

新 制
工
918
京大附図

# 微粉体の再飛散現象に関する研究

1 9 9 2 年

松 坂 修 二



# 微粉体の再飛散現象に関する研究

1 9 9 2 年

松 坂 修 二



# 目 次

第 1 章 序 論	1
1. 1 はじめに	1
1. 2 既往の研究	2
1. 3 本論文の目的と構成	5
引用文献	8
第 2 章 微粉体層からの粒子再飛散機構	1 2
緒 言	1 2
2. 1 凝集粒子の再飛散機構モデル	1 2
2. 1. 1 基本的な考え方	1 2
2. 1. 2 分離強度の検討	1 3
2. 1. 3 付着強度の検討	2 1
2. 2 実験装置および方法	2 2
2. 3 実験結果および考察	2 4
2. 3. 1 飛散開始流速	2 4
2. 3. 2 粉体層表面粗さおよび飛散凝集粒子径	2 6
2. 3. 3 飛散限界気流せん断応力と粉体層引張破断強度	2 9
2. 3. 4 湿度の影響	3 2
結 言	3 4
使用記号	3 4
引用文献	3 6
第 3 章 粒子再飛散に及ぼす温度の影響	3 8
緒 言	3 8
3. 1 実験装置および方法	3 8
3. 2 実験結果および考察	4 0
3. 2. 1 飛散の経時変化	4 0
3. 2. 2 飛散限界気流せん断応力	4 2

3. 2. 3	粒子表面特性	4 4
3. 2. 4	粒子間付着力の温度依存性	4 7
結 言		5 0
使用記号		5 1
引用文献		5 2
第 4 章	付着強度分布を考慮した非定常再飛散モデル	5 3
緒 言		5 3
4. 1	非定常再飛散モデル	5 4
4. 1. 1	付着強度分布	5 4
4. 1. 2	粉体層表面更新モデル	5 5
4. 1. 3	飛散の時間的な遅れ	5 8
4. 1. 4	非定常飛散フラックスの理論式の導出	6 1
4. 1. 5	定常流における飛散フラックスの数値計算	6 3
4. 2	実験装置および方法	6 5
4. 3	実験結果および考察	6 8
4. 3. 1	飛散量と付着強度分布	6 8
4. 3. 2	飛散フラックス	7 1
4. 3. 3	従来モデルとの比較	7 4
結 言		7 8
使用記号		7 8
引用文献		8 0
第 5 章	粒子再飛散に及ぼす非定常流（加速流）の影響	8 1
緒 言		8 1
5. 1	非定常再飛散モデルによる気流加速時の数値計算	8 1
5. 1. 1	飛散フラックス	8 1
5. 1. 2	飛散開始流速	8 4
5. 2	実験装置および方法	8 8
5. 3	実験結果および考察	9 0

5. 3. 1	飛散フラックス	-----	9 0
5. 3. 2	飛散開始流速	-----	9 0
結 言		-----	9 4
使用記号		-----	9 4
引用文献		-----	9 5
第 6 章	微粒子の沈着・再飛散同時現象	-----	9 6
緒 言		-----	9 6
6. 1	実験装置および方法	-----	9 6
6. 2	実験結果および考察	-----	9 8
6. 2. 1	沈着層の形状	-----	9 8
6. 2. 2	沈着層の厚さ	-----	1 0 3
6. 2. 3	沈着量の経時変化	-----	1 0 6
6. 2. 4	沈着フラックスと飛散フラックス	-----	1 0 9
結 言		-----	1 1 3
使用記号		-----	1 1 4
引用文献		-----	1 1 5
第 7 章	固気二相流による再飛散の促進効果	-----	1 1 6
緒 言		-----	1 1 6
7. 1	実験装置および方法	-----	1 1 6
7. 2	実験結果および考察	-----	1 2 0
7. 2. 1	気流による再飛散	-----	1 2 0
7. 2. 2	固気二相流による再飛散	-----	1 2 2
7. 2. 3	飛散の経時変化	-----	1 2 4
7. 2. 4	接触帯電および剥離帯電の電流・電荷の検討	-----	1 2 4
結 言		-----	1 2 9
使用記号		-----	1 2 9
引用文献		-----	1 3 0

第 8 章 飛散現象を利用した粉体特性の測定と評価	-----	1 3 1
緒 言	-----	1 3 1
8. 1 実験装置および方法	-----	1 3 1
8. 2 実験結果および考察	-----	1 3 5
8. 2. 1 装置特性	-----	1 3 5
8. 2. 2 試料粉体の付着状態と飛散状態	-----	1 3 7
8. 2. 3 飛散粒子の検出と解析	-----	1 3 7
8. 2. 4 種々の粉体の飛散結果	-----	1 4 6
結 言	-----	1 5 3
使用記号	-----	1 5 3
引用文献	-----	1 5 4
第 9 章 結 論	-----	1 5 5
謝 辞	-----	1 6 0

# 第1章 序 論

## 1. 1 はじめに

産業界における粉体の用途はきわめて広く、原材料から最終製品に至るプロセスの中に多くの機械的単位操作を見ることができる。粉体の単位操作は乾式法と湿式法に分類され、それぞれ異なった特徴を持つが、乾式法には乾燥工程あるいは廃液処理工程を省略できるという長所がある。しかし、乾式法を採用すると粒子の付着性が強くなり、操作上の制限を受けることが多い。一般に、付着性は粒子径が小さくなるほど強く、ミクロンオーダー以下の粒子径になると付着性に起因する諸現象のため操作性能が著しく低下する。最近では、各種セラミックス、電子デバイス、磁性体、医薬品など様々な先端分野で高品質化・高機能化の要求が強くなっており、それに対応してファイン化が進み、ミクロンオーダーあるいはサブミクロンオーダーの微粉体を取り扱う機会が増えているため、微粉体の付着性に関係する諸現象の解明が望まれる。

乾式処理の中で、特にエアロゾル操作は安定した連続運転が要求され、プロセスにおいても重要な位置づけにあることが多いが、粒子の付着性の他に気流の影響が加わるため特別の現象が見られる。すなわち、エアロゾル微粒子は乱流拡散などによって機器や流路の内壁等に沈着すると、ファン・デル・ワールス力をはじめとする付着力の作用によりそのままの状態でも保持されるが、気流による抗力が付着力以上に働くと再び流体中に移動・浮遊する。この現象は再飛散 (reentrainment, resuspension) と呼ばれており、機器の性能が向上し運転管理の基準が厳しくなるにつれて注目されるようになってきた。

再飛散の問題は以下の二つに大別される。その一つは、集塵における捕集効率の低下、飛散粒子によるコンタミネーション、反応場におけるエアロゾル粒子濃度の変動など、沈着粒子が気中に混入すること自体によって操作性能や回収製品の品質が低下するものである。特に、流速の増加で再飛散が促進されてエアロゾル粒子濃度が急激に高くなることは、工程管理上の問題だけでなく濃度条件によっては粉塵爆発を伴う可能性もあり、きわめて危険なことでもある。また、粉体プロセス評価のためのエアロゾルサンプリング

において、導管内で粒子が沈着・再飛散することは、サンプリング誤差の原因として見逃せない。もう一つの問題は、粒子の沈着量が増加して粒子層を形成し、そこから飛散する粒子が凝集していることに起因するものであり、分級操作の前や分散操作の後で凝集粒子が気流中に混入すると所期の性能が得られなくなる。このように、再飛散現象はエアロゾル微粒子の基本的な操作にかかわっており、その機構が解明されて機器設計や操作条件の設定に反映されることが望まれる。しかし、再飛散現象に関する研究は沈着現象の研究に比べて少ないうえ、その大部分が壁面からの一次粒子の再飛散を対象にしている。実際の操作でしばしば見られる微粉体層からの凝集粒子の再飛散現象に関する研究はほとんど行われておらず、粉体工学とエアロゾル工学の中間領域の問題として解明していくことが必要である。

本研究は、付着性が問題となる微粉体を対象とし、粉体層からの凝集粒子の再飛散について理論的および実験的に検討して、再飛散の機構ならびに現象を解明するとともに、再飛散現象の予測とコントロールを可能にすることをめざすものである。

## 1. 2 既往の研究

再飛散現象は、風による砂塵の巻き上げ<sup>18-21,50)</sup>や石炭貯蔵設備からの発塵<sup>31,51,55)</sup>など環境問題として取り上げられることもあるが、工業プロセスで問題となる壁面付着微粒子の再飛散に関する先駆的研究は、1960年代に Bagnold<sup>3)</sup>、Cornら<sup>9)</sup>、Zimon<sup>64)</sup>により行われ、再飛散の基本的な考え方が示された。特に、乱流境界層の粘性底層をせん断流と仮定して粒子に働く分離力を概算したこと、平均流速の他に摩擦速度を再飛散の評価に採用したこと、および再飛散が瞬時に終了しない理由を粘性底層内の微小な乱れと関係づけたことは重要である。しかし、実験結果に基づきながらも定性的な考察にとどまっており、付着力の要因についても十分な検討は行われなかった。

エアロゾル微粒子は、気流中で流体効力の他に重力や静電場などによる様々な外力を受けているが、エアロゾル微粒子が壁面に沈着すると、これらの外力に加えて付着力の影響を強く受けるようになる。その代表的なものは、

液架橋力、ファン・デル・ワールス力および接触帯電による静電気力である<sup>49)</sup>。この中で、液架橋力は環境条件に支配されるものであり、関係湿度が高いときには粒子-壁や粒子-粒子の接触部位に液架橋が形成され、毛管負圧と界面張力により付着力の支配要因となるが、関係湿度が低いときには付着力の要因から除外される<sup>2,12,13,37,38)</sup>。一方、ファン・デル・ワールス力と接触帯電による静電気力は接触物体間の相互作用力であり、物理化学的要因と接触状態により決定されるが、一般にファン・デル・ワールス力の方が静電気力より大きいものとして取り扱われる場合が多い<sup>17,35)</sup>。ファン・デル・ワールス力に関する研究は数多く報告されているが、代表的なものはHamakerの理論あるいはLifshitzの理論によるものである。球形粒子を想定したときのファン・デル・ワールス力は、Hamaker定数・粒子径・接触部位における表面間距離の値を用いて比較的簡単に推算することができる。Hamaker定数は接触する二つの物質および粒子間の媒体により決定され、代表的な物質については種々の方法で求められているが、測定法により異なる値を示すこともある<sup>36,38,59)</sup>。また、粒子の表面間距離は、Bornの斥力を考慮して決定される<sup>34)</sup>が、粒子表面の粗さの影響も考慮する必要がある<sup>10,11)</sup>。飛散凝集粒子と粉体層との付着強度の厳密な推算法は確立されていないが、粉体層引張破断強度が代用されている<sup>25,33)</sup>。引張破断強度は、粒子間付着力・充てん率・配位数・一次粒子径を用いてRumpfの式<sup>48)</sup>から求めることができる。配位数を充てん率から求める式はいくつか提出されている<sup>54)</sup>が、一般にはRidgway-Tarbackの実験式<sup>47)</sup>が用いられている。なお、この実験式は均一粒子を用いたランダム充填の実験結果をもとに求められたものであるが、ある程度の分布を有する粒子群の充てん体にも適用できる<sup>24)</sup>。

一方、再飛散現象を解明するためには気流による分離力についても検討しなければならない<sup>9,16,43,64)</sup>。粘性底層内の壁面沈着微粒子に働く流体効力の推算法としてCornら<sup>9)</sup>、Zimon<sup>64)</sup>は、粘性底層を一様せん断流と仮定し、粒子の中心高さの流速を代表速度としてストークスの抵抗法則を用いた。Goldmanら<sup>22)</sup>は壁面近傍のせん断流れ場における球形粒子について、O'Neill<sup>39)</sup>は壁面に付着した球形粒子について厳密な計算を行い、粒子が流体から受ける効力はCornら<sup>9)</sup>の結果に比べて1.7倍になることを示しており、Visser<sup>58)</sup>

はGoldmanら<sup>22)</sup>の結果を用いて分離力と付着力の比較を行った。しかし、工業粉体では非球形粒子の方が圧倒的に多く、適用範囲はかなり限定される。これに対して、Kousakaら<sup>33)</sup>はせん断流の速度勾配を考慮し、微小高さ区間でストークスの抵抗法則を適用して近似的に効力を求め、積分により粒子に働く全効力を推算する方法を提案した。この近似計算は非球形粒子にも適用でき、比較的簡便で応用範囲の広い方法であると思われる。

さて、粒子に働く力の均衡を考えると、遠心法<sup>2,13)</sup>のように付着力と分離力を正反対に向けられる場合には力の大きさのみを比較すればよいが、気流による再飛散では付着力と分離力の向きが異なることを考慮しなければならない。この問題を解決するため、力のベクトルを接線方向と法線方向に分け、さらに摩擦力を考慮した解析が行われた<sup>29,64)</sup>。この解析では粒子の飛散を近似的に質点モデルで取り扱っているが、厳密には剛体モデルを用いて解析すべきである。粒子の付着状態を一点接触で近似すると付着力のモーメントはゼロになるが、面接触あるいは多点接触を考慮すると付着力の作用点と回転するときの支点が異なるため、力のモーメントに関する均衡を求めることができる。この検討により、せん断（すべり）より曲げ（回転）により飛散しやすいことが報告された<sup>33,57,60,61)</sup>。

ところで、粘性底層は厳密には一様せん断流ではないことをKlineら<sup>32)</sup>、Corinoら<sup>8)</sup>は可視化実験で示した。すなわち、低速の流体塊が壁面近傍から主流方向に噴出(ejection)したのち高速の流体が壁面近傍に流入(sweep)するという一連の組織運動を伴ったバースト(burst)現象が乱流境界層内に存在するというものである。壁面近傍の粒子の動きに関する研究は以前から行われていた<sup>41,42)</sup>が、乱流境界層の研究の進展<sup>56)</sup>とともに、境界層の組織的構造を考慮した粒子の運動の研究が行われるようになった<sup>44,45,52,53)</sup>。しかし、定性的な考察が多く、バーストによって粒子が受ける最大瞬間効力を求めるまでには至っていない。Cleaverら<sup>6,7)</sup>は再飛散と乱流バーストとの関係に着目し、乱流バーストが発生した部位に存在する粒子のみが再飛散すると考え、再飛散の時間的な遅れの概念を具体的に示した。その後、再飛散の経時変化のモデル化<sup>23,46,62,63)</sup>やモンテカルロ法によるシミュレーション<sup>5)</sup>が行われるようになった。Reeksら<sup>46)</sup>、Wenら<sup>62)</sup>は再飛散の経時変化に対して付着強度分布

が重要であることことを指摘してモデルに取り入れた。粒子の付着力分布については、浅川ら<sup>2)</sup>、Zimon<sup>65)</sup>が対数正規で表されることを実験で示している。また、再飛散現象を定量的に検討するために、飛散フラックス<sup>4,14,18)</sup>や気流中に再飛散した粒子濃度<sup>62,63)</sup>が用いられている。

この他、再飛散現象の研究には障害物の周りの気流の乱れの影響による粉体層形状の変化に着目したもの<sup>30)</sup>やエアロゾル粒子の衝突効果<sup>3,15,27,28)</sup>あるいは湿度<sup>1)</sup>や温度<sup>40)</sup>など環境条件の影響について検討したものもある。

### 1. 3 本論文の目的と構成

再飛散は集塵・分散・分級・輸送・サンプリングなどほとんどすべてのエアロゾル操作にかかわる基本的な現象であるが、十分に解明されているとは言いがたい。特に、実際の操作では沈着粒子量が増加して形成された微粉体層からの凝集粒子の再飛散現象が多く見られるにもかかわらず、この研究はほとんど行われていない。

本論文は、微粉体層から凝集粒子が再飛散するときの現象を解明し、再飛散の予測とコントロールを可能にすることを目的としており、再飛散機構および飛散の経時変化の解明に重点を置いて理論的および実験的に検討する。特に、付着強度に影響を及ぼす要因については個々に解析し、飛散フラックスの予測のために付着強度や分離強度に統計的手法を用いてモデル化を行う。また、実プロセスを想定してエアロゾル流による沈着・再飛散同時現象の実験を行い、微粉体層の形成過程について検討する。さらに、気流中に分散した粗粒子が再飛散に与える影響についても明らかにする。最後に、様々な工業粉体の再飛散現象を予測するために、飛散に関する粉体操作特性について検討する。以下、各章の内容を簡単に紹介する。

第1章 本研究の背景および再飛散に関する既往の研究をまとめ、本論文の目的と構成について述べる。

第2章 微粉体層表面から凝集粒子が再飛散するときの機構を解明するために応力バランスを基礎とするモデルを立て、分離強度と付着強度

のそれぞれについて理論的に検討する。また、矩形空気流路を用いて再飛散実験を行い、実体顕微鏡に接続したビデオモニターで再飛散の状況を観察して飛散凝集粒子径を測定するとともに、飛散開始流速および飛散限界気流せん断応力を求める。さらに、再飛散機構モデルを用いて飛散限界気流せん断応力と Rumpf の粉体層引張破断強度との関係を明らかにし、再飛散の影響因子について解析する。

第 3 章 電気炉を用いて高温で再飛散実験を行い、第 2 章で提出したモデルにより結果の解析を行う。温度により粒子表面の吸着水分量や粗さが変化することに着目し、飛散限界気流せん断応力と Rumpf の粉体層引張破断強度との関係から求めた粒子間付着力とファン・デル・ワールス力から推算した粒子間付着力とを比較検討することにより再飛散の温度依存性を説明する。

第 4 章 飛散フラックスの経時変化を予測するために、飛散凝集粒子と粉体層との付着強度分布、凝集粒子の飛散に伴う粉体層表面の更新効果および気流の時間的空間的変動による飛散の時間的な遅れを考慮して数学的モデルを立てる。本モデルでは定常流に達するまでの気流の加速状態についても検討し、平均流速の増加とともに飛散可能量が増えて新たな飛散が生じることを重ね合わせの原理を用いて定式化する。また、定常流に達したあとの飛散の経時変化を推算し、式中に含まれる影響因子について考察する。モデルによる推算結果は再飛散実験の結果と比較検討する。

第 5 章 気流加速時の再飛散現象を第 4 章で提出したモデルを用いて詳細に検討するとともに、加速流による再飛散実験を行い、飛散フラックスならびに飛散開始流速に及ぼす気流加速度 ( $\overline{du/dt}$ ) の影響について明らかにする。

第 6 章 円管内で乱流沈着と再飛散が同時に進行するとき形成される沈着層の状態に着目して実験的検討を行う。特に、沈着層の厚さについては粘性底層内の速度分布を考慮して解析する。また、沈着量の経時変化が沈着フラックスと飛散フラックスの差に基づくことを利用して結果の考察を行う。

第7章 円管内壁に形成させた微粉体層の気流のみによる再飛散実験および気流中に粗粒子を添加した固気二層流による再飛散実験を行い、飛散開始流速、飛散の経時変化および飛散状態について両者を比較し、固気二層流の飛散促進効果について明らかにする。

第8章 これまでに得られた知見を活かして、様々な粉体の飛散に関する特性を評価するための試験システムを開発する。気流速度を一定の割合で増加させることにより壁面上の粉体を飛散させ、静電気式検出法により飛散粒子を連続測定する。測定結果はパソコンに自動サンプリングされ、デジタル信号処理により飛散の経時変化や飛散率と壁面気流せん断応力との関係などを演算させたのちグラフ上に表示させる。ここでは、試験用ダストの他に金属や高分子などを含む21種類の粉体について再飛散実験を行い、粒子の付着・凝集性と関係づけて粉体特性を検討する。

第9章 本論文の結論を各章ごとにまとめて述べる。

なお、本論文の内容に関連する既発表論文は以下のとおりである。

- (1) 矩形空気流路内微粉体層からの粒子の再飛散 (第2章に相当)  
増田弘昭, 松坂修二, 生三俊哉: 化学工学論文集, 11, 48 (1985)
- (2) 矩形空気流路内微粉体層からの粒子再飛散に及ぼす温度の影響  
(第3章に相当)  
増田弘昭, 松坂修二, 岡西茂実: エアロゾル研究, 5, 320 (1990)  
Matsusaka, S., S. Okanishi and H. Masuda: *Proceedings of Second World Congress Particle Technology, Kyoto, Japan, Part 2*, 221 (1990)
- (3) 微粉体層内の付着強度分布を考慮した非定常再飛散モデル  
(第4章に相当)  
松坂修二, 増田弘昭, 青柳晃夫: 化学工学論文集, 17, 1194 (1991)
- (4) 空気加速流による微粉体層からの粒子再飛散 (第5章に相当)  
松坂修二, 増田弘昭, 中村泰隆: 粉体工学会誌, 29, 110 (1992)

(5) エアロゾル微粒子の沈着・再飛散同時現象における壁面粒子層の形成  
(第6章に相当)

松坂修二, 増田弘昭, 清水正信: 化学工学論文集, 19, 251 (1993)

(6) 管内壁付着粉体層の再飛散 (第7章に相当)

増田弘昭, 松坂修二, 住浦康弘: 粉体工学会誌, 20, 405 (1983)

(7) 飛散現象を利用した粉体特性の測定と評価 (第8章に相当)

増田弘昭, 松坂修二, 今村維克: 粉体工学会誌, 29, 897 (1992)

## 引用文献

- 1) Akiyama, T. and Y. Tanijiri : *Powder Technol.*, 57, 21 (1989)
- 2) 浅川貞雄, 神保元二 : 材料, 16, 358 (1967)
- 3) Bagnold, R. A. : *Int. J. Air. Poll.*, 2, 357 (1960)
- 4) Borrmann, S. and R. Jaenicke : *Atmos. Environ.*, 21, 1891 (1987)
- 5) Braaten, D. A., K. T. Paw U. and R. H. Shaw : *J. Aerosol Sci.*, 21, 613 (1990)
- 6) Cleaver, J. W. and B. Yates : *J. Colloid Interface Sci.*, 44, 464 (1973)
- 7) Cleaver, J. W. and B. Yates : *Chemical Engineering Sci.*, 31, 147 (1976)
- 8) Corino, E. R. and R. S. Brodkey : *J. Fluid Mech.*, 37, 1 (1969)
- 9) Corn, M. and F. Stein : *Amer. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 26, 325 (1965)
- 10) Czarnecki and T. Dabros : *J. Colloid Interface Sci.*, 78, 25 (1980)
- 11) Czarnecki, J. and V. Itschenskiy : *J. Colloid Interface Sci.*, 98, 590 (1984)
- 12) Danjo, K. and A. Otsuka : *Chem. Pharm. Bull.*, 26, 2705 (1978)
- 13) 江見準, 遠藤茂寿, 金岡千嘉男, 川合清一 : 化学工学論文集, 3, 580 (1977)
- 14) Fairchild, C. I. and M. I. Tillery : *Atmos. Environ.*, 16, 229 (1982)
- 15) Fletcher, B. : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 9, 913 (1976)
- 16) Fletcher, B. : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 9, 2471 (1976)

- 17) 粉体工学会編 : "粉体工学便覧",p.124, 日刊工業 (1986)
- 18) Gillette,D. : *Atmos. Environ.*, 12, 1735 (1978)
- 19) Gillette,D. : *Atmos. Environ.*,12, 2309 (1978)
- 20) Gillette,D., J.Adams, A.Endo, D.Smith and R.Kihl : *J.Geophys.Res.* 85, 5621 (1980)
- 21) Gillette,D., J.Adams, D.Muhs and R.Kihl : *J.Geophys.Res.*, 87, 9003 (1982)
- 22) Goldman,A.J., R.G.Cox and H.Brenner : *Chem.Eng.Sci.*, 22, 653 (1967)
- 23) Hall,D., J.Reed : *J.Aerosol Sci.*, 20, 839 (1989)
- 24) 日高重助, 三輪茂雄 : 粉体工学会誌, 22, 550 (1985)
- 25) 東谷公, 山口英明, 古川伸一 : 化学工学論文集, 15, 703 (1989)
- 26) 生三俊也, 和歌山久男, 増田弘昭 : 化学工学論文集, 12, 589 (1986)
- 27) John,W., W.Winklmayr and H.C.Wang : *Aerosol Sci.Technol.*, 14, 165 (1991)
- 28) John,W., D.N.Fritter and W.Winklmayr : *J.Aerosol Sci.*, 22, 723 (1991)
- 29) 金岡千嘉男, 江見準, 菊川範夫, 明星敏彦 : 粉体工学会誌, 24, 233 (1987)
- 30) 狩野武, 川口浩幸, 武藤一義 : 粉体工学会誌, 16, 569 (1979)
- 31) 狩野武, 竹内文章, 神野勝司, 藤原彰人 : 粉体工学会誌, 21, 18 (1984)
- 32) Kline,S.J., W.C.Reynolds, F.A.Schraub and P.W.Runstadler : *J.Fluid Mech.*, 30, 741 (1967)
- 33) Kousaka,Y., K.Okuyama and Y.Endo: *J.Chem.Eng.Japan*, 13, 143 (1980)
- 34) Krupp,H. : *Advan.Colloid Interface Sci.*, 1, 111 (1967)
- 35) 増田弘昭 : 化学工学. 54, 431 (1990)
- 36) 日本化学会編 : "化学便覧基礎編" 改訂3版, p.Ⅱ-99, 丸善 (1984)
- 37) 西野操, 荒川正文 : 材料, 22, 663 (1973)
- 38) 奥山喜久夫, 増田弘昭, 東谷公, 近沢正敏, 金澤孝文 : 粉体工学会誌,

- 22, 451 (1985)
- 39) O'Neill, M.E. : *Chem. Eng. Sci.*, 23, 1293 (1968)
- 40) 大島敏男, 廣田満昭, 森下弘之, 有本健司 : 粉体工学会誌, 19, 703 (1982)
- 41) Owen, P.R. : *J. Fluid. Mech.*, 20, 225 (1964)
- 42) Owen, P.R. : *J. Fluid. Mech.*, 39, 407 (1969)
- 43) Phillips, M. : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 13, 221 (1980)
- 44) Praturi, A.K. and R.S. Brodkey : *J. Fluid. Mech.*, 89, 251 (1978)
- 45) Rashidi, M., G. Hetsroni and S. Banerjee : *Int. J. Multiphase Flow*, 16, 935 (1990)
- 46) Reeks, M.W., J. Reed and D. Hall : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 21, 574 (1988)
- 47) Ridgway, K. and K.J. Tarbuck : *Brit. Chem. Eng.*, 12, 384 (1967)
- 48) Rumpf, H. : *Chemie. Ing. Techn.*, 42, 538 (1970)
- 49) Rumpf, H. : 粉体工学研究会誌, 9, 3 (1972)
- 50) Sehmel, G.A. : *Environ. Int.*, 4, 107 (1980)
- 51) Smitham, J.B. and S.K. Nicol : *Powder Technol.*, 64, 259 (1991)
- 52) Sumer, B.M. and B. Oguz : *J. Fluid. Mech.*, 86, 109 (1978)
- 53) Sumer, B.M. and R. Deigaard : *J. Fluid. Mech.*, 109, 311 (1981)
- 54) 鈴木道隆, 牧野和孝, 山田昌治, 井伊谷鋼一 : 化学工学論文集, 6, 59 (1980)
- 55) 竹内文章, 狩野武, 山田聡, 福田栄則, 山中樹好 : 化学工学論文集, 11, 674 (1985)
- 56) 巽友正編 : "乱流境界層の科学", pp.420-446, 東京大学出版会 (1986)
- 57) Tsai, C.J., D. Y.H. Pui and B. Y.H. Liu : *J. Aerosol Sci.*, 22, 737 (1991)
- 58) Visser, J. : *J. Colloid Interface Sci.*, 34, 26 (1970)
- 59) Visser, J. : *Advan. Colloid Interface Sci.*, 3, 331 (1972)
- 60) Wang, H.C. : *J. Aerosol Sci.*, 20, 919 (1989)
- 61) Wang, H.C. : *Aerosol Sci. Technol.*, 13, 386 (1990)
- 62) Wen, H. Y. and G. Kasper : *J. Aerosol Sci.*, 20, 483 (1989)

- 63) Wen, H. Y., G. Kasper and R. Udischas : *J. Aerosol Sci.*, 20, 923 (1989)
- 64) Zimon, A. D. : "Adhesion of Dust and Powder", pp.197-248, Plenum Press (1969)
- 65) Zimon, A. D. : "Adhesion of Dust and Powder" 2nd ed., pp.9-24, Consultants Bureau, New York (1982)

