透過率測定による充てん構造の決定*

清水 清** 矢代 和 祐***

Determination of Packing Structure by Permeability Measurements

by

Kiyoshi SHIMIZU

(Hokkaido Gakugei University, Hakodate)

and Kazusuke YASHIRO

(Hakodate College of Technology, Hakodate)

Bader¹⁾ proposed an empirical equation (1) based on the measurements of air permeability of snow. A large portion of this report is concerned with the meaning of the parameters a and ε_0 in Bader's formula.

Our purpose has been to measure the permeability of various packings and to determine whether the parameters obtained from the permeability measurements could be used to define the type of the packings.

It has been found that Eq. (1) has general application to homogeneous and heterogeneous beds of powders of various materials, sizes and shapes. The parameter a for the same powders is constant not influenced by the structure of beds, and the relationship between a and the mean volume-surface diameter d is expressed by the Eq. (3). The parameter ε_0 of homogeneous beds is found to increase with decrease in the particle size below a critical diameter concerned with the materials and the shapes, and for the particle sizes greater than the critical diameter it is constant. The differences in the value of the constants for the different powders appear to depend chiefly on the particle shape. For mixtures of powders of two or three different sizes ε_0 is smaller than that for one-component systems. For the beds with aggregates in it ε_0 is smaller than that for the homogeneous beds, and for the beds in which two layers of different porosities are piled up ε_0 is greater than that for the homogeneous beds.

(Received May 31, 1965)

1 緒 言

粉体層の透過率に影響する層構造の一次因子は、粒子の大きさ、形および空隙率であり、二次因子は粉体層内におけるそれらの分布である。粉体の積層は一次因子が同じであっても、その種類および履歴によって層構造の二次因子が変化し透過性は著しく異なる。本報では、二次的層構造を有する粉体層の透過率測定から得られる係数により、その層構造の型を推定するために、積雪層に関するBader¹⁾の透過式の一般性を検討したが、定性的には比較可能な結果を得たので報告する。

2 実 験 法

微粉の透過率は水渡、荒川らの粉体比表面積測定装置により、粗粉の透過率は水を用いた液体透過装置により測定した。試料の粒径は光学顕微鏡による粒子の投影面積から円形相当径を求め、約3000個の粒子について体積平均径 d_{cm} を定めた。試料のうち、粉

砕ガラスは鋭い壁開面を有する角型、砂は丸みのある角型、炭酸カルシウムおよびアルミナは凹凸やしわの多い丸型である。試料の分級は、粗粉を島津標準ふるいで、微粉は Roller 型の水ひ法で行なった。温度の影響を除くために、透過実験はすべて $18^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$ で行なった。

3 Bader の透過式

粒度のよくそろった均質な砂層の透過率 k と空隙率 ε の関係を Fig. 1 の曲線 1 に示した。粉体層の構造と透過率の関係は、一般に Kozeny-Carman の透過式で表わされるが、均質な粉体層であっても空隙率の広い範囲にわたっては成立しない。Fig. 1 の曲線 2 は曲線 1 の透過率を Kozeny-Carman の空隙率関数 $\varepsilon^3/(1-\varepsilon)^2$ の関数として示したものであるが、 ε が約 0.5 よりも大きくなると直線関係からはずれる。Bader¹⁾ らは、積雪層の透過率 K に対して

$$K = a \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{av}}{\varepsilon_0 - \varepsilon_{av}} \quad (1)$$

なる実験式を得た。 ε_{av} は積雪層の平均空隙率、 a および ε_0 は積雪の種類、履歴、粒度、粒形等によって

* 原稿受理 昭和40年5月31日

** 正 会 員 北海道学芸大学函館分校 函館市八幡町

*** 函館工業高等専門学校 函館市日吉町

Fig. 1. Relation between permeability and porosity of sand (particle diameter=0.638 mm).

