粉体の動特性と粒子特性*

荒川正文**

Dynamic Properties of Powder and Particle Characteristics

by

Masafumi ARAKAWA

(Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji)

1 ま え が き

粉体の取り扱いにおいてその動的な挙動が問題になる場合はきわめて多い。ここで動的というのは、その粉体系中に含まれる全粒子または局所的な粒子群において粒子相互の位置関係に変化がおこるという意味であり、これに起因する粉体の性質を動特性、このような動的挙動による現象を広い意味での流動現象ということにする。

粉体の流動現象は、とくに工学的な操作ではそのほとんどに関係している。三輪は粒子が運動するためのエネルギーの与え方によって重力流動、機械的強制流動、振動流動、圧縮流動、流体に伴われた流動というように分類しているが、実際にはこれらが複雑に重なった場合がほとんどであろう。しかし、粉体系中に含まれる粒子の挙動との関連を考えるとこれらの流動機構を知ることが容易でない。たとえば流動層における粉体の²⁾動特性や回転円筒内や移動層内の³⁾粉体中の粒子の拡散、オリフィスやホップからの排出過程などについて流動現象を解析した例は多数あるが、それらの結果を、たとえば液体の粘度のような特性値として一般的に拡張できないのは、それぞれの操作における粉体の動構造や粒子間相互作用を明確に規定できないことによると思われる。流動現象がいかなる機構にもとづくものであっても、個々の粒子が集合系の中で相互の位置関係を変えるという現象に関与する最も基礎的な因子は粒子自身の運動エネルギー、粒子間の摩擦や機械的なからみ合いなども含めた広義の粒子間相互作用力——ポテンシャルエネルギー、および粒子が移動できる空げきの存在状態——充てん構造である。粒子の運動エネルギーはその質量、すなわち粒度と関係づけられるが、動的状態における粒子の充てん構造や粒子間相互作用力を

知ることはかなり困難である。

粉体の動特性の基礎的な研究をおこなうにあたって

Table I. Characteristics of sample powder.

Materials	Code	Density	Particle size (μ)	Remarks
α -Alumina	WA-100	3.91	120	
	WA-400	"	40	
	WA-800	"	20	
	WA-1000	"	16	
	WA-1500	"	12	
	WA-2500	"	6	
Calcite	CaCO ₃ -SZ	2.70	15	
	CaCO ₃ -SZP	"	15	Fatty acid coat.
	CaCO ₃ -5	"	5	
	CaCO ₃ -8	"	8	
	CaCO ₃ -20	"	20	
	CaCO ₃ -100	"	90	
	CaCO ₃ -100-C	"	90	Fatty acid coat.
Glass beads	GB-706	2.52	320	
	GB-705	"	230	
	GB-733	"	100	
	GB-733-Si	"	100	Silicon coat.
	GB-733-110	"	110	
	GB-733-80	"	80	
	GB-3M-550	"	37	
	GB-3M	2.43	12	
	GB-3M-Si	"	12	Silicon coat
	GB-ST	6.55	46	
	GB-ST-Si	"	46	Silicon coat.
	GB-ST-Ag	"	46	Silicon coat.
Graphite	Gr-90	2.23	90	
	Gr-130	2.22	130	
	Gr-180	2.04	180	
	Gr-230	2.06	230	
	Gr-280	2.07	280	
	Gr-450	2.12	450	
	Gr-S	1.42	49	
Bronze sphere	Bronze	8.80	230	
Potato starch	STARCH	1.5	40	
Nylon-66	Nikolon	1.2	30	

