

タッピングによる大小二成分粒子系の充填特性*

石 藏 利 文**
永 島 大**

Packing Properties of Binary Powder Systems Subjected to Vertical Tapping

Toshifumi ISHIKURA and Hiroshi NAGASHIMA

An experimental study by a tapping method has been conducted on packing properties of binary powder systems, which is related with the flowability of powders. Variables studied were, that is, state of initial packing of powders, weight ratio of smaller powder to total powders C_s , tapping height H and weight of powder bed W . The packing process by tapping was investigated on the variation of average void fraction ϵ , especially for binary powder systems of widely different particle sizes and under conditions of relatively small particle sizes, which have seldom been studied previously.

As the result, with the binary powder systems examined, size segregation of powders were found to take place depending on the system of initial packing of powders, and gave a complicated variation of average void fraction ϵ in the powder bed, which corresponded well with the observed phenomenon.

Key Words: Flowability of Powder, Packing by Tapping, Binary Powder Systems, Size Segregation

緒 言

粉体装置内での粉体の挙動は、その粒子の大きさ、形状、密度などの相違に大きく依存する。これは、これらの粉体特性がその流動性に関係するためである。その基礎的要因は、粒子の運動エネルギーに係わる粒子質量と粒子間の相互作用に関係する付着力や凝集力そしてこれらで決まる二次特性である粒子充填特性と考えられる。粉体の充填特性を表す一つの方法として、タッピング充填特性がある。これは、粉体層に断続的に衝撃を与えるもので、その粉体の物性⁽¹⁾とその結果として生じる流動性や付着性などに密接に関係し、充填操作を伴う各種工業で重要となる。

筆者ら⁽²⁾は、先に単一粒子系のタッピング圧縮進行過程について速度論的⁽³⁾に検討し、川北の二次圧縮速度式のパラメータ^{(4), (5)}が粉体層の初期の空隙率によって変

化する問題点などを指摘した。さらに実際には粉体の圧縮過程は、単純でない場合が多いため、一つの式で表現できないことが多く、むしろその現象との対応が重要となる。例えば、Cooper⁽⁶⁾は、粉体の圧縮過程に対して、粒子群の再配列による圧縮と粒子自身の変形を考慮した式を提案し、さらに荒川⁽⁷⁾は、Cooperらの式を用いて凝集性粒子の圧密過程を考察している。一方、粉体の取り扱いで起こり易い大小二成分粒子系^{(8), (9), (10)}の偏析構造の解明やその防止法は、充填操作の場合にも重要となる。しかしながらタッピングによる大小二成分粒子系の充填特性に関する研究報告は少ない。

本報告では、一定のタッピング操作条件下で、粒子径の大きく異なる大小二成分粒子系⁽¹¹⁾を用い、主に混合、偏析現象^{(12), (13)}を伴うタッピング圧縮進行過程に着目した。すなわち、まず単一粒子間の相互移動が支配的段階、次に大、小粒子の混合が支配的段階さらに粒度偏析が支配的段階が考えられ、それらの段階について粉体層のかさ体積の変化から検討した。その場合、粉体層の平均空隙率に影響を及ぼす粉体の初期の詰め方、粒子径、粒径

* 平成15年5月31日受付

** 化学システム工学科

比, 小粒子重量割合, タッピング落下高さおよび粉体の仕込み量などの影響について実験的に検討した. その結果, 二, 三の知見を得たので報告する.

1. 実験装置および方法

タッピング実験装置の概略図を Fig. 1 に示す. 用いた装置は, カム機構⑦によってタッピングセル①に垂直な上下運動を生じさせるもので, タッピング反発防止作用のマグネチックダンパーを備えている. また初期の粉体のセル内への充填方法は, 圧縮過程の検討のため主に目開き710 μm の振動ふるい⑤により雪が降るが如く一定のゆるみ充填状態になるように粉体を仕込んだ. タッピングセルは, 主に200ml のシリンダーを用い, セルの断面積の影響を調べる場合のみ100ml シリンダーを用いた. タッピング速度は, かさ体積の変化が大きい範囲では, 1 回毎に十分にタッピング間隔をとり, 小さい範囲では120回/min で連続的にタッピングを行い, 三ヶ所の粉体層高さ h を読み取り, その平均値から平均空隙率 ϵ を次式によって算出した.

$$\epsilon = 1 - \frac{W}{V \cdot \rho_p} \quad (1)$$

ここで, W はセル内の粉体層の重量, V はタッピング回数 N 回での粉体のかさ体積, ρ_p は粒子密度を示す.

