



島津科学器械ニュース

粉粒体計測特集 No. 3・質量計測特集 No. 4 合併号

Sep. '88

粉体の輸送と粒子の性状

1. はじめに

工業上輸送の対象となる粉体の種類ならびにその特性は、きわめて多数であり、その輸送装置も機械的輸送装置と、流体を利用する輸送装置に大別される。筆者は大阪大学に勤務した約40年間に、後者に属する輸送方法の一つである空気輸送ないし固気二相流の分野で研究に従事した。与えられた紙数内に、この40年間に実施したことの一部を示してみようと思う。

もくじ

粉体の輸送と粒子の性状	森川敬信…(1)
ファインパウダーの粒度分布測定	椿淳一郎…(3)
ファインパウダーの挙動と表面測定	
標準粉体の規格と物性	山下憲一…(16)
はかりの未来像	前田親良…(22)
質量標準供給体系と精度	金子茂・池田進…(27)
生殖試験における重量測定のシステム化について	
	伊東富晴・石塚康夫…(33)
〈ユーザ訪問〉	
鳥取大学 砂丘利用研究施設（砂丘と灌漑）	…(38)
〈新製品紹介〉	
島津レーザ回折式粒度分布測定装置 SALD-1000/1100形	
	…(41)
島津電子分析天びん AEU-210形	…(43)
島津セミクロ電子分析天びん AEL-40SM形	…(44)
〈ご存知ですか〉	
質量のトレーサビリティ	…(45)
〈外部発表アブストラクト〉	…(46)

大阪大学名誉教授
大阪産業大学工学部教授

森川 敬信

昭和21年 大阪帝国大学工学部工業力学科（航空学科）卒業
22年 1年間会社に勤務の後、大阪大学工学部助手
30年 同上講師
36年 工学博士
テーマ「粒体の空気輸送に関する研究」
同上助教授
大阪大学工業教員養成所教授
44年 工学部教授 産業機械工学科混相流講座担当
62年 現職

「最近の活動分野」
粉粒体の空気輸送をカプセルの空気輸送に拡張し、また粉粒体の高濃度輸送の現象解析、ならびに広く研究結果と実設計との融合を試みている。



2. 流れの付加圧力損失と無次元数

固気二相流は流体工学の中の一分野を構成し、種々の現象を取り扱う上で、流れの相似性に関連し、単相流におけるレイノルズ数に対応するような無次元数が当然必要である。しかし研究を始めた頃には、このような無次元数として決定的なものはなかった。今では、気流平均速度あるいは固体粒子の浮遊速度、あるいは固体粒子の平均速度を用いて定義したフルード数が、この分野での無次元数として、ふつうに用いられるようになっていて、流れ学的に体裁をととのえただけでなく、現象の解析や比較に大きな威力を発揮している。

空気輸送装置の設計において、気流中の固体粒子がもたらす付加圧力損失は、ぜひとも正確に把握しなければならない重要な要素である。空気輸送装置を製作する側によっても、また使用する側によっても、輸送に関する種々の測定が行われてきたが、測定値は変化に富み、それは対象とする固体粒子の種類、すなわちその性状の多岐にわたることに起因する。付着性を示すものを粉体、それより形が大きくて付着性の乏しいものを粒体として分類すれば、前者の方が取り扱いはむつかしい。

圧力損失の取り扱いについては著しい進歩を見ることができ、多くの人が考えた個別の付加圧力損失の表わし方、特に付加圧力損失の係数が相互に関連をもち、式の上で結びつけることが

ファインパウダーの粒度分布測定

椿 淳一郎⁽¹⁾

1. はじめに

現在、ファインセラミックスをはじめとする先端材料において、ミクロン以下のファインパウダーにたいする期待関心が急速に高まっている。またファインパウダーに要求される特性も単に平均径が小さいということだけでなく、できるだけ単分散に近く球状の粒子といったような、高度な特性コントロールが要求されている。それにともなってできるだけ微粉域まで精度良く、広いダイナミックレンジで、迅に、再現性良く粒度分布を測定できる装置が望まれている。

