

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 18 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06542

研究課題名(和文) 局所流動性評価に基づく非球形粒子の流動性基準球相当径および形状係数

研究課題名(英文) Equivalent diameter and shape factor of non-spherical particles based on an evaluation of flowability

研究代表者

後藤 邦彰 (GOTOH, Kuniaki)

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：20215487

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：非球形粒子で構成される粉体の流動のし易さ、いわゆる「流動性」の定量的評価の確立を目的とし、局所流動性評価法の検討、および、その基礎となる粒子-固体壁間付着性の評価法を検討した。

局所流動性の評価については、音叉式粘度計の適用を試み、装置の改良によりナノオーダーから数十マイクロンの無機粒子および有機物粒子の見かけの流動抵抗が測定できることを明らかとした。

粒子-固体壁間付着性については、Hamaker定数と分離距離の二乗の比を新たに相対付着性指標と定義することで、基準組み合わせとの相対的な除去され易さから粒子-固体壁間付着性が定量化できることを示した。

研究成果の概要(英文)：For the purpose of establishing the quantitative evaluation of so-called "flowability", the local flowability evaluation method and the particle-solid adhesiveness evaluation method were investigated.

Regarding the evaluation of local fluidity, I tried applying a tuning fork viscometer and clarified that the apparent flow resistance of inorganic particles and organic particles of nano order to several tens of microns can be measured by improving the apparatus.

As for the particle-solid adhesiveness, by defining the ratio of the square of the Hamaker constant and the separation distance as a relative adhesion index newly, it is possible to estimate adhesion force between particle and solid wall based on the comparison of removal efficiencies between the reference particle-wall combination and target combination of particle and wall.

研究分野：化学工学、粉体工学

キーワード：粉体流動性 付着力 流体抵抗力 相対付着性評価 音叉式粘度計 見かけ粘度

1. 研究開始当初の背景

粉体、すなわち微小な固体粒子の集合体は、多くの化学プロセスにおいて、原材料や中間製品、最終製品の状態として現れる。粉体を取り扱われるプロセスでは、粒子濃度が希薄な系では装置壁の粒子の付着が、高濃度な系では原料供給、製品排出の不安定化や、配管の閉塞などが、安定な操業に対する問題となっており、一般に、粉体はプロセス中での扱いが難しいと言われている。取り扱いが難しい要因は、粉体を構成する粒子の大きさの分布などいくつかあるが、操業時の問題の多くは、粒子の付着力に起因する。特に、付着が作用する粉体の流動挙動は複雑であり、粒子同士が接触しながら移動・流動する、供給や輸送、圧縮成形などの粉体操作では、未だにノウハウと試行錯誤による機器設計・開発が行われている。

近年、粉体操作機器にも適用できる離散要素法 (DEM) をはじめとする多くの計算機シミュレーション方法が開発され、盛んに研究がおこなわれているが、実在粒子に近い複雑形状を持った粒子群の挙動を推定するには至っていない。このため、特に非球形粒子で構成される粉体の挙動の予測に役立ち、機器設計・開発の定量的指標となる、粉体の流動のし易さ、いわゆる「流動性」の定量的評価が求められていた。

2. 研究の目的

粒子同士が接触しながら移動する、供給や輸送、圧縮成形などの粉体単位操作において、非球形粒子で構成される粉体の流動挙動の予測に役立ち、機器設計・開発の定量的指標となる、粉体の流動のし易さ、いわゆる「流動性」の評価法の確立を目的とした。

そのために、非球形粒子の流動挙動を定量的に表し、かつ、流動中の粒子凝集構造変化が計測できる粒子数層での局所流動特性が測定できる試験装置 (局所流動性評価装置と称す) を試作することとした。その試作した試験装置を用い、流動性の定量的評価指標の定義を試みた。