## 第2章 微粉体層からの粒子再飛散機構

### 緒言

エアロゾル微粒子が乱流拡散などにより機器や流路の内壁へ沈着すると、ファン・デル・ワールス力をはじめとする付着力<sup>18)</sup>が粒子に働く。このとき気流によって一次粒子に作用する分離力は比較的小さいため再飛散しにくい。壁面上の沈着粒子量が増加して粉体層を形成すると、粒子は凝集状態で比較的容易に再飛散する<sup>11)</sup>。従来の研究は壁面からの一次粒子の再飛散を対象にしたものがほとんどであり、工業プロセスで多く見られる沈着粒子層からの凝集粒子の再飛散に関する詳細な検討は行われていない。壁面からの凝集粒子の再飛散に関する理論的な検討は Kousakaらの研究<sup>13)</sup>が最初であり、凝集粒子が壁面近傍で破断すること、凝集粒子径の小さなものほど飛散しにくいこと、および凝集粒子の飛散には曲げ応力が重要であることが報告されている。

本章では、微粉体層からの凝集粒子の再飛散機構に関する理論的および実験的検討を行う。理論的検討では、応力バランスを基礎とする再飛散機構モデルにより再飛散の支配因子について明らかにする。再飛散実験では、粒子の飛散状態を観察するとともに飛散開始流速および飛散限界気流せん断応力を求め、再飛散機構モデルの検討結果に基づいて解析を行う。

### 2. 1 凝集粒子の再飛散機構モデル

#### 2. 1. 1 基本的な考え方

エアロゾル微粒子は乱流拡散などにより壁面に沈着するが、沈着量が増加すると壁面上に粉体層が形成される。この粉体層表面は均一ではなく、粒子の沈着あるいは再飛散の状況に応じて微小な粗さが見られる。微粒子の沈着量が多くなるほど粉体層の表面粗さは増加するが、同時に凝集粒子は再飛散しやすくなるため<sup>11)</sup>、結果として乱流境界層の粘性底層に収まる程度の表面

粗さに落ち着くことが多い<sup>3,21)</sup>。このとき粉体層表面は流体力学的には滑らかといえるが、粉体層の表面粗さに基づく微小突出部（一次粒子が凝集した状態）には気流による分離力が比較的大きく働くことになる。一方、粉体層を構成する粒子の充てん構造は全体的には一様と考えられるが、個々の粒子の沈着状態の違いなどから微視的には不均一である。したがって、全粒子に働く付着力の組合せの中で、気流の分離力より付着力が小さくなる微小部分が存在すれば粉体層の破断が起こり、凝集粒子として再飛散すると考えられる。また、凝集粒子が飛散するという現象に着目すると、微粉体層の内部構造を微小な仮想凝集粒子が集合した状態として近似することも可能である。粉体層からの微小凝集粒子の飛散の概念を Fig. 2・1 に示す。

粉体層の表面粗さが粘性底層内にあり、微小突出部が破断して凝集粒子が再飛散するときのモデルを Fig. 2・2 に示す。粉体層の表面粗さの一部分を直径  $D_{ag}$  の球形凝集粒子で近似し、この突出部が流体効力により破断して再飛散する場合を考える。なお、凝集粒子が飛散したあとの破断面は不規則であり、新たに粉体層表面に微小な粗さが生じることになるが、モデルでは単純化のため破断面を平面で近似する。また、粘性底層内を一様せん断流とし、突出部の影響で壁面近傍の流れが変化しないものとする。流体効力に起因する粉体層の内部応力が限界破断応力を超えるときに、凝集粒子が再飛散するという応力バランスを基礎として検討する。

## 2. 1. 2 分離強度の検討

### (1) 乱流境界層内の速度分布

気流による分離強度を求めるためには、乱流境界層内の速度分布を考慮する必要がある、そのための次元解析を行う。気流速度  $u$  が壁面気流せん断応力  $\tau_w$ 、流体密度  $\rho$ 、流体粘度  $\mu$ （あるいは動粘度  $\nu$ ）、壁面からの距離  $y$  に依存すると考えると Buckingham の  $\pi$  の定理により、これら 5 個の物理量は質量 (M)、長さ (L)、時間 (T) の 3 個の基本単位によって構成されるので、2 個の無次元数が次のように与えられることになる。

$$u^+ = u / u^* \quad (2 \cdot 1)$$

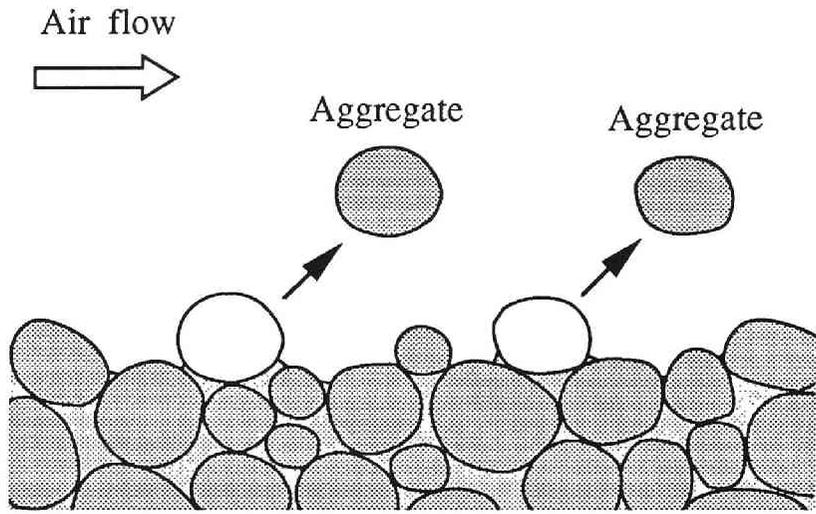


Fig. 2 • 1 Concept of aggregate-reentrainment from a powder layer

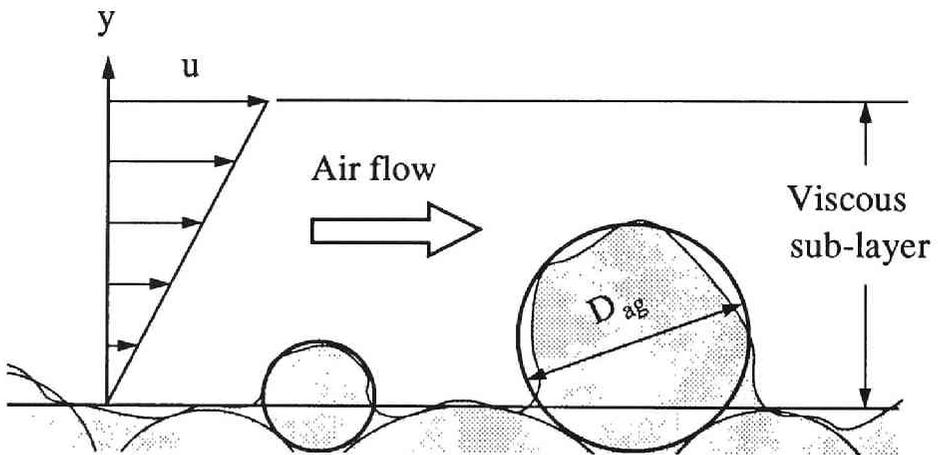


Fig. 2 • 2 Reentrainment model of aggregates

$$y^+ = y u^* / \nu \quad (2 \cdot 2)$$

ただし、摩擦速度  $u^*$  は次式で定義される。

$$u^* = \sqrt{\tau_w / \rho} \quad (2 \cdot 3)$$

乱流境界層は外層と内層に分けられ、内層の大部分は充分発達した乱流領域であるが、内層のうち壁面近傍は粘性底層と呼ばれる薄層があり、乱流領域との間に遷移領域が存在する。速度分布は、それぞれ次の無次元式で近似される<sup>12)</sup>。

① 粘性底層 : ( $y^+ \leq 5$ )

$$u^+ = y^+ \quad (2 \cdot 4)$$

② 遷移領域 : ( $5 \leq y^+ \leq 30$ )

$$u^+ = 5.0 \ln y^+ - 3.05 \quad (2 \cdot 5)$$

③ 乱流領域 : ( $y^+ \geq 30$ )

$$u^+ = 2.5 \ln y^+ + 5.5 \quad (2 \cdot 6)$$

## (2) 粉体層内部応力

流体抵抗に基づく粉体層内部応力としては、曲げ応力とせん断応力とが考えられる。まず、破断面 (高さ  $y^*$ ) に働く曲げ応力について理論的に検討する。

Fig. 2・3 の曲げ応力モデルに Eq. (2・4) の速度分布を適用すると次式が得られる。

$$u(y) = c (y - y^*) \quad (2 \cdot 7)$$

ここで、 $c$  は速度勾配であり

$$c = du / dy = \text{const.} \quad (2 \cdot 8)$$

凝集粒子の微小投影面積  $dA(y)$  にストークスの抵抗則を適用すると、抗力  $d r_D(y)$  は次のように表すことができる。

$$d r_D(y) = C_D \frac{\rho (u(y))^2}{2} dA(y) \quad (2 \cdot 9)$$

ただし、

$$C_D = \frac{24 \mu}{\rho u(y) D_{ag}} \quad (2 \cdot 10)$$

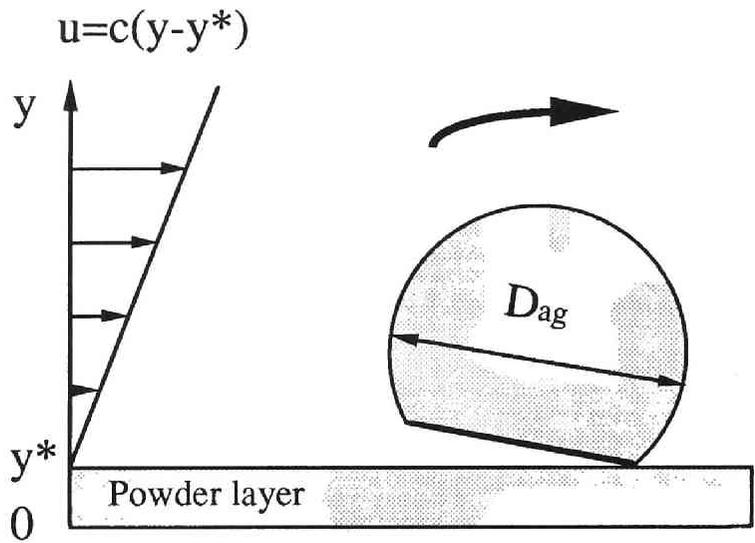


Fig. 2 • 3 Bending stress model

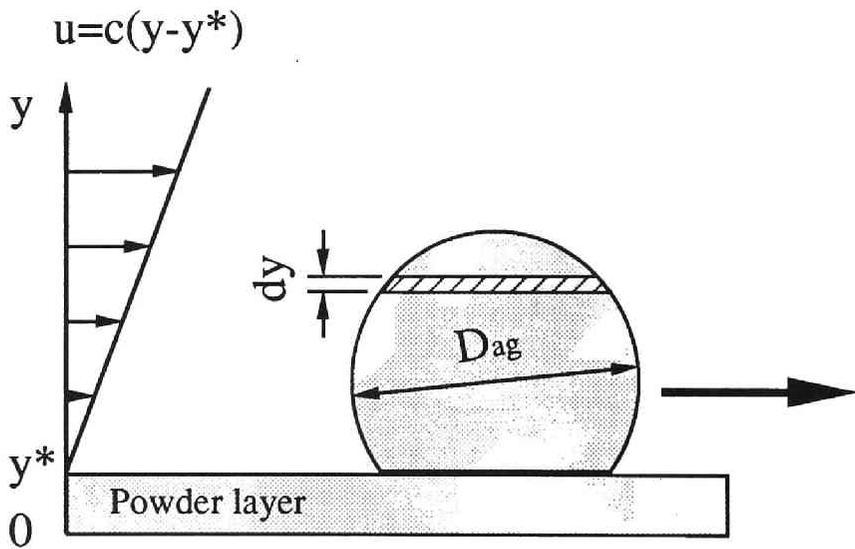


Fig. 2 • 4 Shearing stress model

$$dA(y) = 2 \sqrt{y (D_{ag} - y)} dy \quad (2 \cdot 11)$$

$$\tau_w = \mu c \quad (2 \cdot 12)$$

したがって、

$$dr_D(y) = \frac{24 \tau_w}{D_{ag}} \sqrt{y (D_{ag} - y)} (y - y^*) dy \quad (2 \cdot 13)$$

破断面に作用する曲げモーメント  $M$  は次式で与えられる。

$$M = \int_{y^*}^{D_{ag}} (y - y^*) dr_D(y) \quad (2 \cdot 14)$$

すなわち、

$$M = 24 \tau_w D_{ag}^3 \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y (1 - Y)} (Y - Y^*)^2 dy \quad (2 \cdot 15)$$

ただし、

$$Y = y / D_{ag} \quad (2 \cdot 16)$$

$$Y^* = y^* / D_{ag} \quad (2 \cdot 17)$$

破断面は円形であるので破断面の直径を  $d$  とすると断面係数  $Z$  は次式で与えられる<sup>15)</sup>。

$$Z = \frac{\pi d^3}{32} = \frac{\pi D_{ag}^3}{4} \{ Y^* (1 - Y^*) \}^{3/2} \quad (2 \cdot 18)$$

最大曲げ応力  $\sigma_b$  は次式で求められる<sup>15)</sup>。

$$\sigma_b = M / Z \quad (2 \cdot 19)$$

すなわち、上式に Eqs. (2 · 15)、(2 · 18) を代入すると次のようになる。

$$\sigma_b = \frac{96}{\pi} \tau_w f(Y^*) \quad (2 \cdot 20)$$

ここで、 $f(y^*)$  は球形凝集粒子が粉体層表面から突出する割合により変化する無次元の形状因子であり次式で表すことができる。

$$f(Y^*) = \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y (1 - Y)} (Y - Y^*)^2 dy / \{ Y^* (1 - Y^*) \}^{3/2} \quad (2 \cdot 21)$$

一方、Fig. 2 · 4 のせん断応力モデルに示す粉体層内部せん断応力  $\tau_p$  は球形凝集粒子に働く流体抗力を破断部の断面積で割ることにより得られ、

Eq. (2.20) と同様、次のように表すことができる。

$$\tau_p = \frac{24}{\pi} \tau_w g(Y^*) \quad (2.22)$$

ただし、

$$g(Y^*) = \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)} (Y-Y^*) dy / \{Y^*(1-Y^*)\} \quad (2.23)$$

$f(Y^*)$  と  $g(Y^*)$  はどちらも厳密解を得ることができ、それぞれ次のように表すことができる。

$$f(Y^*) = (Y_1 - 2Y^*Y_2 + Y^{*2}Y_3) / \{Y^*(1-Y^*)\}^{3/2} \quad (2.24)$$

$$g(Y^*) = (Y_2 - Y^*Y_3) / \{Y^*(1-Y^*)\} \quad (2.25)$$

ただし、

$$\begin{aligned} Y_1 &= \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)} Y^2 dy \\ &= \{\sqrt{Y^*(1-Y^*)} / 192\} (15 + 10Y^* + 8Y^{*2} - 48Y^{*3}) \\ &\quad + (5/128) \{\pi/2 + \sin^{-1}(1-2Y^*)\} \end{aligned} \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned} Y_2 &= \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)} Y dy \\ &= \{\sqrt{Y^*(1-Y^*)} / 24\} (3 - 4Y^*) (1 + 2Y^*) \\ &\quad + (1/16) \{\pi/2 + \sin^{-1}(1-2Y^*)\} \end{aligned} \quad (2.27)$$

$$\begin{aligned} Y_3 &= \int_{Y^*}^1 \sqrt{Y(1-Y)} dy \\ &= \{\sqrt{Y^*(1-Y^*)} / 4\} (1 - 2Y^*) \\ &\quad + (1/8) \{\pi/2 + \sin^{-1}(1-2Y^*)\} \end{aligned} \quad (2.28)$$

$f(Y^*)$  と  $g(Y^*)$  の変化の様子を Fig. 2.5 に示す。いずれも  $Y^*$  の増加に伴って単調に減少するが、変化の割合はしだいに小さくなることがわかる。また、曲げ応力  $\sigma_b$  とせん断応力  $\tau_p$  の比は Eq. (2.20) ~ Eq. (2.25) から次のように表わすことができる。

$$\sigma_b / \tau_p = \frac{4(Y_1 - 2Y^*Y_2 + Y^{*2}Y_3)}{(Y_2 - Y^*Y_3) \{Y^*(1-Y^*)\}^{1/2}} \quad (2.29)$$

Fig. 2.6 の計算結果 に示すように、 $\sigma_b / \tau_p$  は無次元深さ  $y^*$  によって

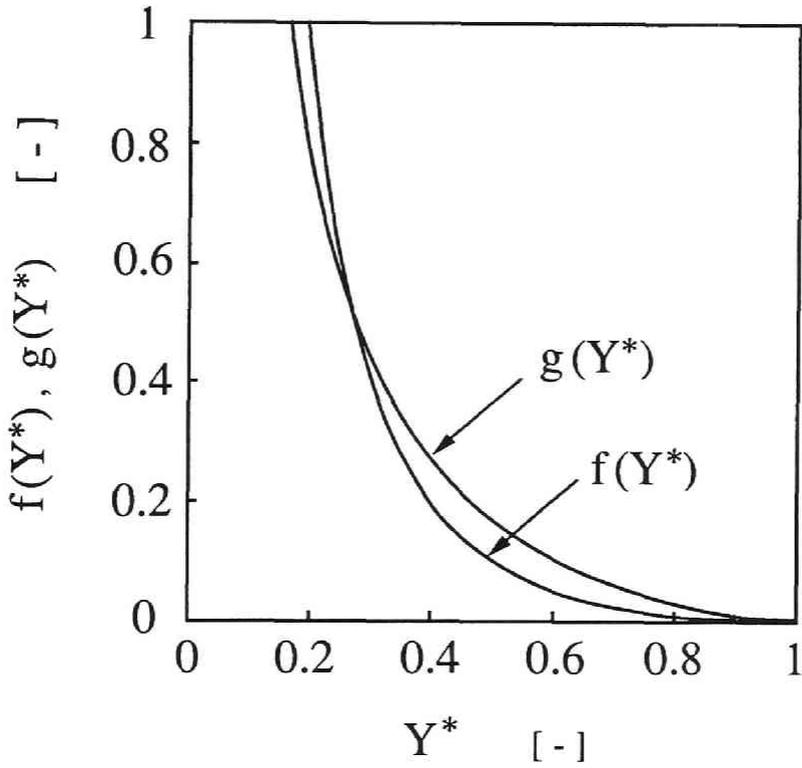


Fig. 2 • 5 Dimensionless shape function  $f(Y^*)$  for bending stress  $\sigma_b$  and  $g(Y^*)$  for shearing stress  $\tau_p$

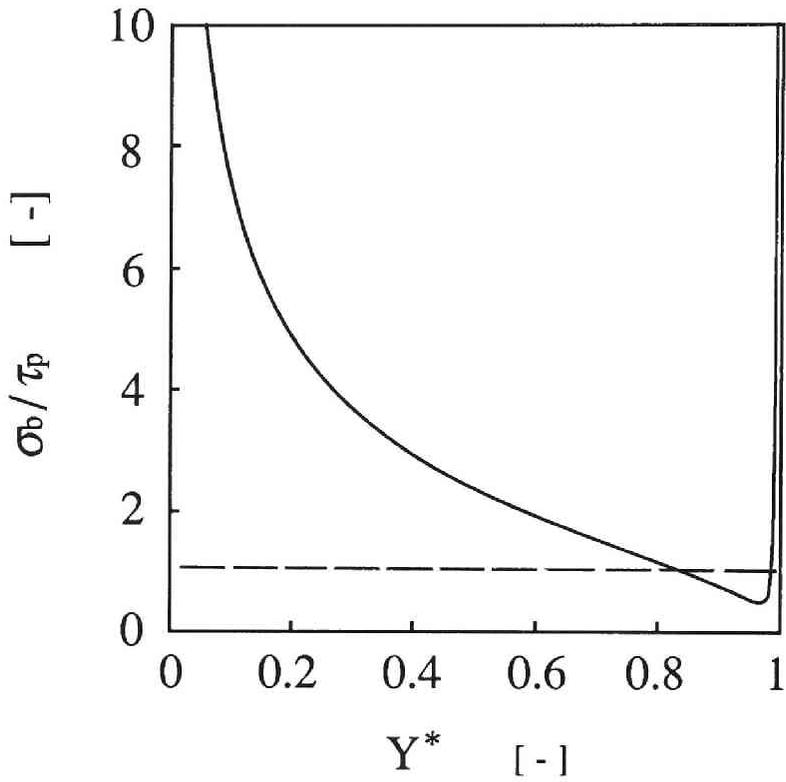


Fig. 2 • 6 Ratio of bending stress  $\sigma_b$  to shearing stress  $\tau_p$  as a function of dimensionless depth of aggregate buried in a powder layer  $Y^*$

変化するが、大部分において  $\sigma_b \gg \tau_p$  である。すなわち、粒子の飛散に対して曲げ応力の方がせん断応力よりも有効であることがわかる。なお、Eq. (2・20) および Eq. (2・22) で表したように、破断部位に働く曲げ応力と粉体層内部せん断応力のいずれも粉体層表面の気流せん断応力  $\tau_w$  (以下、壁面気流せん断応力という) に比例する。したがって、いずれにしても飛散を生じるときの壁面気流せん断応力は粒子の付着強度の指標として用いることができる。流路内の壁面気流せん断応力は次式で与えられる。

$$\tau_w = C_f \rho \bar{u}^2 / 2 \quad (2 \cdot 30)$$

ここで、 $C_f$  は管内摩擦係数であり、 $\bar{u}$  は平均流速である。乱流域の  $C_f$  は次の Blasius の実験式から求められる。

$$C_f = 0.0791 Re^{-1/4} \quad (3 \times 10^3 \leq Re \leq 10^5) \quad (2 \cdot 31)$$

したがって、乱流域での壁面気流せん断応力  $\tau_w$  は次のようになる。

$$\tau_w = 0.0396 \rho (v / D_e)^{1/4} \bar{u}^{7/4} \quad (2 \cdot 32)$$

同様に、摩擦速度  $u^*$  は次のようになる。

$$u^* = 0.199 (v / D_e)^{1/8} \bar{u}^{7/8} \quad (2 \cdot 33)$$

Eq. (2・32) および Eq. (2・33) は円管において成立する式であるが、相当直径を用いることにより断面形状が円形以外の管においても適用することができる<sup>10)</sup>。

### 2. 1. 3 付着強度の検討

#### (1) 粒子間付着力

低湿度における粒子間付着力を、1. 2 で述べたようにファン・デル・ワールス力  $F_v$  で近似する。

$$F_v = - \frac{A d}{12 z^2} \quad (2 \cdot 34)$$

ここで、 $A$  は Hamaker 定数、 $d_p$  は換算粒径 ( $= D_{p1} D_{p2} / (D_{p1} + D_{p2})$ )、 $z$  は接触部位における表面間距離であり、Born の斥力を考慮すると  $z = 0.4$  nm 程度になる<sup>14)</sup>。粒子の表面粗さ  $b$  を考慮するときには、 $z$  を  $z + b$  に置き換えることにより近似的に付着力を求めることができる<sup>4,5)</sup>。ただし、 $z + b$

が 15 nm を超えるようになると遅延効果の影響が現われ、実際の付着力は Eq. (2・34) の計算結果より小さくなる。

## (2) 引張破断強度

凝集粒子の付着強度を厳密に推算することは難しいが、再飛散に十分な曲げ応力が粉体層表面の微小突出部に作用するときには、粉体層内の引張応力により亀裂が生じて破断することから、近似的に粉体層の引張破断強度を用いることが可能と考えられる<sup>9,13)</sup>。引張破断強度  $\sigma_t$  は、Rumpf<sup>19)</sup>により次のように表されている。

$$\sigma_t = \frac{\phi k_n F}{\pi D_p^2} \quad (2 \cdot 35)$$

ここで、 $\phi$  は粒子充てん率、 $k_n$  は平均粒子配位数、 $F$  は平均粒子間付着力、 $D_p$  は平均粒子径である。厳密には、充てん率が大きく変化すると粒子間距離や接触面積が変化するため粒子間付着力も変化する。平均配位数  $k_n$  の推算式はいくつか提案されているが、真の接触点とみかけの接触点（近接しているが厳密には離れている）の違いにより推定結果は多少異なる<sup>20)</sup>。一般に広く用いられている Ridgway-Tarbutck の実験式<sup>17)</sup> は次式で表される。

$$k_n = 13.8 \sqrt{175 - 232 \phi} \quad (2 \cdot 36)$$

Eq. (2・36) は球形粒子を用いたランダム充てんの実験結果から求められたものであるが、ある程度の分布が存在する粒子群の充てん体にも適用できる。したがって、引張破断強度  $\sigma_t$  は Eqs. (2・34) ~ (2・36) および一次粒子の表面粗さ  $b$  を考慮して次のように導出される。

$$\sigma_t = \frac{(0.183 \sqrt{0.0308 - 0.0408 \phi}) \phi A}{D_p (z + b)^2} \quad (2 \cdot 37)$$

上式から、充てん率に対する引張破断強度の変化を推算することが可能になった。なお、引張破断強度は一次粒子径と反比例の関係にあることがわかる。

## 2. 2 実験装置および方法

実験装置の概略を Fig. 2・7 に示す。a) は圧送系、b) は吸引系であ

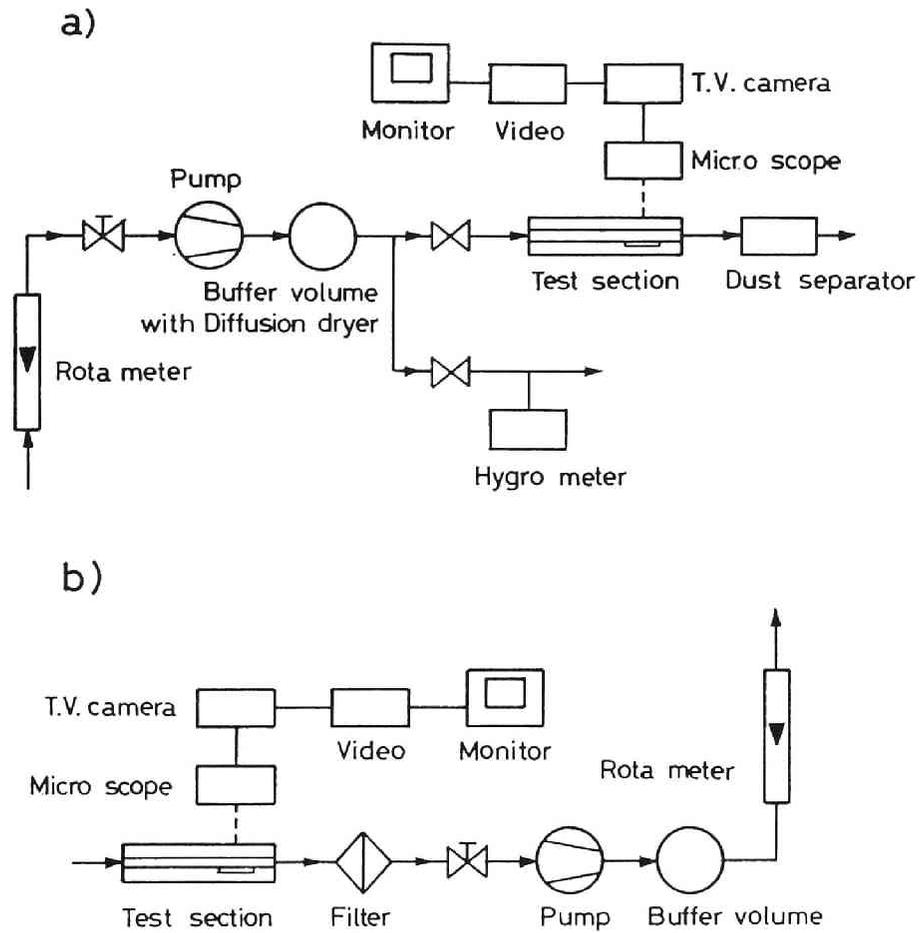


Fig. 2 - 7 Experimental apparatus

るが、いずれの装置を用いても流速等の条件が同一であれば飛散結果には影響が見られないことを予備実験で確認した。なお、圧送系は低湿度の実験に、吸引系は高湿度の実験に使用した。気流は、エアーポンプ（イワキ製 AP450D）により発生させ、脈流を防止するために緩衝容器を経路内に設置した。空気流量は、ロータメータ（ガスメータにより検定済み）を見ながらニードルバルブを手動で調節した。所定の流速に設定するとき急激な気流の変化が飛散に影響を及ぼさないように、 $0.1\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$ 程度の割合で徐々に平均流速を増加させた。テスト部はFig. 2・8に示すように断面 $3.3\text{mm}\times 9.4\text{mm}$ 、長さ $240\text{mm}$ の矩形流路で、上部は観察用にガラス板が取り付けられている。流路には $150\text{mm}$ の助走区間があり、長さ $50\text{mm}$ の真ちゅう製粉体充てんセルが流路内に設置される。粒子の飛散状況は、実体顕微鏡に接続したテレビカメラを通してビデオに録画されモニターで観察できる。試料粉体は試験用ダスト（JIS Z-8901、フライアッシュ5種とフライアッシュ10種およびタルク9種）である。試料粉体の質量中位径 $D_{p50}$ 、幾何標準偏差 $\sigma_g$ および面積基準調和平均径 $D_{pa}$ はTable 2・1に示すとおりである。粉体は、 $120\text{ }^\circ\text{C}$ で12時間以上乾燥したのちデシケータで室温まで放冷し、400メッシュ（目開き $37\mu\text{m}$ ）のふるいを通して、セルのくぼみ（ $21\text{mm}\times 6\text{mm}$ の長円形、深さ $0.5\text{mm}$ ）に充てんした。これにタッピングを加えて充てん率を変化させたのち、粉体層表面は矩形流路の内壁と同一平面になるようにステンレス製の薄刃を用いてナイフカットした。ただし、フライアッシュ10種で充てん率が0.1以下の粗充てんは、この方法では得られないため、高速回転翼型分散機で分散させた粉体を自然沈降させた。試料粉体層は、さらに $110\text{ }^\circ\text{C}$ で12時間乾燥したのち飛散実験に使用した。

