Carr の流動特性評価に関する実験検討*

Experimental Investigation of Carr's Flowability Measuring Method

佐藤 文雄** 井上 速男**
Fumio Sato Hayao Inoue
宮田 稔** 佐々木 八千夫**
Minoru Miyata Yachio Sasaki

1. はしがき

Ralph L. Carr の示した粉粒体の流動性 (Flowability) や、噴流性 (Floodability) の数値表現¹⁾は、各種粉体処理装置や機器の設計をはじめとして、粉体処理技術上から実用的で有用な方法であると思われる。

われわれは、R. L. Carr の方法にもとづいて製作された細川粉体工学研究所、²⁾粉体総合特性測定装置³⁾— Powder Tester⁴⁾を主に使用し、数値評価のために測定される諸特性のそれぞれに対して影響を与える因子や条件についての実験検討を行なってみた。

また、実験の結果から、R. L. Carr の示した流動性指数は、通常かさ密度として測定される疎充てんかさ密度 (以下、ゆるみかさ密度と呼ぶ) と、タッピングを行なって充てんしたときの、いわゆるタップ充てんかさ密度 (以下、固めかさ密度と呼ぶ) から算術的に求められる圧縮度と直線関係にあることが知られた。

以下、それら一連の実験検討結果について報告する。

2. 流動性および噴流性評価指数の求め方

R. L. Carr の方法による、流動性および噴流性評価指数の求め方は、次の7つの測定値と、それからの計算値を、Carr の示した評価換算指数表に照してそれぞれの因子に対する評価指数を求め、それらの和で、その粉粒体の評価指数を決めるという方法である。

- a) 安息角 (Angle of Repose) : ϕ_r
- b) 崩解角 (Angle of Fall) : ϕ_f
- c) スパチュラー角 (Angle of Spatula) : ϕ_s
- d) ゆるみかさ密度 (Aerated Bulk Density) : ρ_{AB}

- e) 固めかさ密度 (Packed Bulk Density) : ρ_{PB}
- f) 凝集度 (Cohesion) : A
または粒径分布 (Size Distribution) : d_p-R

(註、 A は粉体、 d_p-R は粒体のとき測定する。)

- g) 分散度 (Dispersity) : D

図1は、その求め方を図示したもので、上の7つの測定値から計算されるものは

- h) 差角 (Angle of Difference) : ϕ_D
- i) 圧縮度 (Compressability) : C
- j) 均一度 (Uniformity) : U

の3つで、凝集度 A は、 $(\rho_{AB} + \rho_{PB})/2$ の値によって定められる3つの目開きのフルイを重ね、 ρ_{AB} 、 ρ_{PB} および C の3つの値から Carr の示した式により計算される

- k) 動のかさ密度 (Working Bulk Density) : ρ_W

により決められる振動時間 (T : sec) だけ、フルイに振動を与えて測定される。(測定装置の詳細については参

図1 流動性指数 N_F および噴流性指数 N_r を求める過程 (Carr)

昭和46年12月23日受理
* 本会付着凝集グループ会にて発表(1971年8月)
** シオノギ製薬(株)製造部(〒660尼崎市今福192)
TEL 06-401-1221

考文献、を参照されたい)

3. Carr の評価指数と経験的感覚について

Carr の評価指数が実際に 粉粒体を扱う場にあるものの感覚と一致するかどうかを調査する目的で、われわれが日常取扱っている主要原料の内、53種のものをとり上げ、現場および試製研究部内の熟練者12名に対し、感覚的に答えうる次の10項目のアンケートを行なってみた。

設問1：粒子の形状と大きさの分類→粒子形状を10種類に分け、それぞれに対し粒体、粉体、微粉体のように区分する。

設問2：粒径分布についての分類→ほぼ均一、不均一、かなり不均一の3種に区分する。

設問3：圧縮性についての分類
設問4：吸湿性についての分類
設問5：付着性についての分類
設問6：帯電性についての分類

→ 大いにある、や
→ やある、まった
→ くないの3つに
→ 区分する。

設問7：取扱上から受ける感じについての分類——
ミサラミサラ、ミギシギシ、ミモロモロ、
ミゴロゴロおよびミふわふわの5つに
区分する。またどの区分にも入れられない
感じのものに対する記入欄も設けた。

