

粉体層力学—新たなフロンティアを求めて*

椿 淳一郎・森 英利

はじめに

粉体層力学は、穀物、石炭、鉱石等を貯槽するサイロやホッパー等の設計および貯槽容器内の流動解析を主な目的として研究され、粉粒体の貯槽技術の発展に大きく貢献してきた。しかし技術革新にともない産業界においては、これまで粉体層力学が対象としてきたミリからサブミリメータの粉粒体に加えて、ミクロンからサブミクロンメタもしくはそれ以下の微粉体が使用されている。これらの微粉体は、サブミリメータ程度の顆粒に造粒されるかもしくは湿式で処理されることが多い。顆粒体よりなる粉体層の挙動は、顆粒の変形・潰れない限り、これまで体系化された粉体層力学で扱うことができる。湿式処理される微粉体は、スラリーやスリップと呼ばれる粒子分散系として扱われ、その挙動はレオロジカルに解析されてきた。微粉体を湿式で処理する産業としては、セラミックス、塗料、各種記憶媒体などがあるが、これらの産業においては、原料の粒子分散系は乾燥されて緻密な粉体層となり、最終製品もしくは中間製品となっている。粒子分散系が緻密な乾燥粉体層となる過程は、図1¹⁾に示すように粒子分

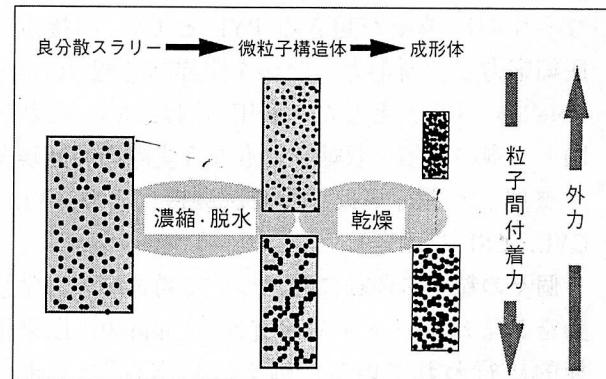


図1 セラミックス成形工程

散系の濃縮・乾燥過程である。この濃縮工程において粒子は、広い意味で粉体層であるネットワーク構造を形成する。このネットワーク構造の力学的特性が、原料粒子分散系のレオロジー的な特性に加えて、最終製品の品質に重要な影響を及ぼすことが認識されはじめ、ネットワーク構造体の力学的挙動に関する研究が始まられている。

本稿においては、従来の粉体層力学の発展を概観するとともに、粉体層力学の新たなフロンティアとして、液中に形成される微粒子ネットワーク構造体に関する研究も紹介してみたい。

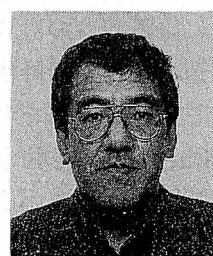
1. 粉体層力学

粉体層の力学は1960年にSokolovskii²⁾によって体系づけられた。JenikeとJohansonはこれら



Jun-ichiro Tsubaki (正会員)
1976年 名古屋大学大学院工学研究科
博士課程満期退学
名古屋大学工学部化学工学科
助手、米国シラキュース大学
流動研究員、名古屋大学工学
部化学工学科助教授を経て、
1986年 (財)ファインセラミックスセ
ンター試験研究所
1994年 名古屋大学教授
1996年 名古屋大学大学院工学研究科
物質制御工学専攻教授、現在
に至る
専門：粉体工学、セラミックス工学
趣味：懐メロ演歌

* 1997年1月8日受理



Hidetoshi Mori (正会員)
1981年 名古屋大学大学院工学研究科
博士課程修了
1981年 名古屋大学工学部化学工学科
助手
1989-1990年 デルフト工科大学(オランダ)研究員
1996年 名古屋大学大学院工学研究科
物質制御工学専攻助手、現在
に至る
専門：粉体工学、セラミックス工学
趣味：春一番、フルーツパンチ

の成果をベースに、ホッパーの設計手法を1970年代にほぼ確立した。その後粉体層力学の研究の中心は、ホッパーの設計に必要で粉体層の力学特性である破壊包絡線の測定に移り、国内では粉体工学会粉体物性グループ会を中心に、粉体層の引張強度とともに剪断強度に関する共同測定^{3,4)}が行われた。Schwedese⁵⁾は粉体層の破壊包絡線を、層の膨張をともなう粉体破壊包絡線(Powder Yield Locus; PYL)と圧密破壊包絡線(Consolidation Yield Locus; CYL)に分け、層の膨張も収縮もともなわざ剪断破壊が起きるPYLとCYLの接点の圧縮応力と剪断応力の関係を限界状態線(Critical State Line; CSL)とした。廣田ら⁶⁾は、Roscoe状態図上で層の膨張・収縮をともなう実際の剪断現象を整理し、平行平板型剪断試験機によりPYL、CYL、CSLを測定した。

