粉体の流動度の算定に対する空隙率の影響

綱 川 浩*

The Effect of Voidage on the Estimation of the Flowability of a Cohesive Powder

by

Hiroshi TSUNAKAWA[†]

The voidage of a powder bed is approximately related to the specific surface diameter and the major consolidation stress in a rearranged form of Gurnham's equation. The flowability of the cohesive powder, which is a ratio of the unconfined yield stress to the unit weight, is related to the specific surface diameter, the voidage, the major consolidation stress and other factors.

Estimated values of the voidage are 0.81 to 1.25 times as large as the experimental values obtained from shear tests for the 20 powders used. On the other hand, the computed results of the flowability using both the estimated and measured results of the voidage compare favourably with the experimental results for most the 17 powders used.

Thus, the present method is applicable to the estimation of flowability for a cohesive powder having a different value of specific surface diameter.

Key Words : Flowability, Voidage, Specific Surface Diameter, Shear Test, Powder Compression

1. 諸 言

粉体は粒度が細くなるほど、付着・凝集性が増し、流動性は低下することが経験的に知られている。たとえば、粉体貯蔵の場合、粉体の投入過程で生じる粒度偏析によって、流動性に偏りが生じるため、ホッパ内部で部分的にアーチが形成されることがある。また、粉体の空気輸送の場合でも、輸送の過程で摩砕による細粒化が進み、粉体の流動性が低下するため、輸送状態に変化が生じることがある。このように、流動性と粒度の関係を明らかにすることは粉体のハンドリングにおいて有用である。

本研究では、流動性の評価基準として、単位かさ重量

(充填密度×重力加速度)に対する一軸破壊強度の比で表される流動度¹⁾を用いる。これは、Jenike²⁾がUnit strengthと称したものと同じである。しかし、流動度は粉体に作用する応力に大いに依存する。

前報³⁾では、流動度を粒子密度、比表面積径、空隙率、平均接触点数、最大圧密応力および2つの特性値(実験係数)を含む関数で表した。ここで、2つの特性値は粉体材料に固有であるから、特性値が既知であるとき、比表面積径の異なる同質粉体の流動度を算定できることになる。そのためには、粉体層の空隙率と比表面積径の相関性が要求される。しかし、従来の粉体圧縮実験式には、粒度を含むものは見当たらない。

そこで、20種の粉体に対する直接せん断試験結果から、空隙率と最大圧密応力(200kPa以下)の関係におよぼす比表面積径の影響を考慮して、空隙率の推算法を検討する。また、空隙率の推算値および測定値に基づいて、それぞれ流動度を計算し、測定結果と比較することによって、流動度の算定に対する空隙率推算法の

平成4年6月8日受付

* 横浜国立大学工学部物質工学科

(〒240 横浜市保土ヶ谷区常盤台156)

TEL. 045-335-1451内線2869

[†] Dept. of Chem. Eng., Yokohama National Univ.,

(156 Tokivadai, Hodogaya-Ku, Yokohama 240)

適用性を明らかにする。

2. 空隙率の推算法

粉体圧縮に関する実験式は数多く報告されている⁴⁾。しかし、これらのほとんどが実験係数を含んでおり、また実験係数の予測法が示されていないため、実際に空隙率の推算に適用できない。例えば、Gurnhamの式は比較的低応力(1000 kPa 以下)の範囲でよく成り立ち⁵⁾、初期充填の空隙率などを含まず、2つの実験係数だけで表現できるため実用的に便利である。

$$p = me^{n/v} \quad (1)$$

ここで、 p は圧縮応力、 v は粉体の体積、 m と n は実験係数である。

本研究では、粉体の流動度の算定に関して、直接せん断試験における空隙率と最大圧密応力の関係を求めることが目的であるから、Eq. (1)の圧縮応力 p に最大圧密応力 σ_1 を適用する。また、空隙率を ε とすると、 $1/v \propto (1-\varepsilon)$ であるから、Eq. (1)はつぎのように変形できる。

$$\varepsilon = a - b \ln \sigma_1 \quad (2)$$

ここで、 a 、 b は実験係数、 σ_1 は最大圧密応力で、単位はkPaとする。

粉体のせん断試験は定容積型直接せん断試験機^{1,6)}を用いて行い、破壊包絡線を垂直応力-せん断応力平面に直接測定すると同時に、空隙率を測定した。この結果、最大圧密応力は垂直応力軸上に中心をもち、破壊包絡線の終点(試験体の定常破壊状態を表す)に接するMohr応力円と垂直応力軸の交点から決定した。一軸破壊強度は垂直応力軸上に中心をもち、応力平面の原点を通して破壊包絡線に接するMohr応力円の直径に相当する応力として決定した。また、空隙率は定常破壊状態における試験体高さの測定結果と試験体質量および粒子密度から算出した。粒子密度は空気比較式ピクノメータで測定した。すべてのせん断試験において、試験体の寸法は直径100mm、高さ約10mmである。なお、せん断試験機、測定方法、解析方法などの詳細については、文献^{1,3,6)}を参照していただきたい。

