粒子群の循環流れと粉粒体の混合について*

On the Circulation of Particles and Mixing of Solids

沢 昌 恭**
Yasushi Sawahata

1. 緒 言

自己運動性をもたない粉粒体を混合して構成要素を均一な濃度組成の混合体とするためには、何らかの手段によって外部からエネルギーを供与し、粒子群に相互運動を発生させる必要がある。

回分式混合機を用いる混合においては、使用する混合機が回転容器形か固定容器形かの違いがあり、その構造にもとづく作動の複雑さがあるにせよ、回転機構を介して粒子群の流動状態が誘起されるかぎり、それによつて粒子群に与えられる運動には当然周期的変動がみられるであろう。まして、一般に利用されている構造の簡単な回転容器形混合機においては、回転する容器内での粒子群の周期的運動として、循環流れが存在すると考えられる。そして、粒子群の循環流れの存在は混合の進行、平衡混合状態をはじめとする混合状態の変化の過程ないしは装置のスケールアップ、操作法および構造の改良など、粒粉体の混合操作に対する手段と方途の確立に対し、これを無視することはできない。

混合容器内における粒子群の循環流動については、まず大山の一連の研究における水平円筒形混合機内の粒子の運動軌跡の力学的解析と実験的方法によるフローパターンの決定を挙げなければなるまい***。最適操作回転速度をはじめとする水平円筒形混合機に関する有益な指針が与えられてはいるが、粒子群の循環流れが混合の進行に対する寄与については必ずしも直接的な検討がなされているとはいえない。その後においては、粒子群の循環流れ、あるいはフローパターンに関する報告の例をほとんどみないが、最近、Carley-MacaulayとDonaldらは数種

の回転容器形混合機を用いる実験的研究を行ない、混合状態の時間的変化の過程から容器内における粒子群の軸方向および半径方向の混合を推考し、cross circulationの概念を導出した。しかし、これとても直接容器内に発生する粒子群の流動状態を観察し、混合の進行との関連性について解析したものではなかった¹⁾。このような観点から、現在もっとも広く用いられている回分式回転容器形混合機であるV形混合機を中心として、著者は粒子群の循環流れと混合の進行との関係を実験的に追求し、えられた知見について若干の報告を行なった。順を追って本稿に紹介し、討論の資として提供する。

2. 粒子群の循環流れについて

混合機の作動にともなう容器内に発生する粒子群の流動について、もっとも早く実験観測されたのは水平円筒形混合機である。その状態は、円筒の回転にともなう円運動を行なう粒子群の輸送領域(static mass)と、輸送領域を輸送されてきた粒子群が混乱流下する混合領域(mixing zone)とによって構成される循環流れとみることができる。

いま、円筒軸が回転軸に傾斜して取付けられた場合、すなわち傾斜円筒形混合機と同様の構成になった場合について容器内粒子群の流動状態を考えてみよう。この場合は円筒の回転にともなう水平円筒形容器内にみられると同じ粒子の循環流動と、円筒の交互傾斜による粒子の軸方向の往復運動とが同時に発生することによって、粒子は両運動の合成された結果として定まる径路を、容器の回転にしたがって周期的に移動するものと予想される。傾斜角を増大させた場合を想定すれば、これはV形混合機を構成する2箇の円筒のうちの1個に相当するも

* 昭和42年9月4日受理

** 理化学研究所(東京都文京区本駒込2-28) TEL 03-941-1141

***本号、旧著再録訳文末尾の訳者付記に列挙した文献を参照

図1 2次元V形混合機の構造 (2DV-I形)

のとみなしてよい。V形混合機の容器を分解して、1は水平円筒に、他の1は回転方向に直角な2次元面とし、それぞれの場合の粒子群の流動状態を追求することは、このような意味から数種の回転容器形混合機における粒子群の流動状態をも併せて類推することを可能とし、えられる結果の適用性は拡大されるものと考えられる。

2.1 2次元V形混合機における粒子群の流動²⁾

V形混合機を、その両円筒軸面で構成される2次元の構造とし、その面内に発生する回転方向とは直角な方向における粒子群の流動状態は、図1に示すとき装置を用いて観測され、V形混合機を特長づけられる粒子群の循環流れがみいだされた。

