振動粉体層に対する微粉体の通過特性*

荒 川 正 文** 西 野 操***

Percolation of Fine Powder through Packed Bed in Vibrating State

by

Masafumi ARAKAWA and Misao NISHINO

(Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji)

The percolation of fine particles through packed bed of coarse powder was studied in the vibrating state. CaCO_3 , $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, glass beads, nylon powder, graphite and potato starch were used as sample powders. The percolation curves seemed to consist of two parts. In the initial stage, the percolation weight increased rapidly. This is considered to show the process where fine particles tend to drain through every hole of the packing structure of coarse particles without mutual interactions between them. Then, in this region, the percolation rate increased as the particle size ratio of fine powder to coarse powder decreased. However, the percolation behaviors are dependent upon the kinds of materials and the properties of particle surface.

In the latter region where the increasing rate of percolation weight is very slow, it is considered that the movement of the fine particles through the packed bed is affected by the adhesion of fine particles to the surfaces of coarse powders. With combination of fine and coarse powders, the percolation curves are measured in various amplitudes of vibration. There are critical points at which the percolation weight in the initial region decrease rapidly with the decreasing amplitude. It is considered that the kinetic energy of fine particles at this critical point corresponds to the adhesive force between the fine particles and the coarse particles. This technique is considered to be available for the measurement of interaction force between the particles of different materials.

(Received Mar. 6, 1972)

1 緒 言

粉体の流動性が関係するいろいろの現象を一種の拡散過程と考へて、化学工学的なプロセスを通過する粉体粒子の挙動を運動論的に解析する試みはよく行なわれているが、^{1)~3)}粒子間、とくに性質の違う異種粒子間の相互作用を考慮に入れてなされた研究はあまりないようである。流動している粉体中の粒子は、当然粒子間の付着、凝集力の影響を受けているはずであるから、適当な方法でその挙動を測定すれば、従来困難であった異種粒子間の付着性に関する知見も得ることができであろう。また、粉体の混合、偏析、分離などの諸現象における粒子特性の関連性を研究する手段にもなると思われる。⁴⁾著者らは先に振動状態における粉体の動的構造と、その流動性の関連を研究し、ある条件下においてはその挙動が熔融高分子やガラスのような液体と類似していることを認めた。このような振動状態における粉体粒子の運動は複雑であり解析は容易でな

いが、振動している粉体層に対する他の微粉体の通過過程はポテンシャルによる粒子の移動現象であり、巨視的には粒子の拡散現象として取り扱うことができ、粒子間の相互作用も当然関係しているであろう。物性や粒度の異なる数種の粉体の組合わせについて振動粉体中での微粒子の通過特性を測定し、二、三の知見を得たので報告する。

2 実 験

2・1 試料

使用した粉体試料の種類、記号、平均粒子径および密度は Table I に示した。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ は市販の研摩材ホワイトアラシウムである。 CaCO_3 は実験室で粉砕した大理石粉および市販の重質炭酸カルシウム（石灰石粉砕物）を水ひして適当な粒度範囲に調整したものである。 $\text{CaCO}_3\text{-SZP}$ は、重質炭酸カルシウム $\text{CaCO}_3\text{-SZ}$ にパルミチン酸ナトリウム処理を行ない表面を疎水性に変えたものである。粗粉体はすべてフルイによって粒度をそろえた。黒鉛粉はコークス黒鉛化物の粉砕物である。

2・2 実験装置

* 原稿受理 昭和47年3月6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

Table I. Characteristics of sample powder.

	Materials	Mark	Density	Particle size (μ)
Fine powder	α -Alumina	WA-800	3.9	20
		WA-1000	3.9	16
		WA-1500	3.9	12
		WA-2500	3.9	6
	Calcite	CaCO ₃ -SZ	2.7	15
		CaCO ₃ -SZP	2.7	15
		CaCO ₃ -5	2.7	5
		CaCO ₃ -8	2.7	8
		CaCO ₃ -20	2.7	20
	Glass beads	GB-3M	2.5	12
Coarse	Potato starch	STARCH	1.5	40
	Nylon-66	Nikolon	1.2	30
	Glass beads	GB-703	2.5	100
	Calcite	Ca-150	2.7	150
	Graphite	Gr-150	2.2	150

Fig. 1. Schematic diagram of the apparatus.