設問8：凝集性についての分類、——フルイの上など
で、コロコロした凝集体ができるかどうか
を一つの目安とし、凝集性が大いにある、
ややある、およびあまりないの3つに区分
する。

設問9：フラッシング性についての分類——大い
にある、ややある、およびあまりないの3つ
に区分する。

設問10：流動性についての感覚的判定* ——流動性
の良否を、ホッパーやドラム缶からの取出
しや流出状態についての経験をもとに取扱
上において架橋防止対策を必要と感じてい
るかどうかを1つの目安にして10段階に分
割し、全く経験からの感覚で区分を行な
う。

上記のアンケートの回答から

*ここでいう感覚的な流動性は実現象から受ける広義のものであり Carr の測定評価による狭義の流動性とは自ら違った点が出てくるものと考えられる。すなわち、粉体を流動させるには必ず対象となる装置からくる特性が含まれる場合が多々ある。(粒度偏析、密度偏析など実際にその装置を流してみないと、どの程度なのか、またそれが流動性にどのようにきくかわかりにくい。)流動性をひとつの特性値としてとるか、状態量としてとるかははっきり区別し、求め方の条件を確実にする必要がある。

図2 Carr の指数と予想指数の関係

図3 Carr の指数と感覚指数の関係

- イ) 粒子形状 ニ) 吸着性
ロ) 粒子サイズ ホ) 付着性
ハ) 粒度幅

について、Carr の示した流動性予想評価方法³⁾を参考に評価採点した結果(予想指数と呼ぶ)と、それらの粉体を Powder Tester により測定した評価指数の関係は図2に示す通りで、両評価指数の間には相関関係を見出すことはできなかった。

しかし、上述の設問10に対する回答からえられた経験的感覚による評価指数(感覚的指数と呼ぶ)と Powder Tester による測定結果からの評価指数の間関係は、図3に示すように、一応両評価指数に関連性のあるものと見られるようである。また同様に噴流性についての経験的感覚による評価指数も図3に併記したが、これらの結果から、われわれは、Powder Tester による流動性

および噴流性の数値表現は、実用上から見て、一応、感覚的なものを数値的に表現しているものとみなしても良いものと思っている。

なお、このようなアンケートによる方法では、設問者、回答者および集計者それぞれの主観的なものによって、かなり大きな差を生ずることは否定できないが、逆に Powder Tester による測定結果からの評価指数を、後刻回答者に知らせた結果では、多少の逆転を感じることはあっても大筋においては、ほぼうなづける結果と見られるようであった。

4. Powder Tester に関する実験結果と検討

4.1 安息角 (ϕ_r) の測定について

安息角測定時において誤差を生ずる原因のうち、安息台直径の影響、安息台への試料堆積方法の影響、および原試料の凝集をほぐすために使用されるフルイの目開きの影響について検討を行なった結果、次のような結果がえられた。(安息角の測定については付着凝集グループ会にて深く検討されているので、実験結果の詳細は省略する。)

イ) 安息台の直径が大きくなる程、安息角は小さく、かつ一定値に収束し、繰返し測定時の変動幅も小さくなる。台径としては 100mm 程度の大き

さ以上で測定することが望ましい。

ロ) 安息台上への試料堆積方法としては、ロータを付けて中央のみから注入するよりも、台上全面に一樣に注入した方が大きな安息角となる。

ハ) 凝集をほぐすためのフルイの目開きが多少異なっても測定結果への影響は少ないようである。

4.2 崩潰角 (ϕ_f) の測定について

崩潰角測定時の、重錘落下高さ H 、および重錘落下回数 N が測定結果に与える影響について検討した結果、 $H = 59 \sim 133 \text{ mm}$ においては崩潰角として $3 \sim 8 \text{ deg}$ 、程度の差を生じた。また N の影響については、図 4 に示すように N と ϕ_f の関係は、実験式として次のように表わされる。

$$\frac{\phi_f - \phi_{f\infty}}{\phi_{f0} - \phi_{f\infty}} = e^{-\alpha N} \quad \dots\dots(1)$$