すなわち、容器の回転にともなって発生する粒子群の流れは、毎回転正立静止の状態を観測してゆく場合、容器底部から左右に2分されて斜面に沿って上昇し、混合体表層を中央に向かって左右両辺部より移動し、中央円筒接合部を平行して下降し、底部に再帰して1循環の行程を終了する左右対称な循環流れとみなすことができる。さらに、これら左右の流れは相互にほぼ独立しており、中央下降部における両流れの交叉、いわゆるかみ合い混合の様態に乏しい。図2は濃度分布測定結果から求めた混合体内等濃度線の時間的変化の1例を示す。

従来、V形混合機において成分の仕込み方法が、いわゆる片側仕込み (one on opposite side of the other) の場合は、上下仕込み (one on top of the other) の場合に比して混合速度がはるかに小さいことが知られているが、その主たる原因もこのような粒子群の流れに帰せらるうであろうし、また、良好な混合状態をうるための成分の装入にあたって留意すべき点も明らかとなる。

図2に示すとき循環流れによって混合が進行するならば、その過程において混合体内の任意の点における成分濃度は、粒子群が混合体内を1循環するに要する時間を周期として増減を繰返しつつ仕込平均濃度に漸近してゆくであろうし、その周期的変化の過程から粒子群の平均循環時間も求められることとなる。図3および図4は混合体内における濃度の変化の周期性を示す2例を掲げた。

このような変化の過程にしたがって、最高濃度に関する混合度 M_{max} 、および空間平均的混合度 M の混合時間 θ に対する変化は、

$$\ln M_{max} = -\phi \theta + k \quad \dots\dots(1)$$

$$\ln M = -\phi \theta + k' \quad \dots\dots(1')$$

なる関係をほぼ満足する。図5および図6に示すごとく、両混合速度係数 ϕ および ϕ' と循環時間 T との間には、

$$\phi = a \phi' \quad \dots\dots(2)$$

図2 等濃度線の時間的変化の1例 (2DV-I形)

図 3 混合体内における濃度の周期的変化の1例 (2DV-I形)

図 4 混合体内における濃度の周期的変化の1例 (2DV-I形)

$$\phi \propto 1/T \quad \dots\dots (3)$$

の関係が成立し、混合の進行が循環流れによって支配されることが明らかにされた。

2.2 水平円筒形混合機における粒子群の循環³⁾

輸送領域と混合領域とによって構成される水平円筒形混合機内における粒子群のフローパターンは、混合容器内に発生する粒子群の循環流れの代表的なものであり、2次元V形混合機の場合よりは、より明らかに循環流れ

図 5 混合速度係数 ϕ と ϕ との関係 (2DV-I形)

図 6 混合速度係数 ϕ と循環時間 T との関係 (2DV-I形)

と混合の進行との関連性が示されねばなるまい。この場合、輸送領域によって輸送される粒子量は粒子循環のフローパターンによって決定され、粒子群の平均循環時間もまた粒子群の循環模様から求められる。

すなわち、輸送領域の形状が円筒と同心円状となる部

分の厚さ h が、一定条件のもとでは一定であり、かつ粒子群の移動が円筒と同一角速度の回転で行なわれるものとするれば、輸送領域における粒子層の半径方向の速度分布を考えて輸送量 q は、

$$q = \frac{1}{2} \omega L h (2r - h) \\ = \frac{N}{60} \pi L h (2r - h) \quad \dots\dots(4)$$

したがって、循環時間 T は成分の総仕込み体積 F

$$F = \pi r^2 (F/V) L \quad \dots\dots(5)$$

と (4) 式の q とから

$$T = F/q = \frac{r^2 (F/V)}{(N/60) h (2r - h)} \quad \dots\dots(6)$$

と求められる。ここで、 ω は角速度、 N は回転速度、 L は容器厚さ、 r は容器半径、 V は容器の実容積である。

図 7 に示すごとき装置に相馬ケイ砂を用いてフローパターンの実測ならびに 8 mm 映画で撮写読影して求めた輸送領域の厚さ h は、図 8 および図 9 に示すごとく、これより循環時間が求められる。

混合状態の時間的变化は、この場合もまた (1) および (1') 両式の関係をはほぼ満足し、かつ、両混合速度係数 ϕ および ϕ と循環時間 T との関係もまた図 10 および図 11 に示すごとく (2)、(3) 両式の関係のみたす。水平円筒形混合機の半径方向の混合もまた粒子群の循環流れによって支配されるということが出来る。

また、大山によって導出された円筒回転速度を与える

図 7 水平円筒形実験装置の構造 (180φ HC形)

