北炭化成) このような基礎的研究はどの位の規模の装置を想定するのに有効ですか。

本間 パイプラインに応用できると考えます。

和田 石炭は本来不均質なものであるが、混合の場合超微粉は便利であり、混合、粉碎の効果を完全に利用しうるものといえます。

Fluidity of Ultra-fine Palverized Coal

by Torajiro Honma, Mitsuru Yamamoto,

Hiroyuki Iwata and Kaoru Masuda

(Resources Research Institute)

SYNOPSIS:—The internal friction of ultrafine coal was measured, and then the flow curve, the apparent viscosity and the yield value were measured too for both the fixed bed of ultra-fine coal and the fluidized bed.

The coefficient of internal friction and the cohesive force were from 0.6 to 0.7 and from 70 to 80 g/cm² respectively for the ultra-fine coal. These values were smaller than that of the wheat sold in the markets and larger than that of the standard sand. In case the ultra-fine coal becomes small in its size range, the internal friction of it decreases and the cohesive force of it increases.

The flow curve is obtained from the shearing stress and the shearing rate, and it was considered that the fixed bed of ultra-fine coal shows the dilatant flow curve and would be the rheological pseudoplastic.

The apparent viscosity for the ultra-fine coal increases in the case of increasing of the external force, and this becomes constant value in case of the external force becomes over the constant value. The fluidized bed shows the Newtonian flow because the viscosity of it is similar to that of water under the condition of the gas velocity of from 1 to 2 cm/sec.

The yield value of fixed bed is very large in comparison with the other fluid, and this value increases in case of the large size range. The yield value decreases remarkably for the fluidized bed, and this value becomes about zero under the condition of the gas velocity of some 0.3cm/sec.