定まる定数であるが、その物理的意味は明らかにされていない。(1)式を変形すると

$$\frac{K}{\varepsilon} = a + \frac{1}{\varepsilon_0} K \quad (2)$$

となる。Fig. 1 の曲線 1 を(2)式の関係で示すと直線 3 となり、空隙率の全範囲にわたり直線性はきわめてよい。これから a および ε_0 は容易に定まる。実験式であるからその近似性がよいのは当然であるが、(1)式に含まれる係数 a および ε_0 の決定がきわめて容易であるから、これらの係数と粉体層の構造との関係が明らかになればきわめて有用であると思われる。

4 実験結果

4.1 一次因子と ε_0 および a の関係

Bader の式は積雪に対して求められたものであるから、その一般性を検討するために種々の粉体を用いて均質な粉体層の透過率を測定し(2)式の関係を Fig. 2 および Fig. 3 に示した。砂は丸みのある角型、粉砕ガラスは鋭い壁開面のある角型、アルミナ、炭酸カルシウムは凹凸の多い丸型である。いずれもよい直線性を示し、(1)式は粉体の種類によらず均質な粉体層に対して成立する。この直線から得られた a および ε_0 の値は Table I に示したが、数 μ から数 mm の粒径範囲にわたって用いる。また、Carman の測定値から再計算して同様の関係を Fig. 4 に示した。特に形状の異常な試料においてもよく適合することがわかる。これらの直線から得られた a および ε_0 の値は Table II に示した。

ガラス球、粉砕ガラスおよび砂をふるい分けして、粒径による a および ε_0 の変化を求めた。Fig. 5 には粒径 d cm と ε_0 の関係を示した。Table I, II および

Fig. 2. Relation between permeability and porosity of homogeneous bed.

Fig. 3. Relation between permeability and porosity of homogeneous bed.

Table I. Experimental values for a and ε_0 of homogeneous bed.

Sample No.	Materials of bed	Diameter d (cm)	a	ε_0
1	Glass spheres	6.83×10^{-3}	2.25×10^{-5}	0.506
2	Glass spheres	3.69×10^{-3}	6.10×10^{-6}	0.503
3	Sand	8.11×10^{-3}	1.33×10^{-5}	0.597
4	Sand	7.02×10^{-3}	9.50×10^{-6}	0.592
5	Alumina	6.66×10^{-3}	0.99×10^{-6}	0.769
6	Calcium carbonate	5.13×10^{-3}	1.12×10^{-6}	0.717
7	Crushed glass	4.45×10^{-3}	1.34×10^{-6}	0.670
8	Zinc spheres	2.91×10^{-4}	0.33×10^{-6}	0.635

9. Lessing rings No. 9, $K'=2K$, 10. Steel wire crimps No. 10, $K'=20K$ 11. Berl saddles No. 11, $K'=K$, 12. Glass spheres No. 12, $K'=20K$ 13. Sand No. 13, $K'=2K$.

Fig. 4. Relation between permeability and porosity of homogeneous bed (Re-calculated from Carman's data).

Table II. a and ε_0 of homogeneous bed (Re-calculated from Carman's data).

Sample No.	Materials of bed	Specific surface S (cm ² /cm ³)	a'	ε_0
9	0.6cm nickel lessing rings	59.5	0.063	0.962
10	Steel wire crimps	126	0.0115	0.82
11	0.6cm porcelain berl saddles	24.5	0.07	0.74
12	Glass spheres	114	0.349	0.513
13	Sand	89	0.208	0.518

1. Glass spheres, 2. Sand, 3. Crushed glass.

Fig. 5. Relation between d and ε_0 .

Fig. 5 の結果から同程度の粒径では、粒形が球から偏奇すると ε_0 が大きくなることがわかる。また、同種の粉体では、粒径が減少するに伴い限界粒径以下では ε_0 が増大しはじめる。限界粒径は粉体の種類によって異なり、また、ガラス球および亜鉛球の比較から推定すれば、球形粒子の限界粒径は非常に小さいと思われる。

Fig. 6 には粒径 d と a の関係を示した。これから、

$$a = Ad^B \quad (3)$$

の関係が得られる。 A および B は同種の粉体では定数

1. Glass spheres, 2. Sand, 3. Crushed glass, 4. Glass spheres (re-calculated from Carman's data).

Fig. 6. Relation between a and d .

Table III. Experimental values for A and B of homogeneous bed.

Sample No.	Materials of bed	A	B
14	Glass spheres	0.449	2.00
15	Sand	0.320	2.18
16	Crushed glass	0.253	2.24
17	Glass spheres*	107	2.00

* Re-calculated from Carman's data.