実験式によって求められる最適回転速度

$$N = \frac{C}{D^{0.47} (F/V)^{0.14}} \quad \dots\dots(7) \\ N_{op} \text{ に対する } C_{op} = 0.61$$

あるいは、従来経験的に定められていた最適回転速度とは、図 12 に示すごとく粒子群の循環時間を最小にするような回転速度であることが判明した。

2.3 3次元V形混合機における循環流れ⁴⁾

2次元V形混合機および水平円筒形混合機による実験は、3次元様式の混合機における循環流れを予想し、こ

図 8 回転速度 N と厚さ h との関係 (180φ HC形)

図 9 装入率 F/V と厚さ h との関係 (180φ HC形)

図10 混合速度係数 ϕ と N との関係 (180° HC形)

図11 混合速度係数 ϕ と循環時間 T との関係 (180° HC形)

れを回転方向とそれに直角な面との2つの面内における循環流れに分解して、粒子群の流動と混合の進行を追求することを目的としていた。換言すれば、実在の3次元の容器内に発生する粒子群の流れは、これら2つの循環流れが合成されたとき様態をとるものと推考される。

図13は3次元の容器内に発生する粒子群の循環流れを追求する目的で実験に供した、フランジ結合の積層式商用モデルV形混合機の構造と、あわせて各検査段面において15mm間隔で採取したサンプルの数を示した。

各フランジ面で断層露出させて平滑化した検査面から多点サンプリングによって濃度分布を求めて等濃度線を引けば、図14に1例を示すとき粒子群の循環流れがえられる。このような分布図と外部からの観測ならびにガラス小球を追跡子として用いた循環経路の追求の結果を総合して判断するに、3次元容器内の粒子群の循環流れは、図13に示すとき正立静止の状態毎回転ごとに観

図12 平均循環時間と回転速度との関係 (180° HC形)

測してゆく場合、前記2種類の実験結果からまったく予想されること状態をたどることを知った。

すなわち、容器底部から2分してV形円筒背部壁面（回転方向が上向き）を円筒母線に沿って拡がりながら上昇した粒子群は、混合体表面を容器前面円筒接合部に向って左右から収縮するごとく移動し、容器前面の円筒接合部（回転方向が下向き）を集合して併列下降し、容器底部に再帰して1循環を終了する、左右はば独立の循環流れとみなすことができ、2次元V形混合機の実験結果から説明される様々な現象と、諸量の関係が、この場合にも成立するという結果をえた。

図15は、2次元V形混合機の場合と同様の手法によって求めた混合体内濃度変化の周期性を示す1例であり、循環流れによって混合が進行する過程を知ることができる。混合状態の時間的变化は、(1)および(1')両式の間係を、混合速度係数 ϕ 、 ϕ と循環時間 T との関係は、この場合においてもまた図16および図17に示すごとく、(2)および(3)式の間係を満足する。

ここで、(2)、(3)両式の間係を(1)および(1')両式に代入すれば

$$\ln M_{max} = -\kappa \left(\frac{\theta}{T} \right) + k \quad \dots\dots(8)$$

$$\ln M = -\kappa' \left(\frac{\theta}{T} \right) + k' \quad \dots\dots(8')$$

両式をうる。 κ および κ' はそれぞれ M_{max} および M に関する無次元混合速度係数を意味し、 θ/T は粒子群の循

F/V	0	I	II	III	IV	B	計
12	—	—	53	33	17	1	104
15	—	71	53	33	17	1	175
18	—	71	53	33	17	1	175
21	—	71	53	33	17	1	175
24	77	71	53	33	17	1	252

図13 フランジ結合積層3次元商用モデル
V形混合機の構造 (3DV形)

図14 粒子群の循環流れの状態を示す1例 (3DV形)

環回数を表わす。

図18および図19は、 M_{max} および M の両混合度と θ/T との関係を示す。(8),(8')両式の関係が成立することが知られ、粒子群の循環が混合の進行を支配することが確認された。

図15 混合体内の濃度変化の周期性の1例 (3DV形)

以上に得られた3通りの実験結果からみるに、循環流れの存在とそれともなう混合の進行は、混合機に関して3通りの示唆を与える。その1は、装置のスケールアップは循環時間が重要な因子として検討の対象にされなければならないということであり、その2は、混合時間の短縮ないしは装置処理能力の増大もまた循環流れをぬいては不可能であるということであり、その3は、これらの問題の解決に当っては2次元様式の混合機が有力な働きを約束するであろうということである。

