研 究 報 告

放射性トレーサによる混合粉の粒度偏析の測定

Analysis of Particle-Size Segregation in Atomized Powder Mixtures by Radioactive Tracer Method

竹 内 久 祐*
Hisasuke Takeuchi

桜 井 直 行**
Naoyuki Sakurai

1. 緒 言

粒度偏析の現象は、アトマイズ金属粉とくにガス噴霧による球形粒子の場合にいちじるしい。これは、粒子の相対的運動における摩擦が小さくて、流動性がきわめてよいことが原因と考えられ、Fig. 1 (スケッチ) に示すように、落下した粉末内部に粒度のむらが発生しやすい。筆者らは、これまで混合方法の改善によって、かようなむらを解消する試みを行ってきた。

混合法の効果を比較するには、粒度分布を極力簡単な方法で測定する必要がある。市販の自動粒度分布測定器は $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ 程度の粉末に適し、アトマイズ粉のような数百 μm の粒径に対しては適当な計測器がない。フルイの使用も粉体局部 (少量) の分析には精度、労力の点で難がある。

そこで、筆者らは今回、放射性トレーサ法¹⁾に着目し、東京原子力産業研究所の施設を利用して、同所内で混合と試験を行なった。すなわち、焼結工具鋼の原料となるガスアトマイズ粉を試料とし、2つの混合器具の効果を、偏析度合に注目して測定し比較した。

Fig. 1 球状粉末の落下流動と偏析

2. 実験方法

2.1 試料粉末

日立金属 (株) で調製した高速度鋼ガスアトマイズ粉を使用した。その成分 (wt %) は次のとおりである。

Fe	Co	W	Mo	Cr	V	C
67.5	10	10	3.5	4	3.7	1.3

1 ロット (35 kg) の粉末を漏斗より落下、四分割、をくりかえし、1.8 kg の粉末試料を分けとった。これを母集団を代表するサンプルとみなした。そのフルイ分析結果は Table 1 のとおりである。粒子形状は球に近く、粉末冶金用としては粗粉に属し、80 mesh より粗い群と 100 mesh 以下の細粒群とより成る、2 peak 型の粉末であった。

この粉末からふるい分けした $-150 \text{ mesh} + 200 \text{ mesh}$ の分級物 (以後 150/200 mesh と記す) すなわち、粒径が $74 \mu\text{m}$ から $104 \mu\text{m}$ の間にある粒子……全体の 3.7 wt % にあたる……を放射化し、 ^{60}Co および ^{187}W などの同位元素を生成させた。それには東京原子力産業研究所の原子炉 (HTR: 日立訓練用原子炉) に装入し、熱中性子束密度 $\sim 7 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で約 10 分間照射し放射化した。

2.2 混合度測定法

放射化した特定粒度粉末と、それ以外の粒径範囲の試料粉とを Table 1 の重量比に混合する。その方法としては

A: ボールミル (直径 100 mm, 長さ 120 mm, ステンレス鋼製, 回転数 90 rpm)

B: スタティックミキサー²⁾ (Kenics 社製, 商品名 Static Mixer のうち、呼び径 $\frac{1}{2}$ インチ, 12 エレメントをガラス管に収めたもの)

を使用した。

混合 $\rightarrow \gamma$ 線測定試料 ($10 \sim 20 \text{ g}$ ずつ) 採取 $\rightarrow$ 計測 $\rightarrow$ 試料の廃棄, などの作業は放射線取扱法規に従い、すべて原子力産業研究所構内管理区域において行なわれ

昭和52年7月1日受理

* 日立金属 (株) 技術本部 (〒100 東京都千代田区丸の内 2-1-2)
TEL. 03-211-5311

** 動力炉核燃料開発事業団教賀建設事務所 (〒914 教賀市明神町 3)
TEL. 07702-6-1221

Table 1 供試高速度鋼ガスアトマイズ粉の粒度分布

フルイ区分 (mesh)	-14 +35	-35 +48	-48 +60	-60 +100	-100 +150	-150 +200	-200 +250	-250 +325	-325
重量比率 (%)	43.1	19.9	12.1	6.8	12.7	3.7	0.5	0.1	1.2