Fig. 1 に示したように、径 24 mm、目開き 80 μ のアクリル樹脂製小形フルイに粗粉体を入れ、その上にさらに同じフルイを重ねてパイプレタに取付け振動させる。上のフルイ網上に適量の微粉体を入れるとフルイ目および粗粉体層を通過し、下の天びんの受皿に落下する。パイプレタの周波数は 60 サイクルで、加える電圧によって振幅を種々変化させ、微粉体の通過量の時間的変化に対する影響をしらべた。通過量は差動トランスにより検出して記録計に記録する。振幅は電磁形の検出装置で検出し、測定中の振幅変化を最少にするように調節し記録する。測定中の振幅変化は 2 ~ 3 % 程度である。

試料量は密度によって異なるが、粗粉体は振動状態でセルの体積をちょうど満たす程度 (10 ~ 14 g) 入れ、微粉体は 200 mg を標準とした。上のフルイ網上には 3 mm ϕ の鋼球を数個おいてあり、微粉体試料は振動強度にもよるが数秒 ~ 数十秒でフルイ目を通過してしまう。この通過時間は粗粉体層を通過する時間に対して無視できる。粗粉体層の粒子の挙動は振幅によってかなり異なる。振幅が十分に大きい (0.15 mm 程度以上) ときは振幅により空隙が増し体積が増加して上部の隙間はほとんどなくなる。表面に近い粒子はとくに激しく運動するが、大部分の粒子は全体として均一

に動いているように見える。振幅が小さくなり、0.08 ~ 0.05 mm 付近で粉体層中に顕著な循環流動が生じるが、粉体量を増して上部の隙間を無くすとこの循環運動をとめることができる。しかし、本実験では通過時間がきわめて長くなるのでこの領域での測定はおこなわなかった。

大部分の実験は通常の大気中 (湿度約 70 %) でおこない調湿はしていない。とくに湿度の影響をみるために湿度 40 % での測定を一部行なった。

3 結 果

3.1 通過量の時間的変化と振幅の影響

振動粉体層を通過した微粉体量の時間的増加を振幅をパラメータとして示すと、一般に Fig. 2, 3 のようになる。図中の数字は振幅 (mm) である。微粉体が粗粉体層を通過して落下しはじめる時間はあまり振幅に影響されないが通過速度はかなり変化するものが多く、とくにある程度以下の振幅になると急に通過速度が遅くなる。神保らは回転ミル内の粉体の流動を拡散モデルによって解析し、滞留時間分布が対数正規確率にしたがうと報告している。しかし、本実験では一見

Fig. 2. Percolation curves of WA-1000 through a packed bed of GB 703. Numbers along the lines are amplitude.

Fig. 3. Percolation curves of CaCO₃-8 through a packed bed of GB 703. Numbers along the lines are amplitude, (mm).

簡単な分布則に従うように見えるが、通過率が70~80%以上になると通過速度が急に遅くなる。すなわち、初期の急激な増加部分と、ある量が通過した後のゆるやかな増加部分の2つの領域にわけられ、とくに振幅の小さい場合に著しい。

このような振動強度による粒子の通過速度の変化は個々の粒子の運動エネルギーの変化によるはずである。初期の増加部分において、通過量~時間曲線のこう配が最大となる時間（それが不明りょうの場合は50%通過時間）を各試料の振動層に対する平均通過時間 t_R とし、その逆数 $1/t_R$ すなわち平均通過速度と振幅による微粒子の平均的な運動エネルギーの関係をみると Fig. 4 のようになり、(1)式が成立する。

Fig. 4. Relation between $\frac{1}{2} Mv^2$ and percolation velocity of various powder through a packed bed of GB 703.

Fig. 5. Influence of sample weight and particle size for R (%).

$$\frac{1}{t_R} = K \cdot e^{\frac{\alpha}{2} Mv^2} \quad (1)$$

ここで、 M は粒子の質量、 v は粒子の平均速度、 K および α は定数である。

通過量~時間曲線の後のゆるやかな増加部分の量を、

便宜的に Fig. 5 (a) のようにして定め、それを R とする。たとえば WA-800 および WA-1500 について一定の振幅における微粉体試料量 W_s とそのときの R の割合の関係は、Fig. 5 (b) のように W が少ないほど R の割合が増す。また、試料量と振幅が一定であれば Fig. 5 (c) のように粒子径 D_s が小さいほど R が大きい。

3・2 粉体の粒度と通過性

Fig. 4 において、各直線のこう配 α は粒子の運動エネルギーの変化によって振動粉体層の通過しやすさがどう変わるかを示しているが、このような粗粉体層に対する微粉体の通過性には大小粒子の粒径比 D_s/D_L が当然影響するはずである。 D_s , D_L はそれぞれ微粉体、粗粉体の粒子径である。GB 703 に対する種々の粒度の α - Al_2O_3 および CaCO_3 の結果をまとめると Fig. 6 のように D_s/D_L が小さいほど α が急に大きくなる。

Fig. 6. Relation between D_s/D_L and α .

