水平回転円筒内における異形状 2 成分混合粒子の流動と偏析[†]

古内正美^{*}・本多知生・針淵英男・後藤圭司

豊橋技術科学大学 エネルギー工学系^{††}

水平回転円筒内における球状と非球状の 2 成分混合粒子の流動と偏析現象に関する実験的検討を行い、粒子の混合比率、粒子層厚さおよび円筒回転速度と円筒横断面での流動状態、および円筒軸方向に形成される縞状の偏析構造の関係を考察した。低円筒回転速度域の流動状態と粒子混合比率の関係は、混合粒子のみかけ安息角を用いてほぼ説明できる。一方、高回転速度域では、円筒横断面での粒子の偏析が生じるため、安息角のみでは流動状態の差異が説明できない場合がある。円筒回転軸方向に生じる縞状の粒子偏析は、Catarecting 流動域で最も明瞭に現れ、軸方向の粒子混合比率の変動が最大となる。

緒 言

粒子混合や分離あるいは造粒等の粉粒体プロセスにおいて回転円筒は広く用いられている。回転円筒内の個々の粒子の挙動や粒子層の巨視的な流動状態に与える操作条件の影響を明らかにすることは、製品粒子の質の向上を考える上で重要であり、従来から多くの考察が加えられてきた。水平回転円筒^{1,2,8,9}、流通式回転円筒^{14,15}、円錐型回転円筒^{16,17}における異径粒子の混合粒の偏析現象に関しても、混合や分離の観点から種々の検討がなされている。粒子の形状差による偏析現象についての報告例は比較的少ないが、粒子径^{10,11}や密度の差による偏析¹⁴)に対応させて、Shinohara ら¹²)は粒子充填時の形状偏析現象を実験と理論の両面から検討している。一方、粉体製品の質的向上を目的として粒子の形状分離が研究され、回転円筒が用いられているが^{3,4,7})、回転円筒内の流動状態や偏析現象を粒子形状差のみに着目して考察した報告は見当たらない。

本研究では、大きさは同じで形状の異なる 2 種類の粒子について、各単一成分あるいは混合粒子を水平円筒に封入し、円筒回転速度、粒子投入量および粒子混合比率と粒子層の流動状態との関係を実験的に考察した。また、円筒回転軸方向に形成される縞状の形状偏析構造と円筒操作条件の関係についても同様の考察を加えた。

1. 実験装置と方法

内径 90 mm、長さ 110 mm のアルミニウム引抜き円筒

[†] 1992 年 3 月 30 日受理

^{††} 〒441 豊橋市天伯町字雲雀ヶ丘 1-1

^{*} 金沢大学工学部 土木建設工学科

に、形状の異なる 2 種類の粒子を一様に混合した試料を封入し、これを速度可変モーターで一定方向に定速回転させた。円筒両端に取り付けた透明アクリル板を通して、粒子の流動状態を観察した。試料粒子(サンプル数 200 個)の形状特性を Table 1 に示す。球状粒子としてガラスビーズ、非球状粒子として石英砂を用いた。これらの粒子は同一目開きのふるい(-710 μm +850 μm)を用いて 30 分間振動ふるい操作(振幅約 2 mm)を行って、いわゆる粒度をそろえたものである。大きさが異なる 2 種の球状粒子の混合体が立方充填される場合、粒子直径比が 0.732 を超える時には、大径粒子間の空隙に小径粒子が入り込む浸透偏析は生じないとされている⁶)。本実験の場合、非球状粒子の体積相当径と球状粒子の直径との比は約 0.9 であり、大きさの違いによる粒子の浸透偏析は生じない場合に相当する。また、密度差はほぼ無視できる。

粒子投入量と円筒回転速度に応じて、粒子層の流動状態は種々変化するが、本実験ではこれを Fig. 1 に示した 6 種類に分類する⁵)。すなわち、(a) 粒子層が一塊となって滑り運動をする Slipping 域、(b) 雪崩運動を繰り返す Slumping 域、(c) 粒子層が連続的に循環する Rolling 域、(d) 循環流動が激しくなって粒子層上面が盛り上がる Cascading 域、(e) 流動がさらに激しくなって上部の粒子が飛散する Catarecting 域、および(f) 遠心力で円筒内壁に粒子が押しつけられる Centrifuging 域の各流動状態である。粒子の流動状態をテレビカメラで撮影し、ビデオ画像上で粒子層の安息角および流動表面角度を測定した。(a)~(c)の流動状態では、層表面がほぼ平らなので、水平となす角度を粒子層表面角度とした。安息角 ψ は、Rolling 域での層表面と水平線のなす角とする。今回の実験では種々の回転数と無次元粒子層厚に対して

