振動状態における粉体の流動性*

荒川正文** 西野操*** 水渡英二**

The Flow Property of Powder in Vibrating State

by

Masafumi ARAKAWA, Misao NISHINO and Eiji SUIITO

(Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji)

The viscosity of powder was measured with the rotational viscometer in a vibrating state. In this experiment, the outer cylinder of Stomer viscometer was tightly connected to the vibrator which had constant frequency (120cps), and the amplitude was varied by changing the voltage applied to the vibrator. The α -alumina powders with several kinds of particle sizes were used as samples.

The flow curves, obtained of powders of various particle sizes under different amplitudes and temperatures, were found to be similar to one of non-Newtonian liquids. When the amplitude decreased, each powder behaved like a continuous solid.

The apparent viscosity was obtained from these flow curves in relation to the different amplitudes and particle sizes. At a constant rate of shear and large amplitude, the apparent viscosity decreased with decrease in particle size. When the amplitude was sufficiently small, the apparent viscosity reached its minimum at a definite particle size. It was considered that in the fine powders their coagulated secondary particles moved as flowing units, and that these coagulated particles were broken into primary particles with increase of amplitude.

(Received Feb. 12, 1968)

1 緒 言

粉体の力学的諸現象が構成粒子の付着・凝集性によって著しく影響されることはよく知られた事実である。著者らはさきに、粉体の充てん性が粒子間凝集力と粒子の重さ（慣性力）とのつりあいとして説明できることを報告した。すなわち、粒子径の減少に伴う粒子の重さの減少度は粒子間凝集力（たとえば van der waals 力）の減少度より大きいので、微粉体になるほど見掛けの凝集力が増大し、かさ高い充てん構造をとるようになる。この場合、粒子の重さは静荷重ではなく慣性力であるから、粒子の慣性力を充分大きくしてやれば、粒子間凝集力の影響が無視できるようになり、微粉体も粗粉体と同様な挙動をとると思われる。そこで本研究では、その一つとして振動状態においた粉体の性質を取り扱ってみた。粉体層に振動を与えると流動しやすくなることは日常よく経験するところである。たとえば、粉体を容器に入れて振動を与えると、粉体層が“柔らかく”なり棒で自由にかけ回すことのできるような状態になる。液体の粘性、すなわち、内部摩擦が液体の分子間力によるものであることを考えると、上のように粉体を振動状態において、“柔らかく”な

ったところで液体の粘度測定と同じ手段を用いて粉体の“粘度”を測定すれば、粉体の粒子間相互作用や粒子間凝集力に関するなんらかの知見が得られるのではないかと考えられる。この観点に立って以下の実験を行なった。粉体の振動状態そのものが非常に複雑で、まだ定量的な結果を得るに至っていないが、粉体物性の一つの研究手段としての可能性をもつものと考えてるので報告する。

2 実 験

試料粉体は研摩剤として市販されている α -アルミナ（商品名ホワイトアランダム、富士見研摩剤工業（株））で、粒子の大きさは Table I に示すとおりである。

装置は Fig. 1 に示すとおりで、本体は市販のスト

Table I. Sample and its particle size.

Sample	D_s^* (μ)	D_{50}^{**} (μ)
WA 3000	3.5	4.05
WA 1500	5.6	6.94
WA 1200	7.6	10.4
WA 400	20.4	29.5
WA 100	30.2	47.5

* 原稿受理 昭和43年2月12日

** 正 会 員 京都大学化学研究所 宇治市五ヶ庄

*** 京都大学化学研究所 宇治市五ヶ庄

* By air permeability method

** 50% diameter on sedimentation graph

Fig. 1. Schematic diagram of the apparatus.

ーマー粘度計である。ただし、外筒は内径6cm、深さ6cm、内筒は外径2cm、長さ4cmで、外筒の内面および内筒の外面にはすべりを防止するために約1mm間隔で縦みぞを刻んである。外筒はパイプレータに固定し、かつ試料を加熱できるように外筒の回りにバンドヒータを巻いた。パイプレータは振動数が120 cpsに固定されているので、スライダックを用いてパイプレータに加える電圧を変えることにより振動の強度を変化させた。すなわち、振動状態としては振幅だけがわるのである。その振幅の測定は外筒の上部にピックアップを接し、電気的振動に変換した後、交流増幅し、出力の大きさを電圧計で読み取るようにした。ただし、本装置では振幅の絶対値は求められず、読み取られる値は電流値 μA で表示され、振幅の相対的な大きさを表わすだけである。なお、加熱温度の影響を避けるためにピックアップは試料筒に直接接触させず、間に銅製小型セルを置いてこれに水を循環させた。