以下に、サブミクロン域まで測定可能な粒度測定法の原理、装置、特徴を紹介し、今後の課題についても簡単に言及する。

2. 液相沈降法

測定原理は、大きな粒子ほど液体中で速く沈降することを利用したもので、図1⁽¹⁾に示したように粒子を一様に液中に懸濁させても、大きな粒子ほど速く沈降するため、時間の経過とともに懸濁液中に濃度分布が生じてくる。この濃度分布の経時変化を測定すれば、粒度分布を求めることができる。懸濁液濃度測定法には図2⁽¹⁾に示すように幾つかの方法がある。

一般的な特徴としては、測定される粒子径が、粒子と同じ沈降速度を持つ球の直径（ストークス径）であり、物理的意味が

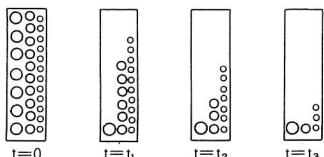


図1 懸濁液濃度の経時変化

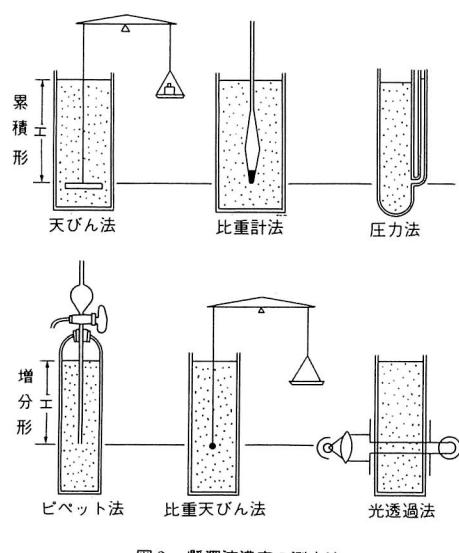


図2 懸濁液濃度の測定法

はつきりしているという長所と、粒子の沈降速度が、粒子密度によっても変わるために、密度の異なる粒子よりなる多成分サンプルには適用できないという短所を持っている。

2.1 天秤法

図3⁽¹⁾に装置の例を示したが、沈降管中に設置された秤量皿に沈積する粒子重量の経時変化より、粒度分布を求める方法である。この方法は、原理が簡単であり粒子濃度を直接重量基準で測定できるため、精度の高い測定が可能で、ドイツやフランスでは既にDINとAFNORによって規格が定められており、日本でも現在ピペット法とともにJIS化準備が進められている。

島津製作所の自動粒度測定器SA-2がこの原理によるものである。

2.2 ピペット法

一定の深さにおいて懸濁液を少量吸い取り、天秤法同様濃度の経時変化を直接重量基準で測定するため、精度の高い結果が得られる。装置は安価であるが、測定に手間と熟練が要求される。

2.3 比重天秤法

図4に、この原理に基づく島津製作所の粒度分布自動測定装

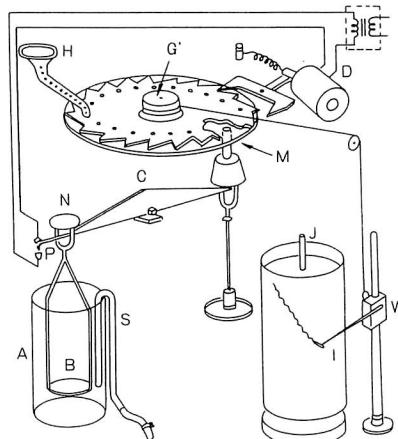


図3 沈降天秤法装置例 (島津自動粒度測定器 SA-2)