Table 1 Properties of test samples

particle	density [kg/m ³]	Heywood diameter [m]	Wadell diameter [m]	aspect ratio [-]
		$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	
glass beads	2477	0.829	0.857	1.06
quartz sand	2645	1.038	0.769	1.49

安息角は不変ではば一定であったので、算術平均値をとった。一方、層表面が平坦でない Cascading 域(d)では、粒子層表面の両端を結ぶ直線 A-B と水平とのなす角度 α を表面角度とした。また、A 点における層表面の接線 A-C と直線 A-B とのなす角度 λ を測定し、 $\lambda \geq 5^\circ$ の状態を Cascading 域とし、 $\lambda < 5^\circ$ の Rolling 域と区別した。Slipping 域と Rolling 域では円筒回転方向に粒子層が周期的に振動する場合があったので、その振動数を測定した。ガラスビーズと石英砂の個数混合比として、約 1:1、1:2 および各粒子の単一成分の合計 4 種類を設定した。側壁部では粒子層が最大約 10 mm 高く持ち上げられているので円筒中央部は観察できない。そのため、カメラの設置位置を若干粒子層を上から見おろす位置に設置し、円筒中央部の観察や測定を行った。なお、分度器を円筒内に挿入してあらかじめ測定角度の較正を行っている。また定常状態をうため、円筒回転開始の 15 分後に測定を行った。

円筒軸方向の粒子の偏析状態の観察には、内径 50 mm、長さ 290 mm の透明アクリル樹脂製の円筒を用いた。円筒の一端には粒子供給および採取用の円孔をあけた。なお、偏析状態の観察を容易にするために、石英砂をポスターカラーで黒色に着色した。あらかじめ様に混合した石英砂とガラスビーズの混合体を円筒内に挿入した後、円筒を 15 分間回転させ、円筒軸方向の偏析状態をビデオカメラで撮影した。ビデオ画像を画像解析装置上で 256 段階の濃淡分布に変換し、円筒軸方向の平均濃淡分布を求めた。画像階調と粒子混合比率の較正曲線を作成し、これを用いて画像濃淡分布を混合比率の分布に換算した。また、円筒一端の円孔から粒子を採取して、種々の軸方向位置における粒子混合比率を実測した。

2. 実験結果と考察

2.1 粒子層の流動状態

円筒回転速度 N および無次元粒子層厚 H と粒子層の流動状態の関係を Figs. 2~5 に示す。ただし、 H は投入時の粒子層の最大深さと円筒直径との比である。これらの流動状態の分類は単一成分に対する既報の結果⁵⁾と全体としては類似している。Rolling 域では層全体が振動

Fig. 1 Classification of transverse bed motions

Fig. 2 Bed motions of quartz sand. ■ = rolling with oscillation.

Fig. 3 Bed motions of binary mixture of quartz sand and glass beads at $\epsilon_s = 0.5$. ■ = rolling with oscillation.

する状態があったので、これを図中の■印で示した。非球状粒子(石英砂)の単一成分の場合、Fig. 2 に示したように $H > 0.13$ かつ $N > 20 \text{ rpm}$ の条件で Cascading 域が生じる。球状粒子(ガラスビーズ)の混合比率 ϵ_s が増加するにつれて、Cascading 域は図の右上、すなわち高回転速度で H が大きい側に移り、Fig. 5 に示したように球状粒子の単一成分では、本実験範囲では Cascading 域は存在しない。 ϵ_s が増加するにつれて、Slumping 域は

Fig. 4 Bed motions of binary mixture of quartz sand and glass beads at $\xi_s = 0.667$. ■=rolling with oscillation.

Fig. 5 Bed motions of glass beads. ■=rolling with oscillation.