* 原稿受理 昭和49年3月8日
** 正会員 京都大学化学研究所 宇治市五ヶ庄

の問題点は、まず、同一試料で動構造を系統的に変えることと、そのときの粒子群の充てん構造に関する情報を得ることである。系統的に動構造を変えるためには、たとえば流動層や振動粉体層を利用できるし、また適当な容積分率（空けき率と考えることができる）で溶媒中に粉体を分散させた固-液系の挙動を固-気系にあてはめることも問題によっては可能である。しかし、流動層はかなり大きな粒状試料では成功した例があるが、一般の粉体ではバブルの発生などのために系全体の動構造を均一に変化させることは難しく、また固-液系からの類推も粒子間の相互作用機構が乾燥粉体のそれと異なるので同一の議論の対称とならないのが普通である（考え方のモデルにはなる）。これらに対して、振動粉体層は容器形状や振動方法など問題点は多いが条件の選定は比較的容易であり利用しやすい。著者らはこれまで振動粉体層を用いて振動強度と粉体の流動性⁶⁾、振動粉体層の動構造、動特性と粒子特性、流動粉体中での粒子特性にもとづく分離、偏析などについて幾つかの実験を試みてきた。これらの結果をまとめてここに述べることにする。

なお、これらの実験に用いた試料粉体をまとめて Table I に掲げておく。

2 容器からの粉体排出速度と振動粉体の流動性

粉体の流動性試験の方法の一つに容器からの排出速度の測定があり、粉体の種類によって各部の寸法が多少異なったホッパーやオリフィス⁷⁾が使用されている。このような方法による粉体の排出速度と粒子特性、とくに粒度との関係を二、三の粉体について検討した。実験装置は Fig. 1 のとおりで、パイプレータに取り付けたガラスロートの口径 d を変え、粒度の異なる黒鉛粉体の重量排出速度 W と d の関係を測定した。結果を W と d/D_p の関係で示すと Fig. 2 のようになる。ここで D_p は粒度である。同じ粒度の場合は d が大きくなると排出速度が増加し、よく知られている(1)式の関係が成立する。

$$W = K \cdot d^n \quad (1)$$

Fig. 1. Schematic diagram of the apparatus for measurement of flow rate of powder.

Fig. 2. Effect of orifice diameter and particle size on flow rate of graphite powder.

しかし、同じ口径 d については粒度 D_p によって排出速度が異なり、Pilpel⁷⁾ によって指摘されているように速度の最大値が存在する。Fig. 1 のロートをオリフィスに変えて同じく W と d の関係をしらべた結果も同じ傾向を示し、これはガラス球、石灰石粉砕物などについても認められる。Pilpel はさらに粉体層のせん断試験により求めた内部摩擦係数や、かく拌に要するトルクについても同じく粒度に対して極小点が存在することを認め、他にも同様の報告がある。本実験の試料についても注入法による安息角と粒度の関係にやはり極小値が認められた。

この現象に対しては、微粒子側では粒子の付着・凝集性、粗粒子側では架橋現象による閉塞のために排出速度が減少し、その間に速度最大になる粒度条件があるという説明がなされている。さて、粒子の架橋は容器に適当な振動を与えると崩壊して流出は容易になるであろうし、また粒子の付着・凝集も振動によって影響されるであろう。そこで、ロートに 60 Hz の振動を加え、振幅を変えて排出速度に対する効果をしらべた。

Fig. 3. Effect of vibration on flow rate and fluidity of various powder.

その結果はFig. 3(a)のように排出速度は振動によりむしろ低下する傾向がある。しかし、後述のFig. 4に示したような装置で測定した粉体層のかく拌トルクはFig. 3(b)のように振幅の増加につれて最初は急激に、その後は徐々にトルクが減少し粉体層の流動性が静止時の数倍になることがわかる。

また、Fig. 3において CaCO_3 、GB などの排出速度は表面処理により粒子を疎水性にした方が大きく、見掛けの流動性は増しているのに、かく拌トルクはむしろ増加している。この相違については以下のように考えられる。容器からの排出は重力による粒子の自由落下現象であり、それに伴って粒子の移動する空間が容器下部から上部につぎつぎと伝わり、排出速度をきめるのはオリフィス上部のいわゆる動的アーチにおける粒子の衝突、粒子間の摩擦のような相互作用力が支配的であろう。したがって系全体の空げき率を変えるような振動の効果は比較的小さく、むしろ粒子の衝突回数が増加するなどの理由で排出速度が低下することがおこる。また、粒子の表面処理による疎水化は表面の水膜形成を妨げるために粒子間相互作用力が減少し排出速度が増加する。一方、安定な状態に充てんされ、空げきの少ない静止状態では、試料の見掛け体積を増加させ粒子の移動できる空間を形成するために大きなかく拌トルクが必要であるが、振動によって外部から別にエネルギーを加えると個々の粒子の運動量が増しかく拌トルクは低下する。したがって振動の効果は顕著である。表面処理により疎水化した粒子は粒子間凝集力の減少により安定な密充てん構造を形成しやすいのでかく拌トルクはかえって大きくなると説明できる。