タッピング実験条件を Fig. 2 および Table 1 に示す.

Fig. 2 は, 粉体の初期の詰め方を三通りのモデルで表す. すなわち実験は, タッピングセルの上部に大粒子, 下部

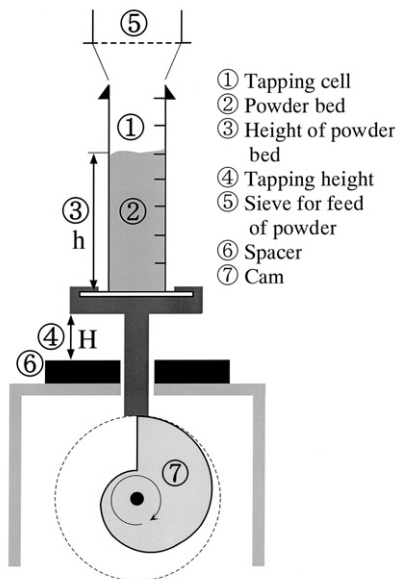


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus

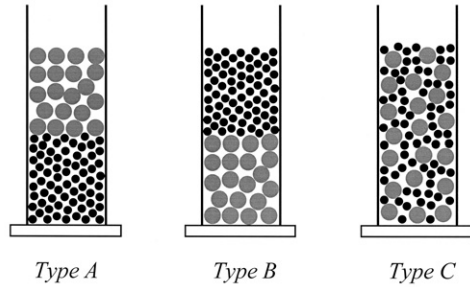


Fig.2 Initial packing state of powders

Table 1 Experimental conditions

Weight ratio of smaller powder to total powders
 C_s [kg/kg]: 0, 0.25, 0.50, 0.75, 1

Tapping height
 H [m]: 14, 24, 34, 44, 55 $\times 10^{-3}$

Weight of powder bed
 W [kg]: 0.08, 0.10, 0.12, 0.15

Relative humidity
 R_h [%]: 44 ~ 55

に小粒子の場合 (タイプA), その逆の場合 (タイプB) および大, 小粒子を均一に混合して詰めた場合 (タイプC) で行った. また Table 1 は, 全粒子量に対する小粒子重量割合 C_s , タッピング落下高さ H および粉体の仕込み量 W の実験範囲を示す. また相対湿度 R_h の影響を小さくするため, R_h を60%以下にして測定を行った. さらに試料粉体は, 前処理として120°Cで1日乾燥させた後, 実験室に1時間程度放置した後に用いた.

用いた試料粉体は, ガラスビーズと炭化珪素でその主な特性を Table 2 に示す. いずれの粉体も形状はほぼ球形である. なお, 以後の粉体名は Table 2 中の括弧内の略号で記す. Table 2 中の ϵ_0 は, 前述したように自然充填した際のセル内の粉体層のゆるみ充填の時の平均空隙率を示す. タッピング実験に用いた試料粉体の組み合わせは G2と SC (粒径比12 : 1), G1と G2 (粒径比10 : 1) および G1と G3 (粒径比4 : 1) であり, いずれも粒度偏析現象が生じると考えられる粒径比の範囲である.

2. 実験結果および考察

2.1 二次圧縮速度式の適用

川北ら^{(4), (6)}は, 粉体のかさべり度 C とタッピング回数 N との関係を次の二次圧縮速度式で示している.

$$\frac{N}{C} = \frac{N}{a} + \frac{1}{a \cdot b} \quad (2)$$

また、かさぶり度 C は、次式によって定義される。

$$C = \frac{(V_0 - V)}{V_0} \quad (3)$$

ここで、 V_0 はセル内粉体の初期かさ体積を示す。

タッピング圧縮過程が Eq.(2) 中のパラメータ a と b によって特徴づけられる。 a の値はタッピング限界における最終かさぶり度を示し、この値が大きいほど圧縮流動性は高いが、一般には粉体の流動性が悪く、流れにくいことを示す。 b の値は、圧縮速度係数に関係し、この値が大きいほど粉体の流動性が良いことを示す。

