

## 平成 22 年度研究助成報告（兼、終了報告）

研究題名	位相可変型剪断振動機構を利用した微粉体の精密定量供給に関する基礎研究
研究期間	平成 21 年 4 月 1 日～平成 23 年 3 月 31 日
研究機関・所属 研究者名	京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 松坂 修二

### 1. 平成 22 年度研究成果の概要

21 年度に試作した振動剪断流動式精密定量供給装置を用いて、微粉体の供給特性を把握する実験を行った。本装置は、円筒管粉体容器の出口に粒子の排出流量を制御する底板を配置し、管および底板に取り付けた圧電素子の振動を利用して、管と底板の微小間隙から粒子を排出させるものである。操作変数は、管と底板の振動数、振幅、位相差、粒子排出部の間隙および排出傾斜角であり、ミクロン、サブミクロン、ナノサイズの粒子を用いて実験を行った結果、1 mg/s の微小流量でも定量供給が可能であることが分かった。同位相では外部振動による粒子群の慣性効果が粒子の排出に対して支配的であり、逆位相にすると振動剪断流動効果が支配的であった。また、同位相の慣性効果は間隙を大きくすると強くなるが、逆位相の剪断流動は凝集粒子の解砕を促進した。高速度カメラで粒子の排出状態を観察した結果、間隙内の上部粒子は剪断流動が顕著であり脈動もみられた。脈動の周期は外部振動（振動数 320 Hz）と一致しており、微粒子の運動は外部振動に対して追従することが分かった。

### 2. 助成期間内での研究成果の概要

#### 1. 緒言

機能性微粒子は、医薬品、食品、化粧品、ファインセラミクス、電子デバイス、電子写真など、多くの産業で使用されている。粒子の微細化は、製品の小型化、軽量化、高集積化を可能にするだけでなく、表面活性の利点を活かして、高付加価値の製品を生み出せる。しかし、微粒子の乾式ハンドリングは非常に難しく、新たな技術開発が必要である。特に、精密定量供給は、研究・開発時の信頼性の向上と効率化のために、また、工業生産における製品の品質および性能を左右するプロセス操作端として重要である。

微粒子ハンドリングを難しくしている主な要因は、粒子-粒子間、粒子-壁間に働く付着力や摩擦力が重力に比べて非常に大きいことである。少量の微粒子を重力だけで移動させることはできないので、外力を加えて機械的に流動性を高めなければならない。粒子層内では、付着力および摩擦力が常に働くので、流動状態を保つには外力を加え続ける必要がある。ただし、空間率が大きいとき、粒子間における外力の伝達効率は大きく減少するので、粒子層の内部まで外力を伝えるにくい。したがって、粒子を微小間隙に導き、壁を振動させて外力を連続的かつ確実に伝える機構を取り入れる必要がある。壁の振動方向は、粒子の運動を妨げないように間隙に対して平行（すなわち、壁の接線方向）とし、粒子の移動方向と一致させるのがよい。

本研究では、微小間隙に振動剪断場を形成させて微粉体を精密に定量供給する方法を開発するための基礎データを得るとともに粒子の排出挙動を解析することを目的とする。

## 2. 実験装置および方法

### 2.1 実験装置

Fig. 1 に、剪断振動機構を利用した微粉体の精密定量供給装置の概要を示す。また、Fig. 2 に装置の主要部（傾斜排出状態）の写真を示す。粉体容器（ガラス管：外径 20 mm または 22 mm、厚さ 2 mm、高さ 210 mm）の出口に、管の外径と同径の円形底板を配置し、管および底板に取り付けた圧電素子を振動させて、管と底板の微小間隙から粒子を排出した。2 個の圧電素子に印加する電圧は、波形発生装置の電気信号をアンプで増幅した。振動およびその制御は、IMP 製 VST-01 control system を使用した。本実験装置の操作変数は、管と底板の振動数、振幅、位相差、粒子排出部の間隙および排出傾斜角である。振動数は、共振付近で安定な振動が得られる 320Hz に定めた。管および底板の振幅は 0~30  $\mu\text{m}$ 、位相差は 0 と 180° すなわち、同位相と逆位相、間隙は 0.2~3 mm、傾斜角は 0~30° とした。振動波形は任意に設定できるが、本実験では安定な振動が得られる正弦波を用いた。なお、2 個の圧電素子の向きを垂直にして位相差を 90° にすると円運動による剪断場も形成できる。

