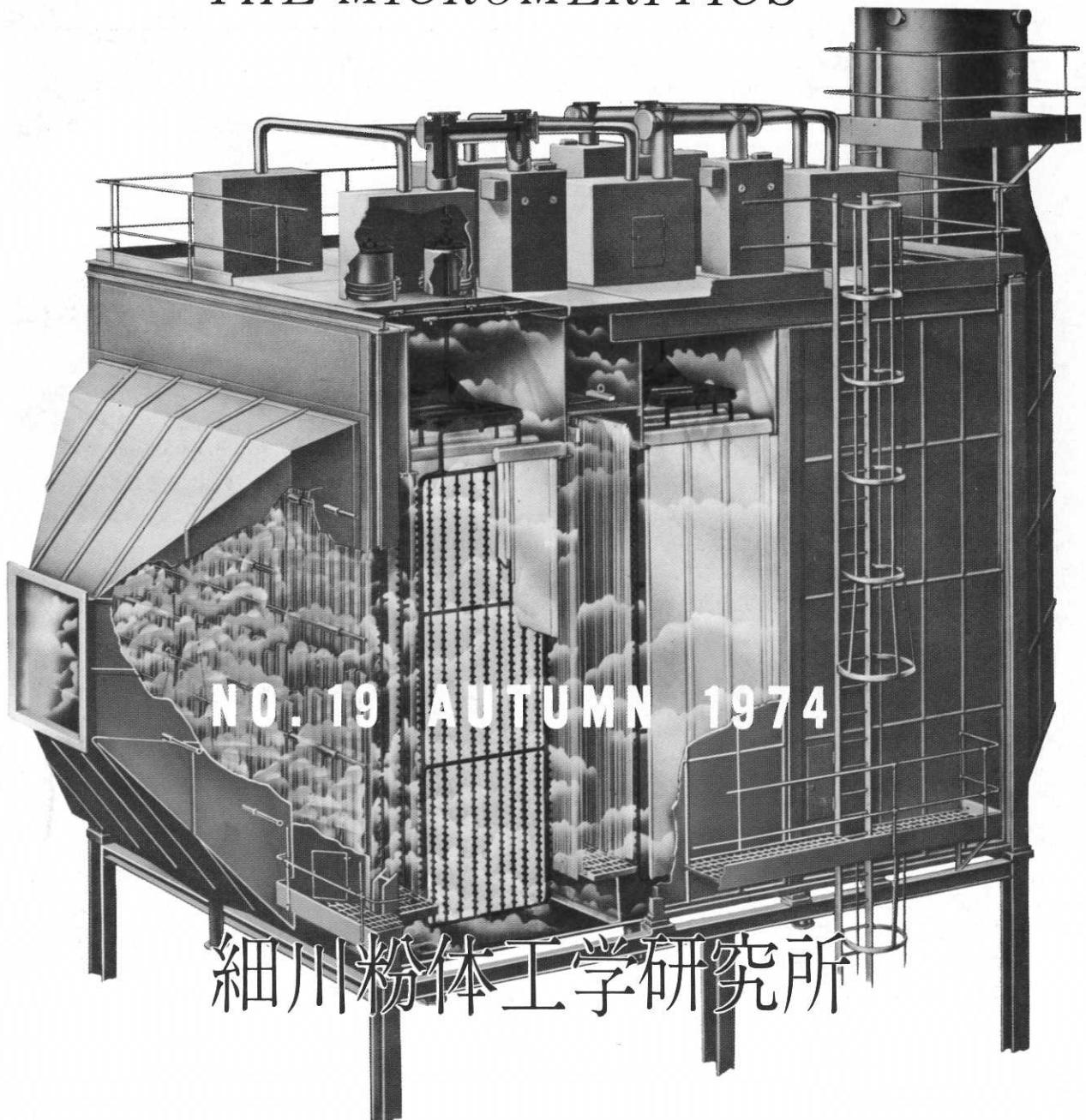


# 粉 碎

THE MICROMERITICS



## 卷頭言

### リサイクリング技術について思うこと

吉 田 哲 夫

Tetsuo Yoshida



地球上に文明が起ってから7,000年、そして近代工業の勃興から300年、人間はこの限りある地球で無限に資源があるごとく錯誤して使いに使って、そしてついに有限の壁にぶつかろうとしている。

このまま浪費型の社会構造を続けて行けばやがては子孫に資源枯渇と環境破壊のおそるべき二悪を残し、人類を滅亡の砂漠へとおしゃることにならうということは随分以前から言われて来たことであるが、いよいよとならないとなかなか手がつかないものである。わが国は現在世界第三位のG N P 大国を維持しているが、今のうちにリサイクリングに取り組まなければ経済社会の運営もおぼつかないある種の限界点にきていると新聞は報道している。日本政府も今日までこの事についていろいろと調査していたが、いよいよ本腰を入れてリサイクリング法を次の通常国会に提案する方針を固めたらしい。

「リサイクリング」とは「資源の再利用」と訳されているが、これは廃棄物からエネルギーおよび有用物質らの資源を再生することで、これを無公害の形でやろうとするのが Recycling Technology であり、これはとくにアメリカで Garbology (ゴミ学) の大きな部分を占めているとのことである。

リサイクリングにはソフト (重にシステム) とハード (実際のプロセスと装置) とがあり、ハードの技術の部分を覗いてみるとそのほとんどが化学工学技術で処理できるものであることがわかる。そうすると公害を無くそうとする技術も大いに化学工学の知識を必要とするものであるし、廃棄物から有用物質を再生しようとする技術もその大部分が化学工学であるなら、人類を滅亡へおしゃることを防止するのは化学工学であるということになり、必然的に化学工学技術者の人類福祉への任務はますます重いと言ふことになる。

リサイクリング技術のハードを荷なうのは化学工学であると言つたが、実はこのリサイクリングの化学工学の

内容の大きな部分が粉体工学に関係するものであると言つても言い過ぎではないであろう。

ここに粉体工学とはどんな学問体系を持ったものか、一寸振りかえって考えてみると、一応次のようなものであらうと思われる。

粉体 (粒子) 物理学、粉体物理化学、粒度論、粉体力学、流動論、粉体工学単位操作 (輸送、粉碎、混合、分級、分離、乾燥、晶析、吸着、搅拌、固定層、移動層、流動層ら)、粉体プロセス、同設計制御、測定らと、これらに演習、実験、設計製図らがくわわって体系づけられたものであらう。

いま大気汚染防止関係を考えてみよう、大都市の大気中に分散するエアロゾルは都会での人間の生活を不愉快にしているが、これを集じんするのはなかなか難しい。それでせめて居室内に取り入れる空気だけでも清らかにしようとして室内空気清浄機がいろいろ工夫されているが、 $1\mu$  以下の大きさの粒子をとり切るのは難しい。しかもこの大きさの粒子はそのほとんどが肺胞に達すると言われている。しかしなんとか工夫を重ねてこれを取り除き部屋の中におれば常に空気は綺れいだと言ふるようにはねばならない。これには微粒子の凝集・成長の理論を知らねばならないであろう。これを考へるためにには微粒子の物理学と流動論が学問として必要となる。また排水の第三次処理や飲料化が言ひ出されているが、これには汎過や吸着の操作が必要となってくる。そうすると水中の極微粒子に関する物理化学的知識がなければ上手にゆかないであろう。すなわちこのような粉体の基礎学問が必要となってくる。

次に固型廃棄物から有用物質の回収を考えてみると、破碎・分別が処理として重要な基礎技術であり、廃プラスチック再利用プロセスを見ても、粗碎→異物選別→粉碎→貯蔵→分級・供給らの単位操作がプロセス前部の重要な部分をしめ、仕上げの処で造粒→整粒らの操作が入

## “粉碎” 19号 昭和49年(1974) 秋季号 目次

- 【卷頭言】 リサイリング技術について思うこと……………大阪府立大学 吉田 哲夫……(1)
- 【研究報告】 粉碎方程式の解析解について……………北海道大学 中島 耀二……(2)  
田中 達夫
- 【研究報告】 ボールミル粉碎による石英砂の粒度分布変化に  
に対する試料挿入量およびボール挿入量の影響……………昭和大学 金庭 延慶……(12)  
池川 昭子  
新田 伸子  
飯島 寿子
- 【研究報告】 実験用連続ボールミルにおける粒子の滞留時  
間分布について……………東京大学 富田 美穂……(28)  
太田 元  
井上外志雄  
今泉 常正
- 【研究報告】 着色粒子を用いた薬剤粉体の混合研究  
一色差論的考察……………神戸女子薬科大学 松田 芳久……(35)  
林 信一  
京都大学 岡田寿太郎
- 【研究報告】 密度差による偏析を伴う粉粒体混合過程のモ  
ンテ・カルロ・シミュレーション……………大阪府立大学 矢野 武夫……(42)  
荒谷 敏朗  
寺下敬次郎  
知福 博行
- 【研究報告】 リング式剪断試験器による測定値と Carr の  
流動性指数との関連……………細川粉体工学研究所 横山 藤平……(51)  
中川 文雄  
彼谷 慶美
- 【技術報告】 大型貯槽における貯槽形状と粉体圧……………清水建設㈱ 杉田 稔……(58)
- 【研究報告】 エアストライドにおける粉粒体の流動特性に  
ついて……………北海道大学 篠原 邦夫……(64)  
斎藤 和男  
田中 達夫
- 【技術報告】 高濃度空気輸送装置の試作……………細川粉体工学研究所 浦山 清……(73)  
北村 隆
- 【総説】 サスペンションのレオロジー……………東北大學生 梅屋 薫……(80)
- 【隨筆】 椿の花と寅彦先生と……………富山大学 沢島 荘……(89)
- 【ニュース】 第8回粉体に関する講演討論会……………細川粉体工学研究所 編集部……(90)
- 【参考資料】 混合偏析しやすい粉ににくい粉……………北海道大学 田中 達夫……(99)
- 【解説】 統計的推定(第1回)……………東京大学 菅沼 彰……(96)
- 【参考資料】 タッピング圧密に関する二、三の考察……………法政大学 川北 公夫……(100)  
㈱セイシン企業 池田 正明
- 【参考資料】 水銀圧入法ポロシメータによる多孔性物質の  
細孔分布について……………富山大学 諸橋 昭……(106)  
長谷川哲夫  
兜山 康広

【総 説】	川北粉体圧縮式の特性定数	法 政 大 学 川式 公夫	(112)
【製品紹介】	乾燥装置	㈱細川鉄工所 化学機器事業本部	(122)
【新製品紹介】	ホソカワ／マイクロ ACM パルペライザー	㈱細川鉄工所 粉体機器事業本部	(124)
【ニ ュース】	海外活動の紹介	㈱細川鉄工所 海外事業部	(127)
	ホソカワニュース		(129)

---

	Ritterger と新選組	(11)
<b>新製品ひとこと</b>	ダイガス／ホソカワ リンレックスミル (LINREX MILL)	(27)
	ホソカワ／トリット ダウンドラフトベンチ (特許)	(50)
	カラコーダ (COLOCORDER)	(63)
	トーラスディスク ドライア (TORUS DISC DRYER)	(95)
<b>豆 ニ ュース</b>	改正された試験用ダイスト規格 (JIS Z 8901)	(1)
	新型フロートローナーその改良のポイント	(72)
<b>裏話アレコレ</b>	コナとオナガコロと数学	(121)

---

#### Original Reports:

- An Analytical Solution to the Batchgrinding Equation ..... Y. Nakajima, T. Tanaka
- Influence of the Total Volume of Silica Sands and Balls inserted in a Mill on Variation of the Particle Size Distribution of silica Sands by Ball-milling ..... N. Kaneniwa, A. Ikekawa  
N. Nitta, H. Iizima
- On the Residence Time Distribution of Particles in a Laboratory Continuous Wet Ball Mill ..... Y. Tomida, H. Ohta,  
T. Inoue, T. Imaizumi
- Mixing of Pharmaceutical Powders Examined by Use of Coloured Particles: Discussions on Coloration Difference ..... Y. Matsuda, S. Hayashi,  
J. Okada
- Monte Carlo Simulation of Solids Mixing Process with Segregation due to the Difference in solids Density ..... T. Yano, T. Aratani  
K. Terashita, H. Chifuku
- Correlation of "Flowability Index" defined by R.L. Carr and Shear Properties measured with Ring Shear Cell ..... T. Yokoyama, F. Nakagawa,  
N. Kaya
- Effects of Bin Shapes on Pressures in Big Bins ..... M. Sugita
- Flow Properties of Particles on Air-Slide ..... K. Shinohara, K. Saito,  
T. Tanaka
- A Proto-type Apparatus of the High Concentration Pneumatic Conveyor used the "Powder Valve" ..... K. Urayama, T. Kitamura

ってくる。都市のゴミ処理も極く最近では焼却法が資源回収無公害処理方式にかえられつつあり、しかもゴミの運搬には空気輸送がとり入れられようとしている。ゴミは各家庭からあるいは各デポから真空、圧送、カプセルからの様式でパイプで処理プラントまで送られて、ここでサイクロン、バッグフィルター、ベンチュリーなどで空気と分けられてピットに入り、それが粗碎機にかけられて大きさを整えられたものはサイロに入れられ、ある時間おかれると水分がゴミ全体にうまく分散される。これを定量づつ出して次の処理装置（ガス化・液化）に入れられて行く。勿論24時間連続で制御操作のもとで行われるのであるが、これらは皆粉体工学単位操作そのものであ

り、また連結されて粉体プロセスの形態をとっている。

極微粒子から粗大粒子まで、粒子物理化学的処理から破碎・分別らの単位操作まで、皆粉体工学技術の範疇に入ってくるので、好むと好まないにかかわらず、これから省資源型社会構成をとり、そしてリサイクリングしながら生産をあげて行かねばならない日本では粉体工学の技術を重点的に身につけた化学工学技術者ないしは環境工学技術者が益々必要となって来ることであろう。

\* 大阪府立大学工学部  
(〒591 堺市百舌鳥梅町4-804)  
Tel 0722-52-1161

## 豆ニュース

### 改正された試験用ダスト規格

(JIS Z8901)

昭和33年に制定された試験用粉体の規格 (JIS Z 8901) は、昭和38年および昭和44年の改正を経て、今回(昭和49年)第3回目の改正が行なわれた。主な改正点は従来の8種類の試験用粉体に新しく7種類の試験用粉体が追加されたことと、試験用粉体の名称が試験用ダストに変更されたことである。この改正の背景には、防じんマスクやエアフィルタの性能試験用として、エアロゾルおよび混合ダストの規定を追加することが要望されたこと、従来の試験用粉体に対しても、更にもっとこまかい粒子の規定が強く要望されてきたこと等がある。

新しく加えられた試験用ダストを簡単に紹介すると、

#### ①試験用ダスト9種(タルク)

中位径約4μの超微粒で高性能集じん、除じん装置試験に用いられる。

#### ②試験用ダスト10種(フライアッシュ)

中位径約5μの超微粒で、高性能集じん、除じん装置試験に用いられる。

#### ③試験用ダスト11種(関東ローム)

中位径約2μの超微粒で、高性能集じん、除じん装置試験に用いられる。

#### ④試験用ダスト12種(カーボンブラック)

粒径範囲0.03~0.20μの超微粒で高性能除じん装置試験に用いられる。

#### ⑤試験用ダスト13種(エアロゾル)

A(中位径約0.3μのDOP)とB(中位径約0.3μのステアリン酸)の2種類があり、超高性能エアフィルタ試験に用いられる。

#### ⑥試験用ダスト14種(エアロゾル)

中位径約0.8μのDOP粒子で、超高性能エアフィルタ試験およびクリンルームのリーク試験に用いられる。

#### ⑦試験用ダスト15種(混合ダスト)

試験用ダスト8種、12種およびコットンリンタの混合ダストで、プレフィルタ試験に用いられる。

試験用ダストのうち、1種、2種、3種、4種、5種、7種、8種、9種、10種、11種、および12種は日本粉体工業協会(京都市左京区吉田泉殿町1-101日本材料学会内、Tel (075) 761-7123)で、15種は日本空気清浄協会(東京都千代田区外神田6-7-5白金ビル、Tel (03) 833-1821)で販売している。

# 粉碎方程式の解析解について

An Analytical Solution to the Batch-grinding Equation

中島 耀二\* 田中 達夫\*  
Yoji Nakajima Tatsuo Tanaka

## Abstract

The authors understand that the significance of the comminution kinetics consists in the application of the basic knowledge and theory of grinding mechanisms to the design of milling equipments or circuits, and not in the computer simulation of a given grinding system. For this purpose, some analytical solutions to the batch grinding equation are much more convenient than numerical solutions. A few analytical solutions have been sought by assuming the selection and the breakage functions, but the solutions have defects in applicability or in theoretical background. In the present paper, another type of analytical solution is derived by assuming reasonable forms of the breakage and the selection functions. The solution is readily calculable by a small digital computer, but an approximate solution is also derived for practical convenience. The approximate solution has the same form of the well-known empirical equation reported by Andreev; this shows the applicability of the solution. As for theoretical background, the breakage function assumed here does not always agree with the experimental forms of breakage function reported by several investigators. However, judging from difficulty of the measurement, it is concluded that those experimental results cannot invalidate the assumption.

## 著者摘要

筆者らは、粉碎速度論の意義が、特定の粉碎系を電算機で模擬することにあるのではなく、粉碎機構の基本的な知識や理論を粉碎機や粉碎回路の設計などに応用することにあると考えている。このような目的に対しては、粉碎方程式の解析解が数値解よりもはるかに便利である。今までにも選択関数と破碎関数を仮定して解析解がわざかながら求められてきたが、それらの解は適応性あるいは理論的背景に欠陥がある。本報では、もう少しもっもららしい仮定のもとに別の形の解析解を誘導した。その解は小型電算機を用いれば容易に計算できるのであるが、実用の便のため近似解も誘導した。この近似解は Andreev によって報告された経験式と同じ形をしており、ここに誘導した解の適合性のよさを示している。一方、理論的な背景に対しては、ここに仮定した選択関数は必ずしも実験的に求められた形に一致するわけではないが、選択関数の測定の困難さから判断して、それらの実験がここでの仮定を否定するものではないことを示した。

\* 北海道大学工学部合成化学工学科

(札幌市北区北13条西8丁目)

Tel 011-711-2111 (内) 6952

## 1. まえがき

ここ10年来、粉碎速度論に関する研究は非常に多く発表されてきた。多くの研究の目的は、粉碎機の機能を数学的にモデル化し、粉碎プロセスを電算機でシミュレートすること自体にあるような印象を与えるが、最終的にはその成果を粉碎機や粉碎システムの設計、あるいは粉碎プロセスの制御などに利用しようとしているわけである。これにたいし筆者らは粉碎速度論の存在の意味が、微視的な破碎の機構を巨視的な粉碎操作に結びつけ、上記の目的をより効率的に達成しようとするところにあると考えている。しかし、残念ながら、粉碎速度論はまだその段階に達していないのが現状であるが、将来、粒子の破碎のメカニズムが解明されるにつれ、粉碎速度論が従来の経験的な理論を補強し、さらに発展さす時が来るであろうと期待している。

筆者らは、当面物理的に無理のある仮定は設けないで、粉碎理論がどこまで経験的事実を説明できるかに興味を持った。そうすることにより、粉碎速度論と実際の粉碎操作との関連性が少しでも明らかになればと願つたからである。本報では、粉碎速度論と物質収支から誘導された微積分方程式（粉碎方程式）に含まれる破碎閾数および選択閾数に、比較的無理の少ない閾数を仮定して厳密解を求め、それが近似的には経験的に得られた粉碎速度式（Andreev の式）に一致することを示すとともに、粒子の集合的粉碎実験から破碎閾数を求める従来の方法に若干の検討を加える。

## 2. 粉碎方程式と Harris の解

回分式の粉碎プロセスを数学的に表現する方法には、連続閾数で表現する方式と行列で表現する方式があるが、両者とも物質収支に粉碎速度の概念を取り入れて導びかれたものである。したがって連続閾数による表現を粒径および時間に関して離散的に取り扱い、和分の形にすると、行列による方式とまったく同じ計算をすることになる<sup>1)</sup>。しかし行列表示法では、始めから電算機による数値計算を前提にしている上、本質的に離散的な表現しかとりえないもので、例えば連続粉碎系の滞留時間分布や過渡的な非定常状態を取り扱う必要がある場合には、不可能ではないにしても非常に不便である。さらに粉碎行列の各要素が粉碎のメカニズムと結びつけにくく、それを可能にするためには結局は連続閾数による表現に立ち帰らなければならない。これらの点からいって、連続閾数による表現法の方が理論的には優れている。

さて、誘導は省略するが、碎料粒子に関して物質収支をとれば次の微積分方程式が得られる<sup>1,2)</sup>。

$$R(y,t) = R_0(y) + \int_0^t \int_y^{y_m} \frac{\partial R(x,\theta)}{\partial x} S(x) B(y,x) dx d\theta \quad \dots(1)$$

$$\frac{\partial R(y,t)}{\partial t} = \int_y^{y_m} \frac{\partial R(x,t)}{\partial x} S(x) B(y,x) dx \quad \dots(2)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 R(y,t)}{\partial y \partial t} &= -S(y) \frac{\partial R(y,t)}{\partial y} \\ &+ \int_y^{y_m} \frac{\partial R(x,t)}{\partial x} S(x) \frac{\partial B(y,x)}{\partial y} dx \end{aligned} \quad \dots(3)$$

なお、これらの式は数学的に等価であって、微分あるいは積分によって互に変換でき、どの式を用いてもよいが(2)式が最も扱いやすい。上式の  $y$  は粒子径、 $y_m$  は最大径、 $R(y,t)$  は粉碎時間  $t$  におけるふるい上累積率、 $R_0(y)$  は  $R(y,0)$ 、つまり原料の粒度分布である。また  $B(y,x)$  は破碎閾数あるいは分布閾数と呼ばれる閾数で、粒子径  $x$  の粒子が 1 回だけ粉碎されたときにできる碎製物のうち、粒子径が  $y$  以下のものの重量割合で定義される。実際の粉碎機内では、碎料に作用する応力は一定でないで、種々の応力が作用したときにできる粒度分布を粉碎機内で生じる応力の分布に関して平均したものと考えなければならない。また  $S(x)$  は選択閾数と呼ばれるもので、粒子径  $x$  の粒子が単位時間あたりに粉碎される割合を表わしている。これも作用する応力や碎料の強度に分布があるため、やはり平均とみるべきであるが、破碎閾数ほど複雑なものではなかろう。 $S(x)$  も  $B(y,x)$  も、理想的には微視的な破碎の機構と関連させて解明されるべきものであるが、現在のところ決定的な理論ではなく、粒子の破碎に関する基礎的研究の一層の発展が待たれている。

さて、粉碎方程式(1)～(3)は、和分の形式になおしてから、電算機を利用して数値的に解かれるのが普通である。このような解法は一種の計算機実験であるから、得られた解が汎用性に乏しくなることは避けられない。また、理論を拡張して連続粉碎系を取り扱う際には、それに要する計算は更に複雑になるので<sup>3)</sup>、もし粉碎プロセスを計算機制御しようとする場合には高速かつ大容量の計算機が必要になるであろう。そこで数値解法にとらず、特別な形の  $S(x)$  や  $B(y,x)$  を仮定して、粉碎方程式を解析的に解く試みがなされてきた<sup>4～7)</sup>。本節では従来の解析解を包括する Harris の解を紹介し、その問題点を指摘する。

Harris は、正の  $x$  に対して正の値をとる任意の連続閾数  $\psi(x)$  を用いて、 $S(x)$  および  $B(y,x)$  が次式で近似できると考えた<sup>7)</sup>。

$$S(x) = -Kt^\alpha \ln \psi(x), \quad \alpha \approx 0 \text{ (定数)} \quad \dots(4)$$

$$B(y,x) = \frac{\ln \psi(y)}{\ln \psi(x)} \quad \dots(5)$$

これを(2)式に代入して  $R(y_m, t) = 0$  を考慮すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial R(y, t)}{\partial t} &= -Kt^\alpha \ln \psi(y) \int_y^{y_m} \frac{\partial R(x, t)}{\partial x} dx \\ &= Kt^\alpha \ln \psi(y) \cdot R(y, t) \end{aligned} \quad \dots \dots (6)$$

この偏微分方程式の解は直観的にも明らかなのであるが、念のため厳密に解いてみる<sup>8)</sup>。まず(6)式の係数から次の連立常微分方程式をつくる。

$$\frac{dt}{1} = \frac{dy}{0} = \frac{dR(y, t)}{Kt^\alpha \ln \psi(y) \cdot R(y, t)}$$

これを解くと

$$y = \text{定数}$$

$$\ln R(y, t) - \frac{Kt^{\alpha+1}}{\alpha+1} \ln \psi(y) = \text{定数}$$

が得られる。すると(6)式の解は次の形で書ける。

$$G \left\{ y, \ln R(y, t) - \frac{Kt^{\alpha+1}}{\alpha+1} \ln \psi(y) \right\} = 0$$

ここで  $G$  は任意関数であるが、別の任意関数  $f(y)$  を含む陽関数の形で書けば次のように表わすことができる。

$$R(y, t) = f(y) \exp \left\{ \frac{K \ln \psi(y)}{\alpha+1} t^{\alpha+1} \right\}$$

これが(6)の一般解であるが、任意関数  $f(y)$  を初期条件  $R(y, 0) = R_0(y)$  から定めてやると

$$R(y, t) = R_0(y) \exp \left\{ \frac{K \ln \psi(y)}{\alpha+1} t^{\alpha+1} \right\} \quad \dots \dots (7)$$

となる。関数  $\psi(y)$  は(7)式が実際の粉碎プロセスによく適合するように選べばよいのであるが、Harris はボーレルミルに対して次の 2 種の形を考えた。

$$\psi(y) = \exp \left\{ -(y/y_0)^n \right\} \quad \dots \dots (8)$$

$$\psi(y) = \{1 - (y/y_0)^n\}^m \quad \dots \dots (9)$$

すると(7)式はそれぞれの場合に対して

$$R(y, t) = R_0(y) \exp \left\{ \frac{-Kt^{\alpha+1}}{\alpha+1} \left( \frac{y}{y_0} \right)^n \right\} \quad \dots \dots (10)$$

$$R(y, t) = R_0(y) \left\{ 1 - \left( \frac{y}{y_0} \right)^n \right\}^{\frac{mK}{\alpha+1} t^{\alpha+1}} \quad \dots \dots (11)$$

となる。ここで  $y_0$  (最大径),  $m, n$  は定数である。両式を比較すると、(11)式の方がパラメータが 1 個多いので(10)式よりも適合性がよいのは当然であるが<sup>9)</sup>、粉碎のごく初期を除けば  $y \ll y_0$  の領域を考えれば十分なので両者は殆んど一致する<sup>10)</sup>。また(10)式の形は実験的に見い出された Andreev らの粉碎速度式<sup>11)</sup> や中條の粉碎速度式<sup>12)</sup>に一致している。また分布の形に注目すると(10)式は Rosin-Rammler 分布であるし、(11)式は Gates-Gaudin-Schumann 形と Gaudin-Meloy 形を統合したものである。したがって両式とも従来の経験的事実をよく表現しており、もうともらしい解として受け入れることができよう。しかし小規模な粉碎機を用いた実験では、碎製物の粒度分布が(10), (11)式からかなり外れる場合がある。一方理論的には、粉碎機や粉碎媒体の大きさがあま

りにも不適当だと非正常的な粉碎が起ることが示されているので<sup>13)</sup>、小さな粉碎機では非正常的な粉碎が起っている可能性が大きい。非正常的な粉碎が起っている場合には粉碎の次数が 1 次でなくなり、(1)～(3)の粉碎方程式自体が成立しない<sup>\*</sup>)。また非正常の粉碎は効率が悪く、工業的に利用されることはない。したがって小さな粉碎機での実験は例外的な場合と考えてよいであろう。

上記のようにして粉碎方程式から経験的な粉碎速度式が誘導されたわけであるが、(4), (5)式の仮定は物理的必然性からではなく、(2)式を簡単に解くための数学的必要性によって設定されたものであることに注意しなければならない。もし(4), (5)が物理的にあり得ない仮定なら Harris の解法は無意味である。まず  $S(x)$  についてであるが、粉碎時間  $t$  のベキ  $\alpha$  はどんな意味を持つであろうか。Harris は、粉碎が進行するにつれ碎料の粒度分布が変化するので、同じ粒子径に対する  $S(x)$  の値が変化してもおかしくないと述べている。確かにそのような可能性は否定できないのだが、それならば  $S(x)$  を碎料の粒度分布の関数として表現しなければ意味がない。しかも多くの実験によれば、粉碎機が正常に運転されている限り、 $S(x)$  は粒子径だけの関数とみなしてよいと言われている。したがって  $\alpha$  に物理的な意味を与えることは殆んど不可能である。つぎに  $B(y, x)$  であるが、これが(5)式で示されるように、関数  $\psi(x)$  を媒介にして  $S(x)$  と関連するという事を理論的に示すことが可能であろうか。偶然そうなる場合もあるかも知れないが、 $S(x)$  と  $B(y, x)$  はもともと独立した関数であると考えたからわざわざ分離して記述したのである。したがって一般的に(5)式が成立するという仮定には十分な根拠がなくてはならないが、今のところ何の根拠も与えられていない。結局のところ Harris の仮定には物理的な無理があり、厳密に解釈すれば(10), (11)式は粉碎方程式の解とはいえない、粉碎速度論から遊離した数学モデルにすぎないことになる。つまり、Harris の解はある目的に対しても有用ではあるが、基礎的な粉碎理論と実際の粉碎プロセスの橋渡しの目的は果しえないのである。そこでもっと健全な仮定のもとで粉碎方程式を解くことにする。

### 3. $S(x) = Kx^n$ , $B(y, x) = (y/x)^m$ の場合の厳密解

この条件に対して、Filippov<sup>14)</sup> が解析解を得ている

\* ) (3)式の右辺第 1 項は、ある微小粒度区間の粒子が碎かれる時間割合を意味するが、それはその区間にある粒子の量に比例すると仮定している。もしそれが  $n$  乗に比例するならば粉碎の次数が  $n$  次であると言われる。

が、原料が单分散系の場合にしか使えないの、粉碎方程式の解としては不適当である。また一般の多分散の原料に対しては King<sup>15)</sup> が解を得ているが、式の変形に不手ぎわがあり、二種類の特殊関数を含んだ極めて繁雑な解になっている。筆者らは、これらとは独立に比較的簡単な形をした厳密解を誘導することができたので以下に述べる。

まず(2)式に次の  $S(x)$  と  $B(y,x)$  を代入して変形すれば

$$S(x)=Kx^n, n=1 \quad \dots \dots (12)$$

$$B(y,x)=(y/x)^m, m=1 \quad \dots \dots (13)$$

$$\frac{1}{y^m} \frac{\partial R(y,t)}{\partial t} = K \int_y^{y_m} \frac{\partial R(x,t)}{\partial x} x^{n-m} dx$$

これを  $y$  で偏微分して整理すると

$$\frac{\partial^2 R(y,t)}{\partial y \partial t} = my^{-1} \frac{\partial R(y,t)}{\partial t} - Ky^n \frac{\partial R(y,t)}{\partial y}$$

これを Laplace 変換法によって解く<sup>16)</sup>。初期条件が  $R_0(y)$  で与えられていることに注意して  $t$  に関して Laplace 変換すると、Laplace 変換  $s$  は単なるパラメータとみなしてよいので偏微分記号は常微分記号で書くことができ

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dy} (sR(y,s) - R_0(y)) \\ &= my^{-1} (sR(y,s) - R_0(y)) - Ky^n \frac{dR(y,s)}{dy} \end{aligned}$$

ここで  $R(y,s)$  は  $R(y,t)$  の Laplace 変換形である。上式を計算し易い形に整理すると

$$\begin{aligned} & (s + Ky^n) \frac{dR(y,s)}{dy} - msy^{-1} R(y,s) \\ &= y^m \frac{d(y^{-m} R_0(y))}{dy} \end{aligned}$$

ここで  $y=y_m$  で  $R(y,t)=0$  であること、および右辺は既知関数であることに注意すれば、上の常微分方程式の解は通常の方法で求まり、

$$\begin{aligned} R(y,s) &= \frac{R_0(y)}{s+Ky^n} \\ &- (n-m) Ky^m \int_y^{y_m} \frac{R_0(x) x^{n-m-1} dx}{(s+Ky^n)^\nu (s+Kx^n)^{2-\nu}} \end{aligned} \quad \dots \dots (14)$$

となる。これを逆変換すれば解が求まるのであるが、第2項の逆変換はかなりやっかいである。まずこれに必要な公式を紹介する<sup>16)</sup>。

$$L^{-1} \frac{1}{(s+a)^\nu} = \frac{1}{\Gamma(\nu)} t^{\nu-1} \exp(-at); \nu > 0 \quad \dots \dots (15)$$

$$L^{-1} F_1(s) \cdot F_2(s) = \int_0^t f_1(\tau) \cdot f_2(t-\tau) d\tau$$

(Borelの定理) \dots \dots (16)

ここで  $a$  は 0 を含めた定数、 $\nu$  は正の定数 (整数でなくとも可)、 $\Gamma(\nu)$  は ガンマ関数 (26)式参照)、 $F_n(s)$  は

$f_n(t)$  の Laplace 変換形である。これらの公式を用いて

$$L^{-1} \frac{1}{(s+Ky^n)^\nu (s+Kx^n)^{2-\nu}}$$

(ただし  $0 < \nu = \frac{m}{n} < 2$ )

$$= \frac{\exp(-Kx^n t)}{\Gamma(\nu) \cdot \Gamma(2-\nu)} \int_0^t \tau^{\nu-1} (t-\tau)^{1-\nu}$$

$$\cdot \exp\{K(x^n - y^n)\tau\} d\tau$$

$$= t \exp(-Kx^n t) \cdot F\left\{\frac{m}{n}, 2; K(x^n - y^n)t\right\} \quad \dots \dots (17)$$

ただし  $F(\alpha, \gamma; z)$  は Kummer の合流型超幾何関数<sup>17)</sup>と呼ばれる特殊関数であり、後で少し触れる。 $(14)$ 式は  $(15)$ 、 $(17)$ 式によって直ちに逆変換できて

$$R(y,t) = \exp(-Ky^n t) \cdot [R_0(y)$$

$$- (n-m) Ky^m t \int_y^{y_m} x^{n-m-1} R_0(x)$$

$$\cdot \frac{F\left\{\frac{m}{n}, 2; (x^n - y^n)Kt\right\}}{\exp((x^n - y^n)Kt)} dx] \quad \dots \dots (18)$$

これが求める解であって、計算には数値積分が必要であるが、小型の電算機を用いれば簡単に計算できる。なお  $m=n$  の場合には上式の第2項は消え、Rosin-Rammler 形の簡単な式になる。実際に利用するのに便利なよう、ここで $(18)$ 式中の特殊関数について触れておく。

$$F(\alpha, \gamma; Z) = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha(\alpha+1)\cdots(\alpha+n-1)}{\gamma(\gamma+1)\cdots(\gamma+n-1)} \cdot \frac{Z^n}{n!}$$

$$= \frac{\Gamma(\gamma) \cdot Z^{1-\gamma}}{\Gamma(\alpha) \cdot \Gamma(\gamma-\alpha)} \int_0^z p^{\alpha-1} (Z-p)^{\gamma-\alpha-1} \exp(p) dp$$

\dots \dots (19)

上式の級数表示が定義であるが、 $(17)$ 式の誘導では積分表示 (この場合  $\gamma > \alpha$  とする) を用いたのであわせて示した。いま $(18)$ 式の被積分関数を考慮して、関数  $G(\alpha; Z)$  を下記のように定義する。

$$G(\alpha; Z) = \frac{F(\alpha, 2; Z)}{\exp(Z)} \quad \dots \dots (20)$$

これを $(18)$ 式の級数表示を用いて FORTRAN プログラムで書けば Fig. 1 のようになる\*)。計算結果の数例を Fig. 2 に示した。計算時間は  $Z$  が小さい所では短いが、 $Z$  が大きくなるにつれ長くなる。しかし Fig. 2 からもわかるように、 $Z$  の大きな所では $(18)$ 式を  $Z$  のベキ関数で近似することができ、数学的には

$$G(\alpha; Z) \approx Z^{\alpha-2} / \Gamma(\alpha), Z > 10 \quad \dots \dots (21)$$

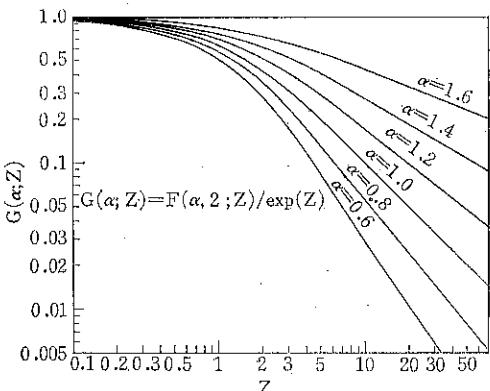
\*) ここに示したプログラムは HITAC-10 (4 K) 用のもので、普通の FORTRAN とは若干異なるが、使用する計算機に応じて変換することは容易であろう。

```

C; FUNCTION G (ALPH; Z)
C; =F (ALPH, 2.0;Z)/EXP(Z)
G=EXP(-Z)
AG=G
I=1
6, AI=I-1
PI=I
I=I+1
AG=AG*(ALPH+AI)/(2.0+AI)*Z/PI
G=G+AG
CR=AG/G-1.0E-9
IF(CR)7,7,6
7,G=G
C;OUTPUT=G

```

**Fig. 1** Example of computer program of the function  $G(\alpha; Z)$



**Fig. 2** Graphical representation of function  $G(\alpha; Z)$

が成立するので、これもあわせて利用すれば問題は生じない。

#### 4. 近似解と厳密解の比較

(18)式の計算は、(2)式に(12), (13)式を与えてシミュレーションで解くよりもはるかに簡単で精度も高いが、電卓や計算尺で数値を求めるることはできず、小型の電算機が必要である。もっとも、この計算に必要なメモリは600語もあれば十分なので、(18)式を計算機制御のためのモデルに利用する場合には大した障害にならない。しかし粉砕機や粉砕回路の設計のための概算にこれをそのまま利用するのは不便であるし、従来の経験式と比較することも困難である。そこでもっと利用し易い近似解を求めてみた。

まず、(14)式の積分を近似的に行なう。粉砕がある程度進んだ状態では  $y \ll y_m$  を考察すれば十分であろう。いま被積分関数の  $x$  に関係する項に着目すると、 $n-m-1 \approx -1$ ,  $2-v \approx 1$  だから、 $R_0(x)$  以外の項は積分変数

$x$  が  $y$  から  $y_m$  に向って増大するにつれ急速に減衰する。したがって(14)式の  $R_0(x)$  を  $R_0(y)$  で代用しても誤差は少いといえる。すると

$$R(y,s) \approx R_0(y) \left\{ \frac{1}{s+Ky^n} - \frac{(n-m)Ky^m}{(s+Ky^n)^{2-v}} \int_y^{y_m} \frac{x^{n-m-1} dx}{(s+Kx^n)^{2-v}} \right\} \quad \dots \dots (22)$$

この積分は  $v=(K+sy^{-n})^{1/n}$  とおけば実行でき、結果は

$$R(y,s) \approx R_0(y) \left\{ \frac{1}{s} - \frac{Ky^m y_m^{n-m}}{s(s+Ky^n)^v (s+Ky_m^n)^{1-v}} \right\} \quad \dots \dots (23)$$

この逆変換は  $(1-v)$  が正の場合、0の場合、負の場合にわけて実行する必要があるが、最終的には次式で近似できる<sup>10,18)</sup>。(誘導の一部を **Appendix** に示した。)

$$\frac{R(y,t)}{R_0(y)} \approx \frac{\Gamma\left(\frac{m}{n}, Ky^{nt}\right)}{\Gamma\left(\frac{m}{n}\right)} \quad \dots \dots (24)$$

ここで  $\Gamma(v, Z)$  は第2種の不完全ガンマ関数と呼ばれ、ガンマ関数の積分下限を0の代りに  $Z$  で置きかえたものである。すなわち

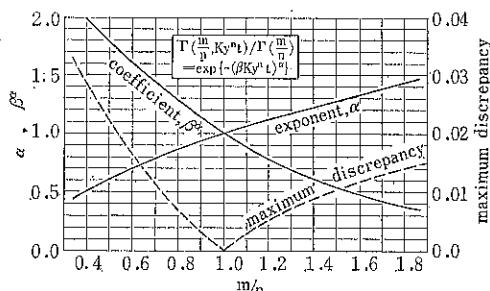
$$\begin{aligned} \Gamma(v, Z) &= \int_Z^\infty u^{v-1} \exp(-u) du \\ &= \Gamma(v) - \exp(-Z) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{Z^{v+n}}{v(v+1)\cdots(v+n)} \end{aligned} \quad \dots \dots (25)$$

$$\Gamma(v) = \int_0^\infty u^{v-1} \exp(-u) du \quad \dots \dots (26)$$

(24)式は適当な数表を用いれば計算できるが、数値的にはもっと便利な(10)式の形、つまり Andreev の速度式で近似できる<sup>10,18)</sup>。

$$\frac{R(y,t)}{R_0(y)} \approx \exp\{-(\beta Ky^{nt})^{\alpha}\} \quad \dots \dots (27)$$

ここで  $\alpha$  と  $\beta$  は  $m/n$  で定まる定数であって、Fig. 3 から読みとることができる。図中の破線は(24)式と(27)式の最大偏差を示しているが、 $m/n \approx 1$  では殆んど差がないことがわかる。



**Fig. 3**  $\alpha$  and  $\beta^\alpha$  as a function of  $m/n$

つぎに厳密解(18式)と近似解(24式)を実例で比較してみる。原料の粒度分布としては $1000\mu$ の单分散と $R_0(y)=\exp(-0.001y)$ のRosin-Rammler分布の二種類を想定し、粉碎パラメータのnは1, mは0.8と1.2について計算した。その結果をFig. 4~7に示したが、図からわかるように粉碎時間が短い間は近似の程度が悪く、もし27式で近似したとすれば粉碎時間のベキ数 $\alpha$ はみかけ上粉碎時間によって変化する。この現象は実験的にも観察されていることである<sup>12)</sup>。しかし $Kt=0.01\mu^{-1}$ 程度以上では、厳密解と近似解の差は殆どなくなる。工業的なセメントミルのKの値は $0.001\mu^{-1}\text{min}^{-1}$ 程度なので、10分以上の粉碎時間では(24)あるいは27式がよい近似になることがわかる。つまり、物理的に無理の多いHarrisの仮定を廃して粉碎方程式を解いたところ、その解は経験的なAndreevの速度式にほぼ一致することが示せたわけである。また粉碎速度論のパラメータK, m, nと経験的な速度式のパラメータの関係が、27式とFig. 3によって明らかになったのである。これによって工業的な操業データから粉碎速度論のパラメータを推定することが可能になるので実用的意味は大きい。

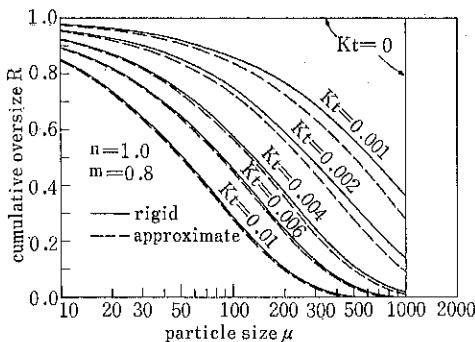


Fig. 4 Comparison between rigid and approximate solutions for  $n=1.0$  and  $m=0.8$

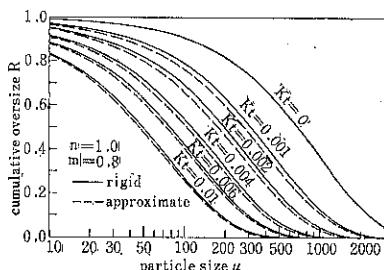


Fig. 5 Comparison between rigid and approximate solutions for  $n=1.0$  and  $m=0.8$

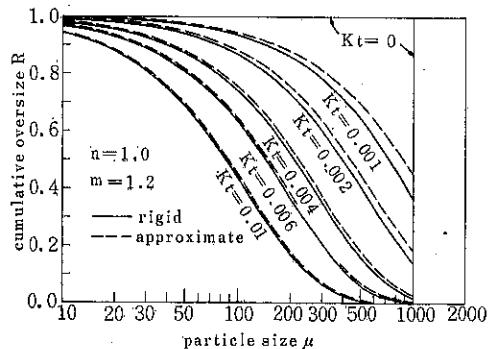


Fig. 6 Comparison between rigid and approximate solutions for  $n=1.0$  and  $m=1.2$

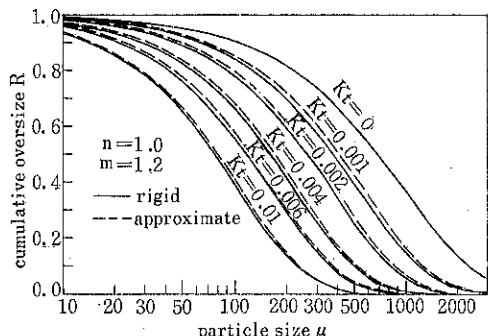


Fig. 7 Comparison between rigid and approximate solutions for  $n=1.0$  and  $m=1.2$

ここで近似式27およびAndreevの式の矛盾について触れておく。いま分布が $R_0(y)$ の原料を $t_1$ 時間粉碎して一旦ミルを止め、できた製品をそのまま原料として更に $t_2$ 時間同一のミルで粉碎したとしよう。この場合、最終的に得られる分布は

$$R(y, t_1 + t_2) = R_0(y) \exp\left\{-\left(\beta Ky^n t_1\right)^\alpha\right\} \\ \cdot \exp\left\{-\left(\beta Ky^n t_2\right)^\alpha\right\} \\ = R_0(y) \exp\left\{-\left(\beta Ky^n\right)^\alpha \cdot (t_1^\alpha + t_2^\alpha)\right\}$$

ところがミルを途中で止めないで一度に $(t_1 + t_2)$ 時間粉碎したと考えれば

$$R(y, t_1 + t_2) = R_0(y) \exp\left\{-\left(\beta Ky^n\right)^\alpha \cdot (t_1 + t_2)^\alpha\right\}$$

と書ける。このように物理的には全く同一のプロセスを取り扱っているにもかかわらず、考え方次第で答が異なるのは矛盾である。この矛盾は27式を誘導するのに用いた数学的な近似のために生じるものであって、要するに上の両式で近似の程度に差があるのが原因である。(精度は後の式の方が高い。) したがって、例えばチューブミルを何段かに分割して考察する必要が生じた際には、近似式は十分に注意して使わなければならない、勿論、

厳密解である(18式)を用いればこのような矛盾が起る心配はない。上記の矛盾は Harris が推奨する(16式)にも起る。(16式)の誘導には数学的近似は一切用いられていないので、この場合、Harris の仮定の不适当性に原因があると言える。

## 5. 破碎関数に関する検討

(16式)で仮定した選択関数に関しては比較的異論が少ないが、(16式)の破碎関数については多少異論があるであろう。一般に集合的な粉碎実験から求めた  $B(y, x)$  は、Fig. 8 の破線で示したように両対数紙上で下に凸な曲線になることが多い。ところが(16式)は直線しか表わすことができないので種々の形の  $B(y, x)$  が提案されていく。それらの代表的な形は

$$B(y, x) = 1 - \left(1 - \frac{y}{x}\right)^m \quad (\text{Gaudin, Meloy}^{19}) \quad \dots \dots (28)$$

$$B(y, x) = \frac{1 - \exp(-\alpha y/x)}{1 - \exp(-\alpha)} \quad (\text{桑原}^{20}) \quad \dots \dots (29)$$

(28式)は物理モデルから理論的に誘導されたものであって、 $m=10$  とすると食塩の単粒子衝撃破碎によく合うことが確かめられた。しかし Austin<sup>11</sup> はその誘導が誤りであったことを指摘しているし、集合粒子の破碎実験の結果にもとくによく合うわけでもない。一方(29式)は  $\alpha=1$  として Callcott らによって用いられたことがあったが、Fig. 8 の破線のようなデータに対しては  $\alpha=-1 \sim -2$  に選ぶとよく合ってくる<sup>\*)</sup>。また(29式)の  $\alpha$  を 0 に近づけた極限をとれば  $B(y, x) = y/x$  となり、勾配は 1 に限定されるものの直線も表わすことができる。したがって、たとえ面倒な数値計算が必要になろうとも、(16式)の代りに(29式)を使わなければならないという反論も可能なのである。そこで(29式)の論述である集合粒子の粉碎実験がどの程度正確な破碎関数を与えるかを簡単な計算実験で調べてみた。

集合粒子による破碎関数の決定法<sup>21</sup>では、狭い粒度範囲にそろえた原料を多重粉碎が起らぬように微小時間粉碎し、原料の粒度範囲の下限以下の碎製物のふるい下累積分率曲線を求め、その粒子径軸を無次元化して  $B(y, x)$  とするのである。この際、まず問題になるのは、原料が單一径でなくある巾の粒度範囲を持つことと、粉碎時間を無限小にとれることである。この計算実験では原料粒度範囲を 7~9 mesh (2796~1981  $\mu$ ) に選び、

$m=1.2$ ,  $n=1.0$  として(16式)に代入し、2, 3 の  $K_t$ について計算した。その結果の粒度分布を Table 1 に、また粒子径の無次元化はしていないが、逆算して求めた

Table 1 Calculated particle size distributions after short periods of grinding

The original size range is from 2796 to 1981 microns (7~9 mesh). The breakage function is to be backcalculated from the data.

particle size mesh	$\mu$	$K_t=0.00005\mu^{-1}$ R(%)	$\Delta R(%)$	$K_t=0.00001\mu^{-1}$ R(%)	$\Delta R(%)$
8	2362	47.33	47.33	42.09	42.09
9	1981	90.58	43.25	82.31	40.22
10	1651	92.61	2.03	85.74	3.43
12	1397	93.90	1.29	88.15	2.41
14	1168	95.05	1.15	90.31	2.16
16	991	95.910	0.860	91.96	1.65
20	833	96.663	0.653	93.42	1.46
24	701	97.276	0.613	94.61	1.19
28	589	97.782	0.506	95.60	0.99
32	495	98.195	0.413	96.40	0.80
35	417	98.527	0.332	97.058	0.658
42	351	98.800	0.273	97.598	0.540
48	295	99.024	0.224	98.044	0.446
60	246	99.214	0.190	98.422	0.378
65	208	99.356	0.142	98.706	0.284
80	175	99.476	0.120	98.947	0.241
100	147	99.575	0.099	99.144	0.197
115	124	99.653	0.078	99.301	0.157

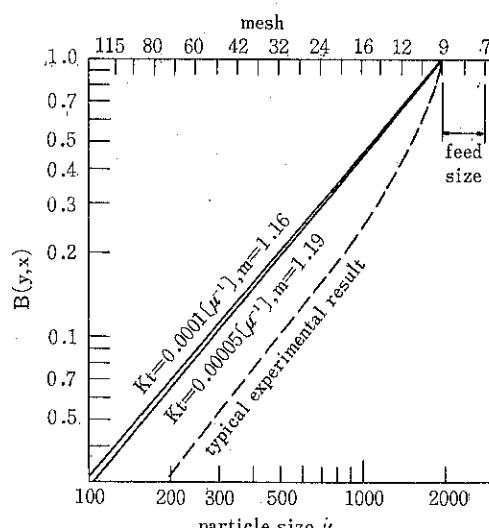


Fig. 8 Calculated breakage function from Table 1

<sup>\*)</sup> 桑原らの原報<sup>20</sup>では  $\mu = -3 \sim -4$  となっているが、式の誘導に不適当な部分があり、そこに報告された  $B(y, x)$  には無意味なものも含まれている。

$B(y,x)$ をFig. 8の実線で示した。 $Kt$ を更に大きくすると  $B(y,x)$  は上に凸な曲線になるが、 $Kt=0.00005\mu^{-1}$  程度の短い粉碎時間（もし  $K$  がセメントミルと同じくらいなら数秒）ならば  $m=1.19$  となり、原料粒度範囲がかなり広くても  $B(y,x)$  が精度よく求まる。したがって上記の測定法は原理的には問題がないと言えよう。ところが、 $Kt=0.00005\mu^{-1}$  という条件では、原料がその下限以下に碎かれる量は全量の 10% 足らずであることがTable 1 から読みとれる。実際の実験で  $B(y,x)$  を求めたためには、全量を一旦 9 mesh のふるいにかけ、この 10% 足らずの碎製物を完全にとり出さなければならない。このようなことが現実に可能であろうか。碎製物を完全にとり出そうとしてふるい分けに時間をかけなければかかる程、大過剰の 9 mesh 以上の粒子が下のふるいに漏れ出すことはありそうなことである。漏れ出した粒子の量はすぐ下の 10 mesh を最大にして、順次下段の各ふるいに分配されることになる。このように考えれば、仮に  $B(y,x)$  が(18)式の形であったとしても、逆算して得られる  $B(y,x)$  が Fig. 8 の破線のように下に凸の曲線になるのは技術的に避けられないように思われる。さらに 2 節で述べたように  $B(y,x)$  は粉碎機内で作用する応力の分布にも関係すると考えられるので、小さな粉碎機で求めた  $B(y,x)$  が工業的規模の粉碎機にそのまま使えるかどうかには疑問が残る。したがって現状では(18)式が(17)式より優れているとは言い切れない。勿論、(18)式が正しいという保証もまたないのであるが、(18)式で表わせるデータもかなりあるし、この仮定によって得られる解析解は実験事実にもよく対応するので、当面妥当な仮定として受け入れてよいと考える。

## 6. むすび

本報ではまず、Harris による粉碎方程式の解法について述べたが、そこで用いられた仮定に無理が多いため、得られた解を粉碎方程式の解としてではなく、粉碎プロセスの数学モデルとして解釈しなければならないことを指摘した。つまり、解そのものの適合性や実用性はよいとしても、微視的な粉碎機構と実際の粉碎プロセスを結びつける橋渡しの役目は果していないことを示したわけである。そこでもう少しもつもらしい仮定のもとで粉碎方程式の厳密解を誘導した。その解は計算に数値積分を要するため従来の経験式との比較が容易でないから、経験式と同じ形をした近似解を求め、厳密解と数値的に比較した。その結果、粉碎時間がある程度長ければ厳密解は従来の経験式で近似できることがわかった。更に重要なことは、この近似解を媒介にして、粉碎速度論のパラメータと経験的な粉碎速度式のパラメータの関係

が明らかになり、操業データから粉碎パラメータを推定することができるようになったことである。最後に、本報で用いた破碎関数に関する仮定が実験的観点から言つてもあり得ない仮定ではないことを示した。ここに用いた仮定が容認される場合には、粉碎機の大きさの選定や粉碎回路の設計に粉碎速度論が直接的に役立つのであって、そうした試みがすでに報告されている<sup>22,23)</sup>。また粉碎機の計算機制御には、ここで誘導した厳密解が有効に働くであろう。

## APPENDIX

(23)式は、(18)(17)式を用いれば厳密に逆変換できるのであるが、特殊関数を含むのでここでの目的にそぐわない。近似的な逆変換に関して、 $1-\nu>0$  の場合は別の報告<sup>10)</sup>で詳しく述べたし、 $1-\nu=0$  の場合は  $m=n$  なので(18)式は簡単な形になり近似解を求めるまでもない。ここでは最もやっかいな  $1-\nu<0$  の場合を説明する。(23)式の第 2 項を  $G_2(s)$  とおき、分母分子に  $(s+Ky_m^n)$  をかけると、 $m \approx n$  だから  $1 < \nu < 2$  と考えてよく、分母の各項のべきはすべて正になる。すなわち

$$G_2(s) = \frac{Ky_m^{m-n-m}(s+Ky_m^n)}{(s+Ky^n)^\nu s(s+Ky_m^n)^{2-\nu}} \\ = \frac{Ky_m^{m-n-m}}{(s+Ky^n)^{\nu-1}s(s+Ky_m^n)^{2-\nu}} \\ + \frac{K^2y^m(y_m^n - y^n)y_m^{n-m}}{(s+Ky^n)^\nu s(s+Ky_m^n)^{2-\nu}} \quad \dots \dots (30)$$

上式の各項を要素に分解し、各要素の逆変換を公式(15)(16)を用いて実行すると次式がえられる。

$$L^{-1} \frac{Ky^m}{(s+Ky^n)^{\nu-1}} = Ky^m \frac{t^{\nu-2}}{\Gamma(\nu-1)} \exp(-Ky^nt) \quad \dots \dots (31)$$

$$L^{-1} \frac{K^2y^m(y_m^n - y^n)}{(s+Ky^n)^\nu} \\ = K^2y^m(y_m^n - y^n) \frac{t^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)} \exp(-Ky^nt) \quad \dots \dots (32)$$

$$L^{-1} \frac{y_m^{n-m}}{s(s+Ky_m^n)^{2-\nu}} \\ = y_m^{n-m} \int_0^t \frac{\tau^{1-\nu}}{\Gamma(2-\nu)} \exp(-Ky_m^n \tau) d\tau \\ = \frac{K^{\nu-2}}{\Gamma(2-\nu)} \frac{1}{y_m^n} \int_0^{Ky_m^n t} p^{2-\nu-1} \exp(-p) dp \\ = \frac{K^{\nu-2}}{y_m^n} \cdot \frac{\gamma(2-\nu, Ky_m^n t)}{\Gamma(2-\nu)} \quad (\nu=m/n \text{ に注意}) \quad \dots \dots (33)$$

ここで  $\gamma(\nu, Z)$  は第 1 種不完全ガンマ関数である。(26)式の上限を  $Z$  で置き代えた式で定義される。したがって  $Z$  が大きければ  $\gamma(\nu, Z)$  は  $\Gamma(\nu)$  と等しくなる。さて、(30)式右辺第 1 項の逆変換は、(16)式の  $F_1(s)$  に(31)式

$F_2(s)$  に(33)式を対応させて、 $\nu=m/n$  に注意すれば

$$\begin{aligned} & L^{-1} \frac{K y^m y_m^{n-m}}{(s+K y^n)^{\nu-1} s (s+K y_m^n)^{2-\nu}} \\ & = \left(\frac{y}{y_m}\right)^n K y^n \int_0^t \frac{\gamma(2-\nu, K y_m^n(t-\tau))}{\Gamma(2-\nu)} \\ & \quad \cdot \frac{(K y^n \tau)^{\nu-2}}{\Gamma(\nu-1)} \exp(-K y^n \tau) d\tau \end{aligned}$$

いま  $K y_m^n t$  が十分に大きい場合を考えると、上式の被積分関数の第1項は残りの項に比較して  $\tau$  の増加に伴いゆっくり減衰する。しかもこの場合、上記の  $\gamma(\nu, Z)$  の性質を考慮すると、第1項を1とみなすことができるのです。

$$\begin{aligned} & \approx \left(\frac{y}{y_m}\right)^n \int_0^{K y^n t} \frac{p^{\nu-2}}{\Gamma(\nu-1)} \exp(-p) dp \\ & = \left(\frac{y}{y_m}\right)^n \frac{\gamma(\nu-1, K y^n t)}{\Gamma(\nu-1)}, \quad K y_m^n t \gg 1 \quad \dots \dots (34) \end{aligned}$$

(30)式の右辺第2項も同様にして

$$\begin{aligned} & L^{-1} \frac{K^2 y^m (y_m^n - y^n) y_m^{n-m}}{(s+K y^n)^{\nu} s (s+K y_m^n)^{2-\nu}} \\ & \approx \left\{1 - \left(\frac{y}{y_m}\right)^n\right\} \frac{\gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)} \\ & \quad K y_m^n t \gg 1 \quad \dots \dots (35) \end{aligned}$$

したがって(30)式の逆変換は近似的に

$$\begin{aligned} & L^{-1} G_2(s) \\ & \approx \frac{\gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)} + \left(\frac{y}{y_m}\right)^n \left\{ \frac{\gamma(\nu-1, K y^n t)}{\Gamma(\nu-1)} \right. \\ & \quad \left. - \frac{\gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)} \right\} \end{aligned}$$

ここで不完全ガンマ関数に関する公式<sup>24)</sup>を使うと

$$\begin{aligned} & \frac{\gamma(\nu-1, K y^n t)}{\Gamma(\nu-1)} - \frac{\gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)} \\ & = \frac{(K y^n t)^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)} \exp(-K y^n t) \end{aligned}$$

が誘導できる。したがって(29)式の逆変換は

$$\begin{aligned} & R(y, t) \\ & = R_0(y) \left\{ 1 - \frac{\gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)} \right. \\ & \quad \left. - \left(\frac{y}{y_m}\right)^n \frac{(K y^n t)^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)} \exp(-K y^n t) \right\} \\ & = \frac{R_0(y)}{\Gamma(\nu)} \left\{ \Gamma(\nu, K y^n t) - \frac{(K y^n t)^\nu}{K y_m^n t} \exp(-K y^n t) \right\} \quad \dots \dots (36) \end{aligned}$$

ここで  $\nu$  を 1 に近づけると(25), (26)を用いて

$$R(y, t) = R_0(y) \exp(-K y^n t) \left\{ 1 - \frac{K y^n t}{K y_m^n t} \right\}, \quad \nu \rightarrow 1$$

ところが厳密解によれば  $\nu=1$  のときには中カッコの第2項はない。したがって(36)式の第2項は  $\nu \approx 1$  の場合には近似誤差による項として無視してよさそうである。仮にそうでないとしても、粉碎がある程度進んだ状態を問

題にする限り  $y \ll y_m$  の粒度範囲を考察すればよいので、(36)式の第2項は無視できる。したがって最終的に

$$\frac{R(y, t)}{R_0(y)} \approx \frac{\Gamma(\nu, K y^n t)}{\Gamma(\nu)}$$

が得られる。

### 主な記号

B(y, v) = 破碎閾数

F( $\alpha, r; Z$ ) = Kummer の合流型超幾何関数、(10)式参照

K = 選択閾数の比例係数

m = 定数 (主に破碎閾数のベキ数)

n = 定数 (主に選択閾数のベキ数)

R<sub>0</sub>(y) = 原料のふるい上累積分率

R(y, t) = 粉碎時間 t における碎製物のふるい上分率

S(x) = 選択閾数

s = t に対応するラプラス変数

t = 粉碎時間

y = 粒子径

y<sub>m</sub> = 原料の最大径

$\Gamma(\nu)$  = ガンマ関数、(26)式参照

$\Gamma(\nu, Z)$  = 第2種不完全ガンマ関数、(25)式参照

$\gamma(\nu, Z) = \Gamma(\nu) - \Gamma(\nu, Z)$ , 第1種不完全ガンマ関数

$\nu$  = 定数 (主に m/n)

### 参考文献

- 1) Austin, L. G.; Powder Technol., 5, 1 (1971/72)
- 2) 中島耀二; 粉体と工業, 3, No. 13, 102 (1971)
- 3) Mika, T. S., Fuerstenau, D. W.; The 3rd European Symposium on Comminution, Preprints p.349 (Cannes, 1971)
- 4) Reid, K. J.; Chem. Eng. Sci., 20, 953 (1965)
- 5) Herbst, J. A., Fuerstenau, D. W.; Trans. AIME, 241, 538 (1968)
- 6) Harris, C. C.; Trans. AIME, 241, 359 (1968)
- 7) Ibid.; Trans. SME, 4, 449 (1968)
- 8) 寺沢寛一; “数学概論”, p. 323 (岩波書店, 1966)
- 9) Harris, C. C.; Trans. AIME, 241, 343 (1968)
- 10) Nakajima, Y., Tanaka, T.; I&EC, Proc. Des. Develop., 12, 23 (1973)
- 11) 三輪茂雄; 粉碎, 7, 30 (1961)
- 12) 中嶋金兵衛; 化学工学と化学機械, 7, 1 (1949)
- 13) Austin, L. G., Shoji, K., Everett, M. D.; Powder Technol., 7, 3 (1973)
- 14) Filippov, A. F.; Theory of Probability and its Applications (USSR, English trans.) 6, 275 (1961)
- 15) King, R. P.; J. of South African Inst. of Min-

- ing and Metallurgy, 73, Nov. 127 (1972)
- 16) たとえば高井宏幸, 長谷川健介; “ラプラス変換法入門”(丸善, 1964)
  - 17) 森口繁一, 宇田川鉢久, 一松信; “数学公式III” p.67 (岩波全書, 1971)
  - 18) 中島耀二, 田中達夫; 化学工学協会第6回秋季大会要旨集, p. 331 (東京, 1972)
  - 19) Gaudin, A. M., Meloy, T. P.; Trans. AIME, 223, 40 (1962)
  - 20) 桑原好孝, 山本博, 上田康; 粉体工学研究会誌, 6, 406 (1969)
  - 21) Kliment, R. R., Austin, L. G.; I&EC, Fundams., 9, 230 (1970)
  - 22) Furuya, M., Nakajima, Y., Tanaka, T.; I&EC, Proc. Des. Develop., 12, 18 (1973)
  - 23) Austin, L. G.; I&EC, Proc. Des. Develop., 12, 121 (1973)
  - 24) 森口繁一, 宇田川鉢久, 一松信; “数学公式III”, p. 14 (岩波全書, 1971)
- 

## Rittinger と 新選組

テレビなどの影響か何のせいかよく判らないが、最近本屋の店頭に新選組(幕末の機動隊)に関する本、それもカッコいい若く強い隊士にあこがれた女性による実録とも小説ともわからぬような著作がはんらんしている。私は両親が京都の出身のため、幼い頃(昭和のはじめ)から、時に訪れた京都の町で、まだ今の変テコなレストランになる前の、またその前の、昔のものかげをまだとどめていた三条小橋西詰の池田屋跡とか、油小路の決闘場跡をみたぼんやりした記憶があり、今頃でも公務のひまにちよいちよい旧跡を訪ねて一人で100年昔を偲ぶのをひそかな楽しみにしているものであるが、日本中(もちろんこんな物好きは一部にすぎぬであろうが)でこんな物好きが商売になるほど盛になると、自分のヒソカな楽しみがパクロされたようで反ってイヤらしい気もある。それはともかく一部の好事家が、あちこちに散らばっている新選組隊士の末裔の人達から古文書を探し出して来て(その真偽はともかく)いろいろ新説として発表しているを散見するのはずい分面白い。もはや定説になっていたほど有名な“事実”は、実はある時代の作家の創作であったりすることも多く、それが真に迫る筆力であるだけに、創作が事実になり、それから派生した仮定がまた事実に昇格して今日の新選組がその形で評価されて来たのであろう。どのみち正しかろうとそうでなかろうと大した害も益もないことだから、こちらもたのしくこれらの新説を迎えることができる。

いささか乱暴な飛躍だが、今から約100年前の新選組があげられていたと同じ頃に、ドイツで Rittinger の法則(1867)が提出されている。今日では粉碎というとまっ先にこの人の名が出、さらにボールミルなどでえられる

表面積増加とエネルギーの直線関係を“リッティンガーの法則”が成立つ云々という報告が今でも信じられている位有名なものであるが、さてその Rittinger が実は“粉碎については何にもいっていないんだ”なんていわれたら、偉そうな事をいって来た我々もポカンとせざるを得ない。去年の秋やって来たロンドン大学の Rose 教授が大見得をきってやった講演の中で、彼がドイツ語の原典(Rittinger: Lehrbuch der Aufbereitungskunde, Berlin, 1867)をよんだところによれば、物体をノコギリで鋸くとは書いてあるが、粉碎するとはどこにも書いてなかったんだそうである。Rose のドイツ語がほんとうに確かなものであるかは甚だ疑わしいが、しかし理想的なノコギリを考えたのだとすれば、粉碎という現象における“Rittinger 則”的根本的な誤謬は、充分わかり、Rittinger 自身がそんな誤りをおかしていなかったことに何か安堵さえ覚える。それにしても始めに誰かえらい人が Rittinger の法則を粉碎理論に持つて来た、後世の人はそれを鵜呑みにし、原典を読むことをさぼって(引用文献の中に入れてはおいたが)しまい、更に拡大解釈をした。100年の間にそれは定説になり切ってしまい、余程ヘソの曲ったものでない限りそれを疑うことはしなかったであろう。Rose のいったことを疑って、私も一度読みなおしてみようとは思わないが、案外よんではれば、後世の人にすて去られたむしろ大切なことがどこかにひそんでいるかも知れない。

何はともあれ“粉碎のことは何にもいっていなかった” Rittinger 自身100年後のボールミルにその名を残したとあらば、さぞや御本人今ごろ苦笑していることであろう。

(T.T.)

## ボールミル粉碎による石英砂の粒度分布変化に 対する試料挿入量およびボール挿入量の影響

Influence of the Total Volume of Silica Sands and Balls inserted in a Mill on Variation of the Particle Size Distribution of Silica Sands by Ball-Milling

金庭 延慶\* 池川 昭子\*  
Nobuyoshi Kaneniwa Akiko Ikekawa  
新田 伸子\* 飯島 寿子\*  
Nobuko Nitta Hisako Iizima

### Abstract

Various amounts of silica sands of the particle size between  $1190\mu$  and  $1410\mu$  were ball-milled in a ceramic mill containing various amounts of balls, and variation of the particle size distribution of silica sands by ball-milling was investigated.

It was considered in all the cases investigated that it became more difficult to obtain the particles below  $45\mu$  with a decrease of the particle size. When the ratio of the apparent volume of the balls to the capacity of a mill,  $J_b$ , was extremely large and the ratio of the apparent volume of silica sands to the capacity of a mill,  $J_s$ , was small, the amount of the particles between  $45\mu$  and  $500\mu$  obtained by ball-milling was little.

At the first stage of ball-milling, the rate for the original particles to be crushed into the particles below  $1190\mu$  was small, when the apparent volume of silica sands was larger than the space between balls. When  $J_s$  was constant, the rate increased with an increase of  $J_b$  and reached maximum in case of  $J_b$  of 0.65.

At the first stage of ball-milling, formation of fine particles was a little remarkable, when the apparent volume of the silica sands was larger than the space between balls, or when  $J_s$  was extremely small. Formation of fine particles was also remarkable, when  $J_b$  was large enough to prevent the balls from free motion.

The ratio of the rate for the small particles to be crushed to the rate for the large particles was larger than 1:0 and became larger with the lapse of the ball-milling time. This tendency seemed to be a little remarkable when  $J_s$  was small. When  $J_b$  was approximately 0.65, this tendency was remarkable and the rate for the particles to be crushed was the largest.

When  $J_b$  was constant, the rate of an increase of the surface area of silica sands by ball-milling was independent of  $J_s$ . When  $J_s$  was constant, the rate was large in case of  $J_b$  between 0.4 and 0.65.

