高速気流中衝撃法による粗粒子間移動 に及ぼす微粒子の固定化効果

The Fixation Effect of Fine Particles on their Transfer Between Coarse Ones by High-Speed Gas Impact

篠原 邦夫*, 乙村 幸明*, 内山 智幸**, 尾谷 賢**

Kunio SHINOHARA, Yukiaki OTOMURA, Tomoyuki UCHIYAMA, Masaru OTANI

The complicate mechanism of particle coating by high-speed gas impact is experimentally analyzed on fine particle transfer but only between coarse particles.

As a result, the transfer probability of a fine particle decreases with increasing pretreatment or processing time due to its sinking and fixation effects on the coarse particle surface on impact. A smaller fine-particle is associated with a higher rate of sinking due to its higher impact pressure.

Key Words : Mechanical Particle Coating, Gas Impact Blending, Fixation Effect, Transfer Probability

1. 緒 言

高速気流中衝撃法による被覆型微粒子の生成機構について、前報¹⁾では壁面効果²⁾に加え、被覆される粗粒子（母粒子と呼ぶ）表面での、被覆する微粒子（子粒子と呼ぶ）の固定化効果を考慮し、子粒子移動速度の検討をした。その結果、実際の被覆機構における子粒子粒径、母粒子粒径、ロータ周速の影響について明らかにした。

本報では、子粒子移動に関する母粒子—壁面間および母粒子間の基本被覆機構の複合した系について、特に母粒子間のみでの子粒子移動過程に関する単純化した実験から、子粒子の固定化効果についてより詳細に検討する。

2. 理 論

子粒子が母粒子表面だけに存在し、被覆装置の内壁

面には存在しない場合について、前報¹⁾同様、母粒子表面の子粒子の可動性、埋没・固定化を考慮して、被覆過程を定式化する。その際、母粒子の被覆率の違いに応じて子粒子の埋没状態が異なることが考えられるので、 f 個の子粒子をもつ母粒子が衝突した際に、子粒子を 1 個得る確率 $G(f)$ および子粒子を 1 個失う確率 $L(f)$ は、それぞれ次式で表される。

$$G(f) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{f}{N} A' \right) \eta' P_{\text{trc}} \frac{\langle f \rangle}{N} \quad (1)$$

$$L(f) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{f}{N} A \right) \eta P'_{\text{trc}} \frac{f}{N} \quad (2)$$

ここで、 N は母粒子表面で最密充填をする時の子粒子の数で、前報¹⁾同様、 A 、 A' は固定化係数、 η 、 η' は可動係数、 P_{trc} 、 P'_{trc} は子粒子の移動確率である。' は同種だが異なる値を示す。母粒子表面の子粒子数 f が母粒子一個あたりの平均個数 $\langle f \rangle$ より少ない母粒子群（未被覆側の母粒子群）を I、 $\langle f \rangle$ より多い母粒子群を II とし、各母粒子群における平均粒子数 $\langle f_I \rangle$ および $\langle f_{II} \rangle$ は母粒子間の衝突回数 ν によって変化し、それぞれ次式のように表わされる。

・母粒子群 I :

$$\frac{d\langle f_I \rangle}{d\nu} = G(\langle f_I \rangle) - L(\langle f_I \rangle)$$

1997年8月11日受付

化学工学会盛岡大会（1996年8月、盛岡）にて発表

* 北海道大学大学院工学研究科物質工学専攻
（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）TEL. 011-706-6590
Division of Materials Science and Engineering, Graduate
School of Engineering, Hokkaido University
（West 8, North 13, Kita-ku, Sapporo-shi, 060-8628）

**北海道立工業試験場資源エネルギー部
（〒060-0819 札幌市北区北19条西11丁目）TEL. 011-747-2211
Division of Resource and Energy, Hokkaido Industrial
Research Institute
（West 11, North 19, Kita-ku, Sapporo-shi, 060-0819）

$$= \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\langle f_I \rangle}{N} A_I \right) \eta_I P_{\text{tre}} \frac{\langle f \rangle}{N} - \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\langle f \rangle}{N} A \right) \eta P_{\text{tre I}} \frac{\langle f \rangle}{N} \quad (3)$$

・母粒子群Ⅱ：

$$\frac{d\langle f_{II} \rangle}{d\nu} = G(\langle f_{II} \rangle) - L(\langle f_{II} \rangle) \\ = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\langle f_{II} \rangle}{N} A_{II} \right) \eta_{II} P_{\text{tre}} \frac{\langle f \rangle}{N} - \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\langle f \rangle}{N} A \right) \eta P_{\text{tre II}} \frac{\langle f_{II} \rangle}{N} \quad (4)$$