個々の粒子の運動にもとづいて粉体層の力学挙動をシミュレートする研究が、Cundall⁷⁾以来積極的に行われている。例えば日高ら⁸⁾は、ホッパーからの粒子排出時のすべり線、応力状態のスイッチ現象などを可視化している。これらのシミュレーションは計算容量の点で、不十分さは残るが計算粉体工学⁹⁾として新しい領域を築きつつあり今後の展開が期待される。

2. 微粒子構造体の力学

構造体の力学的挙動を考える場合、降伏値がまず重要な力学的性質である。圧密応力に対する降伏値は、遠心圧密や加圧ろ過等の方法により測定されている。Millerら¹⁰⁾は、カオリン($0.35\text{ }\mu\text{m}$)、 α -アルミナ(0.2 , $0.5\text{ }\mu\text{m}$)、ジルコニア(8 , 57 , 139 nm)粒子の水分散系に無機の酸・塩基もしくは塩を添加して粒子構造体を形成し、前記の二つの方法と浸透圧密法により降伏値に相当する値を求め、それぞれの値が一致することから、降伏値を構造体の力学的物性値として測定できることを示した。Greenら¹¹⁾は、この降伏値と粒子充填率の関係を求める反復法と簡便法による二つの計算アルゴリズムを提案している。遠心圧密から降伏値を求める場合、半径方向に生じる密度分布を考慮しなければならないが、Millerらの実験もGreenらの計算結果も密度分布の影響は小さいことを示している。

Buscallら¹²⁾は、遠心場で構造体が降伏値より

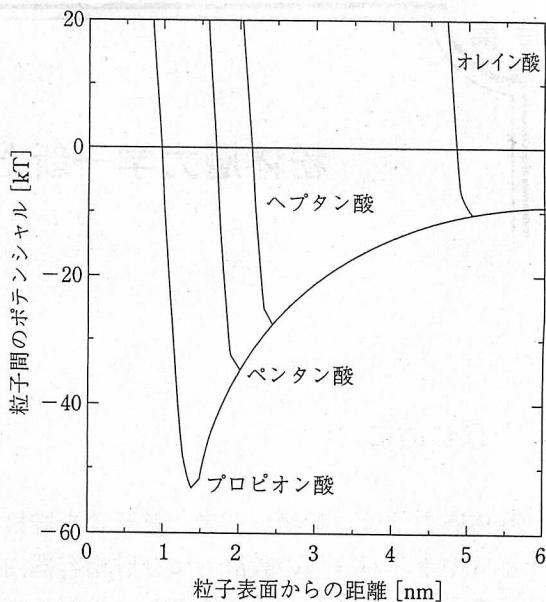


図2 粒子間ポテンシャルの計算値

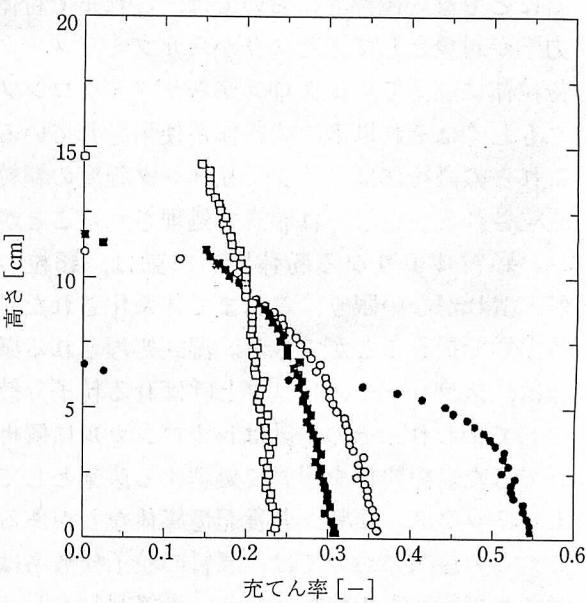


図3 重力沈降性堆積層内の充てん率分布
(□プロピオン酸, ■ペンタン酸, ○ヘプタン酸,
●オレイン酸)

も大きな応力を受け、変形を始めるときの変形速度(構造体表面の移動速度)と降伏値の関係を理論的に考察し、変形速度は降伏値が大きくなると直線的に小さくなると言う実験結果を理論的に説明している。吉田ら¹³⁾は、 α -アルミナ($0.48\text{ }\mu\text{m}$)粒子の水分散系をポリアクリル酸アンモニウム塩を分散剤として調製し、加速度一定の遠心場においてクリープ圧密実験を行い、粒子構造体の降伏後の変形挙動が、見掛け上フォーカトモデルにより記述できることを示している。Velamakanniら¹⁴⁾は α -アルミナ($0.2\text{ }\mu\text{m}$)粒子を試料とし、水