図の左上, すなわち低回転速度で H が大きい側に移動する。 ξ_s が増えると動摩擦は小さくなり, 粉体層が流動し易くなるため, 滑らかな循環流れをする Rolling 域は, 一般に拡大する。 このため Slumping 域は図の左上に移動し, Cascading 域は図の右上に移動する。 Slipping 域は $\xi_s = 0$ の場合, $H < 0.11$ であれば N の広い範囲で存在するが, ξ_s が増加すると低回転速度側に移動し, H の範囲が増大する。 Fig. 6 は $H = 0.21$ における Slumping 域と Rolling 域の境界回転速度 N_{S-R} および Rolling 域と Cascading 域の境界回転速度 N_{R-C} と ξ_s の関係である。 N_{S-R} と ξ_s の関係はほぼ直線的で, 安息角 ψ と ξ_s の関係とはほぼ比例している。 一方, N_{R-C} は ξ_s が大きくなると急増し, $\xi_s = 1$ では粒子が遠心力で円筒壁に固着する限界回転速度 $N_c (=141 \text{ rpm})$ に近い値をとると考えられる。 Figs. 2~5 の左端に示した短い鎖線は Slumping と Slipping 域の境界を与える臨界粒子層厚 H_c の計算値である。 これは粒子層の静的な力学バランスを与える次の ϵ から求められる¹⁸⁾。

$$\begin{aligned} & \cos^4 \psi \cdot A^2 \sec^2 \phi_r - \cos^2 \psi (A^2 \sec^2 \phi_r \\ & - 2AC \tan^2 \phi_r) + \tan^2 \phi_r (A/2 - C)^2 = 0 \quad (1) \\ & A = 2/3 \cdot \sin^3 \epsilon, \quad B = \epsilon - \sin \epsilon \cdot \cos \epsilon, \end{aligned}$$

Fig. 6 Critical rotational speeds in relation to ξ_s : N_{S-R} , between slumping and rolling regions; N_{R-C} , between rolling and cascading regions; ψ =angle of repose; ϕ_r =angle of internal friction

Fig. 7 Inclination angle α of bed surface in relation to N

$$C = \sin \epsilon - \epsilon \cos \epsilon \quad (2)$$

ここで, Fig. 1(c)で示した Rolling 域の粒子層の広がり角 2ϵ と安息角 ψ を種々の粒子ホールドアップと回転数で測定し, その平均値を用いて Eqs. (1) と (2) から摩擦角 ϕ_r を定めた。 したがって, ψ の測定値から Eq. (1) によって ϵ が求められ, その結果 H_c が計算できる。 円筒回転速度 N が小さく, ほぼ静的運動とみなせる領域では, Eq. (1) による H_c の計算値と実験値は良く一致している。 なお, ψ と ϕ_r の値の一例を Fig. 6 に示した。

Fig. 7(a) は粒子層厚が比較的小さい場合 ($H = 0.13$) の円筒回転速度 N と粒子層表面角度 α の関係で, 球状粒子の混合比率 ξ_s をパラメータとしている。 ただし, 粒子層が一塊となって円筒回転方向に振動する場合は α の最大値と最小値を同時に示してある。 $N < 5 \text{ rpm}$ の低回転速度域では, 粒子層の振動も小さく, α の値は ξ_s にほぼ比例して減少するが, $N > 10 \text{ rpm}$ の領域では, 非球状粒子

の単一成分の α は N の増加とともに急増する。これに対し、Fig. 7(b)に示すように、粒子層が十分厚い場合($H=0.28$)、 α の値は円筒回転速度にあまり影響されない。Fig. 1(d)で定義したCascading現象の強度は角度 λ の大小で表されると考えられる。この角度 λ と球状粒子の混合比率 ξ_s の関係をFig. 8に示した。 $\xi_s=0.5$ の付近に λ の最大値が存在するが、この傾向は粒子層が厚いほど顕著である。 $\xi_s=0.5$ の条件では、粒子層中心部への球状粒子の偏析が認められた。異径粒子混合粒では、 $\xi_s=0.5$ に対応する混合比が1:1付近で大径粒子の隙間に小径粒子がちょうど埋まってかさ密度が最大になると同時に、回転円筒内の粒子混合度が最低となる例が報告されている⁸⁾。同じ大きさで形状が異なる本実験の場合、Fig. 8に示したように、かさ密度は ξ_s にほぼ比例している。偏析はないと一見考えられるが、Cascading流動域では、激しい攪拌作用によって球状粒子が非球状粒子の空隙を通して層中心部に浸透偏析している。Sugimotoら¹⁶⁾は異形状粒子混合粒のCascading流動域では円筒断面方向の偏析は少ないと報告しているが、用いた非球状粒子の密度が球状粒子の約2.3倍であったことから、球状粒子の断面深さ方向の浸透偏析が密度差によって阻止されたためと推察される。