た。

つぎに測定原理を記す。

Table 2 は、高速度鋼を中性子照射したとき生成する、おもな放射性核種および生成量を示したものである。これから考えて、試験実施日（放射化後7日目を選んだ）の γ 線の放出率からいえば、 ^{187}W と ^{60}Co とが利用可能であるが、実験には半減期の長い ^{60}Co を利用することにした。これは、時間の経過に対する補正が不要で

Table 2 高速度鋼を中性子照射したときに生成する主な放射性核種とその特性

生成核種	半減期	生成量 ($\mu\text{Ci/g}$)		備 考
		照射終了時	7日後	
^{59}Fe	45d	0.05	0.04	
^{55}Fe	2.6y	0.01	0.01	
$^{60\text{m}}\text{Co}$	10m	150000.	<0.01	
^{60}Co	5.3y	1.0	1.8	$^{60\text{m}}\text{Co} \rightarrow ^{60}\text{Co}$
^{187}W	24h	290	2.3	
^{185}W	75d	0.26	0.24	
^{99}Mo	66h	0.88	0.13	
^{51}Cr	27.8d	1.0	0.84	
^{52}V	3.8m	31000.	<0.01	

照射条件（熱中性子束密度 $7 \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ，照射時間10m）

参考：

$$\text{計算式 生成量} = \frac{1}{3.7 \times 10^{10}} \times N \times f \times \sigma \left(1 - e^{-\frac{0.693}{T} \cdot t}\right) e^{-\frac{0.693}{T'} \cdot t'}$$

$$= \frac{N_A}{3.7 \times 10^{10}} \times \frac{W}{A_W} \cdot A \cdot f \cdot \sigma \left(1 - e^{-\frac{0.693}{T} \cdot t}\right) e^{-\frac{0.693}{T'} \cdot t'}$$

N_A ：アボガドロ数 N ：注目元素の原子数 W ：重さ
 A_W ：原子量 A ：天然存在比 f ：中性子束密度
 σ ：核反応断面積 T ：半減期 t ：照射時間
 t' ：照射終了後の経過時間

$$1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{decay/sec}$$

あり、かつ ^{60}Co で十分な感度を得られたからである。

混合効果を調べる実験は2回行なった。すなわち、150/200 mesh 粉を3.7%含んでいる混合物について、処理の手順を下記のようにした。

〔第1回〕 試料粉300g ずつ2組につき並行して実験した。

第1組 ボールミル(B.M.)混合。ボールは装入せず、粉末のみを1時間かくはんする。粉末を多数並べておいた試料皿（径20mm，容積2.5ml）の上に一気にあける。これよりアトランダムに12試料を採る。

第2組 スタティックミキサー（以下S.M.と略す）による混合。ボールミルに約50分間かけてからS.M.を通しつつ300gの全量を流出順に、12個の試料皿（前と同形）に採取する。

〔第2回〕 600gの混合物を用いシリーズに実験した。

まず、B.M.で1時間まぜたのち、漏斗を通して全粉末を盆上で列をなす試料皿の上に流出させ、16試料を採った。これについて γ 線量の測定を行なってから再び一緒にした粉末をボールミルにより15分間ほど回転を与えてから、S.M.を通した。S.M.においては流出順に番号をつけ、ほぼ等間隔に16個の試料粉を採った後、 γ 線量をカウントした。

したがって、測定結果は上述の順番通りに記すが、試料重量は、第1回が10~15g，第2回が約20gであり、測定前に各小数点以下2位まで秤量した。

各組とも、試料1個ずつプラスチック製容器に移し、3インチ井戸型NaI(Tl)シンチレーションカウンターおよび400チャンネル波高分析器を用いて ^{60}Co の1.17 MeV および1.33 MeVの2本の γ 線を100~200秒間積算した。

測定結果は各カウント値からバックグラウンドを差し引き、既知量の ^{60}Co を含む標準試料のカウントと比較して150/200mesh 粒度の粉粒の含有率を求めた。

3. 実験結果

3.1 第1回実験

Fig. 2 試料粉混合操作後におけるトレーサ粒子濃度の分析例 (第1回)