3. 研究の方法

(1) 局所流動性評価

定量化すべき局所流動挙動を明らかにするために、実流動操作として圧縮流動を対象として一軸圧縮試験を行った。その結果、ナノ粒子については、一次粒子を基本単位とするのではなく、数十ナノの凝集体を基本単位とした圧縮流動が起きていることを示唆し、このオーダーの局所流動挙動を定量化する必要があることが示唆された。

粉体の流動性は、貯槽、供給、充填など多くの粉体単位操作において重要な特性のひとつである。これまで粉体の流動性評価については、Carrの流動性指数やせん断試験など種々の方法が提案されている。これ

らはいずれも、自由空間での重力流動や粉体層の変形挙動に基づいており、バルク粉体の流動性を評価していることになる。そこで、ミクロンオーダーの振動により流体の粘度を測定する音叉式粘度計を、粒子群の局所流動抵抗の定量化を試みた。

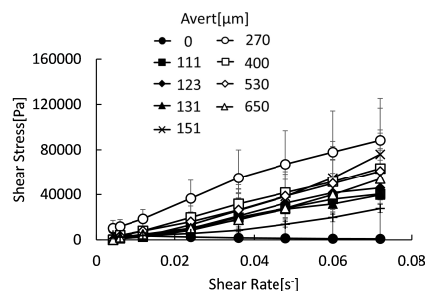
(2) 流体抵抗を基礎とした粒子 - 固体壁間付着性の評価

粉体の流動抵抗と、粒子形状など粒子物性との関係を検討するために必要な粒子 - 固体壁間相互作用について、新規に飛散現象に基づく付着性評価手法の構築を試みた。その評価では、幾何学的にシンプルな平板と球状粒子の組み合わせを基準として、基準との相対的な除去され易さで、付着・除去特性を定量化することを提案した。

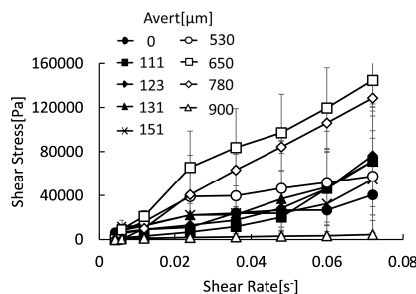
4. 研究成果

(1) 局所流動性評価

局所流動性評価方法として音叉式粘度計の適用を試みた。試用した音叉振動式粘度計 (株エー・アンド・デイ製 RV-1000A) で、液体の粘度測定と同様の手順で粉体の測定を試みたところ、測定部 (振動板) の振動により試料粉体との間に隙間が生じ、正確な測定が行えなかった。そこで、粉体を充填する試料容器下部に加振装置を設置し、振幅 $A_{vert}=0.111 \sim 0.9$ [mm] の鉛直方向の振動を加えた。なお、この鉛直加振の周波数は約 60 [Hz] で一定とした。



a) Powdered milk



b) TiO₂

図1 粉体の見かけ流動曲線

種々の粉体について、最初に測定部振幅 Ames を最小振幅である 0.07mm に設定し、10 秒保持して粘度値を検出した後、順次測定

部振幅を最大振幅の 1.2mm まで増加させた後、振幅 1.2mm から 0.07mm まで振幅を減少させながら同様に測定を行った。なお、測定部振動周波数は 60[Hz] で一定である。測定結果を基に、振動子が常に一定の速度で動くことと仮定し、振動子の振幅と周波数からずり速度を求め、そのずり速度と測定された見かけ粘度よりずり応力を計算した。このようにして得られた流動曲線の一例を図 1 に示す。

粉ミルクでは鉛直方向加振振幅が増加するにつれ、上に凸の曲線となる擬塑性流体的挙動から、下に凸の曲線を描きながら増加するダイラタント流体的挙動へと変遷する。一方で、TiO₂ 粒子ではダイラタント流体的挙動から、直線的に増加するニュートン流体的挙動へと変遷している。このような加振による応答の違いは、試料粉体ごとの特性と考えられ、音叉振動式粘度計を用いて粉体の流動状態の特徴を評価できる可能性を示唆すると考えられる。