実験は、空気中の湿度の影響を避けるために、試料粉体を100°Cに加熱した状態で行なった。

3 結 果

一定量の試料粉体を外筒に入れ、一定の電圧をかけて粉体を振動させ、荷重 W をかけると内筒が回転しはじめてほぼ定常状態に達する。荷重 $W(g)$ をい

ろる変えてそのときの内筒の回転速度 $R(\text{rev/sec})$ を測定し、 W と R の関係を求めると、たとえばFig. 2のような流動曲線が得られる。これらはいわゆる構造粘性をもった液体の流動曲線によく似ている。電圧が高くなるとこの曲線がたってくるが、電圧が低い場合には荷重が小さい間はこう配が小さく、ある W 値から急激にたってくる。このところでは明らかに内筒の外表面と粉体層との間にすべりが起こっており、異常に早い速度で回転している。このすべりは折点より W の小さいところでも部分的に起こるので回転のしかたが不均一であり、Fig. 2に矢印で示したような状態では非常にばらつきが大きい。電圧が高い場合にはばらつきは図に示した程度であるが、 W が大きくなるとやはりすべりを生じて曲線がたってくる。

Fig. 3はWA 1500で、同様に電圧が低くなるとこう配が小さくなり、あるところですべりが起こるが、電圧が低くなるほどこのすべりの起こる荷重 W が大きくなる。この状態の極限は、応力の小さい間はまったく流動せず、ある応力に達するとすべりのみが起こるという固体的挙動になると思われる。この傾向はどの粒子についても同様であったが、最も粒子径の小さいWA 3000だけは多少様子が異なる。Fig. 4はWA 3000の流動曲線であるが、この場合には電圧を低くしても初めのこう配は小さくなるが、かなり小さな応力ですべりが起こる。

また試料粉体の加熱温度を変えると流動状態に変化がみられた。Fig. 5はWA 3000について加熱温度を変えたときの流動曲線の変化を示したもので、明らかに温度が高くなると粘度が上昇する。しかし、この加熱温度による流動曲線の変化は、粒子径が大きくなるに従って小さくなり、Fig. 6のようにWA 400ではほとんど差異が認められなくなる。

4 考 察

非ニュートン流体ではせん断応力とせん断速度の比

Fig. 2. Flow curves for WA 1200

Fig. 3. Flow curves for WA 1500.

Fig. 4. Flow curves for WA 3000

Fig. 5. The effect of temperature upon the flow properties of the powder composed of small particles.

Fig. 6. The effect of temperature upon the flow properties of the powder composed of large particles.

を見掛けの粘度として取り扱うが、本研究でもこれに習って Fig. 2 などの流動曲線から見掛けの粘度 η_a を求め、振動状態や粒度による変化を求めた。

ストーマー型粘度計では試料の粘度 η は(1)式で与えられる。

$$\eta = \frac{T}{\Omega} \cdot \frac{1}{4\pi h} \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r_2^2} \right) \quad (1)$$

$$T = Wd$$

ただし r_1 , r_2 はそれぞれ内筒および外筒の半径, h は内筒の試料層に浸っている深さ, Ω は内筒の回転角速度, T は内筒にかかるトルク, d は内筒の上に取り付けた滑車の半径である。本実験では内筒と外筒の間隙が大きいこと、筒面にみぞをつけてあることなどが誤差になると思われるので、これらを装置定数 k の中に含め

$$\eta_a = k \cdot \frac{1}{h} \cdot \frac{W}{R} \quad (2)$$

として(2)式を用いた。 k はヒマシ油を用いて求めた。

まず、見掛けの粘度の荷重 W による変化を求めた。

Fig. 7 はその一例で、ここでは η_a の代わりに W/R を

Fig. 7. Relation between apparent viscosity and shearing stress.

対数目盛でとってある。応力が小さい間は見掛け粘度が非常に大きく、応力が大きくなるにつれてだんだん小さくなる。構造粘性の場合にはこれが一定値に近づくわけであるが、この場合にはあるところで急激に小さくなり曲線に折れめができる。これはすべりが起こる点に相当すると考えられる。電圧が低い場合にはこの折れ曲りが非常にシャープである。電圧が高くなってもこの折れ曲りは存在し、流動曲線でははっきりしなかったすべりの起こる点もこのように描くと明確にとらえることができる。この折れ曲り点は、おおざっぱに言って電圧が高くなるほど見掛け粘度の低くかつ W の小さいところに現われる。そこで一応この折れ曲り点が一つの系に固有のものと考えて、各試料についてこの点における見掛け粘度 $\eta_{a,c}$ および荷重 W_c の電圧による変化を比較してみた。

Fig. 8 は W_c の電圧による変化を示したもので、ある電圧で急に W_c が減少してあとゆるやかに変化する。この場合、 W_c の減少する電圧は粒子径が大き

Fig. 8. Relation between critical shearing stress and voltage given to vibrator.

いほど大きいですが, WA 3000 だけは W_c の低下が明確でなくほぼ一定値である。一方, $\eta_{a,c}$ と電圧の関係は Fig. 9 のようになる。いずれも電圧が大きくな

Fig. 9. Relation between critical apparent viscosity and voltage given to vibrator.