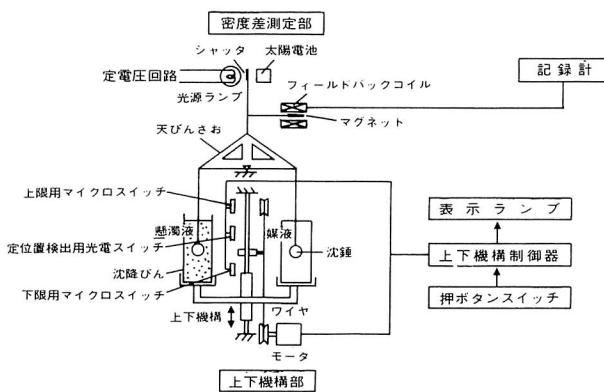


図4 比重天秤法装置例 (島津粒度分布自動測定装置 RS-1000)

注⁽¹⁾ ファインセラミックスセンター試験研究所

置 RS-1000 の装置図を示したが、この方法はある深さにおける濃度変化を、懸濁液の比重変化として測定する方法であり、天秤法、ピペット法同様濃度を直接重量基準で測定できる。

2.4 比重計法、圧力法

比重計法の原理は比重天秤法とまったく同じで、土壤の粒度試験法としての JIS A 1204 に準拠した比重計がよく用いられる。

圧力法は、一定深さでの圧力の経時変化を測定する方法で、Wiegner 管、Kelly 管などといわれているが、装置が簡単なため特に市販品はない。

2.5 光透過法

懸濁液の濃度を光の透過量に変換して検出する方法で、非接触で濃度測定ができるため、遠心沈降との組み合わせで用いられることがほとんどである。遠心場で粒子を沈降させることにより、沈降速度を増すだけでなく、プラウン運動も抑えることができるため、重力沈降では数日を要するサブミクロン域まで、数十分で測定できる。

この原理に基づく装置としては、島津製作所の遠心沈降式粒度分布測定装置 SA-CP2 シリーズ、SA-CP3 シリーズ(図 5)をはじめとして多くの装置が市販され、粒度分布測定の主流をなしてきた。その理由は、サブミクロン域まで数十分で自動測定でき、価格も手ごろであったことであるが、最近は後述するレーザー回折散乱法にその主流の座を譲りつつある。

この方法で原理的に留意すべき点は以下の点である。遠心沈降の場合図 6 に示すように粒子は放射状に沈降し、さらに半径位置とともに沈降速度を増すため、均一粒径の粒子でも時間とともに濃度が低下し、図 7²⁾に示すように誤差の原因となる。SA-CP3 シリーズでは内蔵のコンピュータにより補正を行なっている。次は吸光度の問題で、粒子が光の波長より十分大きい場合は、吸光度は一定と見なせるが、粒子の大きさが波長よ