Slumping域では、円筒の回転によって粒子層が持ち上がった後、その上層部が崩落する一連の周期運動を繰り返す。また、Slipping域でも、粒子層は一定角度で保持されて滑るのではなく、層全体が一塊となって円筒回転方向に振動する場合がある。これらの振動の周波数と円筒回転速度 N の関係を示したのがFigs. 9と10で、それぞれSlippingおよびSlumping運動の場合である。Slipping周波数は N の増加に対応してほぼ直線的に増加した後、固着限界回転速度 $N_c(=141\text{rpm})$ に漸近する。この関係は粒子層厚さ H にあまり影響されない。また、球状粒子の混合比率 ξ_s が大きいほど振動周波数が幾分か高くなっているが、その変化の大きさは H の差によるデータのばらつきと同程度である。Fig. 10からわかるように、Slumping周波数域は N とほぼ直線関係にあり、粒子層厚さの影響はほとんど見られない。この結果はHeneinら⁵⁾の結果と一致している。また、 ξ_s が大きいほど、この直線は高周波数側へ平行移動している。Slumping運動が生じる比較的低い円筒回転速度域($N < 5\text{rpm}$)では、前述したように、粒子層の流動状態は安息角によって定まると考えられる。

2.2 円筒軸方向の粒子形状偏析

操作条件を適当に選定すると、粒子の形状差に基づく偏析によって粒子層の縞状構造が円筒軸方向に生じた。粒子径が異なる2成分混合粒子の場合にも同様の縞状構

Fig. 8 Angle λ plotted against mixture ratio ξ_s of spherical particles

Fig. 9 Relation between slipping frequency and N

Fig. 10 Relation between slumping frequency and N

造が形成されることは良く知られている。すなわち、円筒端壁から少し内側の部分で粒子層の周方向最大流速と最大速度勾配が発生することが偏析のきっかけとなり、各粒子の隙間への浸透性と流動性の差および混合比率等が縞状構造の形成を左右するとされている^{2,8,9)}。

円筒の一端からの距離を全長で割ることによって無次元化した距離 L と球状粒子の局所個数混合比率 ξ_{sl} の関係をFigs. 11(a)と(b)に示した。それぞれ、円筒回転速度 $N=0\text{rpm}$ の初期静止状態と $N=60\text{rpm}$ の場合である。図中には、ビデオ画像の濃淡分布を検量線によって ξ_{sl} に換算したものを実線で示した。円筒静止状態(a)では粒子画像の濃淡に対応した細かな変動が見られるが、円筒軸方向に ξ_{sl} はほぼ一定で、一様混合状態とみなせる。一方、 $N=60\text{rpm}$ では、 ξ_{sl} に大きな変動が生じている。

Fig. 11 Distribution of ξ_{SI} in axial direction (a): initial state; (b): $N=60$ rpm

いずれの場合も、画像解析と粒子採取から求められた ξ_{SI} はほぼ一致している。 ξ_{SI} の変動の振幅を $A = [\xi_{SI} \text{ の変動の標準偏差 }]/[\text{平均混合比率 } \xi_s]$ で表し、円筒回転開始後の A の経時変化を Fig. 12 に示した。これより、流動開始約10分後には定常状態になることがわかる。