## 2. 3 実験結果および考察

### 2. 3. 1 飛散開始流速

流速を徐々に増加させると粉体層表面から粒子が飛散しはじめるが、流速が小さいときの飛散は偶発的であり、付着強度の小さい粒子のみが飛散して

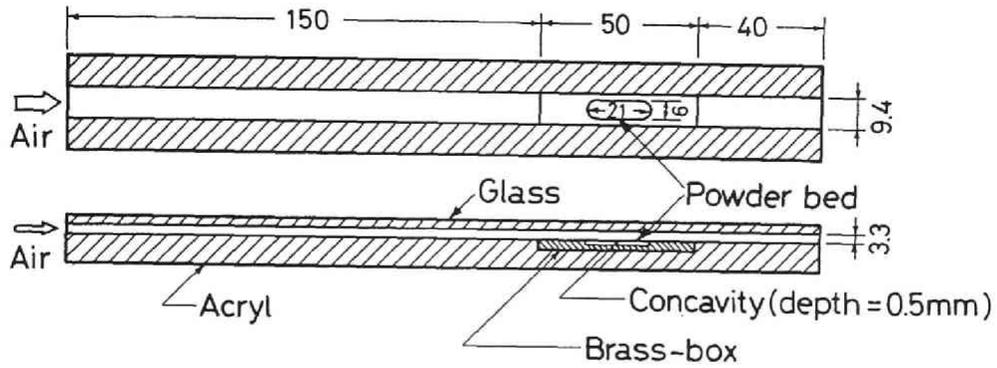


Fig. 2 • 8 Details of test section

Table 2 • 1 Test powders used

Powder	Mass median diameter	Geometric standard deviation	Harmonic mean diameter *
	$D_{p50}$ [mm]	$\sigma_g$ [-]	$D_{pa}$ [mm]
Fly-ash No.5	10.9	2.34	3.7
Fly-ash No.10	3.6	1.95	1.8
Talc No.9	2.7	2.25	1.0

$$* D_{pa} = 1 / \int \frac{f^{(2)}}{D_p} dD_p$$

いるものと考えられる。流速を大きくすると飛散は継続するようになり、このときの平均流速はその粉体層を代表する飛散開始流速とみなすことができる。飛散開始流速を実験で求めるときには、飛散の継続時間に一定の条件を加える必要がある。予備実験において、粉体層の全表面からランダムに飛散が生じ、かつ飛散終了後の粉体層表面に局所的な形状の乱れがないときの飛散の継続時間が2~4分程度であることが確かめられたため、3分間という基準を採用することにした。

Fig. 2・9は粒子充てん率 $\phi$ と飛散開始流速 $\bar{u}_c$ の関係を表したものである。実験は相対湿度が約20%の条件で行われた。フライアッシュ5種、フライアッシュ10種およびタルク9種のいずれの試料においても、飛散開始流速は充てん率とともに大きくなる。これは、充てん率が高くなると粒子の接触点数が増えて付着強度が大きくなることが主な要因と考えられる。フライアッシュの5種と10種を比較すると、中位径の小さい10種の方が同一充てん率における飛散開始流速は大きく、飛散しにくいことがわかる。この影響は充てん率が高いほど顕著であり、充てん率が高くなるにつれて充てん構造の違いが明確に現れるためと考えられる。逆に、充てん率が小さい範囲( $\phi < 0.15$ )では一次粒子径の影響はほとんど見られない。また、タルク9種はフライアッシュ10種と同程度の中位径であるが、飛散性は明らかに異なる。これは、フライアッシュの粒子形状が球形であるのに対してタルクは薄片状であり、粒子形状の違いが充てん構造や粒子間付着力に大きく影響しているものと考えられる。

### 2. 3. 2 粉体層表面粗さおよび飛散凝集粒子径

顕微鏡下において、粉体層表面の凹凸部に焦点を合わせ、そのときのレンズの移動距離を微動ハンドルの回転位置(最小読み取り精度約 $2\mu\text{m}$ )から読み取ることにより、粉体層表面の高低差を求めることができる。1辺 $200\mu\text{m}$ 四方の範囲における最高部と最低部の差を粉体層の表面粗さ $\epsilon_s$ と定義し、一つの粉体層に対して長手方向に5mm間隔で7点測定した結果を、Fig. 2・10に示す。充てん率 $\phi$ が高くなるにつれて粉体層の表面粗さは小

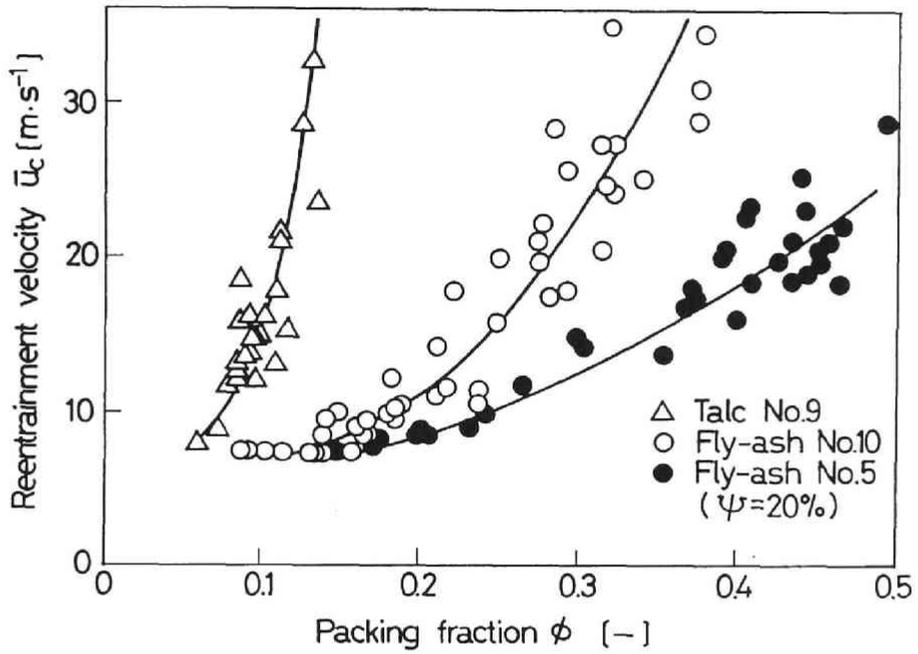


Fig. 2 • 9 Relationship between critical reentrainment velocity  $\bar{u}_c$  and packing fraction  $\phi$

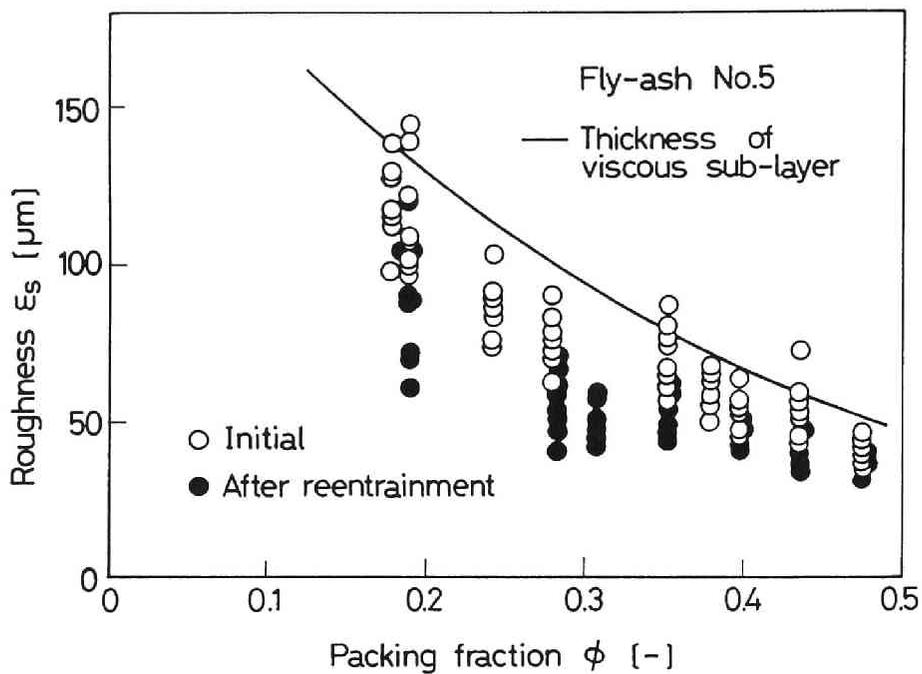


Fig. 2 • 10 Relationship between surface roughness  $\epsilon_s$  and packing fraction  $\phi$

さく滑らかであるが、これは、タッピング充てんにより空隙部の大きなものから消失していくためであり、粉体層の表面粗さは粒子の充てん構造と密接な関係があるといえる。また、飛散前に比べて飛散後の方が多少粗さは小さいが、これは飛散前の粉体層表面にはナイフカットにより生じた偶発的な乱れが測定結果に含まれているためと思われる。同図の実線は Fig. 2・9 に示した飛散開始流速の実験線から求めた粘性底層厚さ ( $\delta_f = 5\nu / u^*$ ) である。測定結果は粗さの最大値を表わしていることを考慮すると、平均的な粗さは粘性底層内に十分収まっていると理解できる。

次に、再飛散状況の観察結果について述べる。ビデオをスローで再生すると飛散凝集粒子の大きさをモニター上で読み取ることができる。その結果、微粉体層表面から飛散するのは主に凝集粒子であることが確認できた。飛散凝集粒子の円相当中位径  $D_{\text{ag}50}$  と充てん率  $\phi$  の関係を Fig. 2・11 に示す。充てん率が低いときには比較的大きな凝集粒子が飛散しており、充てん率が高くなるにつれて飛散凝集粒子径は小さくなる。また、一次粒子径の小さい10種の方が凝集粒子径は小さいことがわかる。なお、凝集粒子の幾何標準偏差は1.57~1.66の範囲であった。飛散凝集粒子径は粉体層の表面粗さ（あるいは充てん構造）の影響を強く受けると予想されるが、Fig. 2・10 で示したように充てん率が増加すると粗さが低下する傾向と類似していることが確認できた。

### 2. 3. 3 飛散限界気流せん断応力と粉体層引張破断強度

再飛散機構モデルを用いて実験結果の解析を行う。実験で得られた飛散開始流速を Eq. (2・32) に代入して壁面気流せん断応力（以下、飛散限界気流せん断応力  $\tau_c$  という）を求め、その結果を Fig. 2・12 に示す。飛散限界気流せん断応力は飛散開始流速と同様に充てん率の増加にともなって大きくなり、充てん率が同じときには一次粒子径の小さい方が  $\tau_c$  は大きいことがわかる。一方、フライアッシュ10種の粉体層せん断試験から導かれた結果（引張破断強度  $\sigma_t = 12.9 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ 、充てん率  $\phi = 0.42$ ）を用いると Eq. (2・37) で表される引張破断強度は次式のようになる。

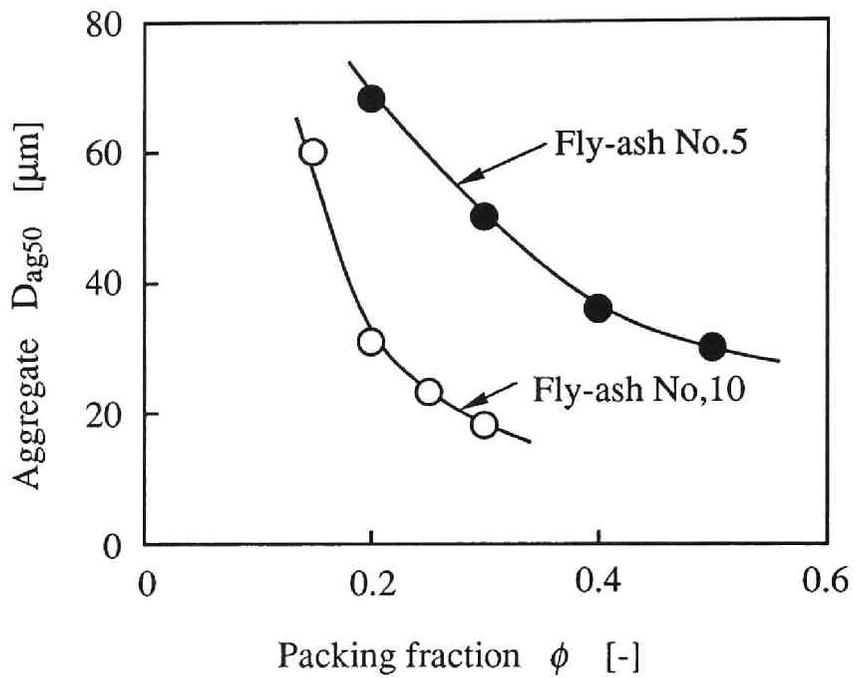


Fig. 2 • 11 Median diameter of reentrained aggregates  
(diameter of the circle of equal projected area,  
number basis)

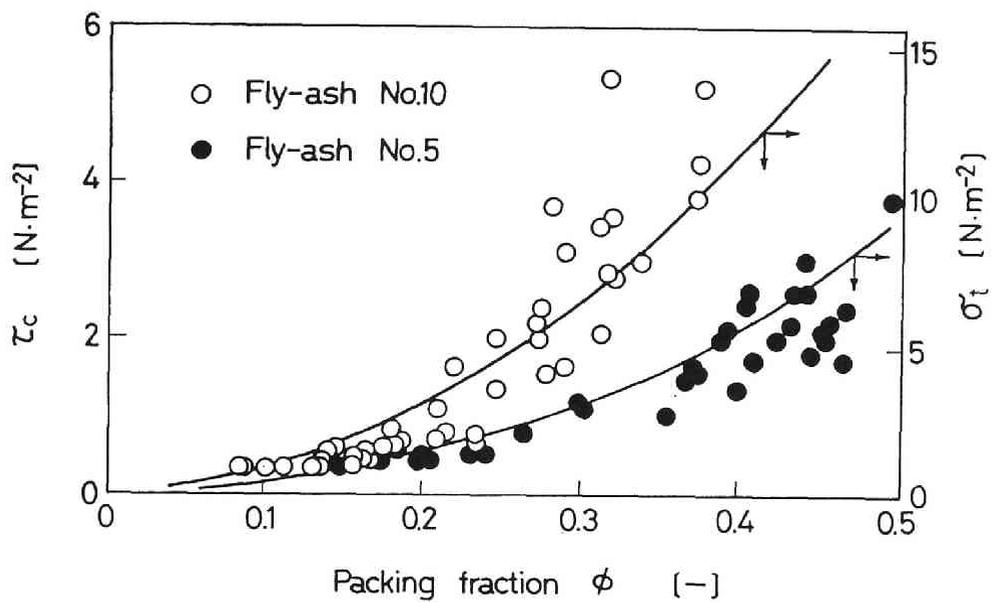


Fig. 2 • 12 Experimental shear stress  $\tau_c$  and calculated tensile strength  $\sigma_t$  as a function of packing fraction  $\phi$

$$\sigma_t = \frac{8.5 \times 10^{-4} (0.183 \sqrt{0.0308 - 0.0408 \phi}) \phi}{D_p} \quad (2 \cdot 38)$$

Eq. (2・38) の計算結果を同図の実線で示す。飛散限界気流せん断応力は充てん率および一次粒子径 ( $\sigma_t$  が単位面積あたりの付着力で粒径に反比例するため面積基準調和平均径を使用) に対して引張破断強度と同様に变化することが確認できた。すなわち、飛散限界気流せん断応力と粉体層の引張破断強度は比例関係にあり次の実験式が得られる。

$$\tau_c = 0.38 \sigma_t \quad (2 \cdot 39)$$

なお、引張破断強度  $\sigma_t$  が最大曲げ応力  $\sigma_b$  と釣り合うと仮定して<sup>11)</sup>、Eqs. (2・20)、(2・39) から無次元形状因子を求めてみると、 $f(Y^*) = 0.086$  が得られる。さらに、 $f(Y^*)$  と凝集粒子の無次元埋設深さ  $Y^*$  の関係 (Fig. 2・5 参照) から  $Y^* = 0.52$  が得られる。すなわち、粉体層表面の凹凸は仮想球形凝集粒子の約半分が粉体層内に埋まった状態に相当する。

#### 2・3・4 湿度の影響

これまで低湿度 (相対湿度  $\psi = 20\%$ ) で再飛散実験を行ってきたが、ここでは湿度が高くなったときの影響について検討する。湿度が低いときには粒子間付着力はファン・デル・ワールス力のみで近似できるものとして理論的検討を進めてきたが、湿度が高くなると粒子間の水分保持量が増加し、液架橋力の影響も考慮しなければならないであろう。高湿度における再飛散実験では、超音波加湿機を用いて湿潤空気を直接テスト部に吸引 (Fig. 2・7 (b) 参照) した。

Fig. 2・13 は飛散開始流速の測定値と Eqs. (2・32)、(2・39) から算出した引張破断強度  $\sigma_t$  を相対湿度に対して表したものであり、パラメータは粒子充てん率である。Fig. 2・12 と同様に粒子充てん率が増加するにつれて引張破断強度は増加しているが、いずれの充てん率においても相対湿度が50%を超えると引張破断強度は急激に増加する。この傾向は既往の実験結果<sup>1,2,6,7,16)</sup>ともほぼ一致しており、相対湿度が50%を超えるあたりから液架橋力が支配的になることが確認された。

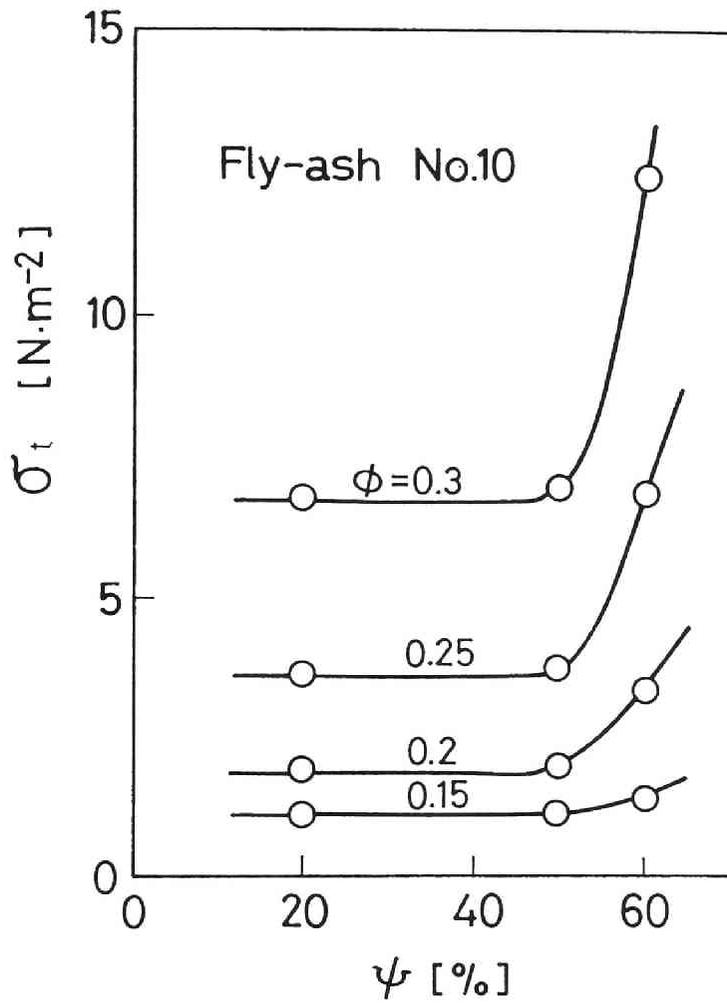


Fig. 2 • 13 Effect of relative humidity  $\psi$  on experimental tensile strength  $\sigma_t$

## 結 言

微粉体層からの凝集粒子の再飛散機構を解明するために、応力バランスを基礎とする再飛散モデルを立てて理論的検討を行った結果、以下の結論が得られた。

- 1) 凝集粒子に働く粉体層内部応力は、壁面気流せん断応力と無次元形状因子を用いて表すことができる。
- 2) 主な粉体層内部応力は曲げ応力とせん断応力であるが、凝集粒子の再飛散には曲げ応力が有効である。
- 3) ファン・デル・ワールス力が粒子間付着力の支配因子であるとき、粉体層引張破断強度は一次粒子径に反比例する。

また、微粉体層からの再飛散に関する実験的検討により以下の結論が得られた。

- 4) 飛散開始流速を超えると凝集粒子が粉体層の全表面からランダムかつ連続的に飛散する。
- 5) 飛散開始流速および飛散限界気流せん断応力は、充填率が高いほど、一次粒子径が小さいほど、あるいは粉体層の表面粗さが小さいほど大きくなり、逆に飛散凝集粒子径は小さくなる。
- 6) 飛散限界気流せん断応力は Rumpf の粉体層引張破断強度とよく対応する。また、最大曲げ応力と引張破断強度との均衡から無次元形状因子が推算できる。

## 使用記号

$A$	= Hamaker定数	[ J ]
$A(y)$	= 凝集粒子の投影断面積	[ m <sup>2</sup> ]
$b$	= 一次粒子の表面粗さ	[ m ]
$C_D$	= 凝集粒子の抵抗係数	[ - ]

$C_f$	= 管内摩擦係数	[ - ]
$c$	= 速度勾配 (= $du / dy$ )	[ $s^{-1}$ ]
$D_{ag}$	= 凝集粒子径	[ m ]
$D_{ag50}$	= 凝集粒子の円相当中位径	[ m ]
$D_p$	= 一次粒子の平均粒子径	[ m ]
$D_{p50}$	= 一次粒子の質量中位径	[ m ]
$D_{pa}$	= 一次粒子の面積基準調和平均径	[ m ]
$d$	= 飛散凝集粒子の破断面の直径	[ m ]
$d_p$	= 一次粒子の換算直径	[ m ]
$F$	= 粒子間付着力	[ N ]
$F_v$	= ファン・デル・ワールス力	[ N ]
$f(Y^*)$	= 曲げ応力の無次元形状因子	[ - ]
$g(Y^*)$	= せん断応力の無次元形状因子	[ - ]
$k_n$	= 平均粒子配位数	[ - ]
$M$	= 曲げモーメント	[ N · m ]
$Re$	= レイノルズ数	[ - ]
$r_D(y)$	= 凝集粒子に働く抗力	[ N ]
$u$	= 粘性底層内の気流速度	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$\bar{u}$	= 平均流速	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$\bar{u}_c$	= 飛散開始流速	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$u^+$	= 無次元速度 (= $u / u^*$ )	[ - ]
$u^*$	= 摩擦速度	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$Y$	= $y / D_{ag}$	[ - ]
$Y^*$	= $y^* / D_{ag}$	[ - ]
$Y_1$	= 式 ( 2 · 26 ) で表される関数	[ - ]
$Y_2$	= 式 ( 2 · 27 ) で表される関数	[ - ]
$Y_3$	= 式 ( 2 · 28 ) で表される関数	[ - ]
$y$	= 壁からの距離	[ m ]
$y^+$	= 無次元距離 (= $y u^* / \nu$ )	[ - ]
$y^*$	= 粉体層に埋まった仮想凝集粒子の深さ	[ m ]

$Z$	= 断面係数	[ $m^3$ ]
$z$	= 粒子表面間距離	[ $m$ ]
$\epsilon_s$	= 粉体層の表面粗さ	[ $m$ ]
$\mu$	= 空気粘度	[ $kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$ ]
$\nu$	= 空気動粘度	[ $m^2 \cdot s^{-1}$ ]
$\rho$	= 空気密度	[ $kg \cdot m^{-3}$ ]
$\sigma_b$	= 曲げ応力	[ $N \cdot m^{-2}$ ]
$\sigma_g$	= 粒子径分布の幾何標準偏差	[ $-$ ]
$\sigma_t$	= 粉体層引張破断強度	[ $N \cdot m^{-2}$ ]
$\tau_p$	= 粉体層内せん断応力	[ $N \cdot m^{-2}$ ]
$\tau_w$	= 壁面または粉体層表面の気流せん断応力	[ $N \cdot m^{-2}$ ]
$\tau_c$	= 飛散限界気流せん断応力	[ $N \cdot m^{-2}$ ]
$\phi$	= 粒子充てん率	[ $-$ ]
$\psi$	= 相対湿度	[ $-$ ]

## 引用文献

- 1) Akiyama, T. and Y. Tanijiri : *Powder Technol.*, 57, 21 (1989)
- 2) 浅川貞雄, 神保元二 : 材料, 16, 358 (1967)
- 3) Bagnold, R. A. : *Int. J. Air. Poll.*, 2, 357 (1960)
- 4) Czarnecki and T. Dabros : *J. Colloid Interface Sci.*, 78, 25 (1980)
- 5) Czarnecki, J. and V. Itschenskij : *J. Colloid Interface Sci.*, 98, 590 (1984)
- 6) Danjo, K. and A. Otsuka : *Chem. Pharm. Bull.*, 26, 2705 (1978)
- 7) 江見準, 遠藤茂寿, 金岡千嘉男, 川合清一 : 化学工学論文集, 3, 580 (1977)
- 8) 日高重助, 三輪茂雄 : 粉体工学会誌, 22, 550 (1985)
- 9) 東谷公, 山口英明, 古川伸一 : 化学工学論文集, 15, 703 (1989)
- 10) 生井武文, 井上雅弘 : "粘性流体の力学", p.195, 理工学社 (1978)

- 11) 生三俊也, 和歌山久男, 増田弘昭 : 化学工学論文集, 12, 589 (1986)
- 12) 化学工学協会編 : "化学工学便覧", 改訂 5 版, pp.124-129, 丸善 (1988)
- 13) Kousaka, Y., K. Okuyama and Y. Endo : *J. Chem. Eng. Japan*, 13, 143 (1980)
- 14) Krupp, H. : *Advan. Colloid Interface Sci.*, 1, 111 (1967)
- 15) 日本機化学会編 : "機械工学便覧", 改訂第 6 版, p.4-49 (1977)
- 16) 西野操、荒川正文 : 材料, 22, 663 (1973)
- 17) Ridgway, K. and K. J. Tarbuck : *Brit. Chem. Eng.*, 12, 384 (1967)
- 18) Rumpf, H. : 粉体工学研究会誌, 9, 3 (1972)
- 19) Rumpf, H. : *Chemie. Ing. Techn.*, 42, 538 (1970)
- 20) 鈴木道隆, 牧野和孝, 山田昌治, 井伊谷鋼一 : 化学工学論文集, 6, 59 (1980)
- 21) Zimon, A. D. : "Adhesion of Dust and Powder", pp.197-248, Plenum Press (1969)