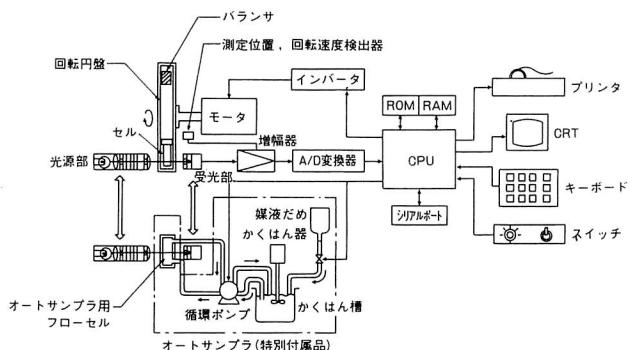


図 5 光透過法装置例（島津遠心沈降式粒度分布測定装置 SA-CP3）

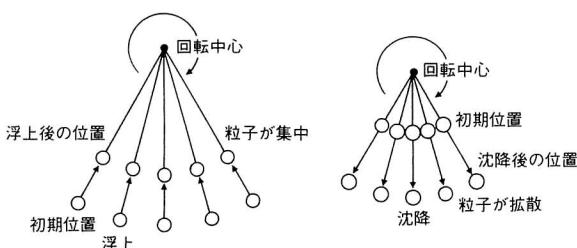


図 6 遠心場における粒子の移動

り小さくなると、吸光度は図 8³⁾に示すように粒径、粒子の光学的特性の影響を受ける。光の透過量と懸濁液濃度のリニアリティの関係で、測定は約 0.1 wt%以下の低い濃度で行なわれる。粗い粒子の場合図 9 に例を示したように、このような濃度範囲では懸濁液中に疎らにしかなく、光束に入ったり入らなかつたりして、バラツキの大きな原因となる。

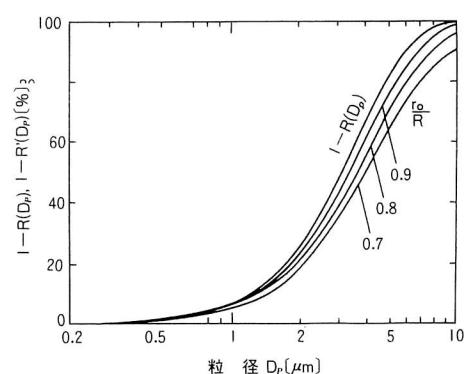
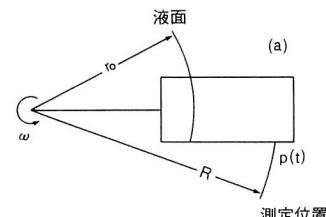


図 7 遠心沈降による濃度変化が測定値に及ぼす影響

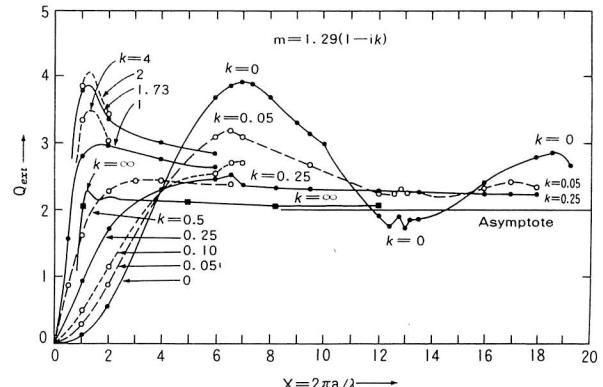


図 8 屈折率 m が吸光係数 Q_{ext} に及ぼす影響 (a は粒子半径、 λ は波長)

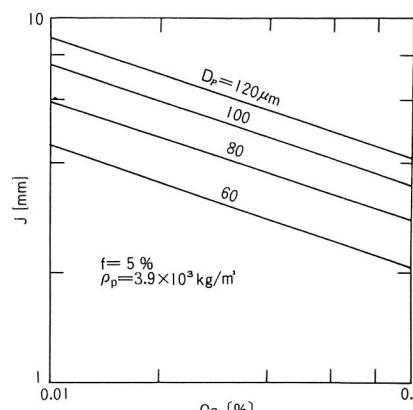


図 9 粒子 1 個が占める立方体の大きさ l と懸濁液濃度 C_s (密度 ρ_p 、粒径 D_p の粒子が $f_{vi}\%$ ある場合)

しかしバラツキの最大の原因是、粉体工学会の粒度測定グループ会のデータ⁴⁾によると、装置が正しく使われていないことによるようである。同グループ会では7種類の共通サンプルの粒度分布を、ほとんど全ての粒度分布測定装置により測定している。図10と図11にデータの齊合性の良かった例と悪かった例を示した。現在測定装置の自動化が進み、測定条件をインプットするとコンピュータが測定開始粒径（最大粒径）を計算し、それ以上の粒子は無いものとみなしてしまう。この測定開始粒径が十分大きくなれば、50%径は測定開始粒径に左右される。そこで、50%径と測定開始粒径をプロットしてみると、図12、13となり、齊合性の悪かった寒水石では両者は良く相関していない。