各種粉体の直接せん断試験における ε と σ_1 の測定結果をEq. (2)に基づく最小二乗法の適用によって、係数 a 、 b の値を決定した。係数 a 、 b と比表面積 D_{sp} の関係をFig. 1に示す。なお、比表面積は恒圧通気式比表面積測定装置によって測定した比表面積から、Ergun式を用いて算出した。

係数 a は最大圧密応力の単位応力1kPaに相当する

Fig. 1 Plot of experimental coefficients a and b against specific surface diameter for 20 powders used

空隙率であるから、微粉であるほど大きな値がでることが予想される。事実、比表面積の減少とともに増加する傾向がみられる。図中の実線に対して、 a の値は破線で示すような $\pm 15\%$ の範囲にほぼ収まるが、ばらつきも大きい。

係数 b は作用応力に対する圧縮性の程度を表すものと考え、係数 a と同様に、比表面積の減少とともに増加することを予想して、図中の実線のように表した。しかし、係数 a に比べて、さらにばらつきが大きく、破線で示すような $\pm 30\%$ の範囲より明らかに外れる点もある。

粉体の圧縮性には、粒子間の摩擦と付着、粒度分布、粒子形状、材料特性などが関与することが考えられ、圧縮実験式を比表面積と最大圧密応力だけで記述することには無理がある。しかし、既往の実験式においても、実験係数の予測ができなければ、空隙率は推算できない。

そこで、空隙率推算の第1近似として、Fig. 1に示した実線を用いると、係数 a 、 b は比表面積とつぎのように相関される。

$$a = 0.80 - 0.06 \ln D_{sp} \quad (3)$$

$$b = 0.034 - 0.006 \ln D_{sp} \quad (4)$$

ここで、 D_{sp} は比表面積で、単位は μm である。

実験に用いた粉体のうちのいくつかについて、空隙率と最大圧密応力の測定結果をFig. 2に示す。また、Eq. (2)に基づいて最小二乗法を適用した計算結果を実線で示した。最大圧密応力の範囲を限定すれば、個々

Fig. 2 Relationship between voidage and major consolidation stress
(the solid lines show results obtained by a method of least square
and the broken lines show results estimated from Eqs. (2) to (4))

の粉体について、Eq. (2)が十分に満足されている。なお、Tsubaki and Jimbo⁷⁾による粉体層の引張破断強度の測定結果においても、空隙率と圧縮応力の関係はFig. 2と同様の結果が示されている。

一般に、空隙率の測定結果は比表面積径が小さくなるほど大きな値を示すが、ソーダ灰については逆転している。比表面積径 20.6 μm のソーダ灰は、36.2 μm のソーダ灰をパイロット規模の空気輸送ラインで輸送した結果として得られたものであり、摩耗による粒子形状の変化および細粒の発生が十分に予想される。そのため、空隙率と比表面積径の関係が他の粉体に比べて、逆転したものと考えられる。

また、各粉体の比表面積径を用いてEqs. (3), (4)か

ら係数 a , b を求め、Eq. (2)から推算した空隙率をFig. 2に破線で示した。Eqs. (3), (4)からわかるように、比表面積径が小さくなるほど、空隙率は大きくなる傾向がある。

溶融アルミナの場合、空隙率の推算値は測定値に対して、-3%~+10%の範囲にある。最大の相違は比表面積径が8.25 μm の場合に示されている。同様に、ポリビニルアルコールの場合、-19%~-13%、ソーダ灰の場合、-3%~+15%、ウラシルの場合、-2%~+11%、カオリンの場合、約 +5%、酸化マグネシウムの場合、-16%~-7%、そして転炉ダストの場合、-10%~-7%である。