## 第3章 粒子再飛散に及ぼす温度の影響

### 緒言

前章では、微粉体層から凝集粒子が再飛散するときの機構について、応力バランスを基礎とするモデルを立て、凝集粒子に働く分離強度と付着強度を表す式をそれぞれ導出した。また、再飛散実験により微粉体層から飛散する粒子は主に凝集粒子であり、充てん率が高いほど、一次粒子径が小さいほど、あるいは粉体層の表面粗さが小さいほど、飛散開始流速および飛散限界気流せん断応力は大きくなり、かつ飛散凝集粒子径は小さくなることを明らかにした。さらに、実験結果を再飛散機構モデルを用いて解析し、飛散限界気流せん断応力がファン・デル・ワールス力に基づく Rumpfの粉体層引張破断強度<sup>8)</sup>とよく対応することを確認した。これらの実験はいずれも常温で行われたが、微粉炭燃焼におけるフライアッシュの集塵などのように、実際のプロセスでは高温で微粉体を取り扱うことも多い。温度が変わると気流の密度や粘度が変化し分離力に影響が現われるだけでなく、粒子表面特性が変化すると粒子間付着力にも影響が現われると考えられるため、高温再飛散現象についても検討する必要がある。これまでに、付着力の温度依存性に関する研究は幾つか報告されている<sup>1,6,7)</sup>が、再飛散現象の温度依存性に関する研究は少なく<sup>7)</sup>、高温において付着力と飛散限界気流せん断応力とに着目した基礎的研究は行われていない。本章では、フライアッシュを試料粉体として取り上げ、再飛散に関する温度依存性について実験的に検討し、粒子の表面特性に着目して粒子間付着力の解析を行う。

### 3.1 実験装置および方法

高温再飛散実験のための装置の概略を Fig. 3・1 に示す。気流は予熱炉で所定の温度まで加熱し、電気炉の中に設置されているテスト部に圧送する。電気炉内はPID制御により所定の温度に保たれているが、粉体層温度と電気炉内温度とにわずかに差があるため、あらかじめ粉体層内に埋め込んだCA

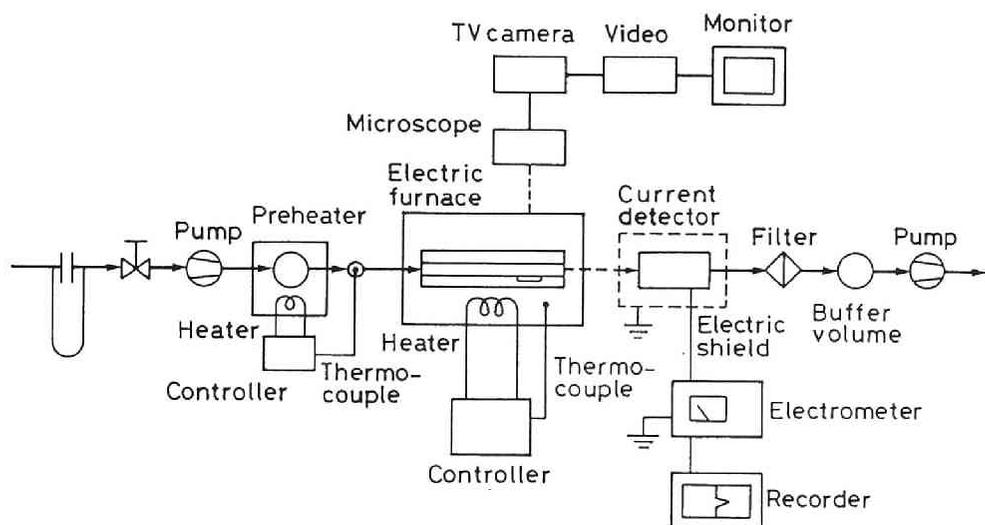


Fig. 3 • 1 Experimental apparatus for high-temperature reentrainment

熱電対により温度を連続測定することにより検量線を作成し、試験粉体層温度を所定の温度に保つように電気炉内温度の設定値を調節した。また、流速を変化させると温度が安定するまでに多少の時間を要するため、気流速度を $1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 増加する毎に14分間定常状態に保った。テスト部は、断面 $3\text{mm}\times 10\text{mm}$ 、長さ $300\text{mm}$ の矩形流路であり、上部からの観察と耐熱性を考慮して石英ガラス製とした。気流の助走区間は $200\text{mm}$ であり、長さ $50\text{mm}$ の石英ガラス製粉体充てんセルを流路内に設置した。粒子の飛散状況は、実体顕微鏡に接続したテレビカメラを通してビデオに録画されモニターで観察できる。また、飛散粒子はFig. 3・2に示す飛散粒子検出器へ高速吸引され、検出管との接触帯電により発生する電流をエレクトロメータで測定する方法（静電気式検出法）<sup>4,5)</sup>によって飛散の連続測定を行った。

試料粉体は試験用ダスト10種（J I S Z -8901、フライアッシュ；密度 $2.39\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、面積基準調和平均径 $1.8\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差1.95）を使用した。これを $110\text{ }^{\circ}\text{C}$ で12時間以上乾燥したのち、400メッシュのふるいを通して充てんセルに自然落下させ、タッピングを加えて充てん率を調整した。また、粉体層表面は矩形流路の内壁と同一平面になるようにナイフカットした。さらに、 $110\text{ }^{\circ}\text{C}$ で12時間以上乾燥したのち飛散実験の試料として使用した。

### 3. 2 実験結果および考察

#### 3. 2. 1 飛散の経時変化

飛散粒子検出器から発生した電流と平均流速の関係をFig. 3・3に示す。同図の下半分には平均流速の経時変化を、上半分にはそれに対応する発生電流の変化を示している。瞬間的な粒子の飛散に対応する発生電流はパルス状であるが、検出管内で同時に複数の飛散粒子が衝突するときにはパルス状の電流が積算された状態で測定される。したがって、発生電流の大きさは粉体層上の粒子飛散フラックスを表すことになる。平均流速が小さいときでもパルス状電流はわずかに発生しているが高さは低く、これらのパルスは主に流速を増加させた直後に見られる。これは付着強度の小さい粒子が飛散するた

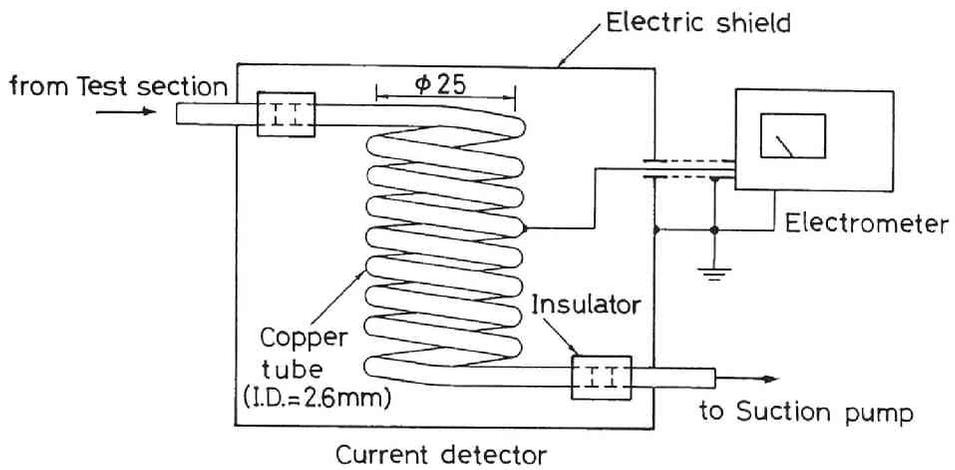


Fig. 3 - 2 Electric current detector of reentrained particles

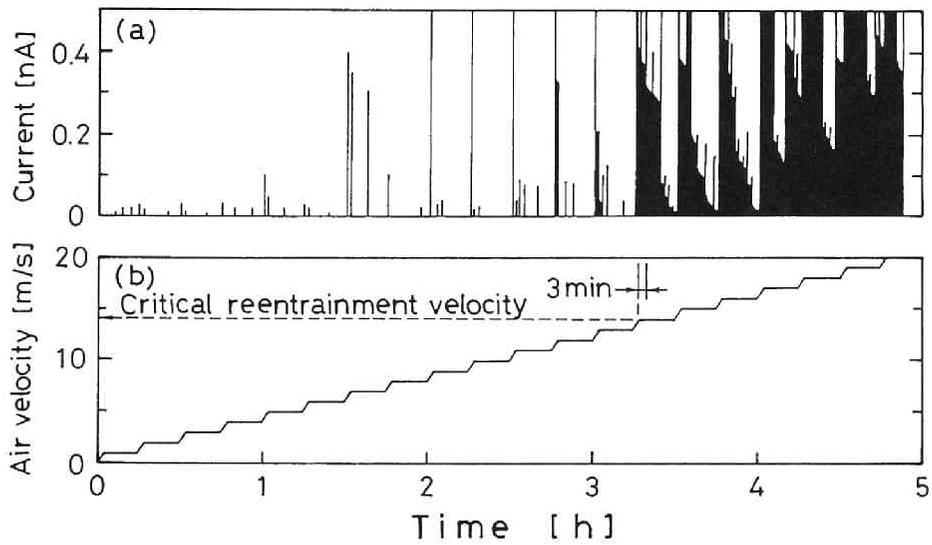


Fig. 3 - 3 (a) Current generated by reentrained particles  
(b) Average air velocity (40 °C)

めであるが、その割合は少ないので飛散はすぐに終了する。平均流速を増加させていくとパルスは高くなり、連続的に飛散するようになる。静電気式検出法の採用によって、飛散状況の観察を行わなくても飛散の有無が確認できるうえに、発生電流の大きさから飛散の経時変化を定量的に評価できるようになった。飛散開始流速は、前章と同様に飛散が継続しはじめるときの平均流速とした。

### 3. 2. 2 飛散限界気流せん断応力

飛散開始流速は、飛散性を定性的に評価するときには単純でかつ理解しやすいが、温度により気流の密度と粘度が変化する場合には、統一的な評価を行うことができないため、前章で検討した飛散限界気流せん断応力を用いることにする。飛散限界気流せん断応力  $\tau_c$  は次式で与えられる。

$$\tau_c = 0.0396 \rho (v / D_c)^{1/4} \bar{u}^{-7/4} \quad (3 \cdot 1)$$

Fig. 3・4 に示すように  $\tau_c$  は温度によって変化するが、いずれの温度においても充てん率  $\phi$  の増加とともに大きくなっており、飛散しにくくなることがわかる。高温の再飛散実験においても飛散粒子の大部分は一次粒子ではなく凝集粒子であることを確認しており、2. 3. 3 と同様に粉体層引張破断強度を用いて比較検討する。なお、引張破断強度  $\sigma_t$  は次式で与えられる。

$$\sigma_t = \frac{\phi k_n F}{\pi D_p^2} \quad (3 \cdot 2)$$

Fig. 3・4 の実線は、粒子間付着力  $F$  をパラメータにしたときの引張破断強度  $\sigma_t$  の計算結果である。ここで、フライアッシュ10種の  $\tau_c$  と  $\sigma_t$  との関係は2. 3. 3 で得られた実験式を適用した。すなわち、

$$\tau_c = 0.38 \sigma_t \quad (3 \cdot 3)$$

実験値のパラメータは粉体層温度であり、これを計算上の粒子間付着力に対応させれば、 $\tau_c$  の  $\phi$  による変化と  $\sigma_t$  の  $\phi$  による変化とがほぼ一致することがわかる。すなわち、粒子間付着力が温度によって変化すると仮定すれば、高温においても飛散限界気流せん断応力とRumpfの粉体層引張破断強度<sup>8)</sup>とを対応させることができる。なお、本実験の範囲における粒子間付着力  $F$  は

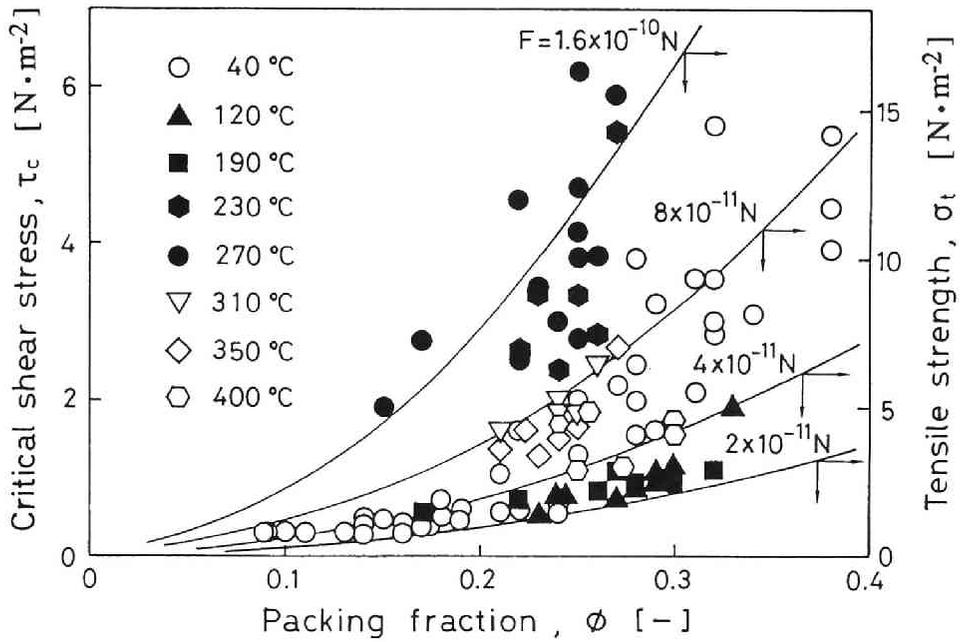


Fig. 3 • 4 Critical shear stress  $\tau_c$  and calculated tensile strength  $\sigma_t$  as a function of packing fraction  $\phi$

Fig. 3・4に示したように $2 \times 10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$  N程度に対応しているが、これらは3. 2. 4で検討するようにほぼ妥当な値である。

### 3. 2. 3 粒子表面特性

再飛散の温度依存性について解析するために、粒子の表面特性（吸着水分量と粒子の表面粗さ）に関してあらかじめ検討しておく。粒子表面に吸着する水分量をKarl-Fischer法により測定した。試料粉体は、100℃以下ではその温度で3時間以上放置し、100℃を超える場合には12時間以上放置した。単位乾き粉体質量あたりの吸着水分量 $v$ と温度 $T$ の関係をFig. 3・5に示す。吸着水分量は温度の上昇にともなって単調に減少するが、200℃でも吸着水分が残っていることがわかる。また、単位乾き粉体質量あたりの単分子吸着水分量 $v_m$ をBET式から求めた。すなわち、実測した吸着等温線から $v_m = 1.95 \times 10^{-3}$ 、BET定数 $C = 4.20$ が得られ、この結果から求めた平均吸着分子総数を同図の右側縦軸に示した。吸着層厚さは常温で約1分子層であり、高温になると1分子層以下になる。吸着層厚さが1分子層以下では、粒子表面上の任意の位置における水分子の存在確率は1以下であるが、部分的には水分子の集合した領域があるものと思われる。特に、粒子どうしの接触点においては水分子が粒子間に挟まる構造となり、粒子と水分子または水分子間の相互作用が強く、水分子が離脱しにくい状態にあると考えられる。

次に、フライアッシュを加熱炉で190℃、270℃、400℃の各温度で3時間および10時間熱処理し、加熱前（20℃）および加熱後の粒子表面を走査型電子顕微鏡で観察した。各温度における同一粒子表面の状態を比較するため、試料粉体を顕微鏡用テストピースに自然落下させた後、気流により大部分の粒子を飛散させ、テストピースとの付着力が比較的強い粒子を観察の対象とした。なお、テストピースはあらかじめ刻印を付けておき、これを基準にして観察対象の粒子の座標を定めた。Fig. 3・6に示す電子顕微鏡写真を比較すると400℃の粒子表面は明らかに粗くなっていることがわかる。これは融点・沸点の比較的低い物質もしくは分解しやすい物質が散逸したためと考えられる。なお、表面粗さには加熱時間（3時間と10時間）の影響はみられ

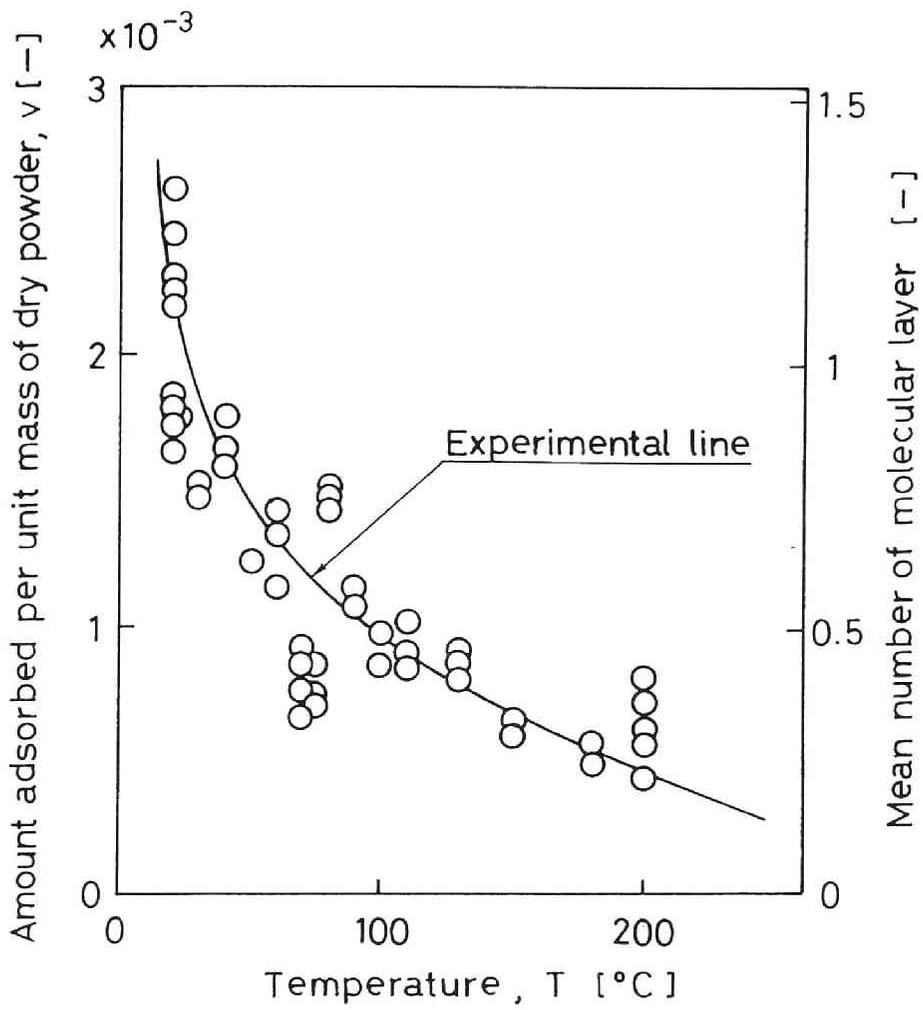
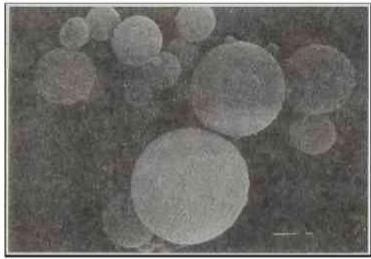
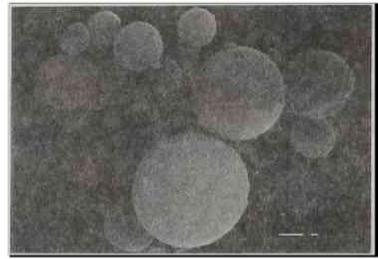


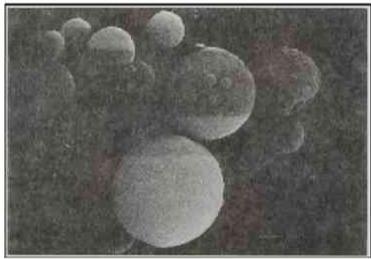
Fig. 3 • 5 Relationship between amount of adsorbed water  $v$  and temperature  $T$



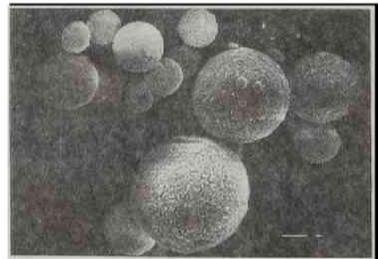
(a) 20 °C



(b) 190 °C



(c) 270 °C



(d) 400 °C

0 5  $\mu\text{m}$

Fig. 3 • 6 Photomicrographs of fly-ash particles  
(heat treatment : 3 hrs.)

なかった。散逸物質としては、微粉炭燃焼の脱硝操作時に加えられるアンモニアと燃焼ガス中のイオウ酸化物との反応で生成する硫酸水素アンモニウム（融点147℃、沸点490℃）が主なものと推測される。このことを確かめるために試料粉体をX線回折（検出感度0.1%）および示差熱分析（感度1 mcal・min<sup>-1</sup>）を行ったが検出限界以下であり、これらの方法で分析評価することはできなかった。

### 3. 2. 4 粒子間付着力の温度依存性

飛散限界気流せん断応力と粉体層温度の関係をFig. 3・7に示す。40℃では100℃程度と比べて多少飛散しにくい傾向にあるが、200℃までは温度による影響はほとんどなく比較的飛散しやすい。しかし、温度の上昇とともに飛散しにくくなり、260℃を超えると再び飛散しやすくなることがわかる。このような温度の影響は粒子間付着力の変化によるものと考えられる。

粒子間付着力としては、ファン・デル・ワールス力、湿潤雰囲気における液架橋力、静電気力、フライアッシュに含まれる極微量の低融点成分による架橋力が挙げられる。しかし、本実験では40℃での相対湿度が20%であり、120℃を超えると相対湿度が1%以下の乾燥状態になるため、湿度による液架橋力の影響は無視できる。また、1種類の粉体で形成された粉体層内では粒子相互の帯電量分布は小さく、静電気力の影響は十分小さいものと予想される。次に、低融点成分の軟化による粒子接触面積の増加<sup>6)</sup>や溶融による架橋<sup>1)</sup>が付着力に影響を及ぼす可能性について検討する。低融点成分は、前述のように硫酸水素アンモニウムと推測されるが、融点（147℃）付近において付着力に変化は認められなかった。仮に、その他の低融点成分が存在したことにより200℃から260℃にかけて付着力が上昇したと考えたと、セルに充てんした粉体層を260℃付近まで加熱（前処理）したのち温度を下げた場合、粒子接触面積が大きくなったまま固化するため付着力は大きくなり、温度の上昇・降下に対して非可逆性を示すはずである。しかし、実験の結果は前処理の有無にかかわらず40℃～270℃の範囲で可逆性が確認されたため、低融点成分の影響とは考えにくい。したがって、以下ではファン・デル・ワ

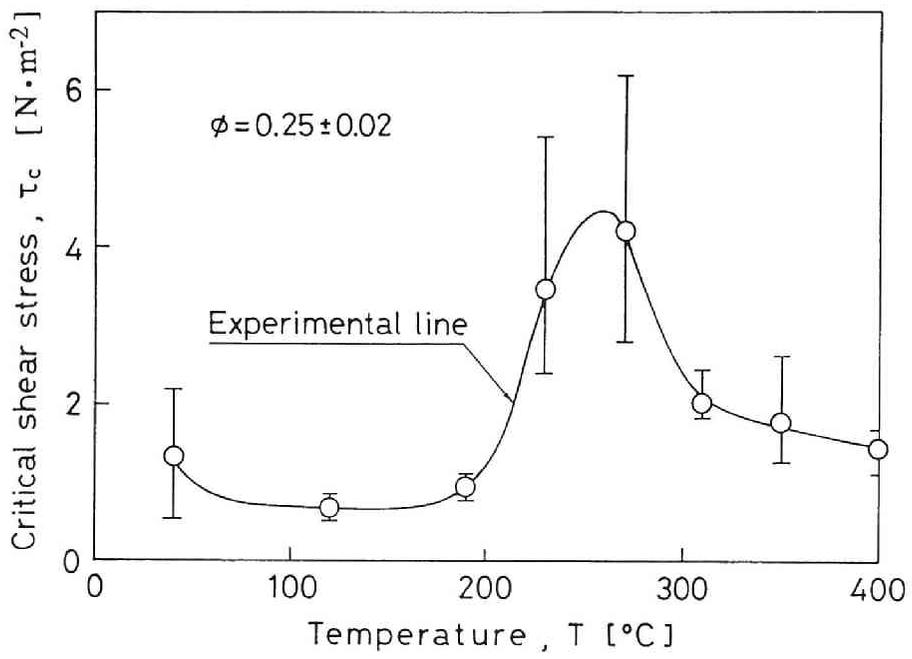


Fig. 3 • 7 Effect of temperature on critical shear stress

ールス力が支配的であると考え、温度依存性について検討する。

2 球間のファン・デル・ワールス力  $F_v$  は次式で与えられる。

$$F_v = - \frac{A d_p}{12 z^2} \quad (3 \cdot 4)$$

ここで、 $A$  は Hamaker 定数、 $d_p$  は換算粒径 ( $= D_{p1} D_{p2} / (D_{p1} + D_{p2})$ )、 $z$  は接触部位における表面間距離である。ファン・デル・ワールス力が温度により変化する原因のひとつとして、Hamaker 定数の変化が考えられる。Hamaker 定数は普通、真空中における同じ物質 (物質 1) どうしの付着に対する値  $A_{11}$  として求められていることが多いが、異なる物質 (物質 1 と物質 2) の間に水など (媒体 3) を保持する場合には近似的に次式で求めることができる<sup>9)</sup>。

$$A_{132} = (\sqrt{A_{11}} - \sqrt{A_{33}}) (\sqrt{A_{22}} - \sqrt{A_{33}}) \quad (3 \cdot 5)$$

また、同一物質間で媒体を保持する場合には次の近似式で与えられる<sup>9)</sup>。

$$A_{131} = (\sqrt{A_{11}} - \sqrt{A_{33}})^2 \quad (3 \cdot 6)$$

ファン・デル・ワールス力はもともと分子間に働く力であり、相互ポテンシャルエネルギーは距離の $-6$ 乗に比例するため、距離が小さくなるほど相互作用は極端に大きくなる。したがって、粒子間の場合には接触部位の相互作用が支配的であるといえる。前述のとおり、200 °C でもある程度の水分子が粒子間に保持されていることを考慮して、Hamaker 定数の影響について検討する。フライアッシュのような種々の成分からなる物質の Hamaker 定数は明らかになっていないが、Table 3・1 に示すように、Lifshitz の理論から得られた各成分の Hamaker 定数<sup>9)</sup>の加重平均値を用いると、 $A_{11} = 1.15 \times 10^{-19} \text{ J}$  が得られる。一方、水の Hamaker 定数は  $A_{33} = 4.38 \times 10^{-20} \text{ J}$  であるので、Eq. (3・6) から  $A_{131} = 1.69 \times 10^{-20} \text{ J}$  が得られる。いま、200 °C から 260 °C にかけて水分子が離脱して、 $A_{131}$  から  $A_{11}$  に徐々に移行すると考えるとファン・デル・ワールス力は約 7 倍になり、Fig. 3・7 の傾向が説明できる。

次に、260 °C を超えると付着力が減少する傾向について考察する。Fig. 3・6 に示したように、400 °C の高温になると粒子表面粗さが増すことが確認されており、この原因は低融点・低沸点成分の散逸によるものと考えられるが、これら成分は極微量であり Hamaker 定数への影響は無視できる。

Table 3・1 Hamaker constant for fly-ash

Approximate composition component	Mass percentage [%]	Hamaker constant $A_{11} \times 10^{20}$ [J]
SiO <sub>2</sub>	60	8.55
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	30	15.5
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5	23.2
CaO	3	12.4
MgO	2	10.6
Average		11.5

一方、粒子表面粗さ  $b$  を考慮したファン・デル・ワールス力  $F_{vb}$  は近似的に次式で与えられる<sup>2,3)</sup>。

$$F_{vb} = \frac{z^2}{(z+b)^2} F_v \quad (3 \cdot 7)$$

仮に、粒子表面粗さが 260 °C で粒径の 1/250、400 °C で 1/150 とし、 $z=0.4$  nm、 $D_p=1.8$   $\mu$ m、 $A=1.15 \times 10^{-19}$  J を用いると、Eq. (3・7) による 260 °C のファン・デル・ワールス力は  $1.5 \times 10^{-10}$  N であり、400 °C では  $5.6 \times 10^{-11}$  N となり約 1/3 に減少する。また、ここで求めた粒子間付着力は Fig. 3・4 で示した値とほぼ等しい。以上のように 260 °C を超えると飛散しやすくなる現象もファン・デル・ワールス力の変化によりほぼ説明できる。