3. 循環時間と操作条件

混合容器内における粒子群の循環流れは、装置が与えられる場合はその操作条件と、被混合成分粉粒体の特性によって決定されるものと解釈して差支えあるまい。粒子群の循環時間に寄与する二大操作条件としては、混合機の回転速度 N と成分の装入率 F/V が挙げられるが、粒子群の循環移動を考える場合、粒子系の流動性は検討されねばならない特性の1つとなろう。

また与えられた混合機に対して流動性の定まった被混合成分を装入し、与えられた操作条件で混合を行なう場合には、混合の場が同一であって粒子群の特性も同一であるからには、成分の仕込混合比は循環時間には影響を与えないものと推察される。

3.1 循環時間と操作条件

液の攪拌においては、循環液流のフローパターンが保存される範囲において、循環時間と攪拌機回転速度の積が一定値をとることが実験的に知られており、これがス

図16 混合速度係数 ϕ と ϕ との関係 (3DV形)

図17 混合速度係数と循環時間 T との関係 (3DV形)

図18 M_{max} と θ/T との関係 (3DV形)

図19 M と θ/T との関係 (3DV形)

ケールアップの1要因とされている*。

粉粒体の混合においても、その進行が粒子群の循環によって支配されるという著者の実験結果からみるに、この場合にもまた攪拌の場合に類似した装置の取り扱い方がみだされるのではないかと予測される。著者の実験においては、混合の効果が上昇しつつある回転速度領域においては、ことに2次元V形の場合には粒子群のフローパターンの様態がほぼ類似の形態を示すことが写真撮影と観察の結果から認められており、装置の取り扱いに

有益な諸条件間の関係が求められる可能性が期待される。

また、容器の構造が定まり被混合成分としての粒子系の特性が与えられる場合、混合容器の1回の回転によって送り出される粒子量が一定であるというもっとも単純な想定にもとずけば、循環時間は装入率に比例して増加するであろうと予測される。実際には、装置構造と装入粉粒体層の構造との幾何学的関係の変化もあって、さほど単純な関係はえられないとしても、極端な多寡のない実用装入率近辺においては、循環時間は装入率に対応して増加するものと考えられる。

* 山本一夫：攪拌槽内の液の流動と混合特性，“最近の化学工学1964”，P.22，丸善(1964)

図20は、これまでに報告した実験結果に加え、もう1種類の大形2次元V形混合機(2DV-Ⅲ形)による結果を併せ、粒子群の循環時間 T と回転速度 N (図の右側)および装入率 F/V (図の左側)との関係を示したものであるが、ほぼ上述の推察に合致した結果を示し、すでにえられている混合状態の変化における諸関係とともに、装置スケールアップに有力な手がかりを与えるものと期待される⁵⁾。

一方、すでに実験的にしられているV形混合機の混合速度係数が仕込混合比に関係なく一定であるという事実を粒子群の循環流れから考えれば、混合の場が同じであるならば粒子群の循環時間は同一であり、循環時間が等しい結果としてその場合の混合速度係数が等しい値をとるものと解釈される。

図21は仕込混合比と粒子の循環にともなう濃度変化の同期性を示す1例であるが、粒子群の循環時間が全く等しいことが明らかであり、実験結果から求められた混合速度係数も、混合の初期の段階を経た以降において等しいという結果がえられた。図22は各実験の結果を粒子群の循環回数 θ/T で整理したものを示すが、混合度を仕込混合比で補正した結果は、

$$\ln(M_{max}/\bar{c}) = -\kappa \left(\frac{\theta}{T} \right) + k \quad \cdots \cdots (9)$$

なる関係がほぼ成立する。

(9) 式の関係は、混合速度係数が等しくとも、所要の混合度に到達するに要する実混合所要時間は仕込混合比に応じて大であることを示しており、実操作における混合時間の安全な決定についての示唆を与えている⁶⁾。

図20 粒子群の循環時間 T と回転速度 N および装入率 F/V との関係

3.2 循環時間と粒子の特性

粒子群の循環移動が混合の進行を支配するのであるから、粒子系の特性のうちでも特に流動性は循環時間に大きな影響を与え、流動性の難易が混合速度の大小を左右すると考えることは妥当であろう。