となる。Fig. 6 から得られた A および B の値を Table III に示した。粒形が球から偏奇すると A は減少し B は増加する。ガラス球の B は 2.00 であって Carman の式における透過率と粒径の関係に一致する。直線 4 はガラス球についての Carman の測定値から再計算したもので、 d および a' の次元は著者らと異なるにもかかわらず (3) 式が成立し B もまた 2.00 となる。

4・2 二次因子と ε_0 および a の関係

粒子径の異なる同種の粉体を一定の混合率で混合し、粒度分布を有する均質な粉体層の ε_0 および a を求めた。粒径差が大きいと均質な分布層を作ることが困難であ

1. Glass spheres ($d_1=0.207\text{mm}$, $d_2=0.443\text{mm}$), 2. Crushed glass ($d_1=0.145\text{mm}$, $d_2=0.0471\text{mm}$), 3. Sand (Re-calculated from Carman's data, $d_1=0.0965\text{mm}$, $d_2=0.517\text{mm}$).

Fig. 7. Relation between ε_0 and percent of large component, $M\%$, in two-component systems.

るため広い粒径範囲を取りえなかったが(2)式の関係はよく成立した。粒径がそれぞれ d_1 , d_2 を有する均質な混合層から得られた ϵ_0 と粗大粒子の混合率 $M\%$ との関係は Fig. 7 に示した。曲線 3 は Carman の測定値から再計算されたものである。原試料の ϵ_0 に比べて混合層の ϵ_0 は小さい。粉体の種類、粒径比等によらず、混合率 $M \approx 70\%$ 付近で ϵ_0 が最小となる。また、混合層の平均粒径 d (これまでと同様に体面積平均径である。) と a の関係を Fig. 8 に示した。曲線 2 は Carman の測定値から再計算したもので、 d および a' は著者らと異なるにもかかわらず、(3)式の関係はよく成立する。Fig. 6 および Fig. 8 の結果から同種の粉体であれば粒度分布のいかんによらず同じ A および B を有することがわかる。また Fig. 7 の結果から、同種の粉体層では同じ平均粒径を有していても ϵ_0 の小さい試料層は粒度分布の幅が広いと見なすことができる。

- Glass spheres, $d_1=0.207\text{mm}$, $d_2=0.443\text{mm}$, $d_3=0.963\text{mm}$.
○ Mixture d_1 and d_2 .
○ Mixture d_1 , d_2 and d_3 .
- Sand, $d_1=0.0965\text{mm}$, $d_2=0.517\text{mm}$ (Re-calculated from Carman's data).
- Crushed glass, $d_1=0.145\text{mm}$, $d_2=0.471\text{mm}$.
○ Mixture d_1 and d_2 .

Fig. 8. Relation between a and d for mixtures of powders of two or three different sizes.

粉体層中に団粒が生ずると一般には透過率が增大する。酸化第二銅および炭酸カルシウムをあらかじめ試料筒で最密充てんした後、ふたたび取り出して任意の大きさ、形状の団粒に粉砕し、それを原試料と混合しながら再充てんした。その試料層 (Fig. 9 の B 層) の平均空隙率 ϵ_{av} と透過率を測定して、Fig. 9 の直線 2 および 4 に示した。また、炭酸カルシウムを用いて最密充てん率を有する 1mm^3 の正六面体の団粒を作り同様の測定を行ない、その結果を直線 6 および 7 に示した。適当な量の団粒を含む粉体層でもすべて(2)式は成立する。これから得られた ϵ_{0B} を均質層の ϵ_0 とともに Table IV に示した。これらの結果から団粒

- 1 and 2. No. 18 cuprous oxide,
 3 and 4. No. 20 calcium carbonate,
 5, 6 and 7. No. 21 calcium carbonate.

Fig. 9. Relation between permeability and porosity of heterogeneous bed.

Table IV. Experimental values for a and ϵ_0 of heterogeneous bed.