## 結 言

40°C~400 °C の範囲で、フライアッシュの再飛散に関する実験的検討を行い、以下の結論が得られた。

- 1) 粒子間付着力の温度依存性を考慮すれば、高温においても飛散限界気流せん断応力は Rumpf の粉体層引張破断強度と対応する。
- 2) 飛散限界気流せん断応力を用いて飛散現象を検討した結果、200 °C まで

は比較的飛散しやすく、温度が上昇するにつれて飛散しにくくなり、260℃を超えると再び飛散しやすくなることがわかった。

3) 高温での付着力は主にファン・デル・ワールス力によるものであり、200℃から260℃にかけて飛散しにくくなるのは、粒子間の吸着水分子の離脱による Hamaker定数の変化を考慮することにより、また、260℃を超えると再び飛散しやすくなるのは、粒子表面の粗さの増加を考慮することにより定性的に説明できる。

## 使用記号

$A$	= Hamaker定数	[ J ]
$b$	= 一次粒子の表面粗さ	[ m ]
$C$	= B E T 定数	[ - ]
$D_e$	= 流路の相当直径	[ m ]
$D_p$	= 一次粒子径	[ m ]
$d_p$	= 一次粒子の換算直径	[ m ]
$F$	= 粒子間付着力	[ N ]
$F_v$	= ファン・デル・ワールス力	[ N ]
$F_{vb}$	= 粒子表面粗さを考慮したファン・デル・ワールス力	[ N ]
$I$	= 検出管との接触帯電による発生電流	[ A ]
$T$	= 温度	[ °C ]
$\bar{u}_c$	= 飛散開始流速	[ m · s <sup>-1</sup> ]
$v$	= 単位乾き粉体質量あたりの吸着水分量	[ - ]
$v_m$	= 単位乾き粉体質量あたりの単分子吸着水分量	[ - ]
$z$	= 粒子表面間距離	[ m ]
$\mu$	= 空気粘度	[ k g · m <sup>-1</sup> · s <sup>-1</sup> ]
$\nu$	= 空気動粘度	[ m <sup>2</sup> · s <sup>-1</sup> ]
$\rho$	= 空気密度	[ k g · m <sup>-3</sup> ]
$\sigma_t$	= 粉体層引張破断強度	[ N · m <sup>-2</sup> ]

$\tau_c$  = 飛散限界気流せん断応力 [N · m<sup>-2</sup>]  
 $\phi$  = 粒子充てん率 [-]

## 引用文献

- 1) 荒川正文：材料, 30, 878 (1981)
- 2) Czarnecki and T.Dabros : *J.Colloid Interface Sci.*, 78, 25 (1980)
- 3) Czarnecki,J. and V.Itschenskij : *J.Colloid Interface Sci.*, 98, 590 (1984)
- 4) Masuda,H., T.Komatsu and K.Iinoya : *AIChE J.*, 22, 558 (1976)
- 5) 増田弘昭, 三井直広, 井伊谷鋼一：化学工学論文集, 3, 457 (1977)
- 6) Otsuka,A., K.Iida, K.Danjo and H.Sunada : *Chem.Pharm.Bull.*, 31, 4483 (1983)
- 7) 大島敏男, 廣田満昭, 森下弘之, 有本健司：粉体工学会誌,19 ,703 (1982)
- 8) Rumpf,H. : *Chemie.Ing..Techn.*, 42, 538 (1970)
- 9) Visser,J. : *Advan.Colloid Interface Sci.*, 3, 331 (1972)

## 第4章 付着強度分布を考慮した非定常再飛散モデル

### 緒言

第2章と第3章では、付着強度と分離強度の応力バランスを基礎とする再飛散機構に基づいて飛散現象の解析を行ってきた。特に、第3章では常温だけでなく高温においても実験から得られた飛散限界気流せん断応力が  $R_{umpf}$  の粉体層引張破断強度と対応し、粒子間付着力の解析に適用できることがわかった。微粉体層からの気流による粒子の再飛散は、飛散開始流速を超えるとランダムかつ連続的であることが確認されたが、飛散フラックスについては検討していなかった。1.1で述べたように、飛散フラックスの変動は工程管理上の問題だけではなく濃度条件によっては粉塵爆発の可能性もあり、きわめて危険なことでもある。また、分級・分散などの単位操作の性能低下やサンプリング誤差の原因にもなるため、飛散フラックスを予測するための数学的モデルを立てることは重要な課題といえよう。これまで検討してきた再飛散機構モデルは再飛散の限界値について解析するものであって、飛散フラックスを解析するものではないため、新たに幾つかの項目について検討しなければならない。粒子の付着力は再飛散の重要な影響因子であるが、付着力には広い分布が存在することが報告されており<sup>1,2,10)</sup>、分布の状態が飛散フラックスに影響を与えると推測される。また、一定流速において再飛散が継続する現象については定常的な力のバランスだけでは説明できないため、Cleaverら<sup>3)</sup>は流体の時間的空間的変動（乱流バースト）の概念を導入した。また、Braatenら<sup>2)</sup>は飛散の経時変化を解析するために、乱流バーストの概念を引用してモンテカルロ法による数値計算を行った。一方、Reeksら<sup>7)</sup>は付着粒子が気流によって受けるエネルギーと粒子の付着ポテンシャルエネルギーとをバランスさせるモデルを提案し、Wenら<sup>8)</sup>は分子の脱理現象と同様のモデルを用いた。Wenらのモデルは、飛散現象の経時変化に関する基礎式ならびに解析結果において、Reeksらのものと類似しているところが多い。なお、これらのモデルは定常流において一次粒子が壁面から再飛散する現象を取り扱っており、非定常流を含めた凝集粒子の再飛散現象を解析するときに

は適用できない。

本章では、飛散フラックスの経時変化を予測するために、微粉体層内の付着強度分布、凝集粒子の飛散に伴う粉体層表面の更新効果および飛散の時間的な遅れを考慮した非定常再飛散モデルを立て、実験結果との比較検討を行う。

## 4. 1 非定常再飛散モデル

### 4. 1. 1 付着強度分布

再飛散機構モデルおよび実験の解析結果から、飛散限界気流せん断応力が飛散凝集粒子と粉体層との付着強度の指標になりえることが確かめられたため、ここでは、飛散限界気流せん断応力を用いて付着強度を検討する。これまで、飛散限界気流せん断応力は粉体種と充てん率により定まる粉体層の代表値として取り扱ってきたが、飛散開始流速に達すると急にすべての粒子が飛散するというのではなく、厳密には平均流速に対して幅があることを考慮しなければならない。飛散限界気流せん断応力の分布は、粒子径、粒子形状、粒子の表面粗さなど一次粒子にかかわる物理的要因や粒子表面の化学的・静電的要因の他に粒子接触部の表面間距離、粒子配位数、接触状態など粒子の充てん構造にかかわる要因のそれぞれの分布が組み合わさった結果として生じるものと考えられる。浅川ら<sup>1)</sup>やZimon<sup>10)</sup>は、一次粒子と壁面との付着力が対数正規分布で表されることを実験的に示し、Reeksら<sup>7)</sup>やWenら<sup>8)</sup>は同様の付着力分布を仮定して一次粒子の再飛散現象を解析した。

いま、飛散限界気流せん断応力  $\tau_c$  に対数正規分布を仮定すると、粉体層表面に気流せん断応力  $\tau_c$  が十分な時間働いたとき、 $\tau_c$  以下の付着強度に対応する凝集粒子はすべて飛散することになるため、飛散率  $\gamma(\tau_c)$  は飛散限界気流せん断応力の累積分布関数に相当する。すなわち、

$$\gamma(\tau_c) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \int_0^{\tau_c} \exp \left\{ -\frac{(\ln \tau_c - \ln \tau_{c50})^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right\} d(\ln \tau_c) \quad (4 \cdot 1)$$

ここで、 $\tau_{c50}$  と  $\sigma_g$  は、それぞれ飛散限界気流せん断応力の中位値と幾何標準偏差である。

管内壁面に粉体層が流体力学的に滑らかな状態（粉体層の表面粗さが粘性底層内）にあるときの粉体層表面の摩擦係数の算出にBlasiusの実験式を適用すると  $\tau_c$  は流路の平均流速  $\bar{u}$  の関数として次式で与えられる。

$$\tau_c = 0.0396 \rho (v / D_e)^{1/4} \bar{u}^{7/4} \quad (4 \cdot 2)$$

粉体層表面の飛散率  $\gamma$  は Eqs. (4・1)、(4・2) から平均流速  $\bar{u}$  の関数として次式のように表すことができる。

$$\gamma(\bar{u}) = \frac{(7/4)}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \int_0^{\bar{u}} \frac{1}{\bar{u}} \exp \left\{ -\frac{(7/4)^2 (\ln \bar{u} - \ln \bar{u}_{50})^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right\} d\bar{u} \quad (4 \cdot 3)$$

Eq. (4・3) を用いて計算した結果の代表例を Fig. 4・1 に示す。飛散率  $\gamma$  が対数正規分布に基づいて増加する様子が確認できる。

#### 4. 1. 2 粉体層表面更新モデル

粉体層表面から微小な凝集粒子が再飛散すると、飛散粒子に覆われていた内部の粒子が粉体層表面に露出する。新たに露出した部分にも飛散率  $\gamma$  に基づいて飛散の可能性が生じるため、モデル的には粉体層表面が階層的に更新されていくことになる。このときの概念図を Fig. 4・2 に示す。粉体層表面が  $n$  回更新されたとき、それぞれの飛散率を積算すると次式が得られる。

$$\Gamma(n) = \sum_{s=1}^n \gamma^s = \gamma(1 - \gamma^n) / (1 - \gamma) \quad (4 \cdot 4)$$

飛散が完了したときの  $\Gamma(n \rightarrow \infty)$  は  $\gamma < 1$  であるので次式となる。

$$\Gamma(n \rightarrow \infty) = \gamma / (1 - \gamma) \quad (4 \cdot 5)$$

Eq. (4・5) に Fig. 4・1 で示した飛散率  $\gamma$  を当てはめた結果を Fig. 4・3 に示す。同図は、付着強度の小さい部分から飛散が進行していく非正常飛散過程を示しており、 $\Gamma(n \rightarrow \infty)$  は平均流速とともに大きくなることがわかる。Fig. 4・1 と比較すると粉体層表面更新モデルの飛散傾向は明らかに異なり、平均流速が大きくなると粉体層表面から粉体層内部に向かう侵食が多く

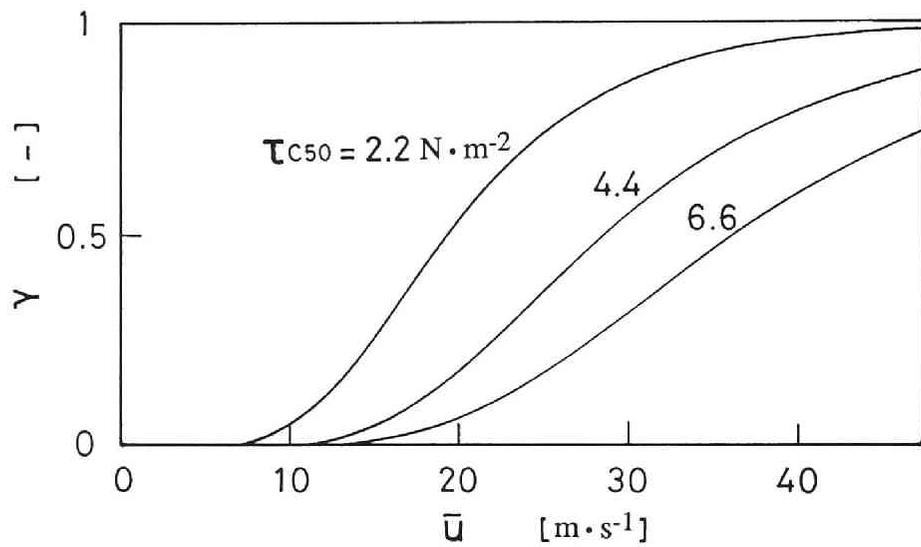


Fig. 4 • 1 Reentrainment efficiency  $\gamma$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$  (Eq. (4 • 3) ,  $\sigma_g = 2.0$ )

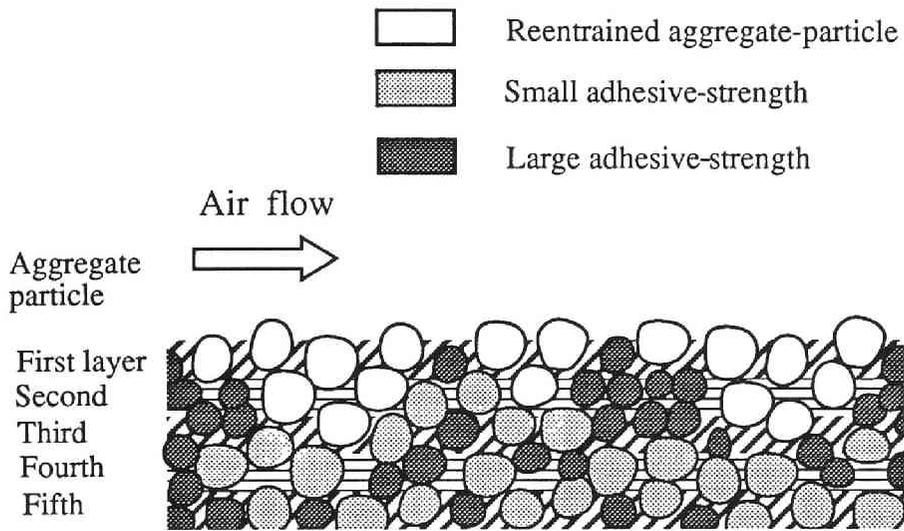


Fig. 4 • 2 Concept of the surface renewal of a powder layer

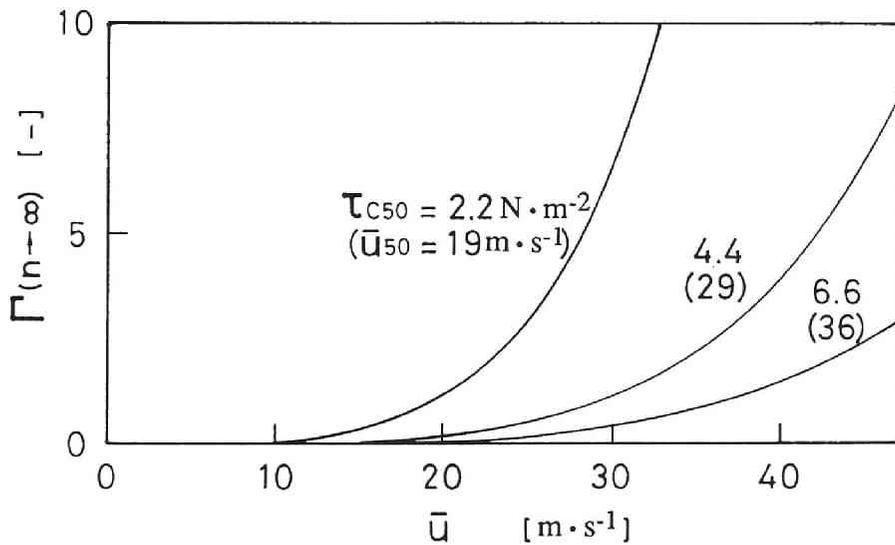


Fig. 4 • 3  $\Gamma(n \rightarrow \infty)$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$   
 (Eqs.(4 • 3) , (4 • 5)  $\sigma_g = 2.0$ )  
 (Effect of surface renewal)

なるため、飛散量が加速的に増加する。単位面積あたりの飛散可能量  $W/A_p$  は定義より  $\Gamma(n \rightarrow \infty)$  と比例関係にあり次式で表される。

$$W/A_p = k \Gamma(n \rightarrow \infty) = k \gamma / (1 - \gamma) \quad (4 \cdot 6)$$

なお、飛散率  $\gamma$  が平均流速  $\bar{u}$  の関数であることから、 $W$  も  $\bar{u}$  の関数となる。

#### 4. 1. 3 飛散の時間的な遅れ

再飛散現象は粒子の付着強度と分離強度に支配されるため、それぞれの強度が変動しないなら分離強度が付着強度を超える条件において瞬時に飛散が完了することになる。しかし、Fig. 4・4に示すように粘性底層内の気流は時間的空間的変動（乱流バースト）を伴うことが報告されており<sup>3)</sup>、周期的に粉体層表面の微小部分に対して現われる大きな分離強度が瞬時の飛散とは別に時間的な遅れを伴う飛散を生じさせると考えられる。このときの飛散の概念図をFig. 4・5に示す。1周期の乱流バーストによる面積占有率  $\eta_B$  と乱流バーストが発生した部分で実際に飛散する確率（飛散率  $\gamma$  と同じ）とを用いると、このときの粉体層表面の飛散率は  $\eta_B$  と  $\gamma$  の関数で与えられる。Table 4・1は、乱流バーストに対応して新たに生じる飛散率を粉体層の階層毎に示したものである。m回目の乱流バーストでn階層が飛散する割合、すなわち行列(m, n)の飛散率は  ${}_{m-1}C_{n-1} (1 - \eta_B)^{m-n} (\eta_B \gamma)^n$  で表わされる。同図の矢印は飛散の進行経路を示しており、経路の数は  ${}_{m-1}C_{n-1}$  となる。したがって、一定時間（m回×乱流バーストの発生周期  $\Delta t$ ）経過したときの全飛散率は次のようになる。

$$\begin{aligned} \Gamma_B(m) &= \sum_{n=1}^m \left\{ \sum_{s=1}^n {}_{n-1}C_{s-1} (1 - \eta_B)^{n-s} (\eta_B \gamma)^s \right\} \\ &= \sum_{n=1}^m \eta_B \gamma (1 - \eta_B + \eta_B \gamma)^{n-1} \\ &= \gamma \{ 1 - (1 - \eta_B + \eta_B \gamma)^m \} / (1 - \gamma) \quad (4 \cdot 7) \end{aligned}$$

また、 $\Gamma_B(m \rightarrow \infty) = \gamma / (1 - \gamma)$  を基準にしたときの飛散率  $R(t)$  は次のようになる。

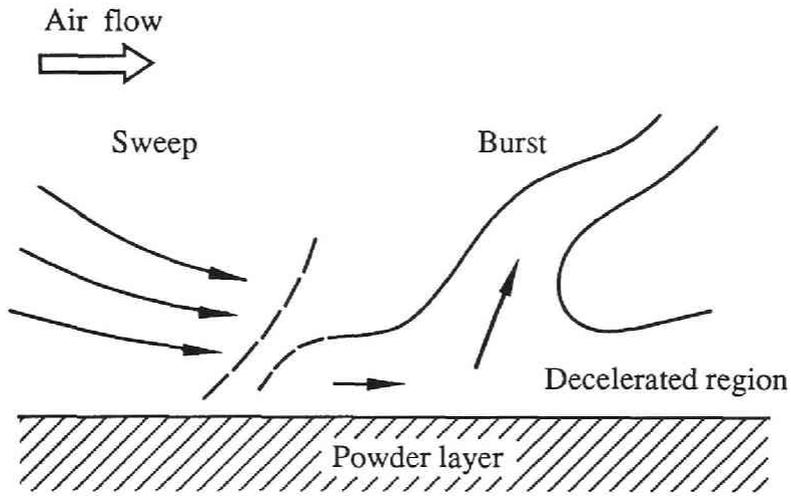


Fig. 4 • 4 Schematic representation of turbulent burst process

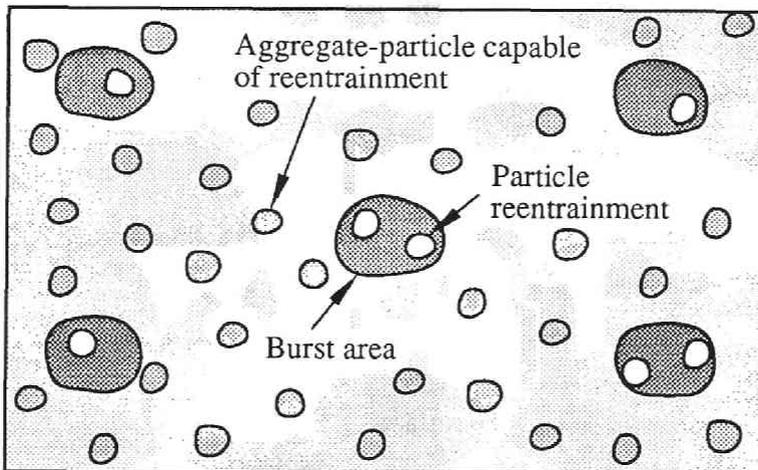


Fig. 4 • 5 Schematic representation of particle reentrainment from the surface of a powder layer caused by turbulent burst

Table 4 • 1 Renewal model on reentrainment efficiency

Burst	Hierarchical reentrainment renewal				
	n = 1	n = 2	n = 3	n = 4	n = 5
m = 1	$(\eta_B \gamma)$				
m = 2	$(1-\eta_B)(\eta_B \gamma)$	$(\eta_B \gamma)^2$			
m = 3	$(1-\eta_B)^2(\eta_B \gamma)$	$2(1-\eta_B)(\eta_B \gamma)^2$	$(\eta_B \gamma)^3$		
m = 4	$(1-\eta_B)^3(\eta_B \gamma)$	$3(1-\eta_B)^2(\eta_B \gamma)^2$	$3(1-\eta_B)(\eta_B \gamma)^3$	$(\eta_B \gamma)^4$	
m = 5	$(1-\eta_B)^4(\eta_B \gamma)$	$4(1-\eta_B)^3(\eta_B \gamma)^2$	$6(1-\eta_B)^2(\eta_B \gamma)^3$	$4(1-\eta_B)(\eta_B \gamma)^4$	$(\eta_B \gamma)^5$
•	•	•	•	•	•
•	•	•	•	•	•
m = m	• • • •	${}_{m-1}C_{n-1}(1-\eta_B)^{m-n}(\eta_B \gamma)^n$	• • • •	• • • •	• • • •

$\eta_B$  : burst area / unit area of surface

$\gamma$  : reentrainment efficiency

$$\begin{aligned}
 R(t) &= \frac{\Gamma_B(m)}{\Gamma_B(m \rightarrow \infty)} = 1 - (\eta_B + \eta_B \gamma)^{t/\Delta t} \\
 &= 1 - \exp\left(-\frac{t}{T}\right)
 \end{aligned}
 \tag{4 \cdot 8}$$

ただし、 $T$  は次式で定義される飛散時定数である。

$$T = -\Delta t / \ln(1 - \eta_B - \eta_B \gamma) \tag{4 \cdot 9}$$

#### 4. 1. 4 非定常飛散フラックスの理論式の導出

平均流速  $\bar{u}$  を設定値まで徐々に増加させるときの非定常飛散フラックスについて検討する。4. 1. 3では、乱流バーストによる飛散の時間的な遅れについて述べたが、実際には、乱流バーストによる比較的大きな気流の変動要因を差し引いた後でも、微小な気流変動が壁面近傍のせん断流に残ると予想される。微小な変動にも Eq. (4 \cdot 8) に準じた遅れを伴う飛散現象が現われると考えられるため、飛散時定数の異なる2種類の飛散について検討する必要がある。すなわち、乱流バーストによる長い遅れの飛散とせん断流の微小変動による短い遅れの飛散である。これらのことを考慮して、飛散フラックス  $J(t)$  を次のように定義する。

$$J(t) = J_S(t) + J_L(t) \tag{4 \cdot 10}$$

ここで、 $J_S$  と  $J_L$  はそれぞれ短い遅れの飛散フラックス（時定数は  $T_S$ ）と長い遅れの飛散フラックス（時定数は  $T_L$ ）である。

平均流速を  $\bar{u}(t=0)=0$  から一定加速度  $\alpha = d\bar{u}/dt$  で変化させるときには付着強度分布に基づき平均流速の増加にともなって新たに飛散の可能性が生じる。時刻  $t'$  に始まり  $t'+dt'$  までの間に発生した飛散可能量の増加分  $dW(t')$  は次式で表される。

$$dW(t') = \alpha \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} dt' \tag{4 \cdot 11}$$

この増加分に対して直ちに時間的な遅れを伴う飛散が始まるが、増加分  $dW(t')$  はこのときの飛散フラックス  $J_e(t, t')$ （以下、成分飛散フラックスという）と次の関係にある。

$$dW(t') = A_p \int_{t'}^{\infty} J_e(t, t') dt \quad (4 \cdot 12)$$

ただし、 $J_e(t, t')$  は

$$J_e(t, t') = J_0(t') r(t - t') \quad (4 \cdot 13)$$

Eq. (4 · 13) 中の  $J_0(t')$  は Eqs. (4 · 11)、(4 · 12) より、

$$J_0(t') = \frac{\alpha}{A_p T} \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} dt' \quad (4 \cdot 14)$$

Eq. (4 · 13) 中の  $r(t - t')$  は Eq. (4 · 8) の  $t$  を  $t - t'$  に置き換えて微分することにより、

$$r(t - t') = \exp \frac{(t - t')}{T} \quad (4 \cdot 15)$$

時刻  $t$  における飛散フラックスは、時刻  $t'$  ( $0 \leq t' \leq t$ ) の成分飛散フラックスに対して重ね合わせの原理を用いることにより求められる。飛散可能量のうち短い遅れの飛散が現われる割合を  $a$  ( $0 < a < 1$ ) とすると  $J_S(t)$ 、 $J_L(t)$  はそれぞれ次のように表すことができる。

$$J_S(t) = \frac{a \alpha}{A_p T_S} \int_0^t \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(t - t')}{T_S} dt' \quad (4 \cdot 16)$$

$$J_L(t) = \frac{(1-a) \alpha}{A_p T_L} \int_0^t \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(t - t')}{T_L} dt' \quad (4 \cdot 17)$$

ここで、 $dW(\bar{u}) / d\bar{u}$  は Eq. (4 · 6) から次のように誘導される。

$$\frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} = \frac{k A_p}{(1 - \gamma)^2} \frac{d\gamma}{d\bar{u}} \quad (4 \cdot 18)$$

また、Eqs. (4 · 16)、(4 · 17) を平均流速の関数として表わすと次のようになる。

$$J_S(\bar{u}) = \frac{a}{A_p T_S} \int_0^{\bar{u}} \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(\bar{u} - \bar{u}')}{\alpha T_S} d\bar{u}' \quad (4 \cdot 19)$$

$$J_L(\bar{u}) = \frac{1-a}{A_p T_L} \int_0^{\bar{u}} \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(\bar{u} - \bar{u}')}{\alpha T_L} d\bar{u}' \quad (4 \cdot 20)$$

したがって、気流が加速度  $\alpha$  で増加するときの飛散フラックスは Eq. (4・16) と (4・17) の和あるいは Eq. (4・19) と (4・20) の和として求められることになる。

なお、平均流速  $\bar{u}$  を加速度  $\alpha$  で増加させたのち一定流速  $\bar{u}_0$  に保ったときの飛散フラックスは Eq. (4・16)、(4・17)、(4・19)、(4・20) の  $dW(\bar{u})/d\bar{u}$  を、流速  $\bar{u}_0$  に達した時点からゼロと置くことにより求められる。

#### 4. 1. 5 定常流における飛散フラックスの数値計算

気流を加速しているときには飛散可能量が時間とともに増えるため、飛散フラックスも増加することになるが、加速を停止して一定流速に保った場合、飛散可能量がそれ以上増加しなくなるため、飛散フラックスは時間の経過とともにしだいに減少してゼロに漸近する飛散プロフィールを示すことになる。ここで、この飛散プロフィールを統一的に評価するため、気流の加速を停止して定常流に保持した瞬間の飛散フラックス  $J_0$  を用いて無次元化した飛散フラックス  $J/J_0$  を定義する。なお、Eq. (4・16)、(4・17) で表わされる飛散フラックスは、 $dW(\bar{u})/d\bar{u}$  をゼロとした瞬間からそれぞれの時定数に基づく指数関数の積算値のみが残るため、 $J/J_0$  は次式に示すような簡単な指数関数で表すことができる。

$$J/J_0 = a' \exp \frac{-t}{T_s} + (1 - a') \exp \frac{-t}{T_L} \quad (4 \cdot 21)$$