Fig. 2 に混合操作別の 150/200mesh 粒含量の変動状況を示す。B.M. 混合の場合、サンプル番号に意味はないが、S.M. 混合の場合は流出順である。仕込濃度は 3.7 % であるが実測値は平均 3.1~3.2 % となった。これは、測定の際 ^{60}Co の γ 線が 5mm 程度の厚さの粒状の鋼中を通過するので、これによる減衰が 10~15 % あるため、と考えられる。そこで、平均値が 3.7 % になるようデータを normalize して Fig. 2 に示してある。(第2回も同様)

このグラフから分かるように、150/200mesh 粉の含有率、とくに B.M. 混合粉のそれはいちじるしくばらついていて、最大値は最小値の約 8 倍もある。平均値に対しても $\frac{1}{2}$ ~3 倍と変動している。このことは、ボールミルより移した粉末の顕著な分離状態をながめれば容易に納得される。この程度の粒度の粉末であると粒度偏析は目視でも明りょうなのである。

一方、S.M. を通した粉末もまた、常識的な混合粉の値よりばらつきが大きい。Table 3 に 150/200mesh 粒の含有率の平均値および標準偏差を一括しておく。S.M.

Table 3 混合法別のトレーサ粒子の濃度の標準偏差

	第 1 回		第 2 回	
混 合 法	B.M.	S.M.	B.M.	S.M.
平 均 値 ($\bar{X}$)	3.70	3.70	3.70	3.70
標準偏差 (σ)	2.5	1.8*	3.1	2.0
試 料 数 (N)	12	12	16	16

*S.M.流出試料の後半部に関しては

$N=6$, $\sigma=0.5$ であり、そろっている。

の場合、B.M. にくらべれば σ が小さいとはいえ前半に流出した粉末は変動が大きく、後半部でそろった値となった。

この現象については、後章で述べるが、S.M. の欠点の一つとして、試料粉 (約 130 g) が空の S.M. 筒内に流れこむ間に偏析をおこしたと関連があるようであった。

3.2 第2回実験

S.M. の空間 (本器具では約 30ml) に対し試料の体積が小さすぎることに気づき、第2回は 600 g の粉末を用いた。前節のように、B.M. より取りだした粉末中の 150/200mesh 粒の含有率はいちじるしい変動があるものと考えなければならぬ。はたして、Fig. 3 に示すように、B.M. よりの粉体は極端な粒度偏析を示していた。つぎに、このような混合物を、漏斗を通して S.M. に流しこむのであるから、マクロ的な含有率の変動は容易に軽減できない、と思われる。結果は Fig. 3 に示すとおり S.M. 混合物においても大きく変動している。それも当然と考えられるが、それでも、B.M. の場合よりは平均化の傾向が見られた。(Table 3 参照)

結果論的にみれば、S.M. に供給する粉体はボールミル以外の混合手段を用いて粗混合をしておいた上で S.M. に流入させないと均斉性ある混合物が得られないことになる。S.M. 自体は筒の軸方向に対する平均化作用の乏しいものであるから、S.M. を使うにしても中間リザーバーを設けてくりかえし使う以外に方法が考えられない。

実験は、種々の都合によりここで打切った。

Fig. 3 試料粉混合操作後におけるトレーサ粒子濃度の分析例 (第2回)

Fig. 4 Static Mixer 内におけるガスアトマイズ鋼粉の状態

- (a) 粉末流入中（管中央部）
- (b) 管内に粉末が充満した時点（中央部）
- (c) 粉末の流出が始まってから、粉体が管長の $\frac{1}{2}$ ほど移動したとき
- (d) 管上端にあった粉粒が下端に達したところ。分布は均一

4. 考 察

以上の結果から、

1. ガスアトマイズ粉の偏析はいちじるしく、ボールミルは混合に関してはまったく無力である。

2. スタティックミキシング法は、若干改良の効果を示すが、ボールミル粉末の状態を直接引きついでのでは不満足だ、

ということがわかる。Fig. 2 および Fig. 3 の記録を端著として、S.M. の筒内の粒の動きを観察したところ、次の現象がわかった。Fig. 4 はその写真である。