$\xi_s = 0.5$ における局所粒子混合比率の円筒軸方向の変動の振幅 A と変動回数 F^* (A^* , F^*) で表示) と H および N の関係を Fig. 13 に示した。ただし図中の $A^* = [10A] + 1$ で「」は整数部を意味する。また、 F^* の値は Fig. 11 (b) の斜線部で示した凹凸の数で、周波数 $F = F^*/2$ は必ずしも整数とはなっていない。また、各条件において円筒断面方向の偏析の有無も観察し、断面方向または軸方向の偏析が生じる領域の境界の概略を破線で示した。なお、図中には、粒子層の流動状態も同時に示した。 A の値は H が比較的小さい Cataracting 域や Rolling 域で最大になることがわかる。 H が大きく N が小さい Rolling 流動域の広い領域で、断面方向の偏析が生じている。このような操作条件による偏析状態の変化は次のように説明できると考えられる。今、Fig. 13 において $H=0.22$ として N を次第に大きくすると、Slumping 域や Rolling 域では粒子層の流動が穏やかであり、浸透偏析の駆動力が弱いため円筒断面方向の偏析は小さいが、Cascading 域に入り流動が激しくなると、球状粒子が非球状粒子の間隙を浸透して層断面中心部に偏析するようになる。異形状粒子の混合粒が流動する場合、球状に近い粒子ほど流動性が良く、粒子間隙を移動し易いので、流動状態にある非球状粒子層中を球状粒子がみかけ上浸透すると考えられる。したがって、循環流動状態にある粒子層の斜面を流下する球状粒子は、重力的作用によって、より下層の空隙へ浸透しようとする。一方、粒子層は円筒壁に近い部分ほど密な充填状態にあり、球状粒子は浸透できない。この結果、粒子層の中心部への球状粒子の偏析が

Fig. 12 Time change of normalized amplitude A of axial variation in ξ_{SI}

Fig. 13 Amplitude A and frequency F of axial variation in ξ_{SI} denoted by (A^* , F^*), where $A^* = [10A] + 1$, 「」 expresses integer and $F^* = 2F$

生じると考えられる。さらに N が大きい Cascading から Cataracting 域の範囲では、流動による軸方向の混合効果が断面横方向の浸透効果を上回るようになると考えられる。水平回転円筒内で持ち上げられる粒子層の流下速度は、円筒側壁の近傍で急激に増加したのち最大値を取り、軸方向内側に向かうにしたがって次第に一定値に近づく分布をもつ²⁾。このような流下速度の円筒軸方向の変化によって粒子層にせん断力が作用し、これが駆動力となって、速度の小さい粒子がより高い速度をもつ粒子流れ中の空隙にトラップされる。この結果、巨視的スケールでの軸方向の粒子混合が行われる。本実験のような異形状粒子の混合粒の場合、流下速度が最大で空隙も多い側壁の内側約10mmの部分(1観測結果)に、流動性と浸透性の高い球状粒子がより多く集まる。その円筒中央部側に球状粒子が少なくなり、より高く持ち上げられるようになった非球状粒子層が出現し、偏析構造が形成される。この現象が円筒中央部側へ繰り返し現れ、縞状構造になると考えられる。なお、1つの観測結果では非球状部の持ち上がり高さは球状部より約5mm高くなっていた。さらに N が増した Centrifuging 域では、粒子層が円筒内壁に押しつけられて軸方向の粒子流動が制限されるため、偏析が生じにくくなる。また、回転数 N が大きくなると一般に軸方向の粒子の混合作用も大きくなるため、 N の増加とともに縞の変動回数は小さくなって

Fig.14 Amplitude A and frequency F of axial variation in ξ_{sl} denoted by (A^*, F^*) , where $A^* = [10A] + 1$, $[]$ expresses integer and $F^* = 2F$

いる。 $\xi_s = 0.667$ における同様な実験結果を Fig. 14 に示した。 $\xi_s = 0.5$ の場合と比較すると、ガラスビーズ帯の幅が広がって縞の本数が減少し、 A の最大値が大きくなる。

結 言

水平回転円筒内における異形状 2 成分混合粒子の流動と偏析に関する実験的検討を行った。円筒回転速度が低い場合、混合粒子の流動状態は対応する安息角を用いてほぼ説明できる。回転速度が速くなると円筒断面方向での粒子の偏析が生じ、遂には軸方向の偏析が生じて縞状となるため、混合粒子の流動状態は安息角のみでは十分に説明できなくなる。流動状態を Fig. 1 に示したように 6 種類に分類したが、Slipping および Slumping 流動域で現れる粒子層の振動の周波数は円筒回転速度の増加につれて高くなるが、粒子層の厚さにはほとんど影響されない。Slumping 周波数は球状粒子の混合比率にほぼ比例して増加する。円筒回転軸方向に生じる縞状の粒子偏析構造は Cataracting 流動域で最も明瞭に現れ、軸方向の粒子混合比率の変動が最大となる。