以上のように粉体の流動現象は粒子間の空げきの存在——充てん構造と粒子間の相互作用が働く粒子の接触状態の関係から考えねばならない。このような粉体の動構造と流動性の対応を知るために次のような実験をおこなった。

3 粉体の動構造とその流動性

一般に集合系での粒子の接触状態に関する知見を得るのは難しく、とくに流動状態における粉体の動構造を知ることはきわめて困難である。一方、粉体粒子の接触状態が直接関係する現象として熱や電気の伝導があり、とくに電気抵抗は測定が容易なので金属粉体の充てん過程の測定などに利用されている。しかし、通常の金属粉体は表面酸化膜の存在などにより接触抵抗が大きく、流動粉体のように粒子が軽く接触し、しかも離合集散の著しい状態での電気抵抗の測定には問題がある。そこで黒鉛粉体を試料として振動状態での粉体層の電気抵抗の振幅による変化を測定し粉体の動構造を推定しようと試みた。黒鉛は 3000℃ の高温で黒鉛化したコークス粉末を主として用いたので表面に他

Fig. 4. Schematic diagram of the apparatus for measurement of structure and fluidity of powder bed in vibrating state.

物質の存在を考える必要がなく、電導性も十分に大きいので都合が良い。

実験装置はFig. 4のとおりで、バイブレータに取り付けた試料容器は内径 6 cm のアクリル樹脂円筒で内部に電極が取り付けられている。バイブレータの振動数は 60 Hz で、入力電圧を一定速度で変えて振動強度（振幅）を変える。振幅は試料容器の下部にある検出器で検出して記録計に入れ、試料層の電気抵抗の変化と対応できるようにした。粉体層の流動性は容器中に挿入した回転粘度計のトルクにより測定する。

バイブレータに加える電圧を変化させながら、振幅、試料層の電気抵抗および試料の流動性の変化過程をみると Fig. 5, 6 のようになる。すなわち、粉体層の電気抵抗は振幅の増加につれて Fig. 5 の曲線 ABCD のように変化する。加える電圧の変化速度が一定であれば増加、減少のどちらの過程でも一致しよい再現性を示している。最初、静止状態からしばらくの間は電気抵抗は変わらないが B 点から急に増加し、粉体層中の粒子が動きはじめ接触状態が変わってきたことを示すが粉体層の変化は肉眼的にはまだ認められない。さらに

Fig. 5. Change of electric resistance with amplitude of vibration., ○, ●: Amplitude increase, ●: Amplitude decrease.

Fig. 6. Relation between amplitude and fluidity of powder beds.

Fig. 7. Relation between amplitude and electric resistance of powder beds.

振幅が増加していくとC点から抵抗変化が少なくなり、この配が小さくなる。この経過はFig. 7のように試料の粒度に関係なくすべて同じ傾向を示すが、電気抵抗の変化量は粒度が大きいほど大きく、これらの曲線のBC部のこの配は粒子の平均重量とほぼ対応するようである。

粉体層中に挿入した回転粘度計のトルクは振動が強くなるにつれて減少する。ここでは測定されたトルクの逆数 $(\text{g} \cdot \text{cm})^{-1}$ を試料粉体の流動度と定義し、その振幅による変化をみるとFig. 6のように電気抵抗の場合と同様の傾向を示す。