粒子群の流動性の難易をいかなる手段によって表現するかについては未だ適当な方法もないが、きわめて大胆な近似的解釈として、流動性の良好な粒子系の安息角は一般にその値が低く、逆に、低安息角粒子系では、安息角の大なる粒子系よりも流動性が大であるという一般の見地から、粒子系の安息角の相違と循環時間との関係を実験的に検討した結果、図23に例示するとき明瞭な相違をみいだした。図24は混合過程を示す1例である。

流動性に関しては、粒子形状をはじめとして、多くの条件を考慮する必要があるが、特性が類似し、安息角のみ大きく異なる粒子系間に、大きな循環時間の相違があることは明白である⁷⁾。

4. 循環流れからみた混合機と操作の改善策

周期性をもつ混合容器内における粒子群の循環流れの

図21 仕込混合比と濃度の周期的変化の1例(2DW形)

図22 混合状態の仕込混合比にもとづく変化 (2DW形)

図23 安息角の相違と循環周期との関係 (2DV I 形)

存在は、より迅速かつ均質な混合物をうるための操作法ないしは装置の改善に関する示唆を与える。

従来、V形混合機においては容器内に回転軸と同軸で高速回転する攪拌転枝 (intensifier) を設けたものも作られ、凝集造塊性粉体や湿潤粉体に適用されている例も尠くない。しかし、装置構造の簡単さによって期待される、故障の排除、取扱い、清掃の簡便さならびに装置価格などを考える場合、攪拌転枝の設備は必ずしも全面的には是認されず、また動力消費の点でも問題を残している。

2次元ないし3次元様式のV形混合機内に発生をみる粒子群の循環流れを検討するに、装置内付加的構造あるいは添加物としては、

- (1) 循環流れの中央部にみられるデッドスペースの排除、そのため、デッドスペースを充満する実体構造物の付設
- (2) 循環粒子流を細分化するための、重錘式攪拌枝の軸部への設置、もしくは、容器中央部で粒子の流れに直角な面で設ける棒格子あるいはバースクリン
- (3) ランダムな粒子の運動を助長する助媒の投与などの手段と方法が考えられる。

しかし、構造の単純さと取扱いの容易さ、さらに作業容量の減少を防ぐという意味からみると(1)の、例えばソロバン玉状構造物を左右両室に設けることはあまり好ましいことではなく、また、(2)の重錘式攪拌枝の設置自体、重力の作用を利用するという利点はあるにしても、攪拌転枝とさほど異なったものとはいえない。

図24 安息角の相違と混合状態の変化の関係 (2DV-I 形)

現在までに著者が試みた方法の中で、もっとも混合効果が期待できるのは、(2)の後者、バースクリンの設置と(3)の助媒混合である。バースクリンについては現在実験的検討を進めており、未だ数値的な資料を発表する段階にはない。

助媒を用いる混合操作はその効果が顕著である。混合容器の内容積に対して数パーセント以下の体積比のもとに、例えばゴムボールのごとき自由に転動しうる助媒を投与することによって、混合速度係数は平常操作の2倍以上となり、逆に、混合時間を等しくとりうる場合は、与えられた装置の処理能力が倍加する。

図25および図26は、助媒の添加割合と混合速度係数の増加率の関係および一定量の助媒の添加による混合速度係数の増加率の関係を示すが、図25からは5%以下の添加によって混合速度係数がV形では3倍近く、水平円筒形では2.5倍程度に増加し、図26からは、数個の助媒の添加によって、両形式ともに2.5倍程度の混合速度の増加、換言すれば、一定時間においてはその程度の処理能力の増加が期待できることが明らかとなり、ことに微粉の均一な混合に際して効果的であるという実用的な知見がえられている^{8,9)}。

5. 循環流と固定容器形混合機

固定容器形混合機の代表機としてリボンミキサーをとりあげ、容器内における粒子群の移動が純粋にリボンによる軸方向の輸送のみによって行なわれ、それにとまって混合が進行するものと考えれば、粒子群は固定された容器内における循環流れによって混合するとみなされる。

リボンによって生ずる粒子の移動量は、スクリーコンベヤーのそれによって類推され、粉体によって埋没されるリボン断面積を考慮した操作係数を q とすれば、外側あるいは内側リボンによって移動する粒子量は、

$$q = \frac{1}{60} \zeta \frac{\pi}{4} (D^2 - d^2) p N$$

図25 助媒添加割合と混合速度係数増加率との関係 (3DV-2形)