(1) 粉末が S.M. 内の空所を満たし終わるまでは、流れは1本の滝のようなものであり、分割よりも斜面における分離の可能性が大きい（図4(a)）。

現に、本粉末では充満後、粗細粒それぞれの密集部が認められた（図4(b)）。

(2) S.M. の下端から粉末を徐々に排出させると、充満している粉粒は原理通りの分割を起こさざるを得なくなり、粗細粒がまじりはじまる（図4(c)）。

(3) 粉末の移動が進行し、上端にあった粒子群が10エレメント分ほど動いたあたりでは粒度むらは解消している（図4(d)）。一見、粗粒のみから成っているかのようにであるが、偏在が解消した状態では細粒はすべて粗粒の間にもぐりこみ、ガラス壁を通してみると粗粒のみが目につくのである。

(4) S.M. からの流出速度を速めると、筒内に長さ10

数mmにも達する扁平な空間が生じる。このほか、流出する粉末を受ける容器の形に注意しないと粒度むらがあらたに発生する機会が多い。

このような経験から、本混合器具の使い方にはなお工夫が必要であるが、本報では、粒度偏析がいかに発生しやすいか、を警告の意味で述べるとともに、粒度偏析を数字で表わす一手段を紹介するにとどめる。

なお、製造現場でのブレンディングの成否を確めるのに放射性物質を使用することは困難であろう。すなわち、本研究は、混合器の効果を判定するための手段である。また、1個の試料として10～20g必要なため、それよりも微少な部分の偏差を調べるには適当でない。

5. 結 言

粒度偏析の状態を定量的に示すために放射化分析を応用し、アトマイズ高速度鋼粉の混合法の比較と組み合わせ測定を行なった。特定粒径範囲の粒子を放射化して、 ^{60}Co の形でその含有率の変動を調べた結果、いちじるしい粒度むらの存在を立証することができた。

以上、粉末冶金製品の工程中無視できぬ問題点を指摘するにとどまったが、混合技術の進歩に期待するとともに、一般の化学分析と異なる放射性トレーサの活用の余地が今後もあると思われる。

本実験に協力された、東京原子力産業研究所（昭和50年当時）部長野中甲蔵博士、実験担当者中瀬恒雄氏に感謝の意を表する。

引用文献

- 1) Broda, E. and T. Schönfeld : The Technical Application of Radiography, vol. I, II (1966) Pergamon, Oxford. Mixing Handbook (1973)
(訳書) 大島, 山見 : スタティック・ミキシング
グ・ハンドブック (1973) 丸善
- 2) Chen, S. J., R. C. Devellian *et al* : Static

Authors' Abstract

Analysis of Particle-Size Segregation in Atomized Powder Mixtures by Radioactive Tracer Method

by

Hisasuke TAKEUCHI* and Naoyuki SAKURAI**

(* Hitachi Metals, Ltd.
**Power and Nuclear Fuel Development Corp.)

In order to study the technique of blending gas-atomized steel powders, being liable to size-segregation, the determination of particle size distribution was carried out by using a radioactive tracer. A fraction of 10% cobalt high speed steel powder was activated by neutron in the Hitachi Training Reactor, thus yielding Co-60 to be traced. The activated powder as the tracer was admixed to the remainder by two different mixers, i. e. a ball mill and a static mixer; the composition of the mixtures could be analysed radiometrically.

The static mixer proved to have better blending effect compared with the ball mill, irrespective of local segregation observed during handling of the static mixer.

List of Figures and Tables

- Fig. 1** Sketch of size-segregation of spherical particles after falling
- Fig. 2** An example of tracer powder distribution after mixing in different ways (1)
- Fig. 3** An example of tracer powder distribution after mixing in different ways (2)
- Fig. 4** Appearance of gas-atomized powder flowed into a glass-tube static mixer

- Table 1** Sieve analysis of gas-atomized high speed steel powder
- Table 2** Characteristics of main radioactive nuclides formed in high speed steel by neutron activation
- Table 3** Standard deviation of tracer particle contents, varying with the mixers