### 2.2 試料

本実験では、ミクロン、サブミクロン、ナノサイズの粒子（すなわち、球形アルミナ  $D_{p50} = 10 \mu\text{m}$ （質量基準）、Showa Denko K.K.と不定形アルミナ  $D_{p50} = 0.4 \mu\text{m}$ 、APPIE、 $D_{p50} = 8 \mu\text{m}$ 、Fujimi Inc., 粒子密度  $\rho_p = 4000 \text{ kg/m}^3$ 、および不定形シリカ粒子  $D_{p50} = 7 \text{ nm}$  と 12 nm、Nippon Aerosil Co.,  $\rho_p = 2200 \text{ kg/m}^3$ ）を用いた。微粉体は、120 °C で 24 時間乾燥し、デシケーターで室温まで冷却して使用した。

### 2.3 実験方法

微粉体を円筒容器（ガラス管）に投入したのち、管および底板の振動条件を設定した。排出される粒子の質量は、電子天秤で自動秤量し（精度 0.1 mg）、1 秒毎にデータをパソコンに取り込んだ。なお、容器内の粒子層の高さの違いによる排出流量への影響を避けるため、粒子層の高さは 130 mm 以上で実験を行った。粒子の排出挙動は、ズームレンズ付き高速度カメラ（Fastcam-Max, Photron Ltd）で観察した。録画条件は、速度 4000 fps、解像度 1  $\mu\text{m}$  である。

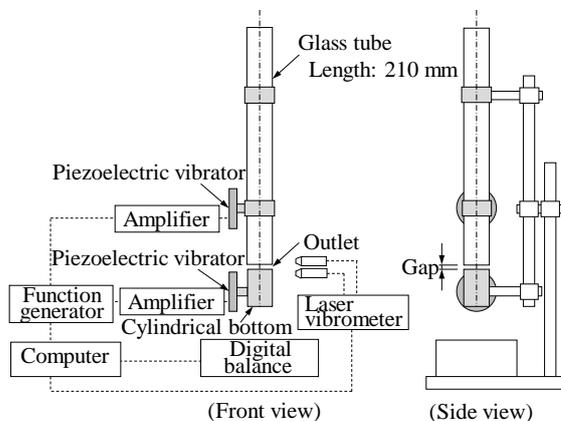


Fig. 1 微粉体の精密定量供給装置



Fig. 2 精密定量供給装置（傾斜排出状態）

### 3. 実験装置および考察

#### 3.1 質量流量の制御

Fig. 3 に、アルミナ  $8\ \mu\text{m}$  の実験結果を示す。管の振幅を  $10\ \mu\text{m}$  以上に設定すると、微粉体の質量流量は底板の振幅とともに増加した。これは、管の振動は粒子層の架橋構造を壊して、粒子を間隙に導くことに有効であり、底板の振動は間隙内の粒子の流動性を高めて排出量を増加させるのに有効であることに対応する。

Fig. 4 は、アルミナ  $0.4\ \mu\text{m}$  を用いて得られた質量流量と間隙の関係である。質量流量は間隙の増加とともに増えており、サブミクロン粒子でも乾式定量供給が可能であることが分かった。

Fig. 5 に、質量流量に及ぼす傾斜角の影響を示す。傾斜角がゼロの状態（すなわち、ガラス管を鉛直に保持した状態）では、間隙内の粒子の移動方向と重力の向きは直交するので、粒子の排出に対して重力による直接の影響はなく、粒子層内の水平応力成分が粒子の排出に関係するものと考えられる。傾斜角を大きくすると  $\pi/18\ \text{rad}$  で重力による排出促進効果がみられ、 $\pi/6\ \text{rad}$  で質量流量は約 30% 増加した。