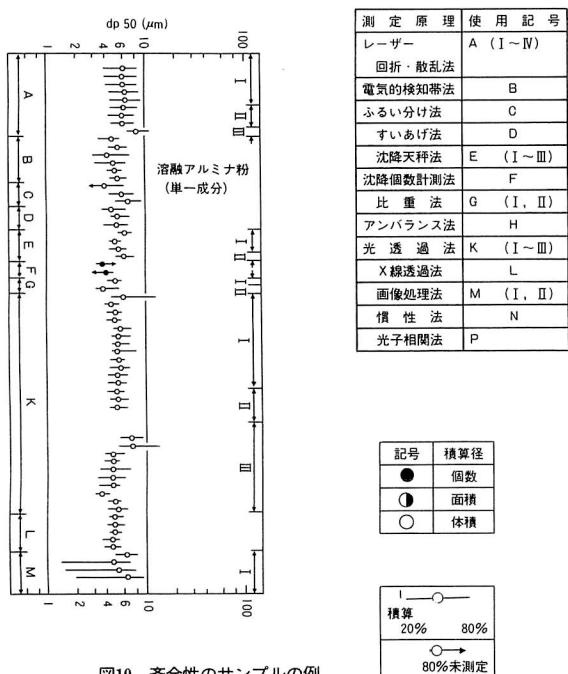


図10 齊合性のサンプルの例

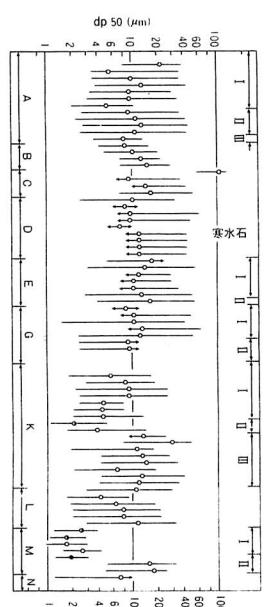
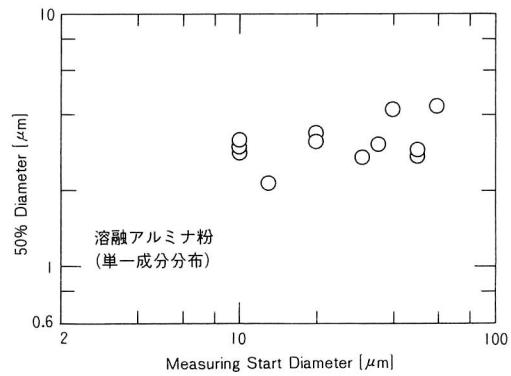
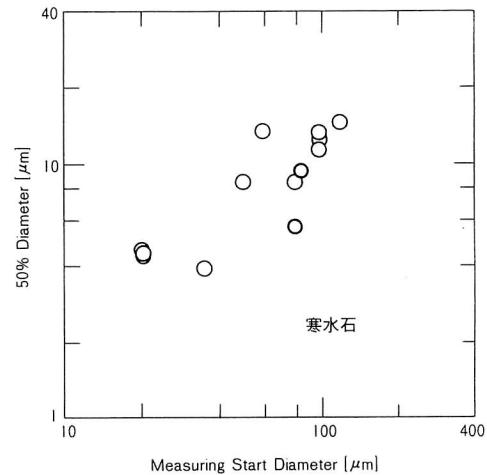


図11 齊合性の悪いサンプルの例

図12 50%径と測定開始粒径
(齊合性の良いサンプル)図13 50%径と測定開始粒径
(齊合性の悪いサンプル)