3. 実 験

本実験では、前報¹⁾と同様に母粒子に低密度ポリエチレン (25 μm , 0.918g/cm³), 子粒子に単分散シリカ (0.5, 0.7, 1.0 μm , 1.90g/cm³) を用い、装置はハイブリダイザー (奈良機械製作所製, NHS-O型) を使用した。母粒子の平均被覆率 r_c は、母粒子表面上の子粒子の最密充填時の粒子数に対する実際の子粒子数の割合とした。実際の子粒子数は、走査型電子顕微鏡で取り込んだ被覆粒子表面像から画像処理装置により測定し、母粒子40個についての平均値を用いた。

母粒子間の子粒子移動に関する実験方法としては、未被覆母粒子と被覆母粒子 (これは、あらかじめ被覆率0.5となるように母粒子と子粒子を秤量し、本装置にて周速60m/sで前処理時間60, 120, 300秒として調製した被覆粒子のことで、その被覆率 r_c は上記の画像処理装置で計測した) を本装置内に同時に投入し、未被覆母粒子の被覆率を測定した。ロータ周速は60m/s、処理時間は10, 20, 30, 60秒とした。被覆母粒子と未被覆母粒子の配合比は、母粒子の質量基準で2g:8gとした。従って母粒子の平均被覆率は0.1である。

4. 結果および考察

一般に母粒子表面の子粒子は、繰り返し受ける衝撃による被覆処理に伴い埋没し、Eqs. (3), (4)における母粒子間の子粒子移動確率 P_{tre} は変化すると考えられる。そこで本実験では、各三種類の被覆母粒子の前処理時間と子粒子粒径について、被覆速度の変化を測定した。その結果、Figs. 1, 2, 3に示すように、いずれも、処理時間とともに未被覆母粒子の平均被覆率 r_c の増大が確認された。その際、被覆母粒子の前処理時間

Fig. 1 Effect of pre-treatment time on variation of mean coating ratio with processing time due to collision only among coarse particles ($d_t = 0.5 \mu\text{m}$)

Fig. 2 Effect of pre-treatment time on variation of mean coating ratio with processing time due to collision only among coarse particles ($d_t = 0.7 \mu\text{m}$)

Fig. 3 Effect of pre-treatment time on variation of mean coating ratio with processing time due to collision only among coarse particles ($d_t = 1.0 \mu\text{m}$)

Fig. 4 Effect of pre-treatment time on variation of $P_{trc}\nu_t$ with mean coating ratio ($d_f=0.5\mu m$)

Fig. 5 Effect of pre-treatment time on variation of $P_{trc}\nu_t$ with mean coating ratio ($d_f=0.7\mu m$)

Fig. 6 Effect of pre-treatment time on variation of $P_{trc}\nu_t$ with mean coating ratio ($d_f=1.0\mu m$)

および子粒子粒径の増大により、被覆速度が大よそ減少した。そこで、Eq. (3) をもとに以下のようにして

各前処理時間と各子粒子径について母粒子間の子粒子移動確率 P_{trc} の比較検討を行った。

処理時間の比較的短い区間では、未被覆母粒子の子粒子を失う確率は、子粒子を得る確率に対し十分に小さいと仮定し、Eq. (3) の右辺第二項を無視して、次式を用いた。

$$\frac{d\langle f_1 \rangle}{d\nu} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\langle f_1 \rangle}{N} A_1 \right) \eta_1 P_{trc} \frac{\langle f \rangle}{N} \quad (5)$$

被覆母粒子上で、ある割合の固定化されていない子粒子が未被覆母粒子に移動可能であるが、前処理時間の増大によりその確率 P_{trc} は減少すると考えられる。そこで、 P_{trc} は微小時間内では一定であるとし、Eq. (5) を積分し次式を導いた。

$$\int_{\langle f_1 \rangle_1}^{\langle f_1 \rangle_2} \frac{1}{\left(1 - \frac{\langle f_1 \rangle}{N} A_1 \right)} d\langle f_1 \rangle = \frac{\eta_1 P_{trc}}{2} \frac{\langle f \rangle}{N} \int_{\nu_1}^{\nu_2} d\nu \quad (6)$$