ϕ_{f0} : 計算上、 $N=0$ の時の ϕ_f の値

$\phi_{f\infty}$: $N=\infty$ の時の ϕ_f の値

α : 粉体により定まる常数

ここで、 α は実用的に見て、振動または衝撃時の崩潰性を示す指数とみられ、また安息角 ϕ_r と、 ϕ_{f0} の差の

図4 重錘落下回数 N と崩潰角 ϕ_f の関係

図5 スパチュラー幅とスパチュラー角の関係

図6 ゆるみかさ密度におよぼす試料注入高さの影響

図7 タップ回数 N と空隙率 ϵ の関係

値は、堆積時の不安定を示すものと解釈される。

4.3 スパチュラー角 (ϕ_s) の測定について

安息角測定と同様、堆積台幅（スパチュラー幅）の大小により、測定結果にかなりの差を生ずることが予想される。図5はスパチュラー幅を10～50mmにわたって変化させた場合の測定結果を示すもので、安息角測定時とその傾向は同一である。

スパチュラー角の場合、スパチュラー上への試料堆積状態が不安定なため、繰返し測定時の変動が安息角に比して相当に大きく、また測定者間にもかなりその結果に差の生ずることが知られた。

4.4 ゆるみかさ密度 (ρ_{AB}) の測定について

ゆるみかさ密度は、その測定の仕方ではいろんな値をとることはよく知られている。流動性をひとつの特性値として見、その中から構成因子としての物性値として、ゆるみかさ密度値を求めるにはあまりにも多くの操作因子が入ってくる。たとえばフルイ目開きを変えれば流量は変化するし、落下凝集単位も変ってくる、また当然フルイの振動強度によっても異なるし、注入高さによっても影響される。

ここでは、ゆるみかさ密度の測定に影響を与える因子のうち

イ) フルイ目開き: S

ロ) 注入高さ: H

について、馬鈴薯澱粉を試料として検討してみた。

図6は、振動フルイ面を通して充てんした場合の結果を示すもので、フルイ目開きの増加とともに、かさ密度が増大する。したがってゆるみかさ密度の測定に当たってはかなり正確にフルイ目開きを検討しておく必要がある。

る。

一方、注入高さ H の影響はかなり大きく、試料によっても若干異なるが、注入高さ H は 150～200mm 程度にすることが、測定値のバラツキも少なく安定した結果がえられるようである。

これらの傾向は、粒子の密度や粒径、形状などの粒子特性でも変わってくるのはもちろんのことである。これらの現象を操作因子と分離して考えることはできないので、考える対象によって、その対象にできるだけ近い操作条件を選ぶか、最初から固定して測定した後で何らかの形で補正するしかない。

4.5 固めかさ密度 (ρ_{PB}) の測定について

タップ回数 N 、タップ高さ H が、固めかさ密度 (ρ_{PB}) の測定結果におよぼす影響について検討するとともに、粒度分布をもつ試料が、容器内において起こす、粒度およびかさ密度の偏析について実験検討を行なってみた。

図7は、タルク、乳糖、コーンスターチの3種の粉体における、タップ回数 N と、空隙率 ϵ の関係を示すもので、タップ高さ H を変えても、同様な傾向の関係がえられる。

一般に、 N と ϵ の関係については、久野の式

$$\epsilon_N - \epsilon_f = (\epsilon_0 - \epsilon_f) \exp(-kN) \quad \dots\dots (2)$$

ϵ_0 : タップ回数 $N=0$ のときの空隙率

ϵ_f : " $N=\infty$ "