る。このことは、寒水石の粒度範囲は装置の測定可能範囲を越えていたことを意味する。

3. 光を用いた粒度分布測定法

光を粒度分布測定に用いると、一般に測定時間を短縮できることと、最近エレクトロ技術のめざましい発達により、高性能の装置が次々と開発されたことによって、光を用いた粒度分布測定法が粒度測定の主流になりつつある。

3.1 光の直進性の利用

粒子の影の大きさから粒径を求める方法で、波長より大きな粒子が測定対象となる。遮光法がこれに相当し、光透過法も基

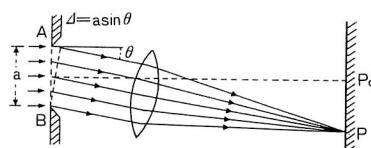


図14 障害物による光の回折



図15 回折パターン

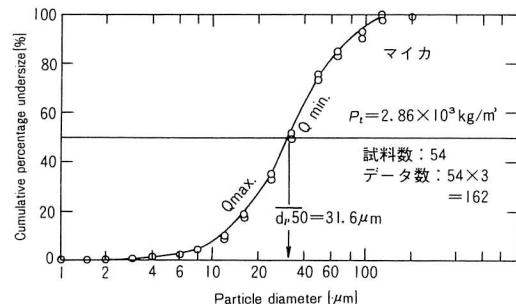


図16 レーザー回折法測定例

本的にはこの性質を利用している。

3.2 光の波動性の利用

光は波としての性質を持っているため、図14⁵⁾に示すように平行光線が隙間や粒子などの障害物にあたると、図15⁵⁾に示すようにスクリーン上に、障害物の大きさに応じて縞模様（回折像）を生ずる。従って回折パターンを測定することにより、粒径を求めることができる。回折像を得るためにには、粒径は波長より大きくなければならず、測定の下限値は1 μmであるが、密度や光学的特性の異なるサンプルにも適用でき、測定時間が数分で済み、図16⁴⁾に示すように再現性が良く熟練を要しないことから、ここ数年広く使われている。

3.3 光の電磁波としての性質の利用

3.3.1 レーザ光の散乱

電磁波である光が物質にあたると、物質内の電子が励起されて様々な方向に新たな電磁波を放出する。これが、光が粒子によって散乱される理由であるが、反射、屈折、回折といった光の全ての現象も、このような光を電磁波とみる立場から説明される。この光の散乱現象はMieによって理論的に解かれているため、Mieの理論式を解けば粒径範囲の制約無しに理論上は粒度測定が可能となる。しかしサブミクロン領域では、散乱光強度が粒径の6乗に比例することや、散乱角度が広くなることから測定範囲が0.1から数百 μmとなっている。図17に島津製作所のレーザ回折式粒度分布測定装置 SALD-1000 の装置構成を示した。装置によって散乱光の強度分布測定や、解析の仕方に違いがあるため、同じサンプルを測定しても図18に示すように測定結果に違いがでてくる。