粉体層の電気抵抗も流動性とともに構成粒子の接触状態に関係するからその振幅による変化は粒子の同じ挙動にもとづくものであろう。Fig. 6, 7のCDの領域における電気抵抗 R_x の変化と、対応する流動度 ϕ の間には各試料についてFig. 8のような関係があり、(2)式が成立する。

$$\phi = a \exp\left(-b \frac{R_0}{R_x}\right) \quad (2)$$

ここで R_0 はこの実験における試料の最も密な充てん状態A点における抵抗値である。粉体充てん層の電気抵抗の解釈は簡単ではないが、粒子相互の接触数と接触強度が関係するから粒子間の相互作用の程度に比

Fig. 8. Relation between R_0/R_x and fluidity.

例していると考えてよからう。したがって R_0/R_x は振幅の変化とともに粒子間相互作用の程度の変化であり、静止した最も安定な充てん状態の時に1、完全に粒子が分散した不連続状態では R_x を無限大と考えてよいから0となるはずである。そして粒子が相互に無接触であるとするならばそのときの流動度 ϕ は試料に関係なく装置の機械的な摩擦などによってきまる定数 a となるであろう。Fig. 8から得られた定数 a , b はTable IIのとおりで、 a は試料に関係なくほぼ一定でありこのことと矛盾しない。また、Fig. 5に示したようにC点付近で振動強度が重力加速度と対応するよ

Table II. Values of constant a , b .

Sample	a	b
Gr-90	13.5	5.13
Gr-130	10.0	3.03
Gr-180	12.0	2.63
Gr-230	12.0	2.78
Gr-280	11.0	1.45
Gr-S	12.0	0.43

うになるから、CD領域では粒子の運動はきわめて自由でその平均的な接触構造は粒子相互の衝突数に支配されると考えられる。したがってこの状態で粉体の流動度は粒子が衝突するまでに動く距離や粒子の大きさに関係し、振動層中の空きき体積が増すほど大きくなる。粒子の接触構造の変わり方に対応する流動度変化をあらわす定数 b が粒度および粒子形状に対応していることはTable IIのとおりである。このように考えると(2)式が熔融したガラス状物質の粘度と構成分子の自由体積の関係を示すDoolittleの粘度式と同じ形であることは興味がある。

振幅が小さく加速度が $1g$ 以下の BC の領域では、粒子が重力によって相互に接触しながら振動しているであろう。振幅が減少していく場合にはこのままでより安定な充てん構造に移っていくから接触点数の増加と接触圧力の増大が電気抵抗を減少させ同時に流動性を低下させる。この過程では粒子が大きいほど粒子間の相互作用力は相対的に小さいから安定構造を形成しやすく、BC 部の傾きが粒子重量と関係することになるであろう。この過程で、振幅の減少速度が大きく充てん速度が速いと粒子が相互に干渉して安定な位置がとれず、部分的に架橋構造を形成した空けきの大きい準安定構造となる。これは Fig. 9 のように振幅減少速度を変えて電気抵抗変化を測定すればわかる。したがって強く振動させている粉体層を急に静止させると Fig. 9 の破線で示したように安定な密充てん構造とならないから振動充てんによるかさ密度測定器では注意を要する。

Fig. 9. Influence of decrease rate of amplitude for amplitude-resistance curve.

以上のように、振動粉体層の流動度は粒子の充てん構造に関する量（電気抵抗変化として）と粒子物性に関する定数 b 、および装置定数により与えられるから、適当な振動条件を定めて測定すれば粉体の比流動度を得ることができる。

なお、振動を加えたとき粉体層の動構造が均一と見なせるかを確かめるために Fig. 10 (a) のような容器を用いて黒鉛粉体の電気抵抗 R の高さ h に対する変化をいろいろの条件で測定した。結果は Fig. 10 (b) に例示したように、静止した容器に注入したときは層の上部と底部は中央部より空けきが大きく、この傾向は粉体層上部に圧力を加えて圧密しても残っている。しかし、注入後、振動を与えると上部はかなり充てん構造が粗であるが全体のほぼ $\frac{4}{5}$ 程は大体均一な構造と見なしてもよいようである。したがって回転粘度計の円筒はな

Fig. 10. (a) Apparatus. (b) Change of electric resistance with height of powder bed.