ϵ_N : " N 回目 "

k : 試料、条件などにより定まる定数

がよく知られているが、 N の全域にわたっては、 N と

図8 タップ高さ H と空隙率 ε の関係

図9 タップ充てん時の容器中における密度偏析
(試料: 粒状ヘプレン)

$\varepsilon_N - \varepsilon_f$ の関係は片対数グラフ上、図7にみられるように、ほぼ4本の折線で表わされ、(図7では3本の折線のようにみられるが、 N が小さいところにも直線関係が存在する。) h は一定値を示さないことが知られる。この原因について荒川らは、凝集粒子としての充てん過程、凝集粒子の破壊を伴う充てん過程、1次粒子としての充てん過程の3つの充てん過程の存在することで説明しているが⁴⁾、第4の充てん過程として、比較的安定した内部空隙の移動による充てん過程が存在するように観察される。

次にタップ高さ H を変化させた場合の最終空隙率 ε_f の変化は、図8に示すように、 H の増加とともに ε_f が減少するが、 $H = 30\text{mm}$ 程度ではほぼ一定値を示すものと見られる。また、図9および図10は、タップ充てん時におけるかさ密度 ρ_B 、および粒度偏析の1例を示すもので、自由表面部の偏析が特に激しいことが知られる。したがって実際のタップ充てん測定に際して、粒径分布幅の広い試料の場合、タップ回数を増すことは、充てん構造を不明りょうなものとしてしまう結果となり好ましくない。

4.6 凝集度 (A) の測定について

図10 タップ充てん時の容器中における粒度偏析
(試料: 粒状ヘプレン)

図11 篩目開き S と篩上残量 w_r との関係
(パウダーテスターを用いた1段フルイの実験)

フルイの振動条件を一定にした場合(試料量 $W = 29\text{g}$ 、フルイ振幅 1mm 、振動数 60Hz 、振動時間 85sec)の使用フルイ目開き S と、フルイ上残量比 w_r/W (w_r はフルイ上残量) との関係は、馬鈴薯澱粉の場合、図11に示すようにおおむね片対数紙上で直線関係がえられる。($d_{p_{\min}}$ は試料中の最少粒径である。)

図11に見られるように、 $S = 75\mu$ 前後において w_r が

図12 試料落下高さと分散度との関係

異常に小さな値を示しているが、その理由は共振現象のために凝集体の破壊がより激しく起こったものと見られる。

振動フレイの場合、このような現象を起こすことが当然考えられ、その異常値を示すフレイ目開きは、試料、試料量、振動部の質量などの条件によって変化するはずである。

なお、Powder Tester の場合、かさ密度により指定される目開きの3段フレイを用いるが、その中には、74 μ 、46 μ の目開きも含まれており、測定前には一度上記に関する実験検討を行なってみる必要があるものと考えられる。

4.7 分散度 (D) の測定について

試料の落下高さHと、分散度Dの関係について、馬鈴薯澱粉およびタルクにより実験した結果を図12に示した。この結果では、 $dD/dH=0.2\%/cm$ と見られる。

また図12にみられるように、Dは落下試料量Wに無関係なものと、Wにより異なるものがあることが知られた。

なお、実際の測定に当っては、試料容器の底ダンパーの開閉操作や、受皿のサイズと形状などに測定値が大きく左右され、かなりバラついた結果しかえられない、ラフな測定であると思われる。

4.8 Powder Tester による混合粉体の測定結果につ

図13 混合粉体についての測定結果の1例

いて

粉体の流動性を改善する目的で、滑性のある微粉を少量添加する方法は良く知られており、その効果の程度の判定には、安息角の変化、Orifice からの流出速度の変化、内部摩擦角の変化などの測定が広く行なわれている。

われわれは、混合粉体の流動性指数 N_F 、噴流性指数 N_f 、およびそれらの評価基礎数値(ϕ_r , ϕ_s , ϕ_D , ……)がどのように変化するかについて、次の粉体の組合せにより、混合比率を変えて測定してみた。