Fig.3 は、Eq.(2) に基づいて縦軸に N/C 、横軸にタッピング回数 N を粒子系 G2-SC の場合について示す。 G2 粉体の粒子径 D_p は $51 \mu\text{m}$ 、SC 粉体の D_p は $4.2 \mu\text{m}$ でその粒径比はおよそ12倍である。 図からこの系の圧縮過

Table 2 Properties of sample powders

Particles	D_p [μm]	ρ_p [kg/m^3]	ϵ_0 [-]
Glass Beads (G1)	502	2480	0.358
Glass Beads (G2)	51	2480	0.422
Glass Beads (G3)	118	2480	0.396
Silicon Carbide (SC)	4.2	3200	0.634

Size ratio : G2/SC = 12, G1/G2 = 10, G1/G3 = 4.

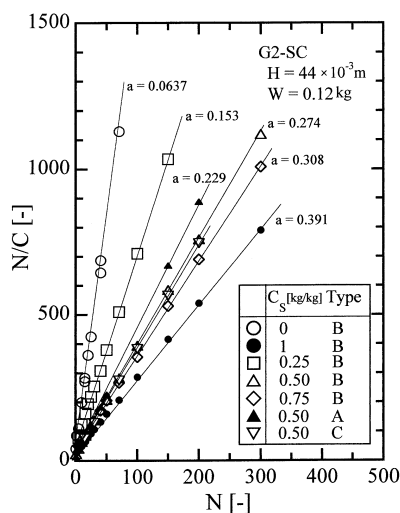


Fig.3 Relationship between N/C and tapping number N with weight ratio of smaller powder to total powders C_s and initial packing state as parameters

程は、 N の大きい範囲にわたって直線性が認められ、大小二成分粒子系にもかかわらず Eq.(2) が成立することがわかる。これは、G2 粉体と SC 粉体がほとんど混合や偏析することなく、各々の単一粒子系の加成性が成立するためと考えられる。直線の傾きは $1/a$ で、この値が小さいほどすなわち a の値が大きいほど最終かさぶり度が大きいことになり、流動性が悪いことを表している。 Fig.3 から流動性の悪い SC 粉体の重量割合 C_s が増加するにつれて、 a の値が大きくなり、粉体層は不安定となり圧縮流動性が高くなることが認められる。また、図からタイプAの場合、直線の傾きがB、Cタイプと比べて大きく、粉体層が安定となることがわかる。これは、タイプAの場合セル内の上部の大粒子群がほとんど下部の小粒子群と混合しないためと考えられる。

以上より、混合や偏析が起こらない異径二成分粒子系のタッピング圧縮過程は、かさ体積の減少が単調であり単一粒子系のそれと同様に取り扱えることが認められる。

2.2 平均空隙率 ϵ に及ぼすタッピング条件の影響

大小二成分粒子系の混合、偏析現象を伴うタッピング圧縮過程を検討するため、タッピング回数 N の広い範囲に対して粉体層の平均空隙率 ϵ の変化に着目する。

(a) 粒子系 G2-SC の場合 **Fig. 4** は、Fig. 3 のタイプBの場合のデータについて、平均空隙率 ϵ に及ぼす小粒子重量割合 C_s の影響を示す。 C_s が大きいほど初期の ϵ が大きいため、 N の増加に伴って ϵ の減少割合が大きいことがわかる。この場合、タイプBは前述したようにセル上部に小粒子、下部に大粒子を初期に仕込んだ詰め方で、最も粉体の混合や偏析が生じ易いと予測される。しかしながら粒径比が12と大きいにもかかわらず、観察からもほとんど両者の混合や偏析は生じず、 N の増加に伴って各々の粉体層が圧密化されるため、初期に ϵ が著しく低下し、 C_s の値にかかわらずほぼ一定値0.38に

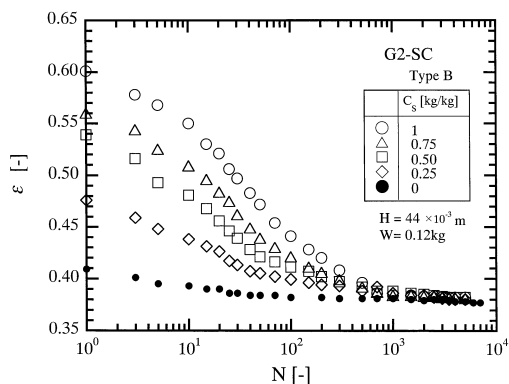


Fig.4 Effect of weight ratio of smaller powder to total powders C_s on average void fraction ϵ

