転動造粒の速度論的取扱

Kinetic Approach to Granulation Mechanism

大内山 紀 男* 田 中 達 夫**
Norio Ouchiyaama Tatsuo Tanaka

1. はじめに

転動造粒の主要な目的のひとつは、ある一定サイズのペレットをつくることであり、現実には、パン型造粒機やドラム型造粒機が使用されている。しかしながら、それらの設計や操作に当っては、過去の経験や熟練者のミウでミに依存しているのが実情のようである。

他方、転動造粒に関する基礎的研究は、先駆的な Newitt らの研究¹⁾ (1958年)以来、現在まで続けられ、そのサイズ変化の機構も次第に明確にされてきている²⁾。また、最近では、本格的な速度論的取扱も行なわれている³⁾が、未だ、装置設計に関連付けられるまでには至っていない。

筆者らは、すでに、転動造粒のサイズ変化に関する速度式を導いた^{4,5)}。この報告では、筆者らの速度式を簡単に説明した後、最新の数値解析結果の例を示しながらサイズの時間的変化が理論的に導かれ得ることを示すとともに、成長機構や装置設計との関連について述べる。

2. 速度式

実際のパン型およびドラム型造粒機内の運動を観察するに、大部分のボールは、たがいに隣接し相互に力をおよぼし合いながら、上昇(一定角速度)、下降運動を繰返している。したがって、そのサイズ変化過程に関しては、「各接触点(あるいはペア, pair)に働く力とボールの物性に依存しながら、あるペアは合体し、他のそれは合体しない」という見方が成り立つだろう。

他方、このような過程を個数バランスをとることにより定式化するには、種々のサイズ間のペア数や、力の作用と合体してゆく型などについて明確にする必要がある。そこで、簡単化のため、次の三つの仮定を置く。①

ボールは、空間的に、ランダムに配置されている。②合体は、「2球間に働く力」と、これによる「2球の合体」を基本とする。③合体のしやすさ・しにくさは、2球間に力が働くことに確率で与えられる。

そうすると、粒度分布に関する速度式がえられる。まず、単位時間内に力を受けるペア数を求める。

全ボール数を $N(t)$ 、粒度分布(ひん度)関数を $f(D, t)$ と書く。今、単純に考えて、サイズ D のボール1個のまわりに、 C 個配位しているとする。そうすると、ランダム配位を仮定しているので、サイズ D, d 間のペア数は、確率的に、 $C[N(t)f(d, t)dd/N(t)]N(t)f(D, t)dD$ 、と与えられる。 D と d を入れ換えても、 D, d 間のペア数は同じであるべきことから、 C は D, d に関して、ある平均の配位数を示している。簡単のため、 $C = C'(D+d)^2$ と置く。ここで、 C' はサイズに無関係な定数とする。2球間に働く力のひん度を q とすると、結局、単位時間当り、力を受ける、サイズ D, d 間のペア数は、次式で与えられる。

$$qC'(D+d)^2N(t)f(d, t)ddf(D, t)dD \dots\dots(1)$$

次に、サイズ D, d なる2球間の合体の確率を求める。この確率は、Fig. 1 に示すように、連続した2種の力——軸方向圧縮力 Q と、それに引き続く一対の分離力 F_d, F_p (方向は Fig. 1 の通り)——の組合せでモデル化される(ひん度 q に関連した「2球間に働く力」というのは、この2種の力の組合せである)。すなわち、まず、接触2球間に圧縮力が作用する。この結果、2球間には一定の接触面積が生じ凝集力が発生する。次に、一対の分離力が作用し、その結果、接触域には曲げモーメントが発生する。この曲げモーメントによる引張応力が引張強度より小さい場合には2球は合体し、逆の場合には合体しない(原報⁵⁾で分離力を受ける回数 n を導入したのは誤り)。

接触面積 S については、弾・塑性体の理論を考慮して

昭和52年2月9日受理

* 九州工業技術試験所(〒841 鳥栖市宿町) TEL 09428 2-5161

** 北海道大学工学部(〒060 札幌市北区13条西8丁目)
TEL 011-711-2111

Fig. 1 合体の確率のモデル化

$$S = KQ^\zeta \{Dd/(D+d)\}^\eta \quad \dots\dots(2)$$

ここで、 K, ζ, η はサイズに無関係な定数とする。
接触域の曲げモーメント M と引張応力 σ_t との関係は

$$\sigma_t = M/SI = \frac{3}{4\pi^{3/2}} \frac{M}{S^{3/2}} \quad \dots\dots(3)$$

と簡単化される。ここで、接触面の応力状態は理想化された($\sigma_t \cong \sigma_c$: 圧縮応力)。

曲げモーメントと分離力との関係は、その力学系が釣り合っているか否かにより異なる。

釣り合い系に対しては、力の平衡より

$$M = F_D \frac{D}{2} \frac{2(Dd)^{1/2}}{D+d} = F_d \frac{d}{2} \frac{2(Dd)^{1/2}}{D+d} \quad \dots\dots(4)$$