3・3 粉体の種類による相違

粗粉体と微粉体の種類の組合せによって通過性はかなり異なる。たとえば同じ振幅での CaCO_3 -SZ の GB および CaCO_3 粗粉体層の通過曲線を比較すると Fig. 7 のように CaCO_3 層より GB 層の方が通過しやすい。また、黒鉛層は他の粉体と異なり振動が強いほど通過性が低くなる。Fig. 8 に WA-800 の例をあげたが CaCO_3 -SZ や GB3M などについても同様であった。

3・4 湿度および粒子の表面処理の影響

大気中の湿度は一般に粉体の凝集性に影響するので、装置を湿度40%の乾燥空気中において測定した結果と通常の大気（湿度約70%）中でのそれとを比較した。Fig. 4 に示したように乾燥雰囲気中での WA-800-D の方がこう配 α が小さく、また通過速度もやや大きい。

Fig. 7. Influence of surface treatment of percolating particles for percolating property.

Fig. 8. Percolation curves of WA 800 through a packed bed of Gr-150. Numbers along the lines are amplitude, (mm).

また、Fig. 7は同じ振幅 (0.18 mm) における $\text{CaCO}_3\text{-SZ}$ と、それに表面処理をおこなって疎水性にした $\text{CaCO}_3\text{-SZP}$ の、種々の粗粉体に対する通過曲線である。GB と CaCO_3 層では表面処理をした SZP の方が通過速度が大きいが、黒鉛では逆に小さくなる。

これらの結果は通過過程において粒子間の相互作用力が影響し、親水性表面の粒子間、疎水性表面の粒子間がそれぞれ付着性が強く、また、湿度の高い方が凝集性が増し、そのために通過しにくくなることを示している。

4 考 察

振動している粗粉体層に対する微粒子の通過性に対して、(1)粗粒子との弾性衝突、(2)粗粒子表面への付着と脱離、(3)微粒子相互の凝集、分散などの効果を考えねばならない。粗粒子は充分に大きいので相互の凝集性は無視できる。

最初、振動している粗粉体の上にフルイ目から落下了した微粉体は粗粒子との衝突や粒子自身の運動によって分散し、粗粒子の間隙を通過する。もし、粗粒子との衝突は弾性衝突だけであり、一回の振動によって必

ず一個分の粗粒子間隙を通り抜けるとするのなら、約 100μ の粒子が 2 cm の厚さで存在しているから200回の振動、すなわち約 3 秒で粗粉体層を通過してしまう。実際には最も早いものでも振動開始後10~15秒しないと通過しはじめず、通過曲線のこう配の最大値、すなわち最も多い通過速度はもっと遅いから現象はこのように単純ではない。微粒子は粗粒子層中を拡散しながら通過してゆくと考えねばならない。通過量~時間曲線の初期の急な増加部分の平均通過速度と振幅強度の間に(1)式が成立し、そのこう配 α が D_s/D_L に関係することは、この過程が主として粗粒子表面とあまり作用せずに間隙を通過してくる粒子によることを示している。しかし、この場合でも完全な弾性衝突だけでなく、粗粒子表面との付着や微粒子相互の凝集、分散の繰り返しが通過に対する抵抗力として働いていることは、Fig. 4, 7 のように試料の種類や粒子の表面処理の有無、湿度などが通過性に影響することから明らかである。

粗粒子表面に付着する微粒子は振動によって付着と脱離を繰り返しているであろうが、その平均的な付着量はその周囲の粗粒子間隙に存在する微粒子量が多いほど増すはずである。そして表面が一とおり付着粒子でおおわれるとそれ以上は付着できないから微粉体量が多いほど相対的に付着粒子の割合が減少する。著者らは先に、粒子径の異なる粉体の混合における空隙率の変化から粗粒子表面に対する微粒子の飽和付着量の存在を報告した。この実験では振動によって粒子が運動エネルギーをもっているから、粗粒子表面の付着量は振動強度によっても変化し、振動が弱いほど付着量は増すであろう。また、粒子が小さいほど運動エネルギーは小さく、同じ振動強度での付着量は増すはずである。Fig. 5における試料量や粒子径と R の割合の関係はこれらの妥当性を示し、また、通過量~時間曲線における後の領域は粗粒子表面との付着、脱離を繰り返しながら通過してくる粒子群によるものと考えられる。