Sample No.	a	ϵ_0 (Homogeneous)	ϵ_{0B} (Aggregates)	ϵ_{0av} (1. layers of two different porosities)
18	7.50×10^{-8}	0.768	0.733	—
19	9.05×10^{-8}	0.768	—	0.800
20	4.7×10^{-8}	0.675	0.582	0.708
21	6.16×10^{-8}	0.605	0.582 ($W=8\%$) 0.515 ($W=67\%$)	0.635
22	1.88×10^{-8}	0.875	—	0.904

の存在にかかわらず a は不変であって、 ϵ_0 は小さくなることがわかる。空隙率の減少に伴い最密充てんでは均質層と団粒を含む層は同一の透過率を有することになり、また、団粒は試料層中で粗大粒子のような効果を示していると思われる。

Fig. 9 の測定で用いた炭酸カルシウムの 1mm^3 体の団粒を 50~500 個の範囲内で原試料と混合し、その透過率を測定した。試料の全重量 $W_0=2.70\text{g}$ に含まれる団粒の重量 $W'\text{g}$ の混合率 $W\%$ と ϵ_0 の関係が Fig. 10

Fig. 10. Relation between ϵ_0 and percent of aggregate component, $W\%$, in heterogeneous bed.

に示してある。団粒の重量すなわち個数が増加すると ϵ_0 は減少しはじめ、 W が約60%~70%付近から急激な減少から増加に変わる。団粒がさらに増加すると団粒に原試料が付着した状態となり透過性が不安定で再現性のある結果が得られない。

粉体層の空隙率分布は、しばしば透過流体の流れの方向に沿って変化している。これは試料の充てん技術や自然の積層の履歴に原因することが多い。このような空隙率分布の透過性に及ぼす効果は無視できない³⁾。同じ原試料を用いて空隙率の異なる二層を有する充てん層 (Fig. 11) の透過率を測定した。各層の厚さおよび空隙率は l_1, ϵ_1 および l_2, ϵ_2 で、 ϵ_2 は最密充てんにしてある。試料層の圧縮充てんを進行させると、 l_1, ϵ_1 が減少し l_2, ϵ_2 は不変であると仮定して全層の平均の空隙率 ϵ_{av} を定めた。 ϵ_{av} と透過率 K_{av} の関係を Fig. 11 に示した。いずれも(2)式を満足する。これから得られた a および ϵ_{0av} を Table IV に示した。均質な粉体層と同じ a を有するが、 ϵ_{0av} は均質層の ϵ_0 より大きい。全層の平均空隙率が同じであっても、流れ

の方向に空隙率の分布があると、空隙率の小さい層部分は流体の透過を著しく妨げるものと思われる。

5 結 論

粉体層の透過率測定から層の構造を知ることができるとはいえなさを検討したが、Bader の積雪に関する透過式が一般の粉体層に対しても層構造の広い範囲にわたってよい近似性を示し、かつ透過率測定から得られる係数 a および ϵ_0 と層構造の関係について次の結果を見いだした。

(1) 試料筒にとられた粉体層の空隙率を変化させて、3~4点の透過率を測定すれば、(2)式から a および ϵ_0 を決定できる。

(2) ある粉体の均質層についてあらかじめ a および ϵ_0 を測定しておけば、その粉体が作る任意の粉体層において、 ϵ_0 が小さく現われると団粒が生じており、大きく現われると流れの方向に空隙率分布があると考えられる。

(3) ある粉体の均質層についてあらかじめ(3)式の関係を見いだしておけば、透過率測定から求まる a によって平均粒径 d が得られる。そのとき平均粒径が同じであっても、 ϵ_0 の小さい試料層は ϵ_0 の大きい試料層に比べて粒度分布の幅が広い、あるいは団粒を含んでいることになる。

この研究を行なうにあたり重要なご指示をいただき、かつ貴重な文献をご貸与くださった故中谷吉郎博士に深く感謝致します。

(昭和39年9月29日 第2回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Bader, H., R. Haefeli, E. Bucher, J. Neher, O. Eckel, and Chr. Thamas, Beitr. z. Geolog. d. Schweiz, Geotechn. Ser., Hydrologie, Lief. 3, Bern (1939).
- 2) 水渡英二, 荒川正文, 高橋充, 工化, 59, 307 (1956).
- 3) Shimizu, K., J. Gakugei Univ., 9, 19 (1958).
- 4) Roller, R.S., J. Phys. Chem., 45, 41 (1941).
- 5) Carman, P.C., J. Soc. Chem. Ind., 57, 225 (1938).

1. No. 22 zinc oxide, 2. No. 19 cuprous oxide,
3. No. 20 calcium carbonate, 4. No. 21 calcium carbonate.

Fig. 11. Relation between permeability and porosity of heterogeneous bed.