(2) 流体抵抗を基礎とした粒子 - 固体壁間付着性の評価

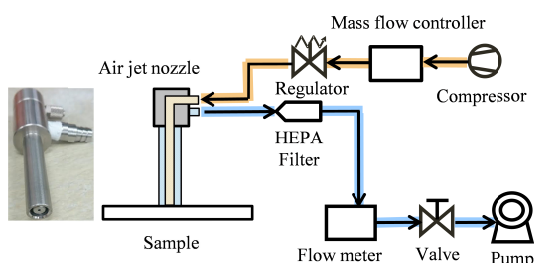


図 2 相対付着性評価装置

評価装置の概略図を図 2 に示す。標準ノズルには、円形噴出口 (直径 0.8mm) と噴出口と同軸の環状吸引口 (内側直径 4.0mm、流路幅 0.5mm) を持つノズルを使用した。このノズルを除去対象面鉛直上方に垂直に設置し、圧縮空気を供給することで付着粒子の除去を行う。ノズルから噴射した気流は、HEPA フィルターにより粒子を除いた後、ポンプで吸引した。実験において除去率 η は、対象試料面上の幾何学的気流衝突点 (= ノズル中心軸と除去対象面の交点) を原点 0 とした半径方向の距離 $r = -1 \sim 1$ [mm] の範囲で、除去前の粒子個数 N_0 と除去後の粒子個数 N を顕微鏡画像より計数し、以下の式より算出した。

$$\eta = (N - N_0) / N_0 \quad (1)$$

相対付着性評価のため、はじめに本装置の装置係数を求めた。基準としたシリカ粒子を基準表面であるスライドガラス上に付着させ、除去実験を行った結果を図 3 に示す。図の横軸は、エアジェットの除去対象面上での動圧 (= 気流のエネルギー) に相当する壁面圧力 P_w を示す。