\* 昭和大学薬学部 (〒142 東京都品川区旗の台1-5-8)  
Tel 03-784-1151 (内)264

## 著者 摘 錄

粒度範囲が  $1190\mu \sim 1410\mu$  の粒径のほぼ均一な石英砂をボールミル粉碎し、粉碎による粒度分布変化に対する試料挿入量およびボール挿入量の影響を検討した。

いずれの場合にも、 $45\mu$ 以下の粒子は生成しにくい傾向がみられた。また、ボール充てん率、 $J_b$ 、が著しく大きく、試料充てん率、 $J_s$ 、が小さい場合、 $44\sim 500\mu$ の粒子の生成割合は非常に小さかった。

粉碎初期にもとの粒子が  $1190\mu$ 以下になる速さは、試料の見掛け容積がボールの空隙容積より大きい時には小さかった。また  $J_s$  が一定の時は、 $J_b$  の増加につれて直線的に増加し、 $J_b$  が 0.65 で最大となった。

粉碎初期には、試料の見掛け容積がボールの空隙容積より大きい場合、および  $J_s$  が極端に小さい場合は、微粉の生成割合が大きいと考えられた。また  $J_b$  が極端に大きく、ボールがミル内で自由に運動できない場合にも、微粉の生成割合が大きいと考えられた。

粉碎が進むにつれて、大きな粒子より小さな粒子の方が微細化される速さが大きくなつた。この傾向は、 $J_b$  が一定の時は、 $J_s$  が小さい時や大きいようであった。また、 $J_s$  が一定の時は、 $J_b$  が 0.65 附近の時に顕著であり、またこの場合に粉碎が最も効率よく進行すると考えられた。

$J_b$  を一定として  $J_s$  を変化させても、表面積増加速度にはつきりした変化はみられなかつた。 $J_s$  を一定とした場合、表面積増加速度は  $J_b$  が  $0.4\sim 0.65$  の時最も大きかつた。

前報では、スルキシンとホワイトアランダムのボールミル粉碎に対する操作条件の影響を検討し、表面積増加速度は試料およびボール挿入量により著しく影響されることを見出した<sup>1)</sup>。

本報では、ボールミル粉碎による石英砂の粒度分布変化が、試料挿入量およびボール挿入量によってどのように影響されるかを検討した。

### 実験方法

石英砂 1号(国産化学株式会社製、真密度  $2.65\text{g/cm}^3$ )をロータップ式篩振盪機(三陽理化学器械製作所製)によって、J I S規格の標準篩で分級し、 $1410\mu$  篩と  $1190\mu$  篩の間のものを試料として用いた。

内径 8cm、内容量 450ml の磁製ミルを使用した。試料挿入量の影響を調べる実験としては、真密度  $2.35\text{g/cm}^3$ 、直径 1.9 cm の磁製ボール 15 個、直径 2.5 cm の磁製ボール 5 個を入れ、これに 20~200g の碎料を挿入した。ボール挿入量の影響を調べる実験として、試料挿入量を 20g あるいは 100g とし、直径 1.9 cm のボールと 2.5 cm のボールの個数の比を 3:1 とし、直径 2.5 cm のボールを 2~10 個挿入した。ミル回転速度は臨界ミル速度の 0.7 倍とした。

粉碎した試料はロータップ式篩振盪機で、標準篩により 6 分間分級し、 $44\mu$  篩を通過した試料は光透過式粒度分布測定装置で粒度分布を測定した。

### 実験結果および考察

#### 1. 試料挿入量の影響

##### 1.1 粒度分布

粉碎された試料の粒度分布に対しては、(1)式で示される Rosin-Rammler 分布則<sup>2)</sup>が適用できることが知られている。

$$R = \exp(-bx^n) \quad \dots \dots (1)$$

R: ある粒子径  $x$  より大きい粒子の全粒子に対する質量比

b, n: 粉碎条件等に依存するパラメータ

中条はセメントの粉碎に対して(1)式を適用し、粉碎機構に関して有用な知見を得た<sup>3)</sup>。(1)式では、 $x$  が無限大的時 R ははじめて零になるが、実際の粉碎試料では、 $x$  が粉碎前の原材料の粒子径  $x_0$  に等しい時 R は零となる。中川、松居は相当粒子径  $x'$  を(2)式のように定義し、これを用いて、極端な粗粒域でもあてはまる分布則として、(1)式を(3)式のように修飾した<sup>4)</sup>。

$$1/x' = 1/x - 1/x_0 \quad \dots \dots (2)$$

$$R = \exp(-k_x \cdot x'^{\alpha}) \quad \dots \dots (3)$$

$k_x, \alpha$ : 粉碎条件等に依存するパラメータ

$x_0 = 1410\mu$  とし、(2)式により  $x'$  を算出した。 $(-\log R)$  を  $x'$  に対して対数プロットすると、Fig. 1 に示すように、数個の折点を持つ折れ線が得られた。各粒径範囲で得られた  $\alpha$  および  $k_x$  の値を Table 1 に示す。Table 1において、試料充てん率  $J_s$  は(4)式により求め、試料の空隙率  $\epsilon_s$  は 0.40 と仮定した。

$$J_s = (w_s / \rho_s) / (1 - \epsilon_s) V_m \quad \dots \dots (4)$$

$w_s$ : ミル内の試料の重量、 $\rho_s$ : 試料の真密度

$V_m$ : ミル内容積

粉碎初期には、 $\alpha$  の値は  $x'$  が  $40\sim 75\mu$  以上ではほぼ 1.0 かあるいは 1.0 以下であり、 $40\sim 75\mu$  以下では 1.0 より

**Table 1** The Numerical Values of  $\alpha$  and  $k_x$  ( $J_b=0.408$ )

$J_s$	0.028			$J_s$	0.042		
t(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$1500 \leq x'$	0.77	$9.0 \times 10^{-5}$	2	$45 \leq x'$	0.81	$1.7 \times 10^{-4}$
	$200 \leq x' \leq 1500$	0.50			$15 \leq x' \leq 45$	2.1	
	$40 \leq x' \leq 200$	1.1			$170 \leq x'$	0.68	
	$15 \leq x' \leq 40$	2.6			$45 \leq x' \leq 170$	0.73	$4.8 \times 10^{-4}$
4	$1500 \leq x'$	0.74	$1.6 \times 10^{-4}$	4	$15 \leq x' \leq 45$	2.4	
	$200 \leq x' \leq 1500$	0.51			$50 \leq x'$	0.66	
	$45 \leq x' \leq 200$	1.0			$15 \leq x' \leq 50$	2.4	
	$15 \leq x' \leq 45$	3.3					
7	$1500 \leq x'$	0.74	$3.7 \times 10^{-4}$	10	$110 \leq x'$	0.55	
	$200 \leq x' \leq 1500$	0.43			$45 \leq x' \leq 110$	0.76	$1.2 \times 10^{-3}$
	$60 \leq x' \leq 200$	0.98			$15 \leq x' \leq 45$	2.3	
	$15 \leq x' \leq 60$	1.6			$180 \leq x'$	0.55	
10	$1500 \leq x'$	0.48	$1.9 \times 10^{-4}$	15	$45 \leq x' \leq 180$	0.76	$2.1 \times 10^{-3}$
	$200 \leq x' \leq 1500$	0.43			$15 \leq x' \leq 45$	2.3	
	$55 \leq x' \leq 200$	1.2			$160 \leq x'$	0.53	
	$15 \leq x' \leq 55$	2.0			$45 \leq x' \leq 160$	0.80	$1.8 \times 10^{-3}$
20	$1500 \leq x'$	0.62	$1.7 \times 10^{-3}$	20	$15 \leq x' \leq 45$	2.1	
	$200 \leq x' \leq 1500$	0.37					
	$45 \leq x' \leq 200$	0.86					
	$6 \leq x' \leq 45$	1.1					
$J_s$	0.063			$J_s$	0.098		
t(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$450 \leq x'$	0.71	$4.6 \times 10^{-4}$	2	$60 \leq x'$	0.79	$1.2 \times 10^{-4}$
	$45 \leq x' \leq 450$	1.3	$1.3 \times 10^{-5}$		$35 \leq x' \leq 60$	4.7	
	$15 \leq x' \leq 45$	2.3			$55 \leq x'$	0.79	$2.1 \times 10^{-4}$
4	$450 \leq x'$	0.73	$5.8 \times 10^{-4}$	4	$20 \leq x' \leq 55$	3.1	
	$40 \leq x' \leq 450$	1.2	$2.7 \times 10^{-5}$		$45 \leq x'$	0.78	$3.7 \times 10^{-4}$
	$15 \leq x' \leq 40$	3.8			$10 \leq x' \leq 45$	2.2	
7	$200 \leq x'$	0.68	$1.2 \times 10^{-3}$	10	$45 \leq x'$	0.76	$5.3 \times 10^{-4}$
	$40 \leq x' \leq 200$	1.5	$1.8 \times 10^{-5}$		$4 \leq x' \leq 45$	2.0	
	$20 \leq x' \leq 40$	3.5					
10	$200 \leq x'$	0.67	$1.6 \times 10^{-3}$	15	$40 \leq x'$	0.80	$4.7 \times 10^{-4}$
	$35 \leq x' \leq 200$	1.5	$1.8 \times 10^{-5}$		$15 \leq x' \leq 40$	2.1	
	$15 \leq x' \leq 35$	2.2			$45 \leq x'$	0.76	$7.4 \times 10^{-4}$
20	$200 \leq x'$	0.67	$2.5 \times 10^{-3}$	20	$15 \leq x' \leq 45$	1.9	
	$6 \leq x' \leq 200$	0.84	$1.1 \times 10^{-4}$				

$J_s$	0.140			$J_s$	0.210		
t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$210 \leq x' \leq 210$	0.88	$6.5 \times 10^{-5}$	2	$400 \leq x' \leq 400$	0.94	$2.9 \times 10^{-5}$
	$75 \leq x' \leq 210$	1.6			$300 \leq x' \leq 300$	2.1	
	$35 \leq x' \leq 75$	5.1			$60 \leq x' \leq 60$	0.96	
4	$300 \leq x' \leq 300$	0.99	$4.6 \times 10^{-5}$	4	$15 \leq x' \leq 60$	4.2	
	$58 \leq x' \leq 300$	1.5			$300 \leq x' \leq 300$	0.87	$9.5 \times 10^{-5}$
	$20 \leq x' \leq 58$	3.6			$90 \leq x' \leq 90$	1.7	
7	$200 \leq x' \leq 200$	0.83	$2.5 \times 10^{-4}$	7	$55 \leq x' \leq 90$	0.94	
	$100 \leq x' \leq 200$	1.2			$15 \leq x' \leq 55$	4.1	
	$45 \leq x' \leq 100$	2.1			$300 \leq x' \leq 300$	0.95	$5.3 \times 10^{-5}$
	$15 \leq x' \leq 45$	2.6			$180 \leq x' \leq 180$	1.5	
10	$1800 \leq x' \leq 1800$	0.84	$2.5 \times 10^{-4}$	10	$40 \leq x' \leq 40$	1.1	
	$45 \leq x' \leq 1800$	1.2			$200 \leq x' \leq 200$	0.94	$8.5 \times 10^{-5}$
	$20 \leq x' \leq 45$	3.8			$140 \leq x' \leq 140$	2.5	
20	$300 \leq x' \leq 300$	0.83	$5.3 \times 10^{-4}$	20	$50 \leq x' \leq 50$	1.1	
	$40 \leq x' \leq 300$	1.1			$15 \leq x' \leq 50$	3.2	
	$10 \leq x' \leq 40$	1.7			$200 \leq x' \leq 200$	0.91	$2.1 \times 10^{-4}$
					$80 \leq x' \leq 80$	1.7	
					$46 \leq x' \leq 80$	0.74	
					$15 \leq x' \leq 46$	2.1	

$J_s$	0.280		
t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$60 \leq x' \leq 60$	0.90	$1.9 \times 10^{-5}$
	$30 \leq x' \leq 60$	2.9	
4	$130 \leq x' \leq 130$	0.85	$4.6 \times 10^{-5}$
	$45 \leq x' \leq 130$	0.81	
	$15 \leq x' \leq 45$	3.1	
7	$130 \leq x' \leq 130$	0.88	$4.2 \times 10^{-5}$
	$45 \leq x' \leq 130$	0.78	
	$15 \leq x' \leq 45$	3.1	
10	$150 \leq x' \leq 150$	0.90	$6.2 \times 10^{-5}$
	$45 \leq x' \leq 150$	0.74	
	$15 \leq x' \leq 45$	1.9	
20	$140 \leq x' \leq 140$	0.81	$2.5 \times 10^{-4}$
	$45 \leq x' \leq 140$	0.81	
	$15 \leq x' \leq 45$	2.5	

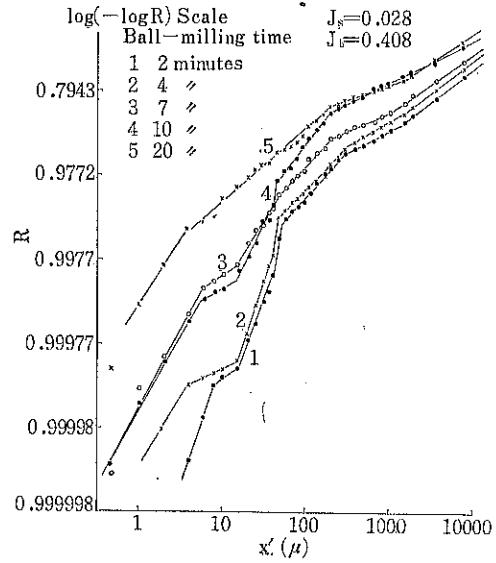


Fig. 1 Particle Size Distribution of Ball-Milled Silica Sands

著しく大きかった。また、試料充てん率  $J_s$  が大きい時、 $\alpha$  はやや大きい傾向がみられた。粉碎が進行するにつれて、 $k_x$  は  $J_s$  が大きくなるにつれて減少する傾向がみられた。

(3)式を微分すると(5)式が得られる。

$$-dR/dx' = \alpha \cdot k_x \cdot x'^{\alpha-1} R \quad \dots\dots(5)$$

$-dR/dx'$  は相対粒子径が  $x' \sim x' + dx'$  間の粒子の全粒子に対する質量比を示している。Table 1 から、 $45\mu \sim 450\mu$  以上では  $-dR/dx'$  は粒径が減少するにつれて増大し、この傾向は  $J_s$  が小さい場合に顕著と考えられる。また、 $40 \sim 75\mu$  以下では  $-dR/dx'$  は粒径が減少するにつれて減少していくと思われる。

## 1.2 Rの時間による変化

$-\log R$  を粉碎時間  $t$  に対してプロットすると、粒径の大きい場合にはほぼ一本の直線で表わされた。また、粒径の小さい場合には、4～7分附近を境として勾配の異なる二本の直線で表わされた(Fig. 2)。粒径の小さい場合には7分以後の直線について検討した。この場合  $R$  と  $t$  の関係は近似的に(6)式で表わされた。

$$R = \exp(-k_t \cdot t^\beta) \quad \dots\dots(6)$$

$k_t, \beta$  : 粉碎条件等に依存するパラメータ

Table 2 に  $\beta$  の値を示す。

ミル内のポールの疎充てんにおける空隙率を  $\epsilon_b$  とし、

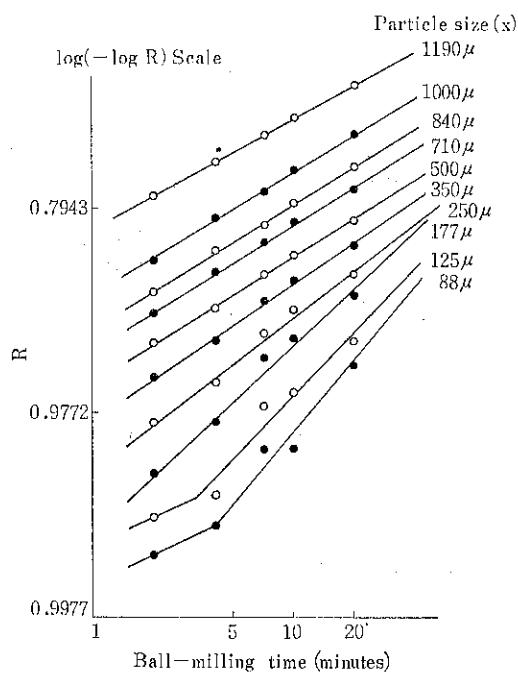


Fig. 2 Relation between  $R$  and Ball-Milling Time

Table 2 Numerical Values of  $\beta$  ( $J_b=0.408$ )

$J_s$ $x(\mu)$	0.028	0.042	0.063	0.098	0.14	0.21	0.28
1190	0.370	0.572	0.556	0.595	0.682	0.720	0.668
1000	0.483	0.629	0.630	0.651	0.785	0.890	1.06
840	0.547	0.668	0.625	0.667	0.795	0.895	1.08
710	0.450	0.783	0.630	0.611	0.780	0.839	1.05
590	0.563	0.799	0.608	0.660	0.787	0.833	1.11
500	0.514	0.747	0.610	0.668	0.760	0.805	1.16
420	0.580	0.821	0.645	0.644	0.753	0.810	1.16
350	0.595	0.876	0.660	0.603	0.750	0.820	1.21
297	0.638	0.910	0.684	0.603	0.777	0.818	1.18
250	0.644	0.918	0.725	0.627	0.752	0.895	1.14
210	0.675	0.924	0.828	0.650	0.756	0.960	1.17
177	0.756	1.01	0.878	0.667	0.798	0.962	1.25
149	0.716	1.04	0.875	0.715	0.755	0.758	1.21
125	0.740	1.09	0.878	0.660	0.733	1.10	1.03
105	0.837	1.16	0.892	0.595	0.830	1.05	1.03
88	0.836	1.09	1.15	0.660	0.887	0.860	1.00
74	0.644	1.08	1.17	0.669	0.925	0.929	0.989
63	0.774	1.15	1.37	0.676	1.01	0.946	0.974
53	0.870	1.15	1.40	0.837	1.43	0.958	1.02
44	1.05	1.24	1.36	1.01	1.58	1.19	0.980
40	1.37	1.23	1.89	1.15	1.93	1.43	1.25
35	1.48	1.22	2.18	1.12	2.02	1.58	1.37
30	1.61	1.26	2.59	1.34	2.11	1.78	1.48
25	1.77	1.21	3.21	1.06	2.13	1.90	1.61
20	2.00	1.16	3.95	0.918		2.19	1.66
15		1.18	3.54	0.900		1.97	1.45
10		1.38	3.62	0.892		1.92	1.50
8		1.35	3.95			1.81	1.43

ボール充てん率  $J_b$  を(7)式のように定義すれば、試料の見掛け容積とボールの空隙容積の比は  $J_s/\epsilon_b J_b$  で表わされる。

$$J_b = (W_b/\rho_b)/(1-\epsilon_b)V_m \quad \dots\dots(7)$$

$W_b$  : ミル内のボールの重量

$\rho_b$  : ボールの真密度

ボールの径がミル内径に比較してかなり大きいため、壁効果を考慮して  $\epsilon_b=0.50$  と仮定した。 $J_s$  が 0.21 の時  $J_s/\epsilon_b J_b$  はほぼ 1.0 であった。前報では  $J_s/\epsilon_b J_b$  が 1.0 より大きい時、表面積増加速度が小さくなることを見出した<sup>1)</sup>。

$x=1190\mu$  の粒子の場合、 $\beta$  は  $J_s$  が 0.21 の時最大であった。 $x=70 \sim 1000\mu$  の粒子では、 $J_s$  が大きい時  $\beta$  は大きく、 $J_s \leq 0.14$  の時は 1.0 以下であり、 $J_s=0.28$  の時はほぼ 1.0 であった。この傾向は粒径が小さくなるにつれてしまいに減少した。 $J_s$  が小さい時は、 $\beta$  は  $x$

の減少と共に増加した。この傾向は  $J_s$  が大きくなるにつれて小さくなり、 $J_s$  が 0.07 以上では、 $40 \sim 90 \mu \leq x \leq 1000 \mu$  の時  $\beta$  はほぼ一定で、 $x$  がそれ以下になると  $\beta$  は大きくなり、1.0 以上になった。

(6)式を微分すると(8)式が得られる。

$$-\frac{dR}{dt} = \beta \cdot k_t \cdot t^{\beta-1} R \quad \dots\dots(8)$$

$-\frac{dR}{dt}$  は  $dt$  時間の粉碎によって生成した粒径  $x$  以下の粒子の全粒子に対する質量比である。粒径が  $50 \mu$  以上の粒子では粉碎時間が大きくなるにつれて粉碎速度は小さくなる傾向があり、この傾向は  $J_s$  が小さい場合および粒径が大きい場合に顕著であると考えられる。一方、粒径が  $50 \mu$  以下の粒子では、粉碎速度は粉碎時間が増加するにつれて大きくなるものと思われる。

$x$  が  $1190 \mu$  の時の  $\beta k_t$  は、もとの粒子が粉碎されて  $1190 \mu$  以下になる、粉碎開始後 1 分後の速度に関連した値である。Fig. 3 に示すように、 $J_s$  が 0.21 以下、即ち  $J_s/\epsilon_b J_b$  が 1.0 以下では、 $\beta k_t$  は  $J_s$  の 0.3 乗にほぼ逆比例したが、 $J_s/\epsilon_b J_b$  が 1.0 以上では、 $J_s$  が増加すると  $\beta k_t$  は急激に減少した。

### 1.3 R と 試 料 充 て ん 率 の 関 係

Figs. 4, 5 は  $(-\log R)$  の  $J_s$  に対する対数プロットを示している。 $x$  が  $500 \mu$  以上では、 $J_s$  が 0.21 以上、即ち  $J_s/\epsilon_b J_b$  が 1.0 以上では  $(-\log R)$  の値は小さかった。他の場合には、(9)式の関係がほぼ適用出来た。

$$R = \exp(-k_{J_s} \cdot J_s^{-\gamma_s}) \quad \dots\dots(9)$$

$k_{J_s}, \gamma_s$  : 粉碎条件等に依存するパラメータ

$\gamma_s$  の値を Table 3 に示す。 $\gamma_s$  は粒径の減少につれて

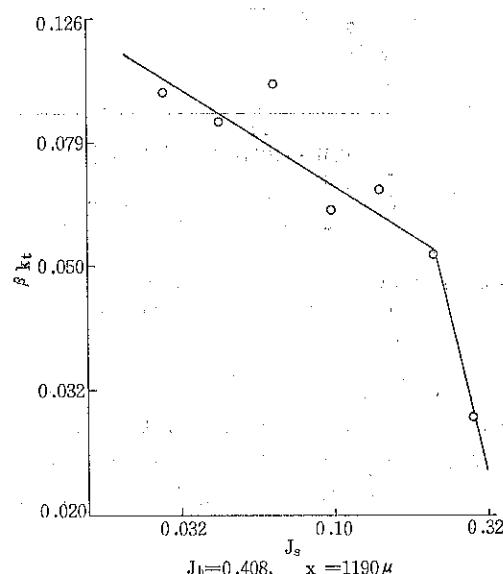


Fig. 3 Influence of  $J_s$  on  $\beta k_t$

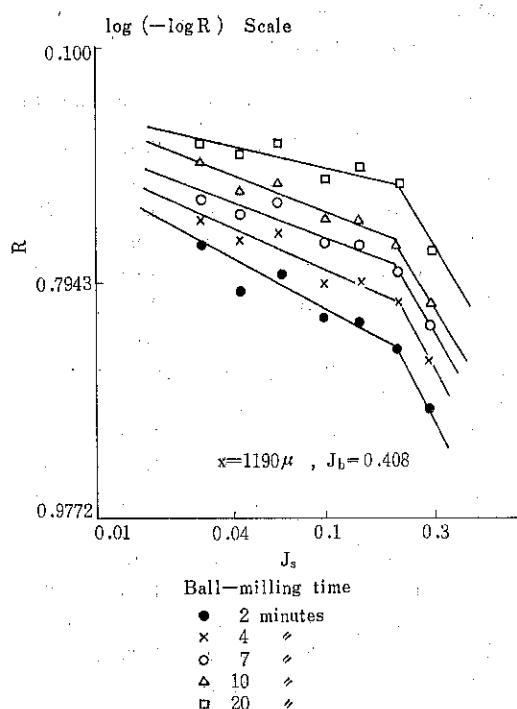


Fig. 4 Relation between  $R$  and  $J_s$

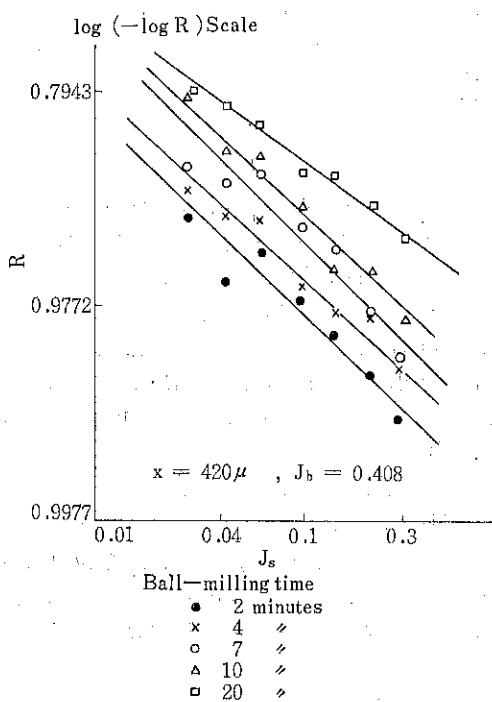


Fig. 5 Relation between  $R$  and  $J_s$

Table 3 Numerical Values of  $r_s$  ( $J_b=0.408$ )

Ball-milling time

$x(\mu)$	2min	4min	7min	10min	20min
1190	0.52	0.45	0.38	0.39	0.19
1000	0.67	0.52	0.41	0.40	0.32
840	0.70	0.55	0.47	0.46	0.32
710	0.71	0.62	0.59	0.60	0.42
590	0.79	0.72	0.68	0.64	0.60
500	0.76	0.76	0.68	0.77	0.66
420	0.93	0.82	0.83	0.85	0.74
350	0.91	0.84	0.83	0.86	0.77
297	1.06	0.97	0.92	0.97	0.83
250	1.07	0.97	0.98	1.03	0.94
210	1.15	0.98	1.08	1.11	0.95
177	1.12	1.02	1.01	0.94	0.94
149	1.14	1.14	1.18	1.13	1.10
125	1.06	1.08	1.13	1.13	1.12
105	1.04	1.13	1.26	1.26	1.20
88	1.01	1.15	1.32	1.44	1.28
74	1.06	1.21	1.29	1.33	1.23
63	1.28	1.32	1.27	1.22	1.28
53	1.34	1.33	1.31	1.33	1.35
44	1.13	1.38	1.33	1.27	1.27
40	1.39	1.48	1.48	1.46	1.31
35	1.36	1.54	1.54	1.48	1.34
30	1.55	1.51	1.48	1.59	1.39
25	1.74	1.60	1.89	1.62	1.38
20	1.87	1.82	1.88	1.39	1.73
15	1.82	1.54	1.66	1.66	1.72

増加し、 $x$  が  $150\mu$  以下では 1.0 以上になった。また、 $x$  が  $150\mu$  以上の時は  $r_s$  は粉碎時間の増加と共に減少し、この傾向は粒径が大きくなる程著しかった。 $x$  が  $150\mu$  以下では、 $r_s$  は粉碎時間に影響されなかった。 $r_s$  の対数を時間に対してプロットすると直線が得られた。この関係を用いて、粉碎時間零における  $r_s$  の値、 $r_{so}$  を求めることができた。 $r_{so}$  は  $x'$  の 0.18 乗に逆比例した。(Fig. 6)

(9)式を微分すると(10)式が得られる。

$$dR/dJ_s = r_s \cdot k_{J_s} \cdot R/J_s^{r_s+1} \quad \dots \dots (10)$$

(10)式と Table 3 から、 $J_s$  が小さい時には微粉の生成が多いと考えられる。また  $J_s/\epsilon_b J_b$  が 1.0 以上の場合は、 $x$  が  $500\mu$  以下の粒子の生成割合が大きいと考えられる。

#### 1.4 表面積増加速度

粒子が球形の場合、粒径  $x_m$  と粒子の比表面積  $S_m$  との間には(11)式が成立する。

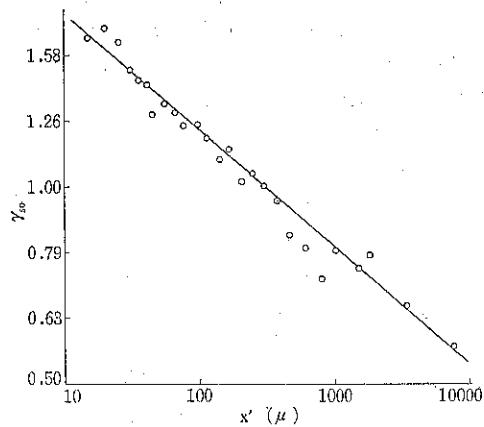


Fig. 6 Relation between  $r_{so}$  and the Particle Size of Ball-Milled Silica Sands

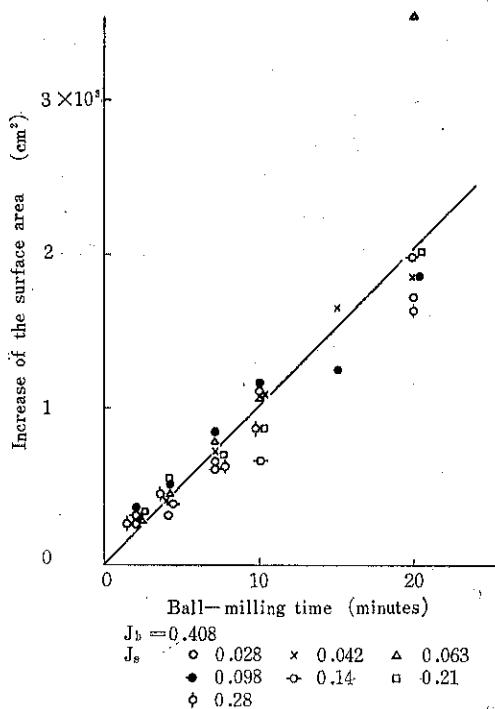


Fig. 7 Influence of  $J_b$  on Increase of the Surface Area of Silica Sands by Ball-Milling

$$S_m = 6/\rho_s \cdot x_m \quad \dots \dots (11)$$

粉碎によって得られた石英砂の粒子を球形と仮定して、第  $i$  番目のフラクションの粒子の平均粒子径、 $x_{mi}$  を(12)式によって求め、(13)式により粉碎試料の表面積、 $S$ 、を求めた。

$$x_{mi} = \sqrt{x_i \cdot x_i'} \quad \dots \dots (12)$$

$x_i'$  : 第  $i$  番目のフラクションの粒子の最大粒子径

**Table 4** The Numerical Values of  $\alpha$  and  $k_x$  ( $J_s=0.14$ )

$J_b$	0.167			$J_b$	0.238			
Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	
2	$1600 \leq x \leq 3400$	0.78	$1.0 \times 10^{-4}$	2	$240 \leq x$	0.58	$1.4 \times 10^{-4}$	
	$200 \leq x \leq 1600$	0.56			$54 \leq x \leq 240$	0.79		
	$140 \leq x \leq 200$	2.8			$x \leq 54$	14		
	$50 \leq x \leq 140$	0.82		6	$360 \leq x$	0.79	$5.8 \times 10^{-5}$	
	$x \leq 50$	—			$56 \leq x \leq 360$	1.1		
6	$58 \leq x \leq 2000$	0.83	$2.8 \times 10^{-5}$	13	$390 \leq x$	0.72	$2.1 \times 10^{-4}$	
	$x \leq 58$	8.1			$48 \leq x \leq 390$	1.3		
13	$54 \leq x \leq 4000$	0.83	$4.6 \times 10^{-5}$		$x \leq 48$	4.8		
	$x \leq 54$	6.3	23	$340 \leq x$	0.54	$3.0 \times 10^{-4}$		
23	$56 \leq x$	0.86		$5.8 \times 10^{-5}$		$46 \leq x \leq 340$	0.90	
	$x \leq 56$	6.6				$x \leq 46$	5.0	
38	$57 \leq x$	0.87	$7.4 \times 10^{-5}$	38	$240 \leq x$	0.67	$8.8 \times 10^{-4}$	
	$x \leq 57$	5.8			$54 \leq x \leq 240$	1.8		
58	$52 \leq x$	0.91	$1.0 \times 10^{-4}$		$x \leq 54$	2.9		
	$x \leq 52$	5.3	58	$230 \leq x$	0.74	$7.4 \times 10^{-4}$		
					$54 \leq x \leq 230$	1.5		
					$x \leq 54$	2.8		
$J_b$	0.328			$J_b$	0.489			
Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	
2	$1540 \leq x$	1.1	$3.7 \times 10^{-4}$	2	$74 \leq x$	0.81	$7.4 \times 10^{-5}$	
	$165 \leq x \leq 1540$	0.43			$x \leq 74$	4.0		
	$56 \leq x \leq 165$	1.0		6	$100 \leq x$	0.89	$1.1 \times 10^{-4}$	
	$x \leq 56$	8.6			$45 \leq x \leq 100$	2.5		
6	$112 \leq x$	0.85	$7.8 \times 10^{-5}$	13	$147 \leq x$	0.85	$3.0 \times 10^{-4}$	
	$56 \leq x \leq 112$	1.4			$x \leq 147$	2.3		
	$x \leq 56$	6.6						
13	$350 \leq x$	0.85	$1.3 \times 10^{-4}$	23	$154 \leq x$	0.79	$8.3 \times 10^{-4}$	
	$48 \leq x \leq 350$	1.2			$x \leq 154$	1.6		
	$x \leq 48$	2.8		38	$152 \leq x$	0.72	$2.5 \times 10^{-4}$	
23	$114 \leq x$	0.79	$3.0 \times 10^{-4}$		$x \leq 152$	1.3		
	$53 \leq x \leq 114$	1.6						
	$x \leq 53$	3.5	58	$156 \leq x$	0.69	$5.5 \times 10^{-4}$		
38	$146 \leq x$	0.73		$7.4 \times 10^{-4}$		$x \leq 156$	1.2	
	$x \leq 146$	1.9						
58	$152 \leq x$	0.73		$7.5 \times 10^{-4}$				
	$x \leq 152$	1.3						

$J_b$	0.652			$J_b$	0.815		
Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	Ball-milling time(min)	Particle size ( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$78 \leq x$	0.75	$1.5 \times 10^{-4}$	2	$66 \leq x$	0.65	$2.1 \times 10^{-4}$
	$x \leq 78$	4.5			$x \leq 66$	7.1	
6	$88 \leq x$	0.87	$1.2 \times 10^{-4}$	6	$118 \leq x$	0.87	$1.1 \times 10^{-4}$
	$x \leq 88$	4.5			$55 \leq x \leq 118$	1.5	
13	$130 \leq x$	0.93	$1.7 \times 10^{-4}$	13	$x \leq 55$	6.3	
	$x \leq 130$	2.1			$168 \leq x$	0.97	$8.3 \times 10^{-5}$
23	$160 \leq x$	0.91	$3.5 \times 10^{-4}$	23	$46 \leq x \leq 168$	2.0	
	$x \leq 160$	1.8			$x \leq 46$	3.5	
38	$144 \leq x$	0.85	$1.1 \times 10^{-3}$	38	$120 \leq x$	0.96	$1.5 \times 10^{-4}$
	$x \leq 144$	1.3			$54 \leq x \leq 120$	2.1	
58	$130 \leq x$	0.81	$2.4 \times 10^{-3}$	58	$x \leq 54$	3.5	
	$x \leq 130$	1.1			$110 \leq x$	0.91	$2.8 \times 10^{-4}$
					$14 \leq x \leq 110$	2.4	
					$94 \leq x$	0.83	$5.3 \times 10^{-4}$
					$14 \leq x \leq 94$	2.2	

$x_i$  : 第  $i$  番目のフラクションの粒子の最小粒子径

$$S = \sum_i w_i (6/\rho_s \cdot x_{mi}) \quad \dots \dots (13)$$

$w_i$  : 第  $i$  番目のフラクションの粒子の重量

Fig. 7 に示すように、粉砕による表面積の増加は試料充てん率にあまり影響されなかった。

## 2. ボール充てん率の影響

### 2.1 $J_s=0.14$ の場合

#### 2.1.1 粒度分布

( $-\log R$ ) を  $x'$  に対して対数プロットすると、Fig. 1 と類似の折れ線が得られた。各粒径範囲における直線の勾配、 $\alpha$ 、および  $k_x$  の値を Table 4 に示す。 $x'$  が  $50 \sim 350 \mu$ 、即ち  $x$  が  $50 \sim 250 \mu$  以上での  $\alpha$  の値はボール充てん率にあまり依存せず、0.8 附近であった。粒径が  $50 \mu$  以下での  $\alpha$  は 1.0 以上であり、粉砕時間と共に減少し、 $J_b$  が 0.4 ～ 0.65 の時最も小さかった。また、 $k_x$  は粉砕初期にはボール充てん率にあまり影響されなかったが、粉砕時間が大きくなると、 $J_b$  が 0.5 附近の時最も大きかった。以上の事実から、 $J_b$  が 0.4 ～ 0.65 の時粉砕が最も効率よく進行し、 $50 \sim 250 \mu$  以下の微粉の生成割合が大きいと考えられる。

#### 2.1.2 $R$ と粉砕時間との関係

$R$  と粉砕時間  $t$  との間には、Fig. 8 に示すような関係が得られた。 $x$  が  $1190 \mu$  の場合には ( $-\log R$ ) の  $t$  に対する対数プロットはすべての場合に一本の直線で表わされた。(8)式のパラメータ、 $\beta k_t$  は、Fig. 9 に示すよ

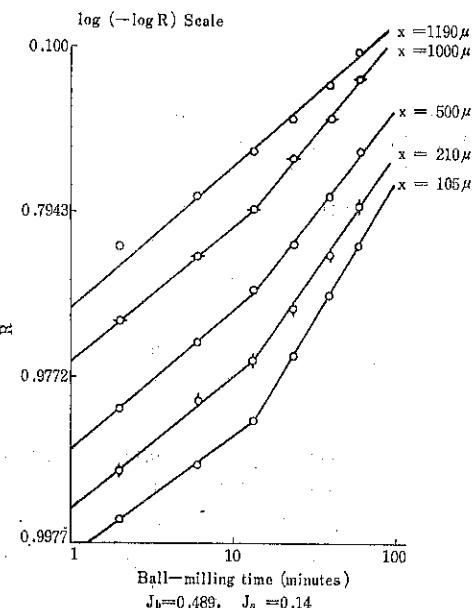


Fig. 8 Relation between  $R$  and Ball-Milling Time

うに、ほぼボール充てん率に比例した。粒径が小さくなると、( $-\log R$ ) の  $t$  に対する対数プロットは勾配の異なる二本の直線で表わされた。この場合には、10分以後の粉砕時間に対する直線について、(6)式のパラメータ、 $\beta$ 、を求めた。得られた  $\beta$  の値を Table 5 に示す。

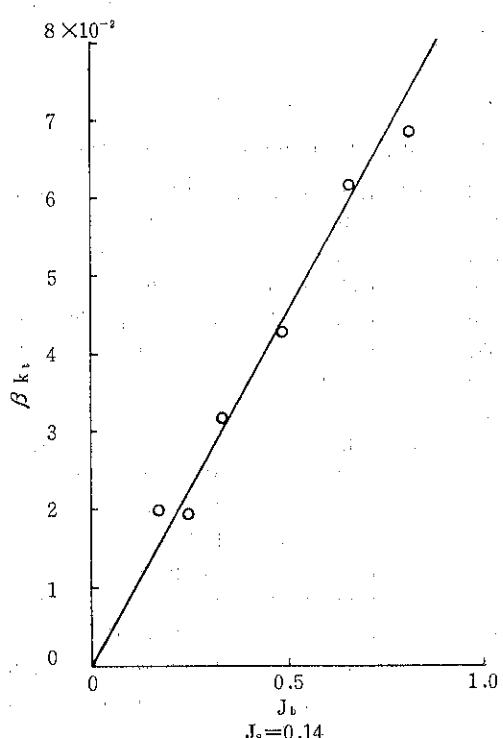


Fig. 9 Relation between  $\beta_{k_t}$  and  $J_b$

$J_b$  が 0.652 の時  $\beta$  の値は最も大きく、また粒径が減少するにつれて大きくなつた。 $J_b$  が 0.652 より小さくなるにつれて  $\beta$  の値は小さくなり、粒径の減少による増大の仕方も小さくなつた。 $J_b$  が 0.815 の時も同様の傾向がみられた。(8)式から、大きな粒子より小さな粒子の方が粉碎確率が高く、この傾向は  $J_b$  が 0.65 附近で著しいと考えられる。また  $J_b$  が 0.65 附近で粉碎が最も効率よく進行すると考えられる。

### 2.1.3 R と ボール充てん率の関係

Figs. 10, 11, 12 は R に対するボール充てん率の影響を示している。x が  $1190\mu$  の場合、2 分間粉碎した時には  $(-\log R)$  はボール充てん率にほぼ比例した。しかし、他の場合には、 $J_b$  が 0.5~0.6 の時  $(-\log R)$  は最大となり、 $J_b$  が 0.5 以下の直線の勾配は粉碎が進むにつれて大きくなつた。x が  $250\mu$  以下になると、粉碎初期には、 $J_b$  が 0.5~0.6 附近で  $(-\log R)$  は最大とならず、 $J_b$  が増加するにつれてやや大きくなる傾向がみられた。また x が  $100\mu$  以下では、 $J_b$  が小さい場合には、 $(-\log R)$  は  $J_b$  が 0.3~0.5 の範囲での  $\log(-\log R) - \log J_b$  直線より上にくる傾向がみられた。x が  $250\mu$  以上の粒子および  $100\mu \leq x \leq 250\mu$  の粒子で粉碎

Table 5 The Numerical Values of  $\beta$  ( $J_s = 0.14$ )

$J_b$ $x(\mu)$	0.167	0.238	0.328	0.489	0.652	0.815
1190	0.474	0.855	0.679	0.833	0.773	0.474
1000	0.715	0.814	0.851	1.12	1.23	0.638
840	0.717	0.810	0.896	1.18	1.28	0.680
710	0.698	0.854	0.892	1.29	1.35	0.680
590	0.678	0.842	0.960	1.30	1.42	0.650
500	0.797	0.817	0.998	1.30	1.40	0.627
420	0.807	0.779	1.03	1.32	1.43	0.597
350	0.841	0.860	1.07	1.27	1.44	0.594
297	0.830	0.863	1.08	1.38	1.48	0.655
250	0.778	0.835	1.10	1.46	1.48	0.657
210	0.760	0.880	1.22	1.38	1.54	0.675
177	0.880	0.927	1.27	1.39	1.62	0.675
149	0.773	0.925	1.27	1.48	1.61	0.798
125	0.726	0.884	1.28	1.62	1.73	0.930
105	0.683	0.845	1.38	1.69	1.79	0.855
88	0.645	0.850	1.57	1.89	2.06	1.04
74	0.600	0.983	1.65	1.94	2.15	1.05
63	0.567	0.778	1.72	1.86	2.19	1.13
53	0.700	0.837	1.76	1.90	2.19	1.18
44	0.830	0.780	1.81	1.82	1.85	1.25
40	0.977	1.23	2.46	2.07	2.26	1.58
35	1.84	1.49	2.83	2.15	2.40	1.71
30	1.73	2.12	3.30	2.41	2.58	1.78
25		2.32	3.88	2.55	2.75	2.14
20			3.24	2.61	2.92	2.41
15				2.65	3.11	
10				2.76	2.96	
8				2.88	2.81	
6				2.16	2.76	

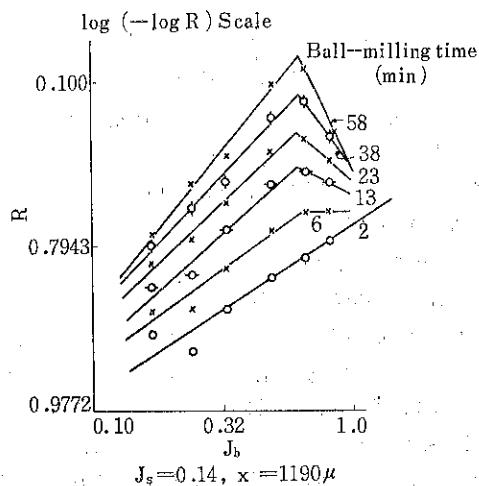


Fig. 10 Relation between R and  $J_b$

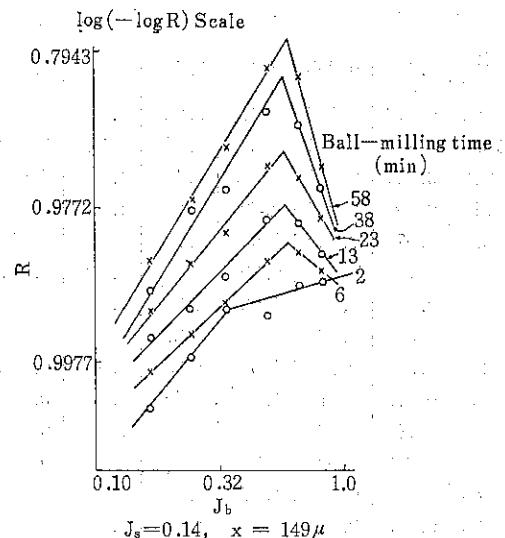


Fig. 11 Relation between  $R$  and  $J_b$

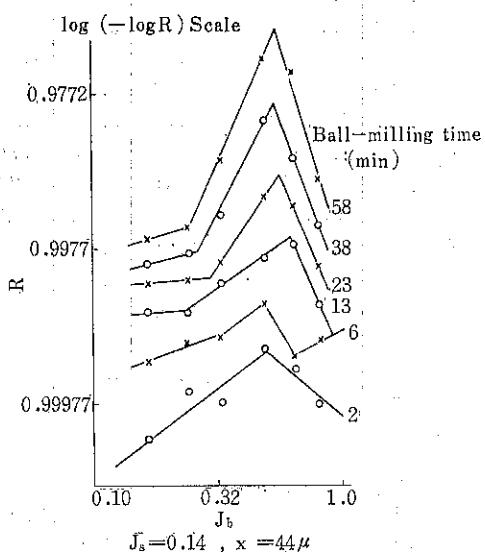


Fig. 12 Relation between  $R$  and  $J_b$

時間が2分以上の場合には、 $J_b$  が 0.6 以下では、近似的に(14式)が適用出来た。

$$R = \exp(-k_{J_b} \cdot J_b \cdot \gamma_b) \quad \dots \dots (14)$$

$k_{J_b}, \gamma_b$  : 粉碎操作条件等に依存するパラメータ

Table 6 に  $\gamma_b$  の値を示す。 $x$  が  $100\mu$  以下の場合には、 $J_b$  が 0.3~0.5 の範囲で(14式)を適用し、 $\gamma_b$  を求めた。 $\gamma_b$  を粉碎時間、 $t$ 、に対して対数プロットすると、ほぼ直線関係が得られた。この直線から、1分間粉碎した場合の  $\gamma_b$  の値、 $\gamma_{b0}$  を求めた。 $\gamma_{b0}$  は  $x$  が  $150\mu$  以上の時はほぼ 1.0 であり、 $x$  が  $150\mu$  以下になると 1.0

Table 6 The Numerical Values of  $\gamma_b$  and  $\gamma_{b0}$  ( $J_s = 0.14$ )

$x(\mu)$	$\gamma_b$						$\gamma_{b0}$
	2min	6min	13min	23min	38min	58min	
1190	1.06	1.10	1.16	1.45	1.59	1.83	1.0
1000	1.33	1.51	1.74	1.80	2.12	2.14	1.1
840	1.46	1.50	1.67	1.82	2.02	2.45	1.0
710	1.28	1.47	1.66	1.99	1.97	2.50	1.1
590	1.30	1.48	1.74	1.97	2.16	2.40	1.1
500	1.32	1.45	1.73	1.92	2.21	2.35	1.1
420	1.32	1.51	1.83	1.96	2.36	2.41	1.1
350	1.09	1.49	1.79	1.93	2.41	2.54	1.0
297	1.30	1.49	1.85	2.06	2.37	2.40	1.1
250	1.24	1.66	1.69	2.07	2.62	2.70	1.1
210		1.70	1.82	2.09	2.50	2.70	1.1
177		1.60	1.81	2.10	2.55	2.77	1.0
149		1.27	1.67	1.76	2.54	2.66	0.69
125		1.42	1.47	1.97	2.71	2.92	0.68
105		1.33	1.44	2.03	2.36	2.77	0.86
83		1.06	1.37	2.34	4.30	3.14	0.49
74		1.03	1.18	2.38	3.26	3.63	0.32
63		0.96	1.03	3.43	3.48	3.48	
53		1.03	0.92	2.70	3.40	3.30	
44		1.27	0.86	1.06	2.10	3.25	3.30
40		2.21	1.66	2.32	4.16	4.26	4.14
35		2.42	2.44	2.22	3.98	4.14	4.34

$\gamma_{b0}$  : The value of  $\gamma_b$  for silica sands ball-milled for one minute obtained by extrapolating the straight line of the logarithmic plot of  $(-\log R)$  versus  $J_b$

より小さくなる傾向がみられた。 $(14)$ 式を微分すると $(15)$ 式が得られる。

$$-dR/dJ_b = \gamma_b \cdot k_{J_b} \cdot J_b^{\gamma_b - 1} \cdot R \quad \dots \dots (15)$$

以上の事実から、粉碎初期には、 $J_b$  が小さい時は  $150\mu$  以下の微粉の生成が多く、 $J_b$  が大きくなるにつれて減少し、 $J_b$  が  $0.65$  以上では再び  $250\mu$  以下の微粉の生成割合が大きくなると考えられる。粉碎が進むと、 $J_b$  が  $0.5 \sim 0.65$  附近では、粉碎が効率よく進行するため、逆に微粉の生成が多くなるものと考えられる。

ミル内径に比較してボール径が大きいため、 $J_b$  が  $0.815$  の時は、ボールの充てん層の上の部分とミルのフタの下の部分との間の距離は  $2.5\text{ cm}$  以下であり、さらに直径  $2.5\text{ cm}$  のボールを一個加えると、ミルのフタをすることが困難になった。このことから、 $J_b$  が  $0.815$  ではボールの自由な運動はさまたげられ、圧縮せん断、摩

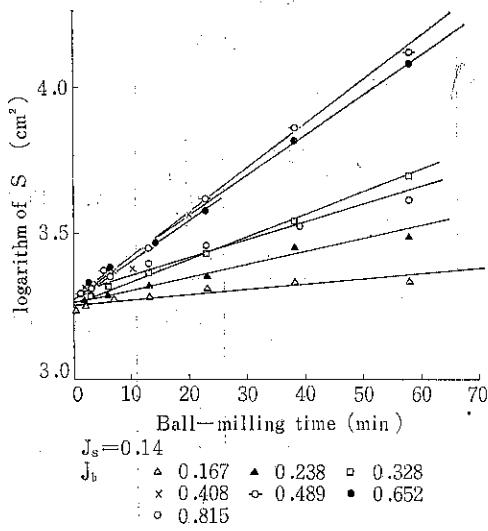


Fig. 13 Increase of the Surface Area of Silica Sands by Ball-Milling

碎による粉碎が行われると考えられる。 $J_b$  が 0.815 の時、粉碎初期に微粉の生成の多いこと、粉碎効率が粉碎時間の増加とともに低下すると考えられることは、このことに起因すると思われる。

#### 2.1.4 表面積增加速度

Fig. 13 に示すように、表面積、 $S$ 、と粉碎時間、 $t$ 、との間には(10式)が適用出来ることがわかった。

$$S = S_0 \exp(k_s t) \quad \dots \dots (10)$$

$S_0$  : 粉碎前のミル内の試料の総表面積

$k_s$  : 粉碎条件等に依存するパラメータ

(10式)を微分すると(11式)が得られる。

$$\frac{dS}{dt} = k_s S \quad \dots \dots (11)$$

比表面積径、 $x_s$ 、と  $S$  との間には(11')式が成立する。

$$S = \phi / \rho_s \cdot x_s \quad \dots \dots (11')$$

$\phi$  : 粒子形態、粒子の表面状態等に依存するパラメータ

(11)式と(11')式から(12式)が得られる。

$$-\frac{dx_s}{dt} = k x_s \quad \dots \dots (12)$$

$k$  : 粉碎条件等に依存するパラメータ

Kick はある材料の一定量を粉碎するに要する仕事量は同一の粉碎比において同一の値を示すという比例抵抗説を提案した<sup>5)</sup>。Lewis 等は Kick の法則は粉碎仕事量、 $A$ 、と粒子径、 $x_d$  の関係式として、(13式)で表わされることを示した<sup>5)</sup>。

$$dA = -K \cdot dx_d / x_d \quad \dots \dots (13)$$

$K$  : 粉碎条件等に依存するパラメータ

(13式)は(12式)のように書き表わされる。

$$-dx_d / dA = (1/K) x_d \quad \dots \dots (13')$$

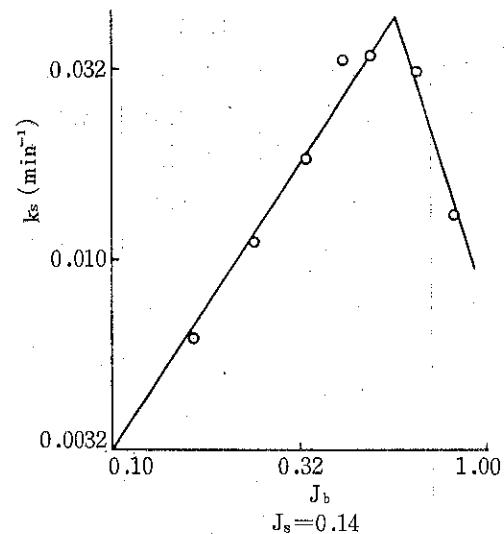


Fig. 14 Relation between  $k_s$  and  $J_b$

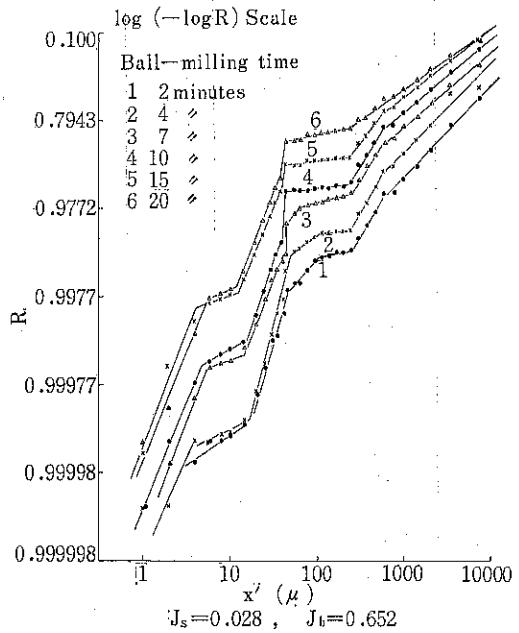


Fig. 15 Particle Size Distribution of Ball-Milled Silica Sands

$dA$  が  $dt$  に比例し  $x_d$  が  $x_s$  に比例するとすれば、(13)式は(13')式に一致する。Fig. 14 に示すように、 $J_b$  が 0.5 以下の時、 $k_s$  は  $J_b$  の 1.7 乗にはほぼ比例した。

#### 2.2 $J_s = 0.028$ の場合

##### 2.2.1 粒度分布

$(-\log R)$  を  $x'$  に対して対数プロットすると、ボル充てん率が小さい場合には Fig. 1 と類似の折れ線が得

Table 7 The Numerical Values of  $\alpha$  and  $k_x$  ( $J_s=0.028$ )

$J_b$	0.167			$J_b$	0.238		
t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$100 \leq x' \leq 45$	0.60 1.7 3.2	$7.4 \times 10^{-4}$	2	$1800 \leq x' \leq 45$	1.1 0.68 1.9 0.88 3.2	$7.8 \times 10^{-5}$
4	$1500 \leq x' \leq 470$ $470 \leq x' \leq 1500$ $50 \leq x' \leq 470$ $16 \leq x' \leq 50$	0.97 0.38 0.80 3.6	$3.2 \times 10^{-4}$	4	$1500 \leq x' \leq 45$	0.94 0.44 3.0 0.70 4.4	$2.4 \times 10^{-4}$
7	$1500 \leq x' \leq 480$ $480 \leq x' \leq 1500$ $45 \leq x' \leq 480$ $x' \leq 45$	0.81 0.42 0.83 4.6	$3.8 \times 10^{-4}$	7	$1500 \leq x' \leq 200$ $200 \leq x' \leq 1500$ $95 \leq x' \leq 200$ $45 \leq x' \leq 95$ $20 \leq x' \leq 45$	0.86 0.52 2.2 0.92 2.2	$2.3 \times 10^{-4}$
10	$1500 \leq x' \leq 66$ $450 \leq x' \leq 1500$ $66 \leq x' \leq 450$ $45 \leq x' \leq 66$ $x' \leq 45$	0.80 0.42 0.87 0.55 4.8	$3.7 \times 10^{-4}$	10	$1500 \leq x' \leq 15$ $300 \leq x' \leq 1500$ $95 \leq x' \leq 300$ $45 \leq x' \leq 95$ $15 \leq x' \leq 45$	0.75 0.50 2.2 0.50 1.6	$8.3 \times 10^{-4}$
15	$1500 \leq x' \leq 20$ $420 \leq x' \leq 1500$ $68 \leq x' \leq 420$ $45 \leq x' \leq 68$ $20 \leq x' \leq 45$	0.89 0.42 1.1 0.39 4.8	$3.9 \times 10^{-4}$	15	$1500 \leq x' \leq 45$ $450 \leq x' \leq 1500$ $200 \leq x' \leq 450$ $88 \leq x' \leq 200$ $45 \leq x' \leq 88$ $x' \leq 45$	0.89 0.53 0.92 2.0 0.30 3.1	$2.2 \times 10^{-3}$
20	$1500 \leq x' \leq 25$ $380 \leq x' \leq 1500$ $68 \leq x' \leq 380$ $45 \leq x' \leq 68$ $25 \leq x' \leq 45$	0.78 0.53 0.85 0.37 4.8	$4.8 \times 10^{-4}$	20	$600 \leq x' \leq 17$ $300 \leq x' \leq 600$ $45 \leq x' \leq 300$ $17 \leq x' \leq 45$	0.72 1.3 0.58 2.9	$1.0 \times 10^{-3}$
$J_b$	0.328			$J_b$	0.489		
t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$
2	$1500 \leq x' \leq 27$ $135 \leq x' \leq 1500$ $x' \leq 135$	1.2 0.76 3.6	$1.9 \times 10^{-4}$	2	$250 \leq x' \leq 19$ $110 \leq x' \leq 250$ $45 \leq x' \leq 110$ $x' \leq 45$	1.1 0.61 1.2 4.2	$1.8 \times 10^{-5}$
4	$300 \leq x' \leq 10$ $115 \leq x' \leq 300$ $x' \leq 115$	1.2 0.24 2.8	$2.1 \times 10^{-3}$	4	$250 \leq x' \leq 110$ $110 \leq x' \leq 250$ $45 \leq x' \leq 110$ $18 \leq x' \leq 45$	0.93 0.53 1.5 4.6	$1.2 \times 10^{-5}$
7	$350 \leq x' \leq 18$ $116 \leq x' \leq 350$ $74 \leq x' \leq 116$ $45 \leq x' \leq 74$ $18 \leq x' \leq 45$	1.1 0.17 2.4 0.61 3.9	$3.5 \times 10^{-3}$	7	$45 \leq x' \leq 13$ $x' \leq 45$	0.91 2.7	$2.0 \times 10^{-4}$
10	$1800 \leq x' \leq 19$ $300 \leq x' \leq 300$ $98 \leq x' \leq 98$ $45 \leq x' \leq 45$	1.0 1.5 0.22 0.66 4.4	$3.8 \times 10^{-3}$	10	$160 \leq x' \leq 47$ $47 \leq x' \leq 160$ $x' \leq 47$	0.89 0.73 3.8	$5.6 \times 10^{-4}$
15	$1900 \leq x' \leq 20$ $250 \leq x' \leq 250$ $45 \leq x' \leq 45$	1.2 1.4 0.18 3.5	$3.2 \times 10^{-3}$	15	$140 \leq x' \leq 15$ $48 \leq x' \leq 140$ $15 \leq x' \leq 48$	0.91 0.61 3.1	$1.6 \times 10^{-3}$
20	$130 \leq x' \leq 19$ $45 \leq x' \leq 130$ $x' \leq 45$	1.1 0.27 4.9	$3.2 \times 10^{-3}$	20	$1500 \leq x' \leq 45$ $190 \leq x' \leq 1500$ $45 \leq x' \leq 190$ $x' \leq 45$	0.64 0.33 0.82 1.5	$4.6 \times 10^{-3}$

$J_b$	0.652				$J_b$	0.815			
t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$	t(min)	Particle size( $\mu$ )	$\alpha$	$k_x$		
2	500 $\leq x' < 105$	1.1	$6.0 \times 10^{-5}$	2	1500 $\leq x' < 220$	1.3	$4.5 \times 10^{-4}$		
	250 $\leq x' < 500$	1.8			220 $\leq x' < 45$	0.98			
	105 $\leq x' < 41$	0.15			45 $\leq x' < 17$	0.42			
	41 $\leq x' < 16$	0.99			45 $\leq x' < 17$	3.1			
	16 $\leq x' < 41$	3.3			17 $\leq x' < 45$				
4	500 $\leq x' < 15$	0.99	$2.5 \times 10^{-4}$	4	600 $\leq x' < 14$	1.5	$4.6 \times 10^{-8}$		
	250 $\leq x' < 500$	1.9			250 $\leq x' < 14$	0.34			
	105 $\leq x' < 45$	0.13			45 $\leq x' < 14$	0.08			
	45 $\leq x' < 15$	0.85			45 $\leq x' < 14$	2.9			
	15 $\leq x' < 45$	3.4			1800 $\leq x' < 15$	1.1			
7	500 $\leq x' < 13$	0.84	$6.2 \times 10^{-8}$	7	800 $\leq x' < 15$	2.2	$7.4 \times 10^{-8}$		
	250 $\leq x' < 500$	1.7			380 $\leq x' < 15$	0.65			
	55 $\leq x' < 250$	0.33			45 $\leq x' < 15$	0.11			
	13 $\leq x' < 55$	2.5			15 $\leq x' < 15$	3.2			
	600 $\leq x' < 13$	0.83			1900 $\leq x' < 13$	1.3			
10	240 $\leq x' < 600$	1.6	$1.5 \times 10^{-2}$	10	730 $\leq x' < 13$	2.1	$1.5 \times 10^{-2}$		
	45 $\leq x' < 240$	0.20			45 $\leq x' < 13$	0.09			
	13 $\leq x' < 45$	2.8			13 $\leq x' < 13$	3.0			
	600 $\leq x' < 15$	0.76			1800 $\leq x' < 15$	1.0			
	230 $\leq x' < 600$	1.4			780 $\leq x' < 15$	2.0			
15	45 $\leq x' < 230$	0.13	$4.5 \times 10^{-2}$	15	480 $\leq x' < 15$	0.49	$1.9 \times 10^{-2}$		
	13 $\leq x' < 45$	2.5			55 $\leq x' < 15$	0.13			
	250 $\leq x' < 45$	0.70			x' $\leq 55$	2.9			
	45 $\leq x' < 250$	0.19			1900 $\leq x' < 15$	1.2			
	13 $\leq x' < 45$	2.7			800 $\leq x' < 15$	2.0			
20	250 $\leq x' < 13$	0.70	$6.1 \times 10^{-2}$	20	400 $\leq x' < 15$	0.33	$3.8 \times 10^{-2}$		
	45 $\leq x' < 250$	0.19			45 $\leq x' < 15$	0.08			
	13 $\leq x' < 45$	2.7			x' $\leq 15$	2.8			

られたが、ボール充てん率が大きい場合には Fig. 15 のような結果が得られ、 $J_b=0.652$  の場合は  $x'=45 \sim 250\mu$  即ち  $x=44 \sim 210\mu$  の粒子の生成割合が非常に小さいことがわかった。生成割合の小さい粒子の粒径範囲は  $J_b$  が大きくなると拡大した。各粒径範囲での直線についての  $\alpha$ 、および  $k_x$  の値を Table 7 に示す。 $\alpha$  は  $45\mu$  以上ではあるせまい領域を除いては 1.0 以下あるいは 1.0 に近い値であり、 $45\mu$  以下では 1.0 より大きかった。ボール充てん率が 0.5 以上になると、 $45\mu$  以上のある粒径範囲での  $\alpha$  の値は非常に小さく、この領域は  $J_b$  が大きくなると拡大し、 $J_b=0.815$  の時は  $45\mu \leq x' \leq 800\mu$  ( $44\mu \leq x \leq 500\mu$ ) にみられた。 $k_x$  は粉碎初期には  $J_b$  が 0.5 附近の時若干小さいようにも思われたが、粉碎が進むにつれて、 $J_b$  が 0.65 附近の時最も大きくなった。ボール充てん率が 0.5 ~ 0.65 の時、粉碎が最も効率よく進行すると考えられる。

### 2.2.2 R と粉碎時間の関係

R と粉碎時間との間には、2.1.2 の場合と類似の関係が得られた。Fig. 16 は  $x=1190\mu$  の粒子についての(8)式のパラメータ、 $\beta k_t$  をボール充てん率に対してプロットしたものである。ボール充てん率が小さい場合は、 $\beta k_t$  は  $J_b$  に比例すると仮定して  $J_b$  が大きい場合の  $\beta$

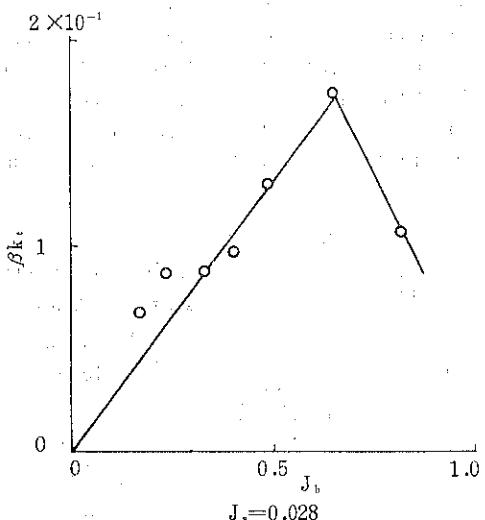


Fig. 16 Influence of  $J_b$  on  $\beta k_t$

ロットと原点を結んだ直線より大きな値を示した。2.1.2 と同様にして求めた  $\beta$  の値を Table 8 に示す。空欄の部分は、 $(-\log R)$  の粉碎時間に対する対数プロットによってはきれいな直線が得られなかつたため、 $\beta$  の値を求めることが出来なかつた。 $\beta$  はボール充てん率

Table 8 The Numerical Values of  $\beta$  ( $J_s = 0.028$ )

$x(\mu)$	$J_b$					
	0.167	0.238	0.328	0.489	0.652	0.815
1190	0.246	0.440	0.414	0.545	0.810	0.895
1000	0.435	0.373	0.484	0.769	0.837	1.02
840	0.440		0.674	0.835	0.993	0.960
710	0.426		0.645	0.806	1.07	1.06
590	0.416		0.650	0.801	1.09	1.10
500	0.428		0.640	0.848	1.11	1.25
420	0.396			0.872	1.12	1.24
350	0.438			0.960	1.16	1.07
297	0.431			0.985	1.39	1.30
250	0.472			1.02	1.50	1.34
210	0.438			0.967	1.74	1.35
177	0.436			0.943	1.72	1.49
149	0.394	0.647		0.820	1.80	1.32
125	0.298	0.557		0.874	1.71	1.30
105	0.314	0.556		0.946	1.82	1.30
88	0.319	0.561	0.695	0.952	1.76	1.28
74	0.395	0.510	0.761	0.985	1.79	1.31
63	0.400	0.568	1.01	1.13	1.80	1.30
53	0.461	0.585	1.03	0.95	1.85	1.34
44	0.730	0.613	1.20	1.19	1.88	1.33
40	0.716	0.917	1.38	1.51	2.04	1.64
35	0.910	0.920	1.43	1.75	2.14	1.76
30	0.960	1.02	1.24	1.75	2.28	1.65
25	0.809	0.809	0.828	1.82	2.44	1.75
20	1.08	1.08	0.560	1.99	2.71	1.81
15	1.25	1.25	0.455	1.74	2.66	1.57
10	0.864		0.342	1.85	1.85	1.38
8	0.815		0.352	1.84	2.45	1.40

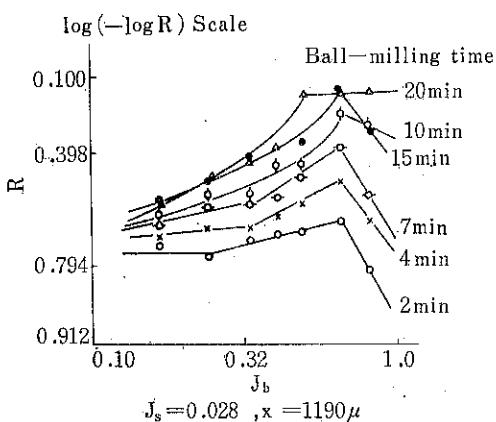


Fig. 17 Influence of  $J_b$  on  $R$

が小さい時は小さな値を示し、50~1000 $\mu$ の範囲では粒径にあまり影響されなかった。ボール充てん率が大きくなると、 $\beta$ は大きくなり、 $J_b=0.652$ の時最も大きな値を示す。

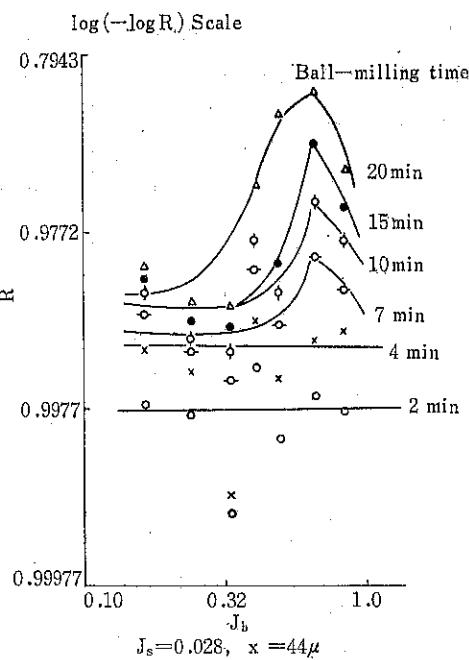


Fig. 18 Influence of  $J_b$  on  $R$

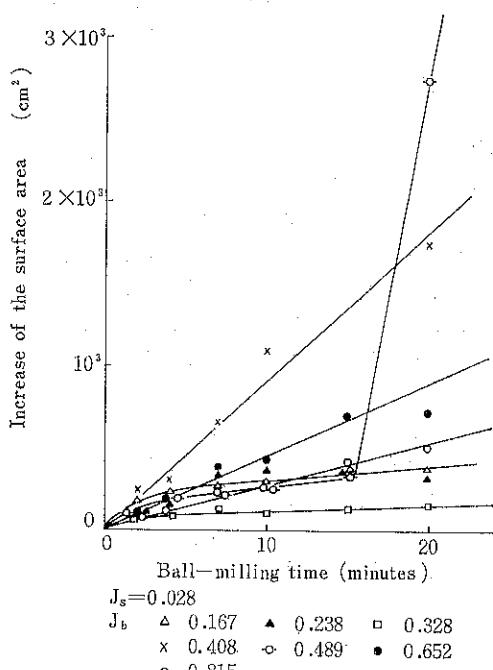


Fig. 19 Influence of  $J_b$  on Increase of the Surface Area of Silica Sands by Ball-Milling

なると  $\beta$  は大きくなり、 $J_b=0.652$  の時最も大きな値を示す。さらにボール充てん率が大きくなると若干小さくなつた。また、 $J_b=0.65$  附近では、粒径の減少による

$\beta$ の増大が著しかった。これ等の事実から、 $J_b=0.65$ 附近で粉碎が最も効率よく進行し、また小さな粒子の方が粉碎確率が高いと考えられる。

### 2.2.3 Rとポール充てん率の関係

粉碎初期には、ポール充てん率が0.65以下では( $-\log R$ )はポール充てん率にあまり依存せずほぼ一定で、ポール充てん率が0.65以上になるとやや小さくなつた(Fig. 17)。粉碎試料が少ないため、粒径の小さい粒子では測定値にバラツキが大きく、80μ以下では、ポール充てん率が0.65以上になつても( $-\log R$ )が小さくなる傾向はみられなかつた(Fig. 18)。粉碎が進行するにつれて、ポール充てん率が0.65附近で( $-\log R$ )は最大となる傾向がみられた。ポール充てん率が0.65附近で、粉碎が最も効率よく進行するためと考えられる。

### 2.2.4 表面積増加速度

試料挿入量が少ないと粒径の小さい部分での測定誤

差が大きく、このため表面積の値もバラツキが大きかつた。しかし、Fig. 19に示すように、20分間粉碎した場合には、ポール充てん率が0.4~0.65の時、表面積増加速度が大きい傾向がみられた。

## 参考文献

- 1) 金庭延慶、池川昭子、橋本勝代; Chem. Pharm. Bull., 21, 676 (1973)
- 2) Rosin. P. O., Rammler E.; Kolloid-z., 87, 16 (1934) および Zement, 16, No. 35 (1927)
- 3) 中条金兵衛; 大日本塗業協会誌, 48, No. 568 April (1940) および No. 570 June (1940)
- 4) 中川有三、松居国夫; 化学工学, 23, 694 (1959)
- 5) 松居国夫; 粉碎, No. 16, 68 (1971)

## 新製品ひとこと

ダイガス/ホソカワ

### リンレックスミル [LINREX MILL]

ゴムやプラスチックのような常温難碎物、わずかな熱によっても香りがそこなわれる香辛料や食品など…これらを微粉碎することは極めて困難なことです。

その解決策として原理的には“低温粉碎”が良いことは従来からわかっていたのですが、経済的(冷媒コストが高い)、技術的(適当な粉碎装置がない)な理由で工業的規模での実現にはいたりませんでした。

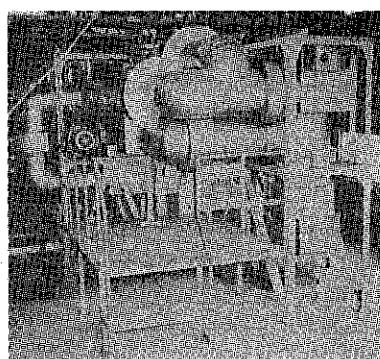
朗報!!この難問が一挙に解決されたのです。

LNG(液化天然ガス)時代の到来により冷媒として、理想的な液体窒素の工業的使用が容易になりました。

た。また、高性能の低温粉碎装置が誕生しました。エネルギ産業の大坂ガス㈱と粉碎技術の株細川鉄工所がガッチャリ手を結んだ成果です。

本装置には、数々の工夫がこらされています。  
特長

- ・常温では粉碎困難なものでも粉碎できます。
- ・分級機構を内蔵しているので、任意の粒度で粒子のそろった粉末が得られます。
- ・常温で粉碎した場合よりも、流动性のよい微粉が得られます。
- ・発熱または酸化による変質がありません。
- ・粉碎にともなう臭気、粉塵爆発、騒音を防ぐことができます。
- ・粉碎機本体には、超低温にも充分耐える材質を使用しています。



## 実験用連續湿式ボールミルにおける粒子の 滞留時間分布について

On the Residence Time Distribution of Particles in a  
Laboratory Continuous Wet Ball Mill

富田 美穂*	太田 元*
Yoshiho Tomida	Hajime Ohta
井上外志雄*	今泉 常正*
Toshio Inoue	Tsunemasa Imaizumi

### Abstract

A mathematical model of the continuous ball mill grinding operation can be established by combining the residence time distribution function with the grinding functions. As regards the axial flow through the mill, the diffusion type model is generally accepted. The purpose of this research was to identify the axial flow characteristics of the continuous ball mills for specific sizes under various operating conditions. This is necessary because, depending on the operating conditions, the difference in the behaviour of particles with different sizes in the continuous mills should significantly influence the efficiency of the operation as well as the size distribution of the product, whereas it can not be identified by the conventional tracer techniques on account of the grinding action simultaneous with the transport process through the mill.