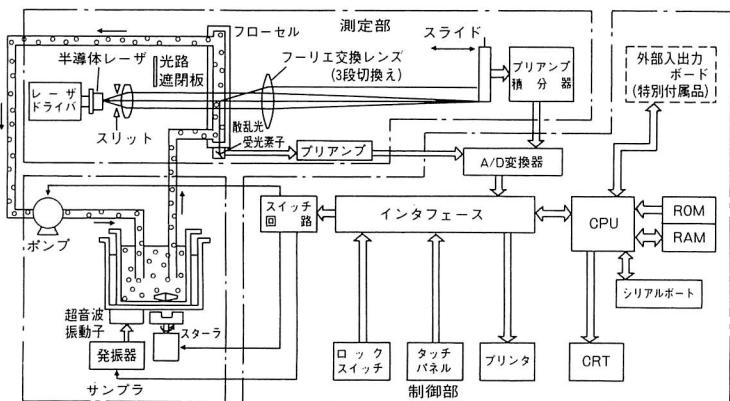


図17 レーザー回折散乱法の装置例（島津レーザ回折式粒度分布測定装置 SALD-1000）

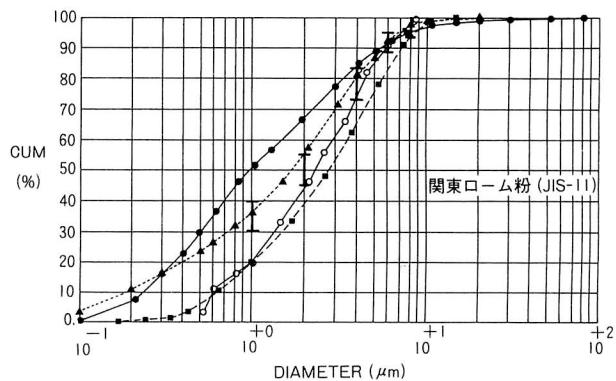


図18 装置間の比較 (I印はJISの範囲、-○-がSALD-1000の測定結果)

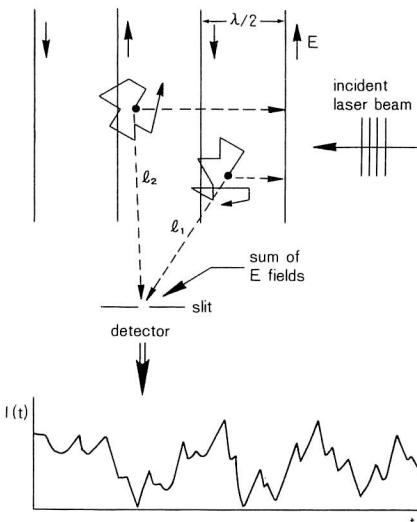


図19 動的光散乱法の原理

この方法は、回折法であげた長所に加えて、測定可能範囲も1回の測定でカバーできる粒径範囲（ダイナミックレンジ）も広いため、現在粒度測定の主流になりつつある。

3.3.2 レーザ光の動的散乱（光子相関法）

図19に示すように、例えば2個の粒子からの散乱光を検出する場合、強度は2つの散乱光の合成波で与えられるため、2つの散乱光の位相差（粒子の位置関係）の影響を受ける。粒子の位置関係に変化がなければ、検出される光の強度も一定であるが、粒子は絶えずブラウン運動により位置関係を変えたため、検出される光の強度もそれに応じて変動する。ブラウン運動は粒子の大きさに応じて変化するので、検出光の強度変化より粒径を求めることができる。

粒度測定装置としては、解決すべき問題点を多く含んだ装置であるが、電顕以外ではサブサブミクロン領域を測定できる唯一の装置であるので、今後の改良を期待したい。

4. その他の測定法

その他、ファインパウダーの粒度分布測定に用いられる装置として、電気的検地帯法（コールタ法）があるが、サブミクロン域の測定には検討すべき問題も少なくないようである。

新たな測定原理の中で注目されるのは、FFF法(Field Flow Fractionation)で、日本国内ではまだ販売されていないが、サブサブミクロン域まで測定可能であり期待される。

5. 今後の課題

今後の課題としては色々あげられると思うが、私見をまとめると以下の3点である。

5.1 測定範囲をより微粉域まで広げること

ここ1, 2年で短時間にサブミクロンまで測定できる装置がそろい始めたが、現実の粒度測定に対する要求はナノメータ域まで及んでいる。現在この領域の粒度測定はBET法もしくは電顕写真によって行なわれているが、BET法では分布を求められないし、電顕写真法は倍率と視野の選択、測定個数の問題などがあり、誰でも精度良く粒度測定ができる方法ではない。少しでも微粉域まで測定範囲を広げた装置の開発が強く望まれる。その意味でもFFF法は注目される。