ここで、 $a'$  は次式に示すように、気流の加速を停止して定常流に保持した瞬間の全飛散フラックスに対する短い遅れの飛散フラックスの割合である。

$$a' = J_{s0} / J_0 = J_{s0} / (J_{s0} + J_{L0}) \quad (4 \cdot 22)$$

$J_{s0}$  および  $J_{L0}$  はそれぞれ Eq. (4・19)、(4・20) の変数  $\bar{u}$  に  $\bar{u}_0$  を代入することにより求められる。 $a'$  の変化については後で述べるが、気流の加速度  $\alpha \rightarrow 0$  の極限で  $a' = a$  となる。

Fig. 4・6 (a)、(b)、(c) は Eq. (4・21) による無次元飛散フラックスの代表的な計算結果であり、Fig. 4・1 で示した飛散率  $\gamma$  と平

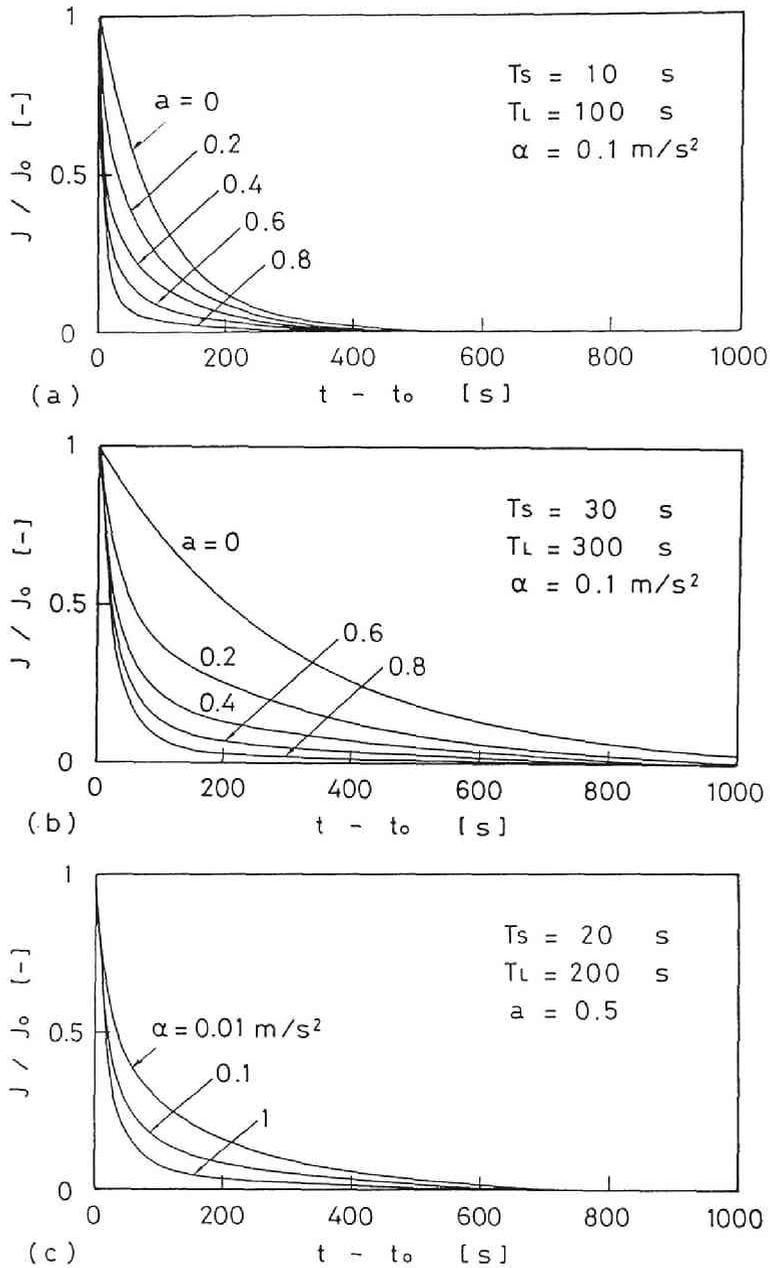


Fig. 4 • 6 Variation of dimensionless reentrainment flux  $J/J_0$  with elapsed time  $t$   
(model estimation ;  $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $\sigma_g = 2.0$ ,  
 $\bar{u}_0 = 30 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) (See Fig. 4 • 11)

均流速  $\bar{u}$  の関係を Eqs. (4・16)、(4・17) に適用した。(a)、(b) は気流加速度  $\alpha = 0.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$  のときの計算結果であり、短い遅れの飛散が現われる割合  $a$  が大きくなるほど加速を停止した直後に飛散フラックスが急速に減少する傾向が現れている。(a) と (b) ではそれぞれ時定数が異なる例を示しており、時定数の増加により飛散の継続時間が長くなる様子がわかる。(c) は所定の流速に達するまでの気流加速度  $\alpha$  をパラメータにしており、 $\alpha$  が大きくなると飛散フラックスが急速に低下する様子がわかる。これは、気流が加速状態にあるときには、短い遅れの飛散フラックスの方が長い遅れの飛散フラックスより大きくなることに起因している。すなわち、Eq. (4・21) の  $a'$  は気流加速度の増加とともに大きくなる。Fig. 4・7 は  $a'$  を Eq. (4・22) に基づいて計算した結果である。同図に示すように気流加速度  $\alpha = 0$  のときには  $a' = a$  であるが、 $a'$  は気流加速度の増加とともに大きくなる。ただし、その変化の割合は徐々に小さくなる。

#### 4. 2 実験装置および方法

実験装置の概略を Fig. 4・8 に示す。コンプレッサから供給される空気中には多くの水分が含まれているが、冷凍式ドライヤおよびミストセパレータにより水分を分離除去し、相対湿度を16~38%の範囲に保った。気流速度の調節にはマスフローコントローラ（ヘイスティング社製HFC-150）を使用しており、パソコン制御により任意の流速および気流加速度が得られるが、本実験では平均流速を一定の割合で増加させ、所定の流速に達すると飛散が完了するまでその条件で保持した。デジタル信号による平均流速の最小制御単位は  $0.03 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  である。テスト部は断面  $3 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 、長さ  $400 \text{ mm}$  の矩形流路であり、この流路内に  $300 \text{ mm}$  の助走区間を設けて粉体充てんセルを設置した。セルの粉体充てん部の形状は、深さ  $1 \text{ mm}$  の長円形 ( $7 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ ) である。微粉体層表面の飛散状況は、実体顕微鏡に接続したビデオモニターなどを用いて観察した。また、微粉体層から飛散した粒子は静電気式検出器に高速吸引され、検出管（ステンレス製、内径  $2.8 \text{ mm}$ 、長さ  $120 \text{ mm}$  のS字管）との接触帯電により発生する電流を検流計で連続測定した。

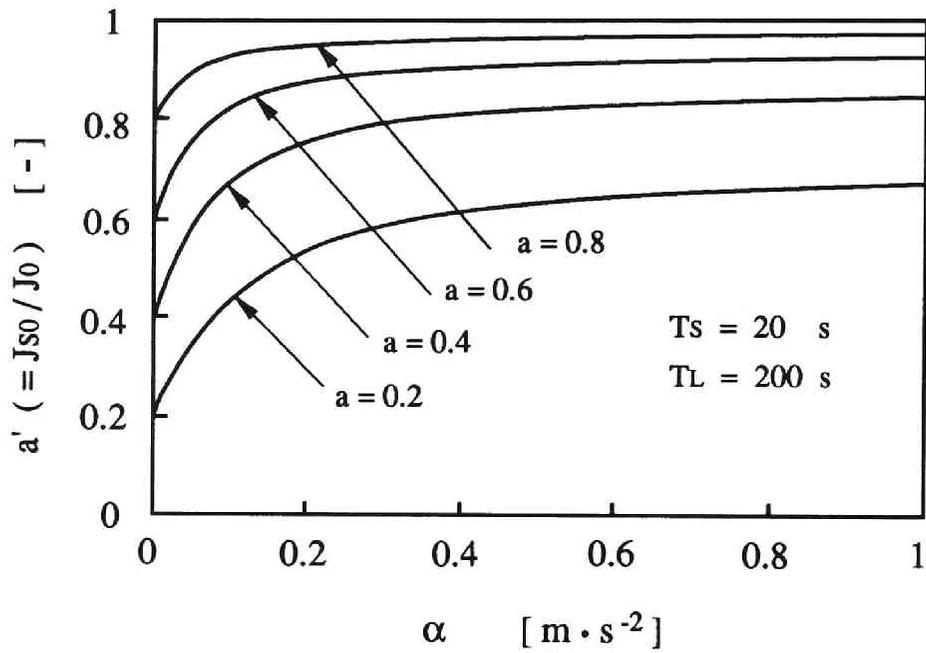


Fig. 4 • 7 Ratio of reentrainment flux with short time delay  $J_{S0}$  to total flux  $J_0$  as a function of air acceleration  $\alpha$  (model estimation ;  $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $\sigma_g = 2.0$ ,  $\bar{u}_0 = 30 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )

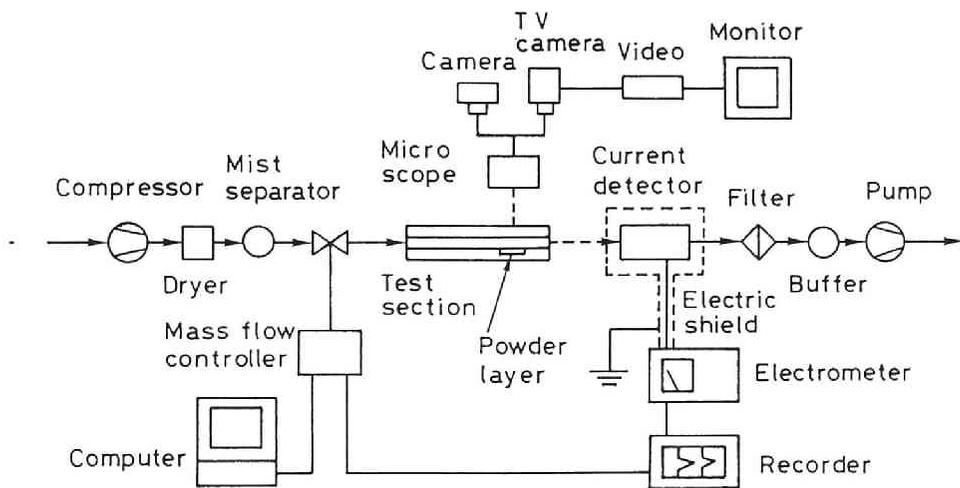


Fig. 4 • 8 Experimental apparatus

試料粉体には、試験用ダスト10種（JIS Z-8901、フライアッシュ；粒子密度  $\rho_p = 2.39 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 、質量中位径  $D_{p50} = 3.0 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差  $\sigma_{pg} = 2.14$ ）を使用した。粉体層の表面は流路内壁面と同じ高さであり、粉体層の表面粗さは粘性底層の範囲内であった。粉体層は充てん率  $\phi = 0.36 \pm 0.02$  であり、110℃で12時間乾燥したのち飛散実験に使用した。

### 4. 3 実験結果および考察

#### 4. 3. 1 飛散量と付着強度分布

平均流速  $\bar{u}$  に対する単位面積あたりの飛散量  $W/A_p$  の実験結果を Fig. 4・9 に示す。飛散量は流速とともに増加するが、気流加速度による影響はほとんど見られない。これは、各流速において飛散が完了するまで保持したためであり、飛散量（飛散可能量に相当）は流速のみによって決定されるといえる。なお、顕微鏡に接続したビデオによる観察から、粒子の飛散はこれまでの再飛散実験と同様に粉体層表面からランダムに起こり、飛散による侵食は粉体層内部に徐々に進行していくことが確認された。また、同一粉体層表面の飛散の進行過程を顕微鏡写真で比較した結果、流速の増加とともに微少な凝集粒子が飛散していき、 $40 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  以上では粉体層表面がほぼ完全に更新されていることが確認された。ただし、粉体層表面の粗さについては基本的な変化は見られなかった。

次に、実験結果と再飛散モデルを比較するため Eqs. (4・3)、(4・6) による計算結果を Fig. 4・9 の実線および破線で示す。破線は、飛散限界気流せん断応力の中位値  $\tau_{c50}$  に関して  $\pm 15\%$  の誤差範囲を示しているが、実験結果のバラツキの範囲はほぼ2本の破線の間にある。このバラツキは微粒子の初期充てん状態のわずかな違いによるものと考えられる。さらに、実験結果の平均値に対して Eq. (4・2) により飛散限界気流せん断応力  $\tau_c$  を、Eq. (4・6) の逆算により飛散率  $\gamma$  を求め、Fig. 4・10 の対数正規分布線図に表すと直線関係が得られることがわかる。なお、飛散率  $\gamma$  は Eq. (4・1) のところで述べたように  $\tau_c$  の累積分布関数に相当する。同図の

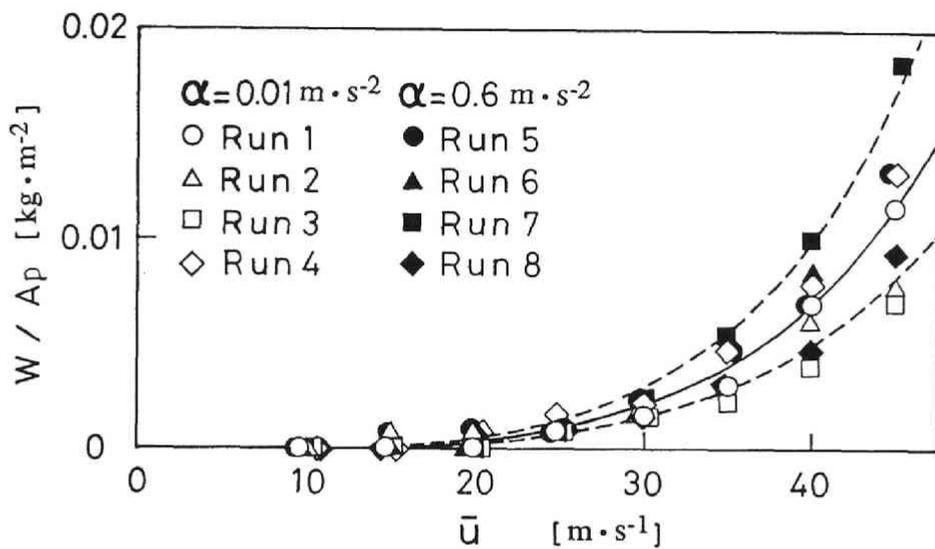


Fig. 4·9 Mass of reentrained particles per unit area  $W/A_p$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$  (Eq.(4·6),  $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ )  
 -----  $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $\sigma_g = 2.0$   
 -----  $\tau_{c50} = 3.8, 5.0 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $\sigma_g = 2.0$

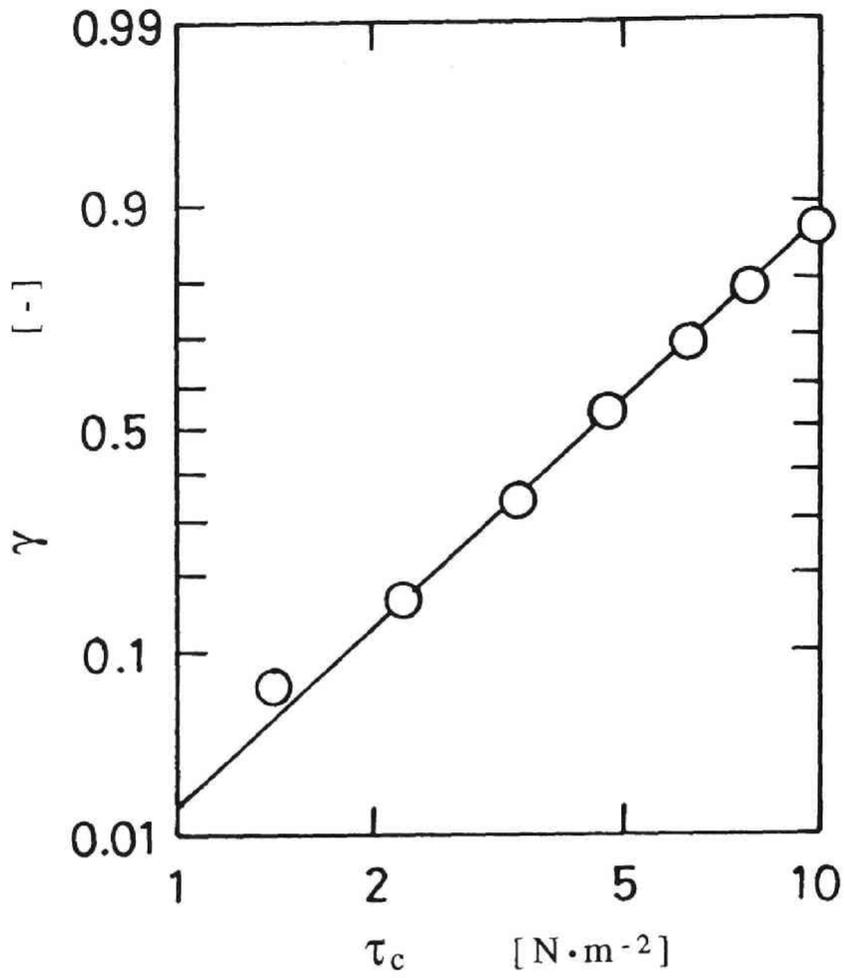


Fig. 4 • 10 Relationship between reentrainment efficiency  $\gamma$  and critical wall shear stress  $\tau_c$   
 (Eq.(4 • 6) ,  $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ )

実線は  $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$  ( $\bar{u}_c = 29 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) で、 $\sigma_g = 2.0$ である。

以上の結果から、微粉体層を構成する仮想凝集粒子の付着強度は対数正規分布で表現でき、理論的に検討した粉体層表面更新モデルにより飛散可能量の推定が可能であることがわかった。

#### 4. 3. 2 飛散フラックス

平均流速を一定の割合で増加させて所定の流速に達したのち、その条件で保持したときの飛散状況を、静電気式飛散粒子検出器で測定した発生電流をもとに解析する。

発生電流の経時変化の一例を平均流速の変化とともに Fig. 4・11 に示す。発生電流のパルスの高さは、3、2、1で述べたように飛散フラックスに対応する。気流を加速している範囲では発生電流は増加し、気流の加速を停止した直後に急速に低下しはじめ、その後は緩やかに減少する。気流の加速条件および設定流速により発生電流値は異なるが、基本的な変化の傾向はいずれの場合も同じであった。

次に、気流の加速を停止して所定の流速に保った後に見られる飛散フラックスの経時変化について検討する。Fig. 4・12 に気流の加速を停止したときの飛散フラックスを基準にして無次元化した結果を示す。無次元飛散フラックス  $J/J_0$  は時間が経過するにつれて減少し、10～20分ではほぼ飛散が完了する。また、気流の加速度が大きくなるほど加速を停止した直後の  $J/J_0$  は急速に減少する傾向を示す。ここで、実験結果と再飛散モデルに基づく飛散フラックスの経時変化とを比較検討する。Fig. 4・12 の実線および破線で示すように、再飛散モデルに基づく計算結果は実験結果とよく一致することがわかる。なお、計算に用いた二つの時定数  $T_S$ 、 $T_L$  および短い遅れの飛散が現われる割合  $a$  を Table 4・2 に示す。 $T_S$  は気流加速度  $\alpha$  が増加すると減少する傾向にある。しかし、 $\alpha$  の大きな変化にもかかわらず同表に示すように  $\alpha \times T_S$  の値は  $0.6 \sim 1.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  の範囲に収まる。したがって、 $T_S$  は近似的に次式で表される。

$$T_S = c / \alpha \quad (4 \cdot 23)$$

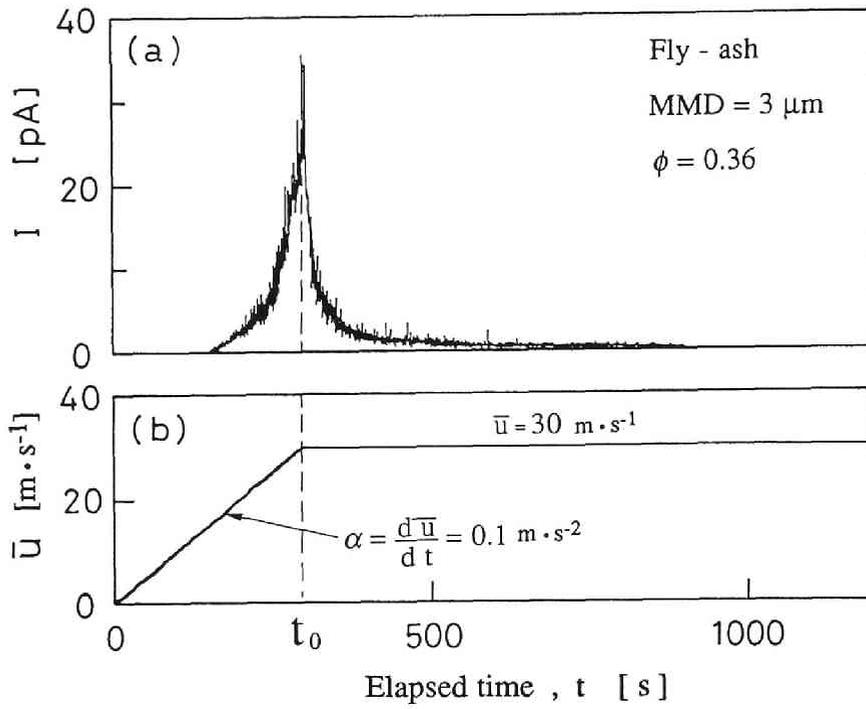


Fig. 4 • 11 (a) Current generated by reentrained particles  
(b) Average air velocity

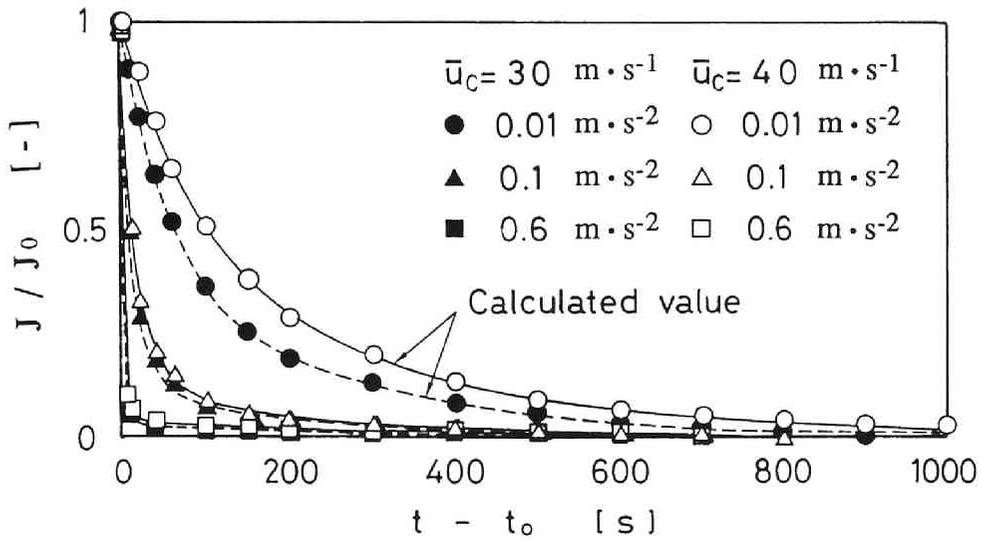


Fig. 4 • 12 Dimensionless reentrainment flux  $J/J_0$  as a function of time elapsed after stopping air velocity increase

Table 4 • 2 Experimentally obtained coefficients

$\bar{u}$ [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ]	$\alpha$ [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ ]	$T_S$ [s]	$T_L$ [s]	$a$ [-]	$\alpha T_S$ [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ]
30	0.01	55	250	0.55	0.6
	0.1	16	200	0.70	1.6
	0.6	2.0	250	0.60	1.2
40	0.01	90	300	0.50	0.9
	0.1	18	250	0.70	1.8
	0.6	2.5	250	0.60	1.5

すなわち、短い遅れの飛散時定数には  $c=0.6\sim 1.8\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  程度の微小変動が影響していると考えられる。気流加速度が大きいときには平均流速が大きく変化するため、微小変動値の影響はほとんど無視できるようになり、瞬時飛散の傾向を示すようになる。また、 $T_L$  と  $a$  は多少バラツキがあるが、気流加速度による影響は見られず、 $T_L$  は  $200\sim 300\text{s}$ 、 $a$  は  $0.5\sim 0.7$  の範囲であった。以上の結果から定常流における飛散フラックスの経時変化は、Eq. (4・16) の短い遅れの飛散フラックスと Eq. (4・17) の長い遅れの飛散フラックスの一次結合で説明できることがわかった。

#### 4. 3. 3 従来モデルとの比較

定常流における壁面からの一次粒子の再飛散については Reeksら<sup>7)</sup>、Hallら<sup>4)</sup> および Wenら<sup>8)</sup> によりモデルが提出されている。微粉体層からの再飛散とは機構が異なるが、飛散フラックスの経時変化に関してはモデルの比較が可能である。Reeksら、Hallらは、付着粒子が壁面近傍の気流の微小変動によって受けるエネルギーと粒子の付着ポテンシャルエネルギーとをバランスさせるモデルを提案し、飛散率の経時変化について考察を行っている。このモデルは気体分子の脱離機構の考え方に類似しており、飛散フラックス  $J_L$  に置き換えると次のように表すことができる。

$$J_L = \frac{1}{A_p} \int_0^{\infty} \frac{W(F')}{T(F')} \exp \frac{-t}{T(F')} dF' \quad (4 \cdot 24)$$

ここで、 $F'$  は付着強度に対応する無次元因子である。Eq. (4・24) は飛散可能量が指数関数的に減少することを前提にしているが、4. 1. 3 で検討したように、乱流バーストの周期性から導出できる。Reeksらは付着力に対数正規分布を用いて数値計算を行った結果、飛散率の時間微分値が経過時間  $t$  にほぼ反比例することを報告しており、同様に考えると、Eq. (4・24) は次のように簡略式で表されることになる。

$$J_L \cong \xi_1 t^{-\varepsilon} \quad (\varepsilon \cong 1) \quad (4 \cdot 25)$$

ここで、 $\xi_1$  は定数である。

また、Wenらは再飛散粒子の気中濃度を Reeksらと同様の関係から求めて

おり、その結果を Eq. (4・24) に適用すると次のようになる。

$$J_L \equiv \xi_2 t^{-1} \exp(-t/T) \quad (4 \cdot 26)$$

ここで、 $\xi_2$  は定数である。Eq. (4・26) の特徴は指数関数部にあるが、付着力の分布範囲が広いと時定数  $T$  は大きくなり、 $t/T$  が十分小さいという条件を満足するときには指数関数が 1 になるため Eq. (4・25) に漸近する。Eqs. (4・25)、(4・26) は長時間にわたって飛散が進行するときの過程を表したものであるが、Wenら<sup>9)</sup>は経過時間が比較的短いときの飛散についても検討している。飛散開始後の数分間は比較的付着強度の小さい粒子が境界層内のせん断流れにより飛散し、それ以降は付着強度の大きい粒子が乱流バーストにより飛散すると考えており、初期の飛散フラックス  $J_s$  は次の実験式で表される。

$$J_s \equiv \xi_3 t^{-\varepsilon} \quad (\varepsilon > 1) \quad (4 \cdot 27)$$

Eq. (4・27) は Eq. (4・25) に類似しているが Eq. (4・27) の指数は 1 よりも大きく、飛散開始直後に飛散率が急激に減少するという実験結果を反映している。Fig. 4・13 は実験結果、非定常再飛散モデルによる計算結果 (実線) および Reeksらに基づく Eq. (4・25) の計算結果 (破線) を比較したものである。破線も実験結果とほぼ一致しているように見えるが、Eq. (4・25) は  $t=0$  で飛散フラックスは無限大に発散してしまい、飛散開始直後の飛散フラックスに適合しない。実験結果と計算結果との差は気流加速度が小さくなるほどはっきりと見られるようになる。同様のことは Eqs. (4・26)、(4・27) についてもいえる。以上の検討結果から、4・1 で提案した非定常再飛散モデルは、所定の流速に達するまでの気流の加速度の影響についても考慮されており、定常流に達したあとの飛散フラックスの経時変化を正確に表していることがわかる。本章のまとめとして、平均流速を所定の割合で増加させ、設定した流速に達したあと定常流に保つという運転操作を想定し、非定常再飛散モデルを用いて代表的な条件のもとに飛散フラックスの経時変化を計算した。その結果を Fig. 4・14 に示す。気流を加速しているときには飛散フラックスは時間とともに大きくなるが、加速を停止した直後から飛散フラックスが急激に低下するという特徴的な傾向が確認できる。これらの傾向は Fig. 4・11 の実験結果とよく一