Quartz particles were ground in a continuous laboratory wet ball mill. After steady state conditions were reached the tracer (KCl or specifically sized alluminum particles) was added to the feed end of the mill instantaneously. Since the alluminum particles have the specific gravity very close to that of quartz particles to be ground and are not breakable in the mill, residence time characteristics could be estimated independently of the grinding phenomena.

Impulse response tests were conducted under various conditions. Calculated residence time distribution function  $f(\phi)$ , indicial response function  $F(\phi)$  and residence time function  $F'(\phi)$  were obtained as exemplified in Figs. 2 through 5 and Figs. 9 and 10. Standard deviation  $\sigma$  and mixing coefficient  $D$  were calculated and the intensity of mixing within the mill was estimated quantitatively as shown in Table 2 and Figs. 6 through 8.

The results obtained summarizes as follows:

- (1) The residence time distribution in the wet ball mill can be closely represented by the logarithmic normal distribution.

\* 東京大学工学部資源開発教室

(〒113 東京都文京区本郷7-3-1) Tel (03) 812-2111 (内)6183

(2) Simpler description of the flow characteristics in the wet ball mill can be made by regarding the systems as a serial combination of dead time and perfect mixing.

(3) So far the influence of various operating conditions of the mill on the residence time function has not been established.

## 1. 緒 言

ボールミルによる連続式粉碎プロセスは、粉碎、混合を伴う物質移動、およびミル内分級の3つの単位プロセスの結合と考えられる。

粒子のミル内滞留時間分布を調べることは、電算機シミュレーションなどの技術を通して、連続粉碎プロセスの理解と改善に寄与するところが大であろうと思われる。

ボールミルにおける滞留時間分布に関してはすでに多くの研究報告がなされているが<sup>1),2),3),4)</sup>、実験に用いられるトレーサーの挙動が被粉碎物質粒子のそれと異なるとか、トレーサー粒子自身が粉碎される結果、滞留時間分布の粒度依存性が明らかにできないなど問題が多い。特に滞留時間分布の粒度依存性は連続粉碎におけるミル内分級効果を通して粉碎産物の粒度分布とミルの粉碎効率に影響するはずであり、これについての実験的手掛りを得ることはきわめて重要であると考える。

本研究では、整粒された石英粒子をミルに連続的にフィードし、それが粉碎されて一定の粒度分布をもった粒子群が排出されている定常状態の湿式開回路粉碎プロセスを対象として、インパルス応答試験法による実験を行った。

実験の結果より粒子の滞留時間分布特性を求め、1, 2の数式モデルへの適合性ならびに滞留時間分布に影響を及ぼす若干の要因について検討した。

先に述べた理由よりインパルス応答試験におけるトレーサーとしては金属アルミニウムの粒子を使用した。アルミニウムは

(i) 比重が碎料の石英とほぼ等しい ( $\text{SiO}_2$  2.65, Al 2.69),

(ii) ミル内に滞留する間でも粉碎されないので、注目粒度の粒子のミル内における滞留時間分布を知ることができる、の2点から、本実験におけるトレーサーとして適当と考えた。予備試験の結果、アルミニウム粒子の粉碎はほとんど認められなかった。

## 2. 実 験

### 2.1 実験装置

Fig. 1 は実験で用いた装置の模式図である。

シェルの寸法は、 $160\text{mm} \phi \times 200\text{mm}$  である。粉碎媒

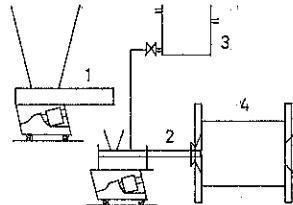


Fig. 1 Ball mill test circuit

- 1,2 vibrating feeder
- 3 head tank
- 4 ball mill

体としては、 $22.5\text{mm} \phi$  の鋼鉄製ボール 6.9kg (シェル容積の約 40%) を用いた。シェルの回転数は 80rpm (臨界回転速度の 75%) とした。

### 2.2 実験方法

種々の条件で運転されている連続式湿式ボールミル開回路に、KCl 飽和溶液または Al 粒子をトレーサーとして用いることにより、インパルス応答を求めた。

試料としては、 $1680\mu \sim 840\mu$  に整粒された石英を用いた。トレーサーとして使用した Al 粒子は粒径約 2.0mm, 1.0mm, 0.5mm, 0.4mm, 0.3mm, 0.15mm のもので、0.5mm 以上のものについては、アルミニウム線材を旋盤で短く切断することにより、また 0.4mm 以下の粒径のものについては、アルミニウム板を粗目のヤスリで削り、えられた粉を標準フライでフライ分けることによって調製した。KCl は注射器を用いて、Al 粒子は薄いガラスの球形アンプルに封入してそれぞれ瞬間に投入した。

実験条件を Table 1 に示す。

サンプリングは 60 min にわたって行った。KCl については、ミル出口での濃度変化を液の電導度変化として検出し、ペン書きレコーダーに記録した。Al 粒子についてはミル出口から排出される産物中の Al 粒子の重量を計数法または水素置換法\* によって測定した。

### 2.3 実験結果

インパルス応答試験で得られたデータを正規化するこ

\* 粉碎産物を3角フラスコに入れ、これに1:1の塩酸を注ぎ発生する水素ガスの容積を水との置換により測定した。

Table 1 Experimental conditions

Test No.	Water [ml/min]	Quartz [g/min]	Solids density [%]	Hold-up [kg]	Mean residence time $\theta_T$ [min]	Mill speed [rpm]	Tracer
(1)	65			0.76	11.69	70	KCl
(2)	70			0.76	10.86	70	KCl
(3)	82			0.76	9.27	70	KCl
(4)	90			0.76	8.44	70	KCl
(5)	52			0.74	14.23	80	KCl
(6)	55	23	29.5	0.91	11.62	80	KCl
(7)	52	62	55.4	1.13	10.06	80	KCl
(8)	53	118	69.4	0.92	5.87	80	KCl
(9a)							Al 2.0mm
(9b)	52	52.4	50.2	1.48	15.88	80	Al 1.0mm
(10a)							Al 2.0mm
(10c)	52	56.2	52.4	1.48	16.54	80	Al 1.0mm
(11a)							Al 2.0mm
(11b)	52	46.8	48.1	1.46	19.27	80	Al 1.0mm
(12a)							Al 2.0mm
(12b)	44.1	45.9	51.2	1.17	13.01	80	Al 1.0mm
(12c)							Al 0.5mm
(13a)							Al 2.0mm
(13b)							Al 1.0mm
(13c)	57.7	37.1	39.49	1.23	16.9	80	Al 0.5mm
(13d)							Al 0.4mm
(13f)							Al 0.1mm
(14c)							Al 0.5mm
(14e)	52	44.4	48.1	1.47	19.23	80	Al 0.3mm

とによって滞留時間分布の密度関数  $f(\phi)$  を求めた。 $\phi$  を無次元時間  $(t/\theta_T)$  とすると、定義より

$$\int_0^\infty f(\phi) d\phi = 1 \quad (1)$$

である。

一方、0→1ステップ入力に対する過渡応答関数  $F(\phi)$ 、残余濃度関数  $F'(\phi)$  は  $f(\phi)$  と(2)式の関係にあり

$$F(\phi) = 1 - F'(\phi) = \int_0^\phi f(\phi) d\phi \quad (2)$$

$F(\phi)$  は流出流中の  $\phi$  もしくは、それより小さい滞留時間に有する流体要素または粒子の分率を表わし、 $F'(\phi)$  は流出流中の  $\phi$  より大きい滞留時間に有する流体要素又は粒子の分率を表わす。

$$F(\phi) + F'(\phi) = 1 \quad (3)^{5,6,7}$$

Fig. 2, 3 にそれぞれ KCl および Al 粒子をトレーサーとするインパルス応答試験の代表的な結果を示す。Al 粒子をトレーサーとした場合データはかなりのバラツキが認められた。

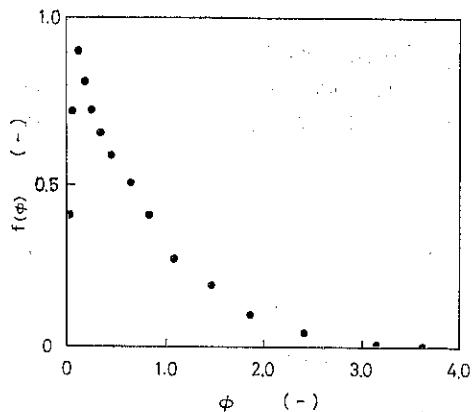


Fig. 2 Density function of residence time distribution (KCl tracer)

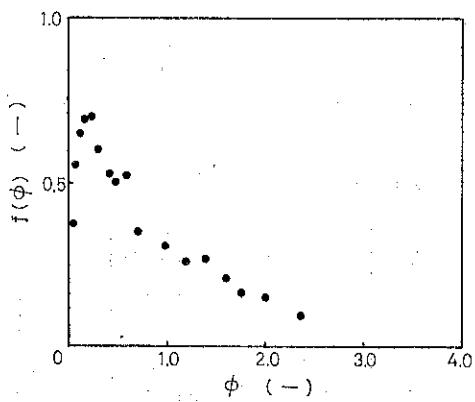


Fig. 3 Density function of residence time distribution (Al 1mm tracer)

### 3. 考 紋

回転円筒式の混合装置あるいは粉碎機（いわゆるロッドミル、ボールミル）における軸方向の物質の移動は、一次元の拡散モデルによって表わされることが従来の研究において認められている。

特定の粒群に着目し、それらが

- (1) 一定の軸方向速度  $u$  および混合拡散係数  $D$  をもつ、
- (2) ミルの半径方向には混合は完全である、と仮定すれば、次の基礎式が得られる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

境界条件として

$$x=0 : C=\lambda \delta(t) \quad (5)$$

$$x=\infty : C=0 \quad (6)$$

初期条件として

$$t=0, x>0 : C=0 \quad (7)$$

のもとで(4)式を解けば、滞留時間分布の密度関数

$$f^*(t) = \frac{L}{2\sqrt{\pi Dt^3}} \exp\left\{-\frac{(L-ut)^2}{4Dt}\right\} \quad (8)$$

を得る。

次に過渡応答関数  $F(t)$  を対数確率紙上にプロットした結果を Fig. 4, 5 に示す。

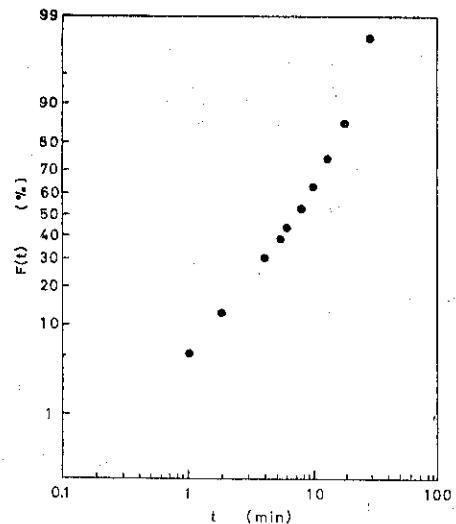


Fig. 4 Cummulative tracer weight percentage vs. time on logarithmic-normal probability coordinates (KCl tracer)

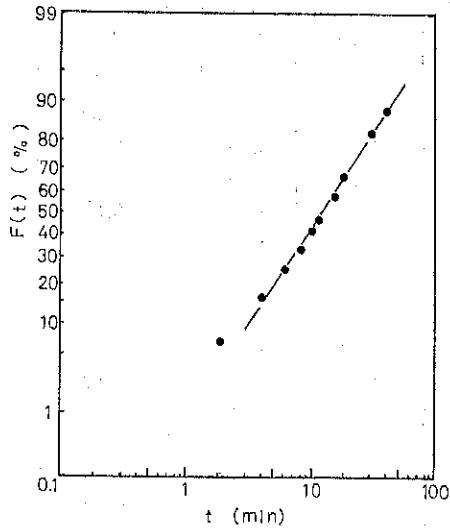


Fig. 5 Cummulative tracer weight percentage vs. time on logarithmic-normal probability coordinates (Al 1mm tracer)

$F(t) - t$  は対数確率紙上ではほぼ直線で近似できることから、トレーサーの滞留時間分布は対数正規分布に従うことがわかる。これは乾式ミルについて森らが<sup>1)</sup>、また湿式ミルについて Kelsall らが<sup>2)</sup>得ている結果と一致する。Fig. 4, 5 のグラフを

$$f^{**}(t) = \frac{M_0}{\sigma t \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ \frac{(\log_{10} t - \log_{10} t_e)^2}{2\sigma^2} \right\} \quad (9)$$

で表わし、これを滞留時間  $t$  の対数正規分布として見るならば、 $t_e$  はメディアン、 $\sigma$  は幾何標準偏差、 $M_0 = \log_{10} e = 0.4343$  である。

(9)式の対数正規分布において  $t_m$  を滞留時間分布のモード、 $t_a$  を平均値とすれば、拡散係数と上記パラメータとの間には、次式の関係が近似的に成立つことが森らによって明らかにされている。

$$D = \frac{L^2}{2t_a} \left( \frac{t_a}{t_m} - 1 \right) \quad (10)$$

(10)式は(8)式と(9)式の分布の分散を等置することによって誘導されている。

ただし

$$\sigma = \log_{10} t_e - \log_{10} t_{16} \quad (11)$$

$$\log_{10} t_m = \log_{10} t_e - 2.303\sigma^2 \quad (12)$$

$$\log_{10} t_a = \log_{10} t_e + 1.151\sigma^2 \quad (13)$$

である。

また PeB は

$$PeB = \frac{nL}{D} \quad (14)$$

で与えられ、PeB と  $\sigma$  との間には

$$\frac{1}{PeB} = \exp(2.303\sigma^2) - 1 \quad (15)$$

なる関係がある。

実験データを上記の方法により解析することによって求められたパラメータの値をまとめて Table 2 に示す。

トレーサー粒子の粒径と平均滞留時間との関係については実験誤差が大きく、明確な傾向をつかむことができなかった。実験誤差が大きいのはフィード量が不安定であったこと、粗粒についてはトレーサー粒子数が充分に

Table 2 Results of delta response

No	$\theta_t$ (min)	$\sigma$ (-)	$t_m$ (min)	$t_e$ (min)	$t_a$ (min)	$u$ (cm/min)	$D$ (cm <sup>2</sup> /min)	PeB (-)
1	11.96	0.4041	2.99	7.1	10.95	1.825	25.16	1.451
2	10.86	0.4559	2.33	7.0	12.14	1.646	33.12	0.994
3	9.27	0.4087	2.54	6.15	9.58	2.088	29.76	1.403
4	8.44	0.3905	2.44	5.48	8.21	2.413	30.32	1.592
5	14.23	0.6102	1.13	8.15	21.87	0.914	55.84	0.322
6	11.62	0.4224	3.18	8.20	13.16	1.520	23.96	1.269
7	10.06	0.4096	2.64	6.42	10.01	1.998	28.65	1.395
8	5.37	0.3198	3.17	5.45	7.15	2.799	20.15	2.778
9a	15.38	0.5184	3.08	12.8	26.09	0.766	24.21	0.633
10a	16.54	0.5066	3.13	12.2	24.09	0.830	24.07	0.689
11a	19.27	0.4514	4.11	12.1	20.76	0.963	18.75	1.027
12a	13.00	0.4624	3.31	10.3	18.16	1.101	23.24	0.948
13a	16.90	0.5345	3.06	13.9	29.64	0.675	23.95	0.564
9b	15.38	0.4953	3.32	12.2	23.38	0.856	22.86	0.779
10b	16.54	0.4498	4.11	12.0	20.52	0.975	18.75	1.040
11b	19.27	0.4679	4.97	15.3	27.33	0.173	16.04	0.912
12b	13.00	0.4542	4.67	14.0	24.18	0.827	16.43	1.007
13c	16.9	0.5824	3.23	19.5	47.91	0.417	21.04	0.394
14c	19.23	0.5381	3.48	15.7	33.35	0.601	21.07	0.570
13d	16.90	0.5362	2.39	11.0	23.57	0.848	31.49	0.556
14e	19.23	0.5256	2.45	10.6	22.04	0.904	30.19	0.599
13f	16.90	0.5768	2.06	12.0	28.98	0.691	33.38	0.414

多くないことなどが原因と考えられ、前者については粉体流量計を利用してフィーダを自動制御することを試験中である。

Table 2 のデータから若干の関係を抽出した結果を、Fig. 6, 7, 8 に示す。

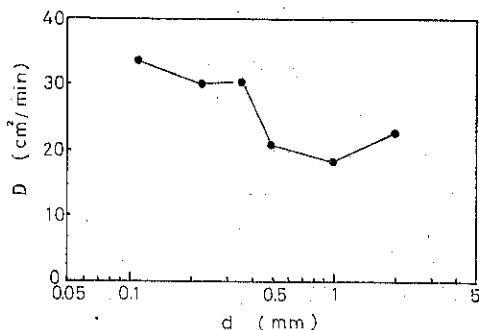


Fig. 6 Tracer size vs. mixing coefficient

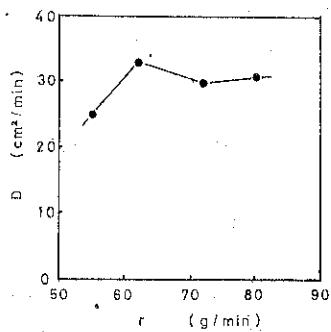


Fig. 7 Feed rate vs. mixing coefficient

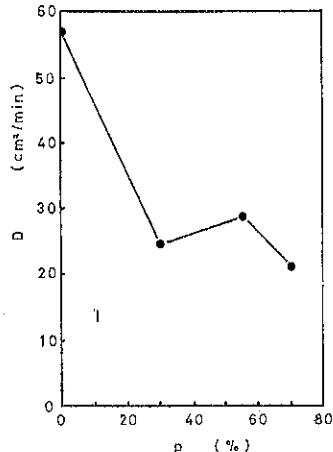


Fig. 8 Solids density vs. mixing coefficient

粒径と拡散係数との関係との関係については、粒径が小さい方が拡散係数はやや大きいようにも思われるがやはり充分に明らかではない (Fig. 6)。KCl トレーサーによる実験結果によると (Fig. 7) フィード量は拡散係数に対してあまり大きな影響を与えていないようである。また、スラリー濃度の拡散係数に対する影響も顕著ではないが、水だけの場合はかなり大きな数値を示している (Fig. 8)。

原データにもどって、トレーサーの残余濃度  $F'(t)$  と経過時間  $t$  との関係を片対数紙上にプロットすると Fig. 9, 10 のようになった。

これらのグラフから、実験した系の過渡応答特性は、近似的には、むだ時間と 1 次遅れの直列系として見るこ

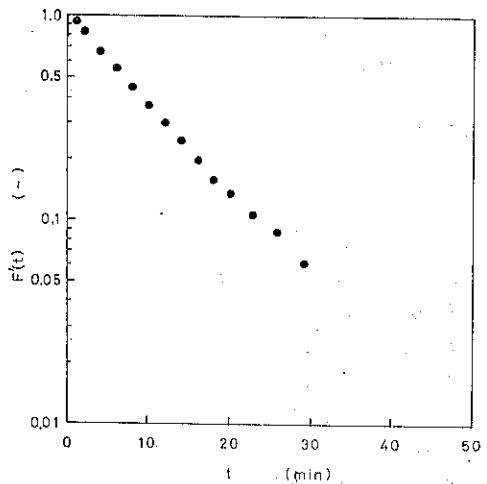


Fig. 9 Residence time curve (KCl tracer)

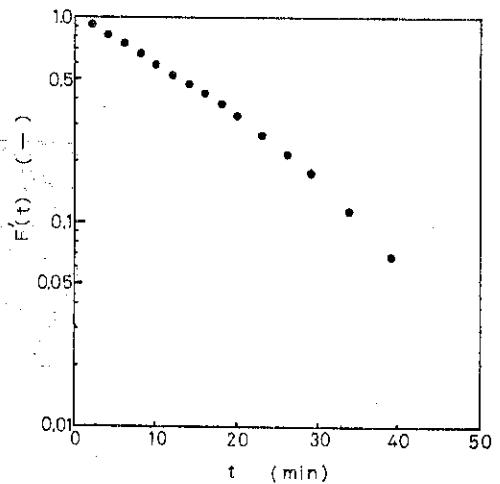


Fig. 10 Residence time curve (Al 1.0 mm tracer)

ともできることが解る。

#### 4. 結 論

(1) 湿式連続ボールミル内の粒子、および水の滞留時間分布は、すでに指摘されている通りほぼ対数正規分布にしたがう。

(2) ボールミル内の粒子および水の過渡応答特性は近似的には、まだ時間+1次おくれ系によって表現することができる。

(3) 平均滞留時間および拡散係数に対する、ミルの各操作変数の影響については、実験誤差が大きいため、充分に明確な結論を得るには至らなかった。しかし、粉碎作用をほとんど受けないアルミニウムトレーサーの使用により、これらのミル特性を明らかにすることができれば、連続ミルと回分ミルとの粉碎特性の相異、さらには連続ミルの構造形式や操業方式と粉碎特性との関係なども明確となり得るところが大きいものと期待される。

#### 記号表

C	トレーサー濃度
d	トレーサー粒度
D	拡散係数
f( $\phi$ )	滞留時間分布密度関数
F( $\phi$ )	過渡応答関数
F'( $\phi$ )	残余濃度関数
L	ミル長さ
p	固体濃度
PeB	ペクレボーデンシュタイン数
r	供給速度
t	時間
$t_a$	平均

$t_e$	メディアン
$t_m$	モード
$t_{16}$	16%通過時間
$u$	ミル内流速
$\phi$	無次元時間
$\theta_T$	平均滞留時間
$\sigma$	幾何標準偏差
$\lambda(\phi)$	排出強度関数

#### 参 考 文 献

- 1) Y. Mori, G. Jimbo and M. Yamazaki : "Flow characteristics of continuous ball and vibration mill mixing, size distribution, dynamic response of flow rate and applications," Second Symposium on Comminution, Dechema Monograph, 57 (1967) 605
- 2) D. F. Kelsall, K. J. Reid and C. J. Restarick : "A study of distribution of residence time," Powder Tech., 3 (1969/70) 170—178
- 3) O. Molerus and H. Paulsen : "Axial dispersion des Mahigutes und Energieausnutzung bei Durchlanfmahlung in der Kugelmühle," Chem. Ingr. Tech., 42 (1970) 270
- 4) 井上一郎, 殿岡康彦 : 「混合現象における拡散モデルについて」理化研究所報告, 40 [6], (1964)
- 5) 宮内照勝 : 「流系操作と混合特性」日刊工業新聞社, (1960)
- 6) 国井大蔵 : 「移動速度論Ⅱ」, 岩波基礎工学, 7
- 7) 城塚正, 平田彰, 村上昭彦 : 「移動速度論」, オーム社, (1966)



## 研究報告

# 着色粒子を用いた薬剤粉体の 混合研究—色差論的考察\*

Mixing of Pharmaceutical Powders Examined by Use of Colored  
Particles: Discussions on Coloration Difference

松田 芳久\* 林 信一\* 岡田寿太郎\*\*  
Yoshihisa Matsuda Shin-ichi Hayashi Jutaro Okada

### Abstract

A three-componental mixing of antipyrine, lactose and lactose colored with pigment (tracer powder of antipyrine) in the twin-shell mixer was carried out in order to investigate the relationship between the mixedness of active ingredient (antipyrine) and uneven coloration of mixture. The color of mixture was measured by colorimetric method using the Lab system and, color differences between samples and these complete mixture were calculated with Hunter's color difference formula. A new mixing index, eqn. (6) based on color difference was proposed and it could be used as the criterion for complete mixing of the active ingredient. Good correlations between the behavior of active ingredient and tracer powder in the earlier stages of mixing were recognized by separate determination of antipyrine and pigment.

### 著者摘要

V型混合機を用いてアンチピリン、乳糖および色素で着色した乳糖(アンチピリンのトレーサー粉末)の3成分系の混合を行ない、主薬(アンチピリン)の混合度と混合物の色ムラの関係を検討した。混合物の色はLab系を用いて測色的方法により測定し、サンプルとこれらの完全混合物の間の色差はHunterの色差式を用いて計算した。色差基準の新しい混合指標(6式)を提唱し、主薬の完全混合に対する判定基準として用いた。混合の初期段階における主薬とトレーサー粉末の挙動の間には良好な相関がみられた。

### 1. 緒言

従来、固体の混合操作においては着目成分の混合状態を判定するのに、これらを物理的、化学的手段によって直接に定量してなんらかの混合指標で表示すること以外に、第3の成分である着色粒子を同時に混合し、その色ムラを視覚によって判定することにより着目成分の混合

状態を間接的に推測することが経験的に行なわれてきた。この方法は分析のための時間と労力が省けるという利点を有する反面、いかに観測条件を厳密にしても視覚による観察には主観的因素が含まれるために、当然個人差が現われ、かつ色ムラに一定の判定基準を設定するのが困難であるという短所をも併せ持っている。さらに3成分以上の多成分系混合に関する情報<sup>1)</sup>は最近ようやく公表されはじめた状態であって、混合操作中の各成分粒

\* 神戸女子薬科大学(〒658 神戸市東灘区本山北町)

Tel 078-441-0031

\*\* 京都大学薬学部(〒606 京都市左京区吉田下阿達町)

Tel 075-751-2111

※ 本論文の一部は Chem. Pharm. Bull. (Tokyo) に  
投稿中である。

子の挙動は未だ解明されていない。

薬学の分野においても色は製造段階における製品の識別や品質管理の補助手段として用いられており、特に色素は付着・凝集性が著しいために、もっとも不都合な混合系のモデル粒子として用いられることがある<sup>2,3)</sup>。また「調剤指針」<sup>4)</sup>に示されるように微量の劇薬を賦形剤で比較的高倍率に希釈する場合（例えば「レセルピン1000倍散」「リン酸コディン100倍散」など）には色素を混入することによって劇薬の倍散であることを明示するとともに、視覚による混合達成の確認の指標としている。しかしながら色ムラの解消と主薬の均一混合の関連性はあいまいであり、これらの点に関する研究の公表は皆無である。

一方これまで光学的手法によって固体の混合度を測定した例は2, 3<sup>5~7)</sup>みられるが、これらの中にはフォトセルプローブを粉体混合物中に挿入する際の条件の不均一性に基づく測定値の安定性に検討の余地が残されているように思われ、さらには2成分粒子の混合濃度を光学的数値と関連させるために、混合系ごとに予め完全混合物の検量線を作成しておく必要があるという難点をもつている。そこで著者らは測色色差の方法が視覚と直接に関係していることに注目し、前述の視覚判定法に客観性をもたらすために測色色差計を混合度測定に応用することを試みた。その結果色ムラを数値化することにより色差基準の混合指標を提唱し、従来の視覚判定法の妥当性を確認した。さらに混合初期の段階における主薬粒子（着目成分）の分布の挙動を視覚によって推測できることを明らかにし、混合操作の一指針を与えることができた。

## 2. 実験方法

### 2.1 試 料

用いた主薬、賦形剤はアンチピリン（JPVIII）と噴霧

乾燥乳糖であり、これらを所定の粒度に分級したものを使用した。また乳鉢に入れた上述の乳糖400gに2% (w/v) ローズベンガル (Merck 社製) のエタノール溶液100mLを徐々に加え、十分均一に練合したのち室温で送風乾燥し、最後に100 mesh のフルイを通してそれを着色粒子（トレーサー）として用いた。なお乾燥の際には色素の migration を防ぐために特に注意を払った。このようにして得られた試料の粉体物性を Table 1 に示す。Table 1 で純乳糖に比べて色素コーティングした乳糖は、色素に基づく滑沢効果のために流動性を増していることが顕著に現われている。

### 2.2 混合機と試料の採取

徳寿工作所製V型混合機（内容積2.54 L, 簡部接合角90°）を用いた。実験時の回転速度（N）は25 rpmであり、混合成分の装入方法としては、混合機の正立静止の状態において最下部にアンチピリンを1g、その上にトレーサー粒子5gを均等に置き、最後に純乳糖494 gを仕込んで上面を平坦にする方法を用いた。所定の混合時間が経過した後、機内の混合物（500g）を格子が組まれた一辺20cmの正方形の箱に静かに排出し、この中から乱数表によって500±25 mgのスポット・サンプル20個を採取し、これらについて次節の色差分析および色素、アンチピリン粒子の定量を行なった。また混合成分は一混合操作ごとに新たに仕込みなおした。

### 2.3 色差分析および定量

色差分析に関しては採取した試料を内径10mmの円筒型石英セルに入れ、タッピングによって試料を密充填したのち、測色色差計（日本電色製、ND-K 6B型）を用いてLab系における試料の表面色を測定した。なお試料の充填状態の変化に基づく誤差は色ムラに比べて無視小であり、また本装置は積分球方式であるために、試料の方向性に起因する測定値のカタヨリは全くなかった。さらにトレーサー粉末の測色値はL,a,bのいずれも

Table 1 Characteristics of Sample Powders used

Materials	Antipyrin	Tracer	S. D. Lactose
Mesh size	65/100	-100	-100
Mean particle size ( $\mu$ ) <sup>a)</sup>	84	21	19
Specific surface area ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ) <sup>b)</sup>	647	1826	1997
Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) <sup>c)</sup>	1.251	1.528	1.526
Bulk density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) <sup>d)</sup>	0.600	0.546	0.419*
Repose angle (degree) <sup>e)</sup>	48.5	49.6	58.8

a,b) measured by air permeability method

c) measured by Beckmann air comparison pycnometer

d) measured according to JIS Z 2504-1966

e) Table diameter=8 cm, Dropping height=9 cm

変動係数で0.14%以下であり、色彩的に十分均質な試料であるとみなしうる。測色後各サンプルを蒸留水で適宜希釈、乳糖を溶解させ、分光光度計によりサンプル中のローズベンガル ( $\lambda_{\max}=548 \text{ nm}$ ) およびアンチピリン ( $\lambda_{\max}=242 \text{ nm}$ ) をそれぞれ可視部、紫外部の2波長測定法を用いて分別定量した。この場合混合の進行した積算200回以降は色素がアンチピリンの吸光度に及ぼす影響は無視できた。

#### 2.4 主葉の混合度および許容基準

岡田、松田ら<sup>8)</sup>の方法に従い、仕込量から定まる平均濃度を用いて濃度分散の変動係数で示した。サンプルの母集団の95%以上が平均濃度  $C_0$  の規定範囲内 [ $(1-0.05)C_0 \leq C \leq (1+0.05)C_0$ ] に収まるための許容基準は変動係数で2.5%である。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 測 色

色を物理的に評価するにはこれまで分光光学的な方法が用いられてきたが、人間の視覚と関係する定量的な色測定を行なうためには測色法が用いられなければならない。Grassmanの法則によれば色は一般に3つの互いに独立な量によって決定され、したがって一つの色は、ある3次元空間における1点として表示される。本報ではLab系で表色を行なったが、この系は知覚的にはほぼ均等な歩度をもつ表色系であり、 $L, a, b$ の各値と3刺激値  $(X, Y, Z)^0$  の間には次の関係が成立する。

$$L=10Y^{1/2} \quad \dots \dots (1 \cdot 1)$$

$$a=17.5(1.02X-Y)/Y^{1/2} \quad \dots \dots (1 \cdot 2)$$

$$b=7.0(Y-0.847Z)/Y^{1/2} \quad \dots \dots (1 \cdot 3)$$

ここに  $L$ : Lab系における明度指数

$a, b$ : Lab系におけるクロマチクネス指数

$X, Y, Z$ : XYZ系における3刺激値

この系において乳糖とトレーサー粉末および本混合系における添加濃度のもとで得られたこれら2成分の完全混合物の測色値と(2)式によって求められるHunterの白度WをまとめてTable 2に表示する。

$$W=100-[ (100-L)^2 + (a^2+b^2) ]^{1/2} \quad \dots \dots (2)$$

Table 2 Colorimetric Data of Lactose, Tracer Powder and Complete Mixture containing 1% of Tracer

	$L$	$a$	$b$	Hunter brightness
Lactose	99.33	0	0	99.3
Tracer	55.01	60.13	-16.28	23.2
Complete mixture	94.89	6.29	-3.57	91.1

Cell diameter: 30 mm, Measuring condition: 45-0P

Table 2 から「調剤指針」に準じた着色粒子の添加濃度（色素量で0.005%）では完全混合物の明度指数および白色度は純乳糖の場合に比べてあまり低下しておらず、両者は視覚によって区別しにくいことが推察される。またトレーサー粉末の種々の添加濃度における完全混合物を測色すればFig. 1を得る。Table 2およびこの図から乳糖は無彩色粉末（彩度= $\sqrt{a^2+b^2}=0$ ）であることが示され、トレーサー粉末の添加濃度が増すにつれて混合粉末の彩度も上昇することがわかる。また $L, a, b$ のうちでもっとも変化量の大きいものは $a$ 値であり、 $a-b$ 平面における点  $(a, b)$  の変化は、混合粉末がトレーサーの添加濃度に従って急速に赤紫色に近づいていくことを示している。一方各混合物の色変化が Grassman の

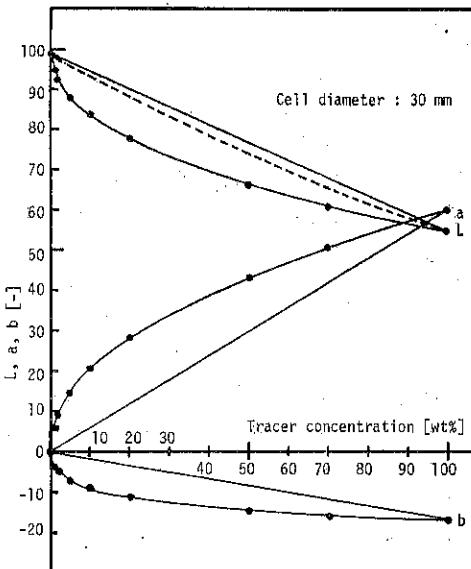


Fig. 1 Colorimetric Data of Complete Mixtures between Lactose and Tracer Particles

- Experimental Curves
- Theoretical Lines based on Eqns. (3.1)-(3.3)
- ..... Imaginary Curve based on Lambert-Beer's law

法則に完全に従うものであれば、 $L, a, b$  の各々について式(3・1)～(3・3)が成立し、図中における測定値の軌跡は乳糖およびトレーサーの0%点と100%点とを結ぶ3本の直線に一致するはずであるが、実測曲線はこれらの理論線から大きく偏っている。

$$L_x = \{(100-x)L_L + xL_T\}/100 \quad \dots \dots (3 \cdot 1)$$

$$a_x = \{(100-x)a_L + xa_T\}/100 \quad \dots \dots (3 \cdot 2)$$

$$b_x = \{(100-x)b_L + xb_T\}/100 \quad \dots \dots (3 \cdot 3)$$

ここに  $x$ : トレーサーの濃度 [wt%]

添字 L: 乳糖

T: トレーサー

さらに透過光に関して成立する Lambert-Beer の法則を混合粉末の明度に関係する  $L$  値に適用 (Fig. 1 中の点線) したが、ガラス玉混合物反射率に適用した矢野ら<sup>7)</sup>の結果と同様に実測曲線はこれにも一致しなかった。そこで Fig. 1 の各曲線について 5 点法による数値微分を行なったところ Fig. 2 のような結果を得た。Fig. 2 に示すように、添加濃度に対する  $L, a, b$  の各変化率 ( $dL/dx, da/dx, db/dx$ ) は添加濃度のごく低いところで急激に変化しており、特に  $a$  の変化率が顕著であるが、いずれも添加濃度が20%付近までにその変化は減衰し、これより高濃度においてはほとんど変化を示さない。Fig. 1, 2 から混合粉末の色は添加濃度の低い領域で既に理論的に予測される傾向から著しく偏ることが明らかにされたが、粉末の反射光に関するこのような複雑な挙動は、Grassman の法則から除外されている粉末の光沢や表面の性質などの要素が結果に大きく影響を及ぼしているものと考えられる。Goodhart<sup>10)</sup>は別の表色系において彩度と明度に関して著者と同様の結果を得ている。

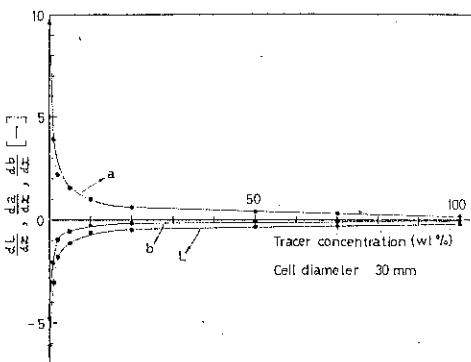


Fig. 2 Rates of Change of  $L, a$ , and  $b$  against Tracer Concentration in Fig. 1

### 3.2 色差の表示と色差基準の混合度

物体色の色差  $\Delta E$  は一般に色空間の中における 2 点間の距離で表わされる。JIS Z 8730<sup>11)</sup>によれば、Hunter の色差式は次式で与えられる。

$$\Delta E(Lab) = [(ΔL)^2 + (Δa)^2 + (Δb)^2]^{1/2} \quad \dots \dots (4)$$

ここで  $\Delta E(Lab)$ : Lab 系における色差 [-]

$ΔL, Δa, Δb$ : Lab 系における 2 つの物体色の明度指数  $L$  およびクロマチクネス指数  $a, b$  の差

したがって(4)式を用いれば 2 個のサンプルの完全混合物からの平均色差 (色ムラ)  $M$  は次式で与えることができる。

$$M = \overline{\Delta E} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \{ (L_i - L_c)^2 + (a_i - a_c)^2 + (b_i - b_c)^2 \}^{1/2} \quad \dots \dots (5)$$

ここで 添字 c: 完全混合物 [座標  $(L_c, a_c, b_c)$ ]

ここで完全混合物の  $L_c, a_c, b_c$  の値については前項からも明らかなように、添加濃度と乳糖およびトレーサーの測色値が与えられても理論線 (3・1～3・3) には一致せず、また本報の場合、添加濃度の低い領域 (1 wt%) では検量線の精度が不安定であるために主葉の場合のように予め算出することはできない。そこで著者は完全混合物 (混合時間 80 分) の測色値をもって  $L_c, a_c, b_c$  することとした。

一方川上の試験<sup>12)</sup>によれば隣接配置にある物体の色差は、厳密な等色が要求される場合には  $\Delta E$  で 1 以下が望ましく、かつこの場合にはすでに視覚による識別が困難であることが報告されている<sup>13)</sup>。このため(5)式における平均色差では、視覚に基づく色ムラを完全に表現することができない。そこで著者は 20 個のサンプルが粉体母集団を代表するものとして、母集団の平均値が完全混合物との色差で、上述の許容水準 ( $\Delta E_s = 1$ ) 以下に 95% の確率で落着くために、次に示す色差基準の混合度を提唱した。

$$M_c = \overline{\Delta E} + 1.645\sigma \leq \Delta E_s = 1 \quad \dots \dots (6)$$

$$\text{ここで } \sigma^2 = \frac{1}{20} \sum_{i=1}^{20} (\Delta E_i - \overline{\Delta E})^2$$

つぎに色ムラに及ぼすセルの露出面積の影響を調べるために、不完全混合物 ( $N\theta = 30$ ) から得られた 30 個のサンプルについて、(5)式から求められた  $M$  と露出面積の関係を Fig. 3 に示す。セルに挿入したサンプルを変えることなく、露出面積を順次変化してその都度  $\Delta E$  を求め、30 個のサンプルから同一露出面積ごとに  $\overline{\Delta E}$  を計算した。Fig. 3 から明らかなようにセル面積が減少するにつれて平均色差  $M$  は増加しており、セル直径が 10 mm の場合特に顕著である。セル面積は視覚判定の場合の視野に相当するから、Fig. 3 の結果は視野がせばまるほど判定基準が厳しくなるという一般的の傾向をよく説明している。このため以後の測色は 10 mm のセルに限定して行なった。

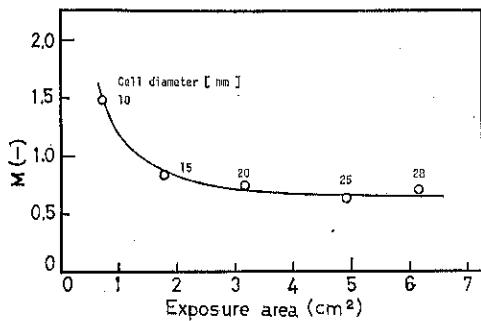


Fig. 3 Effect of Exposure Area on Mean Color Difference, M

### 3.3 色の展開

混合操作において着色粉末または色素をトレーサーとして用いる場合、トレーサーの物理的性質以外に添加濃度、色特性、賦形剤との色差などが色の展開に影響を及ぼすことが考えられる。Fig. 4はトレーサーを種々の濃度で添加、混合した際の色の展開の推移を示す。Fig. 4から色の展開速度は明らかに添加濃度に依存しており、濃度が低いほど色ムラが許容水準に到達する時間は短い。Table 1においてトレーサーは乳糖に比べてかなり流動性が良好であることが示された。特に流動性の点のみから推測すれば、トレーサーの濃度が高いほど展開速度が大となるはずであるが、実際には逆の傾向が得られたことは流動性のような物性の影響は少なく、色特性が大きな比重を占めていることを示唆している。各濃度ごとの曲線と許容水準との交点から得られる所要混合時間 $\theta_c$ をトレーサーを含む完全混合物と純乳糖との色差に対してプロットすればFig. 5が得られる。Fig. 5から完全混合物と純乳糖の色差は、トレーサーの添加濃度が増すほど当然大きくなるが、逆にトレーサー自体との色差は小さくなり混合所要時間は延長される。したがってこの色差が展開の際の推進力に相当するといえる。

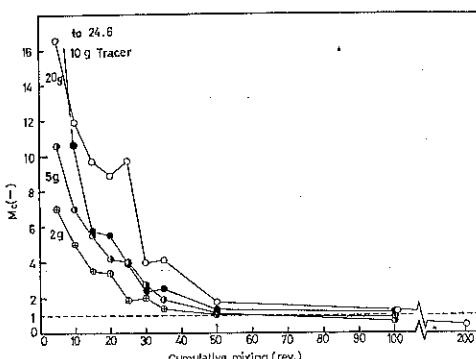


Fig. 4 Effect of Tracer Concentration on the Development of Color

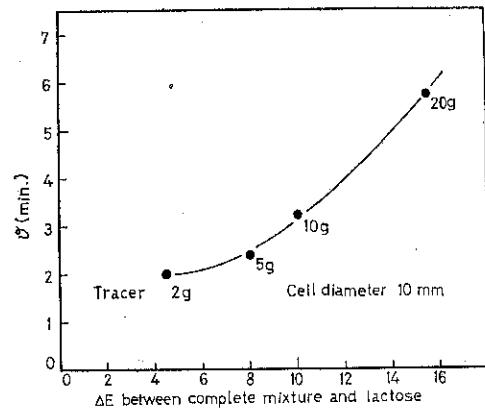


Fig. 5 Relation between Required Mixing Time,  $\theta_c$  and Color Differences between Complete Mixture and Lactose

以上ではトレーサーと乳糖のみの挙動に関して言及してきたが、本報の主眼点はトレーサーと主薬粒子の混合状態の関連性を検討することにある。トレーサーと乳糖は密度は同一であるが流動性が異なることから、本混合系は明らかに3成分系であるとみなすことができる。Fig. 6にこれら3成分系の混合におけるトレーサーと主薬の混合度をそれぞれ色差基準と濃度基準で表わした。各々の許容水準 ( $M_c = 1$ , C.V. = 2.5%) に到達するに要する時間は、トレーサーが約2分であるのに対して、主薬の場合には12分(積算300回)以上を要した。けれども本混合系における希釈倍率(1:500)では局方によれば通常、規定量の±10%が許容範囲であるので、これを変動係数に換算すれば約9.3%となり、トレーサーと同じ程度の時間で許容水準以下に収まることになる。ゆえにこの場合には色ムラの解消をもって主薬の混合も達成されたとみなすことができる。

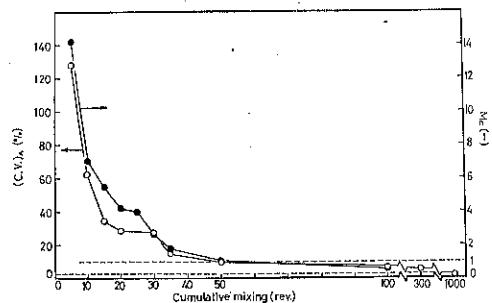


Fig. 6 Development of Color and Mixing of Active Ingredient

—●— Tracer (Color Difference Basis)  
—○— Antipyrin (Concentration Basis)

### 3.4 主薬とトレーサー粒子の挙動の相関

前項においては色の展開の終了によって混合の達成が確認されたが、この時点に到るまでの混合初期段階における色ムラと主薬粒子の分布の関係を明らかにするために、Fig. 6 の積算30回までの測定値をさらに詳細に検討した。Fig. 7 に示すようにトレーサーについては本実験におけるインクリメント・サイズ以下の重量範囲で、コーティングしている色素の重量とトレーサー粒子の重量の間には極めて良好な定量関係 ( $r=0.998$ ) が認められ

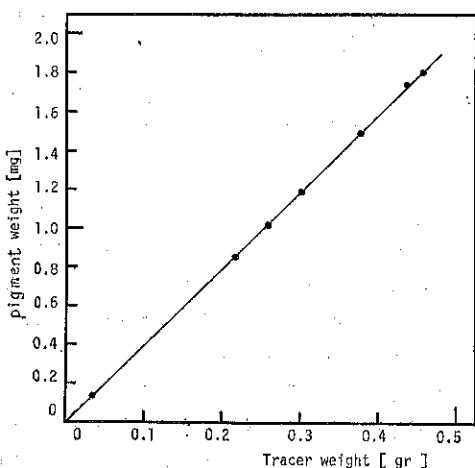


Fig. 7 Linearity between Tracer Weight and Pigment Weight Contained

たので、サンプル中の色素を定量することによりトレーサーの重量濃度を算出することができる。このようにして得られた各サンプル中の主薬とトレーサーの濃度を積算回転ごとにプロットすれば Fig. 8 に示される傾向となる。両者は積算5回転すでに良好な相関関係にあり、混合の進行と共にこの関係が改善されていくことが Fig. 9 に示される相関係数の推移からも明確に裏付けられている。かくして主薬とトレーサーは混合の初期段階においては互いに密接な挙動を示すことが明らかにされた。これらの知見は新しいタイプの混合機の設計や混合操作における最適条件の設定などの際に極めて有用であると考えられる。上記の事実に基づいてトレーサーの

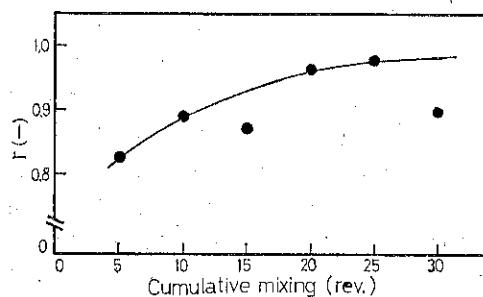


Fig. 8 Improvement of Correlation State between Concentrations of Antipyrin and those of Tracer due to the Progress of Mixing

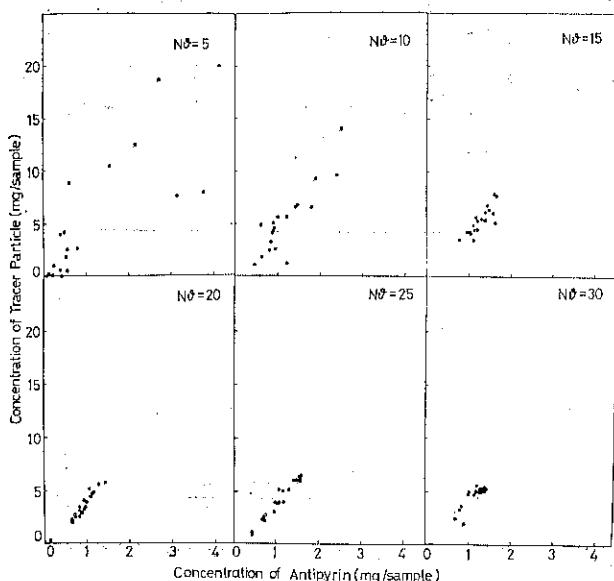


Fig. 9 Correlation between Concentrations of Antipyrin and Those of Tracer

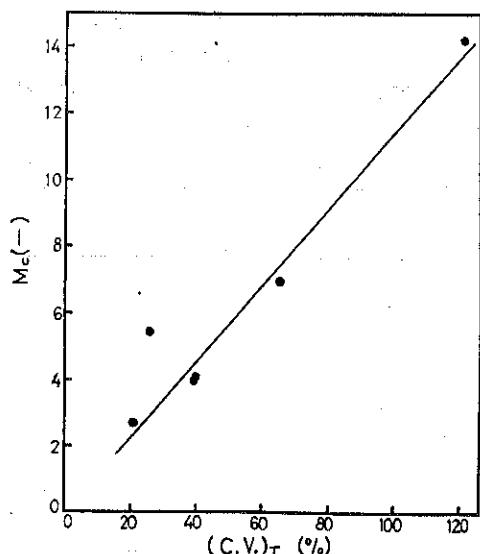


Fig. 10 Correlation between the Mixing Index based on Color Differences,  $M_c(-)$ , and That based on Weight Concentration of Tracer,  $(C.V.)_T$

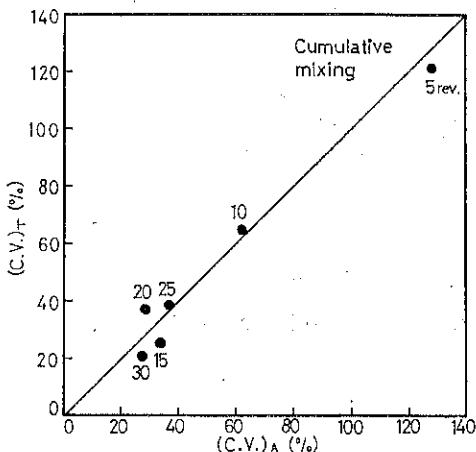


Fig. 11 Correlation between the Mixing States of Antipyrin and Those of Tracer

濃度基準混合度を色差基準混合度と対応させたところ、Fig. 10 のように良好な相関が認められ、同時に Fig. 11においてトレーサーの混合度と主薬の混合度ともよく対応していることが示されている。これらの結果から結局色ムラを測定することによって間接的に主薬の混合状態の推移を類推することが可能であると考えられる。

以上これまで色ムラを物理的手段によって評価するために色差基準の混合度で表示し、主薬およびトレーサーの挙動との関連性を検討した結果、視覚判定法に有益な情報をえた。しかしながらこれらの結果を視覚判定と直接に関係づけるには観測条件の設定、官能検査、データの統計的処理などの点に多くの問題が含まれており、これらの解明は今後の研究課題といえる。

#### 4. 結 言

アンチピリン、純乳糖およびローズ・ベンガルで着色した乳糖（トレーサー粒子）の3成分系の混合を色差論的に検討し、以下のような結論を得た。

1. 着色粉末（トレーサー）の少量の添加によって3成分の完全混合物の色特性は著しく変化し、理論的に予測される傾向から大きく偏った。

2. 混合物の混合状態を評価するために色差基準の混合指標(6式)を提唱した。この式は着色製剤の色ムラの判定にも適用できるものと考えられる。

3. 混合操作中の色の展開速度は添加する着色粉末の濃度が低いほど速く、色ムラが許容水準に到達するに要する時間は短かい。

4. 着色粉末と主薬粒子の混合状態には密接な関係があることが色差基準の混合度と濃度基準の混合度から確かめられた。これによって色ムラの解消で主薬の均一混

合が保証されることがわかった。

最後に実験に協力された城本純子、武田洋子の両氏に深謝します。

#### 記 号

- N : 混合機の回転速度 [rpm.]
- $\theta$  : 混合時間 [min.]
- $C_0$  : 仕込量から定まる着目成分の平均重量濃度 [-]
- C : サンプル中の着目成分の重量濃度 [-]
- $L, a, b$  : Lab 系における明度指數 ( $L$ ) およびクロマチクネス指數 ( $a, b$ ) [-]
- $\Delta L, \Delta a, \Delta b$  : Lab 系における2つの物体色の  $L, a$  および  $b$  の差 [-]
- $\Delta E(Lab)$  : Lab 系における色差 [-]
- $\Delta E_s$  : 許容色差 [-]
- $X, Y, Z$  : XYZ 系における3刺激値 [-]
- M : 平均色差 [-]
- n : サンプルサイズ
- W : Hunter の白色度 [-]
- $\pi$  : トレーサー粉末の濃度 [wt%]
- 添字 L : 乳糖
- T : トレーサー
- c : 完全混合物

#### 引 用 文 献

- 1) P. Cook, J. A. Hersey :Preprint of International Conference on Particle Technology, Session 6, p. 46, IITRI, Chicago, (1973).
- 2) R. G. Baines, G. Cope: J. Soc. Cosmetic Chemists, **19**, 225 (1968).
- 3) H. H. Hutchins, A. G. Cacoso, E. G. Hart, W. H. Steinberg : J. Pharm. Sci., **54**, 776 (1965).
- 4) 日本薬剤師会、調剤技術委員会編：「第5改訂 調剤指針」葉事日報社、東京、(1972).
- 5) J. B. Gray: Chem. Eng. Progr., **53**, 25J (1957).
- 6) M. D. Ashton, C. Schofield, F. H. H. Valentin: Chem. Eng. Sci., **21**, 843 (1966).
- 7) 矢野武夫, 佐藤宗武, 峯下豊: 粉体工学研究会誌, **9**, 244 (1972).
- 8) 岡田寿太郎, 松田芳久, 森田修之, 和田泰亨, 大西治夫: 薬学雑誌, **88**, 827 (1968).
- 9) A. C. Hardy: "Handbook of Colorimetry," Technology Press of MIT, Cambridge, Mass., pp. 32-48, (1936).

(57頁へ続く)

## 研究報告

# 密度差による偏析を伴う粉粒体混合過程の モンテ・カルロ・シミュレーション

Monte Carlo Simulation of Solids Mixing Process  
with Segregation due to the Difference in Solids Density

矢野 武夫\* 荒谷 敏朗\*  
Takeo Yano Toshiro Aratani  
寺下敬次郎\* 知福 博行\*  
Keijiro Terashita Hiroyuki Chifuku

### Abstract

Solids mixing process showing segregation phenomena due to the difference in solid particle densities is simulated by two mathematical models, which can be computed by Monte Carlo method. Based on simulated results, discussions are made for the way to mix well in segregated process.

One model (Model I) for the process in which the direction of gravity force acting on particle layer does not alter while mixing proceeds, and the other model (Model II) for the process in which the direction alters in every half tumbling of the mixer are proposed and directly simulated by random numbers generated in digital computer.

The ratio of particle densities  $R_d$  and the lowest value of final degree of mixedness  $M_{\infty,0}$  are found to be correlated by the expression  $M_{\infty,0} = 1.0 - 0.4 \log R_d$ , for both Model I and II. Segregation due to the different densities should be limited by this  $M_{\infty,0}$ .

It can be said that, in order to mix well the particles having the tendency to segregate due to the difference in densities, mixers should be so designed as to subdue the mixing parallel to the direction of gravity force, while the mixing of horizontal direction to gravity force is kept vigorous, and that mixers having Model II process are less influenced by the difference in densities than the Model I type mixers.

### 著者 摘 錄

密度差により偏析を生じる粉粒体混合過程のメカニズムを、2種の数学モデルにより、モンテ・カルロ法を用いてシミュレートした。そして、シミュレーション結果より、このような混合過程で、偏析を起りにくくするには、どうすれば良いかを検討した。

混合の進行中、重力場の方向の変わらない混合過程に対するモデル (Model I) と、半回転毎に重力場の方向が反転する混合過程に対するモデル (Model II) とを提案し、電子計算機内で発生した各種の乱数によりシミュレーションを行なった。

\* 大阪府立大学工学部化学工学教室

(〒591 堺市百舌鳥梅町四丁804) Tel 0722-52-1161 (内) 2327

密度の比  $R_d$  と、最終混合度の最低値  $M_{\infty,0}$  とは、Model I および II の両方に対して、 $M_{\infty,0} = 1 - 0.4 \log R_d$  で表現できることを示した。これ以上の偏析は生じないと考えられる。

密度差により偏析の生じ易い粉粒体を混合するには、重力場と平行な方向の混合は、抑制するようにし、水平方向には、混合を激しくするように混合機を設計するのが良いことが、シミュレーションにより明かとなった。また、Model II の混合過程を有する混合機の方が、Model I 型の混合機に比べ、密度差の影響を受けにくくこともわかった。

## 緒 言

従来、粉粒体混合機の混合性能の評価は、混合実験すなわち、粉体層中よりスポット・サンプルを採取し、その組成の分散値あるいは、標準偏差値等から混合度を求める方法が用いられて来た<sup>10)</sup>。したがって、最良の混合機を設計したり、その操作条件を決定するには、数回の混合実験を行わなくてはならなかった。そのため、混合機内の粉粒体の混合過程を解析し、単純モデル化して電子計算機によりシミュレーションを行い、その結果を利用して、混合性能をある程度予知し、設計、操作条件の決定等の資料にしようとする試みが、2, 3 行なわれている<sup>1,2,7,8)</sup>。すなわち、粉粒体混合機中の混合過程は、確率論的 (Stochastic) であり、他の化学プロセスに比べ、シミュレーションが容易でなく、この分野においては、数学モデルを利用した解析的な研究は、最近、漸く行なわれるようになった許りである。

井上、山口ら<sup>3,8)</sup>、Olenczak<sup>5)</sup>そして、Fanら<sup>2)</sup>は、単純マルコフ連鎖モデルを利用して、統計解析の手法によりシミュレーションを行なった研究を報告している。すなわち、推移確率と、粉体層内の濃度との関係を明確にし<sup>8)</sup>、また、混合速度と推移確率との関係も明かにしている<sup>5)</sup>。混合過程を、充分に観察し、その結果に基づいて統計学による考察を加える行き方である。他方、混合過程の特徴を巨視的にモデル化し、電子計算機内部で発生した乱数により、モンテ・カルロ・シミュレーションを行なった研究としては、Rose ら<sup>7)</sup>、Chan ら<sup>1)</sup>そして、著者ら<sup>8)</sup>の研究がある。大別して、以上の 2 種のアプローチの方法が、現在、取られているようである。しかしながら、いずれの場合も、使用されている数学モデルは、単純で、理想的な混合状態に関してのみ適用されるモデルが多く、偏析 (Segregation) や凝集 (Coagulation) を伴う混合過程のシミュレーションを行なった研究<sup>8)</sup>は、少ないようである。偏析が生じる原因としては、成分粒子の密度差、粒径差の他、電磁気力、摩擦係数、湿り度等の差も考えられるが、ここでは、密度差のみに限定した。すなわち、密度差の異なる 2 成分の粉粒体を混合する際に、重力場によって生じる偏析現象を伴う混合過程のモンテ・カルロ法によるシミュレーション

を試みた。このような混合過程を、粉体層の動きと、重力場の方向との関係を考慮して、次の 2 種類 (Process I と Process II) に分け、それぞれに対応した数学モデル (Model I と Model II) によりシミュレートすることとした。

Process I は、混合進行中、重力場の方向の変わらない混合機の混合過程であり、Process II は、粉粒体層に加わる重力場の方向が、半回転毎に逆転する混合機の混合過程である。前者は、容器固定型の単純なリボン混合機や、水平円筒型混合機 (容器は回転しても、混合の活発に行なわれるセクションでは、重力場の方向は変わらない) などを、後者は、V 型、ダブル・コーン型混合機などのタンブリング型混合機を想定している。

## 1. Process I に伴う偏析のシミュレーション

水平円筒型混合機の混合進行部分や固定容器中に、リボン羽根、スクリュー、パドル等を挿入した混合機中の混合過程は、密度の異なる 2 成分粉体の装入方法により影響を受ける。すなわち、Fig. 1 に図示したように、軽い粒子層の上に重い粒子層を仕込んだ状態 (仕込み状態 H-L) と、その逆の状態 (仕込み状

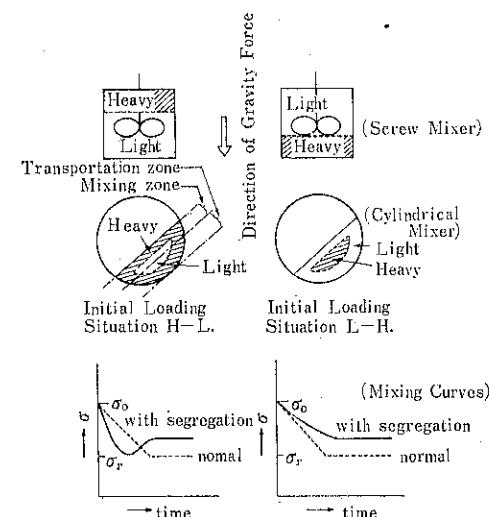


Fig. 1 Mixing Process (Process I) with no alternation of the direction of gravity force during solids mixing.

態L-H) により、混合過程が異なり、混合曲線も異なってくる。しかし、最終混合度は、仕込み状態には、依存しないことが多い。

### 1-1) Process Iに対する偏析モデル (Model I)

まず、重力の作用していない場合の均一な混合過程のシミュレーションには、前報<sup>9)</sup>の一様擬似乱数モデル (Uniform pseudo-random number model) を仮定する。すなわち、1~I<sub>total</sub> (I<sub>total</sub> は、全粒子の数であり、電子計算機のコア・メモリの容量にもよるが、2,500 個~50,000個程度の数である) までの一様擬似乱数を2個 (これを I R 1, I R 2 とする) 発生させ、その番号の粒子 (コア・メモリ上では、2成分を区別するため、0 (軽い粒子) か 1 (重い粒子) で表わしている) を互に入れ換える操作を多数回 (10<sup>4</sup>~10<sup>6</sup> 回程度) 反復して、コア・メモリ上で混合することにより、混合過程をシミュレートするモデルを設定する。

ここでは、この一様擬似乱数モデルに、次のような制約条件を附加して、一方向に、重力の作用している均一な混合場における偏析現象を表現しようと試みた。

```

C      MODEL I
C      DIMENSION M (2500)
C      INITIAL SET OF 1 AND 0
DO 10 I=1,500
10 M(I)=1
      DO 20 I=501, 2500
20 M(I)=0
      DO 30 I=1, ILOOP
C      GENERATION OF RANDOM NUMBERS IR1 AND IR2
      IR1=RAND 1 (IX1)* 2499.0+1.0
      IR2=RAND 2 (IX2)* 2499.0+1.0
C      SKIP
      IF (M (IR 1), EQ. M (IR 2)) GO TO 30
C      SEGREGATION
      IF (IR 1, GT. IR 2, AND. M (IR 1), EQ. 0, AND. M (IR 2), EQ. 1) GO TO 35
      IF (IR 2, GT. IR 1, AND. M (IR 2), EQ. 0, AND. M (IR 1), EQ. 1) GO TO 35
      GO TO 36
35 IC=IC+1
      IF (MOD (IC, ISEP), NE. 0) GO TO 30
C      ISEP IS DEGREE OF SEGREGATION
36 MX=M (IR 1)
      M (IR 1)=M (IR 2)
      M (IR 2)=MX
30 CONTINUE
C      RAND 1, RAND 2 ARE UNIFORM PSEUDO-RANDOM NUMBER
C      GENERATORS, WHICH CAN GENERATE RANDOM NUMBERS
C      UNIFORMLY DISTRIBUTED BETWEEN 0.0 AND 1.0.

```

Fig. 3 Fortran source list of Model I.

Fig. 2 に示したように、I R 1 と I R 2 の2個の一様擬似乱数による入れ換えを行なう際に、乱数の大小関係、すなわち、入れ換えようとする粒子の番号 (順番) の大小関係を、重力場の方向の上下関係と見て (たとえ

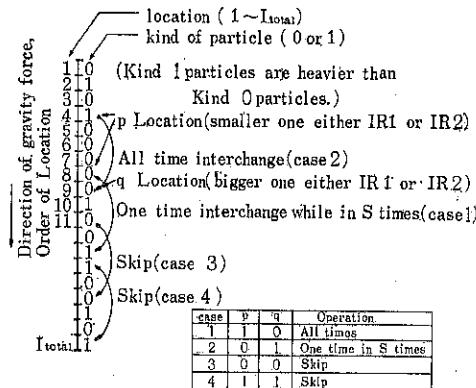


Fig. 2 Illustration of Model I as the most simplified segregation model of Process I.

ば、番号の小さい方は、重力場の方向では、上側にあるものとする), そして、この入れ換える粒子が、軽い粒子(0の粒子)か、重い粒子(1の粒子)かで入れ替え回数に差を付ける方式を採用した。

Fig. 3 のプログラム・リストにしたがって、具体的に説明すると、まず、整数配列 M(2500) の内、1~500 番を 1 とし、残りを 0 にセットする。これで、状態 H-L に対する最初の仕込みが完了する。1 と 0 の順番(仕込み)を逆に、すなわち、重い粒子と軽い粒子の仕込みを逆にすると、状態 L-H が区別して表現できる。また、0 の個数と 1 の個数の比率を変えることで、仕込み比率も変えることができる。

次に、0~1.0 の一様擬似乱数を 2 個発生させ、スケール・ファクタ 2499.0 を掛け、1.0 を加えて、1~2500 までの一様擬似乱数 I R 1, I R 2 を発生させる。この I R 1 と I R 2 の番号を持つ粒子が入れ換えられることになる。しかし、I R 1 と I R 2 とを比較し、大きい方の番号に当る粒子が 1 で、小さい方の番号の粒子が 0 なら、S 回に 1 回のみしか入れ換えを行なわない。一方、大きい方の番号の粒子が 0 で、小さい方の番号の粒子が 1 なら、常に入れ換えることにする。Fig. 2 中の表により説明すると、I R 1 と I R 2 の内、小さい方を P とし、大きい方を Q として、Case 1 では、毎回入れ換え、Case 2 では、S 回に 1 回の入れ換え、Case 3, 4 では、入れ換えても、入れ換えなくとも同じであるからスキップすることになる。このように、0 の粒子か、1 の粒子かで、入れ換え方に差を付けると、粒子の動きが制約され、偏析が起ることになる。たとえば、Fig. 3 の例では、混合の進行とともに、重い 1 が、下の方、すなわち、番号の大きい方に偏在して来ることになる。0 に比べて、1 がどれだけ重いかを示すのが、Fig. 2 中の S(Fig. 3 中の ISEP) である。この S は、Model I のモデル・パラメータであり、ここでは、「偏析度」(Degree of Segregation) と呼ぶことにする。

### 1-2) Model I によるシミュレーション結果

シミュレーション結果の検討には、n 個のスポット・サンプル(そのサンプル・サイズを n<sub>s</sub> 個の粒子を含むとする)の組成 X<sub>i</sub> の分散値 σ<sub>r</sub><sup>2</sup> (Eq. (1)) を用いた。

$$\sigma_r^2 = \bar{X} (1 - \bar{X}) / n_s = \sigma_0^2 / n_s \quad \dots \dots (1)$$

ここに、 $\bar{X}$  は、平均組成したがって仕込み組成である。混合開始直前の組成の分散値  $\sigma_0^2$  は、Eq. (2) により、また、完全にランダムな状態に混合が進行した時点での分散値  $\sigma_r^2$  は、Eq. (3) により解析的に与えられている<sup>4)</sup>。

$$\sigma_0^2 = \bar{X} (1 - \bar{X}) \quad \dots \dots (2)$$

$$\sigma_r^2 = \bar{X} (1 - \bar{X}) / n_s = \sigma_0^2 / n_s \quad \dots \dots (3)$$

Eq. (1) で計算される分散値  $\sigma^2$  は、もし、一様擬似乱数が充分に一様な確率分布を有するものであるならば、混合曲線は、混合の進行とともに、 $\sigma_0^2$  より  $\sigma_r^2$  に達することになる。また、Lacey<sup>4)</sup>の提案した混合度 M(Eq. (4)) は、0.0 から出発して、1.0 に到達しなくてはならない。

$$M = (\sigma_0 - \sigma) / (\sigma_0 - \sigma_r) \quad \dots \dots (4)$$

偏析があると、 $\sigma^2$  は、 $\sigma_r^2$  に達せず、また、M は、1.0 に到達しなくなる。

### 1-2-1) S=1 に対するシミュレーション結果とその考察

まず、Model I で、偏析の生じない S=1 の状態において、一様擬似乱数発生法により、M が 1.0 に達するか否か検討を加えることにした。Fig. 4 に、I<sub>total</sub>=5,000 個についての、M 対総入れ替え回数 N<sub>t</sub> の線図を示した。Table 1 に示した、すべての乱数発生法でも、M=1.0 に達しており、乱数の周期性に基づく偏析は全く認められなかった。さらに、Fig. 5 に、I<sub>total</sub>=25,000 個の場合の混合曲線を示した。この場合、乱数発生法 5 は、N<sub>t</sub>>3×10<sup>4</sup> で M=1.0 に達したが、N<sub>t</sub>=10×10<sup>4</sup> 回の入れ替え後も、M=1.0 に達していないものがあった。この原因としては、電子計算機内で発生した一様擬似乱

Table 1 Uniform pseudo-random number generators

Method 1	Multiplicative Generator (Lehmer Type) $Z_i = 23Z_{i-1}$ Modulus $10^8 + 1$
Method 2	Multiplicative and Additive Generator I $Z_i = 23Z_{i-1} + Z_{i-2}$ Modulus $2^{63}$
Method 3	Multiplicative and Additive Generator II $Z_i = 48828125Z_{i-1} + Z_{i-2}$ Modulus $2^{63}$
Method 4	Multiplicative and Additive Generator III $Z_i = 257Z_{i-1} + 123456701$ Modulus $2^{85}$
Method 5	Mixed Use of Multiplicative and Additive Generators $Z_i = Z_{i-1} + Z_{i-2}$ Modulus $2^{63}$ for IRI $Y_i = 23Y_{i-1}$ Modulus $10^8 + 1$ for IR2

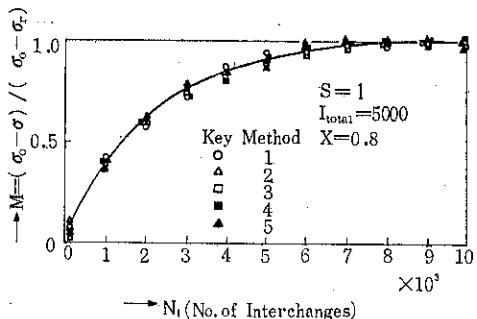


Fig. 4 Simulated Results of Model I, when  $S=1$ .

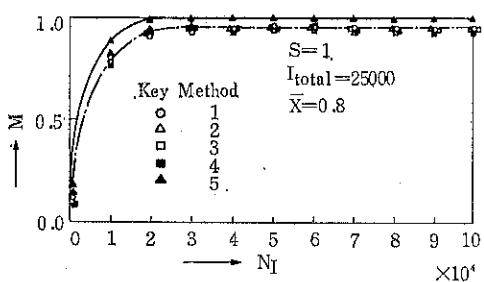


Fig. 5 Simulated Results of Model I, when  $S=1$ .