ここで、 $\langle f_1 \rangle_1/N$ 、 $\langle f_1 \rangle_2/N$ をそれぞれ r_{c1} 、 r_{c2} に、単位時間あたりの衝突回数を ν_t として ν_1 、 ν_2 をそれぞれ $\nu_1 t_1$ 、 $\nu_1 t_2$ と置き換え、 $\langle f \rangle/N=0.1$ をEq. (6) に代入すると、次式が得られる。

$$\ln \left(\frac{1 - A_1 r_{c2}}{1 - A_1 r_{c1}} \right) = - \frac{A_1 \eta_1}{20N} P_{trc} \nu_t (t_2 - t_1) \quad (7)$$

A_1 、 η_1 は被覆率が低く処理時間の短い区間においてはほぼ一定とし、 A_1 については前報¹⁾の結果から、 $r_c=0$ における子粒子粒径0.5、0.7、1.0 μm の時の値1.35、1.55、3.00とした。また、 η_1 は1としてEq. (7) から $P_{trc}\nu_t$ を求めた。このようにして得られた被覆母粒子の $P_{trc}\nu_t$ と未被覆母粒子の平均被覆率の関係を Figs. 4, 5, 6 に示す。ここで $P_{trc}\nu_t$ は単位時間あたりの母粒子間衝突による、被覆母粒子から未被覆母粒子への子粒子移動個数である。

いずれについても、未被覆母粒子の平均被覆率の増大に伴い被覆母粒子の $P_{trc}\nu_t$ が減少した。その際、前処理時間の増加に伴い、 $P_{trc}\nu_t$ ないし子粒子移動確率 P_{trc} の減少が認められた。これは、衝突数の増加による子粒子の埋没・固定化効果の増大を示している。そこで、Figs. 4, 5, 6 から、平均被覆率0における $P_{trc}\nu_t$ を補外して求め、それを各前処理時間における初期値として Fig. 7 に示した。その結果、子粒子粒径の減少に伴い、同一前処理時間での $P_{trc0}\nu_t$ の増大および $P_{trc0}\nu_t$ の前処理時間による減少割合の増大が認められた。後者については、子粒子粒径の減少によって衝

Fig. 7 Variation of $P_{trco} \nu_t$ with pre-treatment time

Fig. 8 Relation between a and fine particle diameter

突の際の接触点での応力が増大し、埋没の速度が増大したためと考えられる。これらの $P_{trco} \nu_t$ の値を一次式により近似して、得られた傾き a と子粒子粒径の関係を Fig. 8 に示す。その結果、子粒子粒径の増大に伴い、 a は増大し、埋没・固定化速度の減少を示していると考えられる。

5. 結 言

高速気流中衝撃法による微粒子被覆機構について、実験によって被覆速度を求め、母粒子間の子粒子

移動速度式に基づき検討した結果、以下の知見を得た。

- 1) 前処理時間の増加に伴い子粒子移動確率が減少したことから、処理時間の増加は子粒子の母粒子表面への埋没・固定化を強める。
- 2) 子粒子径の減少に伴い子粒子移動確率の前処理時間による減少割合が増大したことから、子粒子の粒子径が小さいほど衝撃圧力は増大し母粒子表面への埋没・固定化の速度を速める。

Nomenclature

A : fixation coefficient	(-)	r_c : mean coating ratio of coarse particles	(-)
d_f : diameter of fine particle	(μ m)	t : processing time	(s)
f : number of fines on coarse particle	(-)	ν : number of collision between coarse particles	(-)
$\langle f \rangle$: average number of fines f	(-)	ν_t : number of collision per unit time	(s $^{-1}$)
$G(f)$: probability that coarse particle having f fines gains another fine by collision	(-)	η : mobility coefficient	(-)
$L(f)$: probability that coarse particle having f fines loses one fine particle by collision	(-)	Subscripts	
N : maximum number of fines, f , on coarse particle	(-)	I : region where number of fine particles per coarse one is smaller than average number	
P_{trco} : transfer probability of fine particle between coarse particles	(-)	II : region where number of fine particles per coarse one is larger than average number	
		0 : initial	

References

- 1) Shinohara K., Y. Otomura, T. Uchiyama and H. Minoshima: "The Fixation Effect of Fine Particles on the Coating Mechanism by Dry Impact Blending", *J. Soc. Powder Technol., Japan*, **35**, 111-117 (1998)
- 2) Shinohara K., K. Takayashiki, M. Otani and T. Uchiyama: "Particle Coating Mechanism of Fine Particles by High-Speed Gas Impact: Wall Effect.", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 356-364 (1996)