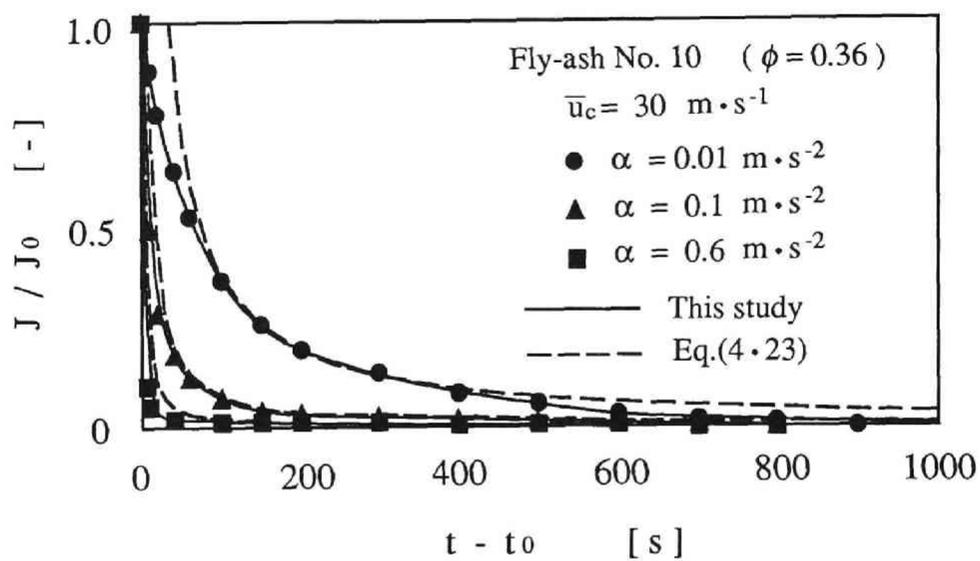


Fig. 4 • 13 Comparison of reentrainment models with experimental data

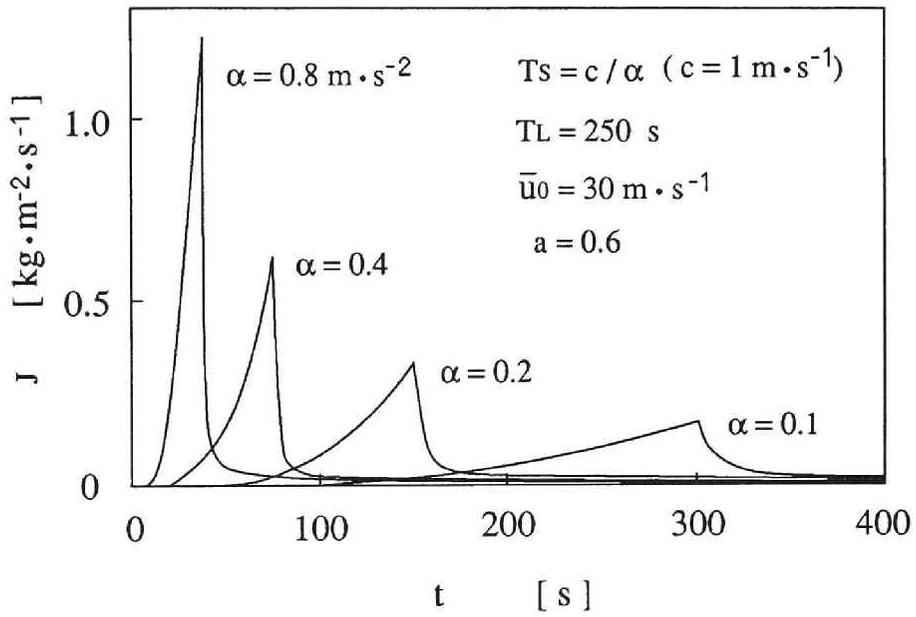


Fig. 4 • 14 Unsteady reentrainment flux as a function of time elapsed (See Fig. 4 • 11)

致している。なお、加速度が大きいと飛散フラックスは大きくなり、瞬時に高濃度のエアロゾルを生成することになるため粉体操作上注意を要する。

## 結 言

微粉体層からの凝集粒子の再飛散現象に対して数学的モデルを立て、実験結果との比較検討を行った結果、以下の結論が得られた。

- 1) 飛散凝集粒子の粉体層との付着強度を飛散限界気流せん断応力で表すとき、付着強度は対数正規分布で近似できる。
- 2) 付着強度分布とここで提案した粉体層表面更新モデルを組み合わせることにより、任意の流速における飛散量を推定することができる。
- 3) 再飛散現象は短い遅れの飛散と長い遅れの飛散から成り、各飛散フラックスはいずれも簡単な指数関数で近似できる。
- 4) 定常流に達するまでの気流加速度は、加速時のみならず定常流での飛散フラックスに対しても影響を及ぼすことが実験で確認されたが、上記再飛散モデルにより、このときの飛散フラックスの経時変化を予測することができる。

## 使用記号

$A_p$	= 粉体層表面積	[ $m^2$ ]
$a$	= $W_s / W$	[—]
$a'$	= $J_{s0} / J_0$	[—]
$c$	= Eq. (4・23) の定数	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$D_e$	= 流路の相当直径	[ $m$ ]
$D_{p50}$	= 質量中位径	[ $m$ ]
$F'$	= 付着強度に対応する無次元因子	[—]
$I$	= 検出管との接触帯電による発生電流	[ $A$ ]
$J$	= 飛散フラックス	[ $kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ ]

$J_e$	= 成分飛散フラックス	$[k g \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}]$
$k$	= Eq. (4・6) の定数	$[k g \cdot m^{-2}]$
$m$	= 乱流バーストの発生回数	$[-]$
$n$	= 粉体層表面の更新回数	$[-]$
$R$	= $\Gamma_B(m) / \Gamma_B(m \rightarrow \infty)$	$[-]$
$r$	= 成分飛散フラックスの経時変化を表す関数 (= $dR / dt$ )	$[-]$
$T$	= 飛散時定数	$[s]$
$t$	= 経過時間	$[s]$
$t'$	= 経過時間 (積分変数)	$[s]$
$\Delta t$	= 乱流バーストの発生周期	$[s]$
$\bar{u}$	= 平均流速 (流路断面)	$[m \cdot s^{-1}]$
$\bar{u}_c$	= 飛散開始流速	$[m \cdot s^{-1}]$
$\bar{u}_{50}$	= $\tau_{c50}$ に対応する平均流速	$[m \cdot s^{-1}]$
$W$	= 飛散可能量	$[k g]$
$\alpha$	= 気流加速度	$[m \cdot s^{-2}]$
$\Gamma(n)$	= 粉体層表面が $n$ 回更新されたときの飛散率 $\gamma$ の積算値	$[-]$
$\Gamma_B(m)$	= $m$ 回乱流バーストが発生したときの飛散率 $\gamma$ の積算値	$[-]$
$\epsilon$	= Eq. (4・25) の定数	$[-]$
$\gamma$	= 飛散率	$[-]$
$\eta_B$	= 1 周期の乱流バーストが粉体総表面を占有する確率	$[-]$
$\nu$	= 空気動粘度	$[m^2 \cdot s^{-1}]$
$\xi_1$	= Eq. (4・25) の定数	$[k g \cdot m^{-2}]$
$\xi_2$	= Eq. (4・26) の定数	$[k g \cdot m^{-2}]$
$\xi_3$	= Eq. (4・27) の定数	$[k g \cdot m^{-2} \cdot s^{\epsilon-1}]$
$\rho$	= 空気密度	$[k g \cdot m^{-3}]$
$\rho_p$	= 粒子密度	$[k g \cdot m^{-3}]$
$\sigma_g$	= 付着強度分布の幾何標準偏差	$[-]$
$\sigma_{pg}$	= 粒子径分布の幾何標準偏差	$[-]$
$\tau_c$	= 飛散限界気流せん断応力	$[N \cdot m^{-2}]$
$\tau_{c50}$	= 付着強度 (飛散限界気流せん断応力) の分布の中位値	$[N \cdot m^{-2}]$

$\phi$  = 粒子充てん率

[—]

添 字

L = 長い遅れの飛散フラックス

S = 短い遅れの飛散フラックス

0 = 気流の加速を停止したときの状態

## 引用文献

- 1) 浅川貞雄, 神保元二 : 材料, 16, 358 (1967)
- 2) Braaten, D. A., K. T. Paw U. and R. H. Shaw : *J. Aerosol Sci.*, 21, 613 (1990)
- 3) Cleaver, J. W. and B. Yates : *J. Colloid Interface Sci.*, 44, 464 (1973)
- 4) Hall, D., J. Reed : *J. Aerosol Sci.*, 20, 839 (1989)
- 5) 生三俊也, 和歌山久男, 増田弘昭 : 化学工学論文集, 12, 589 (1986)
- 6) Kousaka, Y., K. Okuyama and Y. Endo : *J. Chem. Eng. Japan*, 13, 143 (1980)
- 7) Reeks, M. W., J. Reed and D. Hall : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 21, 574 (1988)
- 8) Wen, H. Y. and G. Kasper : *J. Aerosol Sci.*, 20, 483 (1989)
- 9) Wen, H. Y., G. Kasper and R. Udischas : *J. Aerosol Sci.*, 20, 923 (1989)
- 10) Zimon, A. D. : "Adhesion of Dust and Powder" 2nd ed., pp.9-24, Consultants Bureau, New York (1982)

## 第5章 粒子再飛散に及ぼす非定常流（加速流）の影響

### 緒言

前章では、定常流に達するまでの加速流の影響を含め、微粉体層表面からの凝集粒子の再飛散現象を説明する数学的モデルを提出した。このモデルは微粉体層内の付着強度分布、凝集粒子の飛散に伴う粉体層表面の更新効果および飛散の時間的な遅れを考慮しており、気流を加速して所定の流速に達したあとの定常流における飛散フラックスの経時変化を求めることができる。実験結果と比較した結果、本モデルは従来のモデル<sup>1-4)</sup>より良好な一致を示すことが確認された。また、定常流に達するまでの気流加速度が飛散フラックスに対して重要であることがわかった。実際のプロセスでは運転の立ち上げや運転条件の変更で流速を増加させるとき加速流となり、定常流以上に再飛散現象に対して注意が必要なところである。

本章では、同モデルを用いて気流加速時の再飛散現象を詳細に検討するとともに空気加速流による再飛散実験との比較検討を行う。

### 5. 1 非定常再飛散モデルによる気流加速時の数値計算

#### 5. 1. 1 飛散フラックス

第4章で提出した再飛散モデルの基本式について簡単に述べる。飛散凝集粒子の付着強度を飛散限界気流せん断応力  $\tau_c$  で表し、その分布を対数正規で近似する。 $\tau_c$  の計算に必要な摩擦係数の算出に Blasius の実験式を適用すると、付着強度の累積分布関数（飛散率  $\gamma$  に相当）は平均流速  $\bar{u}$  の関数として次式で表される。

$$\gamma(\bar{u}) = \frac{(7/4)}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \int_0^{\bar{u}} \frac{1}{\bar{u}} \exp \left\{ -\frac{(7/4)^2 (\ln \bar{u} - \ln \bar{u}_{50})^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right\} d\bar{u} \quad (5 \cdot 1)$$

ここで、 $\bar{u}_{50}$  は  $\tau_c$  の分布の中位値  $\tau_{c50}$  に対応する平均流速であり、 $\sigma_g$  は

幾何標準偏差である。

微粉体層表面から微小な凝集粒子が再飛散すると、飛散粒子に覆われていた内部の粒子が粉体層表面に露出し、新たに飛散の可能性が増加するが、この粉体層表面更新効果を考慮すると飛散可能量 $W$ は次式で表される。

$$W(\bar{u}) = k A_p \gamma(\bar{u}) / (1 - \gamma(\bar{u})) \quad (5 \cdot 2)$$

ここで、 $k$ は比例定数であり、 $A_p$ は粉体層の表面積である。

また、乱流バーストによる比較的大きな気流変動によると考えられる長い遅れの飛散と粉体層表面近傍のせん断流の微小な変動によると考えられる短い遅れの飛散との2種類が確認されており、飛散フラックス $J$ は次のように定義できる。

$$J(t) = J_S(t) + J_L(t) \quad (5 \cdot 3)$$

$$J_S(\bar{u}) = \frac{a}{A_p T_S} \int_0^{\bar{u}} \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(\bar{u} - \bar{u}')}{\alpha T_S} d\bar{u}' \quad (5 \cdot 4)$$

$$J_L(\bar{u}) = \frac{1 - a}{A_p T_L} \int_0^{\bar{u}} \frac{dW(\bar{u})}{d\bar{u}} \exp \frac{-(\bar{u} - \bar{u}')}{\alpha T_L} d\bar{u}' \quad (5 \cdot 5)$$

なお、第4章では定常流に達した後の飛散フラックスの経時変化に着目したが、気流加速度が変化すると経過時間が一定でも平均流速が異なるため、気流加速度のみの影響が評価できなくなる。したがって、ここでは飛散フラックスを平均流速の関数として評価する。

飛散フラックスの計算に必要な定数は前章の実験結果を引用した。すなわち、試料粉体層（試験用ダスト10種：JIS Z-8901、フライアッシュ、充填率 $\phi = 0.36$ を想定）の飛散凝集粒子の付着強度は対数正規分布で近似でき、分布状態を決めるEq. (5・1)の定数は $\tau_{cs0} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$  ( $\bar{u}_c = 29 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )、幾何標準偏差 $\sigma_g = 2$ とした。飛散可能量の計算では、Eq. (5・2)の比例定数を $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ とした。飛散フラックスの計算に必要なEqs. (5・4)、(5・5)の定数は $a = 0.6$ 、 $T_L = 250 \text{ s}$ 、 $T_S$ は次の実験式を使用した。

$$T_S = c / \alpha \quad (5 \cdot 6)$$

Fig. 5・1に飛散フラックスの計算結果を示す。飛散フラックス $J$ の増加

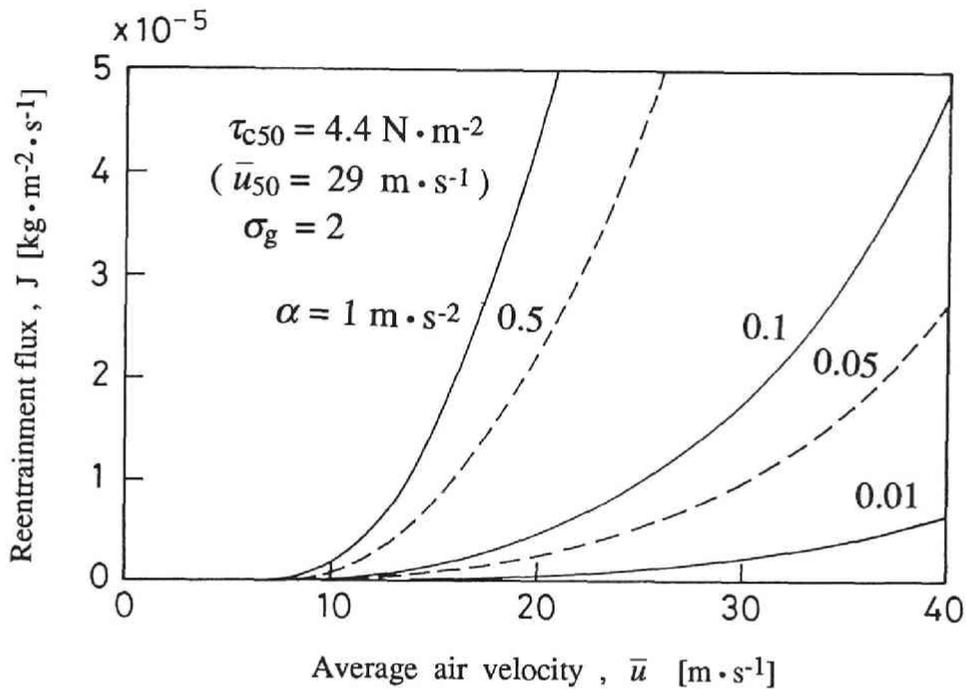


Fig. 5 • 1 Reentrainment flux  $J$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$   
 $(k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}, a = 0.6, T_L = 250 \text{ s}, T_S = \alpha^{-1})$

は平均流速  $\bar{u}$  とともに大きくなるが、これは、粉体層内の付着強度分布と飛散に伴う粉体層の表面更新効果に基づくもので、飛散可能量が平均流速に対して加速的に増加するためである。なお、飛散フラックスは気流加速度とともに単調に増加する。

平均流速に対応する飛散可能量は付着強度分布に依存し、付着強度分布は二つの定数（分布の中位値  $\tau_{c50}$  または  $\bar{u}_{50}$ 、および幾何標準偏差  $\sigma_g$ ）により決定される。これらの定数が飛散フラックスに与える影響について検討する。Fig. 5・2は付着強度分布の中位値  $\tau_{c50}$  ( $\bar{u}_{50}$ ) をパラメータにしたときの計算結果であり、飛散フラックスは中位値が大きくなるにつれて減少する様子がわかる。また、Fig. 5・3は付着強度分布の幾何標準偏差  $\sigma_g$  をパラメータにしたときの計算結果であり、幾何標準偏差が大きくなるにつれて飛散の始まる流速が小さくなる一方、飛散フラックスの流速に対する増加率が減少する様子がわかる。Figs. 5・2、5・3に示したように、本モデルによる飛散フラックスの計算結果は付着強度分布から経験的に予想される傾向と一致する。

次に、気流加速度に対する飛散フラックスの計算結果を対数表示で Fig. 5・4に示す。なお、ここでの計算は気流加速度  $\alpha$  が気流分離力に影響を及ぼさない範囲 ( $\alpha \leq 1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$ ) に限定した。再飛散モデルでは、飛散時定数による飛散の時間的な遅れを考慮しており、Eqs. (5・4)、(5・5) で表したように気流加速度  $\alpha$  は積分内の指数関数中にあるが、Fig. 5・4の計算結果に示されるように、飛散フラックス  $J$  は気流加速度  $\alpha$  にほぼ正比例する。

### 5. 1. 2 飛散開始流速

平均流速を増加させると、ある流速から飛散が連続的に生じるようになる。このときの平均流速を加速流における飛散開始流速  $\bar{u}_c$  と定義する。また、飛散開始流速における飛散フラックスを飛散限界フラックス  $J_c$  と定義する。Fig. 5・5は  $J_c = 2 \times 10^{-6} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  として再飛散モデルにより飛散開始流速を計算した結果である。飛散開始流速  $\bar{u}_c$  は気流加速度  $\alpha$  の増加とともに

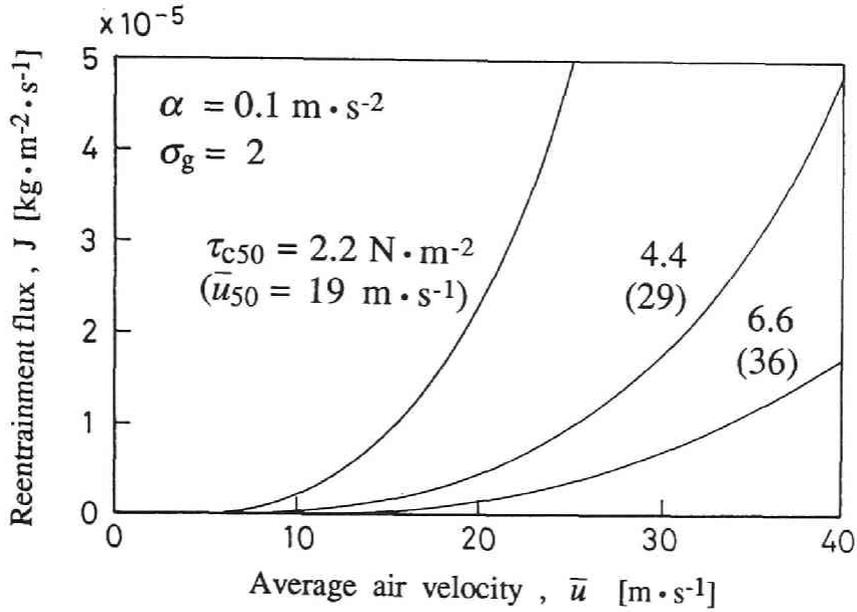


Fig. 5 • 2 Effect of median value of adhesive strength  $\tau_{c50}$  on reentrainment flux  $J$

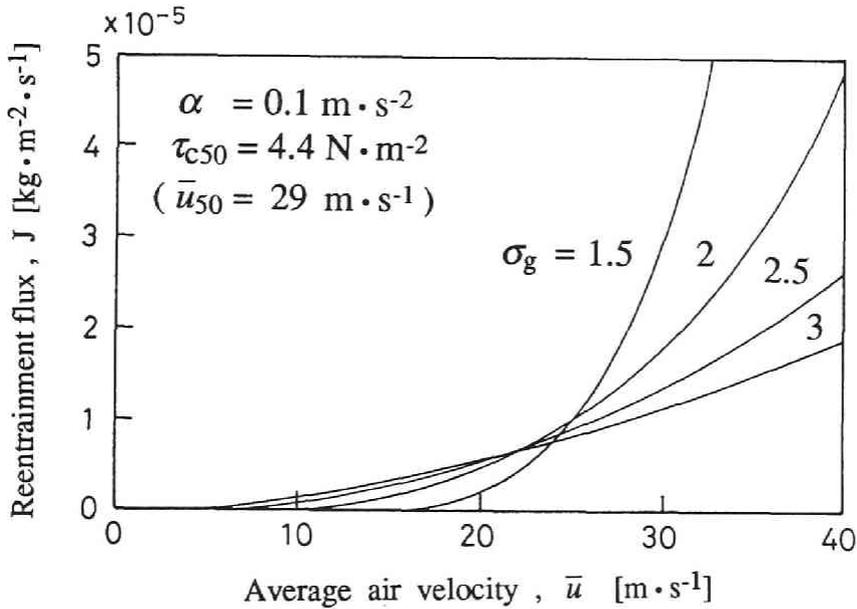


Fig. 5 • 3 Effect of geometric standard deviation of adhesive strength  $\sigma_g$  on reentrainment flux  $J$

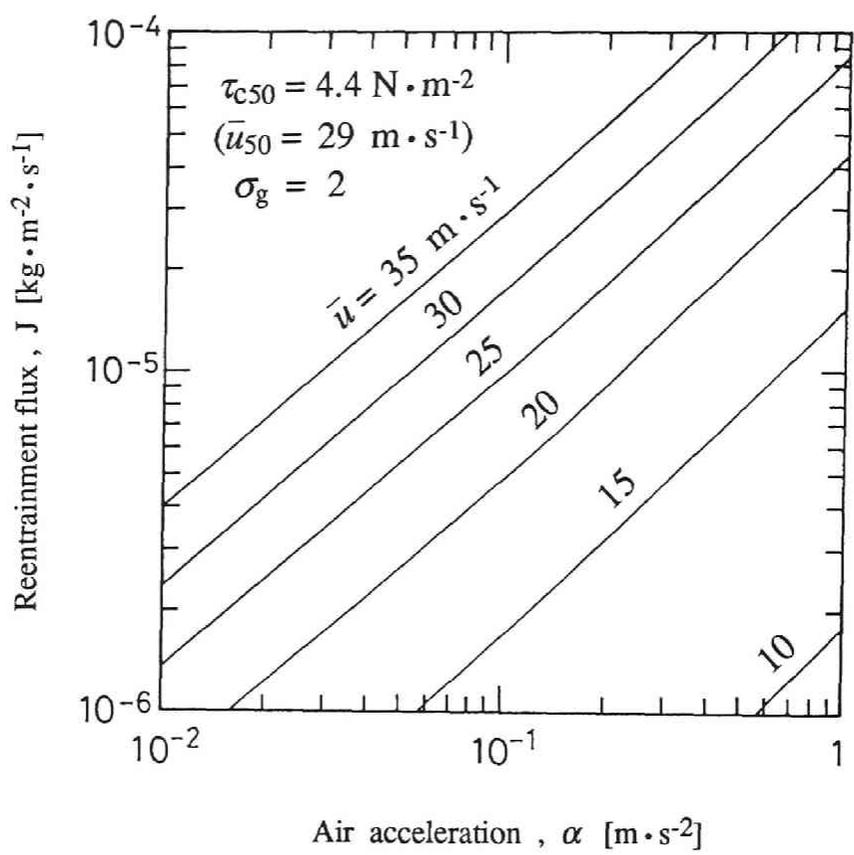


Fig. 5 • 4 Relationship between reentrainment flux  $J$  and air acceleration  $\alpha$

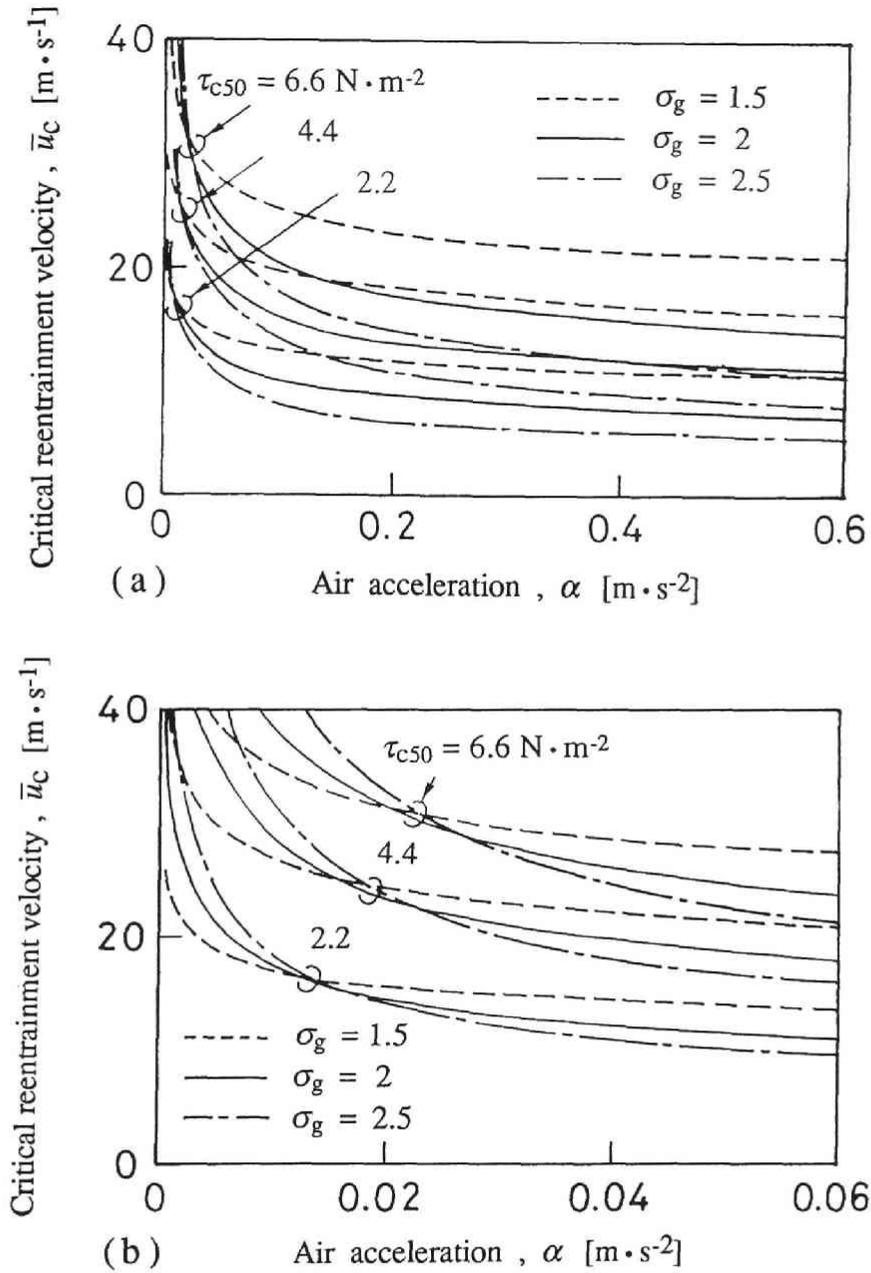


Fig. 5 • 5 Effect of adhesive strength distribution ( $\tau_{c50}$ ,  $\sigma_g$ ) on critical reentrainment velocity  $\bar{u}_c$   
 ( $J_C = 2 \times 10^{-6} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  
 $a = 0.6$ ,  $T_L = 250 \text{ s}$ ,  $T_S = \alpha^{-1}$ )