数の周期性が考えられる。すなわち、発生法の不完全さのために生じた一種の偏析であり、シミュレーション上、望ましくはない。したがって、Method 5 のように、IR 1, IR 2 に別々の乱数発生法を利用する方法が推奨できる。

また、サンプル数  $n$ 、サンプル・サイズ  $n_s$ 、仕込み比率  $\bar{X}$ 、乱数初期値等を、2倍、 $1/2$ 倍と変化させて計算した結果、Eq.(4)の混合度  $M = (\sigma_0 - \sigma) / (\sigma_0 - \sigma_r)$  を利用するかぎりでは、混合速度、最終混合度に、有意な差は認められなかった。

#### 1-2-2 モデル・パラメータ $S$ と最終混合度

Model Iにおいて、偏析度  $S=2, 4, 6, 8, 10$  に対してシミュレーションを行ない、混合曲線および最終混合度を求め、結果の一例を、Fig. 6 に示した。図は、偏析度  $S=4$  につき、0 と 1 の仕込み比率  $\bar{X}=20\%$  of 1 で、 $I_{total}=2,500$  個のシミュレーション結果であるが、Fig. 1 で予測されたように、装入方法 H-L と L-H に対し、異なる 2 本の曲線となった。ところで、偏析を伴う混合過程において問題となるのは、最終混合度  $M_\infty$  である。同一の  $S$  の値に対しては、L-H も、H-L も、ほぼ同じ  $M_\infty$  を示すことが、Fig. 6 および、他のシミュレーション結果より明かとなつたので、この  $M_\infty$  を、各  $S$  の値について求め、Fig. 7 に示した。 $M_\infty$  と  $\log S$

とは、良好な直線関係が得られ、Eq.(5)の実験式で表わすことができた。

$$M_\infty = 1.0 - 0.4 \times \log S \quad \dots\dots(5)$$

Fig. 7 には、比較のために、水平円筒型混合機を使用して、実験を行なった場合の最終混合度  $M_\infty$  と、使用した 2 成分粉体の真密度の比  $R_d$  との関係を併せ図示した。図では、比較の便宜上、 $S=R_d$  としてプロットして見たものであるが、実測値と  $R_d$  の関係は、シミュレーション結果の Eq.(5) とかなり良い一致を示し、重力場の方向に入れ換えられる機会が半分 ( $S=2$ ) と云うことは、密度にして 2 倍違う ( $R_d=2$ ) に対応しているようと思われる。一様擬似乱数による混合過程は、混合場全体に、均一な確率分布を持って粒子が動く、したがって、他の分布関数たとえば、正規分布を仮定した混合過程に比べ、粒子の動きが最も激しい混合過程と考えられる。この混合過程に偏折を加味した、この Model I によるシミュレーション結果は、したがって、最大の偏折を与えていたものと考えられ、Eq.(5) の  $M_\infty$  は、密度

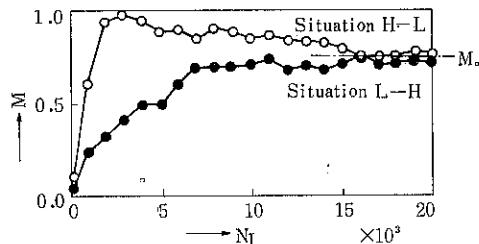


Fig. 6 Simulated Results of Model I, for  $\bar{X}=0.2$ ,  $n=10$ ,  $n_s=50$ ,  $I_{total}=2500$  and  $S=4$ .

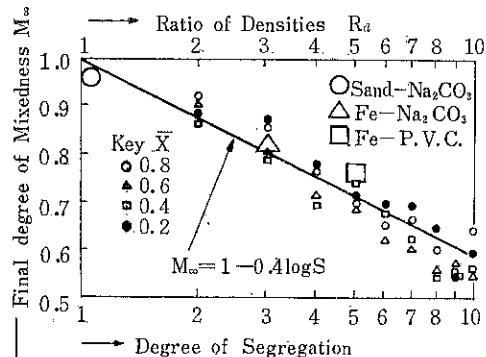


Fig. 7 Final degree of mixedness  $M_\infty$  vs. Degree of segregation  $S$ , or Ratio of Densities of two component particles  $R_d$ . (Simulated results by Model I and bench scale experimental results by Horizontal cylindrical mixer of 6088 cm³, at 50 r.p.m.)

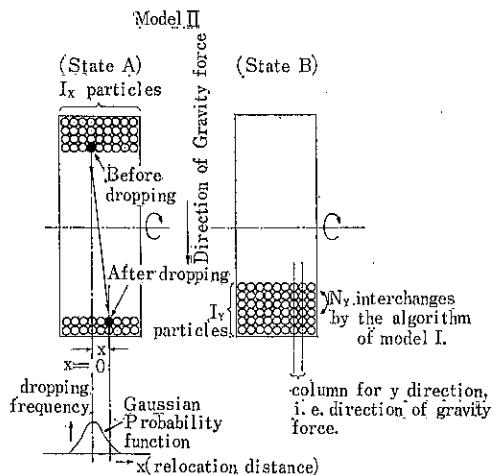
差のある粉粒体の最終混合度の最小値（これ以上の偏析は考えられない値） $M_{\infty,0}$ と考えることができる。

したがって、Model I のシミュレーション結果より、最終混合度の最小値  $M_{\infty,0}$  と、使用粉粒体の真密度の比  $R_d$  とは、Eq. (6) の関係にまとめ得ると予測される。

$$M_{\infty,0} = 1.0 - 0.4 \times \log R_d \quad \dots(6)$$

## 2. Process II に伴う偏析のシミュレーション

V型混合機や、ダブル・コーン型混合機等のタンブリング型混合機の混合過程では、粉体層に懸る重力場の方向が、半回転毎に逆転する (Process II)。そのため、Process I のような、粉粒体の仕込み状態 H-L と L-H の違いによる混合曲線の差別は無くなる。このような混合過程における 2 成分粉粒体の密度差により生じる偏析のシミュレーションを試みた。ところで、タンブリング型混合機中の粉粒体の実際の動きは、3 次元的であり、複雑であるので、Fig. 8 に示したように、2 次元 ( $x, y$  方向) に単純モデル化して、シミュレーションを行なうこととした。このモデルを、Model II と呼ぶことにする。



**Fig. 8** Illustration of Model II as the most simplified segregation model of tumbling type solids mixer, for Process II (in which the direction of gravity force changes alternately.)

### 2-1) 2 次元モデル (Model II) のアルゴリズム

Model II の概念図を、Fig. 8 に示した。 $x$  方向、すなわち、重力場の方向に直角な方向 (水平方向) の混合過程と、 $y$  方向、すなわち、重力場の方向の混合過程とに分けて考える。

まず、 $x$  方向の混合過程に対しては、落下状態 (Fig. 8 中の State A) において、落下前後の  $x$  方向の位置の

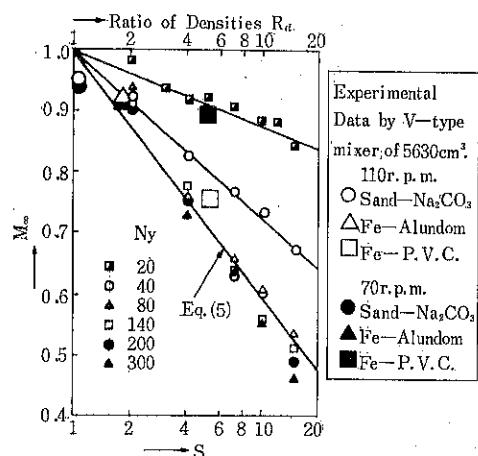
変化によって混合が進行すると仮定する。落下頻度については、正規分布を仮定することにした。すなわち、落下前の位置から、正規乱数（その平均値を 0 とし、標準偏差値を  $\sigma_N$  とする）によって決定される距離だけ左右 ( $x > 0$  が右、 $x < 0$  が左) に落下するものとした。なお、両端の壁面では、反射が完全に起るものとし、正規分布が、壁の所で、内側に折り返すようにシミュレートした。粒子が全部落下し終った状態 (Fig. 8 の State B)になると、 $x$  方向の混合は、この半回転に対しては、完了したことになる。

次に、この State B において、重力による偏析現象を表現する目的で、 $y$  方向、すなわち、重力場の方向に、Model I と同様のアルゴリズムを適用した。すなわち、上下方向に、 $N_y$  回の入れ替えを行ない、重い粒子か、軽い粒子かで、入れ替え回数に差を付けた。その回数の割合を表わす尺度として、Model I と同様、偏析度  $S$  を導入した。この State B での  $N_y$  回の上下入れ替えが完了すると、 $x$  方向に  $I_x$  個、 $y$  方向に  $I_y$  個、合計  $I_x \times I_y$  個の粒子を半回転させ、State A において、粒子を落下させる直前の状態に移動した。そして、再び、落下を開始し、 $x$  方向の混合を行なった。以上の手順を、最終混合度に達するまで多数回繰り返した。

なお、この Model II のモデル・パラメータは、正規乱数の標準偏差値  $\sigma_N$  と、半回転当たりの上下入れ替え回数  $N_y$ 、そして偏析度  $S$  の 3 個である。

### 2-2) Model II によるシミュレーション結果と考察

シミュレーションにより求めた最終混合度  $M_{\infty}$  を、偏析度  $S$  に対して、Fig. 9 にプロットした。 $I_x = 25$  個、



**Fig. 9** Final degree of mixedness  $M_{\infty}$  vs. Degree of segregation  $S$  (the simulated results by Model II) and also vs. Ratio of densities  $R_d$  (experimental results by V-type mixer).

$I_y=20$ 個,  $\sigma_N=0.659\text{cm}$ ,  $n=12$ ,  $n_s=15$ ,  $\bar{X}=0.5$ に対する結果である。混合開始前の仕込み方法としては、Fig. 10に示したように、密度の異なる2成分粉体を左右に仕込む方法を採用した。Model Iに対する結果(Fig. 7)と同様、 $M_\infty$ と  $\log S$ とは、直線関係を示した。 $y$ 方向の入れ換え回数  $N_y$ により、 $M_\infty$ は、大きく左右され、特に、 $N_y < 80$ では、著しい影響を受けている。Fig. 9中の実線は、各  $N_y=20, 40, 80, 140, 200, 300$ に対するシミュレーション結果を、最小2乗法で処理して得たものである。総括して、Eqs.(7), (8)式の実験式にまとめることができた。

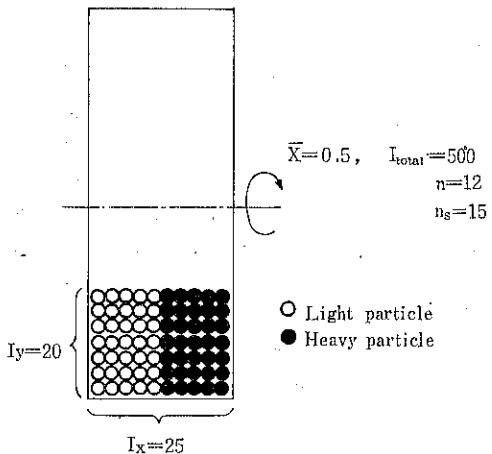


Fig. 10 Loading situation of Model II, before mixing starts.

$$M_\infty = 1 - (0.06 + 0.005N_y)\log S \quad \text{for } N_y < 80 \dots \dots (7)$$

$$M_\infty = 1 - 0.43\log S \quad \text{for } N_y \geq 80 \dots \dots (8)$$

Model II の偏析を、Model I と比較して考察して見よう。Model II では、State B の状態は、半回転毎に起る。この状態で、 $N_y$ 回の入れ換えを行なうのであるが、 $N_y < 80$ では、 $y$ 方向の入れ換え回数が少なすぎ、Fig. 6 の Model I の定常値  $M_\infty$  に相当した最終混合度には達しない内に反転が起ってしまうものと考えられる。すなわち、Fig. 6 では、 $M_\infty$  に達するのに、全粒子数  $I_{total}=2,500$ 個に対して、上下入れ換え回数  $N_I$  は、約 15,000回も要している。この比は、 $N_I/I_{total} \approx 6$ である。Model II の  $y$  方向には、 $I_y=20$ 個の粒子がある。したがって、Model I と同様の比  $N_y/I_y$  を、 $N_y=80$ に対して求めると、 $N_y/I_y=4$ となり、 $N_I/I_{total} \approx 6$ と略一一致している。また、Fig. 9に見るように、 $N_y \geq 80$ では、 $N_y=140, 200, 300$ の結果は、非常に接近しており、Model I の結果である Eq.(5) に漸近している。 $N_y < 80$ では、半回転では、Eq.(5) の  $M_\infty$  に達しない内に、

次の半回転で、上下が逆転する。そのため、Eq.(5) の  $M_\infty$  より、偏析の少ない、Eq.(7) が得られたものと考えられる。

ところで、実装置においては、重力場の方向、すなわち、 $y$  方向の混合のみが激しく、半回転で、最終混合状態に達してしまうことはほとんど考えられない。したがって、Model II の  $N_y < 80$  の範囲内の混合状態に相当した混合状態にあることが多いであろう。すなわち、タンブリング型混合機内の偏析は、Eq.(5)までは、達しない場合が多いと推論される。Fig. 9 には、V 型混合機による実測結果も、 $S=R_d$ とした目盛りで、併せプロットした。Eq.(6)には達していないことがわかる。

以上の結果は、水平方向、すなわち、 $x$  方向の混合速度に影響をおよぼすモデル・パラメータ  $\sigma_N=0.659\text{cm}$ に対するものである。この  $\sigma_N$  を、2倍、4倍と大巾に変化させてシミュレーションを行なった結果、混合速度は増加したが、最終混合度は、Eqs. (7), (8)と同じ値を得た。すなわち、水平方向の混合速度は、この Model II では、最終混合度に影響を与えたなかった。また、仕込み方法についても、Fig. 10 に示した左右仕込み以外に、上下仕込み状態に対してもシミュレーションを行なったが、最終混合度は、左右仕込みの Eqs. (7), (8)と同じとなった。

最後に、混合速度、混合速度係数について考察しよう。混合速度は、当然、仕込み状態の影響が予測される。いま、左右仕込み状態に対し、Model II を用いて、シミュレーションにより混合速度係数  $\phi$  を求め、結果を、Fig. 11 に示した。混合速度係数  $\phi$  と、標準偏差値  $\sigma_N$  (Fig. 11 中では、 $\sigma_N$  を粒子径  $d_p$  で規格化した標準偏差値  $\sigma_p=\sigma_N/d_p$  とした) の関係は、両対数プロットで良好な直線となった。最小2乗法により、Eq.(9)の実験式にまとめることができた。

$$\phi = 0.022 \times \sigma_p^{1.7} \dots \dots (9)$$

Fig. 11 中の  $\phi$  は、 $S=1$ に対するものであるが、 $S=2, 4, 7, 15$ に対しても、ほぼ同じ値となつた。すなわち、Model II においては、混合速度は、偏析度とは、関係せず  $x$  方向の落下による位置変位の標準偏差値  $\sigma_N$  のみにより決まることがわかった。

実装置について、混合速度係数  $\phi$  を測定すると、Eq.(9)を利用することにより、粉体粒子の運動に、 $\sigma_N$  の正規分布を仮想したときの運動距離を概算することができる。さらに、Eq. (10) の Einstein の関係式<sup>5)</sup>を利用して、拡散モデルを仮想したときの拡散係数  $D(\text{cm}^2/\text{sec})$  を算定できる。

$$D = \sigma_N^2 / 2At \dots \dots (10)$$

ここに、 $At$  は、半回転に要する時間 (sec) である。

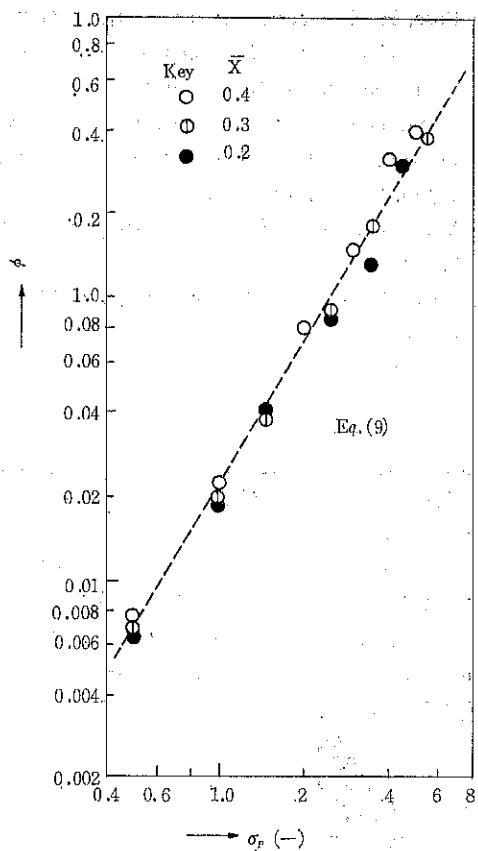


Fig. 11 Mixing rate coefficient  $\phi$  vs. variance of Gaussian distribution normalized as  $\sigma_p = \sigma_N/d_p$  (the simulated results of Model II).

重力方向の偏析を表わす Eqs. (7), (8)と水平方向の混合速度を表わす Eq. (9)とを、併せ考察すると、Process IIで記述できるタンブリング型混合機内の混合過程において、密度差のある 2 成分粉粒体を混合するには、できるかぎり y 方向(重力方向)の混合は抑制するようになり、x 方向(水平方向)には、能う限り強力な混合を行なうのが良いことがわかる。この条件を満足するような混合機の設計、操作条件の決定を行なえば良いことになる。

### 結 言

密度の異なる 2 成分粉粒体を混合する際に生じる偏析現象をシミュレートするため、2 種類の数学モデルを提案し、モンテ・カルロ・シミュレーションを実施した結果、以下の知見を得た。

(1) 密度差のある 2 成分粉粒体を混合する際に到達する最終混合度  $M_\infty$  は、密度の比  $R_d$  と、 $M_\infty = 1 - a \cdot \log$

$R_d$  の関数型で良好に、相関できることがわかった。また、実験定数  $a$  は、高々、0.4 程度であることがわかった。この関係式より、2 成分の密度比  $R_d$  から、近似的に、密度差により偏析を受ける混合機の最終混合度の最低値を推算することができる。

(2) 密度差のある粉粒体を混合するには、重力の方向の混合が緩慢で、水平方向の混合が激しい混合過程を示す混合機の設計、操条件の決定が望ましいことがわかった。したがって、水平方向に、左右の動きの激しい混合過程を示す混合機が、重力による偏析の生じ易い粉体を混合するのに適していると云える。

謝 辞 本報のシミュレーションの計算には、東京大学大型計算機センタ、京都大学大型計算機センタおよび大阪府立大学計算センタを利用した。記して謝辞を表する。

### Nomenclature

$a$	: experimental constant	[—]
$D$	: diffusion coefficient	[cm <sup>2</sup> /sec]
$d_p$	: particle diameter	[cm]
$I_{total}$	: total number of particles to be mixed	[—]
$I_x, I_y$	: number of particles for x and y axes in Model II	[—]
$M$	: degree of mixedness defined by Eq. (4)	[—]
$M_\infty$	: final degree of mixedness	[—]
$M_{\infty,0}$	: lowest value of $M_\infty$ due to segregation	[—]
$n$	: number of samples	[—]
$n_s$	: sample size	[—]
$N_I$	: number of interchanges in Model I	[—]
$N_y$	: number of interchanges in Model II	[—]
$R_d$	: ratio of particle densities of two components	[—]
$S$	: degree of segregation defined in Model I	[—]
$x, y$	: distances rectangular and parallel to the direction of gravity force	[cm]
$\sigma$	: standard deviation of sampled concentration in fraction $X_i$	[—]
$\sigma_0$	: $\sigma$ before mixing	[—]
$\sigma_r$	: $\sigma$ at completely random mixing	[—]
$\sigma_N$	: standard deviation of relocation distance $x$ in Model II	[cm]
$\sigma_p$	: defined by $\sigma_N/d_p$	[—]
$\phi$	: coefficient of mixing rate	[—]

### Literature Cited

- 1) Chan, D. S. and Feuerstenu, D. W.: Powder Technology, 1, 174 (1967)
- 2) Fan, L. T. et al.: I. E. C., 82, 53 (1970)
- 3) Inoue, I. and Yamaguchi, K.: Kagaku Kōgaku, 33, 286 (1969)
- 4) Lacey, P. M. C.: T. I. Ch. E., 21, 53 (1943)
- 5) Oleniczak, A. T.: "A stochastic model of ideal dry particle mixing" Ph. D. Thesis, Princeton Univ. (1962)
- 6) Rose, H. E.: Chem. Ing. Tech., 31, 192 (1959)
- 7) Rose, H. E. and D. J. Robinson: A. I. Ch. E. J., Symp. Series, No. 10, 61 (1965)
- 8) Yamaguchi, K. and Inoue, I.: The 37th annual meeting of the Society of Chemical Engineers, Japan, G202 (1972)
- 9) Yano, T. et al.: DECHEMA-monographien, 66, 77 (1970)
- 10) Yano, T. et al.: Kagaku Kōgaku, 29, 1001 (1965)

### 新製品ひとこと

ホソカワ/トリット

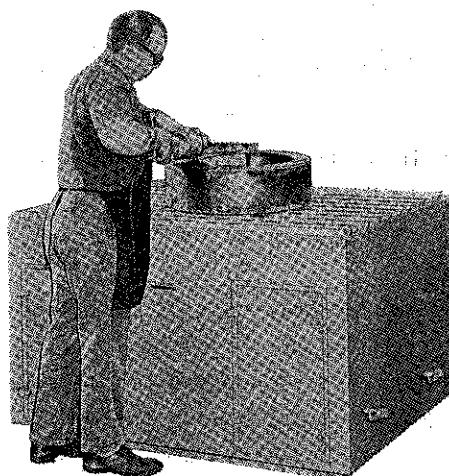
ダウンドラフトベンチ（特許）

ホソカワ/トリット ダウンドラフトベンチは、作業台と高性能バッグフィルターを組合せたもので、手持ち工具で行なう研磨、バフ掛け、サンダー掛け、グラインダー掛け等の作業をする時に発生するダストを作業台の中へ吸引し、作業者に良い作業環境を提供し、作業能率の向上に役立て得る新製品です。

ダウンドラフトベンチD DH-45型の内部には、高性能のバッグフィルター、吸引ファンおよびサイレンサーが組み込まれていて、作業中に発生したダストはグレーチングプレートの作業台表面から強力な空気の吸引により直ちに吸い込まれ、大きな粒子はダストパン上に落ち、微細ダストはフィルタにより汎過され、クリーンエアだけがファンにより作業台のサイドから排気されます。このダウンドラフトの今一つの特徴は、作業台の周囲の吸引風速を大にし、エーカーテンを敷き、作業台の外へダストが飛散するのを防止し

ている点で、このため作業場内では全く発塵することはありません。

ダウンドラフトベンチは、ファン、集じん機がコンパクトに組み込まれているため作業場内に全く余分のスペースを必要としません。また、フード等を設ける必要もありませんので、作業者が自由に作業台上で仕事をすることができます。



# リング式剪断試験器による測定値と Carr の流動性指数との関連

Correlation of "Flowability Index" defined by R. L. Carr and  
Shear Properties measured with Ring Shear Cell.

横山 藤平\* 中川 文雄\* 彼谷 憲美\*  
Tohei Yokoyama Fumio Nakagawa Noriyoshi Kaya

## Abstract

A ring shear cell has been developed for measuring the flow characteristics of granular materials.

Internal friction coefficient, cohesion, tensile strength and shear index are obtained from series of shear tests on various powders using the ring cell and the characteristic data are compared with "flowability indices" proposed by R. L. Carr which have been measured on the Powder Tester.

From the results, compressibility and cohesive force which are factors of a flowability index, are correlated to shear index  $n$  and cohesion  $C$  and so flowability index is related to shear index  $n$  and cohesion  $C$ .

## 1. まえがき

粉粒体の流動性は充てん性などとともに、粉粒体を取扱うプロセスにとって重要な役割をもつ特性である。この流動性という概念は本来、粉体の内部摩擦係数、付着力、引張強度など基礎的力学特性との関係を明らかにして使用されるべきであるが、現在のところその関係は不明である。

そこで従来、流動性を表現するのに便宜的な基準として、フリイやオリフィスからの流出速度、安息角、見掛け密度あるいは限界流出寸法、粒子の飛散開始風速で表現する方法などが使用されてきた。これらの便宜的尺度は目的によってはそのまま使用可能であるが、他の場合には矛盾を生じ、一般性に欠け適用範囲も限定される。

一方、1965年 R. L. Carr<sup>1)~8)</sup> によって提案された

流動性指数は安息角、粒度分布、見掛け密度、スパチュラ角、凝集度などの測定値から総合的に評価するもので、経験的ではあるが、実用上便利な方法として広く利用されている<sup>4)~5)</sup>。しかしこの流動性指数がどの程度、粉体物性としての流動性と関係があるのか、また実際のプロセスでの流動現象にどの程度、応用できるかについては報告が少なく、粉体混合への応用<sup>6)</sup>、フリイ流動性指数との関連<sup>7)</sup>あるいは閉塞限界寸法長さとの相関<sup>8)</sup>を求めたものがあるにすぎない。

そこで著者らは幾つかの粉粒体試料を用いて、試作したリング式剪断試験器で測定を行ない、これらの測定結果から付着力、引張強度、剪断指數を求め、流動性指數との相関性を検討した。

## 2. リング式剪断試験器とその測定

### 2.1 リング式剪断試験器

Fig. 1 に試作した リング式剪断試験器の概略を示した。リング式剪断試験器の一般的特長として<sup>8)</sup>

(1) 剪断面積が一定で、剪断面の減少による影響が少

\* 細川粉体工学研究所  
(〒573 枚方市招提田近1-9)  
Tel (0720) 57-3721

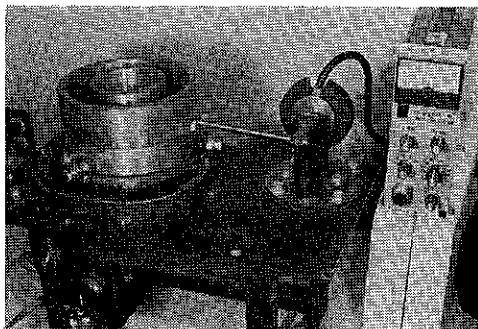


Fig. 1 Photograph of ring shear cell

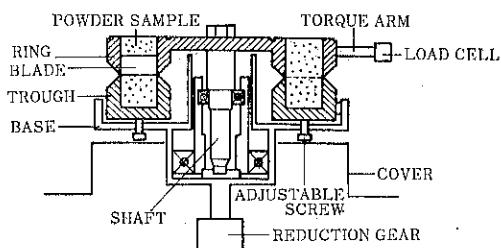


Fig. 2 Schematic section through ring shear cell

ない。

(2) 試料粉体の量が Jenike の剪断試験器に比較して、少量で測定できる。

(3) 一連の測定が同一の試料で測定でき、リングセル内への試料の入れ替えなどの手間が不要である。

また、この測定器は次のような工夫を施してある。

(1) 4本のスプークと8本のブレードによって、リングと軸が連結されている。これによって測定中にリングが偏心するのを防止できる。

(2) ベースにあるネジによってトラフの位置が調整できる。従ってリングとトラフのクリアランスも自由に調節できる。なお今回の測定では、クリアランスを0.5 mm以下に保った。

(3) リングとトラフが向い合った先端はエッジにし、粒子のかみ込みの影響を少なくした。

(4) トラフの内面には試料の滑りを防止するため、キザミを施した。

付) トラフはベースから取りはずしが可能で、アタッチメントをベースにつければ壁面摩擦も測定できる。

(5) ギヤを変えることで、剪断速度はある範囲内で変速可能である。

## 2.2 測定の前処理

実際の剪断試験に際してはリングセルに試料を充てんする方法、予圧密の仕方によって測定結果に相異が生じてくる。従って信頼できる測定値を得るためには、この

充てん、予圧密などの前処理についても検討する必要がある。これに関しては Jenike の剪断試験法について多少研究されている<sup>10)</sup>程度で、リング式剪断試験器については不明な点も多い。そこで前処理の方法を変えて比較した結果、前処理は次の手順で行うこととした。

1. リングの上にモールディングリングを載せ、試料を均等に充てんする。
2. 粉粒体の充てん状態を均一にするため、更にリングを左右に30°前後に往復のひねりを与える。
3. モールディングリングをはずし、余分の試料を取り除く。

以上の手順によって前処理を終えた後、荷重用のおもりを載せて、剪断を開始する。定常値に達したら、ベースの回転を停止し、セルを逆回転させ剪断力を除く。荷重を減らして再び測定を継続する。(Fig. 3 参照)

また粉粒体は圧密時間によっても、その摩擦特性は Fig. 4 に示すように異ってくる。そこで測定条件を等しくするため、予圧密の時間は同図の例から、2時間圧密を行って測定した。

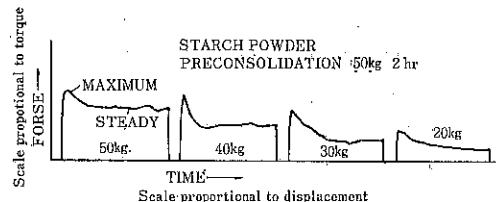


Fig. 3 Shear stress test chart obtained with ring cell

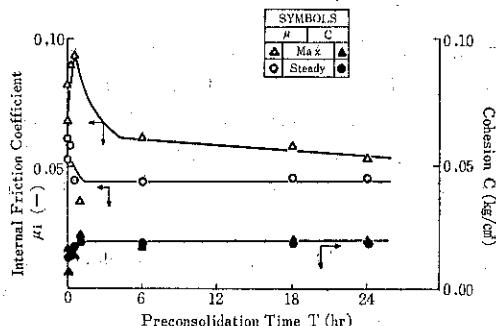


Fig. 4 Effects of preconsolidation time

## 2.3 剪断応力などの算出法

ベースを回転させ、トラフとリングの境界で生じた剪断力はトルク腕を介してロードセルに伝達される。このロードセルに作用する力F、リングセルの外径  $R_1$ 、内径  $R_2$ 、軸からロードセルまでの長さをLとすると、回転トルクTは

$$T = \int_{R_1}^{R_2} 2\pi r \cdot \tau \cdot r \cdot dr = \frac{2}{3}\pi\tau(R_2^3 - R_1^3) \quad \dots\dots(1)$$

剪断応力  $\tau$  は

$$\tau = \frac{3T}{2\pi(R_2^3 - R_1^3)} \quad \dots\dots(2)$$

回転トルク  $T$  は

$$T = FL \quad \dots\dots(3)$$

従って(4)式を得る。

$$\tau = \frac{3FL}{2\pi(R_2^3 - R_1^3)} \quad \dots\dots(4)$$

ロードセルで検知される力  $F$  を記録計から読みとり、

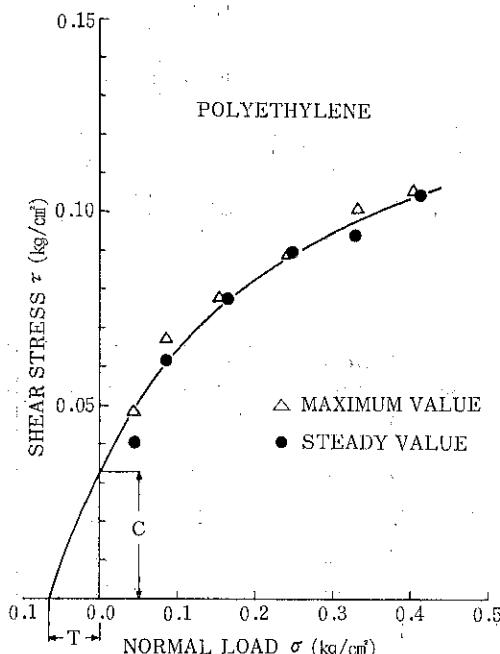


Fig. 5 Plots of a yield locus for polyethylene

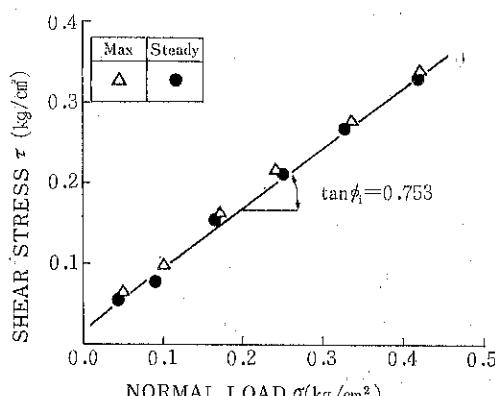


Fig. 6 Yield locus for Soma-sand with preconsolidation 30kg

この(4)式から剪断応力  $\tau$  を求めた。

得られた  $\sigma-\tau$  測定値に、次のような Farley の関係式を適用する<sup>11)</sup>。

$$\left(\frac{\sigma}{T} + 1\right) = \left(\frac{\tau}{c}\right)^n \quad \dots\dots(5)$$

ここで  $c$ ,  $T$  は Fig. 5 に示されるような付着力、引張強度で、 $n$  は剪断指数である。ここで  $n=1$  の場合は Fig. 6 に示すようにクーロン粉体となる。

さらに剪断応力の測定値から、種谷ら<sup>12)</sup>の方法に準じて付着力  $c$ 、引張強度  $T$ 、剪断指数  $n$  を求めた。

### 3. 流動性指数とその測定値

Carr の流動性指数は次の 4 種の物性の測定値から、

- 1) 安息角 (Angle of Repose)
- 2) 圧縮度 (Compressibility)
- 3) スパチュラ角 (Angle of Spatula)
- 4) 凝集度 (Cohesiveness) または均一度 (Uniformity)

Table. 1 に従い、各々 25 点満点で配点されている。それぞれの指標の値を求め、その合計の値を流動性指数としている。

測定に用いられた試料とその流動性指数の値を Table 2 に示した。

### 4. 剪断試験結果と流動性指数

#### 4.1 剪断試験の結果

剪断試験から求めた剪断指数、付着力および引張強度

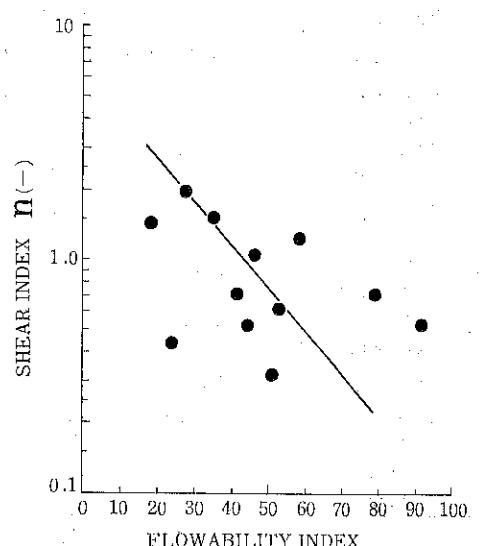


Fig. 7 Relation between flowability index and shear index

Table-1

\* 粒状または粒状の粉で均一度が測定できる場合はこの値を使用する。

\*\* 凝集性の強い微粉で凝集度が測定できる場合はこの値を使用する。

流動性の程度	流動性指數	架橋防止対策	安息角		圧縮度		スパチュラ角		均一度*		凝集度**	
			度	指數	%	指數	度	指數	単位	指數	%	指數
最も良好	90~100	不必要	<25 26~29 30	25 24 22.5	<5 6~9 10	25 23 22.5	<25 26~30 31	25 23 22.5	1 2~4 5	25 23 22.5		
良好	80~99	不必要	31 32~34 35	22 21 20	11 12~14 15	22 21 20	32 33~37 38	222 21 20	6 7 8	22 21 20		
かなり良好	70~79	パイブレーターが必要な場合がある	36 37~39 40	19.5 18 17.5	16 17~19 20	19.5 18 17.5	39 40~44 45	19 18 17.5	9 10~11 12	19 18 17.5		
普通	60~69	限界点、架橋あり	41 42~44 45	17 16 15	21 22~24 25	17 16 15	46 47~59 60	17 16 15	13 14~16 17	17 16 15		
あまり良くない	40~59	必要	46 47~54 55	14.5 12 10	26 27~30 31	14.5 12 10	61 62~74 75	14.5 12 10	18 19~21 22	14.5 12 10	6~9 10~29 30	14.5 12 10
不良	20~39	強力な対策が必要	56 57~64 65	9.5 7 5	32 33~36 37	9.5 7 5	76 77~89 90	9.5 7 5	23 24~26 27	9.5 7 5	31 32~54 55	9.5 7 5
非常に悪い	0~19	特別な装置と技術が必要	66 67~89 90	4.5 2 0	38 39~45 >45	4.5 2 0	91 92~99 >99	4.5 2 0	28 29~35 >35	4.5 2 0	56 57~79 >79	4.5 2 0

Table-2

Material	Apparent Density		Compressibility		Angle of Repose		Angle of Spatula		Cohesiveness		Flowability Index	
	L.	T.	M.V.	I.	M.V.	I.	M.V.	I.	M.V.	I.		
1 Diatomaceous earth	0.119	0.331	64	0	51	12	80	7	90.9	0		19
2 Silica-V	0.235	0.480	51	0	55	10	67	12	57.8	2		24
4 Asbestos	0.144	0.330	56.4	0	43	16	63	12	99	0		28
7 Talc-S	0.625	1.19	47.2	0	50	12	72	12	21	12		36
9 Silica-W	0.850	1.40	39.2	2	45	15	67	12	16.5	12		41
11 Calcium carbonate-L	1.12	1.85	34	7	49	12	54	16	47.3	7		42
12 Titanium dioxide	0.438	0.825	46.9	0	43	16	56.5	16	11.5	12		45
13 Zinc oxide	0.617	1.02	39.9	2	43	16	58.5	16	27.5	12		47
14 Strach powder	0.665	0.920	27.8	12	46	14.5	75	10	27.4	15		51.5
15 Calcium carbonate-O	1.47	1.82	19	18	47	12	57	16	38.9	7		53
17 Polyethylene	0.290	0.412	29.6	12	43	16	56.5	16	3.67	15		59
19 Silica sand-T	1.24	1.48	16	19.5	38	18	46	17	*1.6	25		79.5
22 Zircon sand-C	2.69	3.11	4.72	25	36	19.5	30.5	22.5	*1.4	25		92

L.:Loosely packed T.:Tightly packed

M. V. :Measured Value I.:Index

\*: Uniformity

Table-3

Material	Tensile Strength T (kg/cm²)	Cohesion C (kg/cm²)	Shear Index n (-)	Packing Density ρ (g/cm³)	Mean Diameter d (μ)
1 Diatomaceous earth	0.163	0.010	1.46	0.277	15.4
2 Silica-V	0.231	0.004	0.439	0.653	14.0
4 Asbestos	0.210	0.007	1.98	0.354	
7 Talc-S	0.130	0.024	1.54	1.02	35
9 Silica-W	0.358	0.001	0.329	1.10	24
11 Calcium carbonate-L	0.280	0.018	0.718	1.59	42
12 Titanium dioxide	0.194	0.003	0.513	0.869	15.4
13 Zinc oxide	0.151	0.005	1.02	0.893	5.0
14 Starch powder	0.166	0.001	0.320	0.824	31
15 Calcium carbonate-O	0.284	0.009	0.625	1.36	127
17 Polyethylene	0.110	0.032	1.25	0.400	158
19 Silica sand-T	0.162	0.001	0.718	1.24	81
22 Zircon sand-C	0.185	0.018	0.537	3.19	190

の結果を Table. 3 に示した。

これらの摩擦特性の結果と流動性指数との関係を検討した。

#### 4.2 剪断指數

Fig. 7 に流動性指数と剪断指數  $n$  の関係を示す。

これより流動性指数が増加する一流動性がよくなる一と剪断指數  $n$  は減少する傾向にある。Ashton らはこの剪断指數  $n$  (shear index) を粉体の流動性を判定する尺度として、 $n$  が小さい程、流動性がよいとしており<sup>11)</sup>、流動性指數の意義を裏づけたものと言えよう。

Fig. 8 に流動性指數の因子の一つである圧縮度と剪断指數  $n$  との関係を示す。

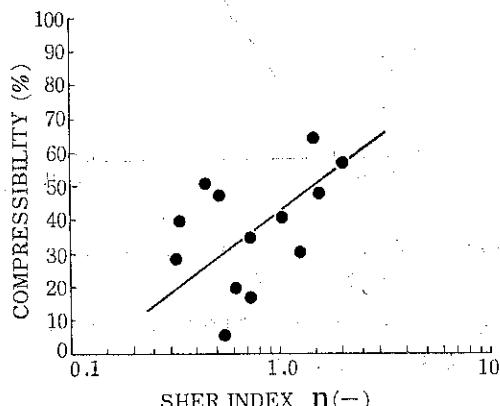


Fig. 8 Relation between shear index and compressibility

剪断指數  $n$  が大きくなれば圧縮度も大きい傾向を与えている。しかし流動性指数を構成する他の因子、安息角、凝集度、スパチュラ角と剪断指數  $n$  との間に何らかの関係を見い出すことはできなかった。

従って剪断指數  $n$  は圧縮度に大きく関係するがために、流動性指数と関連すると考えられる。

#### 4.3 付着力

付着力  $C$  と流動性指数との関係を Fig. 9 にプロット

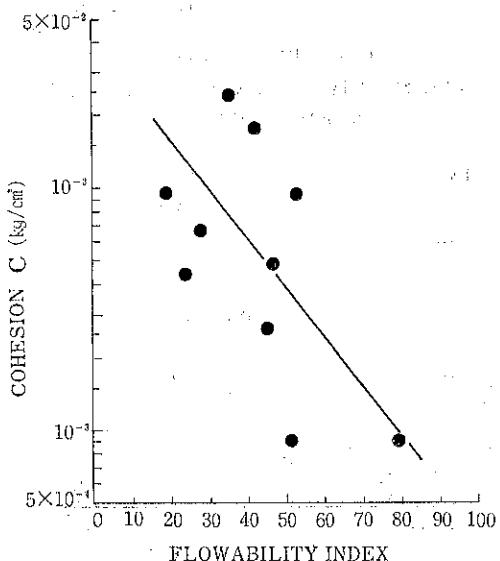


Fig. 9 Relation between flowability index and cohesion

した。

同図から付着力  $c$  が増大すると流動性指数は減少し、流動性が悪くなることが認められる。それゆえ流動性指数は剪断指數  $n$  だけではなく、付着力  $c$  にも依存していると考えられる。しかし付着力  $c$  と流動性指数の構成因子との関係については、Fig.10, 11に示すように、剪断指數  $n$  と圧縮度の場合 (Fig.8) ほど明確な相関性は認められなかった。また付着力  $c$  が増加すれば、圧縮度、凝集度も、1本の直線では近似できないが増加の傾向にある。これらの図では粒度が異なるが、同一の物質、例えば炭酸カルシウム、ケイ石などは傾向を同じくし、凝集度では見掛け密度の重い粉体が傾向を同じくするようである。

#### 4.4 内部摩擦係数

内部摩擦係数  $\mu_i'$  は(5)式を微分し

$$\mu_i' = \frac{d\tau}{d\sigma} = \frac{1}{n} \left( \frac{\tau}{\sigma + T} \right) \quad \dots\dots(6)$$

(6)式は  $\sigma$  の値によって  $\mu_i'$  の値が変るので、 $\sigma=0$ ,

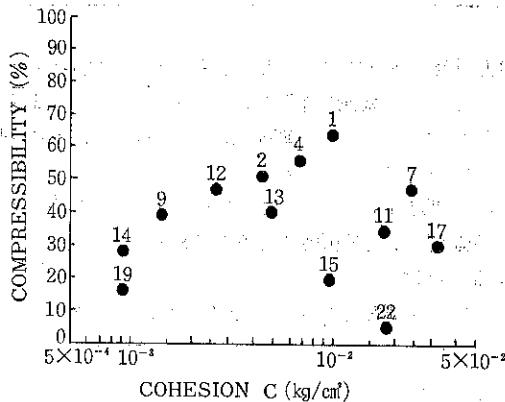


Fig. 10 Relation between cohesion and compressibility

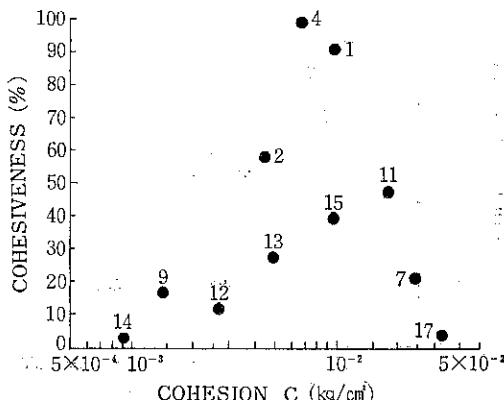


Fig. 11 Relation between cohesion and "Cohesiveness"

$\tau=c$  における内部摩擦係数  $\mu_i'$  を求める

$$\mu_i' = \frac{1}{n} \left( \frac{c}{T} \right) \quad \dots\dots(7)$$

Fig. 12 に示した流動性指数と内部摩擦係数  $\mu_i'$  の関係は(7)式における  $\mu_i'$  に対してプロットしたものである。

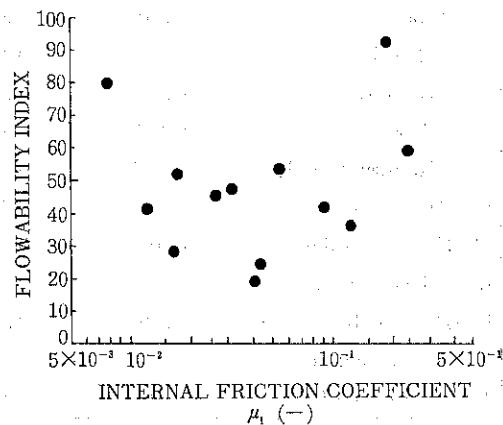


Fig. 12 Plot of internal friction coefficient v.s. flowability index.

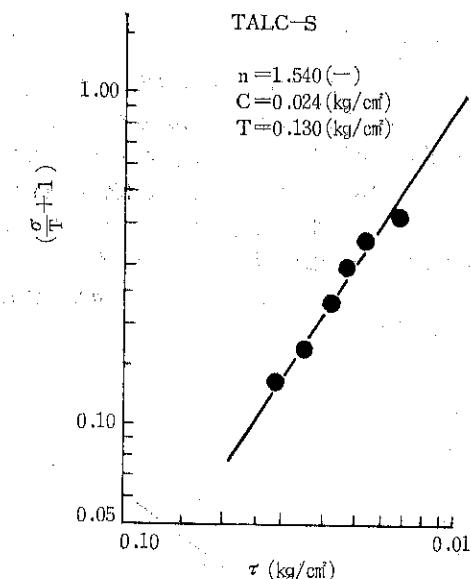


Fig. 13 Typical logarithm of shear stress at failure v.s.  $\log [(\delta/T) + 1]$

同図からは流動性指数と内部摩擦係数に直接、明らかな関係を認めることはできなかった。

#### 5. おわりに

Carr の提案した流動性指数と、数種の粉粒体の剪断

試験によって得られた剪断指数、付着力、内部摩擦係数などの関連性を検討した。その結果、流動性指数は剪断指数、付着力との間に相関性が認められた。

従来から剪断指数は流動性の良否の定性的な指標とされており、また流動性を集合状態の粉体の“こわれやすさ”と考えるならば、流動性指数が付着力に依存するのも納得できるものと思われる。

しかし測定された試料粉体の範囲が狭く、限られていたため、圧縮度、凝集度と剪断指数および付着力の相関性は認められたけれども、スパチュラ角、安息角については十分な検討ができなかった。

また剪断指数は従来  $n=1 \sim 2$  の範囲 (Fig. 13) にあるとされているが、例えば Fig. 14 に示すように極端な場合  $n=0.320$  となる測定値が得られている。これらが測定条件によるものか、試料自体のもつ本来の特性であ

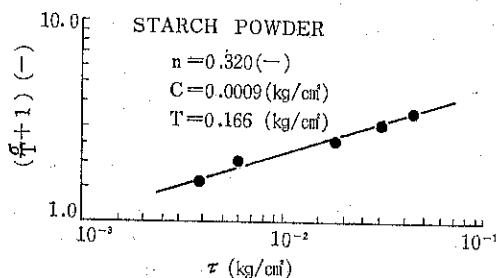


Fig. 14 Example of shear index  $n < 1$

るなども検討する必要がある。

これらの点に関して試料を適当に選び多くの実験を重ねて、より詳細な検討を加えるつもりである。

#### [付記]

本研究に際して、横浜国立大学工学部教授青木隆一先生から剪断試験器の試作、測定方法などに関する種々の御指導をいただいた。ここに厚く感謝の意を表します。

#### 参考文献

- 1) Carr, R. L. : Chem. Eng., 72, Jan, 18, 163 (1965)
- 2) Carr, R. L. : ibid, 72, Feb, 1, 69 (1965)
- 3) Carr, R. L. : ibid, 76, Oct, 13, 7 (1969)
- 4) 横山, 清山: 粉体工学研究会誌, 6, 264 (1969)
- 5) 鈴木: 化学工場, 17, [6] 33 (1973)
- 6) 矢野, 寺下, 山崎: “粉碎” [16] 96 (1971) または 粉体工学研究会誌, 9, 83 (1972)
- 7) 三輪, 清水: “粉碎” [16], 103 (1971)
- 8) 鈴木, 丸子: “粉碎” [18] 80 (1973)
- 9) Pilpel, N. : Advan. Pharm. Sci., 13, 173 (1971)
- 10) Williams, J. C., A. H. Birks: Rheologica Acta, 4, 170 (1965)
- 11) Ashton M. D. et al : ibid, 4, 206 (1965)
- 12) 種谷, 佐藤, 青木: 粉体工学研究会誌, 11, 199 (1974)

(41頁より)

- 10) F. W. Goodhart, M. A. Kelley, H. A. Lieberman: J. Pharm. Sci., 54, 1799 (1965).
- 11) JIS Z 8730-1970: Methods for Specification of Color Differences for Opaque Materials

- 12) 山口昌一郎, 川上元郎: “色彩工学入門” オーム社, 東京, p. 69 (1967).
- 13) 川上元郎: 私信

# 大型貯槽における貯槽形状と粉体圧

Effects of Bin Shapes on Pressures in Big Bins

杉田 稔\*

Minoru Sugita

## 1. はじめに

日本においては、バラ積み輸送による物流システムの一環としての粉体貯槽は戦後急速な進歩拡大を示している。特に近年、マンモスタンカー、バラ積み専用船などの出現で代表される輸送機関の急速な進歩発達と、各種工業プラントの大型化などとともに、各種物質の能率的な集配・貯蔵を目的とするバラ積み方式としての貯槽の需要はきわめて増大しつつある。

このような背景のもとで、ホッパー (hopper), バンカー (bunker), サイロ (silo), ビン (bin) などのいろいろな呼称で呼ばれる粉体貯槽は、その貯槽の用途、貯蔵物質、排出方法などの要因によって多種類の形状の貯槽が使用されている。また、粉体貯槽の設計は個々の貯槽に対して特殊な条件がともない、設計規準も示されていない我が国においては、各設計者の粉体貯槽に対する知識と経験に頼っているのが実状である。そのため、種々の構造上の貯槽障害が発生し、いまだに未解決な問題点が多くある。本論では、粉体貯槽の設計にあたっての基本的な問題点の一つである貯槽壁に作用する粉体圧と貯槽形状との関係を中心に、粉体貯槽設計上の貯槽形状に関する問題点について述べてみたい。

## 2. 貯槽内突出部による影響

小麦粉サイロなどを中心として、“Bühler 型”と呼ばれる“Nose”付の角型サイロに代表されるように、貯槽内に突出部や挿入物を含む貯槽が広くヨーロッパ、北アメリカ、日本などで使用されている。これらの突出部などは、貯槽からの粉粒体の排出をスムーズにし、定量排出を促進することなどを目的として設計されている。こ

のような貯槽内の各種突出部または挿入物に対する粉体圧と、この挿入物などによる他の貯槽壁に対する粉体圧の問題についてはまだ十分な究明がなされていない。そのため貯槽の構造体設計において、設計荷重値の決定に際して設計者の大いに頭を痛めるところである。

各国の貯槽設計規準などにも、貯槽形状による粉体圧への影響について、具体的に規準に取り上げてあるものを見た筆者は知らない。

しかしながら、これら突出部や挿入物が大きな原因の一つと考えられる貯槽障害の発生が近年かなり見聞されるようになった。そこで筆者らは、実際の貯槽内でのこれら突出部などによる粉体圧に及ぼす影響について検討するため幾回かの粉体圧の測定を行なった<sup>1)2)</sup>。

それらの測定結果の内 “Nose” 付貯槽の一例を示して話を進めたい。本測定サイロは Fig. 1 に示すように、内法寸法が 3.275m × 3.225m のほぼ正方形の平面面で、貯槽高さ 18.5m の鉄筋コンクリート製の小麦粉サイロである。同様な形状のサイロが連立する群サイロ内の一つである。

既に述べたとおり、本測定サイロの特徴は抽出口の上方約 5.0m の位置に設置された突出部 “Nose” にある。この突出部は垂直壁面よりの出は 1.0m であり、傾斜角は 70° である。

粉体圧の測定は、貯槽コンクリート壁内に埋設された圧力計にて行なった。圧力センサーの表面が貯槽内壁面と同一表面となるように圧力計は設置されている。圧力計は受感部直径 88mm の円形ダイヤフラム型圧力計で、圧力計の取付け位置は Fig. 1 に示す。

投入試料は小麦粉で、その嵩比重は  $\gamma = 0.53$  であった。本測定での全投入量は約 85 ton であった。平均投入速度約 7.0 ton/hr にて投入し、その後 3 日間静置した後、8 回に分けて間欠的に抽出した。抽出速度は平均 60.0 ton/hr で抽出した。抽出時の連続記録の一例を Fig. 2 に示す。また、Fig. 3 に各測定点での静的および

\* 清水建設株式会社 研究所力学研究部

(〒135 東京都江東区越中島 3-4-17)

Tel 03-643-4311

動的な最大指示圧力値の包絡線図を示す。なお、測点B-3は圧力計の故障により抽出時の動的圧力値の測定が出来なかった。

今回の測定においても過去の測定結果とほぼ同様な粉体圧の挙動を示した。Fig. 2に一例を示したように、抽出時には抽出開始とともに急激な圧力上昇と激しい鋸歯状の変動を示し、変動振巾の最大のものは $1\text{ kg/cm}^2$ にも及んでいる。この動的圧力変動は貯蔵粉体量の多少にはそれ程影響されず、ほぼ同じ圧力変動を示した。

Fig. 3に示すように、これらの動的圧力値は静的圧力

値の9~10倍に達する部分があり、特に突出部の先端部分に最大の動的圧力が発生し、その相対する壁面部および突出部下の壁面部にはJanssen理論値の数倍の粉体圧の発生が測定された。

現在までに筆者の知るこの種類の突出部を持つ粉体貯槽での破壊または損傷を受けた事故例は、いずれもこの動的過圧力の発生部と良く一致した部分に発生しており、設計時にこの動的過圧力に対する検討がなされてい

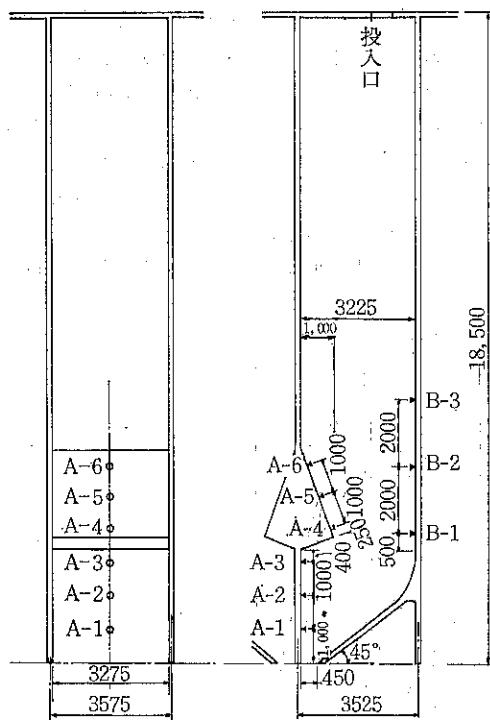


Fig. 1 Silo Section & Gage Setting Positions

○ Static Max. Measured Pressures  
○ Dynamic Max. Measured Pressures  
— Janssen's Values

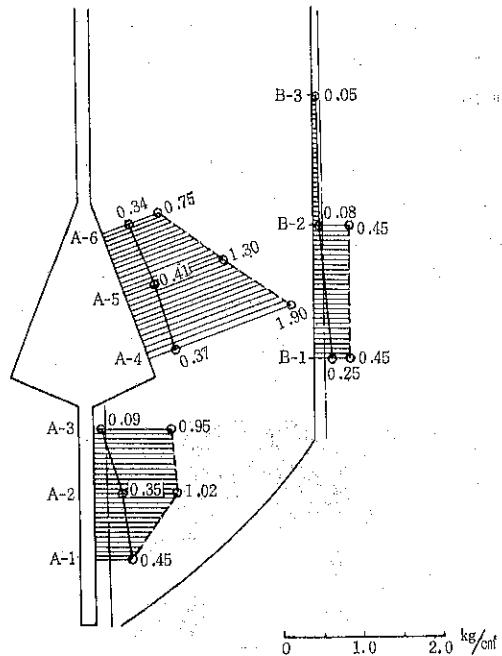


Fig. 3 Distributions of Measured Pressures.

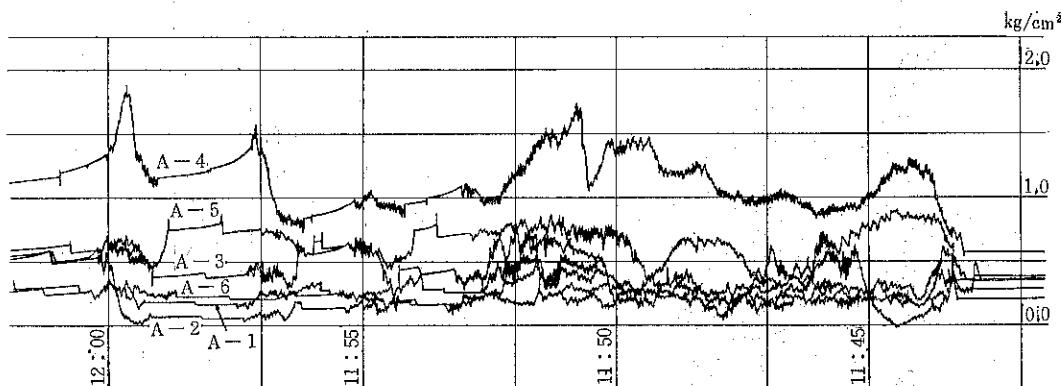


Fig. 2 A Record of Dynamic Pressures during Discharge

ない場合のものである。

その一例として同様の突出部を持つ脱脂大豆ミールサイロの事故例がある。鉄筋コンクリート造群サイロの一基の貯槽寸法が、 $5.1\text{ m} \times 6.3\text{ m}$  の矩形断面で貯槽高約 $32.0\text{ m}$  である。 $\gamma=0.45$  の脱脂大豆ミール約 $300\text{ ton}$  を貯蔵し、抽出を開始したところ、突出部に相対する壁面部が変形はじめ、コンクリート部にきれつが発生し、貯槽壁が崩壊にまで至った。約 $100\text{ ton}$  のミールが貯槽外にあふれ出貯槽壁の変形は約 $60\text{ cm}$  にまで達した。

同様に鉄板製小麦粉サイロにては、突出部と相対する壁面部の鉄板とそれを受けける梁のアングルが大きく変形し、アングルの破断にまで至った例もある。

これらの原因としては、貯蔵粉体の物性、抽出方法及び速度など種々考えられるが、貯槽形状による抽出時の動的過圧力の発生がその主たる原因であると考えられる。

この動的過圧力の発生は抽出時の貯槽内粉体のフローパターンの形成に起因するものと考えられる。現在筆者らはモデルによるフローパターンの研究を行なっているが、Photo 1 にその一例を示す。既に筆者らが円形貯槽におけるフローパターンと動的圧力の発生について報告したと同じく、粉体の塑性流動化する崩壊面の形成がこの動的過圧力の発生に関係するものと思われる<sup>3)</sup>。

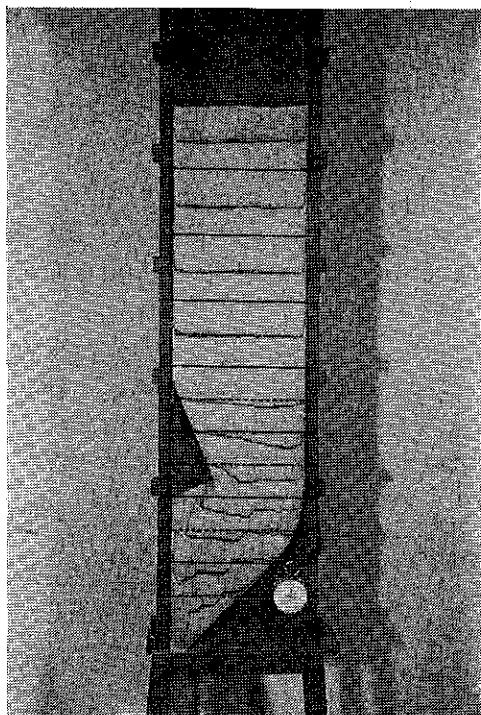


Photo 1 Flow Pattern Model Test

### 3. 貯槽内挿入物による影響

輸入穀物用貯槽においては、害虫駆除を目的とする殺虫用毒ガス放出を目的とする鋼製ビームなどが取り付けられる。この鋼製ビームが貯槽使用後数年にして、中央溶接部などより変形または破断する事故例が多く発生している。また、投入時などの粉体圧により曲げ応力を受け、ホッパー壁との取り付け部のアンカーボルトに引き抜き現象を生じ、ホッパー壁部に変形を生ずるか、きれつ発生の原因となっている例がある。

筆者らはこのクロスピームなどにどのような粉体圧が作用しているかを知るために種々測定を行なった。Fig. 4 に最近行なった小麦サイロでの測定ゲージ位置と測定結果の一例を示す。測定サイロは内径 $6.8\text{ m}$ 、貯槽高さは $25.0\text{ m}$  (ホッパー部高さ $3.9\text{ m}$ )、ホッパー傾斜角 $50^\circ$  の円形鉄筋コンクリート製群サイロの一つである。測定は筒体壁面及びホッパー部壁面部に先と同様のダイヤフラム型圧力計を内壁面と受圧面を一致させて埋設し、また、鋼製ビーム上に垂直方向の圧力を測定すべく同様の

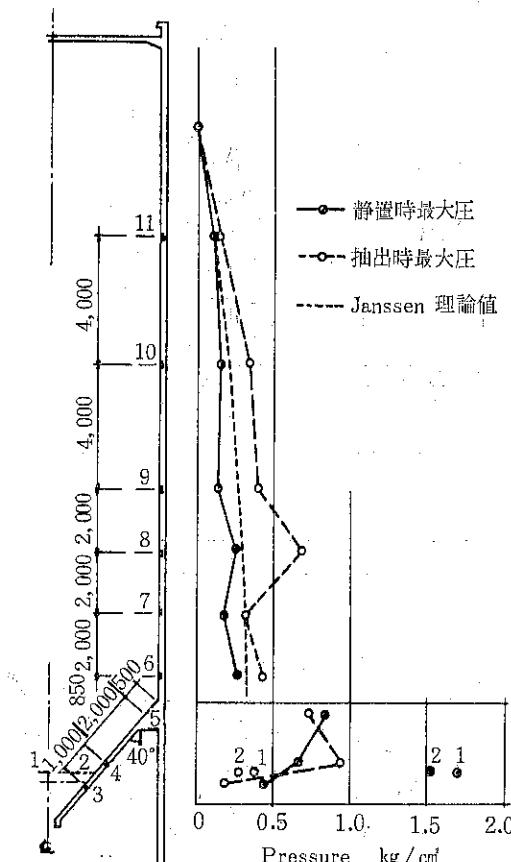


Fig. 4 Silo Section & Gage Setting Positions, & Distribution of Measured Pressures.

圧力計を2ヶ所に設置して測定した。圧力変動は自動平衡型多ペンレコーダにて連続記録した。測定サイロは輸入小麦、嵩比重  $\gamma=0.82$ 、内部摩擦角  $\phi_i=23.0^\circ$  を約 600 ton 貯蔵する。平均投入速度 230 ton/hr にて投入し、平均抽出速度 70 ton/hr にて抽出した測定の抽出開始時の連続記録の一部を Fig. 5 に示す。抽出開始とともにホッパー部に設置されたビーム上の垂直方向の粉体圧は瞬間に一時上昇し、すぐに静圧値の  $1/4$ ～ $1/5$  に減少した。その後引き続きこの減少値の近傍にて圧力の動的脈動を示した。これと対照的な挙動を示したのが筒体部の下部の圧力変動である。静圧値より瞬間に減少の後、急激な圧力上昇を示した。連続抽出時にはこの動的圧力変動が連続的に生じ、最大圧力値はこの変動中に示される。

挿入物であるクロスピーム上の圧力は投入量の増加とともに漸次増大し、ある一定圧力値に達し最大圧力を示す。この静置最大圧力値は Janssen 式による垂直圧力値の約 2 倍の値を示した。この測定結果と同様の結果

が投入速度の大きい大豆サイロにおけるクロスピーム上の粉体圧の測定において得られている<sup>4)</sup>。内径 9.0m、貯槽高さ 32.2m、ホッパー部高さ 4.3m の円形鉄筋コンクリート製サイロにて、嵩比重  $\gamma=0.79$ 、内部摩擦角  $\phi_i=28.30'$  の乾燥大豆約 1300 ton を平均投入速度 200～250ton/hr で投入した場合、クロスピーム上の垂直方向圧力は 2.9～3.1 kg/cm<sup>2</sup> に達し、Janssen 式の垂直方向圧力値の約 3 倍にも達している。このように投入速度が大きいものにおいては、ホッパー部ビームに加わる垂直方向圧力が Janssen 値の 2～3 倍に達する場合のあることが判明した。

挿入物が筒体部内に設置された場合は先の例と違った問題が考えられる。西独の Theimer 博士は、直径 11.5 m、貯槽高さ 75.5m、ホッパー部高さ 6.0m の円形鉄筋コンクリート製独立サイロに、筒体部下部に抽出時の粉体流動調整用のインサートビーム(高さ 5.2m、巾 2.3m)が設置された穀物サイロでの崩壊例を報告している<sup>5)</sup>。嵩比重  $\gamma=0.74$  のメイツ約 4500 ton が貯蔵されていて、

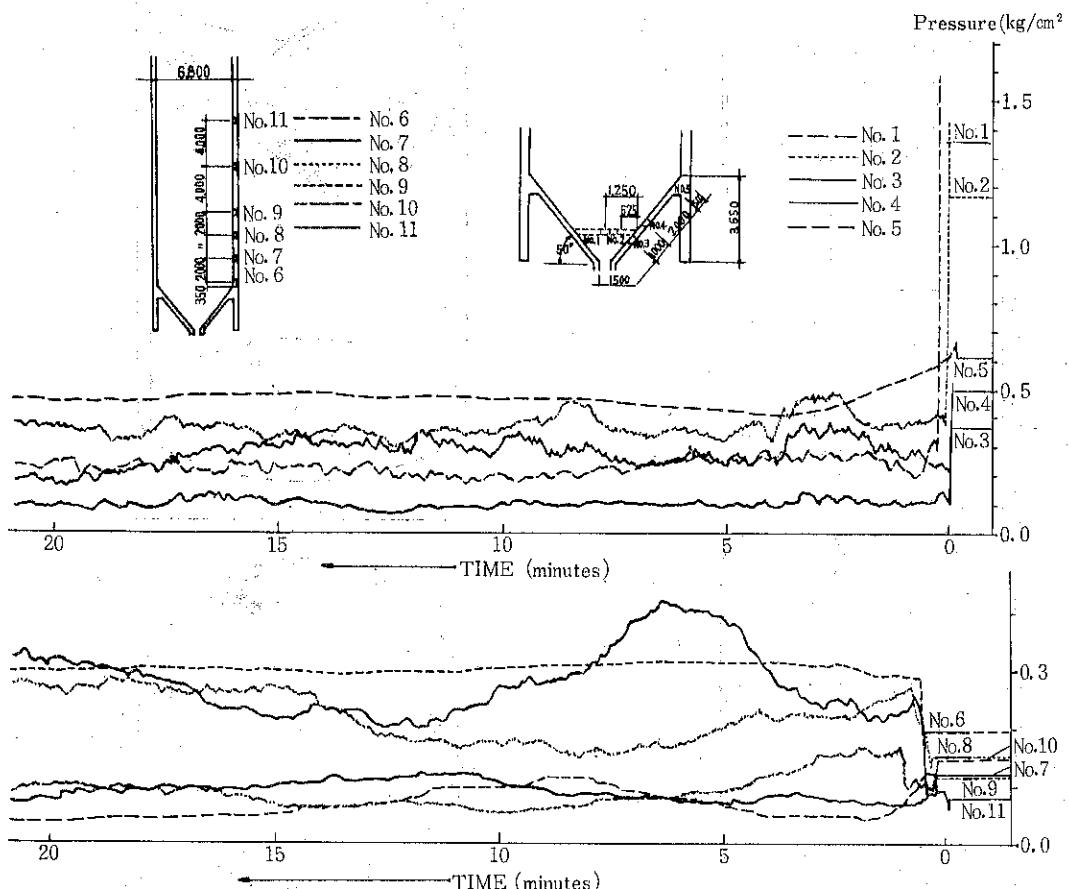


Fig. 5 Records of Dynamic Pressures during Discharge.

抽出開始後に筒体部下 $\frac{1}{3}$ の壁面に8~9mmのきれつが発生し、翌日、貯槽下部が崩壊し、その上部は倒壊した。

本例ではホッパー上部の筒体部に挿入ビームが設置されており、挿入ビームの設置位置が抽出時の貯槽内粉体の流動パターンの形成にかなり影響し、貯槽壁面への動的過圧力の発生が考えられ、これが貯槽崩壊への大きな原因の一つと思われる。

#### 4. ホッパー形状及び抽出口位置による影響

サイロの抽出口位置が偏芯している貯槽例はかなり多い。このように偏芯した抽出口を持つ深槽での抽出時の動的過圧力の発生状況とその圧力分布についてはすでに報告した<sup>3,6)</sup>。しかし、貯槽高がそれ程大きくなない浅槽においては、抽出時の動的過圧力の発生と違って、投入時の粉体の衝撃圧について検討しておく必要がある。投入時ばかりではなく、抽出時に固結しやすいバラ物質の場合、かたまりとなって落下してくる場合があるため、投入物質の粉体物性によっては、投入設備の能力に関係なく衝撃圧について考慮しておく必要がある。

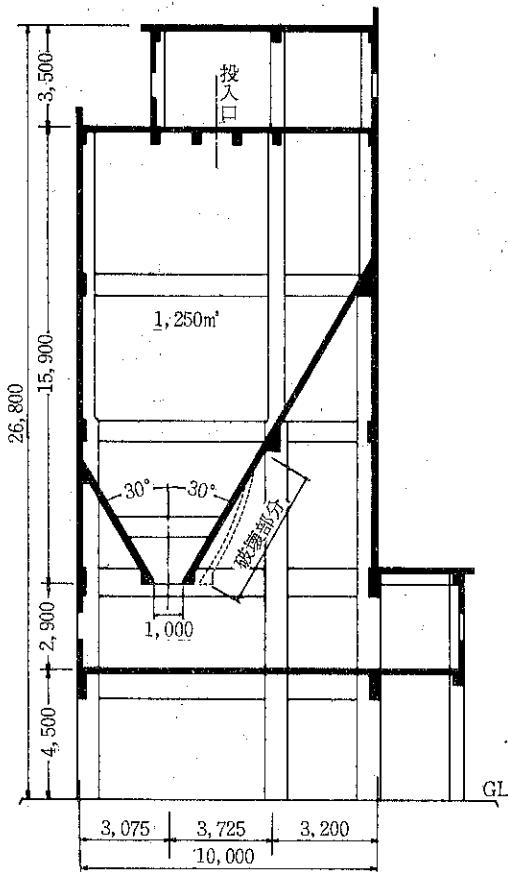


Fig. 6 Section of a Chip Bin

アメリカ、コンクリート学会（A C I）の貯槽設計規準の改訂委員会では、現在新しい設計規準の制定中であるが、投入速度による考慮すべき最小衝撃圧係数値について規定している。投入速度は貯槽の全容量に対する一回あたりの投入容量の比で示してある。

この衝撃圧によるものと思われる貯槽障害の一例について以下に示す。Fig. 6 に示すような貯槽断面を持つ鉄筋コンクリート製のチップビンがある。抽出口位置が偏芯しており、片面のホッパー壁面が大きく、貯槽断面は多少変形している矩形断面で、10.0m×9.0m の平面の投入口下のホッパー部が破壊し、約 500mm 程はらみ出し使用に耐えなくなった。投入物質は水分 50% 程を含む“ナラ”，“ニレ”などの見掛け比重  $\gamma = 0.36$  のチップである。投入速度は約 160 ton/hr で連続または断続的に投入している。また、冬期の厳寒期には抽出口上の屋外側

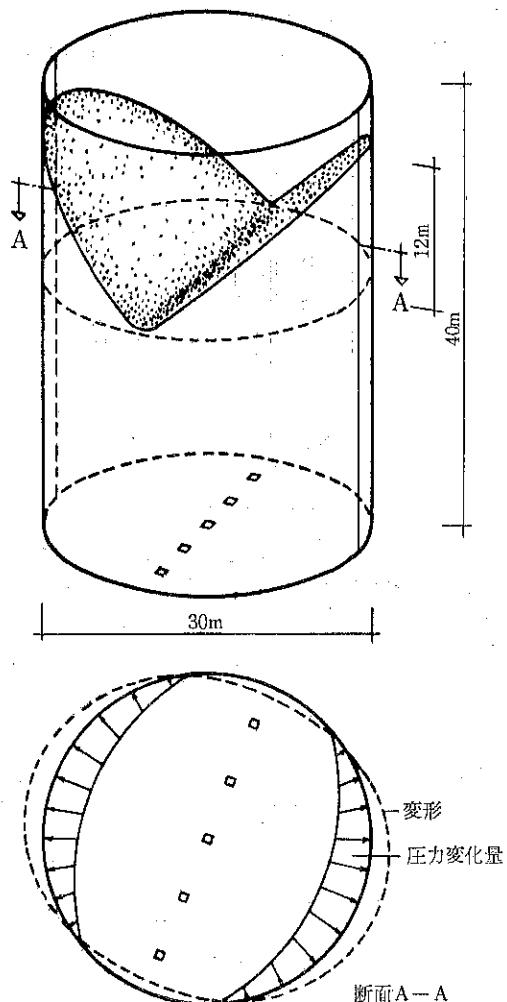


Fig. 7

## 参考文献

- 1) 「サイロ壁体に加わる粉体圧力分布の測定」杉田他、清水建設研究所報第10号、昭和42年10月 pp 79~92
- 2) 「突出部を持つ粉体サイロの圧力測定結果」杉田、高木、田口、粉体工学研究会 昭和48年秋季例会
- 3) 「大型貯槽壁体に加わる非付着性粒体の圧力変動について」杉田、粉体工学研究会誌 Vol. 7, No. 6 (1970), pp 513~529
- 4) 「サイロ壁体に加わる粉体圧の測定 (1300 ton 大豆サイロの粉体圧)」杉田、化工協会第5回秋季大会講演集 (1971) pp 305~306
- 5) 「西ドイツにおける最近の大型穀物サイロの崩壊例」杉田、粉体工学研究会誌 Vol. 10, No. 4 (1973) p 232
- 6) 「貯槽における粉体圧 ——大型貯槽の設計上の問題点——」杉田、化学工学、Vol. 37, No. 8, (1973) pp 757~763
- 7) "Silo für Zementklinker" K. Pieper et, Zement-Kalk-Gips Heft 8, (1970) pp 337~342

### 新製品ひとこと

#### ホソカワ/ミクロン カラコード [COLOCORDER]

粉体の連続プロセスにおける粉体製品の品質管理は、普通サンプリング法が採られていますが、これを連続的にオンラインで監視する一つの方法として“カラコード”が生まれました。

本機は連続的に流れている粉体面にプローブを装着して、プローブ内に光伝導線によって光を導入し、粉体面で反射する光と同じプローブ内にある受光用光伝導線により装置内の光検出部に戻して、その反射率を測定するものです。

この方法は大阪府立大学工学部矢野研究室において、連続混合機の下部から排出される粉体の混合度を検出するために開発されたものですが、これを広く一般に応用する目的で、試作、改良を重ね写真に示すようなコンパクトな装置にまとめたものです。

光源は本体内蔵されており、タンクステンランプの白色光を用い、レンズに集光して、光伝導線によりプローブに送ります。特に光源部は僅かの空気の動きによっても輝度が變りますので、輝度自体による自動

制御回路を内蔵しており、反射率以外の因子の変動を極力抑える工夫が施されています。

また反射光の色質によって3種のフィルターを通してすることができます。

反射光は光伝導線で導かれ、本体内にある Cds によって電圧にかえられ、これを小型のレコーダーにより連続的に記録します。

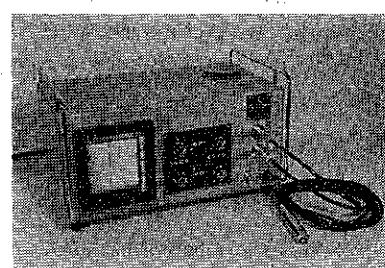
色の異なる2種以上の粉体の混合製品について、その光の反射が各成分比によって異なることを利用して品質をオンラインで監視することができます。

また、白度計としても使用することができます。

#### 〔文献〕

矢野、佐藤、峯下：粉体工学研究会誌、Vol. 9, No. 4 (1972) 244~248

お問い合わせは研究所へ



## 研究報告

# エアスライドにおける粉粒体の流動特性について

## Flow Properties of Particles on Air-Slide

篠原 邦夫\* 齊藤 和男\* 田中 達夫\*  
Kunio Shinohara Kazuo Saito Tatsuo Tanaka

### Abstract

Analogously to homogeneous fluid, flow properties of particles are evaluated as a trial by making use of Air-Slide. Then, the residence time distribution of particles is readily described by one-dimensional velocity profile in the direction of solids stream depth.