分散系の pH を酸・塩基の添加により調製したのち加圧ろ過によりケーキを形成し、ケーキの一軸加圧試験の応力緩和挙動を粒子間ポテンシャルの観点から考察し、粒子間に働く反発力は潤滑剤として作用するため、ケーキはより塑性的な挙動を示すと報告している。

重力場や遠心場で形成される構造体の充填率は分布をもつが、Bergstroem ら¹⁵⁾は粒子間ポテンシャルも充填率に大きく影響することを示している。彼らは $0.2\text{ }\mu\text{m}$ の α -アルミナをデカハイドロナフタレンに分散し、分子量の異なる脂肪酸を粒子に吸着させて図 2 に示すように粒子間ポテンシャルを制御したのち遠心圧密実験を行い、X 線の透過量より図 3 に示す充填率分布を求めた。図 2 と図 3 はよく対応しており、接触点の力学条件が重要な因子であることが示されている。充填率分布に関する理論的研究としては、あらかじめ実験により平均の圧密圧と平均充填率の関係を求めておけば、粒子充填率の分布を予測できる式が Shih ら¹⁶⁾によって提案されている。

Pearson らのグループは、DLVO 理論に基づき塩濃度が粒子構造体の力学挙動におよぼす影響を、 α -アルミナ粒子を試料とし pH 調製に硝酸と水酸化アンモニウムを用い、塩として塩化アンモニウムを用いて、実験的に検討している。同心円筒回転粘度計¹⁷⁾と動的粘度計¹⁸⁾を用い、スラリーの剪断降伏値を求めている。いずれの実験においても、低 pH の分散領域では塩濃度とともに降伏値も大きくなっているが、等電点近傍の凝集領域では塩濃度の影響はほとんど表れていない。充填率¹⁹⁾も塩濃度の影響を受け、分散領域では塩濃度の増大にともない充填率は低下している。構造体の変形挙動に関しては前述¹⁴⁾の通りである。

微粒子構造体形成に関するシミュレーションとしては、DLA 法 (Diffusion Limited Aggregation) を噴霧乾燥時の顆粒形成に適用した三井ら²⁰⁾の研究、ヘテロ凝集に適用した Shih²¹⁾らの研究と、DEM 法 (Discrete Element Method) を遠心い込みの初期段階に適用した Hong²²⁾の研究がある。

おわりに

無機先端材料の多くは微粒子を出発原料としているにもかかわらず、これまで粉体工学は材料製造プロセスと接点が薄かった²³⁾。しかし粉体層力学の発展の中で蓄積されてきた方法論、粒子接触点の力学に着目したアプローチは、液中の微粒子構造体に対しても有効であり、今後粉体工学と材料プロセス工学が融合した新たな領域の形成が期待される。

引用文献

- 1) 植淳一郎ら：日本セラミックス協会第 9 回秋季シンポジウム講演予稿集, 3F05(1996)
- 2) ソフロフスキイ：粒状体の力学、オーム社(1964)
- 3) 檜上和美：粉体工学会誌, 15, 491(1978)
- 4) 大塚昭信：粉体工学会誌, 18, 591(1981)
- 5) Schwedes, J : Powder Technol., 11, 59(1975)
- 6) 廣田満昭：粉体工学会誌, 21, 137(1984)
- 7) Cundall, P. A., et. al. : Geotechnique, 29, 47(1979)
- 8) 日高重助ら：化学工学論文集, 20, 397(1994)
- 9) (社)日本粉体工業技術協会創立 25 周年記念、技術フォーラム -Session 1-(1996)
- 10) Miller, K. T., et. al. : J. Am. Chem. Soc., 79, 2545(1996)
- 11) Green, M. D., et. al. : AIChE J., 42, 2308(1996)
- 12) Buscall, R., et. al. : J. Chem. Soc., Faraday Trans. 1, 83, 873(1987)
- 13) 吉田直史ら：粉体工学会第 32 回夏期シンポジウム講演要旨集, 4 (1996)
- 14) Velamakanni, B. V., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 77, 216(1994)
- 15) Bergstroem, L., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 77, 216(1994)
- 16) Shin, W. H., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 77, 540(1994)
- 17) Chang, J. A., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 79, 19(1996)
- 18) Yanez, J. A., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 79, 2917(1996)
- 19) Chang, J. C., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 77, 1357(1994)
- 20) 三井美香ら：第 28 回秋季大会, F117(1995)
- 21) Shin, W. Y., et. al. : J. Am. Ceram. Soc., 79, 2587(1994)
- 22) Hong, C. W. : J. Cream Soc. Japan, 104, 793(1996)
- 23) 植淳一郎：粉体工学会誌, 29, 281(1992)