図26 助媒の添加による処理能力の増加 (3DV-2形)

$$= \frac{1}{60} \zeta \pi b (D-b) p N \quad \dots\dots(10)$$

で与えられる。ここで、 D および d はリボンの外径および内径、 b はリボン幅、 p はピッチ、 N は回転速度である。

外側と内側の両リボンが同一回転速度であって、両リボンの回転が平滑な粒子群の1循環を与えるならば、両リボンの輸送量は等しく

$$q_0 = q_i \quad \dots\dots(11)$$

粒子群が混合体内を1循環するに要する平均時間は

$$T = V/q_0 = V/q_i \quad \dots\dots(12)$$

で求められる。 V は装入粉体の体積である。

リボンミキサーの構造上の要部はリボンであり、その設計に当っては(10)、(11)両式の関係が満足される必要がある。そして、構造が幾何学的に相似な装置について(12)式で与えられる粒子群の循環時間はスケールアップの基礎的要因として考慮されねばなるまい。

また、混合所要時間もこの循環時間によって与えられることになると考えられるが(12)式によって求められる時間をもとに、容器回転形の混合機における実験結果を参照して大胆な予想をたてれば、処理すべき粉体の特性にも大きく依存はするであろうけれども、(12)式によってえられる値の10~20倍程度を見込めばよいのではないかと類推される¹⁰⁾。

6. 結 言

2次元様式ならびに3次元商用モデルのV形混合機を中心として、混合機の回転に伴って容器内に発生する粒子群の循環流れと混合過程に関する著者の実験的研究の結果を、報告された順を追って紹介した。

粒子群の流動状態に着目することによって混合機に特有な循環流れがみいだされ、その流れが混合の進行を支配するという結果が導出された。循環時間に関する若干の因子と、それらの量的関係についての検討から装置のスケールアップあるいは装置ならびに操作法の改善に関する資料がえられ、また固定容器形混合機に対する循環流れの適用についても言及した。

混合容器内に装入された被混合粒子群が、いかなる機構によって循環流れを発生し、いかなる機序によってその形態を保存するかという根本的な問題については、粒子の運動力学の確立が不十分な現在、その真因について

これを論ずる段階には到らず、今後、さらに多くの研究によってその方途が開発されることが希望される。しかし、少なくとも従来は不明のままにされていた混合容器内における粒子群の流動現象について、些少ではあるにせよその姿態がとらえられたことは、混合装置ならびに混合操作上の各種問題に対して解決の指針を与えるための一歩を前進せしめたことと解釈してよいであろう。このような方法による粒子群の動態の検討は、より多くの種類の混合装置に関して開発の知見を手中にしうる期

待をもたせるとともに、循環流れの状態の把握はまた混合現象に関する新しい見方、考え方を誘導するものと推察される。

ここに紹介した著者の実験的研究が、そのような意味における粉粒体の混合に関する諸問題の解決と新機構の開発のために、いささかなりとも参照されるとするならば、当事者としてまことに幸であり、今回の混合に関する討論会において自ら紹介を試みた目的も十分に達成せられる。

引用文献

以上を総説するに当り引用した著者の文献は、つぎの通りである。

- 1) 固体混合について、最近の化学工学1966, p.167, 丸善 (1966)
- 2) 2次元V形混合機内の粒子循環流れについて：化学工学, 30, 1140 (1966)
- 3) 水平円筒形混合機内の粒子の流動と混合：材料, 16, 364 (1967)
- 4) V形混合機内の混合の進行と粒子群循環流れについて：化学工学, 31, 1212 (1967)
- 5) 未発表
- 6) 成分仕込濃度と混合速度について：粉体工学研究会誌, 4,

889 (1967)

- 7) 未発表, 第5回粉体に関する討論会において一部講演, 要旨集 No.30, 大阪 (1967)
- 8) 助媒を用いる固体混合について：化学工学, 30, 178 (1966)
- 9) On Making of Powder Mixture-Application of Sedimentation Size Analysis to Fine Powder Mixing: *Sci. Paper I.P.C.R.*, 59, 34 (1965)
- 10) リボンミキサーの構成について 粉体工学研究会誌, 4, 894 (1967)
なお、サンプル採取に関しては、
- 11) 固体混合に関する文献にみられたサンプル採取法と分析法：粉体工学研究会誌, 4, 831 (1967) を参照されたい。