As a result of experiments and calculations on the assumption of a Bingham-plastic fluid, it was found that the apparent viscosity of particles decreased and the yield stress and the slip velocity between particles and the porous plate increased with increasing superficial velocity of air. Further, the slip velocity increased with the inclination angle of Air-Slide to the vertical line.

It should also be noted that there is a limit to fluid analogy to particle flow on Air-Slide. Two kinds of particular flow regime emerged according to air velocity. At comparatively high air velocity nearly constant maximum velocity of particles is attained due to channelling effect of air along the vertical sides and the inclined filter, and at certain lower velocity of air the particle velocity becomes small rapidly which is maybe due to partial formation of stagnant region.

These fundamental informations lead to a design basis of Air-Slide in co-operation with the residence-time distribution characteristics of particles.

### 著者 摘録

エアスライドを利用して、流体近似によって粉粒体の流動特性を測定することを試みた。すると、粒子の滞留時間分布は、粉体流の厚さ方向の一次元流速分布から容易に描かれる。

ビンガム流体を仮定して実験と計算を行なった結果、風速の増大とともに粉粒体の見掛けの粘度は減少し、降伏応力と粒子—多孔板間の滑り速度は増大し、さらに傾斜角とともに滑り速度は増大することがわかった。またエアスライドを流下する粉粒体については、流体近似に限界があることを知っておくべきである。風速の比較的高いところでは空気は粒子と側壁あるいは多孔板間を吹き抜けるためほぼ一定の最大流速が表われ、ある値以下の低風速ではおそらく部分的に停滞域が形成され始めるため粒子速度が一段と小さくなる。これらのことから、粒子滞留時間分布特性も考え合せて、エアスライド設計の際の基本的な指針が得られる。

### 1. 緒 言

一般に粉粒体の容器内での流動現象は複雑で、その定量的記述は極めて困難なのが現状である。しかし、もし

\* 北海道大学工学部合成化学工学科

(〒063 札幌市北区北13条西8丁目)

Tel 011-711-2111 (内) 6593

粉粒体の流れが流体として取扱うことができるなら、その記述は比較的容易になるであろう。事実、流動層<sup>1)</sup>や貯槽<sup>2)</sup>などでは流体力学の適用が試みられている。その際、例えは貯蔵・供給用容器では、閉塞限界や流出量、壁面応力などの固体摩擦や凝集に関係する諸特性を説明するのみならず、粉粒体の流体力学的物性値を実際にいかにして定量的に把握するかが基本的な問題になる。そこで、以前から粉粒体の見掛けの粘度や降伏応力などを流体物性と類似の方法で、例えは回転粘度計<sup>3)</sup>や回転円筒<sup>4)</sup>、傾斜槽<sup>5,6)</sup>などで測定されている。しかしながら、前述のように粉粒体の容器内での複雑な流動機構は解明されておらず、特に粉粒体の場合には流体のような等方性を仮定して物性の測定を行なうことは大いに疑問がある。かといって流動機構の解析に流体物性は不可欠であるから、機構が解明されないかぎり物性の測定はできないというわけにもいかない。したがって、粉粒体の流体としての物性測定は単独ではありえないが、できるだけ単純な流動機構となるよう測定装置や方法を適当に選定して、不完全ながらも行なわざるをえない。

機構の単純さと測定値の物理的意味（おもに固体粒子の挙動から考えて、採用した測定装置や方法のための新しい特殊な流動現象とならず目的の流体物性に近いかどうかという）から判断して、上記の測定器の中では、工業的にもシートとして利用されている傾斜槽などは比較的適切かと思われる。しかし、傾斜槽は流れの矩形断面が上辺（表面）を除いて三辺を壁面に囲まれているため二次元流れとなり、底面両端での滑りやその他の特殊性を考慮しなければならず<sup>6)</sup>、速度分布や物性値算出も複雑になって流体物性の測定法としては必ずしも健全で簡単とはいえない。

そこで、本論文では、通気による粉粒体の輸送装置として広く用いられているエアスライドに着目し、粉粒体の流体近似による物性測定の可能性と速度分布からの粒子滞留時間分布の算出について若干の考察を述べ、あわせてエアスライドの設計指針とすることを試みた。

## 2. 基礎的考察

エアスライド上の粉粒体の流動特性<sup>7)</sup>や軸方向粒子混合<sup>8)</sup>については、これまで二、三の実験や考察が報告されており、森ら<sup>9)</sup>の結果から次のことが推論される。通常エアスライドは、最小流動化風速付近の低風速で使用され、多孔板から吹き上げる空気によって粉体をわずかに上方へ持ち上げて粉体層と多孔板間の摩擦を激減するため、傾斜角（水平方向に対する）がほんの数度で重力によって粒子は流体のように流下する。したがって、多孔板からの空気は粉体層を気泡を伴ない激しく流動化

することなく多孔板上面や側壁面に沿って吹き抜ける。その結果、粒子は側壁面では滑りが支配的で層の幅方向にはほとんど速度分布がなく<sup>9)</sup>、多孔板上では滑りを伴ないながら層の厚さ方向にわずかに速度分布をもつことによって粒子の滞留時間分布を生じ見掛け混合が起きているように考えられる。

そこでエアスライドでは、粉体層の厚さ方向のみの速度分布から、流体近似により粉粒体の見掛けの粘度や降伏応力、滑り速度などの物性値を、流量や傾斜角、風速などの操作条件の関数として、次のようにして実験結果から容易に算出することができる。速度分布がわかると粒子滞留時間分布も容易に描くことができる。

### 2.1 粉粒体流の速度分布

次のことを仮定して粉体層の厚さ方向の速度分布を記述する。

- i) 通気下における粉粒体の流れは、重力のみによる無限平面の定常一次元流れと見なし、近似的に一定層高のビンガム塑性流体として扱うことができる。
- ii) 多孔板上での粉粒体の滑り速度は、層厚によらず傾斜角と風速によって変化する。
- iii) 粉体層内では滑りが起らず、通気状態（一定風速）に対応して一義的に一定の見掛け粘度と降伏応力をもつ一樣流体と見なせる。

以上の仮定をもとに、まず流体の運動量収支から剪断応力  $\tau$  の分布は(1)式で示される<sup>10)</sup>。

$$\tau = \rho \cdot g \cdot x \cdot \cos \beta \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで  $\rho$  は粉体層のカサ密度で非圧縮性流体として流速に無関係に一定とし、 $\beta$  よび  $x$  は、Fig. 1 に示すようにそれぞれエアスライドの傾斜角と粉体層表面から多孔板への層の厚さ方向での距離である。

ビンガム流体では、粘度  $\mu$  は速度勾配  $(dv/dx)$  と降伏応力  $\tau_0$  によって次式で定義されるから

$$\tau = -\mu (dv/dx) + \tau_0 \quad \dots \dots \dots (2)$$

(1)式と(2)式を等置して、粉粒体流と多孔板との間  $x = \delta$

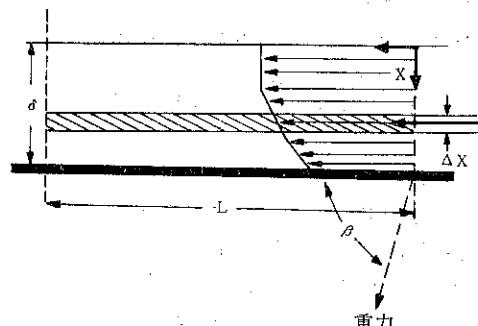


Fig. 1 Velocity profile of particles on Air-Slide

で滑り速度を  $v_s$  として積分すると、速度  $v$  は一般に  $x_0 \leq x \leq \delta$  の変形領域では

$$v = \frac{\rho g \cos \beta}{2\mu} \cdot (\delta^2 - x^2) - \frac{\tau_0}{\mu} (\delta - x) + v_s \quad \dots(3)$$

$0 \leq x \leq x_0$  の領域では、粉体層は変形せず  $x = x_0$  のところと同じ最大速度  $v_m$  で流れるから、(3)式に  $x = x_0$  を代入して

$$v = v_m = \frac{\rho g \cos \beta}{2\mu} (\delta^2 - x_0^2) - \frac{\tau_0}{\mu} (\delta - x_0) + v_s \quad \dots(4)$$

ここで、剪断応力（または運動量流束） $\tau$  は  $x = x_0$  で連続だから、(1)式に  $\tau = \tau_0$ ,  $x = x_0$  を代入して書きなおすと  $x_0$  は(5)式によって与えられる。

$$x_0 = \frac{\tau_0}{\rho g \cos \beta} \quad \dots(5)$$

故に、平均速度  $v_{av}$  は、(3)式と(4)式を厚さ方向に積分して

$$\begin{aligned} v_{av} &= \frac{1}{\delta} \left( \int_0^{x_0} v_m dx + \int_{x_0}^{\delta} v dx \right) \\ &= \frac{1}{\delta} \left\{ \frac{\rho g \cos \beta}{3\mu} \cdot \delta^3 - \frac{\tau_0}{2\mu} \cdot \delta^2 + v_s \delta + \frac{\tau_0^3}{6\mu(\rho g \cos \beta)^2} \right\} \end{aligned} \quad \dots(6)$$

質量流量  $F$  は、(6)式を使って

$$\begin{aligned} F &= W \cdot \delta \cdot v_{av} \cdot \rho \\ &= W \rho \left\{ \frac{\rho g \cos \beta}{3\mu} \cdot \delta^3 - \frac{\tau_0}{2\mu} \cdot \delta^2 + v_s \delta + \frac{\tau_0^3}{6\mu(\rho g \cos \beta)^2} \right\} \end{aligned} \quad \dots(7)$$

したがって、粉粒体の流体物性を算出するには、(7)式では  $F$  や  $\beta$ などの操作条件を変化させて  $\delta$  を測定すればよい。しかし実際には層厚  $\delta$  はかなり薄いため正確に測定することは難しい。そこで後述のように、粉体層表面で最大流速  $v_m$  を測定するのは比較的容易であるから、(4)式を(7)式に代入して  $\delta$  を消去すると、

$$\frac{F}{W} = \frac{v_m \tau_0}{g \cos \beta} + \frac{2v_m + v_s}{3} \sqrt{\frac{2\rho \mu (v_m - v_s)}{g \cos \beta}} \quad \dots(8)$$

見掛け粘度  $\mu$  について(8)式を書きなおすと、

$$\mu = \frac{4.5 \times g \cos \beta}{\rho (v_m - v_s) \cdot (2v_m + v_s)^2} \cdot \left( \frac{F}{W} - \frac{v_m \tau_0}{g \cos \beta} \right)^2 \quad \dots(9)$$

仮定の ii) と iii) によって、風速  $u_a$  と傾斜角  $\beta$  を一定にして流量  $F$  を少なくとも三種類変化させて最大流速  $v_m$  を測定すると、流体物性  $\mu$ ,  $\tau_0$ ,  $v_s$  は、定数のはずだから(8)式または(9)式を連立して解くことにより求めることができる。また、 $\beta$  によって  $\mu$ ,  $\tau_0$  は変化しないから;  $v_s$  は  $\beta$  にも対応して  $v_m$  の測定により同様にして求められる。

## 2.2 粒子の滞留時間分布

エアスライドにおいて、一般に流れ長さ  $L$  の区間におけるある時間  $t$  の粉粒体流の過渡応答  $f(t)$  は次式で定義され、ピングム流体では

$$\begin{aligned} f(t) &= \frac{1}{W \delta v_{av}} \int_0^x W v dx \\ &= \frac{\rho W}{F} (v_m x_0 + \int_{x_0}^x v dx) \end{aligned} \quad \dots(10)$$

(3)式を(10)式に代入して積分すると

$$f(t) = \frac{\rho W}{F} \left\{ v_m x_0 + \frac{A}{3} (x_0^3 - x^3) + \frac{B}{2} (x^2 - x_0^2) + (A\delta^2 - B\delta + v_s) \cdot (x - x_0) \right\} \quad \dots(11)$$

ただし

$$A = \frac{\rho g \cos \beta}{2\mu}, \quad B = \frac{\tau_0}{\mu} \quad \dots(12)$$

ここで、層内  $x$  の位置の粒子は滞留時間  $t$  をもっているのだから、次式で定義される無次元化時間  $\phi$  に対応して、 $x$  は(12)式で示される。

$$\phi = \frac{t}{t_{av}} = \frac{L/v}{L/v_{av}} = \frac{v_{av}}{v} \quad \dots(13)$$

ただし、 $t_{av}$  は粒子の平均滞留時間である。(13)式を(3)式に代入して  $v$  を消去し、 $x$  を求めると

$$x = \frac{B + \sqrt{B^2 + 4A(A\delta^2 - B\delta + v_s - v_{av}/\phi)}}{2A} \quad \dots(14)$$

したがって、(14)式で  $\phi$  に対応して  $x$  を求め(13)式に代入すると、過渡応答曲線  $f(\phi)$  が描かれる。滞留時間分布関数  $E(\phi)$  は、次式で定義されるから

$$E(\phi) = \frac{df(\phi)}{d\phi} \quad \dots(15)$$

(13)式を(3)式に代入して、 $x$  で微分すると

$$-\frac{v_{av}}{\phi^2} \cdot \frac{d\phi}{dx} = -2Ax + B \quad \dots(16)$$

(11)式を  $\phi$  で微分し、(16), (3), (13), (14)式を順に(16)式に代入すると、

$$\begin{aligned} E(\phi) &= \frac{\rho W}{F} \left( \frac{-Ax^2 + Bx + A\delta^2 - B\delta + v_s - v_{av}/\phi}{2Ax - B} \right) \\ &= \frac{\rho W}{F} \cdot \frac{v_{av}^2}{\phi^3} \cdot \frac{1}{\sqrt{B^2 + 4A(A\delta^2 - B\delta + v_s - v_{av}/\phi)}} \end{aligned} \quad \dots(17)$$

故に、2.1 で流体物性が測定されていると、(7)式から層厚  $\delta$  と平均速度  $v_{av}$  が操作条件について求められ、(17)式に代入すると無次元化時間  $\phi$  に対応して粒子の滞留時間分布を描くことができる。ただし、(17)式は  $(v_{av}/v_m) \leq \phi \leq (v_{av}/v_s)$  で定義され、 $0 \leq \phi \leq (v_{av}/v_m)$  では着目粒子が  $L$  の長さのエアスライドを出てこないので  $E(\phi) = 0$  で、 $(v_{av}/v_s) \leq \phi$  ではすべての着目粒子が流出するので  $E(\phi) = 0$  となる。

### 3. 実験

#### 3.1 装置

実験装置は、Fig. 2 に示すように、大まかにはエアスライド本体に、粒子と空気の供給部分から構成されている。エアスライドは、長さ 120 cm、幅 4.2 cm のセラミックフィルタを通気板として使用し、粒子流れの両側面は高さ 10 cm 程の塩化ビニル板でできている。下部の空気室入口には電磁弁をつけて、フットスイッチによって通気を瞬時にとめることができるようとした。トレーサー粒子の投入部は、ホッパからの粒子の供給時の乱れがトレーサー粒子の流れに影響を与えないように、供給口から 15 cm 下流に設けた。

#### 3.2 試料

粉体試料としては、東芝ガラスピーブ（粒子密度 2.52 g/cm<sup>3</sup>、粒子径 60~80 mesh）を使用し、トレーサー粒子は同一の粒子を黒インクでうすく着色したものを使い、全粒子は一回の使用の後水洗いし乾燥して再び用いた。

#### 3.3 方 法

エアスライドに、コンプレッサから空気を送り、粉体試料をホッパからオリフィスをとうして一定流量で供給して、定常流れになってから風量をロータメータで読みとる。次に、半円筒容器を回転し、流れに直角にトレーサー粒子を少量投入して、同時にストップウォッチを押す。トレーサー粒子が流出口付近になった時、ストップウォッチとともにフットスイッチによって通気を止め、流下長さを測定することにより最大流速  $v_m$  を求めた。同一実験を七回くり返し行ない、その平均値をとった。

#### 3.4 結果

同様の測定方法によって、まずエアスライドの傾斜角  $\beta$  を一定とし、粒子流量  $F$  を四種類変化させて、各流量

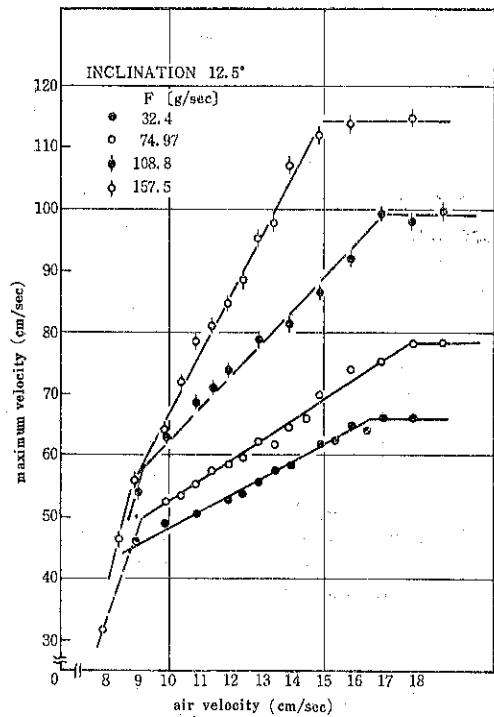


Fig. 3 Effect of flow rate on variation of maximum velocity of particles with air velocity

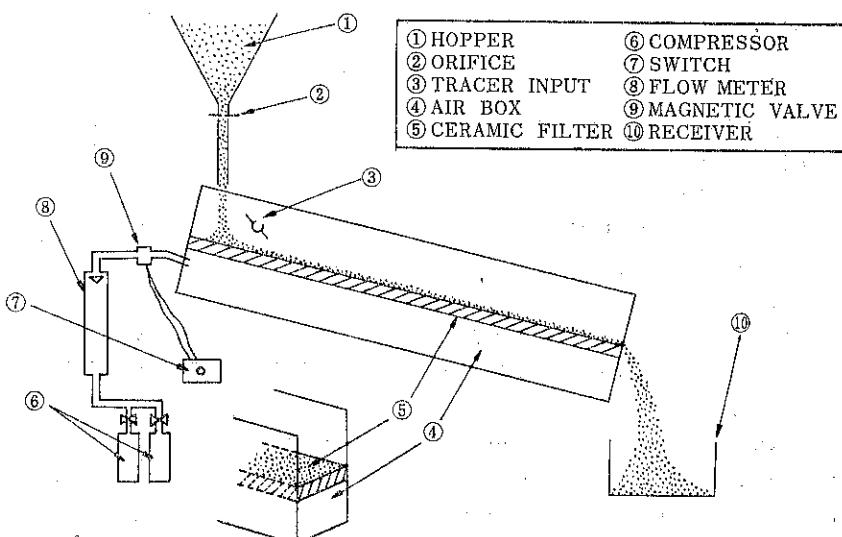


Fig. 2 Experimental equipment

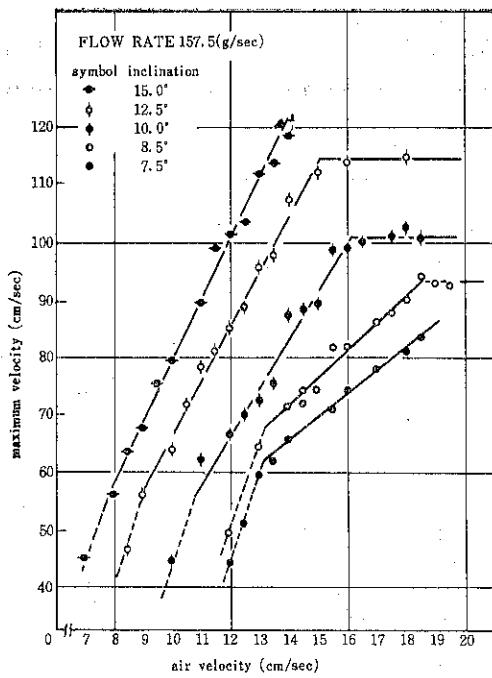


Fig. 4 Effect of inclination angle on variation of maximum velocity of particles with air velocity

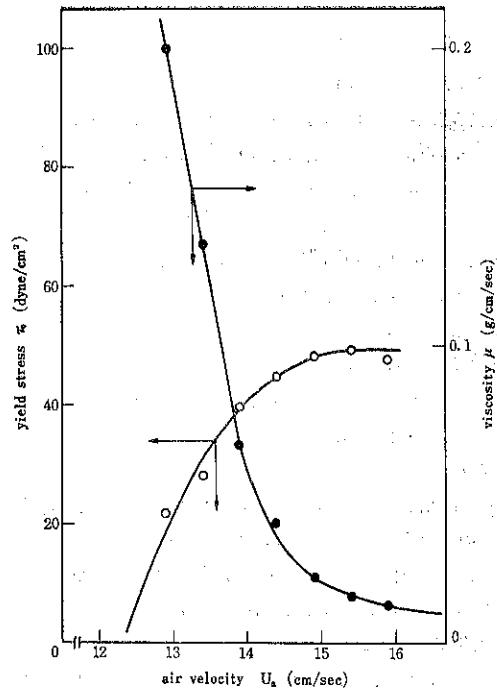


Fig. 5 Variation of viscosity and yield stress of particles with air velocity

について最大流速  $v_m$  と風速  $u_a$  の関係を求めた。次に、粒子供給量  $F$  を一定として、傾斜角  $\beta$  を五種類変えて、各傾斜角について  $v_m$  と  $u_a$  の関係を測定した。Fig. 3 と Fig. 4 は、それぞれの測定結果を示している。図中で破線は粒子が定常流れをしないで停滯はじめた部分を示している。

#### 4. 計算結果と考察

Figs. 3 と 4 で、傾斜角一定の時の流量 75 g/sec 以上の三本の測定結果から、(8)式または(9)式を連立して解いて見掛けの粘度、降伏応力、滑り速度を風速 12.9 cm/sec 以上で算出した結果が Fig. 5 と Fig. 6 である。これらの結果が示すように、風速が増加すると、粘度  $\mu$  は減少し、降伏応力  $\tau_0$  は増大する。また滑り速度  $v_s$  は、風速および傾斜角とともに増加している。Fig. 7, 8, 9 に示すように、これらを log-log プロットしてそれぞれ次の実験式を得た。

$$\mu = 3.15 \times 10^{15} \times u_a^{-14.6} \quad \dots \dots (18)$$

$$\tau_0 = 26.3 \times (u_a - 12.3)^{0.781} \quad \dots \dots (19)$$

$$v_s = (26.7 - 81.5 \cos \beta) u_a + (1800 \cos \beta - 457) \dots (20)$$

これらの傾向は、前述の基礎的考察から次のように説明できるであろう。空気は、粉体層と多孔板あるいは側

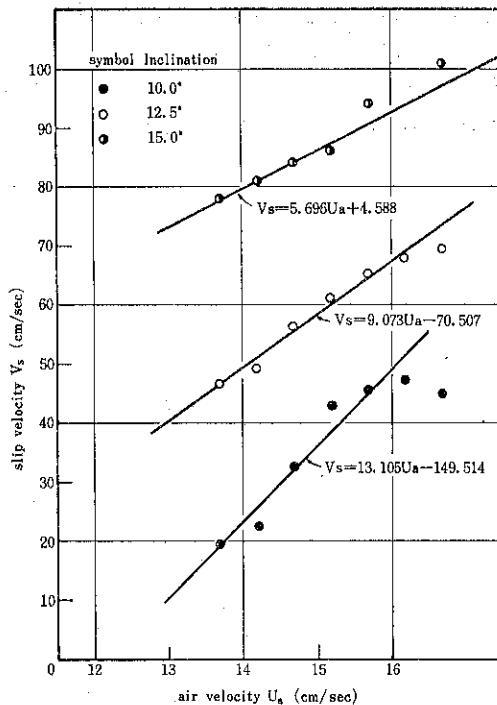


Fig. 6 Variation of slip velocity of particles with air velocity

壁面との間隙を吹き抜け上層部は流動化していないので風速の増大によって多孔板にはほぼ接する薄層の粒子はより運動が激しくなり、見掛けの粘度や滑り速度は増大するが、吹き抜けの効果がますます顕著になって上層部はあたかも固定層に近づき（一体となって多孔板上を滑り落ちる）降伏応力が見掛け上増加する（不規則領域が増大していることに対応する）。本研究を開始するに当つ

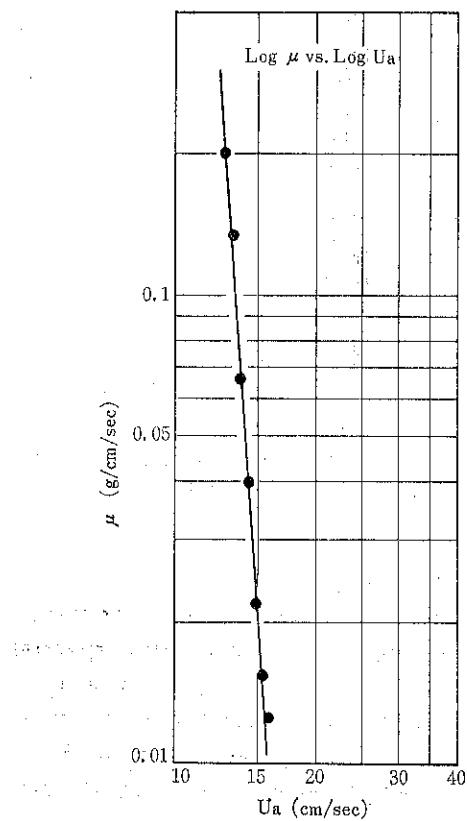


Fig. 7 Log  $\mu$  vs. Log  $U_a$

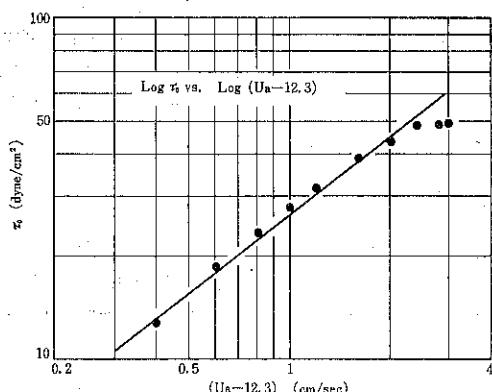


Fig. 8 Log  $\tau_0$  vs. Log  $(U_a - 12.3)$

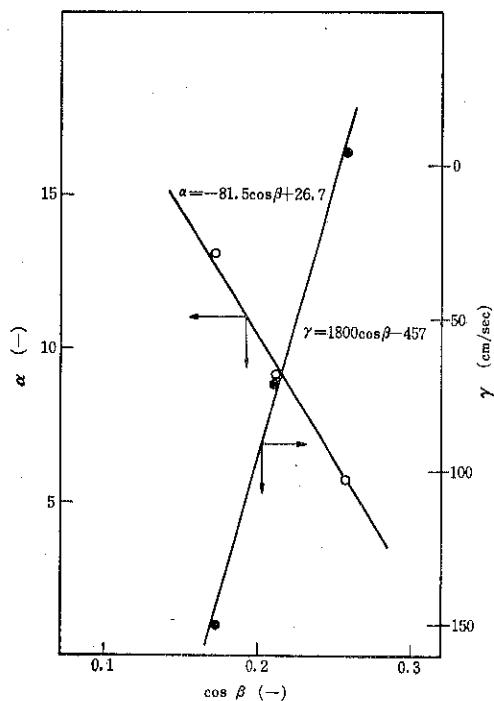


Fig. 9  $\alpha$  and  $\gamma$  in Eq. (20) vs.  $\cos \beta$

て、概念的には粉体層が通気によって一様に流動化され、風速が一様流体の温度に対応することを期待していた。その際には、粉体層内での通気抵抗の効果なども(1)式で考慮する必要もあるろうが、以下に述べるごとく、エアスライド上の粉体の流れは、予期に反してかなり特徴的である。Fig. 3 と Fig. 4 では、いざれもある風速以上では一定最大流速になり、ある風速以下では除々に堆積層が形成されて流速が一段と落ちる。

これらは、装置の製作上の不備で実際にはエアスライド幅方向にも速度分布があったことや、風速が大きくなると実際には Fig. 5 や Fig. 6 に示すように流体物性値はほぼ一定値になっているが、実験式では log-log プロットのため直線的に変化するなどの理由も考えられる。しかし、数値的な多少の誤差はともかくとしても、エアスライド上の粉体の流れは、風速によって大きく三部分に分けられ、流体近似のできる一様定常流れを呈する風速の範囲が限られていることがわかった。したがって、エアスライドは、粉粒体の流体物性測定器としては広範囲の風速で測定できないので必ずしも適当とは言えないが、風速の十分大きい時や小さい時には、エアスライドと粉粒体の両方の特性による吹き抜けや停滯層が形成されていると考えられるから、一般的にも、粉粒体の流れの流体近似にはかなり限界があることを暗示して

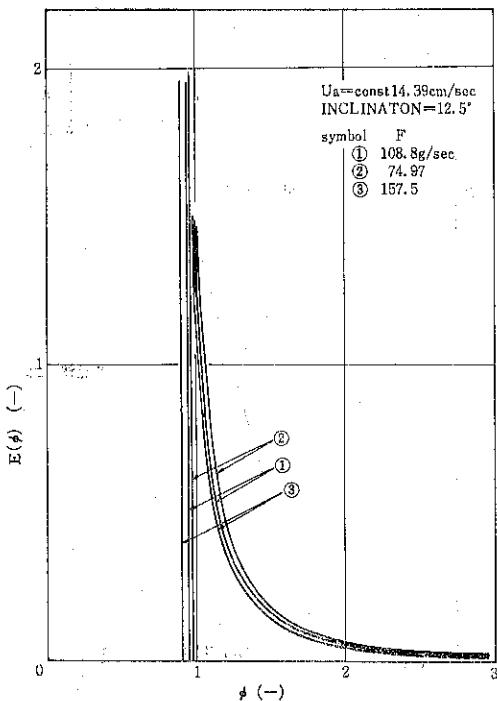


Fig. 10 Residence-Time Distribution Function for Non-Newtonian Fluid

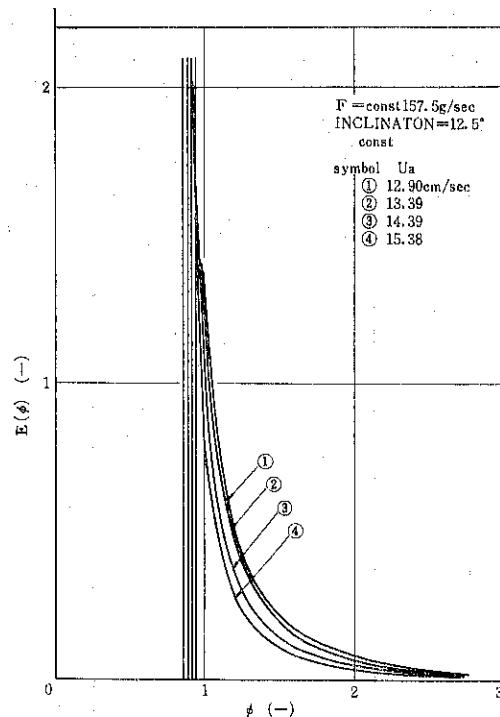


Fig. 12 Residence-Time Distribution Function for Non-Newtonian Fluid

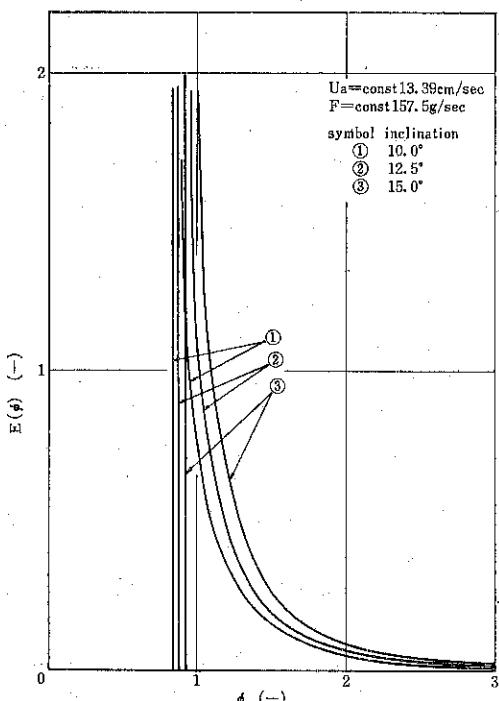


Fig. 11 Residence-Time Distribution Function for Non-Newtonian Fluid

いるのではなかろうか。

さて、このようにして粉粒体の見掛けの流体物性値が測定されると、仰式によって容易に粒子滞留時間分布曲線を描くことができる。Fig. 10, 11, 12 はそれぞれ流量、傾斜角、風速を変化させた時の実測値にもとづく分布曲線を示している。流量が大きい程、傾斜角 (Fig. 1 に示すように鉛直方向との角度) が小さい程、風速が大きい程、 $E(\phi)$  曲線は左にずれて、 $0 \leq x \leq x_0$  の不変形部分の粒子がより早く流出することがわかる。Fig. 13 には、滑りがない ( $v_s = 0$ ) ニュートン流体の場合の  $E(\phi)$  曲線を比較のために示してある。これらの滞留時間分布曲線はエアスライドを輸送装置としてのみならず、種々の接触操作を行なう際にも、装置設計のための不可欠な粉粒体の流動特性であることは言うまでもない。

## 5. 結 言

以上、粉粒体流れの流体力学的取り扱いの際の基礎として、エアスライドによって流体物性を測定し、粒子の速度分布から滞留時間分布特性を求め、装置設計の指針を与えた。

粉粒体は、本来個々の固体粒子からなる不連続体であり、粉体圧分布の測定結果からもわかるように応力につ

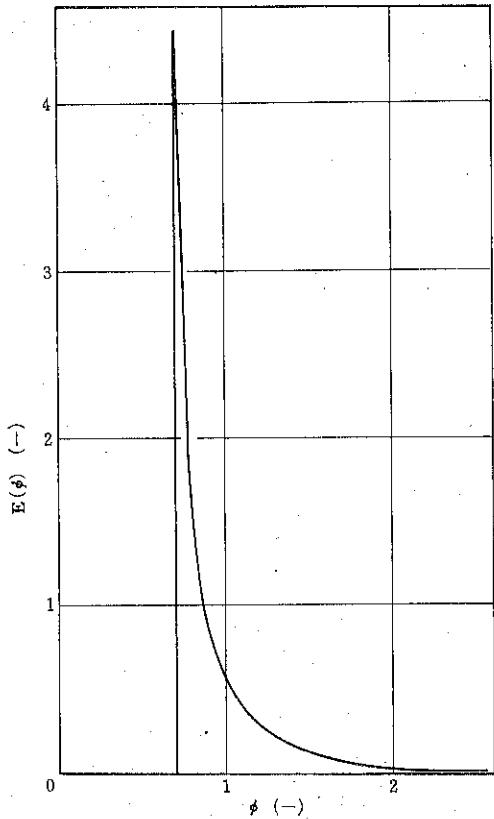


Fig. 13 Residence-Time Distribution Function for Newtonian Fluid

いても非等方性であるから<sup>11)</sup>、このような流体力学的取扱いがどこまで有効でどれほど物理的意味があるかは依然として疑問であると言わざるをえない。しかし緒言でも述べたように、見掛け上でも連続体的取扱いができるば、種々の粉粒体装置設計に寄与するところは大きいと思う。したがって今後は容器内の粉粒体の流動機構の解析はもとより、粉粒体の諸物性、例えば粒子間摩擦力や凝集力などを流体力学と結びつけてゆく微視的な基礎研究とともに、より信頼でき広範囲の粉粒体や操作条件に適用できる粉粒体のための流体力学測定器の開発が望まれる。

一方、エアスライドは、通常粉粒体の降伏応力が結構大きく不変形領域が大きいため粒子間の摩損は少ないと考えられ、滞留時間分布の形からもほぼピストン流れに近いから、低風速、高濃度輸送装置として実際上有用であることがわかる。したがって装置工学的には、一定流速を示す高風速区間や停滞層が形成され始めていると思われる低風速区間の解析が、空気の吹き抜け現象に関連して重要である。また、実際には側壁面の材料は必ずしも平滑で滑りが支配的であるとは限らないから、二次元での解析が必要になる。しかし、これはあくまでも信頼しうる流体力学と系の解析（圧力伝播特性などを含めて）がなされた時に始めて物理的にも実際的にも意味があると言えるであろう。

記号

A	: (12式で定義される係数	$[cm^{-1} \cdot sec^{-1}]$
B	: (12式で定義される係数	$[sec^{-1}]$
E( $\phi$ )	: 粒子滞留時間分布関数	[—]
F	: 粒子供給流量	$[g/sec]$
f(t)	: 粉粒体流の過渡応答に対応する粒子積算滞留時間分布関数	[—]
g	: 重力加速度	$[cm/sec^2]$
L	: エアスライド上での一様定常流の流れ長さ	$[cm]$
t	: 着目粒子が長さ Lだけ流れるに要する時間	$[sec]$
$t_{av}$	: 粒子の平均滞留時間	$[sec]$
$u_a$	: 多孔板を通過する空気の見掛けの速度	$[cm/sec]$
v	: 流れ方向の粒子線速度	$[cm/sec]$
$v_{av}$	: 流れ断面における粒子平均速度	$[cm/sec]$
$v_m$	: 流れ断面における粒子最大速度	$[cm/sec]$
$v_s$	: 粒子と多孔板間の滑り速度	$[cm/sec]$
W	: エアスライドの幅(側壁間距離)	$[cm]$
x	: 粒子層流れ表面から多孔板方向への距離	$[cm]$
$x_0$	: 降伏応力に対応する粒子層厚さ	$[cm]$
$\alpha$	: (20式における $v_s$ の $u_a$ に対する勾配	[—]
$\beta$	: 鉛直方向に対するエアスライドの傾斜角	[°]
$r$	: (20式における $v_s$ の切片	$[cm/sec]$
$\delta$	: 粉粒体の流れ厚さ	$[cm]$
$\mu$	: 粉粒体流の見掛けの粘度	$[g/cm/sec]$
$\rho$	: 粉粒体のカサ密度	$[g/cm^3]$
$\tau$	: 粉粒体の剪断応力(運動量流束)	$[dyne/cm^2]$
$\tau_0$	: 粉粒体の降伏応力	$[dyne/cm^2]$
$\phi$	: 粒子の無次元化滞留時間 ( $t/t_{av}$ )	[—]

#### 引用文献

- 1) たとえば、J. F. Davidson and D. Harrison; "Fluidization", Academic Press Inc. (London) (1971)
- 2) J. F. Davidson and R. M. Nedderman: Trans. Instn Chem. Engrs., 51, 29 (1973)
- 3) H. Kramers: Chem. Eng. Sci., 1, 35 (1951)
- 4) 栗原、久野:応用物理, 34, 727 (1965)

- 5) G. Astarita, G. Marrucci and G. Palumbo: Ind. Eng. Chem. Fundam., 3, 333 (1964)
- 6) A. Suzuki and T. Tanaka: Ind. Eng. Chem. Fundam., 10, 84 (1971)
- 7) W. Siemes and L. Hellmer: Chem. Eng. Sci., 17, 555 (1962)
- 8) 新井, 架谷, 杉山: 化学工学, 35, 565 (1971)
- 9) 森, 青木, 大屋, 石川: 化学工学, 19, 16 (1955)
- 10) たとえば R.B. Bird, W. E. Stewart and E. N. Lightfoot: "Transport Phenomena", John Wiley & Sons Inc. (U.S.A.) (1960)
- 11) 正路, 篠原, 田中: 化学工学協会第一回秋季大会講演要旨集, p. 143 (1967)

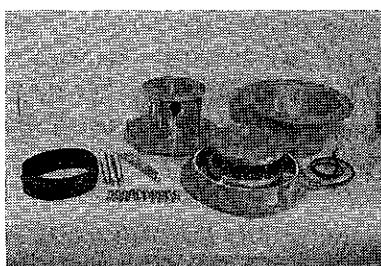
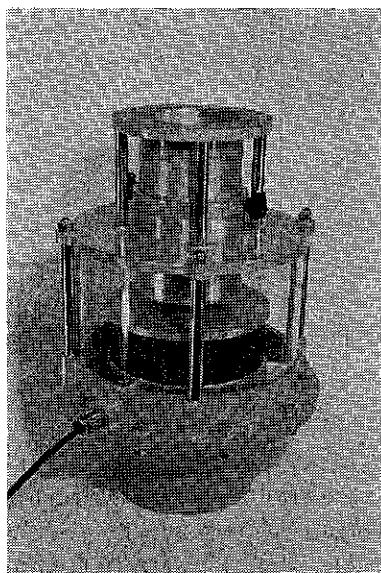
### 豆ニュース

#### 新型“フロートロン”

##### —その改良のポイント

ユニークなスタイルで知られている粉粒体供給装置“フロートロン”的新型が発表された。これは長年の経験からユーザーの立場に立って、更に使い易さを主眼にしたもので、その改良点は次の通り

- 1) 内筒が上下可動になった。
- 2) 支柱を透明胴の外に出して、粉の排出をスムーズにした。
- 3) マグネット台を支えている3本のブリッジの断面を三角形とし、この上の粉の堆積を防いだ。
- 4) 3本のブリッジを利用して、外部からマグネット室へ、電気コードとページ用エアーの導入および排出を行うようにしたので、安全対策が容易になった。
- 5) 振動円板の直径が、ゴムカバーの外径よりも大きくなつたので、マグネット室への粉の侵入が防げた。
- 6) マグネットのクリアランスの調節が簡単にできるようになった。
- 7) 粉の排出部シートは、本体から簡単に外せるので、粉の性質、用途に応じて、シートの形状、材質が自由に選べるようにした。



## 高濃度空気輸送装置の試作

A Proto-Type Apparatus of the High Concentration  
Pnewmatic Conveyor used the "Powder Valve"

浦山 清\* 北村 隆\*  
Kiyoshi Urayama Takashi Kitamura

### 1. はしがき

粉粒体の輸送装置には種々の方式があるが、そのなかで空気輸送は、他の機械的輸送装置に比べて、設備が簡単で輸送経路が自由に選択できる等の長所をもち、各種の工場で古くから広く使用されてきた。しかし、空気輸送技術そのものは直接生産にタッチしない単位操作であるためか、他の単位操作に比較して、今まで軽視されてきた感がある。従来、一般に広く使用されていたファンやプロワフを用いた圧送式空気輸送装置は、質量比（粉体重量／空気重量）が1～5程度の低濃度輸送で、高濃度でも高々15～20程度であった。また、真空式空気輸送装置でも同程度である。また、コンプレッサーを用いたプロータンク方式でも、質量比が40～50程度のものであった。

ところが、最近になって輸送部門が重視されはじめ、能率の向上、取扱い上の改善等改良された製品が次々と生まれ、現在市販されているものの中にも、質量比が100～200以上の、本当の意味での高濃度輸送装置が二、三発表されている。

本輸送装置も後の分類にはいるもので、質量比が200以上あり、粉体が水道水の如く流れ出て、しかも従来粉体の停止始動に用いられていた機械的な弁やダンパ等の代わりに、"パウダーバルブ"と名付けた特殊な装置を用いた、ユニークなタイプの圧送式高濃度空気輸送装置で、実用化の目途がついたので、ここに報告する。

### 2. 小型短距離供給機

当研究所で製作した輸送装置は、武田薬品工業株によ

\*細川粉体工学研究所

(〒573 枚方市摺提田近1の9)

Tel 0720-57-3721



Photo 1. 小型短距離供給機

り開発された小型の短距離供給機を、高濃度空気輸送装置として広く適用する目的で、スケールアップしたものである。武田薬品において試作された装置は、Photo. 1に示すもので、現在薬品の供給機として実用に供されている。

この小型短距離供給機の仕様は、次の通りである。

タンク内径	192mmφ
" 高さ	800mm
タンク出口内径	20mmφ
輸送管内径	31mmφ
ロードセル	4 kgフルスケール
弁機構	"パウダーバルブ"

この小型装置で、使用可能な粉体の条件を探す目的で、予備実験を行った。その結果、粉体の流動性、噴流性、粒度等が"パウダーバルブ"の適用条件の決定に重要な因子となることが分った。即ち、当社のパウダーテスターによる流動性および噴流性の評価によると、

Carr の流動性指数<sup>1)</sup>が、60~69 以下の粉体が使用に適しているという結果が出た。次に粒度に関しては、見掛け比重が小さくても粒度が粗いと吸込み側で流動が起らず、吸込みが困難である。従って、この装置はペレットなどの輸送よりもむしろ、流動性の低い微粉に適しているということができる。

### 3. “パウダーパルプ” の基礎実験

上記「小型短距離供給機」による予備実験を基に、われわれは更に一般的に使用できる「高濃度輸送装置」を試作した。

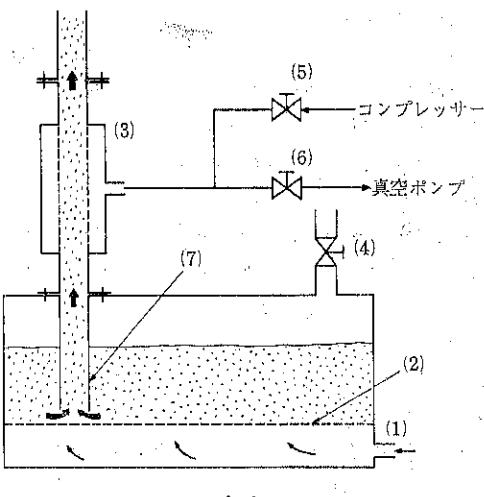
これの輸送テストを行う前に“パウダーパルプ”自体の特性を把握しておく必要があり、Fig. 2 に示す様な実験装置を造った。先ず最初に、“パウダーパルプ”という耳新しい名前の装置の作動原理についてこじ説明しよう。

#### 3.1 “パウダーパルプ” の作動原理

その構造は Fig. 1 に示すようなシンプルなもので、輸送管中を流動している粉体を停止させる時は、図中(4)のパイプから多孔質円筒(2)を通して air を吸引すると、粉体は次々にアーチを形成して、管内で閉塞して停止する。この粉体の閉塞した状態を“プラグ”と呼ぶ。この“プラグ”は、のちに述べる様に、数 kg/cm<sup>2</sup> の圧力に耐えることが出来る。次に始動させる場合には、多孔質円筒(2)を通して air を吹込み、アーチを破壊することにより“プラグ”は開放される。この様に、輸送管内でアーチを形成したり破壊したりすることによって、機械的な弁あるいはダンパ等の役割を果たすことができ、可動部分を持たない粉体用のバルブとしてユニークな構造のものである。

3.2 基礎実験装置と実験方法

“パウダーパルプ”について、Fig. 2-(a) の実験装置を製作し、その基礎的特性を調べた。この装置で、コンプレッサーに接続された空気導入管(1)より入ってくる air によって流動化された粉体は、弁(4)を締めることによって管(7)より押上げられる。この粉体を(3)の“パウダーパルプ”で一定時間吸引してアーチを形成させて“プ



(a)

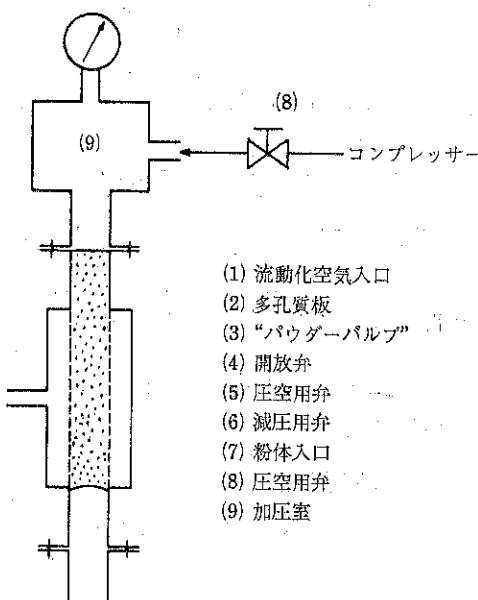


Fig. 2 “パウダーパルプ” 基礎実験装置

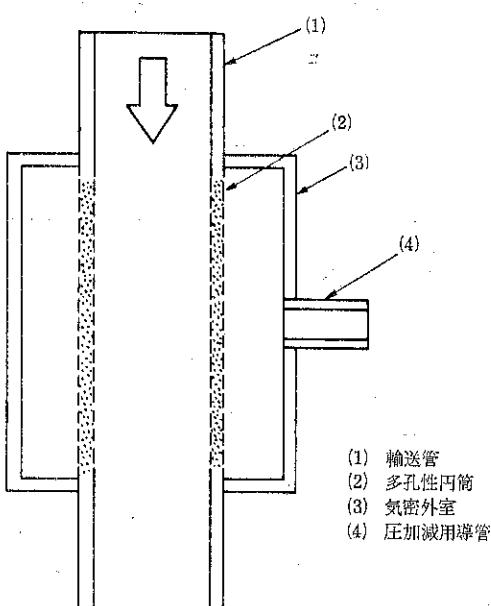


Fig. 1 “パウダーパルプ” の構造

ラグ”をつくり、“パウダーバルブ”を取りはずしてその中の粉体のしまり見掛比重を測定する。

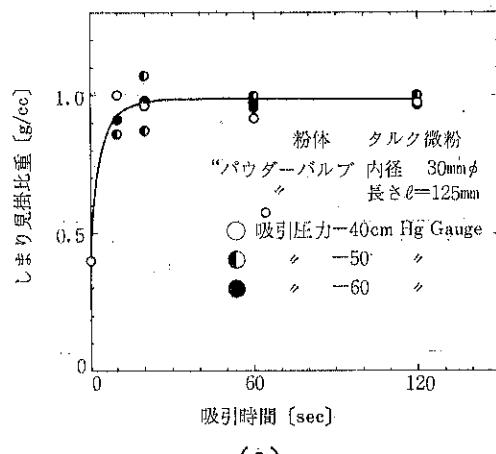
つぎに、前と同様に“パウダーバルブ”にアーチを形成させて“プラグ”をつくったのち、Fig. 2-(b)に示す様に、“パウダーバルブ”的上部に加圧室(9)を取付けて、これに圧縮空気を導入して“プラグ”的破壊する圧力を測定する。

最後に、最初の実験と同様に“パウダーバルブ”で“プラグ”をつくったのち、多孔質円筒を通してairを吹込み、“プラグ”的破壊の程度を調べる。

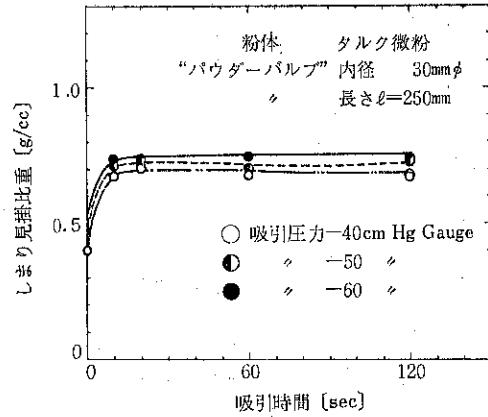
### 3.3 実験結果

#### i) しまり見掛け比重の測定

“パウダーバルブ”に“プラグ”をつくる際に、吸引圧力と吸引時間がどの様に関係するかを、三種類の長さ( $\ell=125\text{mm}$ ,  $250\text{mm}$ ,  $500\text{mm}$ )の“パウダーバルブ”について調べた。その結果がFig. 3-(a), (b), (c)である。なお、“パウダーバルブ”的重量は $5\sim 8\text{kg}$ あり、中の粉体の重量は $80\sim 250\text{g}$ なので、特殊なハカリをつくって測定した。その測定誤差は $\pm 5\text{g}$ で、従つ



(a)



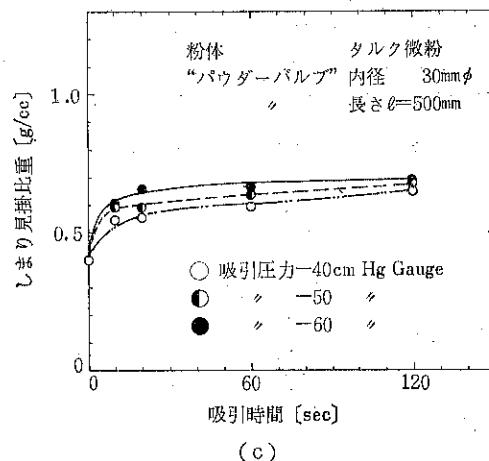
(b)

て粉体の単位体積当りの誤差は、 $\pm 0.056\text{g/cc}$  ( $\ell=125\text{mm}$ ),  $0.028\text{g/cc}$  ( $\ell=250\text{mm}$ ),  $0.014\text{g/cc}$  ( $\ell=500\text{mm}$ )であった。

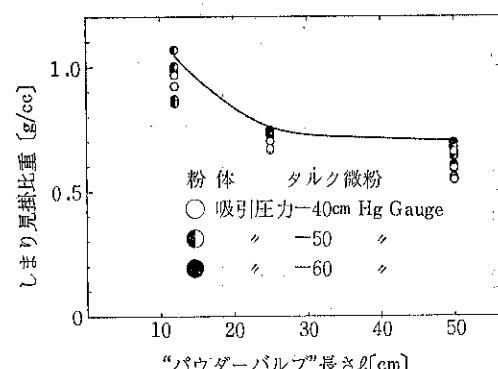
“プラグ”的しまりぐあいは、 $\ell=125\text{mm}$ と $250\text{mm}$ で吸引圧力が、 $-40\sim -60\text{mm Hg Gauge}$ の場合は、10秒間以上吸引しても、しまり見掛け比重は余りかわらない。ただ $500\text{mm}$ の“パウダーバルブ”では、10秒過ぎてもしまり見掛け比重は更に増加する傾向にある。また、Fig. 3-(d)は“パウダーバルブ”的長さとしまり見掛け比重の関係をプロットしたもので、 $\ell$ が長くなると平均的なしまり見掛け比重は小さくなる傾向がある。その理由は、“パウダーバルブ”的粉体の入口付近で局部的に粉体が“プラグ”をつくると、粉体がそれ以上供給されなくなり、“パウダーバルブ”的中央部において十分なしまりが起こなくなるためと思われる。

#### ii) 上部からの破壊圧に関して

短時間airを吸引して“プラグ”をつくったのち、その“プラグ”的耐圧を調べるために、Fig. 2-(b)に示す様に上部から毎分 $1.4\text{kg/cm}^2$ の割合で圧を増加して



(c)



(d)

Fig. 3 しまり見掛け比重の測定

いって、"プラグ"の崩壊する圧力を測定した。

この場合、上部加圧中は "パウダーバルブ" の吸引はしていない。

その結果、125 mm 以上の長さの "パウダーバルブ" では、ほとんどの場合には最大限度のゲージ圧で  $5 \text{ kg/cm}^2$  の圧を上部から加えても崩壊しないが、時には崩壊する場合があり、その値が一定しない。その崩壊の際の上部圧の最も低い値は  $2.3 \text{ kg/cm}^2$  であった。この理由として考えられるのは、"パウダーバルブ" に粉体を送る際の air 量に変化があり、air 量が多い時にはバルブ上部が閉塞した後の中央部の粉体のしまりが悪いからであろう。そこで、air 量を極端に多くして "プラグ" をつくってみると、Fig. 4 の様に中央部に細い空洞ができる、上部圧が  $0.5 \text{ kg/cm}^2$  程度で崩壊した。従って "パウダーバルブ" で "プラグ" をつくる際には air 量が少ないと程（質量比が大きい程）固い "プラグ" をつくる事ができる。

そこで、耐圧の上限界を求めるために、更に短い  $l=60\text{mm}$  と  $30\text{mm}$  の 2 種の "パウダーバルブ" を試作し、前述のことについて注意しながら実験した。この場合、"パウダーバルブ" に "プラグ" を作った後、air の吸引を止めて上部を加圧した場合と、吸引しながら加圧した場合の 2 通りについて調べてみた。

その結果を Fig. 5 (a) [ $l=60\text{mm}$ ] と Fig. 5 (b) [ $l=$

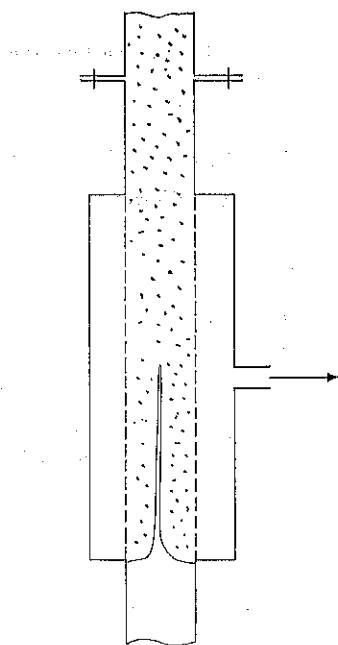
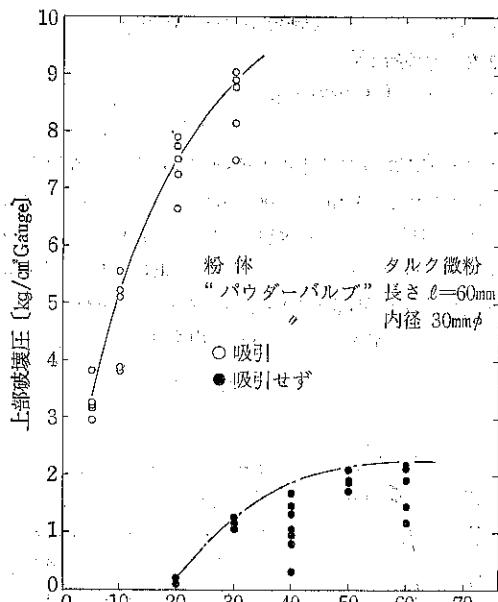


Fig. 4 質量比が極端に小さい時の "プラグ" の状態

$30\text{mm}$ ] に示す。図中 ●印は、"プラグ" を作った後 "パウダーバルブ" の吸引を止めて "プラグ" を破壊したもので、この場合 "プラグ" は管内壁面との摩擦角および充填粉体の内部摩擦角のみで上部からの圧力に抗している。図中 ○印は、"パウダーバルブ" から air を吸引しながら加圧したもので、吸引しない時に比較して約 5 ~ 7 倍程度耐圧が増加する。

$l=30\text{mm}$  の場合はデーターのばらつきがかなりある



(a)

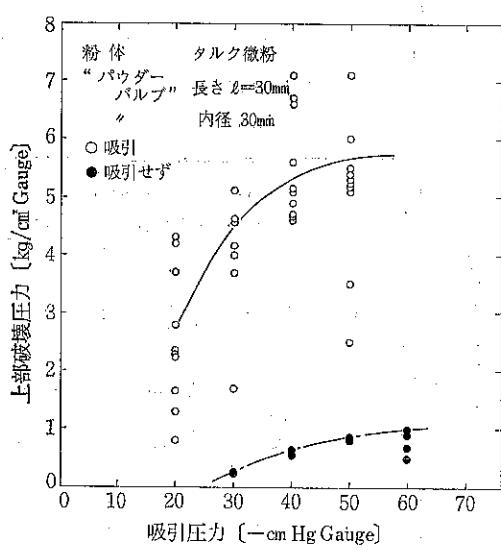


Fig. 5 吸引圧力と上部破壊圧の関係

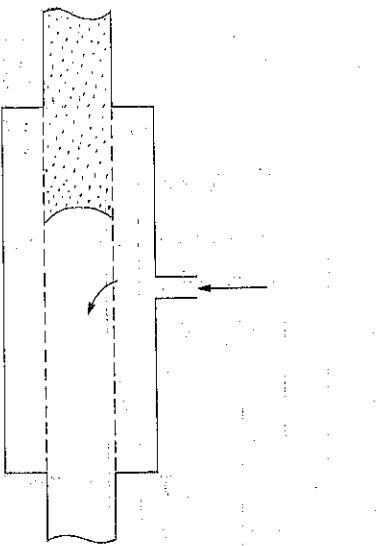


Fig. 6 “パウダーバルブ”が長い時の“プラグ”的残る状態

が、 $l=60\text{mm}$ では比較的安定した結果が得られた。また、 $l=60\text{mm}$ の場合は、 $-5\sim-15\text{cmHg Gage}$ で $3\sim5\text{kg/cm}^2$ の圧力に耐えるので、場合によっては真空ポンプのかわりにプロワーを用いることもできる。

#### (ii) 多孔質円筒を通しての破壊圧に関して

Fig. 2-(a) の装置を用いて “パウダーバルブ” で “プラグ” をつくった後、(5)から air を吹込むと $0.5\sim1.5\text{kg/cm}^2$  の圧で “プラグ” は破壊される。しかし $250\text{ mm}$ 以上の “パウダーバルブ” では、Fig. 6 の様に上部の “プラグ” が残る傾向がある。

一方、Fig. 2-(b) の装置で上部に圧をかけた状態で、多孔質円筒から air を吹込むと “プラグ” は完全に破壊される。しかし、上部圧をかける僅かの時間差が粉体のしまり具合に影響を与えるので、破壊圧の値は再現性に乏しかった。

大きな耐圧が要求される場合には、長い “パウダーバルブ” が必要となるが、上記のように  $l$  が長い場合は “プラグ” のしまり見掛け比重が不均一になり、又、多孔質円筒を通しての “プラグ” の破壊がうまくいかないので、短いものを必要な長さだけ直列に繋いで用いる方がよい。

#### 4. 試作空気輸送装置 (Photo. 2, Fig. 7 参照)

本装置は、小型装置と同様に、原料を入れて流動化させる流動床と、流動床から原料を吸い込み圧送する密閉された圧力タンクからなり、タンクの出入口には、“パウダーバルブ” がつけてある。また、タンクには、大気



Photo. 2 試作輸送装置

開放弁がつけてある。この大気開放弁 F, G は、粉体の吸い込みあるいは圧送の停止の際にタンク圧を瞬間に大気圧に戻すために必要なもので、加圧でも減圧でも両方作用する様に考案した。

#### 4.1 装置のプロセス (Fig. 7)

次に装置のプロセスを説明する。まず、流動床 E で原料を流動化させたのち、D の “パウダーバルブ” を吸引し、次に A の “パウダーバルブ” に air を吹込んで “プラグ” を破壊し、B からタンク I の air を吸引して減圧にすると E から A を通って粉体が流入してくる。流入してきた粉体は D の “パウダーバルブ” でアーチを形成して “プラグ” をつくるので、タンク内に粉体が貯まる。粉体がある level に達したら、A の “パウダーバルブ” を吸引してアーチを形成させ、B のタンク内 air の吸引を止めると同時に G のバルブを開いてタンク圧を瞬間に大気圧に戻すと、粉体の吸込みは瞬間に止まる。

次に、タンク内の粉体を圧送するために、G のバルブをしめ、A の “パウダーバルブ” をそのまま吸引しながら C から二次空気を入れてタンク内の粉体を流動化させる。そして D の “パウダーバルブ” に air を吹込んで “プラグ” を破壊し、B から圧縮空気を入れると粉体が圧送される。

次に輸送を止める時は、D の “パウダーバルブ” を吸引してアーチを作り、同時に B からの圧縮空気の流入を止めて F のバルブを開いて瞬間にタンク圧を大気圧に戻すことによって、即座に停止する。

#### 4.2 装置仕様

タンク内径	400mmφ
高さ	920mm
内容積	98.8L

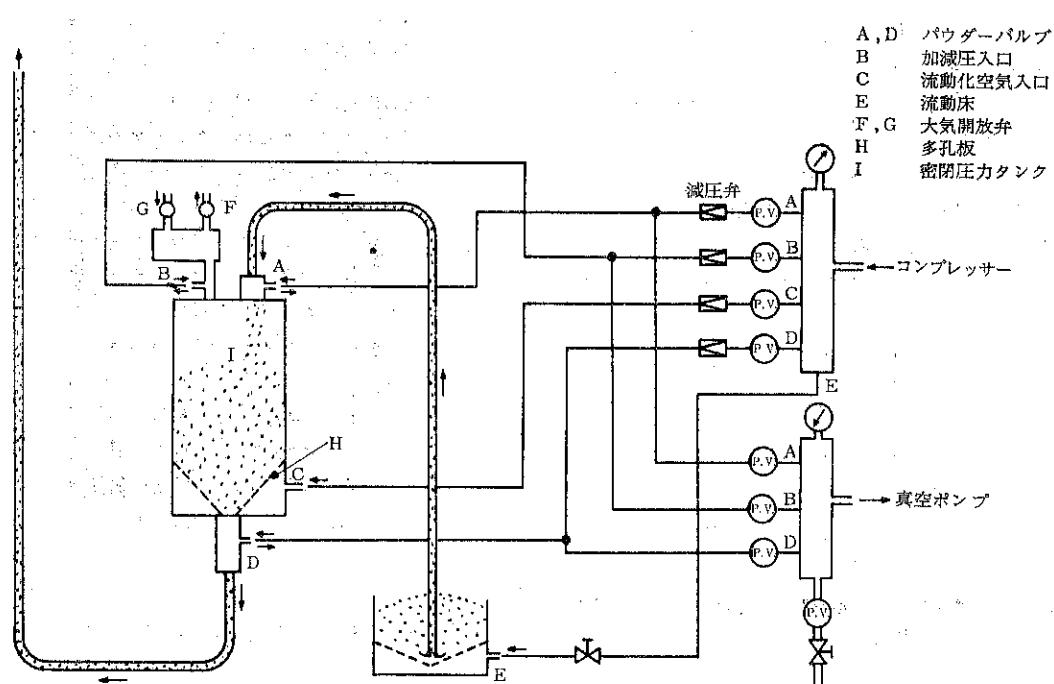


Fig. 7 高濃度空気輸送装置配管図

“有効容積	70~80l
“パウダーバルブ”内径	30mmφ
“ ”長さ	30~500mm各種
輸送管内径	27.6mmφ
弁各種	電磁弁

#### 4.3 テスト例

本装置のテスト例は Table. 1, 2 の如くである。

#### 4.4 本装置の特長

a) 高濃度で質量比が高いので、Photo. 3 (8ミリフィルムから転写) の様に粉体が水道水の如く流れ出る。また、そのため、捕集装置 (サイクロン、バッグフィルター) の必要がない場合がある。

b) “パウダーバルブ”を使用するので、摩耗やかみ込

Table. 1 テスト結果

原 料		ex. 1	ex. 2
タ ル ク			
輸送管	水平距離	2 m	
	垂直上昇距離		8 m
	内 径	27.6mmφ (1B管)	
輸 送 壓 力	1.0kg/cm <sup>2</sup>	2.0kg/cm <sup>2</sup>	
輸 送 能 力	2.7ton/hr	6.7ton/hr	
輸 送 空 気 量	8.4m <sup>3</sup> /hr	10.8m <sup>3</sup> /hr	
質 量 比 (pow.: air)	249	481	
粉 末 速 度	5.99m/sec	10.2m/sec	

Table. 2 輸送物粒度分布

25 μpas	99.1 wt%
20 タ	98.2 タ
15 タ	95.5 タ
10 タ	86.3 タ
7 タ	73.4 タ
5 タ	58.6 タ
4 タ	51.8 タ
3 タ	42.4 タ

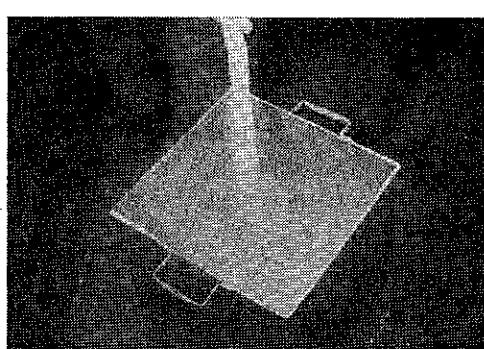


Photo. 3 排出の状態

みのトラブルの原因となる弁やダンパなどの機械的可動部分がない簡単な構造となる。しかも動作遅れがない。

- c) 流動床からタンクまでサクションで吸引するので、原料の供給は低い所や、ピットあるいは容器の中からの輸送ができる。しかも輸送の始点での粉体の飛散がない。
- d) 数ヶ所から一ヶ所への集約的輸送、また、一ヶ所から数ヶ所への分配輸送ができる。また、各輸送管の“パウダーバルブ”を別々に働かせることによって、輸送箇所の切り換えができる。
- e) タンクごと粉体の重量を計ることができ、しかも輸送停止の動作遅れがないので、輸送した粉体量が正確に計れる。
- f) 簡単な装置なので、車輪をつけて、装置を移動させることも可能である。
- g) 装置を並列にすれば、長時間連続輸送も可能である。
- h) 全自動運転が可能である。

## 5. あとがき

本輸送装置は、新しく開発されたシンプルな構造の“パウダーバルブ”を組込んだことを特長とする、ユニークな高濃度空気輸送装置であるが、現在開発されたばかりでまだ十分なデータがそろっていない。今後広い範囲の粉体材料について実験を重ね、さらに研究を進めてユーザーの要求に合致した装置とするために努力するつもりであるが、試験装置が当研究所に設置されているので、大いに利用いただければ幸甚である。

尚、本高濃度空気輸送装置に使用している“パウダーバルブ”は、武田薬品工業営工務部、浦進一氏の発明によるもので、すでに特許登録されている。

実用化装置の製作にあたり、同氏の御指導をいたいた。ここに紙面を借り深甚の謝意を表します。

## 参考文献

- 1) 鈴木他 粉碎 No. 18, p. 80 (1973)



## 総 説

# サスペンションのレオロジー

## Some Rheological Problems on Suspending System

梅屋 薫\*  
Kaoru Umeya

サスペンションすなわち固液懸濁系あるいは泥漿系においては、粉体は分散媒中に懸濁するが、この場合粉体表面には溶媒の吸着層ができるので、溶媒、吸着液膜層、ならびに粉体という三成分系を構成していることになる。どのように濡れがたい粉体を対象とするときにおいても、このように粉体表面近くでは、溶媒はその分子構造を、他の部分すなわち自由液部分とは異にしているので、これらの系のレオロジー的挙動を観察するときは、この新しくできた粉体—液体の界面層の挙動が大変重要な内容となってくる。

### 1. 流動曲線

#### 1.1 流動曲線における基礎パターン

このような懸濁系（一般には分散系）の流動特性を検討する場合は通常流動曲線（Flow curve）の形で行われる。流動曲線といるのは対象とする分散系に、外力（F）（剪断応力に直してS）を加えたとき、どのくらいの流速（V）（剪断速度に直してD）が発生するかという関係で表わされる。この場合よく知られているのは、

- (1) Newton流 (Newtonian Flow) で S 対 D を表す関係が原点から出発する直線状となる。
  - (2) 摩塑性流 (Pseudo-plastic Flow) で S 対 D の関係が原点から出発する曲線となり、且つ S 軸に凸となる。
  - (3) ダイラタント流 (Dilatant Flow) で S 対 D 曲線が原点から出発し、S 軸に凹の関係となる。
- なおこの 3 つの関係を後の節での考察の便宜のため両軸対数表示に直すと、Newton 流では傾斜  $45^\circ$  の直線 (Fig. 1(a)) に、摩塑性流では傾斜  $45^\circ$  より大きい直線 (Fig. 1(b) 実線), ダイラタント流では  $45^\circ$  より小さい直線 (Fig. 1(c) 実線) となる。

またこの 3 つの基本流動が降伏値 (Yield value) を

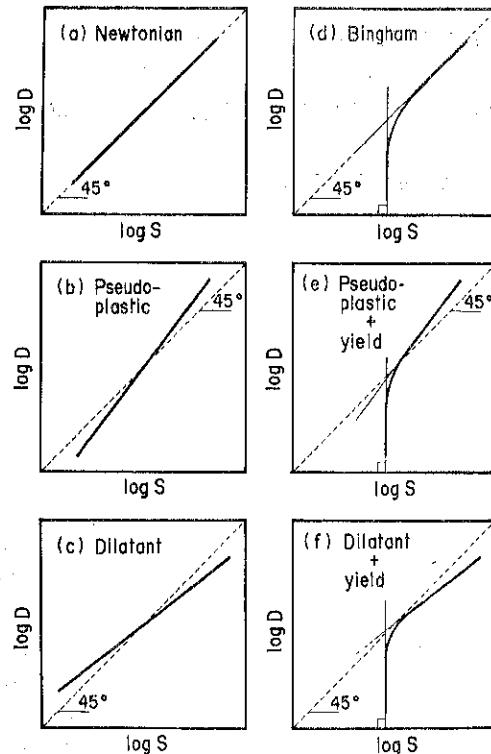


Fig. 1 Six basic flow patterns of disperse systems, usually obtained in comparatively narrow shearing range

持った場合がこれに加わり、

- (4) Bingham 流 (Bingham flow) S 軸上的一点  $S_0$  (降伏値) からスタートする直線として表わされる。
  - (5) 摩塑性流が降伏値を持った場合、 $S_0$  からスタートする S 軸に凸の曲線
  - (6) ダイラタント流が降伏値を有する場合、 $S_0$  からスタートする S 軸に凹の曲線
- (4), (5), (6)の場合を両軸対数の関係に直すと、(4)の場合には、上部では傾斜  $45^\circ$  従って Newton 流に漸近するが、

\* 東北大学工学部化学工学科

(〒980 仙台市荒巻字青葉) Tel 0222-22-1800

下部では S 軸に直角に落ちる曲線となる (Fig. 1 (d)). (5)は下部は S 軸に直角に落ちるが (すなわち降伏するが), 上部では傾斜45°より急傾斜の線に漸近する (Fig. 1 (e)). (6)の場合は下部は S 軸に直角に落ち, 上部は傾斜45°より緩かになり (Fig. 1 (f)), ダイラクタント流動線に漸近する.