不釣り合い系に対しては、運動方程式を解く必要がある。若干の仮定のもとに、2球の回転に関する運動方程式を導びき、これを解くことにより、次式が得られる。

$$M = 2 \frac{(Dd)^{3/2}}{D+d} \frac{F_d D^4 + F_D d^4}{D^5 + d^5} \quad \dots\dots(5)$$

F_d や F_D のサイズ依存性に於いて、(4)、(5)式より、モーメントと分離力との間には、いくつかの関係式が得られる。簡単のため、分離力を物体力(ボールの体積に比例する)で与え、圧縮力 Q をサイズに無関係な一様分布と仮定すると、結局、(2)~(5)式より、サイズ D, d 間の合体の確率、 $P(D, d)$ が求められる。

Fig. 2 合体の確率
($\zeta=1, \eta=0$ の場合)

$$P(D, d) = P(\sigma_t < \sigma_{st}) \\ = \lambda \left[1 - \left\{ \frac{(Dd)^{\gamma-3\eta/2}}{\left(\frac{D+d}{2}\right)^{2\gamma-4-3\eta/2}} \frac{1}{\delta^{4-3\eta/2}} \right\}^{2/3\zeta} \right] \quad \dots\dots(6)$$

ここで、 γ はモデルに依存するパラメータ($\gamma \cong 0 \sim 9$)であり、 λ は Q の最大値 Q_M 、最小値 Q_m を用いて、 $\lambda = Q_M/(Q_M - Q_m)$ と与えられる。また、 δ は次式で与えられる。

$$\delta = (AQ_M^3 \zeta^{3/2} K^{3/2} \sigma_{st})^{1/(4-3\eta/2)} \quad \dots\dots(7)$$

ここで、 A は計算の過程で生じてくる定数をまとめたものである。 δ の物理的意味は、等大2球間の合体の確率が零となるサイズである。**Fig.2**は、 $u=D/\delta$ 、 $v=d/\delta$ 、と置いて、(6)式の関係を示した図である。

これまで述べてきた2つの関係式——(1)式と(6)式——を用いれば、回分式造粒過程に関する速度式をうることができる。すなわち、サイズフラクション、 $D \sim D+dD$ 、について、個数の釣合い(単位時間当り)を考えることにより、次式がえられる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [N(t)f(D,t)] = & - \int_0^\infty qc'(D+d)^2 N(t)f(D,t) \\ & f(d,t)P(D,d)dd + \frac{1}{2} \int_0^D qc'(d+3\sqrt{D^3-d^3})^2 \\ & \left(\frac{D}{3\sqrt{D^3-d^3}}\right)^2 N(t)f(d,t)f(3\sqrt{D^3-d^3},t) \\ & \times P(d,3\sqrt{D^3-d^3}) dd \quad \dots\dots(8) \end{aligned}$$

ここで、 $P(D,d)$ は、(6)式で与えられる合体の確率である。(8)式の物理的意味は、両辺に dD を乗じると理解しやすい。すなわち、左辺は、サイズフラクション、 $D \sim D+dD$ 、の個数が増える速度である。右辺第一項は同サイズフラクションから出てゆく個数速度、右辺第二項は、同サイズフラクションには入ってくる個数速度である。

3. 最新の解析結果例と2, 3の考察

(8)式は、合体の確率に関する δ やパラメータ γ などと、初期粒度分布を与えることにより、計算機を用いて解くことができる。種々の条件下における(8)式の解析は目下、継続中であるが、**Fig. 3, 4**は、それらの一例である。前者は、積算粒度分布の時間的変化を、後者は、平均粒径のそれを示している。これらの結果は、転動造粒における粒度分布や平均粒径の時間的変化が速度式を用いることにより、理論的に、導びかれうることを示している。詳細な検討は別の機会にゆずるとしても、積算粒度分布曲線の傾斜の時間的変化が、相対的に、初期に小さく後期に鋭くなることや、平均粒径が飽和することなどは、過去の実験事実と対応しているようである^{2,6,7)}。ここでは、粒度分布の時間的変化が予測されうる可能性を示すにとどめ、以下では、速度式とボールの成長機構との対応や装置設計との関連について述べる。

実験によれば、ボールの成長機構は二つ——pair formation と snow balling——に大別される^{2,8,9)}。そして、前者による合体には限界サイズがあり、後者によ