イ) 小麦澱粉とタルク：

(擬球形大粒子と不定形滑性微粒子の組合せ)

ロ) フェナセチンとタルク：

(不定形大粒子と不定形滑性微粒子の組合せ)

ハ) 薬品粉末とCMS

(流動性の悪い粉体と良い粉体の組合せ。両粉体の大きさはほぼ同じ。)

図13は、その1例として、小麦澱粉とタルクの混合粉体についての測定結果を示したもので、タルクの混合率

図14 圧縮度 C と流動性指数 N_F との関係

10%付近で極大値を示すが、この結果は経験的事実とはば一致するようである。

また、図13でみられるように流動性指数 N_F や噴流性指数 N_f が極大値を示す混合率付近では、分散度 D と凝集度 A を除き、おおむね N_F 、 N_f と類似した変化傾向（極大値または極小値を示す。）を示すことが知られる。

なお小麦粉—タルクの混合粉体の場合、固めかさ密度 ρ_{PB} 、と動のかさ密度 ρ_{WB} が極大値を示す混合率と、 N_F 、 N_f が極大値を示す混合率にはかなりの差があるが、フェナセチンとタルクの混合粉体では、ほぼ一致した値（タルク8～9%前後）を示した。この差は大粒子粉体の形状の違いが主な原因と考えている。

4.9 流動性指数 N_F および噴流性指数 N_f と各評価因子測定数値との関係

i) 安息角 ϕ_r と流動性指数 N_F との関係

従来より、安息角の大小は経験的に流動性の目安とされている、これまでに測定した値を総合した場合、 ϕ_r (deg.)と N_F との関係は、次式のようにまとめられる。

$$\phi_r > 25^\circ \text{ のとき } N_F = 100 - 2.5(\phi_r - 25) \quad \cdots(3)$$

$$\phi_r \leq 25^\circ \text{ のとき } N_F = 100 \quad \cdots(4)$$

ii) スパチュラー角 ϕ_s と流動性指数 N_F の関係

単一粉体の場合 ϕ_r と N_F の関係はおおむね次式で表わされる。

$$\phi_s > 25^\circ \text{ のとき } N_F = 100 - 1.33(\phi_s - 25) \quad \cdots(5)$$

$$\phi_s \leq 25^\circ \text{ のとき } N_F = 100 \quad \cdots(6)$$

しかし、混合粉体では ϕ_s が 60° 以上になると N_F は、(5)式の値よりも小さい方に大きくなって来る。

iii) 圧縮度 C と流動性指数 N_F との関係

ゆるみかさ密度 ρ_{AB} と固めかさ密度 ρ_{PB} とから、次式

$$C = 100(\rho_{PB} - \rho_{AB}) / \rho_{PB} \quad \% \quad \cdots(7)$$

で計算される圧縮度 C と N_F の関係は、図14に示すように、単一粉体、混合粉体ともに同一の直線関係がみられ、次式で表わされる。

$$N_F = 100 - 1.35C \quad \cdots(8)$$

通常、かさ密度は、粒径分布、粒子形状、付着性などを総合的に表わすものとして、粉体取扱上の実際面で広く利用されている数値であるが、簡単に測定できるかさ密度からの(7)式による計算値が、Carrの流動性評価指数と直線的な関係にあることは、実用的に利用価値のあるものと考えられる。

なお、疎充てん時の空隙率と N_f の関係について検討した結果では、相関は認められるが、非常にバラツキが大きくCarrの流動性評価指数と関連付けることは無理とみられた。

iv) 崩潰角 ϕ_f と噴流性指数 N_f との関係

崩潰角 ϕ_f と N_f の関係は、一応次式で示されるようであるが、そのバラツキはかなり大きい。

$$\phi_f > 10^\circ \text{ ならば } N_f = 100 - 2.0(\phi_f - 10) \quad \cdots(9)$$

$$\phi_f \leq 10^\circ \text{ ならば } N_f = 100 \quad \cdots(10)$$

v) 分散度 D と噴流性指数 N_f との関係

分散度 D は噴流性指数 N_f を最も支配する因子のように思われるが、測定方法がラフなためか、一応相関は認められるが、バラツキがきわめて大きく、分散度のみでは噴流性の目安にはならないものと思われる。