従来の考え方では, 懸濁系 (一般に分散系)においては, これらの基本流動パターンは, おのおの独立にすなわち個々別々に存在するものであるという見解がとられていた.

### 1. 2 Ostwald パターン

この考え方から始めて挑戦したのはOstwald<sup>1)</sup>である. 彼は分散系の例として高分子分散系を取り上げ, その広域の流動曲線を測定した結果, かの著名な Ostwald 流動パターンを初めて見出した. このパターンはFig. 2に示されるように, はじめ剪断速度が低い所では Newton

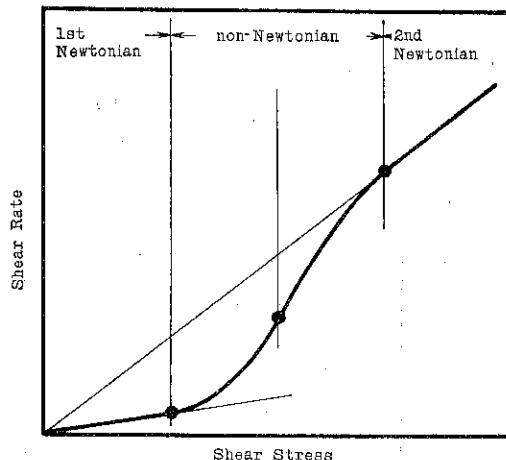


Fig. 2 Ostwald flow pattern

流 (後に第一Newton部, 略して I-N流と呼ばれた), 最後にずっと高い剪断速度部分においてその延長が原点を通る第二 Newton 部(略して II-N流)があり, その間をつなぐ部分として非 Newton 部(後に著者達は I-nN 流と呼ぶことの妥当性を提案した)があり; 結局は高分子分散系においては, Newton 流, 摩塑性流, 更に別の Newton 流が直列に結合した状態になっている. これらのこととは Pilipoff<sup>2)</sup>や Edelman<sup>3)</sup>らにより検討を重ねられ今では動かすことの出来ない内容として認められているわけである.

それでは高分子分散系以外の分散系においてはどうであろうか? に就ては多くの研究結果が別途に発表されたが, その中で代表的なのは Rehbinder<sup>4)</sup>による業績であろう. 彼は粉体一液体懸濁系 (粉体分散系)において

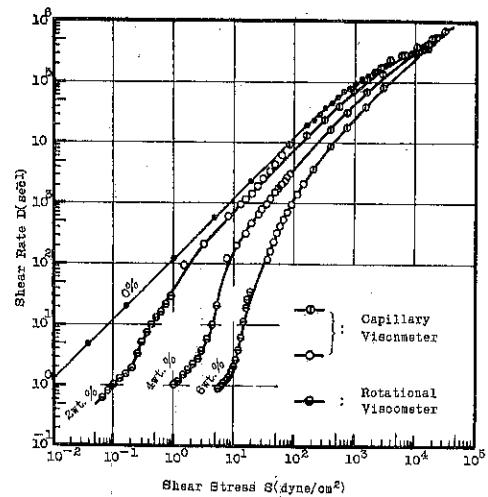


Fig. 3 Flow curves for silicagel-water system. (at 30°C)

も典型的な Ostwald 流動パターンの存在することを見出している. また Thomas<sup>5)</sup>も別の粉体分散系において Ostwald 流の存在することの確証を示した. Fig. 3 は筆者の研究室において採った  $\text{SiO}_2$  グルー水系の流動パターンであるが, おなじく Ostwald 流動形を示しているのをうなづくことができる.

### 1. 3 拡張 Ostwald 流動パターン

その後の研究において Ostwald 流動パターンを中心として, その上下に新しい流動パターンの補足され得ることが解明されるようになった.

#### 1-3-(a) 低剪断速度部分における変化

前節の内容が明らかになったことについて Rehbinder は, さらに一步をすすめて I-N流の下のところに, 新しい降伏現象のあることを見出している. すなわち Fig. 2 が示すように 2-N から 1-nN に下って更に I-N へと変化するパターンが Ostwald パターンであるが, これに較べ 2-N より 1-nN を通り (I-N に変化しない) そのまま降伏するのが Bingham 降伏である (Fig. 1 (d)) が, この Bingham 降伏の他に, 1-N の途中より降伏する新しい降伏現象のあることが指摘されたわけである. Fig. 4 は筆者の研究室で得たこの点に関する検証である<sup>6)</sup>が, Bingham 降伏より低剪断部に新しい降伏の存在することを示している. この降伏がなにより表われるのか? この点について現在充分な解明はなされていないが, 筆者は懸濁系中に存在する三次元構造の中, どこか一次元 (あるいは二次元) の構造が特別に弱く, 先づこれが降伏し, 次で Bingham 降伏の時に残りの二次元 (あるいは一次元) が降伏するのであろうという解釈をしている.

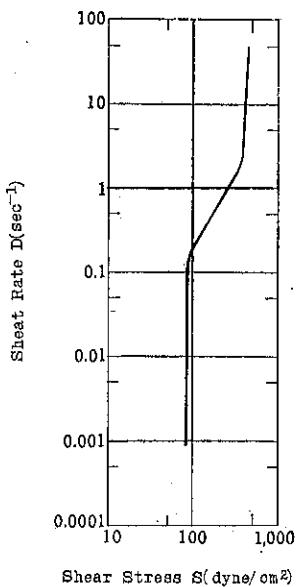


Fig. 4 Flow pattern of clay-water system at extremely low rate of shear

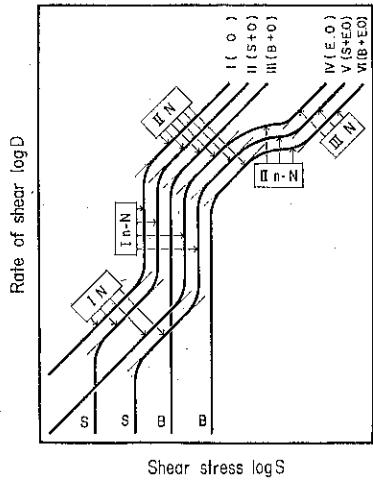


Fig. 5 Typical six flow patterns obtained over a wide shearing range

Type I. Ostwald pattern

Type II. Ostwald pattern having Schwedoff yielding property

Type III. Bingham pattern

Type IV. Extended Ostwald pattern

Type V. Extended Ostwald pattern having Schwedoff yielding property

Type VI. Extended Ostwald pattern having Bingham yielding property

### 1-3-(b) 高剪断部分における変化

次に Ostwald パターンの高剪断部に表われる変化としては、II-Nの上に表われる第二非 Newton パターン(II-nN)，更にその上に表われる第三 Newton (III-N) パターンを揚げなければならない (Fig. 5 の Type IV)。これらのパターンが第二 Newton 流以上に表われることは筆者により始めて指摘されたことであるが<sup>7,8)</sup>，筆者の研究室ではこの TiO<sub>2</sub>-水系 (Fig. 5) の他にも ZnO-水系において実証を得ているものである。

結論的にいって、Ostwald パターンは低剪断部に新種の降伏，高剪断部に II-nN さらに III-N を追加した形にまで拡張可能（このパターンのことを筆者は拡張 Ostwald 流動と呼んだ）であり，この中のある部分が縮退することにより，Fig. 5 に示す 6 種の広域流動パターンが分散系の流動パターンを示すものとして Fig. 1 に代わるものであることが判つて来た<sup>9)</sup>。

筆者の研究室においても今の所ではこの拡張 Ostwald 流動パターンが完全に得られた系とには，TiO<sub>2</sub>-水，ZnO-水，粘土-水の 3 つの系しかない，しかし筆者はどのような分散系においても，本質的には拡張 Ostwald パターンの全領域が内蔵されているものであるが，それが測定機の分解能により，ある部分がかくれて測定されるにすぎないという見解をとっている。

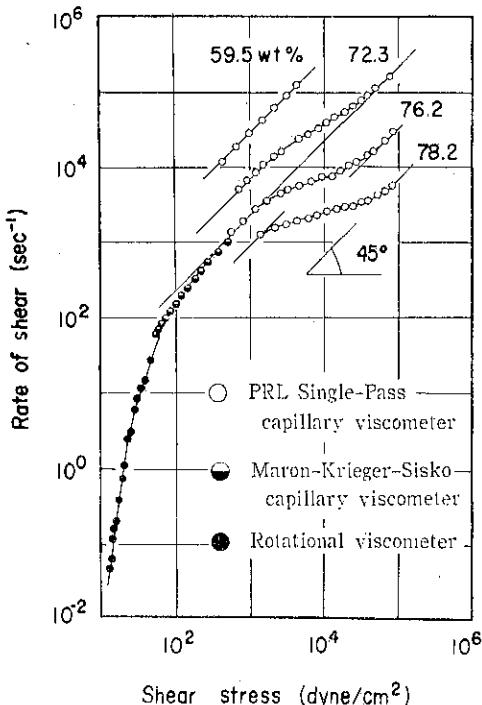


Fig. 6 Extended Ostwald pattern of ZnO-Water System

#### 1.4 濃度依存性

Fig. 6 には拡張 Ostwald 流動パターンの濃度依存関係が示してある。(II-N 以上に顕著であるし, II-N 以下では多くの検証例がすでに示されているので<sup>3)</sup>, II-N 以下のところは 76.2 % の曲線以外は省略してある。) この図より判明することは濃度が高くなると共に拡張 Ostwald 性はますます顕著となっていることである。また I-nN より II-N への転移点, II-N より II-nN への転移点は濃度の高くなる程高剪断応力側低剪断速度側に移行しているのを見ることができる。この中とくに重要なのは低剪断速度側に移っていることである。これは工業的に泥漿を扱うときの問題に重大な指針を与えるものである。すなわち濃い程早く II-N に達することはそれだけ早く安定分散化することを意味するので、泥漿輸送上重要な内容となるであろう。

#### 1.5 分散剤濃度依存性

ZnO-水系で 70wt % の泥漿に対し分散剤として  $(NaPO_3)_6$  をいろいろに濃度を変えて添加した場合の関係を Fig. 7 に示した。解膠剂量 2mg/g-ZnO のとき流動粘性は最小となっていることを知ることができる。これより明らかに擬塑性流をしているところの剪断速度 ( $3 \times 10^{+2} \text{ sec}^{-1}$ ), 明らかに II-Newton の所 ( $5 \times 10^{+3} \text{ sec}^{-1}$ ), 並びに明らかにダイラタントの所 ( $5 \times 10^{+4} \text{ sec}^{-1}$ ) の剪断

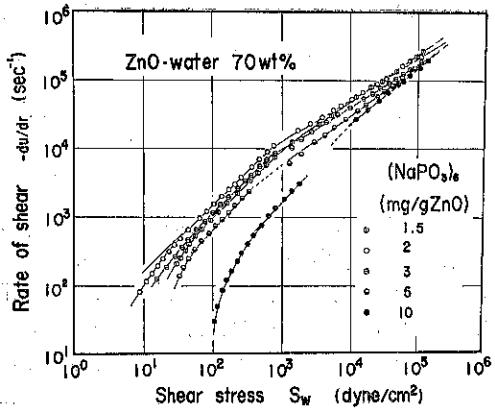


Fig. 7 Deflocculant concentration dependency on Ostwald pattern of ZnO-water system.

速度の所における粘性 ( $\eta$ ) の値をプロットすると Fig. 8 の結果が得られる。この結果より II-N での粘性は  $(NaPO_3)_6$  の量 2mg/g-ZnO の時最低を示すが、これは同一の試料を用いて電位を測定した結果とも一致する。Fig. 8 に同じく上記の剪断速度で測定した  $n_{pp}$ ,  $n_d$  の値を示す、擬塑性流動領域の非 Newton 指数 ( $n_{pp}$ ) は  $(NaPO_3)_6$  が 2mg/g-ZnO の所で最大をしめし、同様

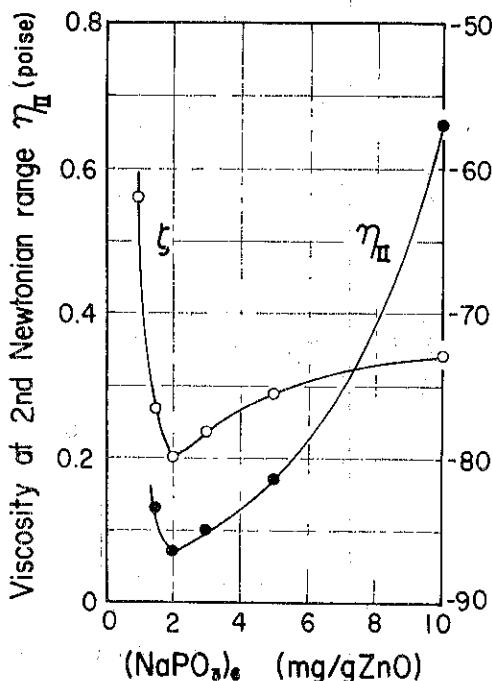
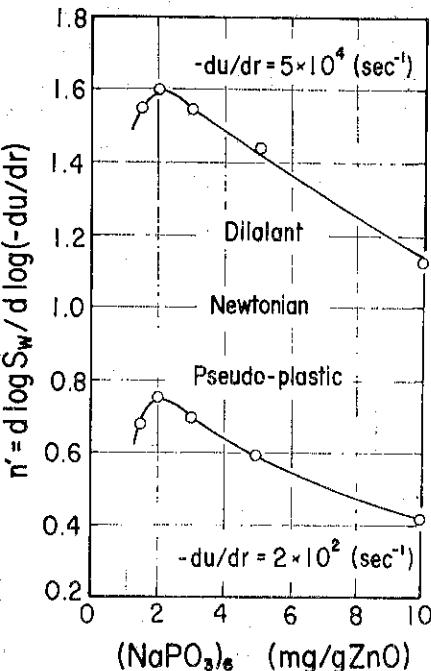


Fig. 8 Deflocculant concentration dependency on  $\zeta$ -potential, II-N viscosity and non-Newtonian parameter in both dilatant and pseudoplastic ranges



に  $n_d$  も最大値を示している。すなわち II-N で一番分散のよいところで (電位最少のところで),  $\eta_{II}$  は最小であり、ここでダイラタン性は最も顕著に、且つ擬可塑性は最も不顕著になっていることを知ることができる。

## 2. 法線応力の問題

粘弾性材料が管内流動して縮流部分に入るとき、材料の素体積は流線方向に配向し、同時に流動方向に引伸ばされ、流動と直角な方向には圧縮を受ける。この結果縮流部分を出るとき流れ方向に直角に膨張する (流れ方向には収縮する)。この傾向の尺度として法線応力差 ( $S_{11} - S_{22}$ ) を測定することが行われている。その方法には 2 つの方法が行われているが、その 1 つは Bagley 等により行われた方法で、測定毛管の管長 ( $L$ ) 並に管径 ( $R$ ) を種々に変えて測定し、その結果から所謂 PGB 法 (Philippoff-Gaskin-Bagley) による解析を行って  $S_{11} - S_{22}$  の値を決めるものである<sup>10)11)</sup>。法線応力差を決めるもう 1 つの方法はいわゆる Jet 法といわれている測定法によるもので、これは Metzner らにより行われたものである。被測定粘弾性液を毛管に通し、外気部分に噴射させると、出口の所において流路径の拡張みられるところから  $S_{11} - S_{22}$  を決定する方法である<sup>12)</sup>。

### 2.1 タイプ I のダイラタンシイ

ZnO-水系 (73.6wt%) の系で測定管の  $L/R$  を 410, 610, 810 並に 1004 と変化させた場合の流動曲線を Fig. 9 に示した。最も顕著に  $L/R$  依存性の出るダイラタン部のみに焦点を当て解析を進める。これを PGB 法による整理をすると Fig. 10 の結果となる (Fig. 9 で綺麗に直線上に載っているのは、Fig. 9 において流動曲線

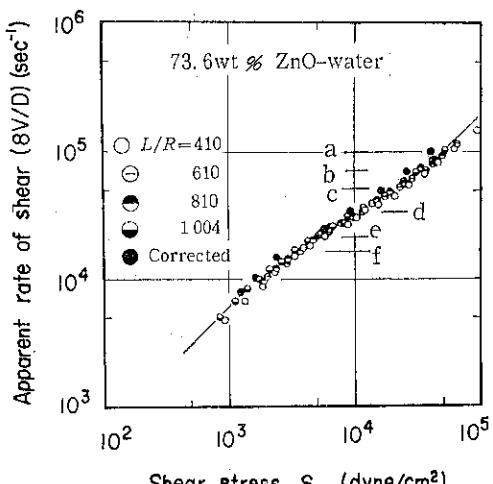


Fig. 9  $L/R$  dependency for type I dilatancy

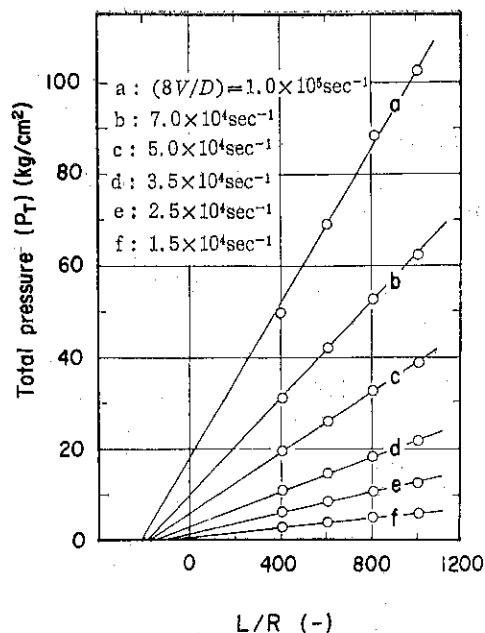


Fig. 10 PGB plots for type I dilatancy

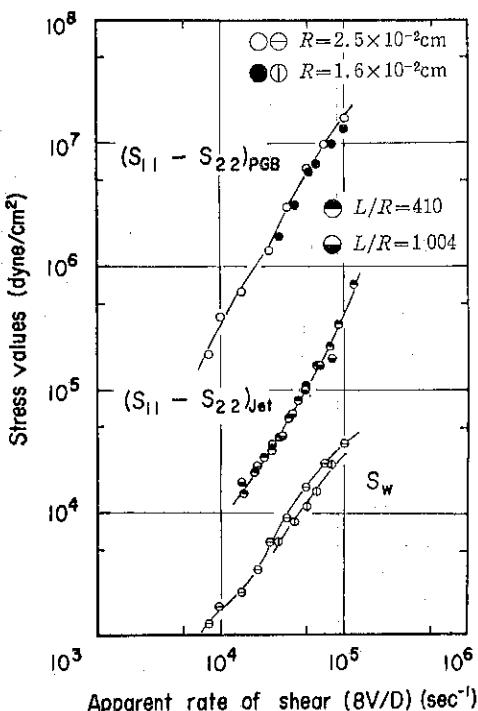


Fig. 11  $(S_{11} - S_{22})_{PGB}$  VS  $8V/D$ ,  
 $(S_{11} - S_{22})_{jet}$  VS  $8V/D$   
and  $S_w$  VS  $8V/D$  relations

を一旦ならして書いてあるためである。). これから  $(S_{11}-S_{22})_{PGB}$ ,  $(S_{11}-S_{22})_{jet}$ , 並に  $(S_w)_{PGB}$  を求めるると Fig. 11 の結果が得られる。

$(S_{11}-S_{22})_{PGB}$  は  $(S_{11}-S_{22})_{jet}$  に較べ 1 オーダー高い値として示されている。この点はいわゆる高分子系での結果と異なり、粉体系特有の現象である。しかし高分子系分散液の粘弾性と粉体系分散液の粘弾性とで、どこがどう違うからこの結果になるかを充分に説明できるセオリーは今のところ残念ながらなに一つない。

## 2.2 タイプIIのダイラタンシ

$TiO_2$  (Rutile)-水 (30 vol%) の系で測定管の L/R を 410, 610, 810 並に 1004 変化させた場合の流動曲線を

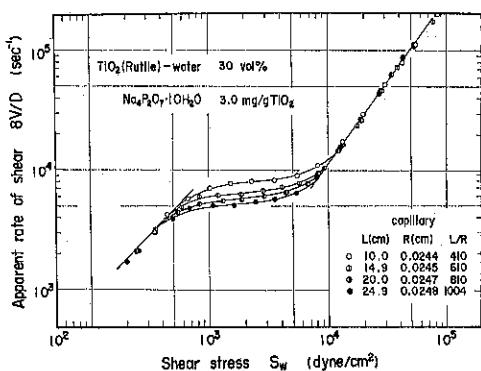


Fig. 12 L/R dependency for type II dilatancy

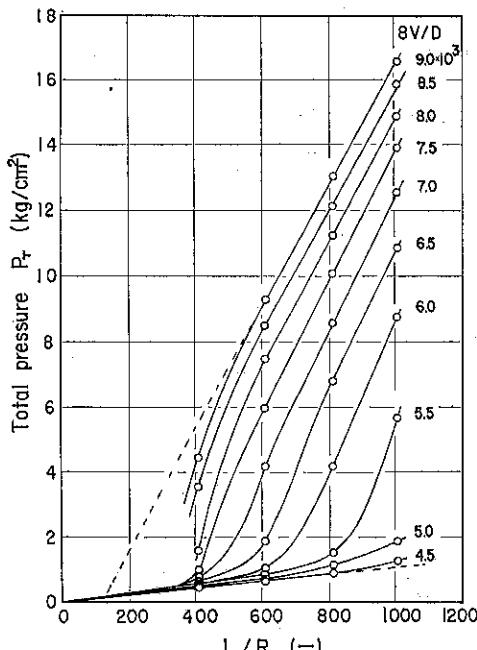


Fig. 13 PGB plots for type II dilatancy

Fig. 12 に示しておいた。(最も顕著に L/R 依存性の出るダイラタンシ部にのみ焦点を当て解析を進める) これを Fig. 10 と同様に PGB 法によるプロットを行うと Fig. 13 の結果が得られ、PGB 法による解釈の行い得ないことを看取できる。これは Fig. 12 をみれば自明のことであるが L/R 依存性が Fig. 9 の場合とは逆、すなわち L/R の値が大きくなるに従い曲線の位置が Fig. 12 の場合は下に来ているからである。

$ZnO$ -水系のダイラタンシと  $TiO_2$ -水系のダイラタンシでは、何故 L/R 依存性がこのように逆になるのか?これを解明する手掛りを得るために Fig. 14 と Fig. 15 にみられるような解釈を行った。先づ両図の(a)図であるが、横軸は測定管内の滞留時間であり、縦軸は見掛け粘性である。すなわち測定を行うために測定毛管中に滞留する時間の長さにより見掛け粘性がどのように変化して測定されるかという関係を示すものである。Fig. 14 の場合 ( $ZnO$ -水系) は滞留時間と共に粘性は減少しているし、またこの値はその時さらされている剪断速度 ( $8V/D \times 10^{-4}$ ) が小さくなれば、粘性も低く出ている。これに反し Fig. 15 では ( $TiO_2$ -水系) 見掛け粘性は  $8V/D$  と共に低下するのは同じであるが、一方滞留時間によっては (滞留時間が長くなると) 粘性増加の傾向を示している。この関係は “shift” の操作を行うことにより複合曲線 (composite curve) にすれば更に明瞭となる。すなわち両図の(b)図は、それぞれの(a)図を基礎として “shift” の操作を行い合成曲線したものである。これによると Fig. 14(b) では時間と共に粘性は減少するが、Fig. 15 (b) ではそれとは逆に増大を示している。(c)図はおのおの合成曲線を作るための “shift” 量 ( $a_T$ ) を  $8V/D$  に対して目盛ったものである。

これらの結果はダイラタンシ構造に 2 種類の差のあることを示しているものであり、従来いわれていたいわゆる容積ダイラタンシ (volume dilatance) と水力学的ダイラタンシ (Rheologic dilatance) との差を暗示しているものかとも想定できる。

## 3. 時間依存性

分散系の流動特性の時間依存性としては、

- (a), 摆変性 (Thixotropy)
  - (b), レオペキシ (Rheopexy)
- の現象が主体となる。

次にこの分散系の時間依存性についての測り方であるが、これにも次に示す二つの方法が慣用されている。すなわち

- (A) 恒常なる剪断速度下での測定 (constant shear rate method) (Fig. 16(a) で示す関係)

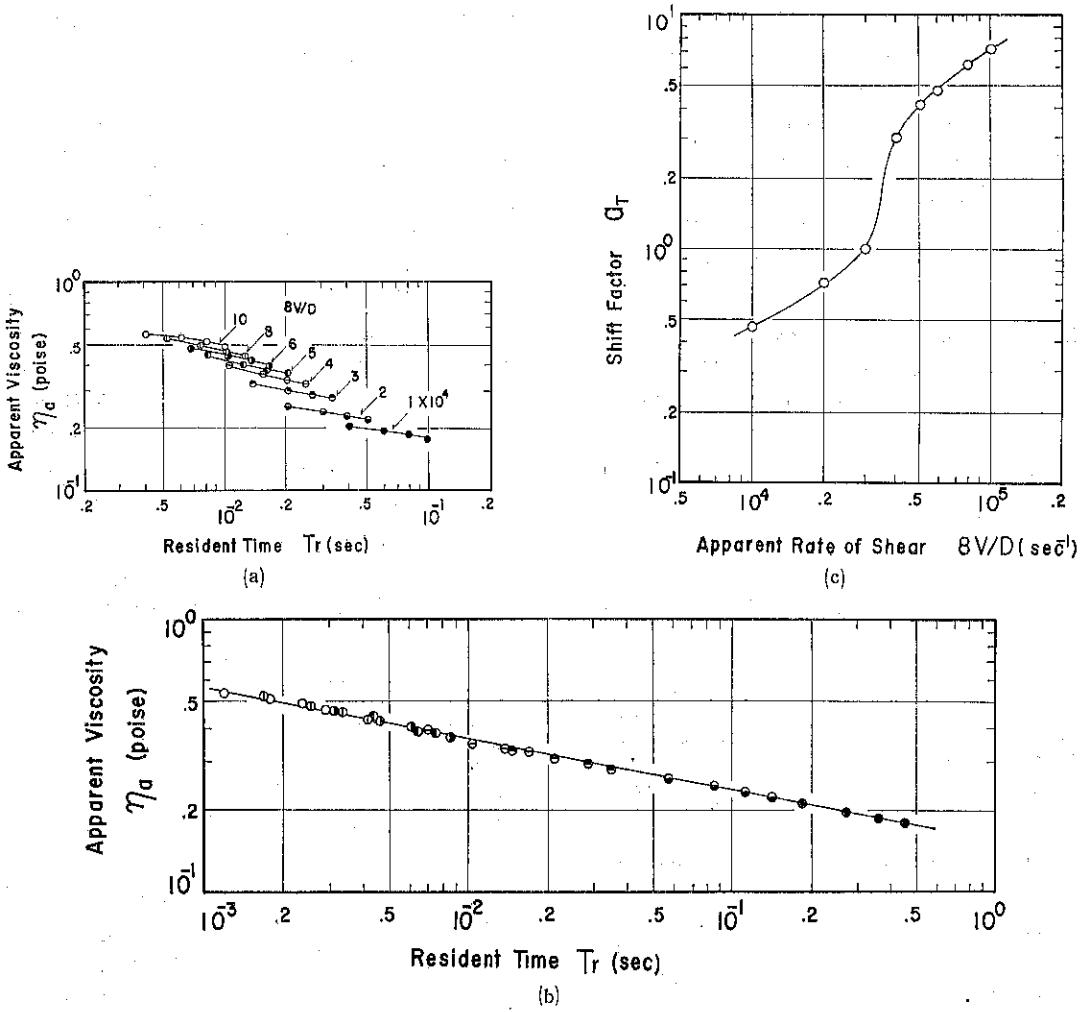


Fig. 14 Dependency of  $\eta_a$  on resident time for type I dilatancy

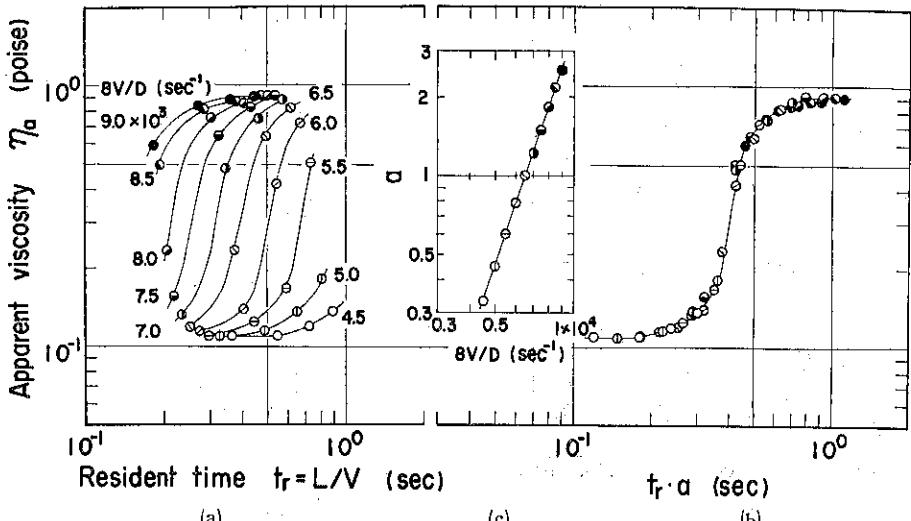


Fig. 15 Dependency of  $\eta_a$  on resident time for type II dilatancy

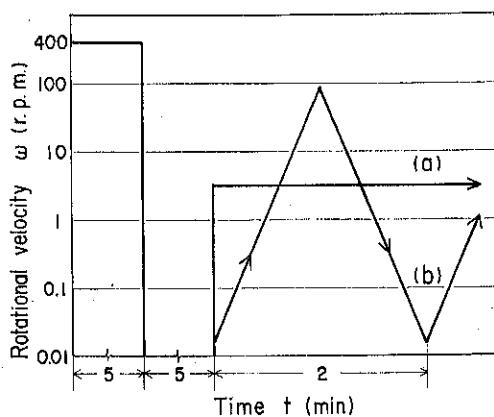


Fig. 16 Measuring Schedules for time depending behavior

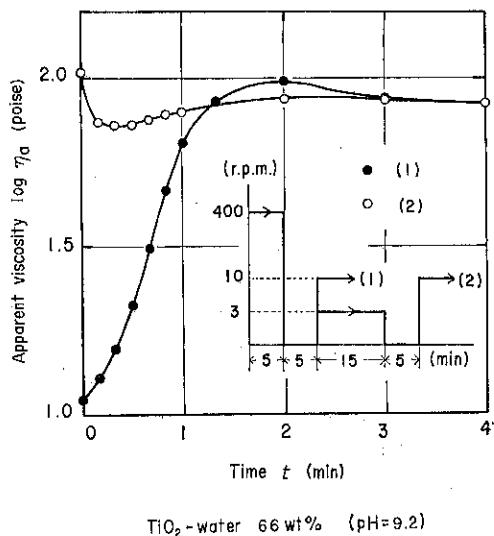


Fig. 17 Time depending behavior under constant shearing rate (case 1)

(B) 恒常なる剪断速度の変化率での測定 (constant rate of shearing rate) (Fig. 16(b) で示す関係)である。

### 3. 1 恒常なる剪断速度下での応答

Fig. 16(a) の方法による測定を行なうが、その前に試料の状態を一定とするために、一たん高剪断速度 (400 rpm) で 5 分間攪拌しておく、ついでこの試料を 5 分間静置した後、(a)に示す様に  $\omega = 10$  rpm の回転にさらす。測定結果は Fig. 17 に示す通りである。すなわちこの試料はこの測定において、はじめは 400 rpm で構造破壊が行われているが、それを 5 分間静置する間に幾分摺変硬化している。それが二次的に 10 rpm にさらされることにより、レオペキシ硬化する。しかしそれ以降ではこの

レオペキシ硬化してできた構造が摺変軟化し、最終的には粘性一定の形で落付く。

次に少し条件を変化させて 400 rpm で 5 分攪拌し、その後で 3 rpm に 15 分さらして二次的に攪拌し、再び 5 分間静置して後、上例の様に 10 rpm に三次的にさらすと、今度は Fig. 17 の白丸のプロットが示すように変化する。この場合 3 rpm と 10 rpm の差に相当する分だけ摺変軟化が表われ、それ以降では 10 rpm に相当するレオペキシ硬化が表われ、最終的には上記の 10 rpm での応答に落付く。すなわちこの点で示される粘性になって落付くのを見ることが出来る。

400 rpm で内部構造を破壊し、その後  $t_{r1}$  の間静置し、二次的に 3 rpm に 5 分間さらし、次で  $t_{r2}$  の時間静置し、再び三次的に 3 rpm にさらすという操作を行ったときの(1)のラン (二次の 3 rpm) 並に(2)のラン (三次の 3 rpm) における軟硬化の模様を示すと Fig. 18 の関係が得られる。すなわち(1)のランではレオペキシ硬化、(2)のランではレオペキシ硬化プラス摺変硬化の重畠効果の表

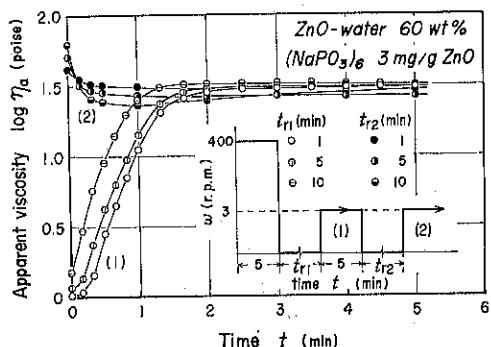


Fig. 18 Time depending behavior under constant shearing rate (case 2)

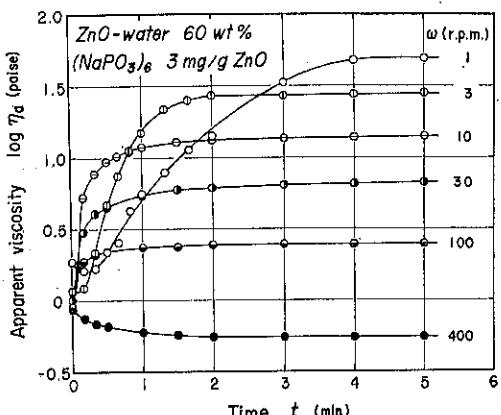


Fig. 19 Dependency of  $\omega$  on rheopectic thickening behavior

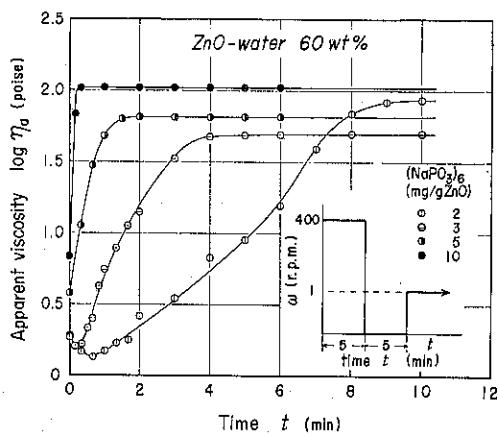


Fig. 20 Deflocculant concentration dependency on the rheopexic hardening properties

われているものの揺戻軟化が示されている。

$t_{r1}$  以後のレオペキシ硬化を行わせるために二次的にさらされる周波数効果は Fig. 19 で示される関係となる。すなわちの小さい程、ゆっくりかたまるが、かたまつ後の硬度は高い。周波数が最初の構造破壊周波数 (400 rpm) に近づくほど、早く硬化が行われるが、最終的に到達する硬度は低くなる。初回と同じ 400 rpm を二次的に加える場合は、もはやレオペキシ硬化は行われず揺戻軟化のみが表われる。

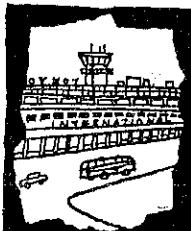
解離剤の量の多少によっては、この関係は Fig. 20 の様な変化を示す。すなわち解離剤 ( $\text{NaPO}_3 \cdot 6$ ) の量が 3 mg/g-ZnO のとき最終的に到達する粘性は最も低い。

同じ結果は時間効果測定法すなわち恒常なる剪断速度の変化率での測定の場合についても結論することができ

るが、ここでは紙数の関係で省略する。

## 文 献

- 1) Wo. Ostwald, Kolloid Z., 36, 99 (1925)
- 2) W. Philippoff, Kolloid Z., 75, 155 (1936)
- W. Philippoff and K. Hess, Z. Phys. Chem., B 13, 237 (1935)
- 3) K. Edelman, Proc. 2nd Int. Cong. Rheology, edited by V. G. W. Harrison, London (1954)
- 4) R. Rehbinder, Discuss. Faraday Soc., 38, 157 (1954)
- 5) D. K. Thomas and A. Charlesby, J. Poly. Sci., 42, 195 (1960)
- 6) 梅屋, 材料, 7, 134 (1970)
- 7) K. Umeya, Proc. 5th Int. Cong. Rheology, 295 (1970)
- 8) 梅屋, 菅野, 加藤, 日本レオロジー学会誌, 2, 17 (1974)
- 9) K. Umeya, Proc. 6th Int. Cong. Rheology (Lyon-France) (印刷中)
- 10) W. Philippoff and F. H. Gaskins, Trans. Soc. Rheology, 2, 263 (1958)
- 11) E. B. Bagley, Trans. Soc. Rheo., 5, 355 (1966)
- 12) A. B. Metzner, W. T. Houghton and R. A. Sailor, Trans. Soc. Rheol., 5, 133 (1961)
- C. R. Shertzer and A. B. Metzner, Proc. 4th Int. Cong. Rheol., 2, 603 (1966)
- A. B. Metzner and M. Whitlods, Trans. Soc. Rheol., 2, 239 (1958)



## 椿の花と寅彦先生と

沢畠恭\*

Yasushi Sawahata

高岡市伏木にある雲龍山勝興寺の築地は、大きな椿の林である。越中一向一揆の拠点として知られるこの寺は、古く平安の昔、大伴家持を国守に迎えた越中国府館跡としても有名であるが、最近の調査によれば戦国時代から江戸時代にかけての寺社建築の態様を今に伝える貴重な存在であるという。

何やかやのあわただしい年度変りの行事も一段落して、春の陽光に立山の残雪が映える4月の半ばともなると、この寺の築地の椿も桜に負けじと濃朱の蕾を一斉に膨らませる、駆まで10分の通勤の途すがら、椿の繁みのほとりを通る時、私が想い出すのは寅彦先生の椿の花の実験の話であり、On the Motion of A Peculiar Type of Body Falling through Air-Camellia Flower, Sci, Paper I.P.C.R., 20, 114 (1933)……粉体という言葉が寅彦によってはじめて世に問われた年に発表された論文のことである。

「なぜ椿の花は地上に上向きに、雌蕊と雄蕊を上に向けて落ちるのか」という事を、著者らの1人は数年前に昵懃な老紳士から尋ねられたことがあった。著者らはそうした事実を知らないかったので、それを確かめるとともに、もし事実ならば何らかの説明を与えてみようと考えた。」という書出しではじまるその英文報告は、31, 32両年に亘って延8本の椿の落花の上向き、下向きについて丹念な統計的調査とともに、落下運動の力学的解析、ペーパーコーンを用いた模型実験、高速度カメラによる反転現象の撮影などを介して、特異な形態を有する物体の落下運動に検討を与えたものである。

「落ちざまに 虻を伏せたる 椿かな」漱石先生の句である。……これは寅彦の隨筆“思い出草”第2段の冒頭の文章である。熊本から東京への途次、門司の宿屋で友人とこの句について一晩を寝ずに語り明した高校時代の寅彦自身について「どんな事を論じたかは覚えてい

ない」と書いてはいても、それは論文や隨筆の作年よりも30年も昔のこと故であろう。忘れてしまったその議論の中に、あるいは論文に記された様々な事実の原因となる花の特異な形状に起因する抗力の作用や、重心位置や慣性能率によって影響されるであろう空中反転運動のメカニズムや、しがみついて離れない一匹の虻の質量の効果などが熱を込めて語られていたのではないかと推察してみても、唯今ではそれを知る由もない。それにも「こういう瑣末な物理的な考察をすることによってこの句の表現する自然現象の現実性が強められ、その印象が濃厚になり、従ってその詩の美しさが高まる様な気がする」と述べられているその隨筆の結びの一一条は、「自然ぐらい人間に親切なものはない」この環境の中で「誰にでもわかるものとしての科学」が「対象はいくら古くても目と腕とが新しければ、いくらでも新しい発見はできるはず」である研究の成果として発表された椿の花の実験と強く結ばれているものと言えよう。

暖地性ツバキ科の植物として広く東洋に分布する椿の花種は多く、園芸植物としては最近特に親しまれるに至っているが、その属名カメリアは発見者である宣教師カ梅ルスの名に因るものといわれており、18世紀以降ヨーロッパに渡って以降この花を世界的に有名にしたのは、椿姫のデュマでありヴェルディであった。

平安の昔、つばい餅と名付けられて貴族の蹴鞠の宴に供された椿餅は、粉と椿の所産である。干飯を粉に挽き丁子粉を混合して香付けし、甘葛で固めて団子にして二枚の椿の葉にはさみ、白紙で帶をかけた椿餅は、万葉の昔の夢と味わいを伝えて奥ゆかしい日本の味覚の古典である。

春が進めば花が散り、やがて椿の実がみのる。みのった実がはじけて地上に落ちる頃、再び立山は雪に覆われ、やがて地上ではまた訪れるであろう春、雪の中で蕾を膨らませる椿の花の開くのを待ちながら、北陸の冬ごもりが始まるのである。

\* 富山大学工学部 化学工学科

(〒933 高岡市中川園町1-1)

Tel 0766-21-2510 (内) 302

## ニュース



粉体技術談話会主催「粉体工学に関する講演討論会」が“粉体の単位操作と粉体物性”というテーマのもと去る昭和49年8月26日多數の参加者を集めて盛大に開かれた。昭和43年の第1回講演討論会より通算し8回目を数え、年々内容も充実すると共に参加希望者も多くなり制限せざるを得ない（会場収容人員の都合上）程の盛況である。

各講演内容については次号（“粉碎”20号）に特集として掲載する予定であるが、本号では会の進行に従ってその講演要旨をニューススポット的に総括してみよう。

### ブローグラム

開会挨拶	京都大学名誉教授 粉体技術談話会々長 中川 有三氏
午前の部	テーマ “粉体物性の測定とその応用”
司会	京都大学教授 吉岡 直哉氏
講演	粉体物性測定上の諸問題 名古屋大学教授 神保 元二氏
講演	粉体物性の測定値とその応用 同志社大学教授 三輪 茂雄氏
講演	剪断試験測定値と流動性の関連 細川粉体工学研究所 横山 藤平氏
午後の部	テーマ “各単位操作と粉体物性”
司会	京都大学教授 井伊谷鋼一氏
講演	固一気混相流装置計画上の諸問題 静岡大学教授 犬野 武氏
講演	貯槽と粉体物性 横浜国立大学教授 青木 隆一氏
講演	混合操作と粉体物性

### 講演

大阪府立大学教授 矢野 武夫氏 粉体物性と集塵技術
大阪府立大学教授 吉田 哲夫氏
総括討論
司会 京都大学化学研究所 荒川 正文氏
閉会挨拶 細川粉体工学研究会長
粉体技術談話会副会長 細川 益男氏

### 中川有三会長挨拶



今回のテーマの説明のあと、先生の造詣の深い“粉碎”を例にして、基礎的研究と応用的実際とがうまくかみあう必要があることと説かれ、学術的研究と応用との中だらの役割をこの粉体技術談話会が担っていることを強調され開会の挨拶とされた。

### 神保元二氏の講演



粉体物性が系統的に検討され、測定され始めたのはここ10～15年前からで、歴史的に浅いけれど、測定法は非常に多く提案されている。講師はそれらを整理した後、諸物性間の相互関係を表1のようまとめた。

粉体物性の測定も実際の役に空たなければ何にもならないが、基礎的裏づけのない物性測定は一般性がなく色々なものには使えない。そこで実際的な測定と、その基になる測定の間を何とか結びつけようとしてなかなか結びつかないのが現状であると説き、その原因として次の3点をあげている。

- (1) 単純な力の測定でもそれは確率的な値で、統計的な分布をもっている。
- (2) 動的な特性をまだつかみきれていない。
- (3) 環境、雰囲気に左右される。

なお、付着力について積年の研究結果をもとに講師の持論を披れきし、スライドによりそれを詳しく説明した。

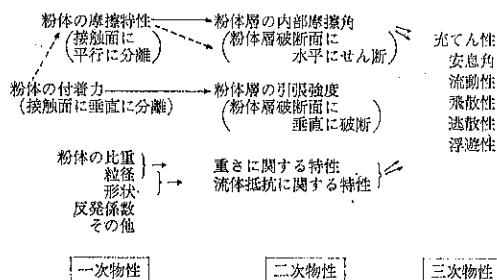
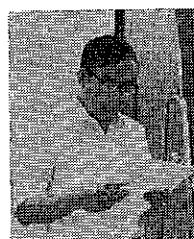


表1 諸物性間の関係

### 三輪茂雄氏の講演



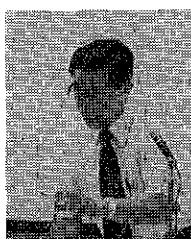
粉体の分類を表2に示すような動特性によって分類することを提案し、実際にいくつかの試料を用いて測定したところ興味ある傾向が見られたと報告している。すなわち、粉体オリフィス、振動オリフィス、ふるいと順次通過するかしないかを調べ、その各々について貫入度を測定し、粉体の右翼から左翼までを分類するとしている。また、最近手がられ

ているゴミ粉体(?)についての苦労話を実際的具体例をおりませ、三輪式ウィットに富んだ話し方で講演された。

表2 粉体の動特性による分類基準

	試 料		
粉 体	オ リ フ ィ ス	バ ス	非
振 動	オ リ フ ィ ス	バ ス	バ ス 非
ふ る い		バ ス	バ ス バ ス 非
貫 入 度		5<5 >5 >5 >5 <5 <5	5<5 >5 >5 <5 <5

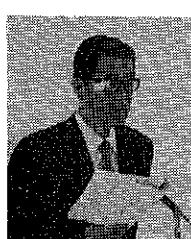
### 横山藤平氏の講演



R. L. Carr によって提案された流動性指数と、流動性の基礎的力学特性である付着強度、摩擦係数、剪断指數などとの関係を幾つかの試料を用いて調べ、検討を行なっていて、測定はリング式剪断試験機およびパウダーテスターによっている。

その結果、流動性指数は剪断指數および付着力と相関があることが認められたと報告している。

### 狩野武氏の講演



空気輸送装置を設計する際の種々の問題点を提起し、それらの問題点について講師の考え方、および見解が述べられた。理論的計算だけで最終的に決められない理由の主な要素として、(1)被輸送物粒子の大きさが不均一であること、(2)被輸送物粒子の形状は必ずしも球形でないこと(3)粒子に働く輸送力が一様でないこと、(4)比例法則が未確認なこと、(5)配管状態によって輸送物の流れ方が違うこと、(6)粒子の付着、凝集、固着の実態が複雑なこと等を挙げ、それらを解決する一助として、粒子の飛散と堆積、および物体の周りにおける粒子の堆積について研究を行ない、その結果の一部が報告された。

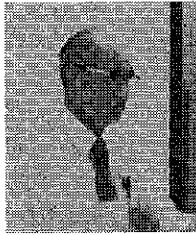
### 青木隆一氏の講演



貯槽内の粉体圧について、Janssen, Reimbert, Jenike, Walker の考え方および各式について説明した後、粉体圧と粉体物性との関連について種々の問題点を提起されつつ講師の見解が述べられた。特に粉体圧測定値から逆に物性値を推算する

手法において、投入速度、充填方法、流動時と静止時等の物性値への影響について具体的に示された。

### 矢野武夫氏の講演



混合性能と種々の粉体物性との関係を実験的に検討し、併せて混合の操作条件および混合機の特性にも言及して報告した。具体的な粉体物性として、平均粒径と粒径分布、粒径比、密度比、安息角および流動性を挙げ、その影響について述べ、分離偏析現象のモンテ・カルロ・シミュレーションについても検討を加えている。

### 吉田哲夫氏の講演



集塵操作と粉体物性とのかかわり合いを概観し、集塵において重要な役割を演ずる粉塵粒子の大きさの評価について考察し、集じん器の前の段階において粒子を生長させるいくつかの方法について紹介した。

### 細川益男副会長の挨拶



十数年前“魔物”であった粉体もまだまだ不明な、困難な点が多いながらもだんだん解明されてきていて、将来は実際の現場技術につながる粉体工学が形成されるものと信じていると述べ、更に日本の、否世界の粉体技術の交流の場として広く貢献していくよう会を運営して行きたいという言葉で結んだ。

なお、総括討論の内容については紙面の関係上割愛し、別の機会に報告するつもりである。



# 混合偏析しやすい粉しにくい粉

## Powders having Small and Large Segregation Tendencies

田中達夫\*  
Tatsuo Tanaka

いろいろの粉体装置内部での粉粒体の流れや運動を取扱った研究は多いし、また実際的なトラブルも多い。にも拘らず粉体の挙動を予測することは難しく、時には原因不明の閉塞やフラッシングなどの厄介な問題が起りやすい。本誌昨年号の細川社鈴木氏の流動性指数や噴流性指数に関する討論は、この問題に対する一つのチャレンジであろう。

以下は実用的には恐らく無意味であるかも知れないが理想的な粒子の組合せを単純化した模型によって初等力学を適用し、粉の動き易さとか動きにくさを考えてみたもので、昨年度流動研究員として滞在した九州工試の大内山技官に教えて貰いながら導いた式から計算してみた結果である。

たとえば、混合機の性能を時間と混合度の関係として実験値を整理したり、またホッパー排出の際の粒子の偏析結果をデータで与えたりした報告が多いが、さて粉体の個々の性質（いわゆる粉体物性）に注目してそれらを入れて整理したものは余りないように思われる。実際にこのような性質が頗著な影響をもたないのかも知れないが、しかし、たとえば、到達可能な最高の混合度などには当然きいてきてよいと思われる。

そこでいま個々の粉体粒子を球と考え、簡単のため二次元モデルとして同一直径の二つの球の上に異径の球がFig. 1 のようにのっかっているものを考えよう。何らかの条件を満足するときにこの1組の模型は全く動きえないだろうし、その条件が破れれば、ある速度で上の球は下の球を左右に押しのけて割りこんでくるであろう。いうなればその粉体系はほっておいても動き出す性質があり、しかもその運動は力学的条件によっていろいろに変りうるはずである。

以下の球の中心を通る軸をX軸とし、上の球の中心を通じこれに垂直な軸をY軸にとると、上の球に関する運動

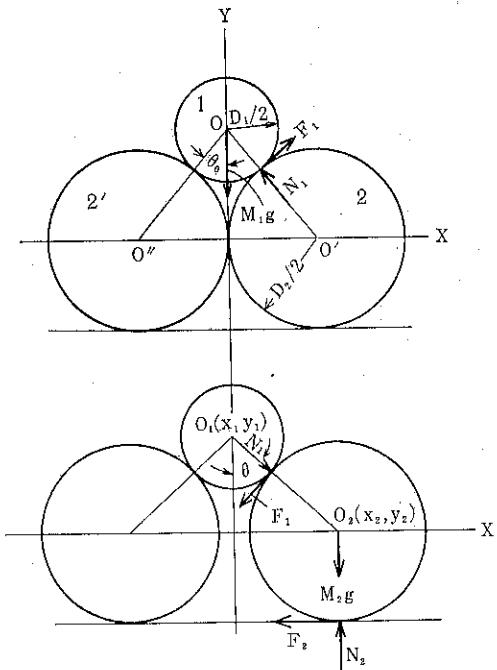


Fig. 1

方程式は、図示した力にしたがい

$$M_1 \frac{d^2 x_1}{dt^2} = 0 \quad \dots(1)$$

$$M_1 \frac{d^2 y_1}{dt^2} = -M_1 g + 2(F_1 \sin \theta + N_1 \cos \theta) \quad \dots(2)$$

$$\text{ただし } F_1 = \mu N_1 \quad \dots(3)$$

で  $\mu$  は摩擦係数、  $t$  は時間  $M_1$  は上の球の質量である。 $N_1 F_1$  は反力と摩擦力、  $g$  は重力の加速度である。

一方下の球について、その中心の座標を  $(x_2, y_2)$  とすると、（左右対称であることを考えて）

$$M_2 \frac{d^2 x_2}{dt^2} = N_1 \sin \theta - F_1 \cos \theta - F_2 \quad \dots(4)$$

$$M_2 \frac{d^2 y_2}{dt^2} = N_2 - N_1 \cos \theta - F_1 \sin \theta - M_2 g = 0 \quad \dots(5)$$

$$\text{ただし } F_2 = \mu N_2 \quad \dots(6)$$

$\theta$  は一般に上下二つの球の中心を通る直線とY軸との為す角であり、初期条件  $t=0$  で  $\theta=\theta_0$  とする。添字 2

\* 北海道大学工学部合成化学工学科

(〒063 札幌市北区北12条西8)

Tel 011-711-2111

はすべて下の球に関するものである。 $(1) \rightarrow (6)$ 式から  $N_2$ ,  $F_1$ ,  $F_2$  を消去すると

$$\frac{d^2y_1}{dt^2} = 2(N_1/M_1)(\mu \sin \theta + \cos \theta) - g \quad \dots \dots (7)$$

$$\frac{d^2x_2}{dt^2} = (N_1/M_1)\{(1-\mu^2)\sin \theta - 2\mu \cos \theta\} - \mu g \quad \dots \dots (8)$$

これから  $N_1$  を消去すると

$$\begin{aligned} & \frac{(d^2y_1/dt^2) + g}{(d^2x_2/dt^2) + \mu g} \\ &= 2\left(\frac{\rho_2}{\rho_1}\right)\left(\frac{D_2}{D_1}\right)^3 \left\{ \frac{\mu x_2 + y_1}{(1-\mu^2)x_2 - 2\mu y_1} \right\} \quad \dots \dots (9) \end{aligned}$$

となる。ただし  $\rho$  は密度  $D$  は粒子の直径である。ただし球の回転は無視した。

さらに拘束条件として

$$x_2^2 + y_1^2 = \{(D_1 + D_2)/2\}^2 \quad \dots \dots (10)$$

$$\text{ゆえに } x_2(dx_2/dt) + y_1(dy_1/dt) = 0 \quad \dots \dots (10')$$

$$\begin{aligned} \text{さらに } & x_2(d^2x_2/dt^2) + (dx_2/dt)^2 + (dy_1/dt)^2 \\ & + y_1 d^2y_1/dt^2 = 0 \quad \dots \dots (10'') \end{aligned}$$

だから球の運動は(9)式を(10)式の条件下で解けばえられる筈である。ただし初期条件としては

$$t=0; dx_2/dt=0, dy_1/dt=0, x_2=D_2/2,$$

$$y_1 = \sqrt{\left(\frac{D_1+D_2}{2}\right)^2 - \left(\frac{D_2}{2}\right)^2}$$

すなわち各球の運動は  $D_2/D_1$ ,  $\mu$  および  $\rho_2/\rho_1$  のよう

に粒径比、密度比と相互の摩擦で決る。

初期条件を用い(10)式によると(9)式は次のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{d^2y_1}{dt^2} &= \frac{2\frac{1}{M_1}(\mu \sin \theta_0 + \cos \theta_0)\mu}{2\frac{1}{M_1}(\mu \sin \theta_0 + \cos \theta_0)\frac{\cos \theta_0}{\sin \theta_0}} \\ &\quad - \frac{1}{M_2}\{(1-\mu^2)\sin \theta_0 - 2\mu \cos \theta_0\} \\ &\quad + \frac{1}{M_2}\{(1-\mu^2)\sin \theta_0 - 2\mu \cos \theta_0\} \quad \dots \dots (11) \end{aligned}$$

ここで

$$\mu_0 = \cot \theta_0 \text{ とおくと}$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2y_1}{dt^2} &= \frac{2\frac{M_2}{M_1}(\mu + \mu_0)\mu - \{(1-\mu^2) - 2\mu \mu_0\}}{2\frac{M_2}{M_1}(\mu + \mu_0)\mu_0 + \{(1-\mu^2) - 2\mu \mu_0\}} g \\ &\quad \dots \dots (12) \end{aligned}$$

$t=0$  では  $d^2y_1/dt^2 < 0$  且つ静的釣合の条件から

$$(1-\mu^2) - 2\mu \mu_0 > 0 \quad (\because \text{分母} > 0)$$

よって運動が起るためには(12)式の分子は負でなければならない。さらに幾何学的な次の関係

$\mu_0 = \cot \theta_0 = \{\sqrt{1+2(D_2/D_1)/(D_2/D_1)}\}$  を用いると、この系の運動が起る必要充分条件は

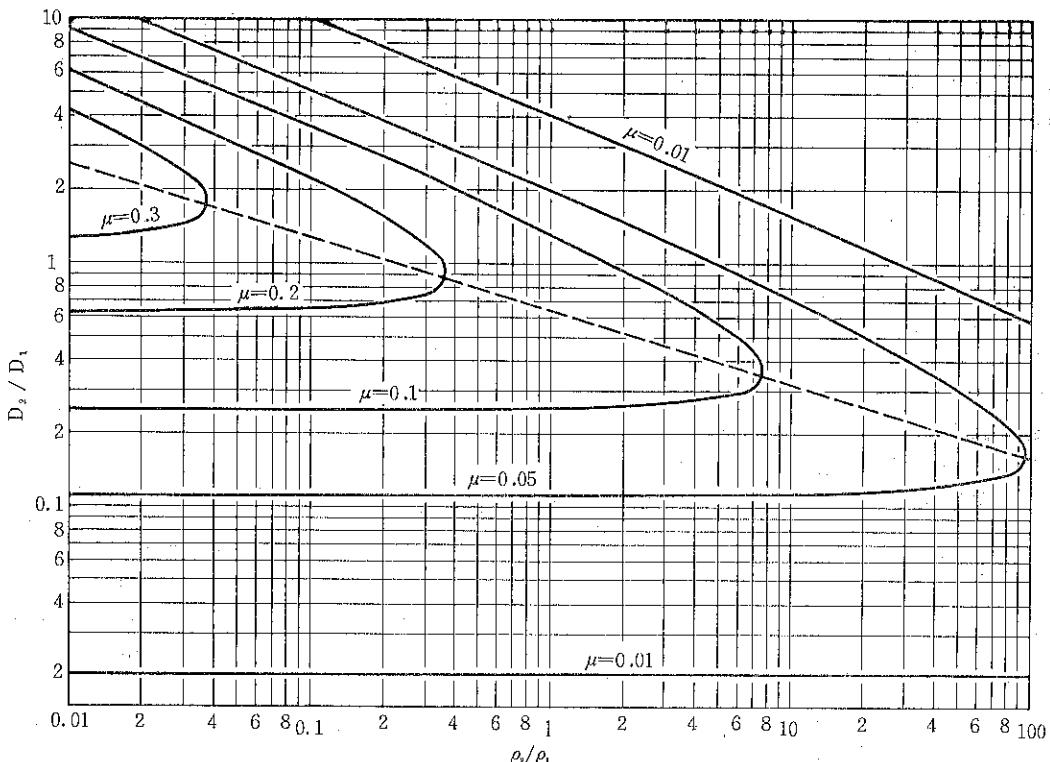


Fig. 2

$$0 < \frac{\rho_2}{\rho_1} < \frac{1}{2(D_2/D_1)^3}$$

$$\cdot \frac{[(1-\mu^2) - 2\mu(\sqrt{1+2(D_2/D_1)/(D_2/D_1)})]}{\mu[\mu + (\sqrt{1+2(D_2/D_1)/(D_2/D_1)})]} \quad \dots \dots (13)$$

(13)式の関係を満足する領域を  $\mu$  をパラメータとし  $D_2/D_1$ ,  $\rho_2/\rho_1$  を Fig. 2 のように両対数紙上に示した。すなわち  $\mu=$ 一定のシャープな曲線の内側が(13)式を満足する領域で、一定の  $\mu$  に対し、 $D_2/D_1$ ,  $\rho_2/\rho_1$  の組合せがこの領域に入るとき、その系はひとりでに動き出す性質をもつことになる。これが粉粒体の流動性と関係があるかどうかよく判らないが、この図によって 2, 3 定性的な考察を試みてみよう。

$\rho_2/\rho_1=3$  の系では  $\mu=0.1$  のとき  $D_2/D_1>0.76$ ,  $D_2/D_1<0.27$  では動かない。すなわち下に重くてしかも充分大きいか、または充分小さい粒子群をおき、上に中間大の軽い粒子群をのせたときにはそのままでは混合は起りにくい筈である。逆に  $D_2/D_1$  が  $0.76 \sim 0.27$  の間にあるときには、両端の値からはなれるほど、自然に混合する傾向が顕著になるだろう。しかし  $\rho_2/\rho_1=1/3$  すなわち上と下を逆におけば全く様相がかわり、可動粒径範囲は  $2.1 \sim 0.25$  にひろがる。粒径比をそれぞれ A 成分 B 成分の平均絆の比とラフに考えると、このような傾向を利用することにより混合機の性能を up できるのではないかだろうか。

### 新製品ひとこと

#### トーラスディスクドライヤ (Torus Disc Dryer)

トーラスディスクドライヤは米国 Strong Scott 社で新しく開発され、近く佛細川鉄工所化学事業本部でも製作、販売する予定の乾燥機（冷却または反応器としても使用できる）で、その表面に広い伝熱面を有するそろばん玉状の攪拌翼を設けたロータが特徴で、乾

また充分に混合された系の中では随所でこのような球粒子の組合せが考えられるので、あるところでは  $\rho_2/\rho_1=3$  になり、別の処では  $\rho_2/\rho_1=1/3$  になっている。これらの組合せの確率は A, B 成分の混合比の関数として表される筈である。いずれにしても、一般に偏析を避けることはむずかしいという経験的事実がある程度この図から定性的によみとれるであろう。全く動かないようすることは A, B 両成分がひろい粒度分布をもつほど不可能に近いということになる。

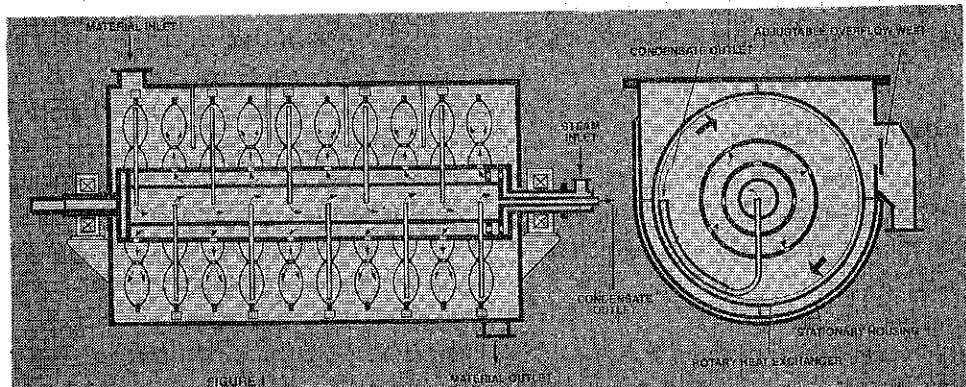
しかしあが大きくなるほど可動範囲は著しくせまくなることが図示されている。だから偏析をさけるためにある添加物を加えてみかけ上  $\mu$  を増せばある程度の効果は期待できるだろう。添加物を加えて粉体の流動性を改善したというような実験結果の報告が時々あるが、当然ながらこれは  $\mu$  をへらす方向に工夫したことであろう。その極端な場合、球が空気をかえこんで  $\mu \rightarrow 0$  になったとすれば、それこそどんな組合せも一齊に運動を起し、そのため一層空気が入りこみほとんど内部マサツを受けない系になってしまふ。これがいわゆるフランシングということになるのではなかろうか。

以上粉体とは凡そかけはなれたようなシンプルな模型の力学的考察で恐縮であるが、定量的にはともかく、定性的にはあるていど経験的な事実とも一致する結果をえた。

粉からスラリーまで広い範囲の材料を連続的に乾燥することができる。

#### 本機の特徴

- ・容器容積当りの伝熱面積が大きく、コンパクトであり、据付面積が小さい。
- ・総ての伝熱面と wet 材料が接触するから高い熱伝達係数が得られる。
- ・取扱のやっかいなウェットケーキ、スラリー等も処理できる、また、内部掃除が容易である。



## 統 計 的 推 定 (第 1 回)

菅沼 彰\*

Akira Suganuma

## 1. はじめに

今から20年前、筆者が受験勉強に追われていた頃の高校での数学は解析I, 解析II, 幾何に分類されていた。順列組合せ, 確率, 統計などは解析に入っていたが、「入学試験に出題される確率は、統計的にみて非常に小さい」とと言われていたのであまり勉強しなかった。これはどうやら当時の傾向であったらしく、教養課程の統計学の講義中に担当のH先生が、「この分野に関する諸君の予備知識はあまりに貧弱で講義がやりにくい。来年の入試には必ず統計の問題を出すからよく勉強しておくよう、後輩に知せておきなさい」と言われて満場爆笑したことを覚えている。ところで当時助教授だったH先生の講義が実に名講義で、推測統計学とは何と素晴らしい、何と面白い学問だろうと感激した。A5版のザラ紙にタイプ印刷された10分冊227ページのテキストは今でも保存してある。それ以来、大学院をも含めて在学中にはいくつか統計学関係の講義に出席し、集めた書籍もそろそろ100に達する頃である。

学生達には、「粉屋による、粉屋のための、粉の推測統計学」を開発するのだなどと気焰をあげてはいるが、統計学は筆者の専門ではなく、その時その時に关心のある事項に関係のありそうな参考書や文献を集めて来て捨い読みをするような勉強を続けていたに過ぎない。したがってこの解説にも、不適切な記述や厳密さに欠ける点が多いに違いない。好意ある御指摘、御批判を切望する。

## 2. 統計的推定とは何か

「サンプリング（抽出標本で調べること）は、多数のものを調べるために最も有効な手法の一つである。国民の全部に質問していたのではどうしようもないほどの費用

がかかるから、世論調査を大衆意見のサンプルにする。また、電球を作っているところでは、サンプルをとって何時間もつかをテストする。もしサンプルをとらずに全部の電球をテストしていたら、売り物がなくなってしまうだろう。編集者は、1日の時間が限られているので原稿を拾い読みする。つまりサンプルするわけだ。こんな言葉もある。腐っているかどうかを知るには、卵を全部食べる必要はない。」（以上は、ダレル・ハフ著、国沢清典訳、「確率の世界」p.126からの引用である。）

このような場合に我々が知りたいと考えている全体を母集団、この母集団から抽出して実際に調査やテストの対象にしたサンプルを標本と呼ぶことは御承知のとおりである。確率の法則を活用することにより、標本から得られる情報をてがかりにして母集団全体に関する何事かを推定するのが統計的推定である。そして、統計的推定の方法や推定の信頼性を論ずるのが推測統計学である。推測統計学の適用が可能であるためには標本が母集団からランダムに抽出されていることが必要である。そうでなければ確率の法則の利用が困難になるからである。この点については後述することにして、ここでは、筆者が、標本から得られる情報をてがかりにして母集団に関する何事かを推定すると言っている点に注意を払っていただきたい。

## 3. 標本から得られる情報とは何か

今ここに  $n$  個の標本値、

$$x_1, x_2, x_3, \dots, x_n \quad \dots \quad (1)$$

があるとする。これは、たとえば前章で引用したダレルハフの電球の例で言えばサンプルに選ばれた  $n$  個の電球の寿命テストのデータであって、 $x_i$  は  $i$  番目の電球の寿命——1486時間というような数値である。 $(1)$  は一般に大きさ（サンプルサイズ） $n$  の標本と呼ばれる。すなわち大きさ  $n$  の標本は  $n$  個の数値の組である。このような数値を個々に切りはなしで眺めただけでは必ずしも明らかではないような知識が、 $n$  個の数値全体を眺めることによって得られる可能性があることは、誰にも理解できる

\* 東大工学部化学工学科

(〒113 東京都文京区本郷7丁目3番1号)

Tel. 03-812-2111

であろう。数値がひどくばらばらであるとか、数値は大体そろってはいるが、大変かけはなれた数値が若干含まれているとかいう認識がその好例である。大部分の電球が1000時間を超える寿命を持っていても、僅か数時間で切れたというような数値があれば、この会社の電球には一晩のうちに駄目になってしまうような、極端な不良品も含まれていることがわかる。終戦後2~3年間は実際にそういう電球が沢山あって、「一日以内に切れた場合は無料で交換します」という貼紙が店頭に出ていたものである。