Fig. 6 は、 $7\ \text{nm}$  のシリカ粒子の実験結果である。同図には、2 個の圧電素子を同位相と逆位相に設定して得られた結果が示されており、いずれの場合も、質量流量は底板の振幅とともに増加した。本実験では、同位相の方が質量流量は大きいですが、位相の影響は粉体粒子の性質および操作条件に依存する。例えば、間隙を大きくするとその中に含まれる粒子数も多くなり、粒子群としてまとまった挙動を示す。特に同位相では、外部振動に伴う粒子群の慣性効果によって排出が促進される。

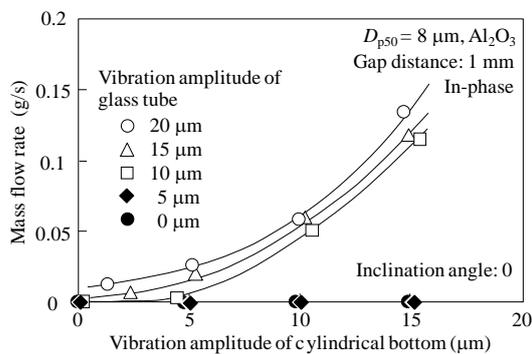


Fig. 3 粉体の質量流量：質量流量と底板の振幅の関係

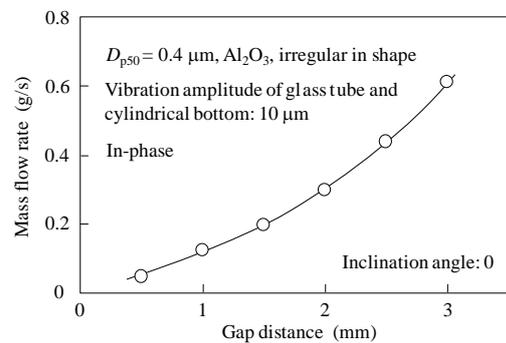


Fig. 4 質量流量と間隙の関係

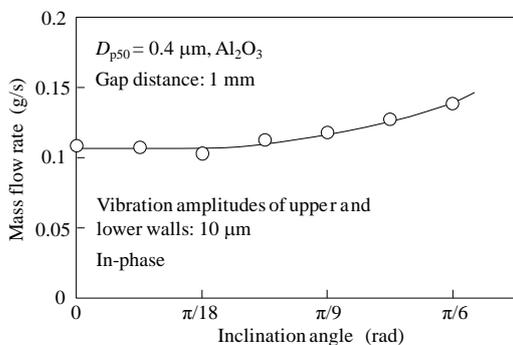


Fig. 5 傾斜角の影響

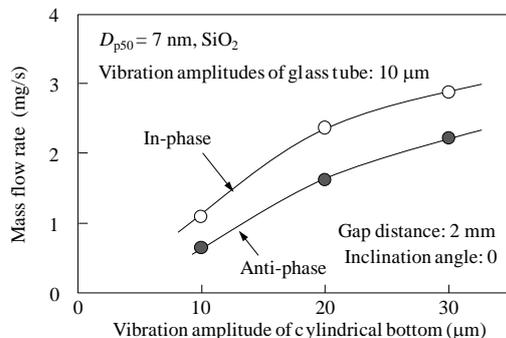


Fig. 6 ナノ粒子の定量供給：質量流量と底板の振幅の関係

逆に、間隙を小さくすると粒子群の慣性効果が得られにくくなり、逆位相の剪断効果によって流動性を高める方が粒子の排出には効果的であることが多い。したがって、粒子径、粒子形状、表面粗さ、粒子密度、空間率など、付着・凝集性に関する粉体物性および特性を考慮して、外部振動に伴う粒子群の慣性効果と剪断による流動効果を使い分ける必要がある。