そこで、振動強度による R の割合の変化を各試料について測定するとFig. 9 のようになる。各試料とも振

Fig. 9. Relation between $\frac{1}{2}Mb^2$ and R % of various powder through a packed bed of GB 703.

Table II. Adhesion force f of various powder.
($\text{g cm}^2 \text{sec}^{-2}$)

Fine powder	Coarse powder	
	GB 703	Ca-150
WA-800	10×10^{-9}	20×10^{-9}
WA-1000	6×10^{-9}	7.5×10^{-9}
WA-1500	2.5×10^{-9}	—
CaCO ₃ -SZ	3.5×10^{-9}	15×10^{-9}
CaCO ₃ -SZP	1.5×10^{-9}	—
CaCO ₃ -5	0.1×10^{-9}	—
CaCO ₃ -8	0.3×10^{-9}	—
CaCO ₃ -20	3.4×10^{-9}	—
GB-3M	16×10^{-9}	—
STARCH	50×10^{-9}	—

動強度が減少してゆくと急に R の割合が増加しはじめる点がある。この点以上の振動強度では微粒子の運動エネルギーが粗粒子表面との付着力より大きくなり、粒子表面から脱離するとすれば、このときの運動エネルギーは大小粒子間の付着力 f に等しいはずである。各試料の GB 703 および CaCO₃ 粗粒子に対する f 値を Table II に示した。α-Al₂O₃ や CaCO₃ の同種類の粉体で粒度のみが異なる系について比較すると f 値は粒度の関数であるように見える。もっと多くの実験をおこなえば、この関数形がきまり異なった種類の粒子の間の付着の作用機構を研究する手掛りが得られるであろう。

黒鉛粉体層を通過する場合は各試料とも Fig. 8 のように振動が強いほど微粒子の通過性が悪くなる。振動をとめてしらべると微粉体が黒鉛末中に大きな集塊となって存在（偏折）している。これは α-Al₂O₃ や CaCO₃ などの微粒子間の凝集力に比べてはるかに黒鉛表面への付着力が小さく、振動による粗粒子との衝突は微粒子を分散させるよりむしろ凝集を進行させる効果が大きいのではないかと考えられる。また、この系で

は微粒子の帯電量が大きくなるようにも見えるがあまり明らかではない。

このように粗粉体層に対する微粉体の通過性には粒子自身の物性や粒子表面の性質などが影響するので粉体の混合や偏折を考えるときには充分に考慮しておかねばならない。

5 結 論

振動している粗粉体層に対する微粉体の通過性を種類の粉体について測定した。一般に振動粉体層に対する微粉体の通過量の時間的变化をみると通過速度の大きい初期部分とその後の通過速度のおそい部分との2つの領域にわけられる。初期領域の通過速度は振動が強いほど大きく、振動による微粒子の運動エネルギーあたりの通過性は粗粉体と微粉体の粒径比に関係し、微粉体の粒径が小さいほど通過速度が早い。また、粉体の種類や表面の性質による付着・凝集性にも影響される。

後の領域は粗粉体粒子の表面と強い相互作用をもち、付着、脱離を繰り返しながら移動する微粒子群の通過に対応すると思われる。振動強度が減少していくこの領域の粒子の割合が急に増加しはじめるが、このときの微粒子の運動エネルギーは粗粒子表面との付着力に相当すると考えられ、この値から異なる種類の粉体粒子間の相互作用の程度が推定できる。

(昭和46年10月27日 第9回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 森 芳郎, 神保元二, 山崎昌男, 化学工学, **28**, 204 (1964).
- 2) 外山茂樹, 化学工学, **31**, 282 (1967).
- 3) Bridgwater, J., N. W. Sharpe, and D. C. Stocker, Trans Instn. Chem. Engrs, **47**, 114 (1969).
- 4) 荒川正文, 西野 操, 材料, **22**, 776 (1971).
- 5) 荒川正文, 水渡英二, 材料, **17**, 642 (1968).