5.2 サブミクロン域での測定「原器」の開発

本来粒径は用いる測定原理(代表径)が変われば変わるもので、粒度測定に原器は存在しない。しかし、同じ測定原理で測定しても結果に違いができるのが現実である。図18に示した様に、測定にソフトの占める割合の大きな装置ほどその傾向が強いようである。従ってある基準として、ピペット法や沈降天秤法のような、測定原理に忠実な測定装置の開発が必要である。その意味で、遠心沈降で粒子濃度を重量基準で測定する方法^{8,9)}が「原器」に近い方法といえる。

5.3 光学的物性値の取り扱い

粒子の大きさが光の波長より小さくなると、粒子の光学的挙動に粒子の光学的物性値が大きく効いてくる。図20にレーザ散乱法で、同じ生データを屈折率を変えて計算した例を示した。このように屈折率の与え方によって、測定結果が大きく変わることもある。屈折率をインプットする装置では、物性表などから屈折率の値を探すわけだが、物性表が全ての物質を網羅しているわけでもないし、たとえ物性表にある物質でも純度や粒子表面の汚染や酸化の問題が残り、屈折率をインプットすることが必ずしも精度の高い測定を保証しない。

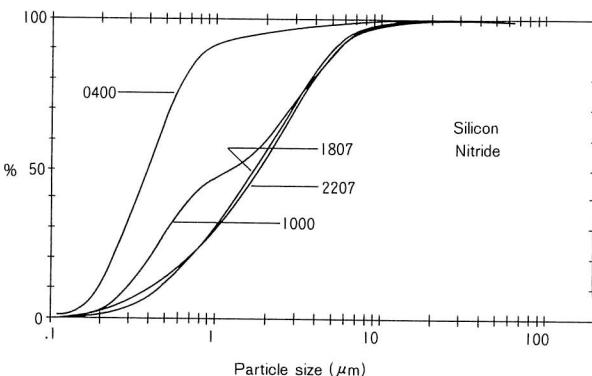


図20 屈折率が測定結果に及ぼす影響

沈降法における粒子の形の問題を、球という基準形状によって解決したように、基準物質(屈折率)を決めるなどレーザ回折散乱法が粒度測定の主流となりつつある現在、なんらかの解決策が必要である。

参考文献

- 1) 荒川正文：“粉体工学便覧”，粉体工学会編，p.30, 33.
- 2) 神保元二，樋淳一郎：粉体工学会誌，24, 24 (1987).
- 3) H. C. van de Hulst : "Light Scattering by Small Particles", p.278 (1981) (Dover Publications, Inc.).
- 4) 神保元二：粒度測定セミナー，最近の粒度分布測定法の総合的比較検討－共通試料による共同測定の結果発表－要旨集，p.36, 38 粉体工学会(粒度測定グループ会) (1987).
- 5) 多田政忠：“物理学概説 下巻”，p.208, 209 (1967) (学術図書出版社).
- 6) 荒川正文：“粉体 理論と応用 改訂二版”，久保輝一郎，神保元二，水渡英二，高橋 浩，早川宗八郎編，p.504 (1979) (丸善).
- 7) 荒川正文，下村 玄，今村 晃，矢沢尚彦，家谷憲美，北井宏美：粉体工学会誌，21 (12), 768 (1984).
- 8) 神保元二，樋淳一郎，趙 千秋，桜井幸夫：粉体工学会誌，23 (6), 430 (1986).

ファインセラミックスセンター試験研究
所 部長代理

樋 淳一郎

昭和46年 山形大学工学部化学工学科卒業
昭和51年 名古屋大学大学院工学研究科博士課程修了
同年 名古屋大学助手(工学部化学工学教室)
昭和54年 工学博士
昭和59年～62年 米国シラキュース大学にて研究
昭和62年 名古屋大学助教授(工学部化学生工学教室) 現在の研究テーマ：セラミックス原料パウダのキャラクタリゼーションと標準化。
同年 ファインセラミックスセンター試験研究所所長代理(高压成形焼結グループ)