Fig. 7 は、7 nm のシリカ粒子の質量流量と間隙の関係を示したものである。Fig. 4 で示したサブミクロン粒子の結果と同様に、質量流量は間隙とともに増加しており、ナノ粒子の質量流量も間隙によって調節が可能と言える。

### 3.2 粒子の排出挙動の微視的観察

Fig. 8 に、 $d=0.8\text{ mm}$  の間隙から排出されるアルミナ粒子 ( $D_{p50}=10\text{ }\mu\text{m}$ ) を正面から連続撮影した画像を示す。間隙の奥側は粒子で十分に満たされており、粒子が間隙の外まで押し出されると重力によって落下する。同図 (a) は同位相、(b) は逆位相である。逆位相では剪断流動が支配的であり、同位相の場合よりも凝集体は細かく解砕される。なお、振動剪断流動が支配的になると間隙内の上部に位置する粒子層は外部振動に伴って脈動する様子が観察された。

Fig. 9 (a) は  $0.4\text{ }\mu\text{m}$  のアルミナ粒子、同図 (b) は  $12\text{ nm}$  のシリカ粒子の観察結果である。排出される凝集粒子の状態は、粉体粒子の性質や操作条件に依存し、 $0.4\text{ }\mu\text{m}$  のアルミナ粒子は比較的小さい凝集粒子として排出されたが、 $12\text{ nm}$  のシリカ粒子は空間率の高い凝集粒子が多くみられた。

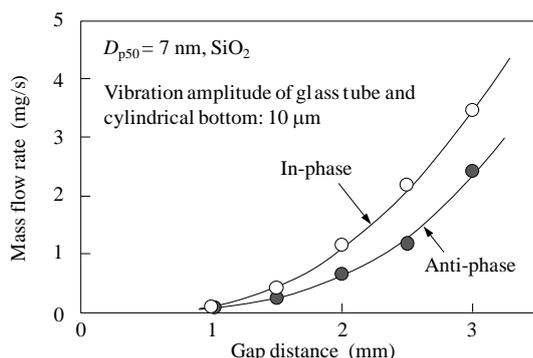


Fig. 7 ナノ粒子の定量供給：質量流量と間隙の関係

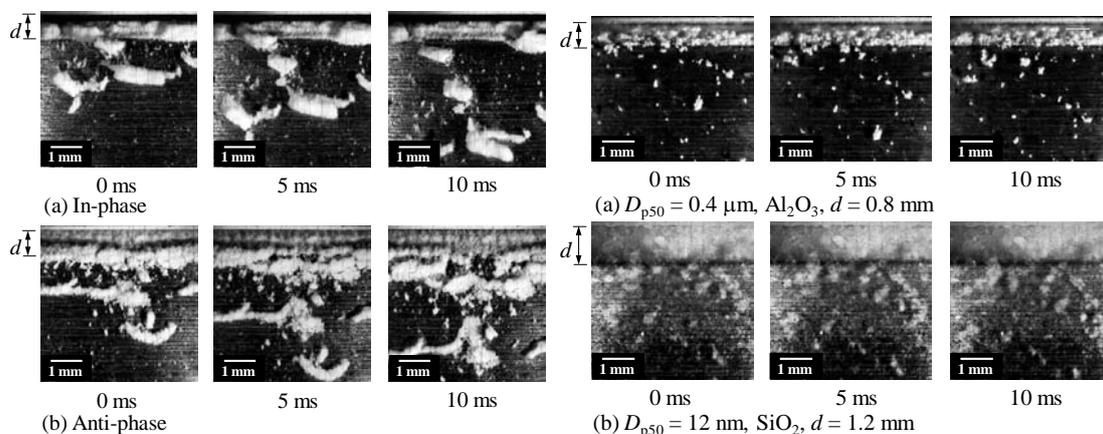


Fig. 8 粉体の排出挙動 前面 ( $D_{p50}=10\text{ }\mu\text{m}$ )