るべく粉体層中に深く挿入する方がよい。

4 流動粉体層における粒子物性と分離、偏析

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えて粒子の挙動を運動論的に解析する試みは幾つか行なわれているが、粒子間、とくに異種粒子間の相互作用を考慮している例はない。前述のように流動粉体中の粒子は当然粒子間相互作用の影響を受けており、粉体の混合、偏析、分離なども粒子特性との関連を考えて論ずる必要がある。振動している粉体層に対する他の粉体の拡散は微視的にはポテンシャルによる粒子の移動現象であり、粒子間相互作用も当然関係しているはずである。そこで物性や粒度の異なる数種の粉体の組合せについて振動粉体層における粒子の拡散過程を測定した。

Fig. 11 に示したように、径 24 mm 、目開き $80\text{ }\mu$ の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プレートに取り付け一定振幅で振動させる。上のフルイ網上にフルイ目を充分に通れる大きさの微粉体を少量入れるとフルイ目および粗粉体層

Fig. 11. Apparatus for measurement of percolation of fine powder through packed bed.

を通過し、下のてんびんの受皿に落下する。通過重量は差動トランスで検出し記録する。測定中の振幅変化は2～3%程度である。

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. 12 のようになる。図中の数字は振幅 (mm) で、ある程度以下の振幅になると急に通過速度が遅くなる。

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。通過量～時間曲線のこう配が最大となる時間を微粉体試料の振動粉体に対する平均透過時間 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. 13 のようになり(3)式が成立する。

$$\frac{1}{t_R} = K \cdot e^{\frac{\alpha}{2} M v^2} \quad (3)$$

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。

Fig. 12. Percolation curves of $\text{CaCO}_3\text{-SZ}$ through a packed bed of GB703. Number along the lines are amplitude (mm).

Fig. 13. Relation between $1/2 Mv^2$ and percolation velocity of various powder through a packed bed of GB703.

Fig. 14. Relation between D_s/D_L and α .

Fig. 13 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。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が関係するはずであるが、GB703 に対する種々の粒度の微粉体の α と D_s/D_L の関係は Fig. 14 のように相関性が認められる。 D_s 、 D_L はそれぞれ微粉体および粗粉体の粒子径である。

粗粉体と微粉体の物質の相違もかなり影響する。たとえば、親水性表面をもつ $\text{CaCO}_3\text{-SZ}$ 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は Fig. 15 のようになる。表面が親水性の粗粉体 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、疎水性表面の黒鉛層では逆に通過しにくくなり粒子間相互作用が増したことを示している。このような結果から、微粒子の拡散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いことがわかる。

Fig. 15. Influence of surface treatment of percolating particles for percolating property.

以上のような振動している粗粉体層に対する微粒子の通過性——拡散性に対して、(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。この実験では粗粒子は十分に大きいので相互の凝集性を無視したが、一般には当然考慮に入れるべきである。

通過量～時間曲線の初期の急激な増加部分では通過速度と振動強度の間に(3)式が成立し、その配 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相互作用せずに間げきを通過する微粒子によることを示している。この場合にも完全な弾性衝突だけでなく粒子表面との付着や微粒子相互の凝集・分散の繰返しが通過に対する抗力として働いていることは試料の種類や表面処理の有無、湿度などが通過性に影響してい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周囲の粗粒子間げきに存在する微粒子量が多いほど増し、そして表面がひと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だろう。また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。したがって通過量～時間曲線後期の通過速度の遅い領域は粗粒子表面との付着、脱離を繰り返しつつ通過する粒子群によるものと考えられる。この領域の粉体量を Fig. 16 のようにして定めその割合を R として、振動強度による R の変化を各試料について測定すると Fig. 17 のようになる。各試料とも振動強度が減少すると急に 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に等しいはずである。

Fig. 16. Determination of residual value R .