Nomenclature

- A = amplitude of axial variation in ξ_{sl}
defined by (standard deviation of $\xi_{sl}) / \xi_s$ [-]
- H = maximum thickness of particle bed
normalized by cylinder diameter [-]
- H_c = critical value of H at which particle bed changes its motion from slipping to slumping [-]

- L = distance from cylinder edge normalized by cylinder length [-]
- N = rotational speed of cylinder [rpm]
- N_c = critical value of N above which particle bed attaches to inside wall of cylinder [rpm]
- N_{S-R} = N at which particle bed changes its motion from slipping to rolling [rpm]
- N_{R-C} = N at which particle bed changes its motion from rolling to cascading [rpm]
- α = inclination angle of bed surface [deg]
- 2ϵ = angle subtending particle bed, see Fig. 1 [deg]
- λ = angle $\angle BAC$ defined in Fig. 1 [deg]
- ξ_s = mixture ratio of spherical particles on number basis [-]
- ξ_{sl} = local value of ξ_s [-]
- ϕ_r = angle of internal friction [deg]
- ψ = angle of repose [deg]

Literature cited

- 1) Coulson, J.M. and N.K. Maitra: *The Indst. Chem.*, Feb., 55 (1950)
- 2) Donald, M.B. and B. Roseman: *Brit. Chem. Engng.*, 7, 749 (1962)
- 3) Furuuchi, M., M. Nakagawa, M. Suzuki, H. Tsuyumine and K. Gotoh: *Powder Technol.*, 50, 137 (1987)
- 4) Furuuchi, M. and K. Gotoh: *ibid.*, 54, 31 (1988)
- 5) Henein, H., J.K. Brimacombe and A.P. Watkinson: *Metal. Trans. B*, 14B, 191 (1983)
- 6) Hudson, D.R.: *J. Appl. Phys.*, 20, 154 (1949)
- 7) Nakagawa, M., M. Furuuchi, M. Yanahata, K. Gotoh and J.K. Beddow: *Powder Technol.*, 44, 195 (1985)
- 8) Oyama, Y.: *Riken Iho*, 18, 600 (1939)
- 9) Roseman, B. and M.B. Donald: *Brit. Chem. Engng.*, 7, 823 (1962)
- 10) Shinohara, K., K. Shoji and T. Tanaka: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 9, 174 (1970)
- 11) idem: *ibid.*, 11, 369 (1972)
- 12) Shinohara, K.: *ibid.*, 18, 223 (1979)
- 13) Shinohara, K. and S. Miyata: *ibid.*, 23, 423 (1984)
- 14) Sugimoto, M., K. Endoh and T. Tanaka: *Kagaku Kogaku*, 30, 427 (1966)
- 15) idem: *ibid.*, 31, 145 (1967)
- 16) Sugimoto, M. and K. Yamamoto: *Zairyou*, 26, 32 (1977)
- 17) idem: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 5, 335 (1979)
- 18) Uematsu, T. and K. Tsuchiya: *Kikai Gakkai Ronbunshu*, 17, 66 (1951)

Flow and Segregation of Binary Mixture of Particles of Different Shape in a Rotating Horizontal Cylinder

Masami Furuuchi*, Tomoo Honda, Hideo Harifuchi
and Keishi Gotoh

Dept. of Energy Eng., Toyohashi Univ. of Tech., Toyohashi 441

Key Words : Particle Flow, Rotating Cylinder, Particle Shape, Binary Mixture, Segregation

The transverse bed motion of a binary mixture of spherical and non-spherical particles in a rotating horizontal cylinder was experimentally investigated in relation to the rotational speed N of the cylinder, the bed height and the mixture ratio of the particles. Particle segregation due to shape difference was also examined.

At lower N , bed motions categorized as slipping and slumping occurred and were explained in terms of the angle of repose of the mixtures. At higher N , the cascading and cataracting motions occurred. They could not be explained by the angle of repose alone because of the shape segregation of particles. In the cascading and cataracting flow regions, alternating stripes of particle layers arose along the cylinder axis. The variation in the local mixture ratio became pronounced in the cataracting region.

* Kanazawa Univ.