Fig. 9 粉体の排出挙動 前面 (逆位相)

Fig. 10 に、排出凝集粒子径に及ぼす間隙の影響を示す。ここでは、高速度カメラで得られた画像から円相当径を求め、球を仮定して得られた質量基準分布の中位径を凝集粒子径とした。凝集粒子径は、間隙の増加とともに大きくなるが、同位相では凝集粒子径は間隙の半分程度であり、逆位相ではさらに小さくなった。

Fig. 11 は、 $d=0.8\text{ mm}$  の間隙から排出される粒子を側方から観察したものであり、同図 (a) は同位相、(b) は逆位相の結果である。逆位相では、間隙の上端（すなわち、ガラス管の下端）と粒子層との間に  $0.5\text{ mm}$  程度の空間がみられる。これは、振動剪断流動によって粒子が重力方向に移動しやすくなったためである。粒子の排出状態をもっと分かりやすくするために、断面の模式図を Fig. 12 に示す。間隙の上方に位置する粒子は振動剪断によって流動しやすい状態にあり、この部分に脈動が生じる。

Fig. 13 は、粒子層上部の脈動の経時変化を示したものであり、同図 (a) は粒子径が  $0.4\text{ }\mu\text{m}$ 、(b) は  $12\text{ nm}$  の結果である。外部振動の振幅は  $20\text{ }\mu\text{m}$  であるが、粒子径  $0.4\text{ }\mu\text{m}$  では振幅が  $20\text{ }\mu\text{m}$  以上であり、粒子径  $12\text{ nm}$  では  $50\text{ }\mu\text{m}$  以上であった。脈動の周期はほぼ一定であり、外部振動の周波数 ( $320\text{ Hz}$ ) と一致した。

### 3.3 微粉体の定量供給精度

Fig. 14 に、微粉体の質量流量の経時変化を示す。間隙内の粒子は、振動剪断場において大きな凝集体から微小凝集粒子に解砕されながら排出されるので定量供給の精度は良好である。定量供給精度は、質量流量の測定時間間隔に依存するので  $1\sim 10\text{ s}$  の間で変化させた。得られた結果を Fig. 15 に示す。変動係数は  $0.03$  未満であり、微粉体の定量供給精度としては極めて優れている。