ここで、支配的な粒子-固体壁間付着力を次式で表される van der Waals 力と仮定する。

$$F_v = \frac{H_0}{12z_0^2} D_p \quad (2)$$

H_0 : 基準粒子-壁面間の Hamaker 定数

z_0 : 基準粒子-壁面間の分離距離

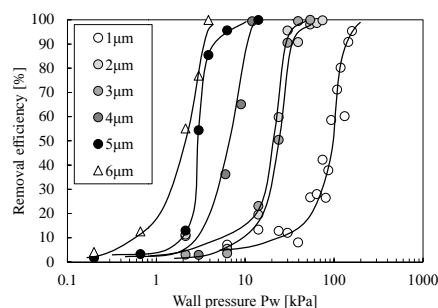


図 3 基準組み合わせでの除去率

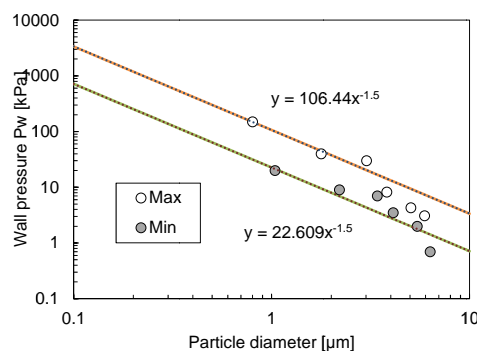


図 4 分離に要する壁面動圧

また、流体抵抗力は、一般に次式で表されるので、壁面圧力 P_w の関数となる。

$$F_r = C_D A \frac{\rho}{2} u^2 = C_D A P_w \quad (3)$$

「測定面内で分離力に分布があり、同じ粒子径でも除去される粒子と除去されない粒子が存在する」と仮定すると、測定面内で生じる最大の分離力は、最も除去されにくい (= 除去に最も高い気流エネルギーが必要な) 粒子径の最も小さい粒子が全て除去された時の壁面動圧 P_{wmax} で生じた分離力であるとされる。一方、最小の除去力は、最も除去されやすい粒子径の大きな粒子が除去され始めた時の壁面動圧 P_{wmin} により生じる分離力と考えられる。すなわち、試料粒子の除去率 η が 100% になる壁面動圧が、試料中の最小粒子径 D_{pmin} の粒子が全て除去された時の壁面動圧 P_{wmax} 、 η が 0% から立ち上がり始める壁面動圧が最大粒子径 D_{pmax} を持つ粒子が除去され始めた時の壁面動圧 P_{wmin} となる。実験的には除去率 $\eta = 100\%$ および 0% 付近は誤差が大きいので、ここでは $\eta = 90\%$ となる壁面圧力を P_{wmax} 、 $\eta = 10\%$ となる壁面圧力を P_{wmin} として図 3 から求めた。

P_{wmax} 、 P_{wmin} それぞれを粒子径に対しプロットした結果 (図 4)、いずれも粒子径 D_p の関数として次式で近似できる。

$$P_{wc} = k_c D_{pc}^{-1.5} \quad (4)$$

$c = \max$ または \min

$k_{\max} = 106, k_{\min} = 22.6$

これを Eq.(3)に代入して得られる分離力 F_{rc} が付着力 (Eq.(2)) と等しい時に除去されるので、本装置で発生する最大分離力 $F_{r\max}$ 、最小分離力 $F_{r\min}$ が次式で求められる。

$$P_{wc} = k_c D_{pc}^{-1.5} \quad (5)$$

$$(C_{DA})_c = \frac{H_0 D_{pc}^{2.5}}{12z_0^2 k_c} \quad (6)$$

この定数は測定面内での分離力に依存するので、装置係数であると考えられる。

ここで、最小粒子径 $D_{x\min}$ の未知試料が $P_{wx\max}$ で 100% 除去されたとすると、Eqs.(6)、(7)より次式が成立する。

$$F_{r\max} = (C_{DA})_{\max} P_{wx\max} = \frac{H_x}{12z_x^2} D_{x\min} \quad (7)$$

$$\frac{H_x}{12z_x^2} = \frac{H_0 D_{x\min}^{1.55}}{12z_0^2 k_{\min}} \quad (8)$$

この式より、相対付着性指標 I_{ad} が、Hamaker 定数と分離距離の二乗の比として定義できる。

$$I_{ad} = \frac{\frac{H_x}{12z_x^2}}{\frac{H_0}{12z_0^2}} = \frac{D_{x\min}^{1.55}}{k_{\min}} \quad (9)$$

このように、Hamaker 定数と分離距離の二乗の比で定義できる相対付着性指標により、粒子 - 固体壁間付着性が定量化できることを示した。この指標を用いると、付着性の違いを、見かけの Hamaker 定数の違い、または、付着状態付着状態の違いとして定量化できる。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計4件)

後藤邦彰、景山真帆、三野泰志、中曾浩一、エアジェットによる分離基づく粒子 - 固体壁面間付着特性評価法の検討、粉体工学会 2018 年度春期研究発表会、2018.5.15-16、京都

田中友梨佳、景山真帆、三野泰志、中曾浩一、後藤邦彰、気流による飛散現象に基づく粒子 - 固体壁間付着性の評価 壁面材質が付着性に与える影響、第 20 回化学工学会学生発表会(東広島大会)、2018.3.3、東広島

余越康隆、三野泰志、中曾浩一、後藤邦彰、羽生智、石塚英樹、音叉振動式粘度計による粉体流動特性評価の試み、化学工学会第 49 回秋季大会、2017.9.20-22、名古屋

景山真帆、後藤邦彰、エアジェット法による付着微粒子の除去効率に対する固体表面と微粒子材質および形状の影響、粉体工学会 2016 年度秋期研究発表会、

2016.11.29-30、東京

〔その他〕

ホームページ等

<http://achem.okayama-u.ac.jp/chemeng/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

後藤 邦彰 (GOTOH, Kuniaki)

岡山大学・大学院自然科学研究科・教授

研究者番号：20215487