本実験で用いた全粉体について、Eqs. (2)~(4)に

よる空隙率の推算値は測定値に対して、-19%～+25%の範囲にある。したがって、空隙率の推算だけを目的とする場合には、本推算法は粉体によって不適切な場合もある。

3. 流動度の算定に対する空隙率推算法の適用性

粉体の流動度は次の式で表せることをすでに報告した³⁾。

$$FI = 10^3 \kappa (g \rho_s)^{-1} D_{sp}^{-2\beta} k \left\{ \frac{\pi \sigma_1}{k(1-\varepsilon)} \right\}^\beta \quad (5)$$

ここで、 FI は流動度、 ρ_s は粒子密度、 g は重力加速度、 D_{sp} は比表面積径、 k は平均接触点数、 ε は空隙率、 σ_1 は最大圧密応力、 β と κ は粉体材料に固有の実験係数である。

平均接触点数については、鈴木ら⁸⁾のランダム充填層に関する電子計算機シミュレーションによる解析結果の近似式を用いる。

$$\begin{aligned} \varepsilon > 0.7; k &= 12.1202 - 20.9195\varepsilon + 8.8436\varepsilon^2 \\ \varepsilon \leq 0.7; k &= 2.812(1-\varepsilon)^{-1/3} / A^2(1+A^2) \end{aligned} \quad (6)$$

ここで、 $A = 0.07318 + 2.193\varepsilon - 3.357\varepsilon^2 + 3.194\varepsilon^3$

本実験で使用した各種粉体の粒子密度および係数 β と κ の値を**Table 1**に示す。なお、係数 β と κ は定容積型直接せん断試験機^{3,6)}による破壊包絡線の測定結果から、一軸破壊強度、最大圧密応力および空隙率を求め、Eq. (5)に基づいて最小二乗法を適用することによって決定した。

Fig. 2に示した粉体について、流動度の測定結果と計算結果を**Fig. 3**に示す。図中の実線と破線は、すでにFig. 2に示した実線と破線に対応した空隙率に基づいて、それぞれEq. (5)から計算した流動度を表して

いる。

溶融アルミナの場合、空隙率の推算値は測定値に対して最大約+10%(8.25 μ m)であったが、流動度の計算結果にはほとんど影響していない。ポリビニルアルコールの場合、空隙率の推算値は19%もの大幅な減少であっても(15.2 μ m)、流動度の計算結果には全く影響しない。ソーダ灰についても、空隙率の推算値が約+15%(20.6 μ m)であったのに対して、流動度は約-6%にとどまっている。さらに、カオリンとウラシルの場合、空隙率の推算値はそれぞれ+5%と最大-10%であったが、流動度の算定には全く影響しない。

しかし、酸化マグネシウムと転炉ダストの場合、空隙率の推算値はそれぞれ7～16%および7～10%の減少であったのに対して、流動度の算定結果はそれぞれ約50%と約25%の大幅な減少となっており、他の粉体とは明らかに異なっている。

以上のように、流動度の算定に対する空隙率の影響が各粉体によって異なるのは、粉体に固有な係数 β に関係している。そこで、Eq. (5)の右辺の空隙率と接触点数を含む項 $k \{ \pi / k(1-\varepsilon) \}^\beta$ の値が空隙率によって変化する様子について、係数 β の値をパラメータとして**Fig. 4**に示す。たとえば、 β が0.6のとき、 $k \{ \pi / k(1-\varepsilon) \}^\beta$ の値は ε によってほとんど変化しない。このため、ポリビニルアルコール($\beta=0.61$)の流動度の計算結果が空隙率に全く影響されなかったことが理解できる。また、 β が0.5のとき、 ε が15%変化することにより、 $k \{ \pi / k(1-\varepsilon) \}^\beta$ は約6%変化する。したがって、ソーダ灰($\beta=0.49$)の流動度の計算結果には、約6%の相違が生じた。

このように、 β の値が0.4～0.7付近にあり、空隙率

Table 1 Properties of materials used

Material	ρ_s (kg/m ³)	β (-)	$\kappa \times 10^3$ (kPa ^{1-\beta} μm ^{2β})
Polyvinil alcohol	1290	0.61	6050
UHMW polyethylene	935	0.61	2730
Lactose	1530	0.43	6880
Uracil	1620	0.54	1350
Soda ash	2260	0.49	1950
Fused alumina	3850	0.44	1370
Calcium phosphate	2340	0.44	1600
Calcium carbonate	2700	0.40	960
Calcium hydroxide	2330	0.53	810
Kaolin	2690	0.52	687
Convertor dust	4930	1.18	221
Magnesium oxide	3650	1.0	8.78