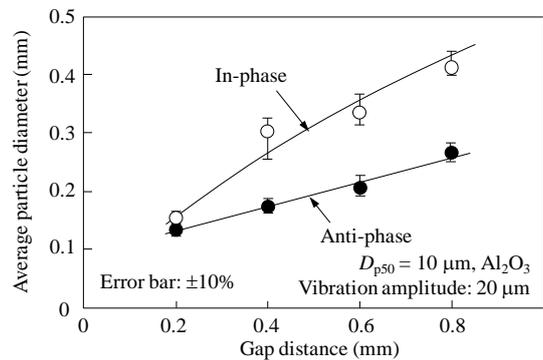


Fig. 10 排出凝集粒子径に及ぼす間隙と位相差の影響

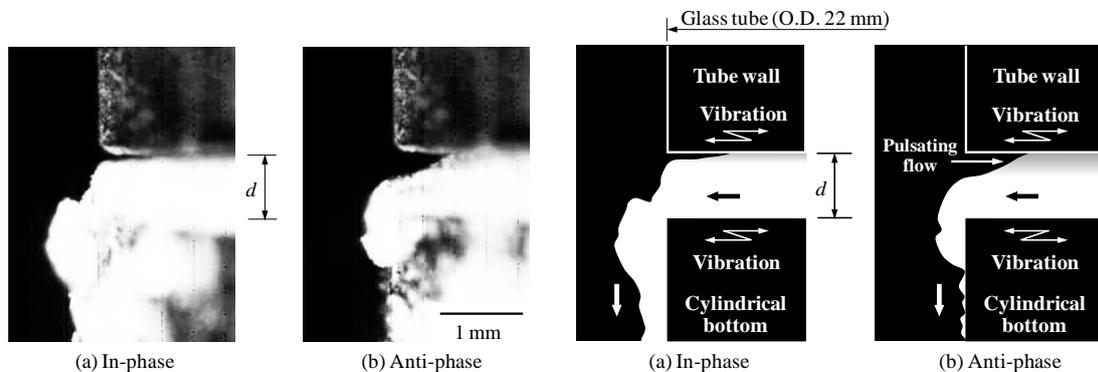


Fig. 11 粉体の排出挙動 側方左側 ( $d=0.8\text{ mm}$ ,  $D_{p50}=10\text{ }\mu\text{m}$ ) (a) 同位相, (b) 逆位相

Fig. 12 粉体の排出挙動の模式図

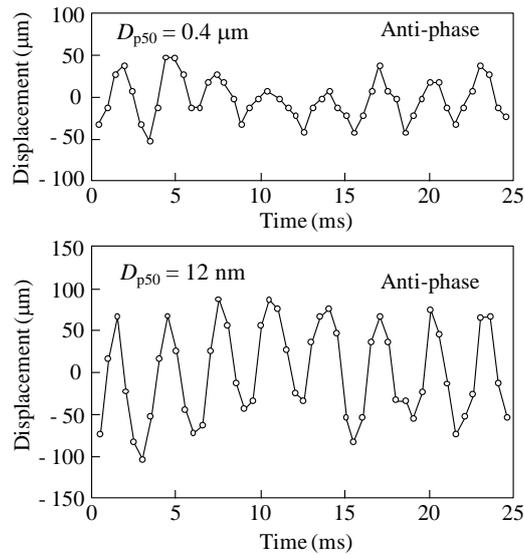


Fig. 13 粒子層上部の脈動の相対変位 (a)  $D_{p50} = 0.4 \mu\text{m}$ , (b)  $D_{p50} = 12 \text{ nm}$

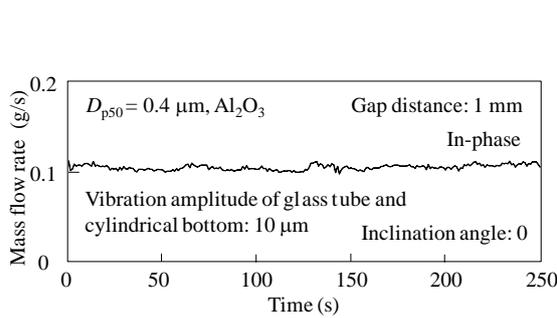


Fig. 14 質量流量の経時変化

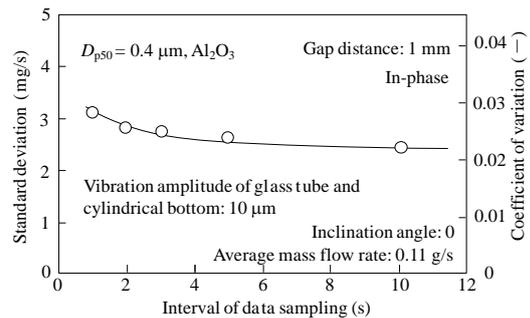


Fig. 15 粉体の定量供給精度

#### 4. 結言

位相可変型剪断振動機構を利用した微粉体の精密定量供給法を新たに開発し、ミクロン、サブミクロン、ナノサイズの粒子を用いて実験を行った結果、以下の結論が得られた。

- 1) 管の振幅を一定値以上に設定すると、微粉体の質量流量は底板の振幅とともに増加する。管の振動は粒子層の架橋構造を壊して粒子を間隙に導くことに有効であり、底板の振動は間隙内の粒子の流動性を高めて排出量を増加させることに有効である。
- 2) 傾斜角をある程度大きくすると重力による排出促進効果が得られる。
- 3) 管と底板の2つの振動の位相差による排出特性への影響は、粉体粒子の性質および操作条件によって異なる。管と底板の間隙を大きくすると、同位相では外部振動に伴う粒子群の慣性効果によって排出が促進される。間隙を小さくすると粒子群の慣性効果が得られにくくなり、逆位相の剪断効果によって流動性を高める方が粒子の排出には効果的であることが多い。外部振動に伴う粒子群の慣性効果と剪断による流動効果は、付着・凝集性に関する粉体物性および特性を考慮して使い分ける必要がある。