収束する単純な圧縮過程であることがわかる。これは、小粒子の粒子径 D_p が $4.2\mu\text{m}$ で付着性粉体であり、大粒子の D_p が $51\mu\text{m}$ で質量が比較的小さいため、瞬時のタッピング衝撃による大粒子の跳ね上がり効果が小さいためと考えられる。

また、粒子系 G2-SC の場合の圧縮過程には、タッピング落下高さ H の影響は多少認められたが、仕込み量 W の影響は明確には現れなかった。

(b) 粒子系 G1-G2 およびの G1-G3 の場合 **Fig. 5** は、小粒子重量割合 $C_S=50\%$ の場合について、平均空隙率 ε に及ぼす粉体の初期の詰め方と粒径比の影響を示す。タイプBすなわちセルの上部に小粒子、下部に大粒子を仕込んだ場合、粒子系 G1-G2 および G1-G3 両者共に、 N の増加に伴い大、小粒子の各々の圧密化と大、小粒子の相互の混合のため、 ε が著しく減少し、 ε の値の最小値を示している。例えば粒径比10の粒子系 G1-G2 ではほぼ N が2000程度で最小値を示す。この付近では、大、小粒子がかなり相互の混合状態にあることが確認された。さらに N が増加すると ε の値が逆に徐々に増加し、大粒子がセルの上方まで移動し、一種の偏析、分離現象が生じていることが認められた。この場合、大粒子は主にセルの中心部を上昇し、小粒子は壁面近くを下降することが認められた。最終的には、セルの上層に大粒子、下層に小粒子の安定した充填状態すなわちタイプAになると予測されたが、タイプAの ε の最終値には達していないことが図から認められ、まだ大、小粒子が完全に偏析、分離していないことがわかる。

これらの現象は、大粒子中に小粒子が浸透するパーコレーション効果によると同時に、タッピングによる瞬時の衝撃力によって、運動量の大きい大粒子が弾性力により跳ね上がり、その瞬間小粒子がその下方の空隙に入り込み、逐次大粒子が上方へ移動するためと考えられる。この種の偏析は、タッピング特有の現象と考えられる。

また Fig.5 から、粒子径 G1-G2 (粒径比10) の方が粒子径 G1-G3 (粒径比4) よりも早く ε の最小値に達し、その値も小さいことが認められる。これは、パーコレーション効果が粒径比10の方が大きいことと大粒子が跳ね上がった時、より細かい粒子の方が有効に大粒子の下方の空隙に入り込み易いためと考えられる。

さらにタイプCすなわち大、小粒子を均一に混合して仕込んだ場合、両者の粒子系共に初期タッピングによって各々が圧縮されて ε は減少するが、その後タイプBの進行過程と類似して ε が徐々に増加し、大粒子が浮上し始めることが認められる。またタイプAは、安定した充填状態であり、混合、偏析現象はほとんど起こらず、 N の増加に伴ってわずかに ε が減少し、一定値になる単純な圧縮過程を示している。この場合、大、小粒子の混合

がほとんどないため、 ε の値が他の詰め方のタイプに比べて大きいことが認められる。

以上より、混合や偏析がおこる異径二成分粒子系のタッピング圧縮過程は、粉体の初期の詰め方や粒径比によってかさ体積の減少や増加が生じ、複雑に異なることが認められる。

Fig. 6 は、タイプBの場合について、平均空隙率 ε に及ぼす小粒子重量割合 C_S の影響を示す。 $C_S=25\%$ では、 N の増加に伴い大、小粒子の混合、偏析によって他の C_S に比べて著しく ε が減少し、最小値に達して、さらに逆に急激に増加することがわかる。これは、相対的にセル内の小粒子層が薄いため、大粒子が上方へ移動する距離が短くなることや大粒子の跳ね上がりが容易となり、その空隙への小粒子の侵入が有効に作用することが考えられる。