標本(1)から得られる情報にはこういうものが皆含まれるのであって、 $\bar{x}$ の算術平均値、

$$\bar{x} = \sum_{i=1}^n x_i / n \quad \dots \dots (2)$$

や $s^2$ の分散、

$$s^2 = \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 / n \quad \dots \dots (3)$$

だけが標本から得られる情報ではない。一般に $n$ 個の独立変数の任意の関数を $t_n$ とするとき

$$t_n(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n) \quad \dots \dots (4)$$

はすべて標本から得られる情報である。ここで $t_n$ は、 $x_1, x_2, \dots, x_n$ を与えると応じて値が定まるようなものであればよいのであって、簡単に記述できる式であるとはかぎらない。データとして $x_1, x_2, \dots, x_n$ を入れてやれば計算が実行されて値が定まるような計算機のプログラムは、たとえそれが超大型電子計算機で数年かかるような巨大なプログラムであるとしても、ここに言う関数 $t_n$ に含まれる。それと同時に、関数と言うにはあまりに簡単に簡単に思われる量であっても、 $x_1, x_2, \dots, x_n$ を与えると値が定まるものは $t_n$ に含まれる。たとえば最小値 $x_{\min}$ 、最大値 $x_{\max}$ などもそうである。

#### 4. 母集団に関する推定とは何か

我々が母集団に関して知りたいと考える事柄はいろいろあるであろう。何もそれは、 $\bar{x}$ の母平均、

$$\mu = E(x) = \int x f(x) dx \quad \dots \dots (5)$$

や、 $x$ の母分散、

$$\sigma^2 = E((x - \mu)^2) = D^2(x) \\ = \int (x - \mu)^2 f(x) dx \quad \dots \dots (6)$$

だけではない筈である。再びダレル・ハフの電球を例にとれば、この会社の電球の寿命という母集団に関して知りたいことは、いつもいつも、そして誰にとっても算術平均寿命 $\mu$ と寿命の分散 $\sigma^2$ だけであるとはかぎらない

い。この会社の電球を $M$ 個点灯した場合に、1ヶ月以内に $N$ 個以上の電球を交換しなければならなくなる確率を知りたいこともあるであろう。この会社の電球を $L$ 個直列につないで作った照明器具を $M$ 基同時に使用した場合に、500時間後に点灯している照明器具の数 $N$ の母平均と母分散を知りたいこともあるであろう。このような事柄は、母集団を構成する個々の電球の寿命全部を知ることさえできればわかる筈の事柄である。

一般に、母集団全部をしらべることができると考えられる量を母数と言う。ただし残念なことに、我々は母集団全部をしらべることができないので、標本から得られる情報をてがかりにして母数を推定しなければならないのである。標本(1)から得られる情報をてがかりにして母数 $\theta$ を推定するということは、 $n$ 個の独立変数の適当な関数 $t_n$ を選んでその関数值 $t_n(x_1, x_2, \dots, x_n)$ を求めるということに他ならない。 $\theta$ の点推定( $\theta$ の推定値 $\hat{\theta}$ を求める推定)ならば、

$$\hat{\theta} = t_n(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad \dots \dots (7)$$

$\theta$ の範囲推定( $\theta$ がその区間に存在している確率 $P=(1-\alpha)$ となるような範囲を求める推定)ならば、

$$t_n(x_1, x_2, \dots, x_n) < \theta < t_n(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad \dots \dots (8)$$

という次第である。

念のためにくりかえすが、母数 $\theta$ は、母集団全部をしらべることができさえすれば値が定まると考えられるような量でありさえすればよい。Eq(5)やEq(6)の右辺に現れた $f(x)$ は母集団における $x$ の密度関数(粉体工学的表現をするならば個数頻度)であるが、 $f(x)$ によって値が定まる量は母数である。 $x$ の母平均 $\mu$ 、母分散 $\sigma^2$ は母数の例であるに過ぎない。

#### 5. 統計量とは何か

$x$ の母集団からランダムに抽出された大きさ $n$ の標本 $x_1, x_2, \dots, x_n$ を $n$ 個の確率変数の組とみなしたとき、その関数を統計量とよぶ。母集団からランダムに抽出される標本 $x_1, x_2, \dots, x_n$ は、抽出がランダムであるから、抽出のたびごとに値が変わり、その変化の具合は確率の法則によって記述できる。そこで標本を構成する $n$ 個の数値を確率の法則に従って値が変化する変数、すなわち確率変数 $X_1, X_2, \dots, X_n$ とみなすことができる。そうすると、第3章で導入した $n$ 変数の任意の関数 $t_n$ を確率変数 $X_1, X_2, \dots, X_n$ の関数と考えて、

$$t_n(X_1, X_2, \dots, X_n) \quad \dots \dots (9)$$

と書くことができる。これが統計量の定義である。統計量 $t_n(X_1, X_2, \dots, X_n)$ は上記の定義から明らかのように、確率の法則に従って値が変化する量であるから、

これをまた、一種の確率変数とみなすこともできる。

1組の標本  $x_1, x_2, \dots, x_n$  によって求められた數値  $t_n(x_1, x_2, \dots, x_n)$  は、統計量(9)の1つの実現値であり、たまたま得られたその標本  $x_1, x_2, \dots, x_n$  についての値、すなわち標本値である。 $t_n$  の値が標本抽出のたびにどのように変化するか、すなわち、統計量  $t_n(X_1, X_2, \dots, X_n)$  の分布がどのようなものであるかを論ずるのが標本分布論であって、推測統計学の重要な分野である。ここで念のために強調しておくが、標本分布論の対象は統計量一般であり、 $x$  それ自身や  $x$  の算術平均値  $\bar{x}$  の分布だけを対象とするものではない。

前章までに述べた事項とあわせ考えるならば、統計的推定とは、適当に選んだ統計量  $t_n(X_1, X_2, \dots, X_n)$  の標本値  $t_n(x_1, x_2, \dots, x_n)$  を利用して母数  $\theta$  を推定することである。ある母数  $\theta$  を推定しようとすると、それに適当した、統計量  $t_n(X_1, X_2, \dots, X_n)$  を選ぶためには統計量の分布に関する知識が必要である。そこに標本分布論の推測統計学における重要性があるのである。

## 6. 今回のまとめ

議論がややくどくなつたようであるが、この解説の第1回にこのような内容をもってきたことにはそれなりの理由があるのである。その理由をここに述べることが、今回の解説で筆者が強調しようと努力した事柄のまとめにもなるであろう。

筆者は以前から次のような類の問題を研究している。「ランダムに採取した  $n$  個の粒子の粒径を測定したデータ  $x_1, x_2, \dots, x_n$  から、母集団の平均径、それも個数平均径以外の各種平均径、たとえば母重量平均径、

$$\Gamma = \int x^4 f(x) dx / \int x^3 f(x) dx \quad \dots \dots (10)$$

を推定するにはどうすればよいか?」

計数法粒度測定のデータ  $x_1, x_2, \dots, x_n$  から重量平均径を求みたいときは、

$$g_n(x_1, x_2, \dots, x_n) = \sum_{i=1}^n x_i^4 / \sum_{i=1}^n x_i^3 \quad \dots \dots (11)$$

を計算せよというような記述は多くの粉体工学書にみられるが、 $g_n$  は  $\Gamma$  とどの程度、そしてどの様に喰い違う可能性があるか、 $g_n(x_1, x_2, \dots, x_n)$  よりももっと  $\Gamma$  に近い数値を与える関数はないか、などについてはまだよく調べられてはいないようである。筆者自身の研究も遅々として容易に進んでいない。しかしながらこの問題が典型的な推測統計学の問題であることは、筆者にとっては、きわめて明白であった。H先生の名講義で推測統計学の考え方の面白さに感激してから約1年後に、工学部の学生として粉体工学の勉強を始め、計数法粒度測定、

重量平均径という言葉に出会ったその最初から、「サンプリングエラーとか粒子形状評価の誤差とか、そういうものを仮に完全に排除することができたとしても、ランダムサンプリングによる測定データの確率的なゆらぎは残る。その影響を統計量  $g_n(X_1, X_2, \dots, X_n) = \sum X_i^4 / \sum X_i^3$  の分布としてとらえるとどうなるか? 分散は?、偏りは?、……、?」という問題に興味を感じたのであるが、その時にも、これが典型的な推測統計学上の問題であることはあまりにも明らかであるように思われた。筆者にかぎらず、少くとも大学の教養課程レベルの統計学を学んだことのある人達に限定するならば、その誰にとっても明らかな事柄であると筆者はごく最近まで信じていた。大部分の読者諸氏にとって、このような問題に興味を抱くか否かは別として、更にはこのような問題を論ずることに対する評価も別として、これが推測統計学上の問題であるということは、多分、きわめて明らかであろう。

しかしながら、「事実は小説よりも奇なり」である。と言うのは、筆者の論文<sup>2,3)</sup>を読ませた大学院のある学生が真面目な顔をして次のような批判をしてくるという事件が最近起つたからである。これは本当の話である。

「標本平均値と母平均との間の統計学的法則は測定量そのものについてである。たとえば測定量を  $x$  とすれば、 $x$  の算術平均、あるいはクラス分け平均についてだけ問題にしている。それゆえ  $\sum x_i^4 / \sum x_i^3$  などのような平均値は統計学の対象ではない。(後略)」(ほぼ正確に原文のまま、アンダーラインは筆者がつけた。)

筆者が呆然としたことは言うまでもない。推測統計学なるものの存在を知つて以来今日まで、絶えずアマチュア的興味を持ち続けてきた筆者は、統計学の専門家や専攻を志す人達以外の理工系の人々にとって、推測統計学は必ずしもそれが筆者にとってそうである程には面白い存在でないらしいということは承知している。それどころか、確率論などには相當に違なところをみせる人であっても推測統計学的な思考を全くの苦手とする場合もあることを体験させられている。一般に、推測統計学によって行なわれた統計的推定の結果が自分に都合のよいものであるならば、それはまるで神託か護符のように扱われる。ある人は、本心から信じているわけでは決してないのだが自説の説得力を強めてくれるので、「神託が下った」と大声で触れてまわる。ある人は、そんなものはあまり意味が無いとは思いながらも「少しは役に立つだろう」とお守り札にする。またある人は、盲目的に信じてしまつて、勝手にその神託の内容を拡張する。もしも統計的推定の結果が自分にとって都合の悪いものであ

るならば、それは何かの間違いであろう、いや多分、悪質なトリック、詭弁、邪教の類に違いないと考える。こういう事例の数々を体験し、常日頃、推測統計学の考え方を上手に記述した啓蒙書の類を集めて説明法の工夫にも努めているほどの筆者も、「 $\sum x_i^4 / \sum x_i^3$ 」のようなものは統計学の対象ではない」と言わされた時には全く驚いてしまった。

この学生の言い分によれば、統計学の対象は統計学で言うところの平均値、すなわち算術平均値だけだということになる。彼は多分、分散、ひいては  $\chi^2$  分布、F分布、t分布など——これ位は彼も知っているに違いない——はあくまでも算術平均値を扱うための単なる補助手段に過ぎないと思っているのであろう。

読者の中には、個々の推定公式など1つも覚えてはいる人がいるであろう。算術平均値の範囲推定をするのに必要となるのが  $\chi^2$  分布であったか t 分布であったか忘れた人もいるであろう。筆者をも含めてお互いに統計学が専門ではないのだから、そういうことは自慢にはならないけれども許されてよいであろう。必要な時に教科書か手順表をしらべればすむことである。しかしながら、「推測統計学とは標本値から母平均を推定する学問であり、そしてそれだけである」などと考えている人が、もしも読者の中にもいるとしたら、これは大変困ったことである。筆者は何も、推測統計学に対するこのような定義が法律になって、その結果として大部分の統計学者が失業することを心配しているのではない。そんな馬鹿氣な法律は、「円周率  $\pi$  が有限のケタ数で書けないのは不便であるから、 $\pi=3.14$  と法律で決めよう」というような提案（これは昔、某国の議会で本当にあった話だそうである、念のため）と同様、万一にも可決されるわけがない。仮にそういう事態が起れば、失業した統計

学の専門家の一部はきっと粉体工学の分野に転職するであろうから、むしろそれは我々粉屋にとって歓迎すべき事態とも言えるだろう。筆者に言わせれば、それほど我々粉屋の世界には推測統計学に属する未解決の問題が山積している。それだけに、我々粉屋の仲間の中に推測統計学を毛嫌いする人達や全然知らない人達がいるのは止むを得ないとしても、推測統計学に対する明らかに間違った定義を振りまわすような人達が居てもらっては困るのである。そういうことでは、たとえば増田・井伊谷の論文<sup>1)</sup>のような、筆者に言わせればそれこそ「粉屋による、粉屋のための、粉の推測統計学」の貴重な芽であるような研究が、せっかく発表されても充分に評価されない可能性があるし、場合によっては発表の機会すら奪われてしまう危険性がある。これはどう考えても困ったことである。

正直なところ筆者も心情的には、かの学生が世にも稀なる、唯一の例外であると信じたい。しかしながら推測統計学の重要な教えの一つには、「予想外のデータが得られた場合にもそれが真に特別の例外であることが確認できた場合以外には、軽々しくそれを無視してはならぬ。一般に、自分にとって気にいらない少数例を充分な検討無しに排除する傾向があるが慎しむべきである。」とある。そこでこの解説の第1回はこのような内容になった。

#### 参考文献

- 1) Masuda, H. and K. Iinoya: J. Chem. Eng. Japan, 4, 60 (1971).
- 2) Mori, Y. and A. Suganuma: Kagaku Kōgaku, 32, 1099 (1968).
- 3) Mori, Y. and A. Suganuma: ibid, 34, 445 (1970).



## 参考資料

# タッピング圧密に関する二三の考察

## Some Considerations on Tapping Compaction

川北 公夫\* 池田 正明\*\*

Kimio Kawakita Masaaki Ikeda

### 1. はじめに

粉体の見掛け容積は、秤量した粉体を容積目盛をほどこした容器に入れ、その体積を読みれば測定できる。しかし、実際には容器に粉体を充てんする方法によって測定値が大きく変動し、測定を困難にしている。また充てん容積は漏斗やフリイで充てんしたものより、遠心力、振動、タッピングなどの外力を与えた方が当然小さくなる。この容積の減少のしかたがその粉体の特性に密接に関係しており、逆にこの現象を分析することによって粉体の物性をある程度知ることができる。充てん体に外力を加える場合、最も簡便でかつ解析が比較的容易であることから、タッピングが多く用いられ、この種の実験報告もかなり多いし、この方法をカサ密度測定に正式に採用している例もある。例えば、顔料を対象としたDIN、手動タッピングを行なう Stahl-Eisen Prüfblattなどであり、工業的に工場自身で独自の規格を決めて製品の管理に用いている例もかなりある。そこで筆者らは今まで報告のあったタッピング圧密の圧縮式に着目して、2~3の考察を行なうとともにタッピング圧縮式の応用についても論じたいと思う。

### 2. タッピング圧密に関する種々の研究

粉体の充てん層に外力を加えた場合、充てん層の空隙率の相違によって粉体の流動は二つに分類されるであろう。その一つは粗充てんにみられる粘性的流動、他の一つは密充てんの場合に生ずる剛体的性質をとくに示す弾性的变形である。しかし、これらの性質は極端な場合で、自然に堆積された粉体は中間的性質を示すであろ

う。いずれにせよ粉体の流動については空隙率が大きな要因をなしている。最もゆるい充てんの空隙率の範囲においては特に粉体固有の力学的挙動が現われ、粉体粒子の表面構造から生じる“からみあい”あるいは粒子相互の接触点、界面に關係する付着力、また粒子の摩擦機構に関する荷電現象、その他粒子の化学的性質などによって複雑な粉体固有の力学的挙動が表われるであろう。このような観点からしてみると、タッピング圧縮式を考察してある程度の粉体の特性を知ることができよう。

#### a) Roller の研究

Roller<sup>1)</sup>はタッピング装置を用いて充てん性の実験を行ない次ののような関係を得ている

$$\rho_{\infty} - \rho_n = A \cdot \exp[-k \cdot n]$$

$\rho_{\infty}$  は  $n$  回タッピングした時の見掛け密度 ( $\rho_n$ ) が一定になった値、A および k は定数である。ピストンの落下行程を変えると  $\rho_{\infty}$  も変わり、 $\rho_{\infty}$  が粉体についての定数にならないが同一装置で落下距離と落下回数速度を一定にすると  $\rho_{\infty}$  は再現性のある一定値になりタッピング度として利用されている。また Roller は容器の形状および充てん量についても実験を行ない、粉体層の厚さと径の比が 6 以上になるような試料の量を使用することが望ましいと報告している<sup>2)</sup>。この比が小さい時や、丸型のフラスコを容器として用いた時は、測定中に粉体の流動が起こり再現性のある値が得られないとしている。しかし、この研究は対流現象がどのような形でカサ密度に影響を与えるかについては述べていない。これらの対流現象や偏析による大粒子の浮上現象については筆者らがすでに報告している<sup>3), 4)</sup>。

#### b) 久野の研究

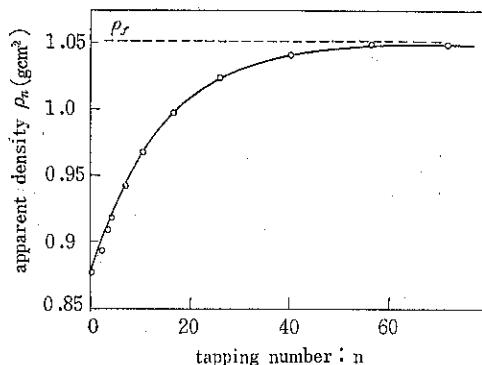
久野ら<sup>5)</sup>はタッピング充てんの実験の結果、粉体のカサ密度の衝撃回数  $n$  による変化は (Fig. 1) のようになり、回数  $n$  が増すとともに最終カサ密度  $\rho_f$  に近づく。 $\rho_f$  の逆数が通常用いられている見掛け比容積である。粉体の初期カサ密度を  $\rho_0$ 、 $n$  回衝撃を与えた時のカサ密

\* 法政大学工学部機械工学科

(〒184 東京都小金井市梶野町3-7-2)

\*\* 株式会社 セイシン企業試作チーム

(〒162 東京都新宿区市ヶ谷本村町13 外濠スカイビル) Tel 03-267-2331



(ガラス粉末(粒径: 78μ 落下高: 5 mm))

Fig. 1 落下回数による充てんの変化

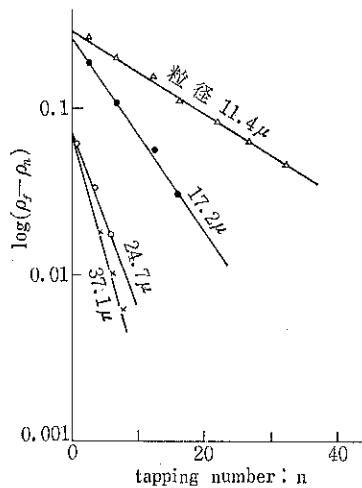


Fig. 2 ガラス球の充てんにおける  $\log(\rho_f - \rho_n)$  と  $n$  の関係

度を  $\rho_n$  とすれば、これらの関係は次式で表現できる。

$$\rho_f - \rho_n = (\rho_f - \rho_0) \exp[-kn]$$

$\log(\rho_f - \rho_n)$  と  $n$  の間には直線関係が成立する (Fig. 2)。定数  $k$  は充てんの速さなどに関する定数である。また久野式は前述の Roller の式と同一である。

### c) 種谷、曾根の研究

種谷、曾根<sup>6)</sup>は多くの食品粉体を用い、ずり変形による内部摩擦、衝撃によるタッピング特性などを測定してそれらの相互関係を明らかにしている。

タッピング特性については川北の圧縮式を応用し、

$$\gamma = ab \frac{N}{1+bN}$$

につき検討を行なっている。 $\gamma$  はひずみ度であり川北の式のかさべり度に相当する。N はタッピング回数、a, b は物質定数である。 $N \rightarrow \infty$  とすれば  $\gamma \rightarrow a$  になり、 $N \rightarrow \infty$  のときの粉体層の容積を  $V_\infty$  とすれば、 $a = (V_0 - V_\infty)/V_0$  ( $V_0$  は最初の粉体層の容積) になり、この関

係を上式に用いると、

$$b = \frac{V_0 - V}{N(V - V_\infty)}$$

となる。 $V_0 - V = V - V_\infty$  が成立するとき、すなわち無限値に達するひずみの丁度半分になるタッピング回数を  $N_r$  とすれば  $a = 1/N_r$  となる。b は粉体の流動性をあらわす定数である。いま  $a$  (タッピング極限ひずみ度)  $1/N_r$ ,  $\tan \alpha$  ( $\alpha$  は内部摩擦角) につき数值を示すと Table 1 のごとくなる。

Table 1 粉体の内部摩擦およびタッピング特性  
(曾根、種谷)

Sample	$\alpha$ -value		$1/N_r$	$\tan \alpha$ (Internal friction)
	Cal.	Meas.		
Lactose	$\times 10^{-1}$	$\times 10^{-1}$	$\times 10^{-1}$	0.46
Starch	3.3	2.8	3.7	0.40
Cocoa	2.9	2.9	3.9	—
Sugar	2.6	2.5	3.2	—
Ice cream powder	2.6	2.5	2.3	0.60
Skim milk powder	2.2	2.1	6.0	0.65
Whole milk powder	2.2	2.1	6.2	0.70
Starch (soluble)	2.1	1.7	4.8	0.58
Whey powder	1.6	1.6	8.3	—
Flour	1.1	1.0	9.6	—
Green tea powder	2.5	2.0	3.4	0.46
Cream powder	3.2	2.7	2.9	—
Instant cocoa	2.7	2.3	6.8	—
Instant milk powder	2.2	1.4	9.1	—
Bean-flour	1.3	0.9	17.5	—
Instant juice	2.5	2.0	2.3	—
Instant coffee	1.8	1.6	4.9	—
Salt	1.6	1.6	6.0	—
Starch (potato)	1.9	0.8	5.2	—
Butter milk powder	0.9	0.9	11.4	—
	—	—	—	0.23

### d) 荒川のタッピング圧縮式中の定数比較の研究

荒川<sup>7)</sup>はタップ充てんの川北式に着目し、ホワイトアランダム微粉体について Fig. 3 のようにきわめてよい直線関係を示す結果を得た。常法によってその傾きと切片から定数  $a_T$  と  $b_T$  を求めると Fig. 4 のようになる。ホワイトアランダムについては粒度と  $a_T$ ,  $b_T$  の関係は、 $a_T$  に関しては粒子径の減少とともに大きくなることを観察している。しかし、 $b_T$  については 3μ付近において極小値を示したことはきわめて興味がある。

荒川は、またタッピングの川北式と久野式  $\rho_f - \rho_n = (\rho_f - \rho_0)e^{-kn}$  ( $\rho_0, \rho_f, \rho_n$  はそれぞれ充てん前後および  $n$  回タッピングしたときの見掛け密度,  $k$  は充てんされやすさを示す定数) を比較検討し、定数  $k$  (この場合タップ

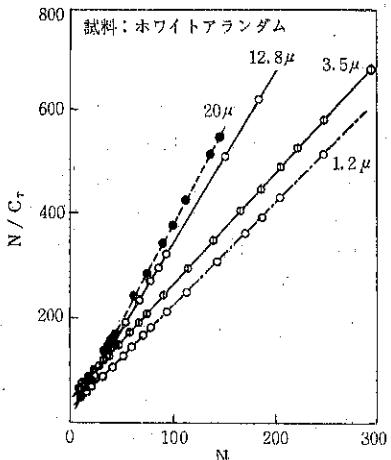


Fig. 3 N と  $N/C_T$  の関係の一例 (荒川)

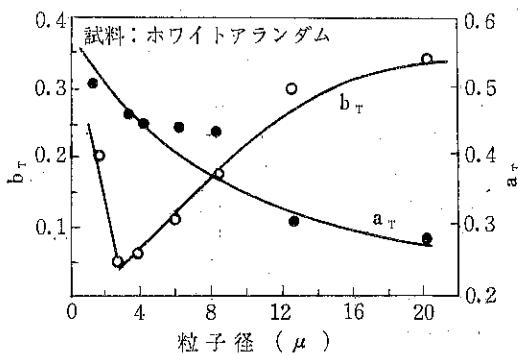


Fig. 4 定数  $a_T$ ,  $b_T$  と粒子径との関係 (荒川)

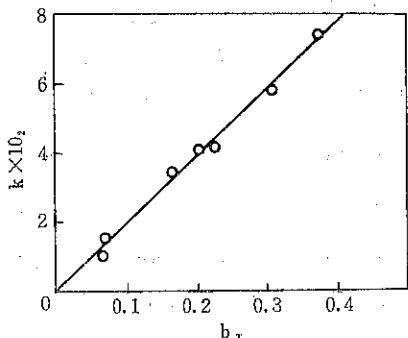


Fig. 5  $k$  (久野式) と  $b_T$  (川北式) の関係 (荒川)

初期の  $k$  の値をとる) と川北式の定数  $b_T$  との間には Fig. 5 のように完全な相関性のあることを報告している。

要するにタッピング充てんの場合、川北式の  $b_T$  の逆数、 $1/b_T$  は粉体粒子の凝集力(付着力)に関係のあることは明らかである<sup>21)</sup>。この場合  $1/b_T$  はタッピング回数であらわされるが、ピストン圧縮の場合のように圧力のディメンションで表現できれば、粉体粒子の重力と付着力のバランスのくずれから考察して新しい発展が期待できる。

きる可能性がある。

#### e) 森岡、池上、中島の研究<sup>8)</sup>

タッピングによる粉体容積の変化を表わす実験式を久野式、栗田式、川北式、に限って用い、医薬品の賦形薬として使用されている粉体についてどの式が最もよく実測値に合致するかの実験を行なった。その結果、川北式を適用した場合によく一致することを報告している。彼らが用いた実験式は次のとおりである。

##### 1) 久野式

$$\rho_f - \rho_n = Ae^{-kn}$$

$\rho_f$  : 最終カサ密度

$\rho_n$  : n回タッピングの時のカサ密度

A, k : 定数

##### 2) 栗田の沈降式:

$$Y = \frac{A}{\sqrt{2\pi}} \exp[-B(\log X - C)^2]$$

$Y$  :  $(H_t - H_u)/(H_o - H_u)$

X :  $t_n/t$

$H_t$  : t 回タッピングした時の沈降容積

$H_u$  : 初期容積

$H_o$  : サスペンションの初期容積

$t_n$  : タッピング回数

A, B, C : 定数

##### 3) 川北式

$$C = \frac{abn}{1+bn} \text{ or } \frac{n}{C} = \frac{1}{ab} + \frac{1}{a}n$$

C :  $(V_o - V_n)/V_o$

$V_o$  : 容器容積

$V_n$  : n回タッピング後の容積

a, b : 定数

#### f) 青山の研究

青山<sup>9)</sup>はタンクスチレン粉末を用いてタッピング密度特性について実験を行なった。青山は最終カサ体積とタッピング圧縮式との関係を論じるとともに再現性についても考察している。タンクスチレンを含む粉末冶金用材料のタッピング圧縮式として、10回以上のタッピング回数の範囲で次のような実験式を得ている。

$$\frac{N}{V} = p + qN \quad N : \text{タッピング回数}$$

V : 見掛け容積

p, q : 定数

また、タッピング回数の増加に対する気孔率の減少勾配は  $1/N^2$  に比例し、最終カサ体積  $V_\infty$  を用いればたやすくタッピング密度が求められかつ変動が小さいことを報告している。

#### g) 大塚、砂田、壇上の研究<sup>10)</sup>

タッピング充てんの場合粒子の受ける衝撃力は落下高

さHに関係しこれが粉体層の空隙率に影響を及ぼすと考えられる。大塚らは  $\text{CaCO}_3\text{-H}$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を用いて実験し、次のような実験式を得た。

$$\epsilon = K \left( \frac{1}{m \cdot g \cdot H} \right)^n + 0.26$$

あるいはWを粒子を引き離すに要する仕事と考えると次式のようにも変形できる。

$$\epsilon = K_0 \left( \frac{W}{m \cdot g \cdot H} \right)^n + 0.26$$

この式はタッピング高さHが導入されている点で興味ある式である。Hが増加すれば $\epsilon$ は減少することは明らかであり、ただHをあまり大きくすると粒子のはねかえりのためにかえって $\epsilon$ が増加するという報告もあるが、大塚らの実験範囲 ( $1\text{mm} < H < 30\text{mm}$ ) ではその現象は確認されていない。

#### h) 金庭、池川の研究

金庭ら<sup>11)</sup>は粉末薬剤を用いてタッピング充てんの実験を行ない種々の実験式への適用性を検討するとともに、溶媒中の充てんも試みている。また金庭らの実験で適用性をみなかったホウ砂、ホウ酸について吉岡の式を拡張して実験式を得ている。実験の結果、粉末薬剤は川北式、久野式、によく一致することを報告している。とくに川北式は川北の圧縮式のPをnに置き換えることによって拡張導かれた点に着目して、従来報告されている粉体圧縮式を拡張して適用性を調べた。その結果、久野、川北、Balshin、Jones、の式は細かい粉末の空気中でのタッピング充てんに適用でき、とくに Balshin、Jones、吉岡の式は大きな粒子の溶媒中のタッピングに比較的よくあてはまることを報告している。また彼等は次のような実験式を提案した。

$$d(\epsilon_0 - \epsilon_n)/dn = p \{ \log_1 / (\epsilon_0 - \epsilon_n) \}^{q-r}$$

$\epsilon_0$  : 初期空隙率

$\epsilon_n$  : n回タッピングした時の空隙率

p, q, r : 定数

この式は対数関数形であることと第2項に定数項rを含む点で従来の式と異なる。またp, q, rと粒径、安息角、空隙率との関連性および川北式、久野式の定数との比較検討も行なった。

#### i) 小林、鈴木、河地、佐能の研究<sup>12)</sup>

彼らはタッピング圧縮式を理論的に求め実験への適用を検討した。とくに初期の圧縮過程を調べるために一度充てんした粉体層に送風し、流動化させそれを静置した時の最疎充てんの状態からタッピングを行なった。充てんされた粉体層が次第に圧縮されていく際、粉体層が各衝撃ごとに受ける力の和  $f(N)$  [ $\text{dyn} \cdot \text{cm}^{-2}$ ] と粉体層内の付着力 C [ $\text{dyn} \cdot \text{cm}^{-2}$ ] との総和はn回タッピング

をくり返した時の粉体層の容積 V [ $\text{cm}^3$ ] と最終の容積  $V_\infty$  [ $\text{cm}^3$ ] との差  $(V - V_\infty)$  [ $\text{cm}^3$ ] すなわち、さらに粉体層が密に凝集しうる容積に逆比例すると仮定する。K [ $\text{dyn} \cdot \text{cm}$ ] を定数として

$$(f(N) + C)(V - V_\infty) = K \quad \dots\dots(1)$$

ここで  $f(N)$  を次のようにおく。質量m [g] の粉体層が高さ h [cm] を落下し急に停止する時、その運動量の変化は  $(\sqrt{2gh} \cdot m)$  [ $\text{dyn} \cdot \text{g}$ ] である。そこである時間内にn回衝撃がくり返されると、運動量の変化に相当する力によって粉体が圧縮され、凝集してゆくとすれば、円筒容器の断面積を  $S_c$  [ $\text{cm}^2$ ] とする時、次式を得る。

$$f(N) = \sqrt{2gh} \cdot m \cdot n / S_c \quad \dots\dots(2)$$

式(1)から

$$V = \frac{\frac{K}{C}}{\frac{f(N)}{C} + 1} + V_\infty \quad \dots\dots(3)$$

そこで  $n=0$  の時 V を  $(V)_{n=0}$  と書くと

$$(V)_{n=0} = V_0 = \frac{K}{C} + V_\infty \quad \dots\dots(4)$$

これを(3)へおきかえると

$$V = \frac{V_0 - V_\infty}{\frac{f(N)}{C} - 1} + V_\infty \quad \dots\dots(5)$$

ここで粉体の真の容積を  $V_p$  [ $\text{cm}^3$ ] とし、

$$a' = \frac{V_0 - V_p}{V_p}$$

とおきかえて(5)を代入すると次式を得る。

$$\frac{f(N)}{a'} = \frac{1}{(a')_{V=V_0}} f(N) + C$$

これは川北式と本質的に同じである。

これらの圧縮式のどれか一つが全ての粉体のタッピング圧縮に適用されることはないが比較的適用範囲が広く、よく用いられるのは川北式である。しかし川北式の適用粉体は医薬品、食料品のように比較的“フワフワ”した粉体である。さて筆者は前に粉体の圧縮に際しての圧力と容積変化との関係を表わす種々の実験式を検討し、その結果、これらの実験式が(Table 3)で示されるような(A), (B)の二つのタイプに分類できることを報告した<sup>13)</sup>。

ただしこの表中の Nutting 式は従来の圧縮式の時間 t を一定とし応力 f を圧力 P とおいたものである。タッピング圧縮の場合には応力 f は一定とみなすことができるから P のかわりに t をおきかえれば Nutting のタッピング式は同じ形式で表わすことができる。さらにタッピング速度が一定であれば P の代りにタッピング回数 N をおきかえたもので Nutting の式は同様に表わすことができる。すなわち次式のようになる。

Table 2 種々のタッピング圧縮式

Nutting	$\epsilon = \varphi^{-1} t^k f^\beta$	$\epsilon$ =volumetric strain, $f$ =compressive stress, $t$ =time, $\varphi, k, \beta$ =constants.
久野	$\rho_f - \rho_n = (\rho_f - \rho_0) e^{-kn}$	$\rho_0$ =initial apparent density, $\rho_n$ =apparent density at n times tapping, $\rho_f$ =final density, $k$ =constant.
川北	$C = \frac{abN}{1+bN}$	$C$ =relative reduction of volume, $N$ =tapping number, $a, b$ =constants.
曾根, 種谷	$r = \frac{abN}{1+bN}$	$r$ =ratio of volumetric strain, $N$ =tapping number, $a, b$ =constants.
青山	$\frac{N}{V} = p + qN$	$N$ =tapping number, $V$ =apparent volume, $p, q$ =constants.
大塚, 砂田, 塙上	$\epsilon = K \left( \frac{1}{mgH} \right)^{n'} + 0.26$	$\epsilon$ =porosity, $m$ =mass of a single particle, $g$ =gravitational acceleration, $H$ =falling height, $K, n'$ =constants
金庭, 池川	$d(\epsilon_0 - \epsilon_n)/dn = p \{ \log 1 / (\epsilon_0 - \epsilon_n) \}^q - r$	$\epsilon_0$ =initial porosity, $\epsilon_n$ =porosity under the applied, $n$ tapping
		$n$ =tapping number, $p, q, r$ =constants

Table 3 種々の粉体圧縮実験式 ( $\epsilon$ =空隙率,  $P$ =圧力またはタッピング回数,  $k$ =比例定数)

(A) : $-\frac{d\epsilon}{dP} = k\epsilon^x$ :	Athy (X=1), Kawakita (X=2)
(B) : $-\frac{d\epsilon}{dP} = k \frac{(1-\epsilon)^Y}{P^Z}$ :	Gurnham (Y=0, Z=1), Smith (Y=0, Z=2/3), Nutting (Y=1, Z=1), Balshin (Y=2, Z=1), Terzaghi (Y=2, Z=1), Jones (Y=3, Z=1)
(C) : (A)×(B) :	Ballhausen (A)×(B) (X=1, Y=1, Z=0), Cooper (A)×(B)+(B) (X=1, Y=1, Z=2)

$$\text{Nutting} : -\frac{d\epsilon}{dN} = K \frac{(1-\epsilon)^Y}{N^Z} \quad (Y=1, Z=1)$$

同様に久野式は

$$-\frac{d\epsilon}{dN} = K\epsilon$$

すなわち久野の式は Athy の式の圧力  $P$  の代りにタッピング回数  $N$  をおいたものに他ならない。また川北のタッピング式も  $P$  の代りに  $N$  をおいたものに他ならない。

$$\text{川北} : -\frac{d\epsilon}{dN} = K\epsilon^2$$

この圧縮式の分類と粉体特性の関係はおおまかには、タッピング回数の増加につれて空隙率は急速に減少しかしも全体の減少量が大きい粉体は(A)型の式とくに川北式に最もよく適合し、タッピングの初期において空隙率が急激に減少したとは殆んど変らずしかも全体の変化量が少ないタイプの粉体は(B)型の式、とくに Nutting の式に最もよく適合する。

いくつかのタッピング圧縮式をあげたが他に Neumann は各種粉体について充てん体積の時間的変化を調べ Nutting の式が適用できることを報告している<sup>14)</sup>。 Nutting の式は時間の項を含むことで他の圧縮式とは

異なる。以上の圧縮式をまとめると (Table 2) になる。

### 3. むすび

タッピング圧密の場合、空隙の減少の様子は大別して 2 つの型に分けられる。これは粉体粒子の形状や粒子径にある程度の原因があるようではあるがそれだけでもないようである。とくに粉体粒子の付着力または流動性もしくは圧密度のような粉体集合体としての特性を調べるとき、粒子形状や粒子径が直接関係してくるので、むしろタッピング圧密から付着力や流動性のような総合特性を知るようにしたほうがよさそうである。荒川の研究のように圧縮式の定数について吟味し、その定数を粉体特性の指標にしてみたほうがよい。タッピング圧密の方法の問題点として次のようなものがあげられるだろう。またこのなかにはタッピング装置の問題点もあげておきたい。

1) 初期容積の決定法を明確にしておく、初期容積のいかんが圧密体の測定値のバラツキを決定することがなりあり、定重量圧密の場合とくにその傾向があり、

この問題を解決するには“フリイ充てん”がよい。

2) 最終体積の決定を明確にする。

一般にある回数タッピングするとそれ以上結まることのない最終体積を示すがこの最終体積の決定についても今後研究されるべきである。

3) タッピング速度の決定。

ほとんどの実験はタッピング速度を一定にしているが、タッピング速度を変えた場合についての研究も待たれる。

4) 圧密式中の定数の分析。

タッピング圧密を行なう場合、最終体積に至る迄の体積の減少はタッピング回数に比例することは確かであり、この比例のしかたを決定するであろう定数の分析がとりもなおさず粉体特性を知ることにもなる。

5) タッピング圧密試験器の問題点

現在国内で販売されているこの種の測定器は数種類あるがそれぞれに一長一短がある。そこで測定器を製作する場合の問題となる項目をあげてみる。

①タッピング高さ可変、②落下時の充てん容器の反発防止、③防音、④初期充てんを決定する装置を付属させる、⑤セルの容積目盛線を周囲にほどこす、⑥セルの大きさを何種類か用意する、⑦定容積測定に使用するすり切り可能なセルを用意する、⑧垂直方向（重力方向）の充てん率もしくは偏析の度合いを知るための各残切りはなし可能なセルを用意する、⑨タッピング中の粉体を観察しやすくする、この他にも細々に至れば切りがないが以上

の点には留意する必要がある。

### 参考文献

- 1) Roller, P. S.; Ind. Eng. Chem., 22, 1206~1208 (1930)
- 2) Roller, P.S.; Ind. Eng. Chem, 22, 1206~1208 (1930)
- 3) 川北, 津々見; 法政大学工学部研究集報第3号9報
- 4) 川北, 池田(正明); 「材料」 Vol22, No. 238, 624 ~627 (1973)
- 5) 久野; Proc. Fac. Eng. Keio Univ., 11, 1 (1958)
- 6) 種谷, 曽根; 応用物理 31, 483 (1962)
- 7) 荒川; 第3回粉体に対する討論会講演予稿集10月1 (1965)
- 8) 森岡, 池上, 中島; 薬剤学, 19, 119 (1959)
- 9) 青山; 粉体および粉末冶金, Vol. 18 No. 5 Jan (1972)
- 10) 大塚, 砂田, 檀上; 材料, 18, 189. Jan (1969)
- 11) 池川, 金庭, 青木; Chem. Pharm. Bull, 15 1441 (1967)
- 12) 小林, 鈴木, 河地, 佐能; 第10回粉体に関する討論会講演予稿集
- 13) 川北, 津々見; 材料, 14, (粉体特集号), 707 (1965)
- 14) B. S. Neumann; Flow Properties of Disperse Systems, 389, North-Holland Publ. Co. (1953)



## 参考資料

# 水銀圧入法ポロシメータによる多孔性物質の 細孔分布について

On the Pore-size Distribution of Porous Material measured  
by Mercury Method

諸橋 昭一\* 長谷川哲夫\*\* 鬼山 康広\*\*\*  
Syoichi Morohashi Tetsuo Hasegawa Yasuhiro Kabutoyama

## 1. はじめに

工業吸着剤や固体触媒には多孔性粉粒体が多く用いられている。このことは、多孔性物質の物理吸着あるいは化学吸着を利用して吸着分離や触媒反応を行なう場合において、処理能力や反応速度などを増大させようとするものであり、多孔性物質の細孔の構造と密接な関係がある。一方、陶磁器類、建築資材類、焼結金属類をはじめとして、各種物質が細孔の存在の多少あるいは細孔の構造によって、強度、硬度、乾燥収縮や通気率といった重要な諸性質が影響を受けることも当然である。

このような多孔性物質の細孔分布に関して、著者らは水銀圧入式ポロシメータを用いる測定を行ない、若干の知見を得たので実測資料として参考に供したい。

## 2. 試 料

測定に供した試料はTable 1に示す34種類で、大別すると、鉄鋼石類、レンガ類、触媒類、吸着剤類およびその他に分類できる。これらの試料の中には、常識的に考えて明らかに多孔性物質でないものも含まれてはいるが、ここでは、水銀圧入式ポロシメータによって若干なりとも圧力-変位曲線が得られたものはすべて多孔性物質とみなした。

水銀圧入法においては、細孔形状はすべて円筒状であると仮定して計測が行なわれる<sup>1)</sup>。しかし、実際の多孔性物質の細孔が必ずしも円形断面円筒状であるという保証はなく、むしろその多くは曲折した不規則形状のもの

であるとするのが真実であろうが、ここではすべて円筒形であるとみなして計測を行なった。また、Table 1には比重ビンによる測定方法（JIS Z8807 固体比重測定方法2）で測定した試料の真比重と、標準ふるい法もしくはマイクロメータで測定した試料の粒子径を、水銀圧入法で計測した細孔容積と合わせて示した。

## 3. 測 定

水銀圧入法による細孔分布の測定は、はじめ Washburn<sup>2)</sup>によって考案され、Ritter と Drake<sup>1)</sup>が装置的に完成したものであり、本測定に用いた Caro-Erba 社（イタリア）製水銀圧入式ポロシメータ AG・65型もこの原理によるものである。

すなわち、まず細孔の形状は円筒状であると仮定される。つぎに、水銀は固体を濡らさないから常圧下においては半径 75000Å 以下の細孔に侵入することはできないが、外部から圧力  $P [Kg/cm^2]$  を加えると、表面張力との関係から水銀は(1)式の関係で与えられる半径  $R [\text{\AA}]$  以上の細孔には侵入することができる。

$$-2\pi R \gamma \cos \theta = \pi R^2 P \quad \dots \dots (1)$$

ここで、 $\gamma$  は水銀の表面張力 [ $dyne/cm$ ]、 $\theta$  は水銀と固体との接触角である。

(1)式は(2)式のように書きかえられ、水銀の  $\gamma$  の値を 480、 $\theta$  の値に  $140^\circ$  を採用すると、細孔半径と圧力との関係は(3)式のようになる。

$$RP = -2\gamma \cos \theta \quad \dots \dots (2)$$

$$R = 75000/P \quad \dots \dots (3)$$

ここで、使用したポロシメータは、 $P = 1 Kg/cm^2$  から  $1000 Kg/cm^2$  まで変化させられるので、測定可能な細孔半径の範囲は  $75000\text{\AA}$  から  $75\text{\AA}$  となる。

測定に際しては、まずデイラトメータに適量の試料を

\* 富山大学工学部化学工学科沢畠研究室

(〒933 高岡市中川園町1-1) Tel 0766-21-2510

\*\* 現在明治製菓株式会社

\*\*\* 現在中越機械株式会社

Table 1 Samples and their pore volume

Samples	Particle diameter [mm]	Specific gravity [—]	Pore volume [cm <sup>3</sup> /g]
Haematite	4 ~ 9	4.53	0.349
Limonite	2 ~ 9	4.43	0.0792
Magnetite	2 ~ 5	4.39	0.0143
Sintered iron ore	5 ~ 9	3.41	0.0118
Iron ore pellet (A)	8 ~ 13	4.99	0.0601
Iron ore pellet (B)	8 ~ 15	4.91	0.0789
Iron ore pellet (C)	3.4 ~ 4.0	4.54	0.0593
Dolomite brick before use	3.4 ~ 4.0	3.12	0.0106
Dolomite brick after use	3.4 ~ 4.0	3.40	0.0064
Alabster brick before use	3.4 ~ 4.0	2.60	0.0659
Alabster brick after use	3.4 ~ 4.0	2.58	0.0629
SiC brick before use	3.4 ~ 4.0	2.75	0.0281
SiC brick after use	3.4 ~ 4.0	2.66	0.0392
Graphite brick before use	3.4 ~ 4.0	1.95	0.0705
Graphite brick after use	3.4 ~ 4.0	1.97	0.0578
Isolite brick	3.4 ~ 4.0	2.72	0.0649
Schamotte brick	3.4 ~ 4.0	2.58	0.0458
Hydrogenation catalyst (A)	4 ~ 10	2.38	0.387
Hydrogenation catalyst (B)	4 ~ 10	2.48	0.382
Hydrogenation catalyst (C)	4 ~ 10	2.10	0.389
Silica alumina	1.5 ~ 2.2	1.20	0.0268
Silica gel	2 ~ 5	—	0.0124
Activated charcoal	3.4 ~ 4.0	1.85	0.507
Charcoal	3.4 ~ 4.0	1.33	0.493
Calcium chloride (A)	2 ~ 3	—	0.0262
Calcium chloride (B)	3.4 ~ 4.0	—	0.149
Calcium chloride (C)	2 ~ 3	—	0.227
Graphite electrode (A)	3.4 ~ 4.0	1.96	0.0899
Graphite electrode (B)	3.4 ~ 4.0	1.97	0.0770
Silica sand	0.2 ~ 0.6	2.64	0.0600
Lime stone	3.4 ~ 4.0	2.73	0.038
Serpentine	3.4 ~ 4.0	2.66	0.0014
Sulphate dregs	1 ~ 2	4.27	0.174
P.V.C.	0.1 ~ 0.3	1.37	0.288

精粹して装入し、水銀充填装置に裝架して充分に脱気減圧してのちディラトメータ内を水銀で充满させる。このディラトメータを測定装置のオートクレーブ内に装填し、オートクレーブ内をエチルアルコールで充满させてから加压機構を作動させ、エチルアルコールを媒介としてディラトメータ内の水銀面を加压する。圧力の上昇に伴って水銀が細孔内に徐々に侵入してゆくと、ディラトメータ水銀面はそれに伴って低下するので、これを電気的に検出することによって各圧力下における細孔内水銀圧入量が、圧力一変位曲線として円グラフに記録される。このようにして得られた圧力一変位曲線から細孔容

積、積算細孔分布および細孔分布曲線が得られる。この計測操作において重要なことは、試料無封入の状態における圧力一変位曲線を求め、加压下における水銀の圧縮量を求めて、実測データを補正することである。

#### 4. 細孔分布

圧力一変位曲線から、75000~75Åの範囲を100%として細孔の積算分布を求め、片対数方眼紙にプロットすれば Fig. 1~3 のようになる。

これらの積算分布に対して、何らかの法則性が成立するかどうかを検討する目的で、実測結果を Rosin-Ram-

mller 線図紙、正規確率紙、対数確率紙、両対数方眼紙および片対数方眼紙にプロットした結果、測定された全範囲にわたって積算分布が直線性を示すものではなく、ある一部の範囲で直線性を示すものがほとんどであった。わずかに、鉄鉱石およびそれらのペレットが全般的にわたくて対数確率分布に従うだけで、その結果を Fig. 4 に示す。

ところで、Ritter と Drake<sup>1)</sup>は細孔分布の分布関数を次のように導出した。すなわち、 $R$  と  $R+dR$  の間に半径を有する細孔の容積を  $dV$  とし、分布関数を  $D(R)$

とすれば、

$$dV = D(R)dR \quad \dots\dots(4)$$

(2)式から

$$PdR + RdP = 0 \quad \dots\dots(5)$$

(4), (5)両式から

$$dV = -D(R) \frac{R}{P} dP \quad \dots\dots(6)$$

ここで、デイラトメータで測定できる細孔容積は、全細孔容積  $V_0$  から細孔半径が  $R$  よりも小さい細孔容積  $V$  を差引いたものであるから、 $(V_0 - V)$  は圧力  $P$  の関数と

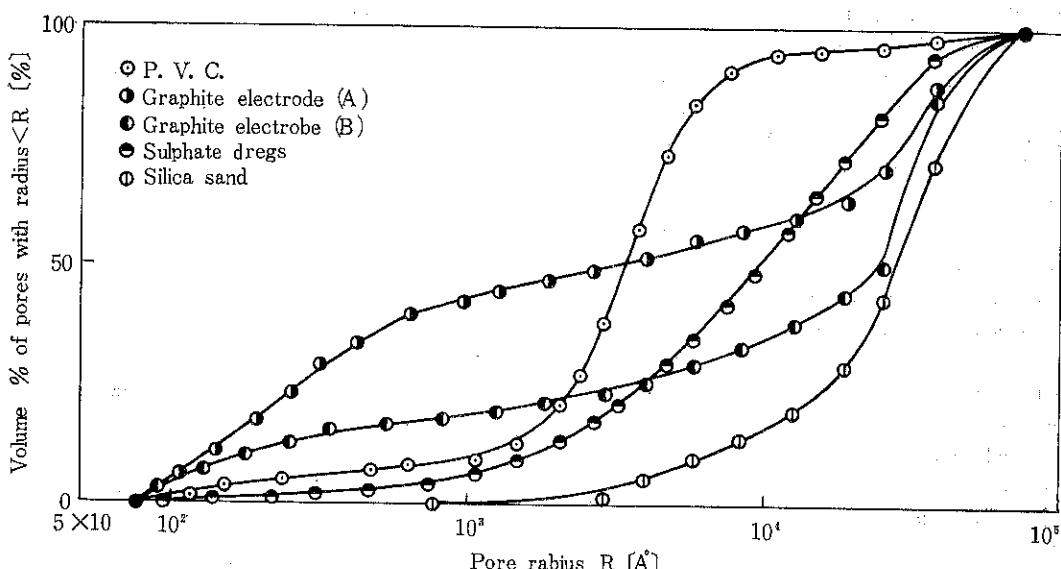


Fig. 1 Cumulative pore size distribution curve

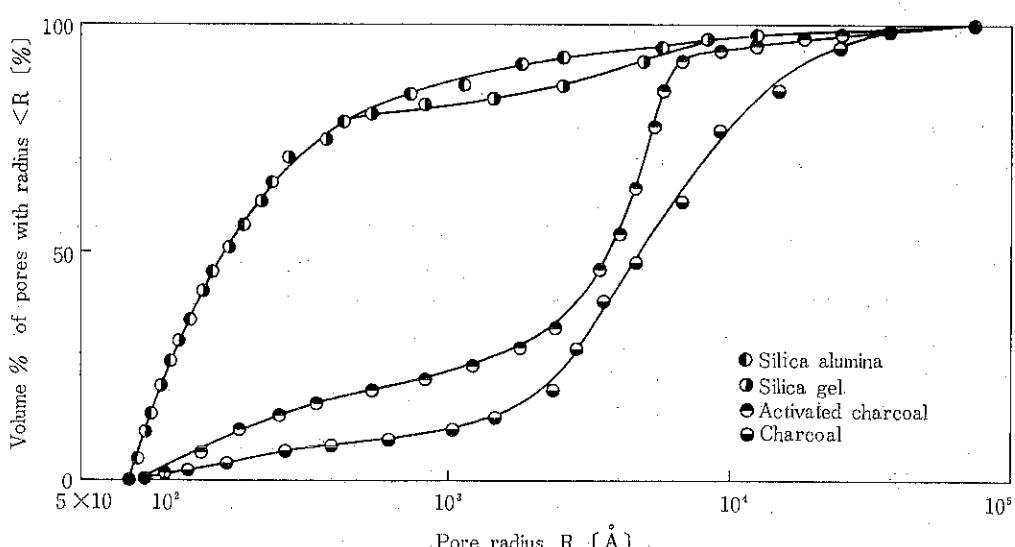


Fig. 2 Cumulative pore size distribution curve

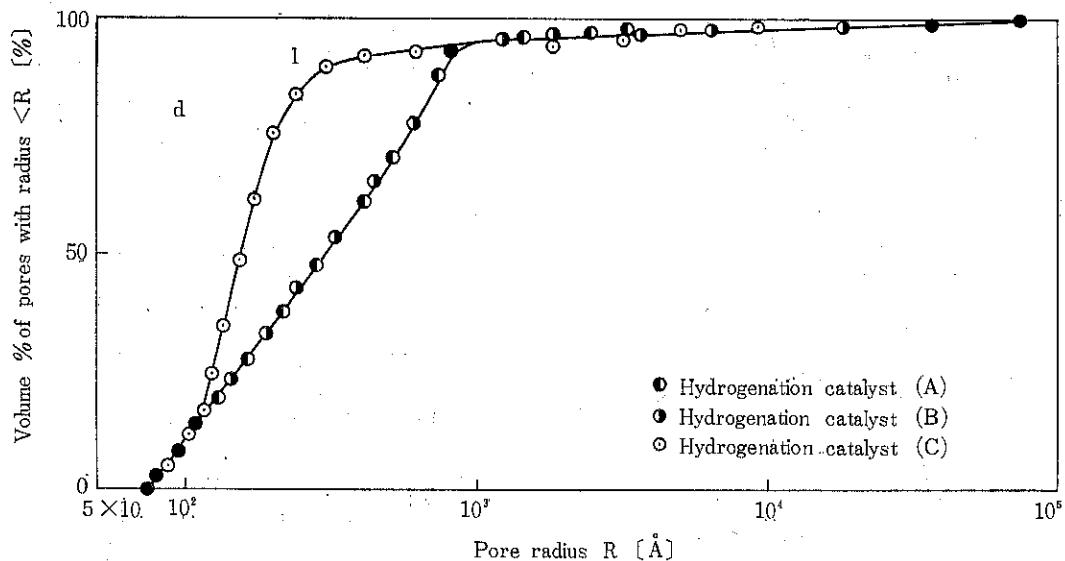


Fig. 3 Cumulative pore size distribution curve

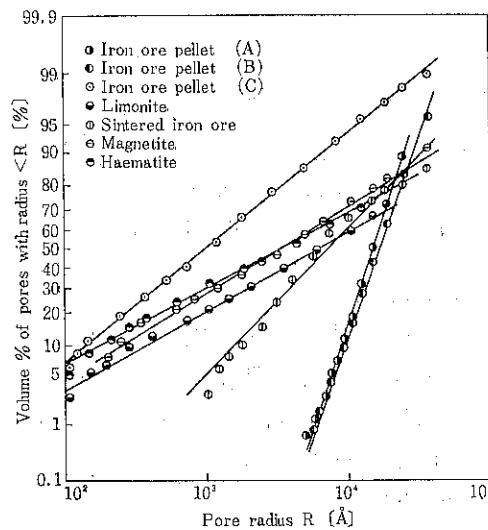


Fig. 4 Cumulative pore size distribution curve

なり、圧力曲線の傾き

$$\frac{d(V_0 - V)}{dP} = -\frac{dV}{dP} \quad \dots\dots(7)$$

は測定結果から求めることができる。

(6), (7)両式から

$$D(R) = \frac{P}{R} \frac{d(V_0 - V)}{dP} \quad \dots\dots(8)$$

の関係が得られるから、測定の結果得られた  $(V_0 - V)$  対  $P$  の圧力曲線から図上微分を行ない、各圧力における  $d(V_0 - V)/dP$  の値を求め、(3)式からその圧力における

細孔半径を求めれば、(8)式から細孔分布の分布関数  $D(R)$  が求められることになる。

Fig. 5 に蠣石レンガについて圧力曲線の態様を例示した。また、これらの結果から得られた細孔分布を Fig. 6 ~10 に示した。カーボン、ドロマイト、SiC、蠣石などを原料とするレンガ類は、イソライト、シャモット両レンガと異なり、使用の前後ともに複峰性の細孔分布を示し、SiC レンガにおいてはその複雑さは甚だしい。それに対して、イソライト、シャモット両レンガでは単峰性分布を示し、これらの分布の態様は使用前後の変化—Table 1 に示すように、細孔容積は蠣石レンガでは使用前後の変化に乏しいのに対して、ドロマイト、カーボン両レンガは使用後に減少し、SiC レンガでは使用後に増加している—is、その成因とともに今後の検討の対象

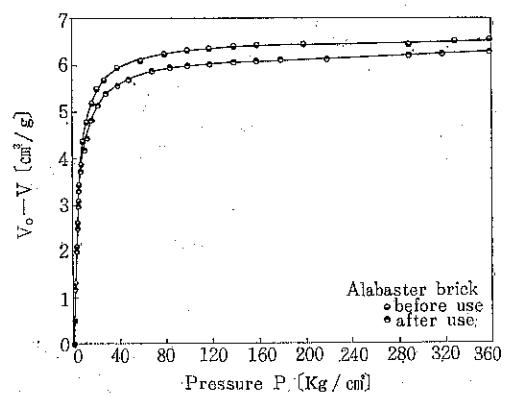


Fig. 5 Pressuring curve

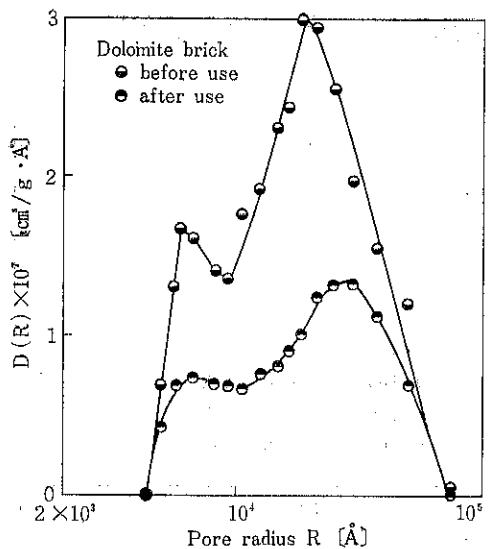


Fig. 6 Pore size distribution curve

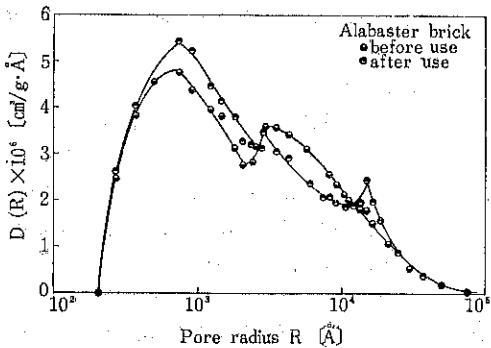


Fig. 7 Pore size distribution curve

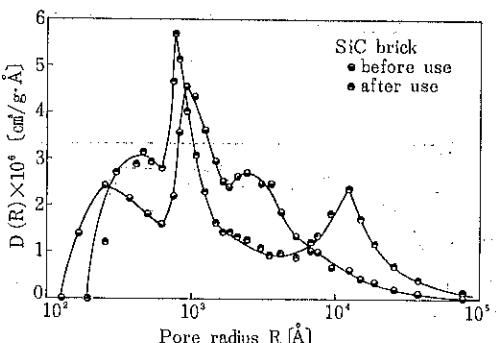


Fig. 8 Pore size distribution curve

とされるところである。

これらの細孔分布に対して、いかなる分布則が適用できるか、Gauss 分布関数、Maxwell 分布関数<sup>3)</sup>および修正 Maxwell 分布関数<sup>4)</sup>について検討した結果の一

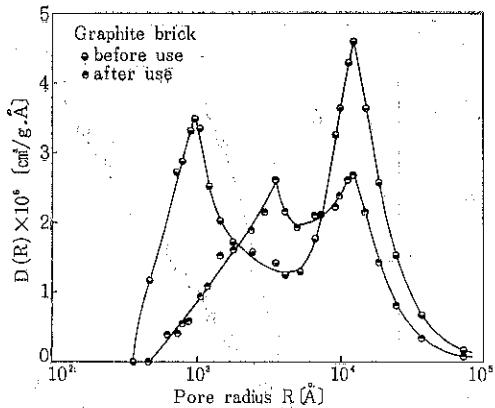


Fig. 9 Pore size distribution curve

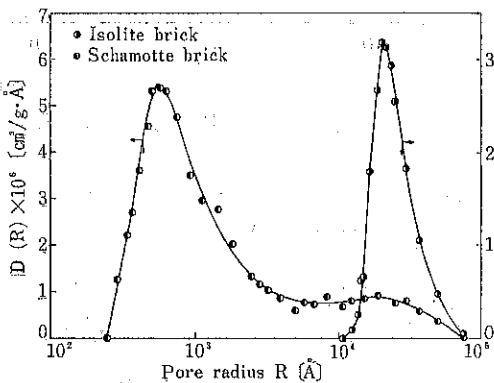


Fig. 10 Pore size distribution curve

例を示せば次のとおりである。

すなわち、まず Gauss 分布関数  $L_G(R)$  は

$$L_G(R) = A_G \exp\left[-\beta^2\left(\frac{R}{R_m} - 1\right)^2\right] \quad \dots(9)$$

で与えられる。ここで、 $L_G(R)$  は長さ基準の分布関数、 $R_m[\text{\AA}]$  は最大分布細孔半径、 $\beta$  はパラメータであり、定数  $A_G$  は(10)式で与えられる。

$$A_G = \frac{V_0 \beta}{R} \left(1 + \frac{1}{2\beta^2}\right)^2 \quad \dots(10)$$

(10)の  $\bar{R}[\text{\AA}]$  は平均細孔半径で(11)式で与えられる。

$$\bar{R} = R_m \left(1 + \frac{1}{2\beta^2}\right)^2 \quad \dots(11)$$

つぎに、Maxwell 分布関数  $L_M(R)$  は

$$L_M(R) = A_M \left(\frac{R}{R_m}\right) \exp\left(-\frac{R}{R_m}\right) \quad \dots(12)$$

で与えられ、定数  $A_M$  と平均細孔半径  $\bar{R}$  はそれぞれ次の式で求められる。

$$A_M = \frac{9V_0}{2\pi R^3} \quad \dots(13)$$

$$\bar{R} = 3R_m \quad \dots(14)$$

この長さ基準の分布関数  $L_M(R)$  と容積基準の分布関

数  $D_M(R)$  との間には

$$D_M(R) = \pi R^2 L_M(R) \quad \dots \dots (15)$$

の関係があるので、(12), (15)両式から

$$D_M(R) = A_M \pi R^2 \left( \frac{R}{R_m} \right)^n \exp\left(-\frac{R}{R_m}\right) \quad \dots \dots (16)$$

の関係が成立し、容積基準で細孔分布を表わすことができるうことになる。

修正 Maxwell 分布関数  $D'_M(R)$  は

$$D'_M(R) = A'_M \left( \frac{R^2}{R_0^2} \right)^n \exp\left(-\frac{R^2}{R_0^2}\right) \quad \dots \dots (17)$$

で与えられ、定数  $A'_M$ ,  $R_0$  および  $n$  はそれぞれ次の関係から求められる。

$$R_m = R_0 \sqrt{n} \quad \dots \dots (18)$$

$$D_m = A'_M (n/e)^n \quad \dots \dots (19)$$

$$\frac{(n/e)^n \sqrt{n}}{\Gamma(n+1/2)} = \frac{R_m D_m}{2V_0} \quad \dots \dots (20)$$

ただし、 $D_m [\text{cm}^3/\text{g} \cdot \text{\AA}]$  は  $R_m$  における  $D(R)$  の値で

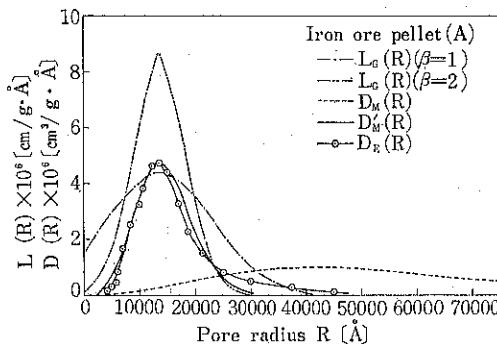


Fig. 11 Theoretical and experimental pore size

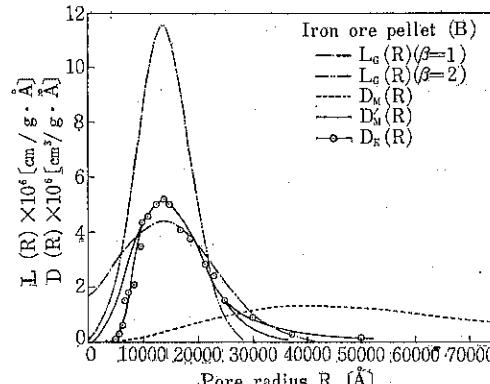


Fig. 12 Theoretical and experimental pore size distribution curve

ある。

以上の分布則のあてはめとして鉄鉱石ペレットについて計算した結果は Fig. 11~12 のように、修正 Maxwell 分布がもっともよく実測分布  $D_E(R)$  に適合していることがわかる。

## 5. おわりに

以上、34種類の試料について細孔容積と細孔分布を Carlo・Erba 社製の水銀圧入式ポロシメータで計測した結果得られた若干の知見について記した。

多孔性物質の細孔は必ずしも 75Å 以上ではなく、むしろ、ものによってはそれよりも微細な細孔の分布が推測されることから、多孔性物質の細孔分布については、さらに高圧力領域において測定することが望まれるであろうし、また、分布の態様はそれら細孔の成立とともに今後の検討の対象とされねばなるまい。著者らの計測対象および検討の範囲は、詳細な論議を行なうにはまだまだ不充分ではあるが、ここに記した若干の知見がこの種課題の今後の究明にいささかなりとも参考にされるとするならば幸である。

### 記号

$A_G$ ,  $A_M$ ,  $A'_M$ : 定数

$D(R)$ ,  $D_E(R)$ ,  $D_M(R)$ ,  $D'_M(R)$ : 分布関数

$[cm^3/g \cdot \text{\AA}]$

$D_m$ : 最大細孔半径における  $D(R)$  の値  $[cm^3/g \cdot \text{\AA}]$

$L_M(R)$ : 分布関数  $[cm/g \cdot \text{\AA}]$

$n$ : 定数  $[—]$

$P$ : 圧力  $[Kg/cm^2]$

$R$ : 細孔半径  $[\text{\AA}]$

$R_m$ : 最大細孔半径  $[\text{\AA}]$

$R_0$ : 定数  $[\text{\AA}]$

$V$ : 細孔容積  $[cm^3/g]$

$V_0$ : 全細孔容積  $[cm^3/g]$

$\gamma$ : 表面張力  $[dyne/cm]$

$\theta$ : 接触角  $[^\circ]$

## 引用文献

- 1) H. L. Ritter, L. C. Drake: Ind. Eng. Chem. (Anal. ed.), 17, 782 (1945)
- 2) E. W. Washuburn: Proc. Natl. Acad. Sci.: 1, 1115 (1921)
- 3) 森山昭: 粉体工学研究会誌, 2, 216 (1965)

## 川北粉体圧縮式の特性定数

Characteristic Constants in Kawakita's Powder Compression Equation

川北 公夫\*  
Kimio Kawakita

## 1. まえがき

粉体の圧縮は各種工業、特に製鉄工業（ペレットにする）、粉末冶金工業、合成樹脂工業、医薬品工業、セラミックス工業その他の化学工業に重要なプロセスであることは明らかである。したがって圧縮に関する研究は近来数多く発表され、いろいろな粉体圧縮式が提案されている。古くは Walker (1923)<sup>1)</sup>、Athy (1930)<sup>2)</sup>、Balshin (1938)<sup>3)</sup> らの式にはじまり、1940 年代には Smith<sup>4)</sup>、Shapiro, Kolthoff<sup>5)</sup>、Torre<sup>6)</sup>、Konopicky<sup>7)</sup> らの式、1950 年代には Murray<sup>8)</sup>、Ballhausen<sup>9)</sup>、川北<sup>10)</sup> らの式が提出され、その後数多くの式が提案されている。Table 1 はその一例を示したものである。Table 1において P は圧力、V<sub>0</sub> は粉体の初期体積、V は加圧下の体積、V<sub>∞</sub> は無限大に P を大にしたときの粉体体積、C<sub>1</sub>～C<sub>n</sub> は任意に決められた定数である。これらの圧縮式がいかにして求められたかを考察すると、

Table 1 Various compression equations

Walker	$\ln P = -C_1 \frac{V}{V_\infty} + C_2$
Balshin	$\ln P = -C_3 \left( \frac{V}{V_\infty} \right)^2 + C_4$
Jones	$\ln \left( \frac{V_0}{V} \right) = C_5 P^{C_6}$
Nutting Nishihara	$\frac{1}{V} - \frac{1}{V_0} = C_7 P^{1/3}$
Smith	$\frac{V - V_\infty}{V} = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} e^{-C_8 P}$
Athy	$\frac{V - V_\infty}{V} = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} e^{-C_9 P}$

Kawakita	$(V_0 - V)/V_0 = abP/(1+bP)$
Konopicky	
Sapiro-Kolthoff	
Torre	$\frac{V - V_\infty}{V} = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} e^{-C_{10} P}$
Murray	
Kunin-Yunckenko	
Heckel	$\frac{V - V_\infty}{V} = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} e^{-C_{11} P + C_{12}}$
Nikoleav	$P = C_{13} \frac{V_\infty}{V} \ln \left( \frac{V_\infty}{V - V_\infty} \right)$
Ballhausen	
Vernon	
Tsuwa	$\frac{V_0 - V}{V_0 - V_\infty} = \frac{C_{14} P}{1 + C_{15} P}$
Tanimoto	(Summarized indication)
Bockstiegel	$P = \sigma_0 \frac{V_\infty}{V - V_\infty},$ $\sigma_0 : \text{yield strength}$
Gurnham	$P = C_{16} e^{\frac{C_{17}}{V}}$
Cooper-Eaton	$\frac{V_0 - V}{V_0 - V_\infty} = C_{18} e^{-\frac{C_{18}}{P}} + C_{20} e^{-\frac{C_{20}}{P}}$
Shapiro	$\frac{V_\infty - V}{V} = C_{22} e^{-\frac{C_{22}}{P}} + C_{24} e^{-\frac{C_{24}}{P}}$
Terzaghi	$\frac{V - V_\infty}{V_\infty} = C_{26} \ln(P + C_{27}) - C_{28}(P + C_{29}) - C_{30} P + C_{31}$
Aoki	$\frac{V_0 - V}{V_0} = C_{32} P e^{a_3}$

1) 経験的に求められた実験式

2) 理論的に導かれた理論式

a) 確率論を基本概念としたもの

b) モデルを考えこれより導かれたもの

\* 法政大学工学部機械工学科

(〒184 東京都小金井市梶野町3-7-2)

Tel 0423-81-5341

c) 統計的手法により導かれたもの

d) その他

が過去の種々の論文から認められる<sup>11~60)</sup>。

これらの圧縮式の意義であるが、実用的価値はそれぞれの研究者がそれぞれの分野において適用し、圧縮プロセスの定量化または定常化に寄与していることは事実である。各工業の分野において適用性の広いものほど望ましいことは申すまでもない。

## 2. 各種圧縮式の吟味

粉体の圧縮式については、圧力と容積変化の関係を表現する式についても多数あるが、表現がまちまちがあるので一応比較しやすいように統一した記号で表現したのがTable 1であるが、Murray, Konopicky の式は Athy の式と本質的に同じであり、谷本、津和の式は川北の式と同じであり、西原の式は Nutting の式と同じである。したがって、これらの式を除いた残りの式について、空隙率  $\epsilon$  について、式自身に合理性があるかどうかをみると Table 2 のようになる。Table 2 より明らかのように式として合理的で、矛盾のないのは Athy と川北の式である。一般に実験式と称するものの中には式として自己矛盾のあるものもあるから、合理的でないといつて価値がないということはいえない。

梅屋<sup>51)</sup>はひずみ  $\epsilon$  と応力  $\sigma$  との間には圧縮係数を X

として、一般に  $\epsilon = X\sigma$  の関係があることから、粉体材料についての圧縮係数に対する考察を行なった結果、

$$\sigma = K \cdot \epsilon^{(1+a)} \quad \dots \dots (1)$$

の理論式を得た。ただし  $K$ ,  $a$  は定数、この式は

$$\epsilon = K^{-1/a} \cdot \sigma^{\frac{1}{1+a}} \quad \dots \dots (2)$$

と書き直すことができるから、Nutting の実験式と同じである。

若林<sup>49)</sup>、梅屋のような粉体材料の特性を考えて理論を構成する立場に対して、以下に述べる最上、早川、大矢根の理論のように、粉体をミクロ的な不連続体と考えて個々の粒子の充てん条件あるいは個々の粒子の圧縮抵抗から集合体としての粉体の力学的挙動を考察していく立場がある。

最上<sup>52,53)</sup>は、一定容積の中に粒子を分配する確率と熱力学的考察から次の理論式を得た。

$$P = K_0(V_0 - V) + NK \left( \frac{1}{V} - \frac{1}{V_0} \right) \quad \dots \dots (3)$$

ただし  $P$  : 圧力,  $V_0$  : 初期容積,  $V$  : 容積,  $N$  : 粒子の総数,  $K_0$  と  $K$  は定数である。 (3)式の右辺の第1項は弾性エネルギー変化の項であり、高圧でなければ第1項を無視して、

$$\frac{V_0 - V}{V_0} = \frac{(V_0/NK)P}{1 + (V_0/NK)P} \quad \dots \dots (4)$$

と書き替えることができるから、川北の式と本質的に同

Table 2 Comparison of porosities derived from various equations.