(Notation) UHMW : Ultra high molecular weight

Fig. 3 Comparison of flowabilities (the solid and broken lines show results computed from Eq.(5) with voidage given by each line in Fig. 2)

Fig. 4 Variation of a term $k\{\pi/k(1-\varepsilon)\}^\beta$ in Eq. (5) with voidage

の変化が15%程度ならば、流動度は約10%程度の相違で予測できる。このことは、実験に用いた多くの粉体について当てはまる。

しかし、酸化マグネシウムと転炉ダストのように、 β が1以上、かつ ε が大きい場合、Fig. 4から予想できるように、 $k\{\pi/k(1-\varepsilon)\}^\beta$ の変化率が著しく大きくなる。そのため、空隙率の推算値が実際と異なる場合には、流動度の算定結果に重大な影響が生じる。したがって、 β が0.8を越えるような大きな値を有する粉体では、Eqs. (2)～(4)による空隙率推算法を流動度の算定に適用する場合、注意が必要である。

空隙率と比表面積径の相関関係が明らかになると、各種粉体が同じ比表面積径を有する場合について、流動度を比較できる。Table 1に示した粉体の中から、ポリビニルアルコール、超高分子量ポリエチレン、ラクトース、ウラシル、ソーダ灰、熔融アルミナが共に比表面積径 $5\mu\text{m}$ である場合を想定して、流動度の計算結果をFig. 5に示す。この場合、比表面積径が同じで

1 Polyvinyl alcohol 4 Uracyl
2 Lactose 5 Soda ash
3 UHMW polyethylene 6 Fused alumina

Fig. 5 Comparison of flowabilities when various materials have a specific surface diameter of $5\mu\text{m}$

あるから、Eqs. (2)~(4)で計算される空隙率は同じである。

Fig. 5 に示した計算結果から、ポリビニルアルコール、ラクトース、超高分子量ポリエチレンの流動性は他の粉体に比べて極端に悪いことがわかる。なお、こ

のような流動性の順位は比表面積径に依存しない。したがって、粒子材質の違いは流動性に大きく影響していると考えられる。

4. 結 言

粉体の比表面積径と最大圧密応力だけの関数とする空隙率の推算法として、Eqs. (2)~(4)を示した。20種の粉体について、空隙率の推算値は、最大圧密応力が200kPa以下の範囲における直接せん断試験による測定値の-19%~+25%の範囲にあった。そのため、粉体によっては、本推算法は不適切な場合もある。

しかし、粉体の流動度の算定に限定して適用する場合、粉体固有の係数 β の値が0.4~0.7であるとき、約10%程度の相違で流動度を算定できるため、空隙率推算法は十分に適用できる。したがって、粒度の変化に対応して、流動度を算定できることになり、流動性の評価に有用である。

これに対して、 β の値が大きく、かつ空隙率の大きい粉体については、流動度は25~50%の過小評価となる場合があり、空隙率推算法の適用には注意が必要である。

Nomenclature

a	: coefficient defined by Eq. (3)	(-)	p	: compression stress	(Pa)
b	: coefficient defined by Eq. (4)	(-)	v	: volume	(m^3)
D_{sp}	: specific surface diameter	(μm)	β	: coefficient in Eq. (5)	(-)
FI	: flowability index	(m)	ε	: voidage	(-)
g	: acceleration due to gravity	(m/s^2)	κ	: coefficient in Eq. (5)	($\text{kPa}^{1-\beta}\mu\text{m}^{2\beta}$)
k	: mean contact number	(-)	ρ_s	: particle density	(kg/m^3)
m	: coefficient in Eq. (1)	(Pa)	σ_1	: major consolidation stress	(kPa)
n	: coefficient in Eq. (1)	(m^3)			

References

- 1) Tsunakawa, H. : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 19, 516(1982)
- 2) Jenike, A. W. : *Chem. Eng.*, 175(Dec. 1954)
- 3) Tsunakawa, H. : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 27, 4(1990)
- 4) Hara, R. and K. Umeyama : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 19, 18(1982)
- 5) Usui, S., H. Tsunakawa and R. Aoki : *J. Res. Assoc. Powder Technol., Japan*, 10, 271(1973)
- 6) Tsunakawa, H. : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 23, 437(1986)
- 7) Tsubaki, J. and G. Jimbo : *Powder Technol.*, 37, 219(1984)
- 8) Suzuki, M., T. Oshima and I. Hasegawa : *KONA*, No. 4, 4(1986)