また、 $C_S=75\%$ では、混合、偏析の度合いが $C_S=25$ 、 50% よりかなり小さく、 ε の増加も認められない。これ

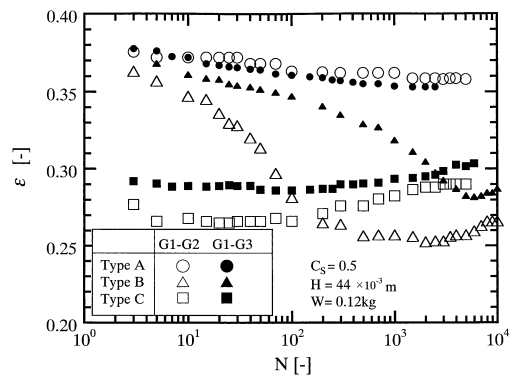


Fig.5 Effects of initial packing state and size ratio of powders on average void fraction ε

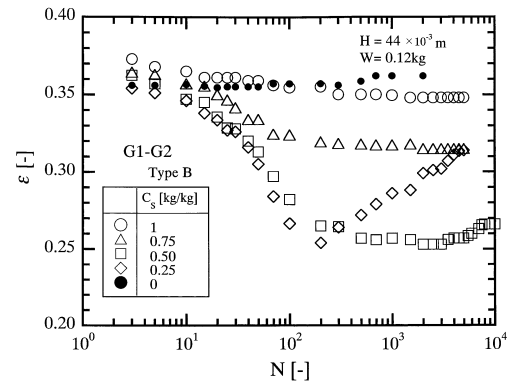


Fig.6 Effect of weight ratio of smaller powder to total powders C_S on average void fraction ε

は、相対的にセル内の小粒子層が厚くなり、大粒子の上方への移動距離が長くなり、混合、偏析が起りにくくなるためと考えられる。さらに大粒子のみの場合 ($C_s=0\%$)、 N の増加に伴い ϵ が徐々に増加している。これは、大粒子の粒子径が $500\mu\text{m}$ と大きいため、大粒子の弾性力によって逆に疎充填になることがわかる。

以上により、小粒子重量割合 C_s の相違によって、小粒子の混合や偏析の度合いが異なり、それによってタッピング圧縮過程が大きく異なることが認められる。

Fig. 7 は、タイプBの場合について、平均空隙率 ϵ に及ぼすタッピング高さ H の影響を示す。 H が大きいほどタッピング衝撃力が大きくなるため、前述の作用が強くなり、小粒子の混合、偏析が著しくなり、 ϵ の変化が顕著となることが認められる。

Fig. 8 は、タイプBの場合について、平均空隙率 ϵ に及ぼす粉体の仕込み量 W の影響を示す。 W が小さいほど、小粒子の混合、偏析が著しくなり、 ϵ の変化が顕

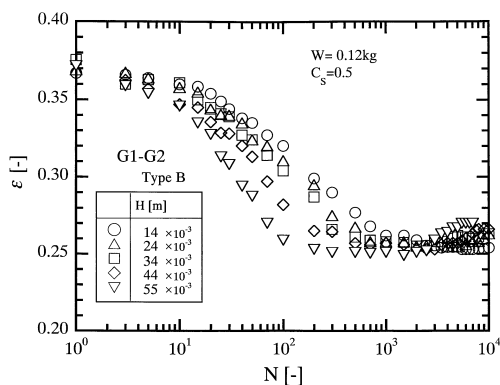


Fig.7 Effect of tapping height H on average void fraction ϵ

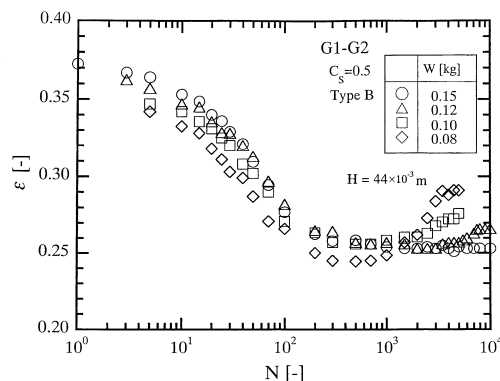


Fig.8 Effect of weight of powder bed W on average void fraction ϵ

著となることがわかる。これは、 W が小さくなると粉体層が薄くなり、大、小粒子の混合が著しくなり、さらに大粒子の上方への移動が容易になるためと考えられる。なお、本実験範囲では、平均空隙率 ϵ に及ぼすタッピングセルの断面積の影響は、顕著に認められなかった。