- 4) 微粉体は凝集性が強く、間隙の増加とともに排出される凝集粒子も大きくなるが、振動剪断流動によって解砕される。特に、逆位相では剪断流動が支配的であり解砕効果が大きい。
- 5) 間隙の上方に位置する粒子は振動剪断によって流動しやすい状態にあり、粒子層の脈動もみられる。脈動の周期はほぼ一定であり、本実験の外部振動の周波数 (320 Hz) と一致する。
- 6) 定量供給の精度は、質量流量の測定時間間隔に依存するが、変動係数は 0.03 未満であり、微粉体の定量供給精度としては極めて優れている。

### 3. 研究発表

#### 【学術論文】

- 1) Ishii, K., M. Suzuki, T. Yamamoto, Y. Kihara, Y. Kato, T. Kurita, K. Yoshimoto, M. Yasuda and S. Matsusaka; "Flowability Measurement of Coarse Particles Using Vibrating Tube Method", J. Chem., Eng., Japan, 42, 319-324 (2009)
- 2) 松坂修二, 白井 聖, 細尾康元, 安田正俊; 「振動細管法によるトナーの流動性の評価」, 日本画像学会誌, 48, 162-169 (2009)
- 3) Ishii, K., M. Suzuki, T. Segawa, Y. Kihara, M. Yasuda and S. Matsusaka; Flowability Measurement of Pulverized and Granulated Materials Using Vibrating Tube Method, Adv. Powder Technol. (in print)
- 4) Ishii, K., M. Suzuki, T. Segawa, Y. Kihara, M. Yasuda and S. Matsusaka; A vibrating tube method for evaluating flowability of a small amount of sample particles, Adv. Powder Technol. (in print)

#### 【解説】

- 5) 松坂修二; 粉体の流動性試験法, 粉体工学会誌, 47, 545-553 (2010)

#### 【海外口頭発表】

- 6) Matsusaka, S., K. Ishii, M. Suzuki, T. Segawa, Y. Kihara and M. Yasuda: "Flowability measurement of pulverized and granulated particles using vibrating tube method", Proceedings of APT2009, New Delhi, India, 46 in CD, September (2009)
- 7) Matsusaka, S: "Micro-feeding of fine powders and characterization of flowability and adhesion", University of Leeds, UK (2009)
- 8) Matsusaka, S., K. Ishii, M. Suzuki, T. Segawa, Y. Kihara and M. Yasuda: "Effect of Sample Amount on Particle Flowability Evaluation Based on Vibrating Tube Method", Proceedings of Sixth World Congress on Particle Technology, Nuremberg, Germany, 39 in CD, April (2010)

#### 【国内口頭発表】

- 9) 安田 正俊, 松坂 修二: 「振動を利用した気体流入効果による微粉体の流動化」 秋期研究発表会講演論文集, 65-66 (2009)
- 10) 松坂 修二, 石井克典, 鈴木政浩, 瀬川智臣, 木原義之, 安田 正俊: 「振動細管法による流動性プロファイルの解析」 秋期研究発表会講演論文集, 155-156 (2009)
- 11) モハマド イムラン, 安田 正俊, 松坂 修二: 「振動せん断場を用いた粉体流動性評価装置の機械的特性」 第48回粉体に関する討論会講演論文集, 186-190 (2010)
- 12) モハマド イムラン, 安田 正俊, 松坂 修二: 「振動せん断場を用いた粉体流動性評価法によるJIS試験用粉体の材料特性」 秋期研究発表会講演論文集, 87-88 (2010)