vi) 流動性指数 N_F と噴流性指数 N_f との関係

両指数間には、何らかの相関が存在するようにも思われるが、これまでの測定結果からはバラツキが大き過ぎ、どちらか一方の指数から、他方を推定することは困

難と思われる。

5. む す び

以上、Powder Tester における諸測定因子に関する実験検討および、測定因子と Carr の流動性指数、噴流性指数との間の関係について検討を行なった結果から、使用上における諸問題点についての知見をのべた。特に(8)式で示される圧縮度と流動性の関係は、実用的に簡便な流動性の評価方法として有効に利用できるものと

考えている。

なお、これまでに述べた流動性や噴流性はあくまで、R. L. Carr の示した評価方法にもとづくことであることをお断りしておきたい。

〔追記〕 本文は、昭和46年8月9日、塩野義製薬株式会社摂津工場内にて行なわれた、粉体工学研究会、付着凝集グループ会で報告済みのものを、一部省略して作成した。

引 用 文 献

- 1) Carr, R. L. : *Chem. Eng. Jan.*, 18, 163 (1965)
- 2) 横山, 浦山 : 粉体工学研究会誌, 6, 264 (1969)
- 3) Carr, R. L. : *Chem. Eng., Feb.*, 1, 69 (1965)
- 4) 荒川, 岡田, 水渡 : ◇ 第2回粉体に関する討論会予稿集◇ p. 100 (1964)

〔書 評〕

メカノケミストリー概論

現代化学シリーズ-52, 久保輝一郎著, 東京化学同人, 183頁, ¥850. 一, 1971年5月発行

"メカノケミストリー"という言葉は粉体を取扱う人々にとってはそれほど聞きなれないものではなくなった。機械的なエネルギーを加えたことによって生じる化学現象を対象とするこの分野に早くから着目し、その発展に努力してこられた著者が系統的にまとめられたのが本書である。著者自身の序文にあるように、いろいろの現象が認められながらも、それを解説した書物が国内、国外ともにきわめて少ない現在、この分野の研究の状況を知る上に、また粉体の機械的操作に関係するものの常識的な知識をもつために是非とも一読をすすめたい。

内容はメカノケミカルな現象を考えるとときに最小限の知識として必要な程度の固体の物性論的な知識として、格子欠陥、表面エネルギー、吸着、ぬれなどの解説があり、破碎によって粉体の表面構造がどのように変化するかという議論に移る。粉碎という操作によって固体に生じる温度変化や、加えられる力学的現象に続いて粉碎理論との関係、粉碎平衡とメカノケミカル効果に触れ、粉碎助剤、粉碎粒子の凝集分散と進む。このようなメカノ

ケミカル効果の定量的取扱いの重要な手掛りとなる結晶格子の不整化、無定形化の程度の測定はX線回折法が広く利用されるが、このあたりの解説も平易でわかりやすい。機械的エネルギーにより生じる固体の構造変化、結晶度の低下と回復、結晶転移、結晶水の脱離、熱含量の変化などの実例をあげた後に、最後のメカノケミカルな活性化に伴う諸現象の章で、これらの変化が固体の物理化学的現象にどのように影響しているかを多くの例をあげて紹介してある。機械工学関係の方が苦手な化学方程式や面倒な理論はきわめて少なく、"いわゆる高度な内容をやさしい表現"でという言葉があてはまる。

最後に、"メカノケミストリーに関する諸研究は定量的には無論のこと、定性的にも緒についたばかりである……云々"と著者の言葉にあるように、まだ若いこの分野の研究に有益なデータを粉体工学にたずさわる研究者、技術者の中からどしどし提供され今後の発展に役立てるようにしたいものである。

〔M. A.〕