Fig. 17. Relation between $1/2 Mv^2$ and $R\%$ of various powder through a packed bed of GB 703.

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

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}	—

Fig. 17 の R の急増点の振動強度から求めたガラス球および石灰石粗粒子に対する各試料の付着力を Table III に示した。同種の粉体では付着力は粒度の関数のようである。

このように試料によって通過特性が変わることが偏析であるが、これによって粒子特性の異なる2種以上の混合粉体の分離ができるはずである。Fig. 18は α - Al_2O_3 (角ばった粒子)とデンプン (丸み状粒子)の等量混合物をGB層中を通し、一定時間ごとに採取した通過粉体の顕微鏡写真で粒子の形状が違うからその割合が変化する様子がよくわかる。各時間ごとに採取した通過粉体の混合比の時間的変化は Fig. 19 のようになり、明らかに分離が生じている。この実験の場合、振動層厚さは2cmであるが、これを何段か重ねると一層よく分離されるであろう。また、この方法は粉体材料の偏析のしやすさを判定する手段になる。

1. 100 sec., 2. 180 sec., 3. 240 sec., 4. 360 sec.

Fig. 18. Change of mixture ratio of WA-800/STARCH system with the percolation time. (blocky: WA, round shape: STARCH).

Fig. 19. Segregation of WA-800/STARCH system after the percolation through a packed bed of GB703.

5 振動容器内の粒子循環流れと微粉体の挙動

これまでは振動容器内で粉体粒子は一樣に振動していると仮定している。しかし、実際には振動層内の粒子は決してアランダムな運動をしているのではなく容器形状によっていろいろの循環流れを生じている。¹¹⁾ 容器形状を適当に選ぶと振動によって規則的な粒子循環流れが生じるからその中での微粉体の挙動と粉体物性の¹²⁾ 関連をしらべてみた。

Fig. 20 のような逆円錐容器の2次元モデル中に粉体(この場合 GB)を入れて振動させる。振幅がある程度大きくなると壁付近の粒子群が傾斜面に沿って上昇しはじめ、その空けきを埋めるために中央部の粒子群が垂直に下降して循環流れを生じる。Fig. 20 では着色粒子を加えてその様子がよくわかるようにしてある。粒子の拡散があるので次第に全体に着色粒子が広がるが、ちょうど目のようにいつまでも混りあわない部分ができている。この循環流れの速度は振幅が大きいほど大きく、傾斜面に沿った上昇速度の方が中央部の下降速度より大きい。着色粒子の移動速度をFig.

Fig. 20. Flow pattern of powder in conical container in vibrating state (two dimensional model).

Fig. 21. Relation between amplitude A and particle velocity in conical container.

Fig. 22. Schematic diagram of container.

21のように容器の各処において測定し、その振幅との関係をしらべると振幅の逆数 $1/A$ と移動速度 v の間

に指数関数的関係が認められる。この循環粒子流に微粒子を拡散させて前述のような振動層中の通過速度の測定をおこなうために Fig. 11 の振動容器を Fig. 22 のような円すい形のフルイに変えて同様の実験をおこなった。

4 節の実験では上部フルイに一定量の微粉体を入れその全量が通過する過程を測定したが、この実験では上部フルイにつぎつぎと微粉体を追加して、定常状態での通過速度と振幅の関係を検討した。Fig. 23 は GB 705 層に対するデンプンの通過速度の振幅による変化を示し、(a) は重量増加、(b) は振幅である。領域 A は振幅 0.17 mm で通過速度 0.35 mg/sec. B では 0.22 mm で 1.67 mg/sec, C では 0.19 mm で 0.75 mg/sec である。図から明らかなように振幅変化に対する応答速度はきわめて速い。振幅を一定にしておけば通過速度の精度はかなり高く、たとえば 1 mg/sec 程度でかなり長時間の微量供給装置として利用できる。

Fig. 23. Relation between amplitude and percolation velocity of STARCH through a bed of GB706.