ると急激に $\eta_{a,c}$ が減少し, 多少の上下はあるがほぼ一定となる。 $\eta_{a,c}$ の急激な減少は粒子径が小さくなるほど低電圧で起こるが, WA 3000 だけは様子が異なっており, $\eta_{a,c}$ の減少のしかたが他の試料に比べるとゆるやかで, かつ WA 1500 や WA 1200 など粒子の大きい試料より高い電圧で起こっている。

このように流動性が急変する電圧が粒子の大きさによって変わるが, これは同じ電圧をかけても粉体粒子の振動状態が異なるためだと考えられる。 Fig. 10 は

Fig. 10. Relation between amplitude of cylinder filled with powder and voltage given to vibrator.

電圧と振幅の関係を示したものである。ただしこの場合, 上下振動の振幅をピックアップで検出していることと, 電気的変換が直線的でない可能性もあることから, 振動計の電流値が振幅の絶対値に比例しない危険性はあるが, 一定の条件の下では, たとえば, 空の容器の振動については破線で示したように一定の関係が得られるので, 便宜的にこの電流値を振幅として相対的な比較を行なうことにした。粉体を入れて電圧を上げていくと, 電圧の低い間は空のときに比べて振幅が小さいが, ある電圧から急激に振幅が上昇する。この変化は粒子径が大きいものほど高い電圧で起こり, こ

れは $\eta_{a,c}$ や W_c が急激に小さくなる電圧と一致している。 WA 400~1500 の試料では振幅が空の場合より大きくなるが, これは共振が起こっているためと思われる。この図においても, WA 3000 だけが他の試料と異なった挙動をとり, 転位点はなく, なだらかな変化をしている。これは $\eta_{a,c}$ や W_c の変化の状態と対応している。

このように電圧によって粉体の振動状態が変化するので, 粒子に加わる外力が同じとき, すなわち振幅が同じで, かつ速度こう配が同じ, すなわち, R が一定のときの各試料の見掛け粘度を比較してみた。この場合, R としてはすべりの起こらない範囲のものをとって, $R=0.2$ とすると, このときの見掛け粘度 η_a の振幅による変化は Fig. 11 のようになる。このように表

Fig. 11. Variation of apparent viscosity with amplitude at constant rate of shear.

わすと, WA 3000 以外の粉体はいずれもほぼ同様の傾向を示し, 見掛け粘度は粒子が小さくなるに従って低くなっている。 WA 3000 の η_a は振幅が小さいときは WA 400 と同じ程度であるが, 振幅が大きくなるにつれて小さくなっている。

振動状態にある粉体粒子の運動を分子の熱運動に対応させてみると, 与えられた振動の強度は分子運動に対する温度の役割に相当すると考えられる。極端に言えば, 静止状態の粉体は絶対零度の物質の状態に対応するわけである。振動を強くしていくと, 粒子が運動しはじめて固体的挙動から液体的な挙動をとるようになる。振動が強くなると粘度が下がるのは, 液体の粘度の温度依存性に対応する。気体では分子運動が激しいので, 分子の衝突によって速度の平均化が行なわれ, 気体の粘度は温度が上がるにつれて増大する。粉体の振動の場合にも, 振動強度が大きくなると粒子間の衝突が激しくなり, 気体的な粘性挙動をとることが期待される。しかし, 本実験の場合は上下振動だけを与えているので粒子は均一な三次元的運動をしていない。したがって, 分子運動に直接対応させることはできないが, Fig. 9 に部分的に見られるような η_a -電圧関係が上昇する傾向は, 上に述べたような粒子の運動状態

の変化によるものと考えられる。Fig. 9 の η_a の変化の平坦な部分は、液体的に粘度が下がる傾向と気体的に上がる傾向との重なりであるとみることもしける。

粘度に対する粒度の影響をみるために、Fig. 11 において、振幅が一定のときの見掛け粘度と粒子径の関係を求めると、Fig. 12 に示すようになった。粒子径

Fig. 12. Relation between apparent viscosity and particle size.

が大きくなると見掛け粘度も上昇するが、振幅が小さい場合には $6\sim 7\mu$ 付近に極小ができる。振幅が大き

くなると極小がなくなり、粒子径の減少とともに見掛け粘度も低下する。このことは、たとえばタッピングにおけるかさ密度の減少過程における定数 k (タッピングのされやすさを表す定数) の粒度依存性によく似ている。タッピングの場合には極小点より粒子径の小さい粉体では、粒子が凝集して凝集二次粒子が運動単位となっていると考えられた。この場合にも、振動強度が弱いときには凝集粒子が流動単位として運動するために見掛け粘度が大きく、振動が強くなると凝集粒子がこわれて流動単位が小さくなるのではないかと考えられる。

なお、Fig. 5 および 6 に示した加熱温度の影響はなにに起因しているのかわからないが、今後検討を進める予定である。

(昭和42年10月19日 第5回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 荒川正文, 水渡英二, 材料, **17**, No. 178 (1968) 掲載予定.
- 2) 荒川正文, 岡田隆三, 水渡英二, 材料, **14**, 764 (1965).