Fig. 3 積算粒度分布の時間的変化

数値解の条件：初期粒度 0.4~0.6mm

(一様分布),
 $\delta=2\text{mm}$, $\lambda=1.0$, $\zeta=1.0$,
 $\eta=0.0$, $\gamma=9.0$

Fig. 4 平均粒径の時間的変化

数値解の条件： δ を除き、Fig. 3と同じ。

る成長は限りなく続くことが知られている。

筆者らの理論との対応でいえば、前者の事実は、等大2球間には合体の確率が零となるサイズ δ が存在するということに相当している。また、後者の事実は、(8)式において、十分小さい d が存在する限り、パラメータ γ などを適当にとれば、常に正なる(ひん度×確率)の値が存在し、結局、成長はいつまでも続くということに対応している。

次に、速度式と装置設計との関連について述べる。簡単な例として、製品の平均粒径 $\bar{D}_p$ と処理量 F を与えて、ドラム型造粒機(ピストン流れとする)のホールド

アップ W を求める。**Fig. 4** に例示された関係を用いれば、特定のフィードサイズ、 δ などに応じて、平均粒径が $\bar{D}_p$ になるまでの造粒時間が求められる。他方、ピストン流れの連続造粒においては、この時間は、滞留時間 τ として与えられる。結局、ホールドアップ W は、 $W = F\tau$ 、より決定される。これは、速度式から導びかれる結論である。製品サイズと処理量に関するかぎり、装置は上式で与えられるホールドアップを有することが必要不可欠であることを示している。

なお、現実の設計に当っては、スケールアップの効果

や運動の相似則、さらに、より具体的な直径や長さの決定には、移動速度の問題なども考慮されなければならない。

4. おわりに

転動造粒のサイズ変化に関する筆者らの速度式を簡単に説明した後、最新の解析結果例を示しながら、粒度分布の時間的变化が理論的に導びかれうることを示し、合せて、成長機構や装置設計との関連を述べた。

記 号

C	: 平均配位数	[—]	Q	: 軸方向圧縮力	[kg]
c_r	: κ に関する比例定数	[m ⁻²]	Q_M, Q_m	: κ の最大値, 最小値	[κ]
D, d	: ボールの直径	[m]	S	: 接触面積	[m ²]
$\bar{D}(t)$	: 時刻 t における平均粒径	[κ]	t	: 時間	[s]
F_d, F_D	: 一对の分離力	[kg]	u	: D/δ	[—]
$f(D, t)$	: 時刻 t における粒度分布関数	[m ⁻¹]	v	: d/δ	[κ]
K	: 接触面積に関する定数	[kg ^{-1/2} m ^{2-1/2}]	γ	: 合体の確率に関するパラメータ	[κ]
M	: 曲げモーメント	[kg m]	δ	: (7) 式で定義される限界サイズ	[m]
$N(t)$	: 時刻 t における全ボール数	[—]	ζ, η	: K を見よ	
$P(D, d)$	: D, d なるボール間の合体の確率	[—]	λ	: $Q_M/(Q_M - Q_m)$	[—]
q	: 「2球間に働く力」のひん度	[s ⁻¹]	σ_b, σ_{sl}	: 引張応力, 引張強度	[kgm ⁻²]

引 用 文 献

- 1) Newitt, D. M. and J. M. Conway-Jones : *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **36**, 422 (1958)
- 2) Linkson, P.B., et al. : *ibid.*, **51**, 251 (1973)
- 3) たとえば, Kapur, P.C. : *Chem. Eng. Sci.*, **27**, 1863 (1972)
- 4) Ouchiyaama, N. and T. Tanaka : *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, **13**, 383 (1974)
- 5) Ouchiyaama, N. and T. Tanaka : *ibid.*, **14**, 286 (1975)
- 6) Kapur, P. C. and D. W. Fuerstenau : *ibid.* **5**, 5 (1966)
- 7) Kapur, P.C. and D.W.Fuerstenau : *Trans. AIME*, **229**, 348 (1964)
- 8) Capes, C.E. and P. V. Danckwert : *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **43**, T116, (1965)
- 9) Capes, C.E. : *Ind. Eng. Chem., Process Des.Dev.*, **6**, 390 (1967)

Author's Abstract

Kinetic Approach to Granulation Mechanism

by

Norio OUCHIYAMA*, and Tatsuo TANAKA**

(* National Industrial Research Institute of Kyushu, Tosu
 **Dept. of Chem. Proc. Engng., Hokkaido University, Sapporo)

With a few numerical solutions of a kinetic equation, which is based on the population balance involving the coalescence probability first given in this paper, it has been shown that the granule size distribution can well be derived as a function of time.

It has also been stated, by giving an example of a drum pelletizer, that the kinetic equation should be used when the holdup be decided for design purpose.