Fig. 24. Relation between amplitude and percolation velocity of Nylon through a bed of GB703.

しかし、微粉体と粗粉体の組合せによっては一定振幅でも通過速度は一定せず、振幅の変化にも対応しない。Fig. 24 はその例でナイロン粉末をガラス球層に通した場合である。しかし、ナイロン～黒鉛粉系ではかなり通過性がよくなり、ナイロン～ナイロン粗粒子系ではきわめてよい結果が得られる。これは疎水性表

Fig. 25. Flow pattern of CaCO_3 fine powder in Graphite coarse powder bed in vibrating state.

面粒子と親水性粒子のように表面特性の変った組合せでは粗粉体層への微粒子の拡散が悪く、微粉体の凝集を生じて流動が不規則になるため、この様子を二次元容器によって示すと、Fig. 25 のように循環流れが乱流となっている様子がよくわかる。この図は CaCO_3 と黒鉛粗粉体の系である。

流動が振幅の変化によく対応する種々の粉体系について振幅の逆数と通過速度の関係を片対数でプロットすると Fig. 26 のように直線となる。このことは、振動容器に供給された微粒子が粗粉体振動層中の循環流れによって振動層を通過し、下のメッシュから排出されることによると思われるが、粉体の組合せがこの現象に大きく影響することを考えると、Fig. 26 の関係には粒子特性の効果が含まれていることが期待される。そこで幾つかの系について粉体の組合せ、粒度、粒子表面特性などの影響をしらべた。

Fig. 26. Relation between amplitude of container and percolation velocity of various powder.

Fig. 27. Relation between amplitude of container and percolation velocity (number base) of various sized α -Alumina.

Fig. 27 は種々の粒度の α - Al_2O_3 のガラス球および球形砲金粉体の振動層に対する通過速度と振幅の逆数 $1/A$ の関係で、通過速度は単位時間に通過した粒子数 n で示してある。振幅が大きいが方が n が大きくなるが、傾向として砲金粉の方が通過しやすく、通過粉体の粒度によって切片およびこう配が変わる。振幅があまり大きくない部分では粒度の小さい方が n が少なく通過しにくいのは粒子間凝集力の効果によるものと考えられる。しかし WA-100 が逆に n が少なくなるのは粗粒子循環流の粒子間げきに入るには粒度が大きすぎ

Fig. 28. Effect of particle size on intercept of $1/A$ - $\log n$ plots.

Fig. 29. Effect of surface treatment on the relation of $1/A$ and $\log n$.

るためであろう。振動強度が無限大、すなわち $1/A$ が 0 のときの通過速度 n_0 は Fig. 28 のように粒度が小さいほど大きい。粒度があまり大きいと逆になるのはやはり粗粒子との粒径比でできる限界径の存在を示している。

Fig. 29 は粒子の表面特性による通過特性の変化で、同じガラス球粒子で表面にシリコンコーティングをして疎水性にしたもの、銀コーティングを施したものと未処理の試料の比較である。ガラス粗粉体層に対しては表面処理の効果が大きく、表面が疎水化されたためにガラスの粒子間の付着・凝集力が減少し通過しやすい。したがって偏析しやすいことを示している。砲金粉体層については銀コーティング試料は無処理試料の通過性とあまり変わらず同種の表面の相互作用があることを示している。シリコン処理試料はやはり通過しやすい。また、どちらの粉体層においても切片は表面処理の有無に関係なく一致し、これが主として粒度の効果であることがわかる。しかしこう配は粒度と表面特性の両方に関係しているようである。