Author	Porosity ( $\epsilon =$ )	$P \rightarrow 0$	$P \rightarrow \infty$	Necessary condition
Balshin	$1 - \frac{c_4}{c_8 - \ln P}$	1	1	$c_4 \neq 0$
Smith	$\epsilon_0 - c_9 V_\infty P^{1/3}$	$\epsilon_0$	$-\infty (c_9 > 0)$ $+\infty (c_9 < 0)$	$c_9 \neq 0$
Ballhausen	$\frac{1}{1 + c_7 \cdot \exp(c_8 P)}$	$\frac{1}{1 + c_7}$	0	$c_8 \neq 0$ $c_7 \neq 0$
Jones	$1 - \left( \frac{c_9}{c_{10} - \ln P} \right)^{1/2}$	1	1	$c_9 \neq 0$
Athy	$\epsilon_0 \cdot e^{-c_{11} P}$	$\epsilon_0$	0	$c_{11} \neq 0$
Nutting	$1 - \left( \frac{V_\infty}{V_0} \right) e^{c_{12} P c_{13}}$	$\epsilon_0$	$\epsilon_0 \quad (c_{13} < 0)$ $-\infty (c_{12} > 0, c_{13} > 0)$ 1 $(c_{12} < 0, c_{13} > 0)$	$c_{12} \neq 0$ $c_{13} \neq 0$
Terzaghi	$1 - \frac{1}{1 - c_{17} \ln(P + c_{18}) - c_{19}(P + c_{18}) + c_{21}}$	$1 - \frac{1}{1 - c_{17} \ln c_{18} - c_{19} c_{18} + c_{21}}$	1	
Cooper	$1 - \frac{(V_\infty/V_0)}{1 - \epsilon_0 c_{22} \cdot \exp(-c_{23}/P)}$	$\epsilon_0$	$\frac{1 - c_{22}}{(1/\epsilon_0) - c_{22}}$	$c_{22} \neq 0$ $c_{23} \neq 0$
Kawakita	$\frac{\epsilon_0}{1 + (V_\infty/V_0) c_{24} P}$	$\epsilon_0$	0	$c_{24} \neq 0$

$\epsilon$ =porosity,  $\epsilon_0$ =initial porosity,  $c_1 \sim c_n$ =constants

じである。

なお、最上<sup>53)</sup>は上記の理論を改訂して、

$$S = \frac{1}{A} \log \frac{P-B}{P_0-B} \quad \dots \dots (5)$$

の式を提出している。ここで S : ピストンの変位、 A : ピストンの断面積、 P<sub>0</sub> : 初期加圧、 P : 圧力、 B : 定数である。この式は空隙変化よりみれば

$$\frac{dn}{dP} = \frac{V_\infty(1-n)^2}{(P-B)} \quad \dots \dots (6)$$

と書き替えることができるから、Terzaghi の式と本質的に等しい理論式を導き出したことになる。

早川<sup>54)</sup>は1個の球に対応する充てん空間を表わす単位細胞についてのエネルギー的な考察に粒子間のポテンシャルを導入し、粒子間ポテンシャルの関数としていろいろな型を考えることから、Athy 式、Balshin 式、川北式などを理論的に説明している。

大矢根<sup>55)</sup>は粉体内の個々の粒子の変形抵抗と、それら粒子の集合体としての粉体の力学的挙動とを関係づけることから次の理論式を得ている。

$$q = \frac{n(1-\epsilon_t)}{\pi(1-\epsilon)} \left\{ 200 \left( \frac{\mu\pi}{16} + \frac{1}{3} \right) \epsilon^2 + 140 \left( \frac{\mu\pi}{8} + \frac{1}{2} \right) \epsilon \right\} \quad \dots \dots (7)$$

ここで q : 垂直方向の圧縮応力、 ε : 圧縮率、 ε<sub>t</sub> : 真の密度になるまでの圧縮率、 n : 粒子の 1/8 球面に隣接する他の粒子の数、 μ : 粉体内部の内部摩擦係数である。(7)式は ε<sup>2</sup> の項 (ε < 1) を無視すれば、

$$\frac{V_0-V}{V_0} = \frac{(1/\alpha)P}{1+(1/\alpha)P} \quad \dots \dots (8)$$

と書き替えられるから、本質的には川北の式と同じである。ただし α は定数、(7)式における圧縮率 ε はかさべり度に相当する。

青木ら<sup>60)</sup>は各種圧縮式を検討し、ホワイトアランダム、炭酸カルシウム、フライアッシュを圧力 1~1600 kg/cm<sup>2</sup> にて圧縮した場合、Balshin, Ballhausen, Gurnham, 川北, Konopicky および Smith プロットの内川北プロットが比較的広範囲にあてはまるこことを報告している。このとき P 対 P/C を対数目盛でプロットすると広範囲に、より一層直線関係が得られることから、初期空隙率をある値に固定して調査した結果、

$$C = \frac{0.85 - \epsilon}{1 - \epsilon} = \alpha P^\beta \quad \dots \dots (9)$$

が実際に使用しやすい式であることを提案している。ここに C はかさべり度、 ε はある圧力のときの空隙率、 α, β は定数である。

佐野<sup>67)</sup>は粉体の高速圧縮の研究を行い、圧力計算のため川北式を変形した。

$$\rho = (1+bP)\rho_0 / \{1+(b-ab)P\}$$

で表わした場合、測定した約 7t/cm<sup>2</sup> までの圧力に対しよい適用性を認めている。a, b, ρ<sub>0</sub> は川北の式の定数、ρ はかさ密度である。

これらの式の多くの場合、粉体によって異なる定数を 2 個もっている。そして圧縮前の初期容積の充てん方法について、文献の上では特に慎重な考慮がなされていない。初期の見掛け容積 V<sub>0</sub> の一定化、定常化された値を必要とする。筆者は水平振動を用いて最疎充てんに近い初期充てんの定常化を得ることがよい方法<sup>68)</sup>と考えるがこれについては詳述しない。

さて圧縮式における定数であるが、これらはただの便宜上の定数や任意に決められた定数のようなもので、特定の意味や物性との関係を直接もつような定数でない場合が多い。

本論文はこれらの中川北式はその定数が粉体物性と直接または間接になんらかの関係を持っていると式の上からも容易に考えられ、またある程度実験によってもこれを確認することができたのでここに報告する。

### 3. 川北式の a

$$C = \frac{V_0 - V}{V_0} = \frac{abP}{1+bP} \quad \dots \dots (10)$$

ここで C は粉体の見掛け体積減少度、 V<sub>0</sub>, V, P は前述のとおりである。いま P を無限に大にした場合、 P → ∞ を考えると、 V → V<sub>∞</sub> となり、 bP ≈ 1 + bP と考え、

$$C_\infty = \frac{V_0 - V_\infty}{V_0} = a \quad \dots \dots (11)$$

が(10)式より求まる。ここに C<sub>∞</sub> は勿論 P → ∞ にした場合のかさべり度である。1 cm<sup>2</sup> 当り何十トンもの圧力を加えることは実際上では困難であるから、 V<sub>∞</sub> はどこまでも式の上の考え方である。しかし常識的に考えて、高い圧力では粉体粒子の変形や破壊がおこり、(11)式は一応初期の空隙率には近い値であろう。Table 3 は岸上、松本、服部ら<sup>61)</sup>の金属粉体の静水圧およびプレス圧縮実験の川北プロットによる a, b の値(図から求めた値)と実測値を示したものである。表より a は初期空隙率によく一致していることがわかる。このことは、

$$C = \frac{V_0 - V}{V_0} = \frac{\rho - \rho_0}{\rho} = \frac{(1 - \epsilon) - (1 - \epsilon_0)}{1 - \epsilon} \\ = \frac{\epsilon_0 - \epsilon}{1 - \epsilon} \quad \dots \dots (12)$$

の関係についても論じられる。(12)式において、 ρ は圧力 P のときのかさ密度、 ρ<sub>0</sub> は初期かさ密度、 ε は圧力 P のときの空隙率、 ε<sub>0</sub> は初期空隙率である。今 P → ∞ のとき、すなわち C<sub>∞</sub> について論すれば、 ε → ε<sub>∞</sub> → 0 の場合と考えられ空隙率は事実上 0 であることを認めざるを得ない。Table 3 の金属粉体の粒子密度の実測値は Table 4

**Table 3** Characteristic constants a and b in Kawakita's compression equation  
(M. Kishigami)

Powder	L/D	Isostatic pressing				Ordinary pressing			
		Value obtained from graphical method		measured value		Value obtained from graphical method		measured value	
		a	b*	Initial porosity	Initial apparent density	a	b*	Initial porosity	Initial apparent density
FePM	1	0.57	1.9	0.55	3.51	0.69	2.1	0.68	2.5
	2	0.57	1.7	0.55	3.51	0.67	2.6	0.68	2.5
	3	0.58	1.9	0.56	3.43	0.64	3.2	0.68	2.5
FeNC	1	0.61	1.8	0.59	3.15	0.66	1.5	0.69	2.4
	2	0.60	1.5	0.58	3.24	0.64	1.6	0.69	2.4
	3	0.62	1.6	0.60	3.12	0.61	1.7	0.69	2.4
FeAHC	1	0.55	1.7	0.54	3.57	0.70	1.2	0.68	2.9
	2	0.54	1.7	0.53	3.69	0.68	1.2	0.68	2.9
	3	0.55	1.7	0.54	3.63	0.67	1.4	0.68	2.9
Cu	1	0.69	4.0	0.69	2.79	*The value b obtained from Kawakita's P-P/C plot.			
Mo	1	0.66	1.7	0.67	3.33	L : Height of powder head.			
W	1	0.65	1.8	0.68	6.15	D : Diameter of powdered mass.			

**Table 4** Particle densities of metal powders used (M. Kishigami)

Kind of powder	Symbol of powder	Particle density	Particle size
Electrolyzed Copper	Cu	g/cm <sup>3</sup> 8.91	125μ
Electrolyzed iron	FePM	7.85	125μ
Reduced iron	FeNC	7.71	125μ
Sprayed iron	FeAHC	7.83	125μ
Molybdenum	MO	10.22	4.2μ
Tungsten	W	19.3	2.9μ

に示す。Table 3 と 4 の関係について一言すれば、

$$C_{\infty} = \frac{V_0 - V_{\infty}}{V_0} = \frac{\rho_{\infty} - \rho_0}{\rho_{\infty}} = \frac{\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}}{1 - \epsilon_{\infty}} \quad \dots(13)$$

において、 $\epsilon_{\infty} \rightarrow 0$  とすると、

$$\frac{\rho_{\infty} - \rho_0}{\rho_{\infty}} = \epsilon_0 \quad \dots(14)$$

となり  $\rho_{\infty}$  をここでは粒子密度におきかえることにより、Table 3 と 4 の相関関係がよく説明できる。すなわち定数 a は初期空隙率をあらわしていることが理論的にも実験的にも確認された。

#### 4. 川北式の b と川北タッピング式の $b_T$

(10)式を変形すると、

$$P/C = 1/a \cdot b + P/a \quad \dots(15)$$

となり、P/C と P は、もしあてはまるべしとすると直線関係になることは明かである。直線のタンジェントが 1/a であり、インターセプトが 1/a·b になり、図の上で a と b が求まる。1/b のディメンションは圧力をあらわしている。(15)式はピストン圧縮や静水圧圧縮に一般によく適用できるのみならず、タッピング（この場合 P の代りにタッピング数 N におきかえる）圧密にもよく適用される。

$$N/C_T = 1/a_T \cdot b_T + N/a_T \quad \dots(16)$$

ここに  $C_T$  は  $\frac{V_0 - V_{T\infty}}{V_0}$  ( $V_T$  はタッピングを N 回行ったときの粉体の見掛けの体積) にて示され、 $a_T$ 、 $b_T$  はともにタッピングの場合の定数である。このときの、

$$C_{T\infty} = \frac{V_0 - V_{T\infty}}{V_0} = a_T \quad \dots(17)$$

にて示され、ピストン圧縮や静水圧圧縮の場合の a とは本質的に相違し、充分タップされたかさべり度を示している。筆者は  $a_T$  をタップ限界かさべり度と名付ける。

タップ限界かさべり度  $a_T$  はタッピングを無限に行つたとき定常状態になるかさべり度を表わしているが、実際には千回以内にて定常の見掛け体積が得られ、定常的充てんとなり、 $a_T$  は

$$C_{T\infty} = \frac{\rho_{T\infty} - \rho_0}{\rho_{T\infty}} = \frac{\epsilon_0 - \epsilon_{T\infty}}{1 - \epsilon_{T\infty}} \quad \dots(18)$$

上式にて示されるように、タップによるかさ密度増加率でもある。ここに  $\rho_{T\infty}$ 、 $\epsilon_{T\infty}$  はそれぞれタップかさ

密度、タッピング限界空隙率を表わす。川北タッピング式において、物性的意味をもつものは、定数としての、

$b_T$  ..... タッピングされ易さ

$1/b_T$  ..... 付着力に関係ある定数

$a_T$  ..... タッピング限界かさべり度 ( $C_{T\infty}$ )

$\rho_{T\infty}$  ..... タッピングかさ密度

$\varepsilon_{T\infty}$  ..... タッピング限界空隙率

が重要であり、充てん性、圧縮特性、流動性などの関連性をつけることが必要であろう。

ただし  $b_T$  については、

$$C_T = \frac{V_0 - V_T}{V_0} = \frac{a_T \cdot b_T \cdot N}{1 + b_T N} \quad \dots \dots (19)$$

にてわかるように、タッピングにおける圧密係数ともいえる定数であり、圧密されやすさを表現している。タッピングの過程では、ピストン圧縮や静水圧圧縮のように粉体粒子の変形や破壊がまずおこりにくいと考えられるから、タッピングによって加えられたエネルギーは主として粉体粒子間の付着力を引離す方向に使用されるであろう。そのように考えれば  $1/b_T$ 、すなわちこれはタッピング数で示されるもので、この数の多いもの程付着力が大であろうと考えられる。 $(19)$ 式と $(19)$ 式より、

$$\frac{1}{b_T} = \frac{N(V_T - V_{T\infty})}{(V_0 - V_T)} \quad \dots \dots (20)$$

が求まる。いま  $V_T - V_{T\infty} = V_0 - V_T$  のとき、すなわち Fig. 1 に示す状態になったときは、

$$\frac{1}{b_T} = N \quad \dots \dots (21)$$

となり、 $1/b_T$  を比較する場合は最終点までタッピングをする必要はない。勿論  $N/C_T$  と  $N$  の直線関係の図からも  $1/b_T$  は容易に求められる。

次にピストンまたは静水圧圧縮の場合について述べる。 $(19)$ 式および $(21)$ 式から次の $(22)$ 式が導かれる。

$$P \frac{V - V_{\infty}}{V_0} = \frac{1}{b} \frac{V_0 - V}{V_0} \quad \dots \dots (22)$$

同様にして次の数種の式も導かれる。

$$\frac{V_0 - V}{V_0 - V_{\infty}} = \frac{bP}{1 + bP} \quad \dots \dots (23)$$

$$(P + \frac{1}{b}) (V - V_{\infty}) = \frac{(V_0 - V_{\infty})}{b} \quad \dots \dots (24)$$

\*  $(22)$ 式において  $\frac{1}{b} \rightarrow 0$   $V_{\infty} \rightarrow 0$  のような条件を粉体に与えれば

$$PV = \text{一定値}$$

となる。そのような場合は粉体粒子間付着力がゼロに近く、なお粉体粒子のネットの体積がゼロに近い状態を意味し、浮遊粉じんの場合は一応この場合に相当するであろう。すなわちこの場合の理想粉体とは浮遊粉じんを意味するであろう。

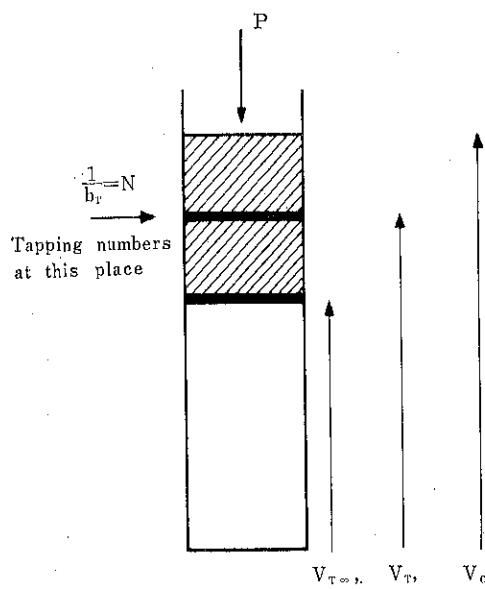


Fig. 1 Graphical representation of equation (21).

$$\frac{1}{b} = \frac{P(V - V_{\infty})}{(V_0 - V)} \quad \dots \dots (25)$$

$(25)$ 式において、いま測定の結果、定数  $b$ 、初期見掛け体積  $V_0$ 、粉体自体のみの体積  $V_{\infty}$  がある一定の条件で求まった場合、 $(25)$ 式は次のように書きかえられる。

$$(P + \frac{1}{b}) (V - V_{\infty}) = \text{一定値} \quad \dots \dots (26)$$

$(26)$ 式は丁度、瓦斯の van der waals 状態式に類似していて、その場合の物理的意味もまた類似しており、圧縮過程において、少くとも粉体粒子間の付着力の影響が優先する場合成立するであろうことは容易に考えられる\*。タッピングの場合も全く同様 $(26)$ 式より、

$$(N + \frac{1}{b_T}) (V_T - V_{T\infty}) = \frac{(V_0 - V_{T\infty})}{b_T} \quad \dots \dots (27)$$

が得られ、少くともこの式の  $1/b_T$  は粒子間付着力に關係ある定数であると考えても大差ないであろう。 $(22) \sim (25)$ 式は  $P$  の代りに  $N$  をおきかえればタッピングの式としても適用される。

さて $(26)$ 式であるが、いま

(i)  $bP$  が 1 に対して非常に大きい値である場合には  $(V_0 - V)/(V_0 - V_{\infty})$  は 1 に近づくであろう、また

(ii)  $bP$  が 1 に対して非常に小さい値である場合には  $(V_0 - V)/(V_0 - V_{\infty})$  は  $bP$  に近づくであろう。

また $(26)$ 式より

$$\frac{V_0 - V_\infty}{V_0 - V} = \frac{1}{bP} + 1 \quad \dots \dots (28)$$

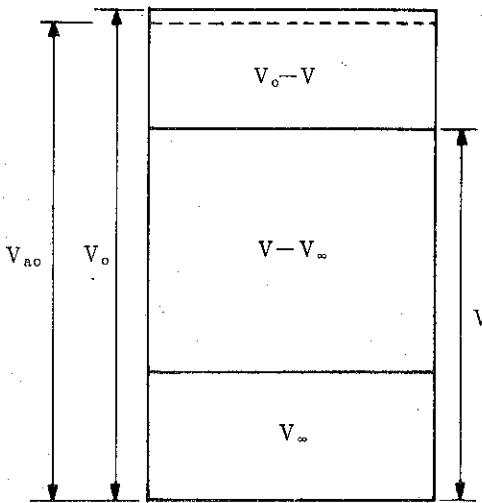
が導かれ、 $1/b$ は次式にて示される。

$$\frac{1}{b} = P \left( \frac{V_0 - V_\infty}{V_0 - V} - 1 \right) \quad \dots \dots (29)$$

(29)式において、一般には

$$(V_0 - V_\infty) > (V_0 - V)$$

が成立する。ただし  $(V_0 - V_\infty)/(V_0 - V) = 2$  の場合にはすなわち、 $V = \frac{V_0 - V_\infty}{2}$  のときには、 $1/b = P$  (30)となる。



$$P \times \frac{V - V_\infty}{V_0}$$

= Applied pressure

$$\times \frac{\text{Apparent volume remained}}{\text{Initial apparent volume}}$$

= Applied pressure

$$\times \text{Compressible volume fraction for initial volume}$$

= Applied pressure

$$\times \text{Remained compressible volume fraction}$$

$$Pb \frac{V - V_\infty}{V_{ao} - V_\infty}$$

$$= \text{Applied pressure} \times \text{Compressibility factor} \times \frac{\text{Apparent volume remained}}{\text{Initial pore volume}}$$

$$= \text{Applied pressure} \times \text{Compressibility factor} \times \text{Fraction of remained pore volume}$$

$$\frac{V_{ao} - V}{V_{ao} - V_\infty}$$

$$= \frac{\text{Decreased pore volume}}{\text{Initial pore volume}}$$

= Fraction of reduced pore volume

Fraction of remained pore volume

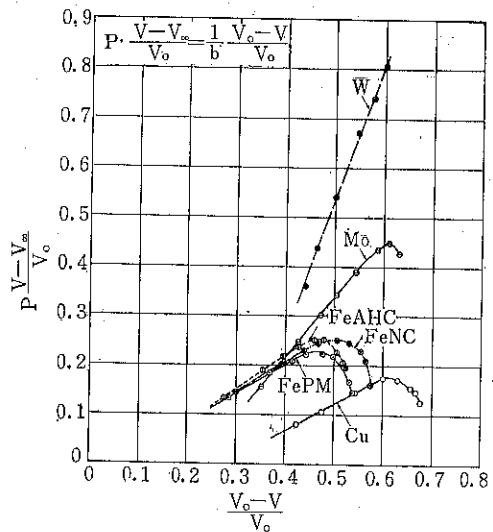
$$+ \text{Fraction of reduced pore volume} = 1$$

**Fig. 2** Graphical representation of equations (22) and (35)

さて(22)式であるが、左辺の  $P \cdot \frac{V - V_\infty}{V_0}$  について説明する。これは Fig. 2 にみられるように加圧力×残された圧縮体積部分比であり、一種の有効圧縮作用圧ともいえる。 $P \cdot \frac{V - V_\infty}{V_0}$  と  $\frac{V_0 - V}{V_0}$  の関係をプロットすると Fig. 3 のようになる。Fig. 3 の実験は Table 4 の金属粉体によって行ったものである。Fig. 3 より W は直線部分が続いているが、Fe, Cu になるに従ってかさべり度が 0.45~0.62 附近において折れまがりを生ずる。

いまこの折れまがりを生ずるときのかさべり度をかりに 0.5 とすれば、 $\epsilon = 2\epsilon_0 - 1$  より、初期空隙率  $\epsilon_0$  を 0.6 ~ 0.7 の値とすれば、そのときの圧力下の空隙率  $\epsilon$  は 0.2 ~ 0.4 となる。このことは充てん圧密が相当進んで最密状態に近づいていると考えられる (Table 5)。

Fig. 3 の直線部分より  $1/b$  を求めると Table 6 に示す値となる。この Table 6 の値は Table 3 に示す  $b^*$  の逆数の値と多少異なるが、その理由は  $P/C \sim P$  の関係は全圧力範囲のプロットであり、実際には比較的圧力の小である範囲は多少直線からのデバイエーションが認められることは sheinberg<sup>38)</sup> も青木ら<sup>60)</sup> も実験的に指摘し



**Fig. 3** Relationship between  $(V_0 - V)/V_0$  and  $P(V - V_\infty)/V_0$  (M. Kishigami)

**Table 5** Packing characteristics.

Type of packing	Number of contacts	Porosity (%)
Cubic	6	47.64
Orthorhombic	8	39.54
Rhombohedral	12	25.95
Tetragonal sphenoidal	10	30.19

Table 6 Characteristic constant 1/b in Kawakita's equation (M. Kishigami)

Powder used	Cu	FePM	FeNC	FeAHC	Mo	W
1/b(kg/mm <sup>2</sup> )	5.42	5.80	6.08	6.81	11.94	27.99

ている。p/c と P のプロットはどこまでも全圧力範囲の平均値の数値としての圧縮され易さ b\* を求めるためのものである。これに対して Table 6 の値は b が一定値を保つ低圧範囲、つまり Fig. 3 の直線部分から b を求めているのである。圧縮機構の上からいっても低圧範囲と高圧範囲とで当然異なるであろうし、粉体粒子の変形や破壊が余り起らぬ低圧範囲と変形や破壊が伴なう過程までの高圧範囲とでは厳密にいって b の値はそれぞれの範囲で異なるであろうと考えられる。全圧力範囲で決められた b の値 (Table 3) は全体の圧縮過程における圧縮され易さを示すことは事実であるが、b の具体的な意味を論ずる場合には妥当ではなく、Table 6 の値について論ずる方がより具体的である。

#### 4.1 降伏強度 (yield strength)

Table 6 の 1/b の値は、勿論それ自身圧力のディメンションをもっており、それぞれの金属の降伏強度の順と一致していて、さらにその値は一般の金属便覧にみられる降伏強度の値に非常に近い値となっている。少くとも降伏強度と深い関係をもつ値であるといふことができる。

中空の金属の球のモデルから導かれた Bockstiegel 式<sup>59,62~66)</sup>によれば

$$P = \sigma_0 \frac{V_M}{V - V_M} \quad \dots \dots (31)$$

ここに  $\sigma_0$  = 金属の降伏強度

V = 外部圧 P による加圧下の中空球の体積 (中空球内部の圧はゼロ)

$V_M$  = 中空球の金属の体積

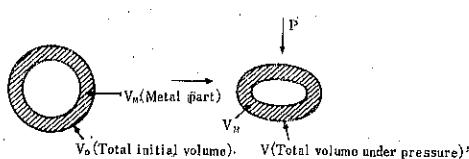
Fig. 4 に Bockstiegel のモデルを示した。

一方川北式は

$$\frac{V_0 - V}{V_0} = a \cdot \frac{bP}{1 + bP},$$

$$a = \frac{V_0 - V_M}{V_0} \quad (V_M = V_\infty \text{ とする}) \quad \dots \dots (32)$$

ここに式(31)と(32)について



Volume of pore ( $V_0 - V_p$ ) → Pore volume under pressure ( $V - V_p$ )

Fig. 4 Compression model of G. Bockstiegel

$$\left. \begin{aligned} \frac{V - V_M}{V_M} &= v \\ \frac{V_0 - V_M}{V_M} &= v_0 \end{aligned} \right\}$$

において川北式と Bockstiegel 式を比較すると、

川北式は

$$P = \frac{1}{b} \frac{V_0 - V}{v} \quad \dots \dots (33)$$

Bockstiegel 式は

$$P = \sigma_0 \frac{1}{v}$$

ここで Bockstiegel 式は確率的手法と空隙 (ポア) 変形の両見地より導かれたものであるから、 $\sigma_0$  を  $\sigma(v_0, v)$  で表わすと、

$$P = \sigma(v_0, v) \frac{V_0 - V}{v} \quad \dots \dots (34)$$

として表現できる。

式(33)と(34)を比較すると同形であることがわかる。川北式の 1/b は Bockstiegel 式の  $\sigma(v_0, v)$  に相当し、降伏強度に關係をもち粉体粒子塑性変形圧に關係する定数であり、またプリットルな粒子では粒子破壊圧に關係する定数であると考えることは妥当であろう。

#### 4.2 高圧範囲における b と充てん性

Fig. 3 の曲線のうち直線部分を延長して横軸との交点における体積を計算から求めることができる。この体積は静水圧成形の見掛けの初期体積と考えることができる。これを  $V_{ao}$  とし、この  $V_{ao}$  を使って  $V_{ao} - V$ ,  $V_{ao} - V_\infty$  を計算し(22)式を次の(35)式のように書き直した。

$$Pb \frac{V - V_\infty}{V_{ao} - V_\infty} = \frac{V_{ao} - V}{V_{ao} - V_\infty} \quad \dots \dots (35)$$

この式にしたがって、左辺および右辺を軸にしてプロ

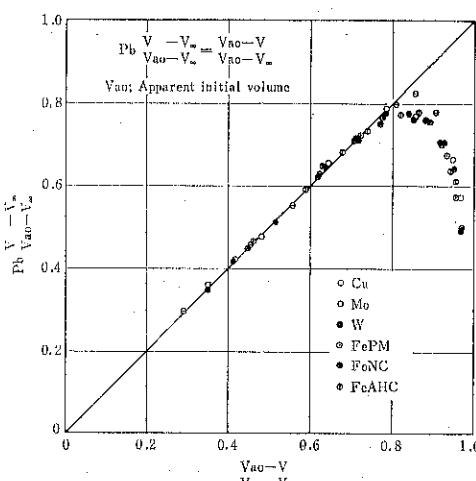


Fig. 5 Relationship between  $(V_{ao} - V)/(V_{ao} - V_\infty)$  and  $P \cdot b (V - V_\infty)/(V_{ao} - V_\infty)$  (M. Kishigami)

ットしたのが Fig. 5 である。Fig. 5 より明らかなようにいずれの粉体も同一曲線となることがわかった。このことは粉体の種類や物性に關係なく、 $(V_{a0}-V)/(V_{a0}-V_\infty)$  すなわち初期空隙容積に対するその減少の割合によって圧縮過程がきまつてくると考えられる。

$$\frac{V_{a0}-V}{V_{a0}-V_\infty} = \frac{\rho-\rho_0}{\rho_\infty-\rho_0} = \frac{(1-\varepsilon)-(1-\varepsilon_0)}{(1-\varepsilon_\infty)-(1-\varepsilon_0)}$$

$$= \frac{\varepsilon_0-\varepsilon}{\varepsilon_0-\varepsilon_\infty} \quad \dots \dots (36)$$

いま  $\varepsilon_\infty=0$  とすれば(36)式は

$$\frac{V_{a0}-V}{V_{a0}-V_\infty} = \frac{\varepsilon_0-\varepsilon}{\varepsilon_0} = 1 - \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \quad \dots \dots (37)$$

また

$$Pb \frac{V-V_\infty}{V_{a0}-V_\infty} = Pb \frac{\rho_\infty-\rho}{\rho_\infty-\rho_0}$$

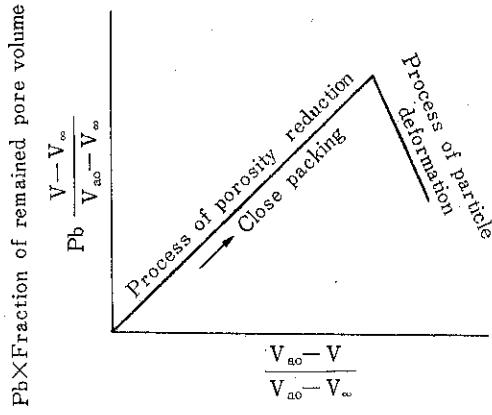
$$= Pb \frac{(1-\varepsilon_\infty)-(1-\varepsilon)}{(1-\varepsilon_\infty)-(1-\varepsilon_0)} = Pb \frac{\varepsilon-\varepsilon_\infty}{\varepsilon_0-\varepsilon_\infty} \quad \dots \dots (38)$$

いま  $\varepsilon_\infty=0$  とすれば(38)式は

$$Pb \frac{V-V_\infty}{V_{a0}-V_\infty} = Pb \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \quad \dots \dots (39)$$

にて示される。

Fig. 5 の曲線から明らかのように、まず  $(V_{a0}-V)/(V_{a0}-V_\infty)$  の値が 0.7 を境にして直線部分と曲線部分とにわけられる。すなわち  $(\varepsilon_0-\varepsilon)/\varepsilon_0$  が 0.7,  $\varepsilon/\varepsilon_0$  が



$V_{a0}$ =Apparent initial volume ( $\text{cm}^3$ ) obtained graphically from Kawakita's equation. (22).

$V$ =Volume under applied pressure.

$V_\infty$ =Net volume.

$P$ =Pressure (Kg).

The figure is plotted on the same line having no relation to (1) the kind of powder, (2) the particle diameter and (3) the particle size distribution.

Fig. 6 Schematic representation of compression process.

0.3 附近を境にして直線関係から大きくなづれてくる。いま初期空隙率  $\varepsilon_0$  を 0.6~0.7 とすると、 $\varepsilon$  は 0.2 附近の値となり、理論上の同大球の最密充てん率に近い値となる (Table 5)。従って  $1-\varepsilon/\varepsilon_0$  の値が 0.7 以上の範囲では当然粒子は塑性変形や破壊を起すと考えられる。いまこの関係を図解的に示すと Fig. 6 のようになる。

## 5. 結論

(1) 各種金属粉の静水圧縮実験から求めた川北式の定数  $a$  の値は初期充てんのときの空隙率とほぼ同じ値を示しているので、定数  $a$  は  $(V_0-V_\infty)/V_0$  にて示される。すなわち、

$$a=C_\infty = \frac{V_0-V_\infty}{V_0} = \frac{\rho_\infty-\rho_0}{\rho_\infty} = \frac{\varepsilon_0-\varepsilon_\infty}{1-\varepsilon_\infty}$$

上式の  $\varepsilon_\infty$  ( $P \rightarrow \infty$  の場合の空隙率) はゼロと考えてさしつかえない、 $a=\varepsilon_0$  が成立する。

(2) Table 6 の  $1/b$  の値はそれぞれの金属の降伏強度の順になっていて、その値自身も金属の降伏強度の値に近い数値を示していることから、 $1/b$  は降伏強度に深い関係をもっているということができる。

(3) 初めの空隙容積に対する減少した空隙容積の割合が 0.7、すなわち  $(V_{a0}-V)/(V_{a0}-V_\infty)=0.7$  までの低圧範囲では空隙減少過程が主たるプロセスであり、0.7 以上の高圧範囲では粉体粒子の塑性変形や破壊が起るプロセスに移行すると考えられる。

終りに臨み、筆者の粉体圧縮に関する基礎的研究について粉体粉末冶金協会の研究功績賞(1969)、水平振動かさ密度の測定なども含めて日本材料学会技術賞(1974)、不均一系諸問題の研究開発に關し東京都科学技術功労賞(1972)を授受した。関係各位、協同研究者故平井西夫岡山大学教授、大塚昭信教授、塙上和美氏(名城大学)、伊藤廣博士ら(元三共株研)、津々見雄文博士(法政大学教授)をはじめ化学関係の各位、石川島播磨重工技術研究所の服部一郎博士、岸上守孝氏ら、粉体充てんとタッピングの測定に關してはセイシン企業㈱植田玄彦社長ほかご一同各位に深く感謝の意を表する次第でございます。また川北圧縮式を応用し学界、業界に貢献された内外の各位に対し感謝と敬意を表する次第でございます。

## 引用文献

- E. E. Walker, The compressibility of powder, Trans. Faraday Soc., 83, (1923).
- L. F. Athy, Density, porosity and compaction of sedimentary rocks, Bull. Am. Assoc. Petr. Geologists, 1~24, (1930).

- 3) M. Y. Balshin, On the theory of metal-ceramic processes, *Vestnik Metalloprom*, 124~137, (1938).
- 4) G. B. Smith, Compressibility factor, development of a general formula, *Proc. Metal Powder Assoc.*, 29~35 (1948).
- 5) I. Shapiro, I. M. Kolthoff, The compressibility of silver bromide powders, *Journal Phys. and Colloid Chem.*, 483 (1947).
- 6) C. Torre, Theorie und Verhalten der zusammengepressten Pulver, *Berg-u. Hüttenmännische Monatschafte*, 62~67 (1948).
- 7) K. Konopicky, Parallelität der Gesetzmäßigkeiten in Keramik und Pulvermetallurgie, *Radex-Rundschau*, 141~148 (1948).
- 8) P. Murray, E. P. Rodgers, A. E. Willisams, *Trans. Brit. Ceram. Soc.*, 474 (1954).
- 9) C. Ballhausen, Beitrag zur Theorie und Praxis des Pressens pulverförmiger Stoffe, *Archiv für das Eisenhüttenwesen*, 185~196 (1951).
- 10) 川北公夫, 科学, 26, 149 (1956).
- 11) K. Kawakita and Y. Tsutsumi: *Bull. Chem. Soc. Japan*, 39, 1364 (1966).
- 12) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 5 (1968) 5.
- 13) 川北公夫, 津々見雄文: 化学工学, 32, 750 (1968).
- 14) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 5 (1968) 1.
- 15) 川北公夫, 津々見雄文: 化学と工業, 20, No. 5 443 (1967).
- 16) K.-H. Lüddecke and K. Kawakita: *Die Pharmazie*, 7 393 (1966).
- 17) K. Kawakita and Y. Tsutsumi: *J. Appl. Phys. Japan*, 4, No. 1 56 (1965).
- 18) 川北公夫: 材料, 13, 421 (1964).
- 19) 川北公夫, 津々見雄文: 材料, 14, 707 (1965).
- 20) 川北公夫: 高峰研究年報, 8, 83 (1956).
- 21) 同上: 8, 87 (1956).
- 22) 同上: 8, 92 (1956).
- 23) 同上: 10, 93 (1958).
- 24) 川北公夫: 粉体および粉末冶金, 10, 71 (1963).
- 25) 同上: 10, 236 (1963).
- 26) R. E. Collins: *Transaction American Geophysical Union*, 45, No. 1 (1964) 161.
- 27) 川北公夫, 津々見雄文ら: 応用物理, 34, 360 (1965).
- 28) 川北公夫, 津々見雄文: 応用物理, 35, 260 (1966).
- 29) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 3 36 (1966).
- 30) 川北公夫: 粉体と工業, No. 1 44 (1969).
- 31) 川北公夫: 材料, 13, 427 (1964).
- 32) 川北公夫: 粉体および粉末冶金, 10, 242 (1963).
- 33) 同上: 10, 73 (1963).
- 34) K.-H. Lüddecke and K. Kawakita: *Die Pharmazie*, 7 (1966) 399.
- 35) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 3 (1966) 43.
- 36) 川北公夫, 津々見雄文: 応用物理, 35, No. 4 263 (1966).
- 37) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 3 49 (1966).
- 38) H. Sheinberg: Los Alamos Scientific Laboratory of the Univ. of California, UC-25, Metals, Ceramics, and Materials TID-4500, U. S. A., (1967).
- 39) 服部一郎, 松本圭司, 岸上守孝: 第11回高圧討論会, 講演要旨集, p. 88, (1969).
- 40) 服部一郎, 松本圭司, 岸上守孝: 日本材料科学会, 第6回研究発表会講演予稿集, p. 14, (1969).
- 41) 松居国夫, 關口岳男, 五十嵐仁: 化学工学協会第35年会研究発表講演要旨(昭和45年4月)および私信(昭和44年12月19日付).
- 42) 荒川正文, 岡田陸夫, 水渡英二: 材料, 14, (1965) 764; 151 (1966).
- 43) H. Kuno: *Proc. Fac. Eng. Keio Univ.*, 11, No. 41 1 (1958).
- 44) 川北公夫, 種谷真一ら: 粉体工学, 基礎編, 槙書店 p. 116, (1973).
- 45) 川北公夫, 津々見雄文ら: 法政大学工学部研究集報, No. 2 47 (1965).
- 46) 川北公夫, 津々見雄文: 法政大学工学部研究集報, No. 5 5 (1968).
- 47) 川北公夫: 粉体および粉末冶金, 10, 71 (1963).
- 48) 川北公夫, 種谷真一: 概論粉体工学(プラント工学社), (1967), p. 71.
- 49) 若林隆夫: 粉体および粉末冶金, 10, 83 (1963).
- 50) 川北公夫, 津々見雄文: 粉体工学, No. 7 51 (1967), (435).
- 51) 渡辺明, 梅屋薰: 料, 13, 237 (1964).
- 52) 最上武雄: 東大理工研究報告, 3, 168 (1949).
- 53) T. Mogami: *J. Fac. Eng. Univ. of Tokyo*, 28, 65 (1965); *Trans. Japan Soc. Civil Engineers*,

- 128, 53 (1966); 129, 39 (1966).
- 54) 早川宗八郎: 東大理工研報告, 4, (1950) 87; 表面 3, 409 (1965).
- 55) 大矢根守哉: 粉体および粉末冶金, 13, (1966).
- 56) 津和秀夫, 明田勇蔵: 精密機械, 29, 945 (1968).
- 57) 西原利夫, 郡利矩, 谷哲郎: 日本機械学会論文集, 20, 208 (1954).
- 58) 川北公夫, III国際会議 CHISA, マリアンスケ, チエコスロバキアにて発表, 9月18日, 1969.
- 59) G. Bockstiegel との私信
- 60) 青木隆一ら, 粉体工学研究会誌, 10, No. 5, 271~275 (1973).
- 61) 岸上, 江上, 松本, 服部, 材料, 20, 924 (1971).
- 62) G. Bockstiegel, IV Intern. Pulvernet. Tagung, Sept, Dresden (1969).
- 63) G. Bockstiegel, J. Hewig, Archiv. f. d. Eisenhüttenwesen, 751 (1965).
- 64) G. Bockstiegel, Int. Journal Powder Metallurgy, No. 4, 13 (1966).
- 65) G. Bockstiegel, Int. Journal Powder Metallurgy, No. 1, 29 (1967).
- 66) G. Bockstiegel, Powder Metallurgy, 3, No. 1, 17 (1971).
- 67) 佐野幸雄, 粉体粉末冶金, 21, 1 (1974).
- 68) 川北公夫, 池田正明, 材料, 22, 624 (18) (1973).

### 裏話アレコレ

#### コナとオンナゴコロと数学

(社内報より)

##### ◎ プロローグ

ホソカワと関連のある学会の一つに粉体工学研究会というのがあります。その学会誌である粉体工学研究会誌が今年で10周年を迎える記念号が刊行されました。

ところで科学技術は数学を利用して体系化されてきたと言つて過言でないでしょう。物理学はもちろん最近では従来、数学者の観念的遊戯と思われていたトポロジー(位相幾何学)が電気回路網に、経済学でも産業連関分析に行列式が威力を發揮し、その他「ゲーム理論」「マルコフ過程」など数学的手法がどしどし導入されています。

しかし、粉体工学ではいぜんとして「粉は魔物」であり、気分屋の女性と同じく体系的数学的に取扱うのが困難な分野なのでしょうか?

##### ◎ 本論

「叱れば脹れる、おだてればつけあがる、そこで殺せば化けて出る」では、このように扱いの困難な女性心理を数学的に表現出来ないのでしょうか? 揺れ動く微妙な女心をピッタリと表わす女性心理関係式を「計算」して、Aという女性に対してはBという手練手管で攻略すると成功率50パーセントを越える、但し、この関係式に誤差を考慮して安全率あるいは補正係数を掛けておくといった具合で………

ついでに計算に必要なデータの測定では粉体の流动

性をホソカワのパウダーテスターで計り、流动性指数とするように「対男性流动性指数」なる概念を導入します。従って、指数が100で「流动性」は最高(男性であれば誰にでもナビク)また、値が減少して零に近づくにつれ「付着性」が増大するとします。

世の女性にもてる男性は女性心理を巧みに「計算」するのが上手なのでしょう。しかし、その計算は感覚的定性的なものでどうが………

この女性心理関係式がチョッと複雑で、例えば非線形偏微分方程式であっても差分化し、電子計算器に入ると近似解が得られると思います。これは、女性にもてない私の夢物語です。しかし、児童心理の発達を研究する有力な武器として実際に数学の一分野である「群論」が利用されているのです。(理工学の為の数学ハンドブック、丸善466頁)

とすれば、子供に適用出来るのであればそのアナロジー(類推)から女性にも転用の可能性が………

##### ◎ エピローグ

先日、丸善の洋書案内を見ていたら偶然、「Journal of Mathematical Psychology」というのが載っていました。これこそ「計量心理学」あるいは「数理心理学」と訳すべき、心理学を数学的に研究する雑誌ではありませんか。そして、この雑誌の創刊年が1964年、つまり粉体工学研究会誌と同じ年なのです。

さて、女性心理と粉体工学は、どちらが先に体系化されるでしょうか?

——今からでも数学を勉強しようかなと思ったりしている女性恐怖症の男—— (N・K)

## 製品紹介

# 乾燥装置

化学機器事業本部\*

## 1. はじめに

乾燥機は「乾燥装置」又は「化学工学、乾燥特集号」等に分類表が示されているように型式が多く、それぞれ能力、物性等で大略の適用分野が区分されている。当事業部の乾燥機をその分類表との名称対比をすれば、

商標又は一般名	上記の分類表名称
気流乾燥装置	気流乾燥器 直接供給 簡単な分散機付 解碎機及び粉碎機付 (流动層)
流动乾燥装置	適當分類なし
ミクロンドライヤー	連続式円筒攪拌乾燥器
ソリッドエアー	円筒攪拌式真空乾燥器
コンテニュエーター	空気受熱型構型攪拌乾燥器
トーラスディスク	1連続式円筒攪拌乾燥器 適當分類なし (円筒攪拌式真空乾燥器) 回分式円筒攪拌乾燥器

のようで、伝熱の面からは熱風からの直接受熱型と伝熱受熱型とである。以下にそれぞれの特徴或いは適用例等について記す。

## 2. 気流乾燥装置

熱風と湿原料とを直接に接触させ、その気流に原料が単に搬送される間に乾燥させる装置で、湿原料がパサパサとしていて熱風との混合部で簡単に分散されるようなものでは直接供給型、これよりも多少分散しにくいものは簡単な分散機付型、強制的に分散させねばならぬものには解碎機又は粉碎機付型を適用させている。これらの型式はいずれも熱交換は熱風と接触した瞬間が最大で、以後搬送されるに従って減少し、乾燥管では要求仕上り水分に至るまでの滞留時間を消費させるためのものと考えてもよい。なお当社は粉碎機を母体として成長して来たから各種のローターハンマを持っているので、湿原料

に適合した解碎機を選定できるので本装置では幅広い適用分野をもっているといえよう。

## 3. 流動乾燥装置

本装置では湿原料物性が上記の気流乾燥装置の場合よりも粉粒体になり易く、仕上り水分の少い要求のときに流动層の原理を応用して乾燥するもので、安定した流动層は粒子の終端速度の20%~60%の範囲でえられる。内經1,700φ、静止粉体層厚100mmの納入実績がある。なお本体乾燥筒上に分級機を設置するならば、乾燥粉体を粗粒と微粉とに任意分級し、とりだすこともできる。

## 4. ミクロンドライヤー

今迄のべた気流、流动乾燥装置等では単に乾燥するだけであるが、本機はFig. 1のような構造で乾燥→粉碎→分級の3工程を一挙にするため、工程の簡略化ができると共に、乾燥面からは高水分のものから仕上り水分0.5%程度まで、粉碎面では粉体物性にもよるが300メッシュ以下まで、分級面では所定粒度以上の粗粒の製品中への混入を防止できる。またこのために医薬、農薬、染料

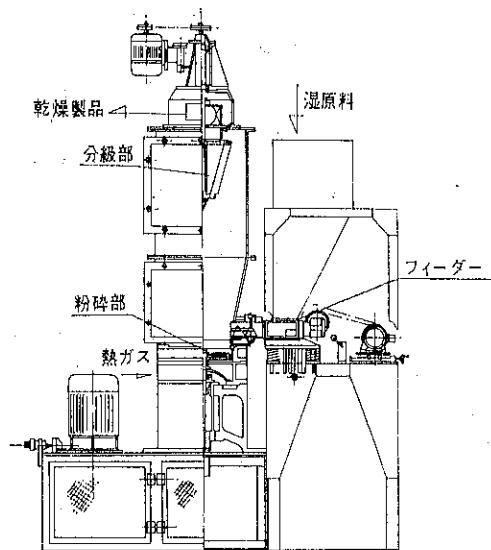


Fig. 1 ミクロンドライヤーの構造

\* 株式会社細川鉄工所

(〒573 枚方市招提田近1-9)

Tel 0720-55-2221

というような製品の純度のきびしいものや、機外に粉体がもれると作業環境を極度に悪化させるものとのときなどには有効であり、この種の業界では好評をうけている。

本機に関しては、浮田順裕氏が化学装置1970年7月号「熱風搬送式乾燥装置設計の要領」中で次の如くのべているので転載させて頂く。

「最後に分級室を備えた粉碎分級型乾燥機は本号に紹介してあるとおり、分級室を乾燥室に利用した新しい構想で細川鉄工所の開発実施されているものである。これを単に粉碎装置としてみると目新しい機構ではないが、これに熱風を通して乾燥を行えるようにしたいという着想は価値あるものといえよう。」

なお有害ガス或いは異臭ガスの排出規準のきびしい状況下では、乾燥機からの排ガスを冷却し、洗浄し、再循環し、この一部を排気し燃焼させて大気放出させるから排ガスの燃焼熱量が非常に少くてすむ。

## 5. ソリッドエアー

本機はミクロンドライヤーと性格を全く異にすると表現してよいもので形状はFig. 2に示すものである。乾燥過程は原料を粉碎せず攪拌のみで機壁からの伝熱によるものであるから、循環ガス或いは取り入れ空気量は非常に少く、排気処理には小型のホソカワ／マイクロパルスエアーで十分である。なお機内通気に生水蒸気の吹込みを行えば溶剤は共沸現象をおこし、沸点は低下して操作

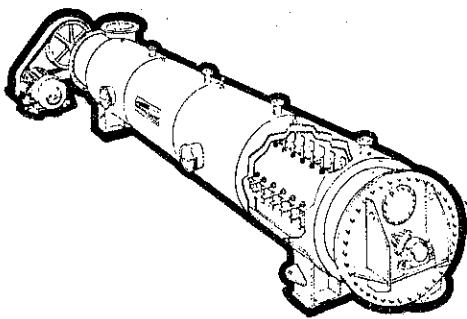


Fig. 2 ソリッドエアー

圧力をさげることもできるし、原料表面を硬化させず品温上昇をさせるから内部拡散が助長されて溶剤の乾燥が容易となりうる。

本機と他の円筒攪拌乾燥器との相異点は、本機のローター回転数が早いことである。通常のものは回転が遅いから有効伝熱面積は円筒の約1/2と想定されるが、本機は早いが故に、原料が円筒内壁面全体に分散されるので全伝熱面積を有効に利用することができ、比較的に小型となるから据付面積が小さくなる。主なる適用分野は合成樹脂、ファインケミカル分野等である。

## 6. コンテニュエーター

本機はソリッドエアーと異り、原料を機内に強制的に滞留させて機壁からの受熱で乾燥させるように設計されたものであるから、原料の内部湿分の攪散速度の遅いものに適合する。本機の形状はFig. 3のようにソリッドエ

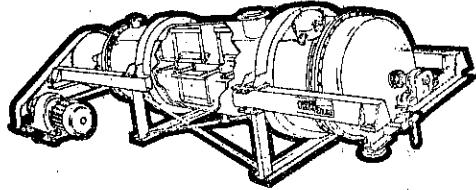


Fig. 3 コンテニュエーター

ーと大差はないが、攪拌羽根は全くことなり、原料をすくいあげる様な形状で、これが低速回転で原料を攪拌する。主なる適用分野は合成樹脂、ファインケミカル分野等である。

## 7. トーラスディスク

本機は原料の機内滞留時間がソリッドエアーとコンテニュエーターの中間に占めるよう設計されたものであり、加熱用ディスクを内装するから、外型は小型でも大きな伝熱面積がとれる。近々営業ラインにのせるものである。

## 8. おわりに

以上の様に当事業部の乾燥機には各種の様式および特徴があり、それぞれの要求に最適の機種を選定し、それを中心として乾燥装置を設計納入している。乾燥必要熱量、熱風量、消費熱量等は予め計算できるが、原料物性にまつわる諸現象、制約等により乾燥機及び原料供給機の型式が決るので、需要家各位より諸条件を十分御提供頂き、当事業部試験室のテストプラントでの確認テストにより機種の最終決定をしているのが現状である。各位の御指導、御協力にお願いする次第である。



Fig. 4 試験室乾燥機のコーナ

手前 コンテニュエーター

後方 ソリッドエアー

ソリッドエアの後方にミクロンドライヤー

# ホソカワ/マイクロ ACM パルペライザー

粉体機器事業本部\*

## 1. はじめに

先年、株細川鉄工所は米国及びヨーロッパ各地にて好評のACMパルペライザーの国内製作及び販売をドイツマイクロパル社の技術導入の基に実施し、特にその特長である弱熱性物質の粉碎に好評をえ、すでに十数台を納入している。そこでその構造と特長及び実施例について報告する。

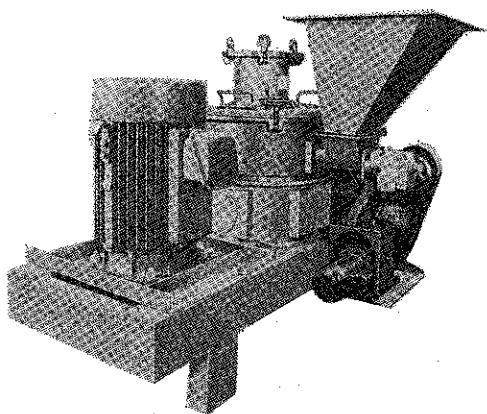


Photo. 1 ホソカワ/マイクロ ACM パルペライザー

## 2. 構造と特長

### 2.1 構造

ACMパルペライザーの構造をFig. 1に示す。概要是ピンミルにエアーセパレーターを組み込んだ粉碎機で原料は無段変速フィーダにより粉碎室に送られ、ローターデスク上に取り付けられているメタルピンによって粉碎される。同時に原料はグラインディングローターの遠心力により周囲のライナにはね飛ばされ、さらに粉碎が促進される。次に粉碎された原料は、気流によってガイドリングの外側を通ってセパレーターへ送られ、微粉はフ

アンの吸引によりセパレーターを通過し、集塵機で捕集される。セパレーターで分離された粗粉はガイドリングの内側を通り粉碎部へもどり、再度粉碎される。粒度調整はグラインディングローターの回転数、セパレーターの回転数、ミル内の風量などにより行われる。

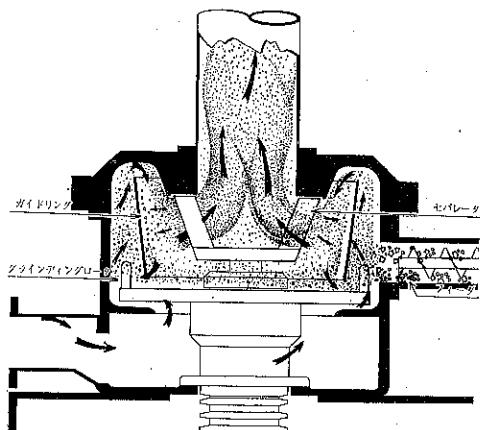


Fig. 1 ACMパルペライザーの構造

### 2.2 特長

- (i) 粉碎機構と分級機構とを備えていためる、工程が簡略化される。
- (ii) 効率の良い分級機構を内蔵しているため、粒度分布の範囲が狭く、比較的粒子の形が揃っている。
- (iii) 風量の調整、及び分級機構の回転速度の変更により粒度調整が容易。
- (iv) 効率の良い粉碎及び大風量処理の為、製品の温度が低い。
- (v) 内部（特に粉碎部がピンとなっている）が簡単な構造となっているため、清掃が容易である。
- (vi) 音が静かである。（1m離れた場所で80ボーン） ACM-10にて測定）

## 3. 標準型式仕様

Table. 1 に示す。

\* 株式会社細川鉄工所

（〒573 枚方市招提田近1-9）

Tel 0720-55-2221

Table. 1 ACMパルペライザ標準型式仕様

仕様	型式	ACM-10	ACM-30	ACM-60
所要動力 (kW)		7.5	22	45
セパレータ動力 (kW)		0.75	3.7	7.5
フィーダ動力 (kW)		0.4	0.4	0.4
風量 (m³/h)		700~1,200	2,200~3,600	4,000~7,500
ロータ回転数 (r.p.m)		7,000	5,000	3,000
セパレータ回転数 (r.p.m)		800~3,200	700~2,800	600~2,400
能効力比		1	2.7~3.2	5.4~6.5
概略重量 (モータ含) (kg)		600	1,000	2,000

#### 4. 実施例

ここ数年来塗料業界において、溶剤型塗料では溶剤は塗膜形成後に大気中に放散されて、塗膜形成成分としては残らない、資材的にみれば、そのロスは大きいなどの見地から、最近では反応型塗料や電着塗料をはじめとする水系塗料、あるいは粉体塗料など新しい塗料が開発されつつあるが、その中で粉体塗料の分野で当社のACMパルペライザーは、

① 粒度分布の幅が狭く塗料を加熱軟化させる工程で劣化をおこしたり、十分溶融せず仕上りムラを生じな

い、また、粒形が球に近い為、安定した塗膜表面が形成できる。

② 粉碎機構と分級機構とを備え、2工程を1工程で行っている。また、内部が簡単である為、色替の清掃が容易である。

③ 粉体塗料は弱熱性樹脂を使用する為、粉碎時の熱による変化を受ける場合が多い、この場合でも、大量の冷却用冷風を吹き込むことにより製品温度を上げない等の特長を生かしている。

次に粉碎工程のフローシートの一例をFig. 2に示す。

Table. 2 納入例

No.	1	2	3	4
原 料 名	アクリル系	エポキシ系	エポキシ系	エポキシ系
粉 碎 機 名	ACM-30	ACM-10	ACM-10	ACM-10
粉 碎 回 転 数	4,200 rpm	2,350	2,100	7,000
分 級 回 転 数	2,500 rpm	820	510	2,060
分 級 ブ レ ード	24枚ショート	24枚 ロング	12枚 アルミ	12枚 ショート
風 量	45 m³/min	16.3 m³/min	15 m³/min	15 m³/min
投 入 空 気 温 度	12°C	—	—	29°C
原 料 温 度	30°C	—	—	29°C
原 料 粒 度	2~3t×20° 程度	7° m/m 程度	3~5° m/m	7~8° m/m
処理能 力	230~250 kg/Hr	120	90	110~120
製 品 温 度	30~31°C	—	—	40°C
製 品 粒 度	60 Mesh on 0 % 60~150 Mesh 0.25~0.5 % 150~200 Mesh 2.5~6 % 200~250 Mesh 40~55 % 250~300 Mesh 30~40 % 300Mesh Pass 5~13 %	60 Mesh on 7~8 % 60~200 Mesh 58~67 % 200~350 Mesh 6~7 % 350 Mesh Pass 20~27 %	φ 60 Mesh on 7~8 % 60~350 Mesh 65~80 %	60 Mesh on 0 % 60~150 Mesh 1.5~2 % 150~350 Mesh 10~11 % 350 Mesh Pass 15~20 %

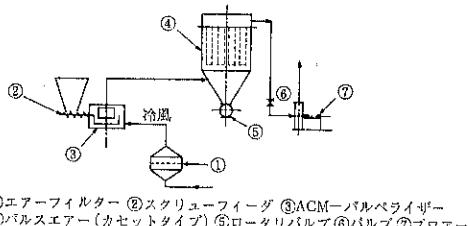


Fig. 2 粉碎フロー

### フロー各機の説明

粉体塗料は弱熱性のため、粉碎温度を40°C以下にする必要がある。一般的なフローでは、粉碎機へ冷風を送り込んでいる。冷風は冷凍機を使用したクーラーから、または液体窒素を直接粉碎機へ入れる方法にて供給していただいている。粉碎機は現段階では、10馬力から60馬力までの3段階の機種が使用されている。ライナーは付着などを考慮して、スムースライナーを使用している。

捕集機は沪布の清掃、取換を容易にするためフィルターごと引き出せるカセット形式のバッグフィルターを使用した。沪布もけば落ちのない表面処理をしたフィルターに改良している。

フローの風量設定はファンの手前にあるバルブにて調整する。実際の運転成績をTable. 2に示す。また、各ファクターの粒度に対する影響をFig. 3, Fig. 4およびFig. 5に示す。

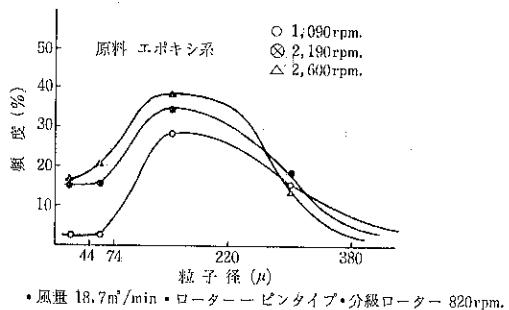


Fig. 3 粉碎部回転数が粒度におよぼす影響

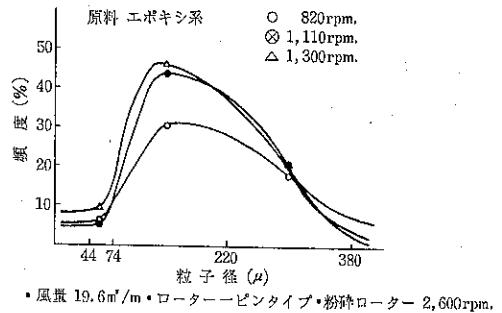


Fig. 4 分級部回転数が粒度におよぼす影響

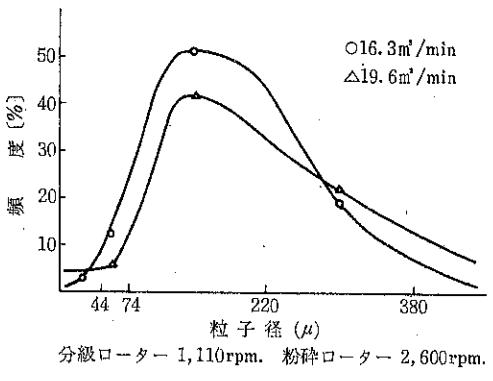


Fig. 5 投入月量が粒度におよぼす影響

### 5. おわりに

粉体塗料はまだ新しい分野であり、現在急激な発展段階であり、特に粒度の点では塗料メーカー各社まちまちで、また、同一基材であっても重合の違いによって粉碎粒度が異なる為、粉碎機メーカーでははっきりとした条件をつかみにくい点があるが、一般的にいって本機の特長が十分役に立つと考えられるので、塗料メーカーの方々のご協力を得てより理想的な機械に近づけたいと念ずる次第である。

以上、粉体塗料のみに限定し記述したが、その他の弱熱性物質の粉碎に限らず、その優れた粉碎性能を考慮し、炭カル、タルクなどの鉱石粉碎にも適応するよう、微粉用分級機構および耐摩耗粉碎機構に改良し、完成している。

# ホソカワ ニュース

## ○ エンジニアリング会社を吸収

本年5月空気輸送装置メーカーのミツミエンジニアリング㈱を吸収、7月より正式に子会社として業務を開始した。

## ○ アルミ再生炉用集塵装置を成約

敷島アルミニウム㈱(枚方)に納入されるこの装置は、高効率な集塵能力と併せてガス吸収能力をもつ温式電気集塵機「エレクトロフィル」をメイン・システムとし、これに前処理装置「サイクロニックスクラバー」を組合せ、高性能、高効率な集塵処理とガス吸収ができるシステムです。

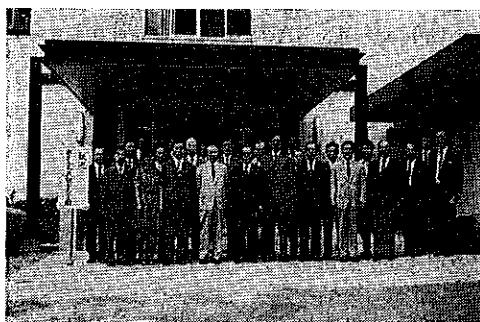
## ○ 中華人民共和国設計連絡組來社

機械納入に先だって、打合わせ工場見学のため來社された。

○昭和49年7月17日 14名來社

納入機 乾燥機ソリッドエア SJS54-32, SJS 16-10

(なお本機は東レ㈱、三井造船㈱経由にて納入される。)



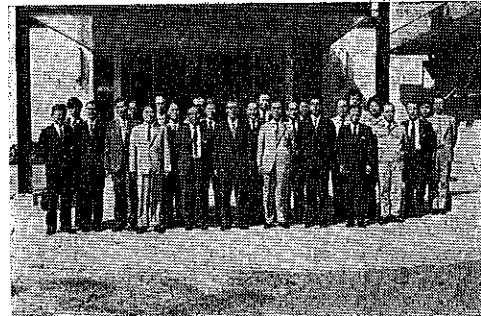
○昭和49年8月19日 13名來社

納入機 混合機ナウタミキサーNX-35

分級機ミクロンセパレーターMS-2

捕集機パルスエアーCP45-8

(なお本機は東邦チタニウム㈱を経由して納入される。)



## ○ '73 食品工業展

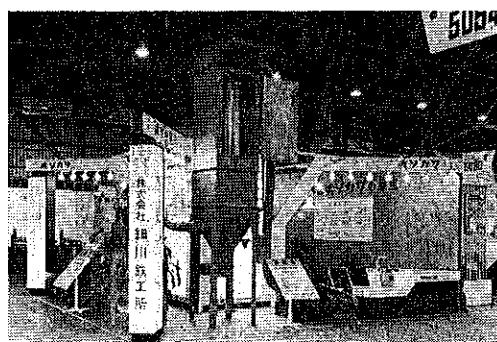
とき：昭和48年9月7日～9月11日

ところ：東京、晴海、国際貿易センター

出品機種

- ① ACMパルベライザー
- ② ピクトリミル
- ③ ミクロンセパレーターN型
- ④ ナウタミキサー
- ⑤ タービュライザー
- ⑥ パルスエアー
- ⑦ フロートロン

多数の来会者があり、分級機、混合機に人気が集中した。



## ○ '73化学プラントショー

とき：昭和48年10月8日～10月13日

ところ：東京、晴海、国際見本市会場

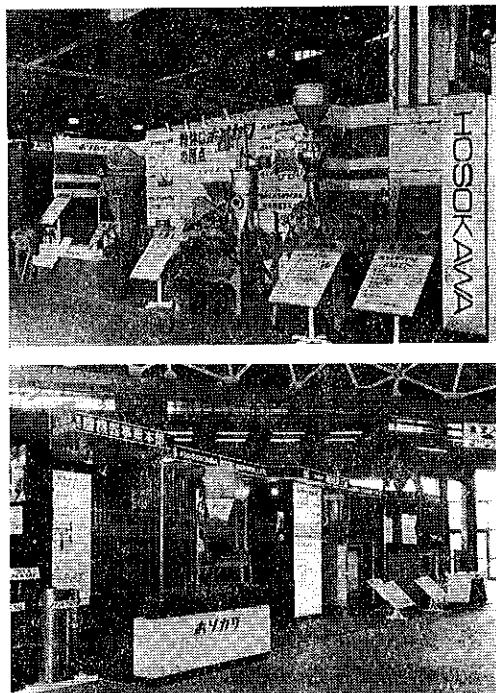
出品機種

粉体機器コーナー

- ① ACMパルベライザー
- ② ピクトリミル
- ③ ミクロンセパレーターN型
- ④ ナウタミキサー
- ⑤ タービュライザー
- ⑥ フロートロン

## 公害防止コーナー

- ① 湿式電気集塵機
- ② 小型集塵機（ホソカワ・トリット製品）



## ○ '74国際環境汚染防止展

とき：昭和49年6月14日～6月19日

ところ：大阪国際見本市港会場

出品機種

ホソカワ・トリット製品

- ① キャビネットコレクター
- ② スwingアーグ
- ③ ミストコレクター

大盛況で、説明員は忙しさに汗だくでうれしい悲鳴をあげました。



## ○ 海 外 出 張

渡航年月	渡航者名	出向地	用 務
48年7月	久保	U. S. A	Mikropul 社より帰国（44年8月出向）
8月	木原	英國	ホソカワ・ヨーロッパへ赴任
9月	岩戸	ソ連	モスクワ環境展に出向（パルスエアー P-12A-6 出展）
"	森本マネージャー	U. S. A	TORIT 社訪問、販売技術打合わせ
10月	田中本部長	北鮮	商談
"	間嶋常務	欧州	Mikropul G.m.b.H 社、NAUTA 社、ホソカワ・ヨーロッパ訪問
"	東門常務、久保	U. S. A	Mikropul 社電気集塵機技術打合わせ
"	増田主任	台湾・香港	商談
11月	岩戸	マレーシア フィリピン	商談
12月	織田課長	ドイツ	ホソカワ・ヨーロッパより帰國（48年3月赴任）
49年1月	滝口主任	台湾	裕盛化工 MF-20 試運転出張
"	河瀬主任	フィリピン	パシフィックミネラル社 MF-50 試運転出張
2月	川上	オーストラリア	商談
"	社長、間嶋常務	U. S. A	Mikropul 社セールスカンファレンス出席、その他 VIBRA 社、TORIT 社、STRONG 社、MENARDI 社歴訪
3月	増田主任	U. S. A	マレーシアスチールパイプ社技術打合わせ
4月	山口	シンガポール	商談
5月	増田主任	台湾	ホソカワ・ヨーロッパにマネージャーとして赴任
"	岩戸	ドイツ	商談
"	間嶋常務	台湾	ホソカワ・ヨーロッパ他技術提携先歴訪
7月	社長、小林課長	U. S. A・欧州	ホソカワ・ヨーロッパ他技術提携先歴訪

## “粉碎”誌編集委員会

### 編集委員会査読委員

査読委員長 大阪府立大学教授	矢野 武夫氏
査 読 委 員 京都大学名誉教授	中川 有三氏
“ ” 大阪府立大学教授	吉田 哲夫氏
“ ” 京 都 大 学 教 授	井伊谷 鋼一氏
“ ” 京 都 大 学 教 授	吉岡 直哉氏 (御年令順)

### 編集部からのお知らせ

#### “粉碎”誌投稿規定の一部改正 および追加

##### “粉碎”誌投稿規定一部改正および追加

- 2 : 4 研究報告および技術報告の原稿の長さは図表を含めて原則として刷り上り 8 頁（改正前は10頁）以内にまとめていただくよう希望します。しかし、総説（または講議）等で頁数の多いものについては連載もします。  
2 : 11（追加）研究報告、技術報告、総説および参考資料については英文題名を書いて下さい。

なお、“粉碎”誌投稿規定および原稿用紙の申込は下記へお願ひいたします。

〒573 枚方市招提田通1丁目9番地  
細川粉体工学研究所  
“粉碎”編集事務局宛  
(Tel (0720) 57-3721)

## 編集後記

### 編集部

\*昨秋の物不足、狂乱物価に引続いて、高値安定（？）の高物価体系への移行とせまり来るスタグフレーションの波とが交叉し、波乱多き様相を呈していますが、読者諸兄にはお元気でご活躍のことと思います。

\*“粉碎”誌発行にかかる経費も例外でなく、まさに日本経済の膨脹の様を見るが如く、隔世の感をまぬがれません。

\*一方、内容的には編集委員会制への移行と相俟って、号を重ねる毎にレベルアップされ、中味の濃い充実した紙面となっていると自負しています。

\*学、業界の若い研究者諸兄の研究発表の場として、なお一層ご利用されますよう希望いたします。

\*“粉碎”誌の配布先は非常に広い範囲に亘っていて、国内の粉体に関連する学、業界内だけにとどまらず、外国にも相当数配布されています。

## 原稿募集

“粉碎”誌の原稿を募集いたします。粉体工学に関係する研究報告、技術報告、総説、参考資料、文献紹介、随筆など特徴ある記事をふるって御投稿されることをお願いします。ご一報いただきましたら、原稿用紙をお送いたします。

次号発行予定 昭和50年9月末日  
原稿締切 昭和50年5月末日

“粉碎” No.19 1974年秋季号

昭和49年10月20日 印刷

昭和48年10月30日 発行

編集発行責任者 横山藤平  
(非売品)発行所 細川粉体工学研究所

大阪府枚方市招提田近1丁目9

印刷所 ナニワ印刷株式会社  
大阪市北区川崎町38

粉体はホソカワの原点

# 粉体処理への努力。

複雑な性状をもつ粉体。現在では、その処理も、粉碎、分級、乾燥、混合、造粒、輸送、集塵——と多岐にわたるうえ、しかも、粉体の性状やとりまく状況を正しく見極めなければなりません。

ホソカワは、この粉体処理に真正面から取り組み、各種粉碎機、篩分機、乳化機、乾燥機、混合機、造粒機、集塵装置、輸送装置、袋詰機、その他粉体機器全般——と、単位装置からシステム・エンジニアリングまで、あらゆる需要にお応えしています。

粉体処理機器とシステムエンジニアリング



株式会社 細川鉄工所

●粉体機器事業本部 ●化学機器事業本部 ●集塵機事業本部  
大阪府枚方市招提田近1丁目9番地 TEL 573 電話 枚方(0720)55-2221・東京(03)503-2231  
営業品目：各種粉碎・分級・篩分・混合・乾燥・集塵・輸送……その他粉体処理装置