結 言

タッピングによる大小二成分粒子系の充填特性を調べ、以下のことが明らかになった。

- (1) 混合や偏析が起らないタッピング圧縮過程は、かさ体積の減少が単調であり、単一粒子系と同様の取り扱いができることが認められた。
- (2) 混合や偏析が起るタッピング圧縮過程は、粉体の初期の詰め方、粒子径、粒径比および小粒子重量割合などによって、かさ体積の減少や増加が生じ、複雑に変化することがわかった。
- (3) 混合や偏析が起り易くなるタッピング操作条件は、粉体の初期の詰め方がタッピングセルの上部に小粒子、下部に大粒子の場合、粒径比が大きい、小粒子重量割合が25%、タッピング高さが高い、粉体の仕込み量が小さい場合であることが認められた。

なお、タッピング圧縮進行過程での混合、偏析現象を生じる機構やその定量的評価方法についてさらに検討する必要がある。

Nomenclature

- a : parameter in Eq.(2) or final degree of volume reduction (—)
- b : parameter in Eq.(2) (—)
- C : degree of volume reduction defined by Eq.(3) ($= (V_0 - V) / V_0$) (—)
- C_s : weight ratio of smaller powder to total powders (kg/kg)
- D_p : diameter of particles (μm)
- H : tapping height (m)
- h : height of powder bed (m)
- N : tapping number (—)
- R_h : relative humidity (%)
- V : bulk volume of powder bed at any tapping number (m^3)
- V_0 : initial bulk volume of powder bed before tapping (m^3)
- W : weight of powder bed (kg)
- ϵ : average void fraction (—)
- ϵ_0 : initial void fraction before tapping (—)
- ρ_p : density of particles (kg / m^3)

References

- (1) Miyajima, T., K. Yamamoto and M. Sugimoto: "Effect of Particle Shape on Packing Properties during Tapping", *J.Soc. Powder Technol., Japan*, **37**, 10-18 (2000)
- (2) Ishikura, T., F. Hirabara, K. Takao and H. Shinohara: "Kinetic Approach of Compressibility of Powders in Tapping Compaction", *Fukuoka Univ. Review of Technol. Sci.*, **42**, 91-97 (1989)
- (3) Yu, A.B. and J.S.Hall: "Packing of Fine Powders Subjected to Tapping", *Powder Technol.*, **78**, 247-256 (1994)
- (4) Kawakita, K. and K.H. Ludde: "Some Considerations on Powder Compression Equations", *Powder Technol.*, **4**, 61-68 (1970/71)
- (5) Kawakita, K., I.Hattori and M.Kishigami: "Characteristic Constants in Kawakita's Powder Compression Equation", *J.Soc. Powder Technol., Japan*, **11**, 453-460 (1974)
- (6) Copper, A.R. and L.E.Eaton: "Compaction Behavior of Several Ceramic Powders", *J.Am. Ceram. Soc.*, **45**, 97-101 (1962)
- (7) Arakawa, M., T.Kitamura, Y.Tokuoka, H.Mori and H.Kinoshita: "Aggregate Structure of Fine Particles and Compacting Process", *J.Soc. Mater. Sci., Japan*, **35**, 1246-1250 (1986)
- (8) Williams, J.C. and G.Shields: "The Segregation of Granules in a Vibrated Bed", *Powder Technol.*, **1**, 134-142 (1967)
- (9) Williams, J.C.: "The Segregation of Particulate Materials. A Review", *Powder Technol.*, **15**, 245-251 (1976)
- (10) Popplewell, L.M. and M.Peleg: "On the Segregation of Compressible Binary Powder Mixtures Subjected to Tapping", *Powder Technol.*, **67**, 21-26 (1991)
- (11) Yamashiro, M., Y.Yuasa and K.Kawakita: "An Experimental Study on the Relationships between Compressibility, Fluidity and Cohesion of Powder Solids at Small Tapping Number", *Powder Technol.*, **34**, 225-231 (1983)
- (12) Yubuta, K., K.Gotoh and H.Masuda: "Size Segregation of Polydispersed Particles Caused by Vertical Tapping", *J.Soc. Powder Technol., Japan*, **32**, 89-96 (1995)
- (13) Akiyama, T., M.Kimura, H.Tanimura and G.Yokoyama: "Inverse Density Segregation of Binary Particle Mixtures Subjected to Vertical Tapping and Vibration", *Advanced Powder Technol.*, **12**, 105-115 (2001)