このような振動粉体層中の微粉体の通過速度に関する因子を整理すると、微粒子相互の凝集力 f_p と微粒子～粗粒子間の付着力、付着・凝集力に対する反力として作用する粒子の運動量に関する粒子重量 W_p がある。粗粒子間の凝集力は無視できるとする。このような粒子間相互作用は実験結果からわかるように粒子の表面の性質に依存しているし、またその作用機構は大気中では粒子表面吸着水膜の効果が主要なものと考えてよからう。そこで粒子表面特性の差を水に対するこれら粒子のぬれやすさ——接触角で示し、大小粒子の表面の水との接触角 θ_L , θ_S の比

$$R_\theta = \frac{\theta_S}{\theta_L} \quad (4)$$

によって表面特性の類似度をあらわすことにした。粒子の接触角は Bartell¹³⁾の方法によって測定した。 $R_\theta =$

1 のとき大小粒子の表面親水性が等しく、大きくなるほど表面の性質が異なり粒子間の相互作用力が小さくなる。また、微粒子間凝集力 f_p が大きいほど通過しにくく、粒子重量 W_p は粒子の運動量に関係して大きいほど通過しやすい。そこで、これらをあわせて仮りに $(f_p/W_p)/R_\theta$ を粒子間力の総合評価指数として用いる。 f_p は一面せん断試験により測定した。

$(f_p/W_p)/R_\theta$ と、振動強度～通過速度直線のこう配 P の関係は Fig. 30 のように相関性があり、粒子間親和性が大きいほど、すなわち R_θ が小さいほど P が大きく、また f_p が小さいほど通過性が悪くなる。したがって粒子表面の性質が違う粉体ほど混合粉体の場合、偏析が生じやすいことがよくあらわれている。

Fig. 30. Relation between $\log(f_p/W_p)/R_\theta$ and slope of $1/A-\log n$ plots.

6 あとがき

以上、著者らが続けている振動粉体における流動現象と粒子特性の関係をまとめて述べた。すでに述べたように振動層における諸現象がただちに粉体の流動性の指標として役立つわけではない。しかし、一定条件で“動いている”粉体中での粒子の挙動と、粒子の基礎的性質である粒度や粒子表面の性質などとの関係を

知ることは粉体の動特性の基礎的研究のアプローチの一つであるには違いない。ここに述べた時点では振動現象におけるきわめて重要な因子である振動数の効果に関しては全く研究していないが、今後、その点も確かめていきたいと思う。

(昭和48年10月5日 第11回粉体に関する討論会にて講演)

参考文献

- 1) 三輪茂雄, “粉粒体工学”, p.185 (1972) 朝倉書店
- 2) 古川淳二, 大前 協, 工化誌, **50**, 82 (1958); Hetzler, R., and M.C. Williams, I & EC, Fundamental, **8**, 668 (1969).
- 3) 森 芳郎, 神保元二, 山崎昌男, 化学工学, **28**, 204 (1964); 杉本益規, 遠藤一夫, 田中達夫, 化学工学, **30**, 427 (1966); 杉本益規, 第9回粉体に関する討論会講演要旨集, p.59 (1971); 杉本益規, 山本健市, 第10回粉体に関する討論会講演要旨集, p.19 (1972).
- 4) たとえば, McDougall, I. R., *et al.*, Trans. Inst. Chem. Eng., **47**, 73 (1969); Brown, R.L., and J.C. Richards, “Principles of Powder Mechanics”, p. 135 (1970) Pergamon Press
- 5) 西野 操, 荒川正文, 材料, **19**, 560 (1970); 荒川正文, 粉体工学研究会誌, **9**, 476 (1972).
- 6) 荒川正文, 西野 操, 水渡英二, 材料, **17**, 545 (1968).
- 7) Harwood, C.F., and N. Pilpel, Chem. Proc. Eng., **49**, 92 (1968).
- 8) 荒川正文, 西野 操, 材料, **20**, 776 (1971).
- 9) 荒川正文, 西野 操, 材料, **21**, 562 (1972).
- 10) 荒川正文, 西野 操, 日本化学会第26春季年会講演要旨集, I, p.562 (1972).
- 11) Takahashi, H., A. Suzuki, and T. Tanaka, Powder Tech., **2**, 65 (1968).
- 12) 荒川正文, 西野 操, 日本化学会第28春季年会講演要旨集, I, p.36 (1973).
- 13) Bartell, F.E., and H.J. Osterhof, Ind. Eng. Chem., **19**, 1277 (1927).