に低下し、気流加速度が小さいほどこの影響は顕著に現われる。同図には、粉体層の付着強度分布を変化させたときの飛散開始流速の計算結果も示しており、飛散開始流速は粉体層の付着強度分布の中位値  $\tau_{c50}$  とともに単調に増加することがわかる。付着強度分布の幾何標準偏差  $\sigma_g$  が飛散開始流速に及ぼす影響は多少複雑であり、Fig. 5・5(b)の拡大図に示すように、気流加速度の小さい領域では  $\sigma_g$  が増加すると飛散開始流速は大きくなるが、気流加速度の大きい領域では逆に  $\sigma_g$  が増加すると飛散開始流速は小さくなる。

さらに、飛散時定数が飛散開始流速に与える影響について検討する。ここでは、時定数の効果を端的に評価するため、 $T_s = T_L$  として計算した結果を Fig. 5・6 の実線で示す。飛散時定数の増加とともに飛散開始流速は大きくなるが、これは、飛散時定数の増加とともに飛散フラックスが減少するためである。同図の破線は実験結果に基づく条件を代入したときの計算結果であり、Eq. (5・6) の関係が含まれているため、実線に比べて気流加速度に対する飛散開始流速の減少率が大きい。なお、飛散開始流速の近似計算として飛散時定数をゼロにすると、Eqs. (5・4)、(5・5) のたたみ込み積分が不用になり、次式のように計算はかなり簡略化される。

$$J_c = \frac{\alpha}{A_p} \frac{dW(\bar{u}_c)}{d\bar{u}} \quad (5 \cdot 7)$$

Eq. (5・7) から飛散時定数がゼロのときには、飛散フラックスは気流加速度に正比例することがわかる。

## 5. 2 実験装置および方法

再飛散実験装置は前章 (Fig. 4・8 参照) と同じものを使用した。試料粉体は試験用ダスト10種 (JIS Z-8901、フライアッシュ：密度  $\rho_p = 2.39 \times 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 、質量中位径  $D_{p50} = 3.0 \mu\text{m}$ 、幾何標準偏差  $\sigma_{pg} = 2.14$ ) であり、110℃で12時間以上乾燥したのち飛散実験に用いた。

気流は、平均流速ゼロの状態から所定の加速度で増加させ、飛散フラックスは静電気式検出法で連続測定し、検出結果および空気流量の経時変化を記録した。

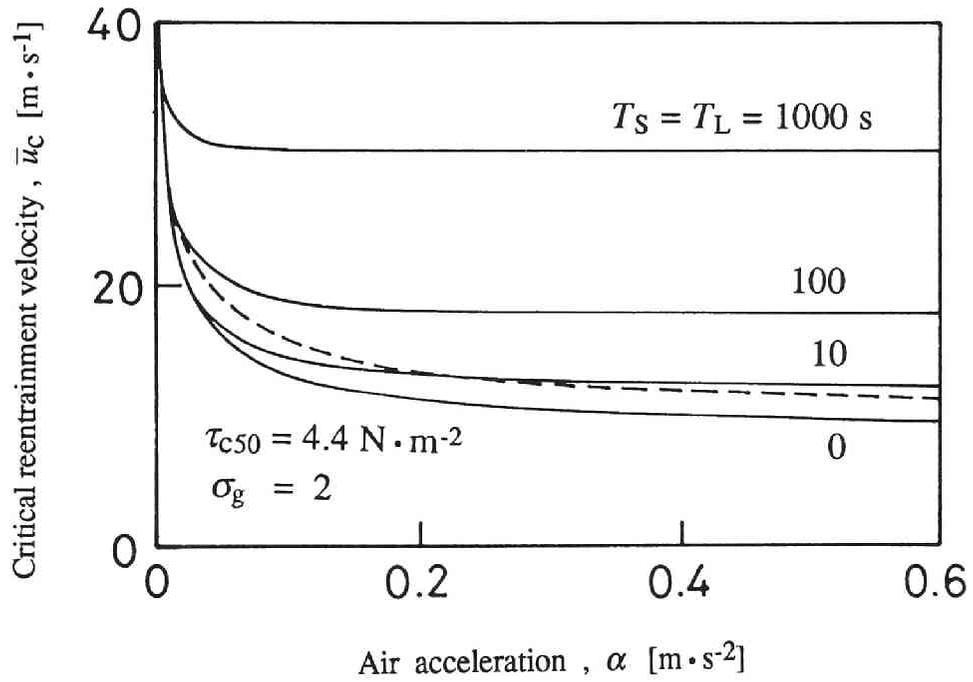


Fig. 5 • 6 Effect of reentrainment time constant  $T$   
 on critical reentrainment velocity  $\bar{u}_c$   
 (-----  $a = 0.6$ ,  $T_L = 250 \text{ s}$ ,  $T_S = \alpha^{-1}$ )

## 5. 3 実験結果および考察

### 5. 3. 1 飛散フラックス

平均流速を所定の割合で増加させたときの飛散フラックスに対応する発生電流の記録結果を Fig. 5. 7 に示す。発生電流は時間の経過とともに増加し、気流加速度が大きいほど短時間に飛散フラックスが増加する傾向がわかる。なお、ここでは気流加速度の異なる結果を同一のグラフで示しているが、実験では気流加速度の大きさに合わせて記録紙の送り速度を調節することも行っており、経時変化に対応する発生電流値を十分読み取ることができる。再飛散モデルでは、飛散フラックス  $J$  を平均流速  $\bar{u}$  の関数として検討しており、実験結果についても同様に飛散フラックスと平均流速との関係を考察する。飛散フラックスは発生電流とほぼ比例関係にあり、比例定数  $h$  は検出器および操作条件によって決定される ( $h = 2 \times 10^6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{A}^{-1}$ )。発生電流の記録結果から求めた飛散フラックスを Fig. 5. 8 に示す。飛散フラックスは平均流速とともに増加し、増加の割合は平均流速とともに大きくなる。また、飛散フラックスは気流加速度の増加によっても大きくなる。図中の実線は、実験パラメータである気流加速度の値を再飛散モデルに代入して得られた計算結果である。実験結果には多少のバラツキが見られるが、飛散フラックスの平均流速に対する増加傾向および気流加速度の影響に対して、再飛散モデルによる推定は実験結果と比較的よく一致している。

### 5. 3. 2 飛散開始流速

加速流の飛散開始流速は、パルス状の発生電流が重なり合って増加しはじめるときの平均流速として実験的に求められる。Fig. 5. 9 に微粉体層の充てん率を実験パラメータにして飛散開始流速と気流加速度の関係を示す。再飛散モデルによる計算結果もそれぞれの充てん率に対応させて実線で示す。微粉体層の充てん率は再飛散モデルの付着強度分布 ( $\tau_{cs0}$  または  $\bar{u}_{50}$ 、および  $\sigma_g$ ) に関係するものであり、充てん率に対応する計算定数を Table 5. 1

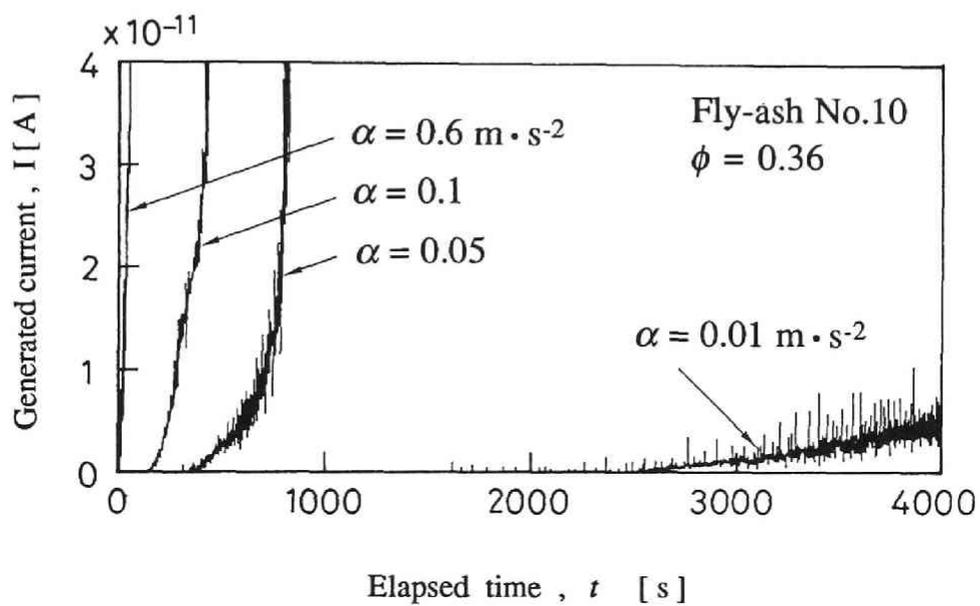


Fig. 5 • 7 Generated current  $I$  as a function of elapsed time  $t$

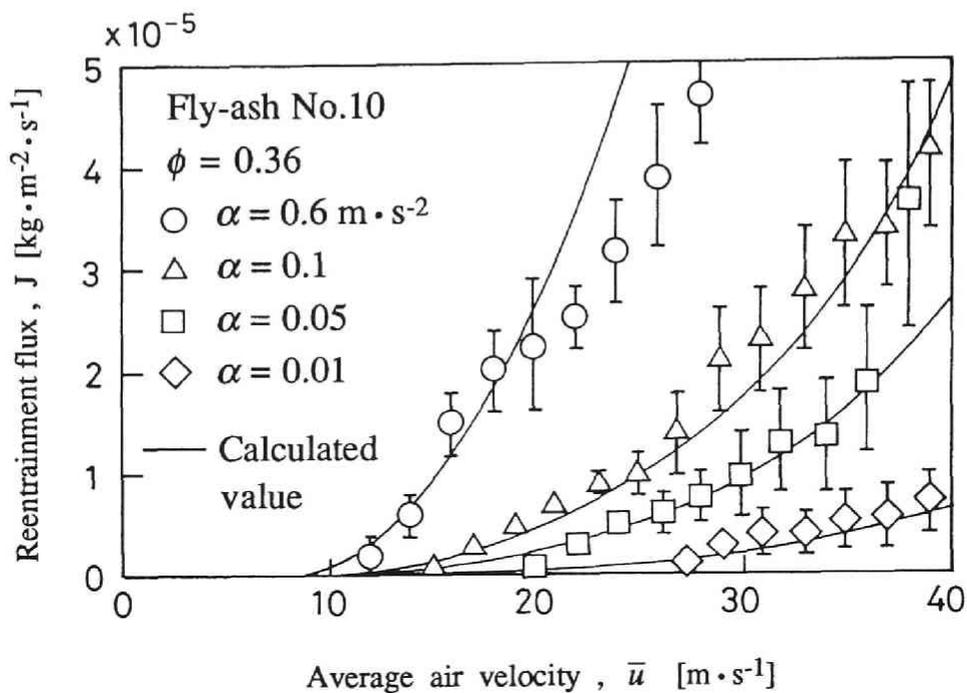


Fig. 5 • 8 Experimental and calculated reentrainment flux  $J$

( [ ] : Range based on the variation of electric pulses,  
 -----  $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $\sigma_g = 2$ ,  $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  
 $a = 0.6$ ,  $T_L = 250 \text{ s}$ ,  $T_S = \alpha^{-1}$ )

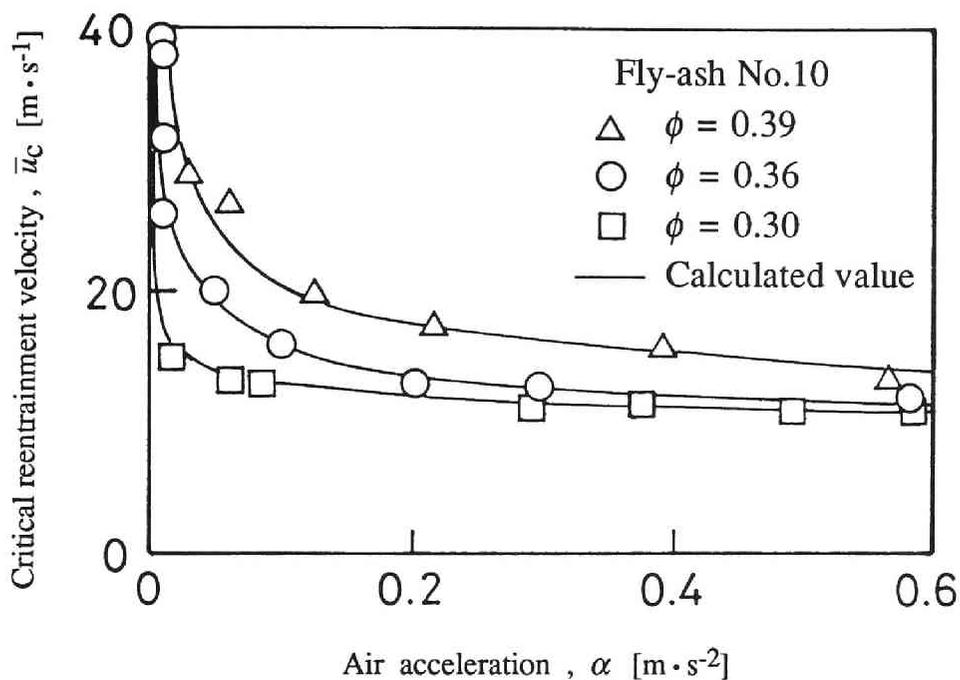


Fig. 5.9 Experimental and calculated critical reentrainment velocity  $\bar{u}_c$   
 (-----  $J_c = 2 \times 10^{-6} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $k = 1.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  
 $a = 0.6$ ,  $T_L = 250 \text{ s}$ ,  $T_S = \alpha^{-1}$ )

Table 5.1 Experimentally obtained coefficients

$\phi$ [-]	$\tau_{c50} [\text{N} \cdot \text{m}^{-2}]$	$\bar{u}_{50} [\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$	$\sigma_g$ [-]
0.39	6.6	36	2
0.36	4.4	29	2
0.30	2.2	19	1.5

に示す。付着強度を表す  $\tau_{c50}$  または  $\bar{u}_{50}$  は、充てん率とともに大きくなっており、充てん率と付着強度に正の相関がみられる。また、付着強度分布の幾何標準偏差  $\sigma_g$  は1.5～2程度である。なお、 $\phi = 0.36$ の付着強度分布は、平均流速に対する飛散量の測定結果を基にして、既に第4章で求めている ( $\tau_{c50} = 4.4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ 、 $\bar{u}_{50} = 29 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $\sigma_g = 2.0$ )。Table 5・1 に示した  $\phi = 0.36$ のときの各定数はこれらの値と同一であり、Fig. 5・9 に示した計算結果は妥当といえる。以上の検討から、飛散開始流速と気流加速度の関係においても、再飛散モデルによる推定と実験結果とがよく一致することが確認された。

## 結 言

空気加速流による微粉体層の再飛散現象について理論的および実験的検討を行った結果、以下の結論が得られた。

- 1) 飛散フラックスは平均流速とともに増加し、増加の割合も流速とともに大きくなる。
- 2) 飛散フラックスは気流加速度にほぼ正比例する。
- 3) 飛散開始流速は気流加速度の増加とともに急激に低下し、一定値に漸近する。
- 4) 再飛散現象に及ぼす上記のような気流加速度の影響は、前章で検討した非定常再飛散モデルにより説明できる。

## 使用記号

$A_p$	= 粉体層表面積	[ $\text{m}^2$ ]
$a$	= $W_s / W$	[—]
$c$	= Eq. (5・6) の定数	[ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ]
$D_{p50}$	= 質量中位径	[ $\text{m}$ ]
$I$	= 検出管との接触帯電による発生電流	[ $\text{A}$ ]

$J$	= 飛散フラックス	$[k g \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}]$
$J_c$	= 飛散限界フラックス	$[k g \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}]$
$k$	= Eq. (5・2) の定数	$[k g \cdot m^{-2}]$
$T$	= 飛散時定数	$[s]$
$t$	= 経過時間	$[s]$
$\bar{u}$	= 平均流速 (流路断面)	$[m \cdot s^{-1}]$
$\bar{u}'$	= 平均流速 (積分変数)	$[m \cdot s^{-1}]$
$\bar{u}_c$	= 飛散開始流速	$[m \cdot s^{-1}]$
$\bar{u}_{50}$	= $\tau_{c50}$ に対応する平均流速	$[m \cdot s^{-1}]$
$W$	= 飛散可能量	$[k g]$
$\alpha$	= 気流加速度	$[m \cdot s^{-2}]$
$\gamma$	= 飛散率	$[-]$
$\rho_p$	= 粒子密度	$[k g \cdot m^{-3}]$
$\sigma_g$	= 付着強度分布の幾何標準偏差	$[-]$
$\sigma_{pg}$	= 粒子径分布の幾何標準偏差	$[-]$
$\tau_c$	= 飛散限界気流せん断応力	$[N \cdot m^{-2}]$
$\tau_{c50}$	= 付着強度 (飛散限界気流せん断応力) の分布の中位値	$[N \cdot m^{-2}]$
$\phi$	= 粒子充てん率	$[-]$
添 字		
L	= 長い遅れの飛散フラックス	
S	= 短い遅れの飛散フラックス	

#### 引用文献

- 1) Hall, D., J. Reed : *J. Aerosol Sci.*, 20, 839 (1989)
- 2) Reeks, M. W., J. Reed and D. Hall : *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 21, 574 (1988)
- 3) Wen, H. Y. and G. Kasper : *J. Aerosol Sci.*, 20, 483 (1989)
- 4) Wen, H. Y., G. Kasper and R. Udischas : *J. Aerosol Sci.*, 20, 923 (1989)

## 第6章 微粒子の沈着・再飛散同時現象

### 緒言

微粉体層からの凝集粒子の再飛散現象については、非定常再飛散モデルによって、かなり厳密に解明することができた。再飛散現象は、付着強度分布、飛散時定数等によって決定され、同モデルにより定常流および加速流の飛散フラックスの経時変化を予測することが可能になった。これまで検討してきた再飛散現象は、あらかじめ形成された微粉体層が再飛散により侵食されていくものであるが、エアロゾル微粒子の沈着が同時に進行する場合もある。沈着現象については Friedlanderの自由飛行モデル<sup>2)</sup>をはじめとして多くの基礎的な研究が行われている<sup>7)</sup>が、その中で再飛散現象を考慮したものはほとんどなく、沈着と再飛散の同時現象の解明が望まれる。なお、これまでに報告された同時現象に関する研究<sup>1,8)</sup>は、一次粒子の沈着と再飛散を対象としており、微粉体層の形成については検討されていない。

本研究では、円管内壁面において乱流沈着と再飛散が同時に進行するとき形成される沈着層に着目し、沈着層の形状、厚さおよび沈着量の経時変化について実験的検討を行う。

### 6.1 実験装置および方法

実験装置の概略を Fig. 6・1 に示す。コンプレッサから供給される圧縮空気は、冷凍式ドライヤおよびミストセパレータで水分が除去され、テスト部では相対湿度が約40% (25 °C) に調整される。微粉体はテーブルフィーダ (三協パイオテク製MF0V-1) により一定の割合で供給され、エジェクタ (日本ピスコ製VHH12-801J) を通して圧縮空気中に混合分散される。本装置では、安定したエアロゾル流を発生させるためにエジェクタを2段にして使用した。エアロゾルは鉛直に設置した円管内 (内径12.5mmまたは6.5mm) を上向きに流れる。円管は3分割でき、内壁面に形成される粉体層の観察および沈着量の測定のためのテスト部は中央に位置する長さ150 mmの区間で、

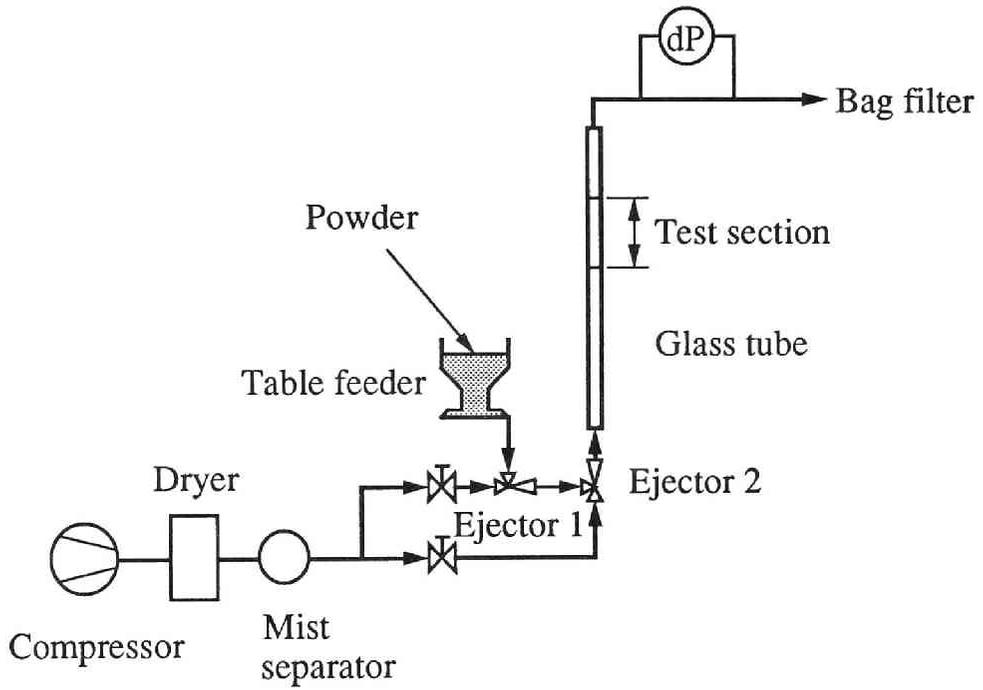


Fig. 6 • 1 Experimental apparatus

テスト部の前後の長さは、それぞれ 430mm、130mm である。また、微粒子の沈着状況を管外から観察できるように透明のガラス管を用いた。エアロゾルの空気流量は差圧法<sup>5)</sup>により求め、粉体の質量供給速度はテーブルフィーダからの排出量を直接測定することにより求めた。沈着量はテスト部を取り外して秤量法により測定した。

試料粉体は、試験用ダスト10種（JIS Z-8901、フライアッシュ：粒子密度 $2.39 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 、質量中位径  $3.0 \mu \text{ m}$ 、幾何標準偏差2.14）であり、 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ で12時間以上乾燥したのち、テスト部を流れる圧縮空気と同じ条件（ $25 \text{ }^\circ\text{C}$ 、相対湿度約40%）で放冷して実験に使用した。なお、試料粉体を入れるテーブルフィーダのホップも同条件に保持されている。

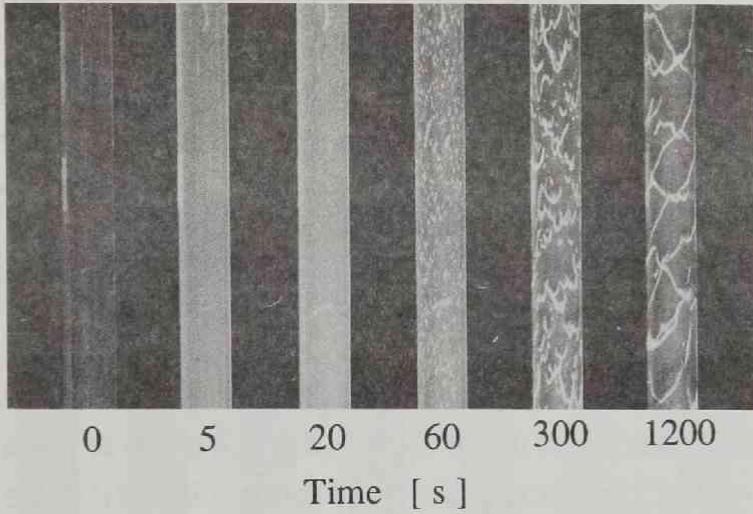
## 6. 2 実験結果および考察

### 6. 2. 1 沈着層の形状

定常エアロゾル流（平均濃度  $c = 0.033 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 、平均流速  $\bar{u} = 12.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ）をガラス管内に通過させたとき形成した沈着層の経時変化の写真を Fig. 6・2（1）に示す。ガラス管の背後は黒色であるため沈着層は白く見える。実験開始直後、流路全面に薄い沈着層が均一に形成されるが、約1分で斑点状の沈着凝集粒子に成長する。数分経過するとガラス表面上に沈着層が形成される部分とそうでない部分とが明確になり、近接する斑点状の沈着凝集粒子が互いにつながる部分が見られるようになる。さらに、沈着層は細長い縞状に変化し、20分後には沈着層の形状はほぼ安定した状態になる。縞状沈着層の凝集粒子幅は1~2mm程度であり、エアロゾルの流れ方向に対してほぼ等間隔に幾つもの沈着層が形成される。なお、縞状沈着層は螺旋状に延びたものは少なく、それぞれ独立して円周方向で閉じたものが多い。また、顕微鏡による観察の結果、沈着層を形成していないガラス表面にも極微量の微粒子が点在して付着していることが確認された。

Fig. 6・2（2）は、予め低流速（ $\bar{u} = 10.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ）で沈着層を形成させた状態から Fig. 6・2（1）と同じ条件でエアロゾルを流したときの経時変化の写真である。沈着層の形状は時間の経過にともなって徐々に変化し続け、

(1) Clean



(2) Pre-deposition ( $\bar{u} = 10.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $C = 0.033 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

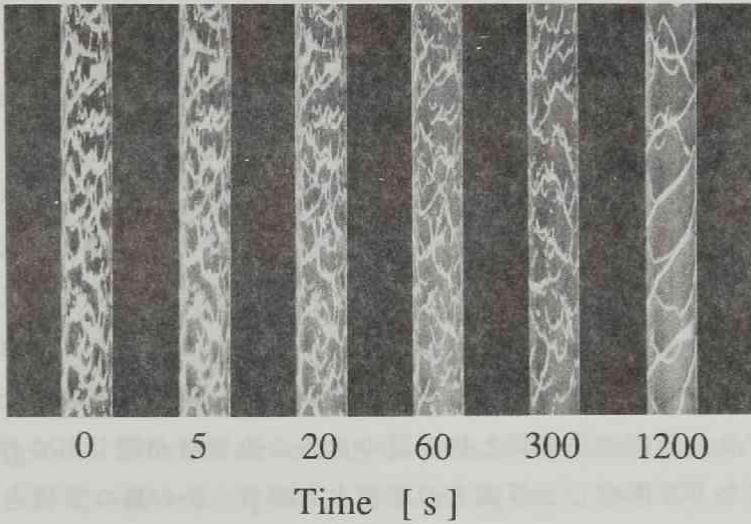


Fig. 6 • 2 Time-dependence of particle-deposition pattern

( $D = 0.0125 \text{ m}$ ,  $\bar{u} = 12.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $C = 0.033 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

20分後には Fig. 6・2 (1) の最終状態とほぼ同じ縞状になることが確認された。したがって、最終的な沈着層の形状はエアロゾル流の条件のみに依存し、初期の沈着層形状には無関係であることがわかる。

エアロゾル流ではなく同一流速 ( $\bar{u}=12.8\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) の空気流で再飛散させたときには、Fig. 6・2 に示した最終的な沈着層の形状は見られず、沈着層の外観は初期の沈着層とほとんど変化がなかった。また、空気流で再飛散させた後に残留している粒子沈着量はエアロゾル流で再飛散させたときに比べて、約3倍多く、エアロゾル流は再飛散を促進する効果があることがわかった。

Fig. 6・3 は、エアロゾル流の平均流速を  $8.1\sim 16.1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の範囲で変化させ、それぞれの条件で20分経過させたときの沈着層の写真である。平均流速が  $8.1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  以下では、沈着層はガラス管内壁のほぼ全面に形成されるが、平均流速の増加とともに沈着層を形成しにくい部分が生じ、縞状の沈着層が形成されるようになる。流れ方向における縞状沈着層の間隔は平均流速とともに広くなるが、平均流速が  $15.1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  になると沈着層は崩壊しはじめ、 $16.1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  以上では沈着層は形成されず極微量の微粒子が内壁に点在する状態となる。

Fig. 6・3 に示した沈着層の状態を定量的に検討するため、単位面積あたりの沈着量  $W/A_w$  と平均流速  $\bar{u}$  の関係を Fig. 6・4 に示す。沈着量は平均流速が大きくなるにつれて減少するが、平均流速が  $10\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  を越えて縞状沈着層を形成するようになるとその変化率は小さくなる。また、これらの写真の画像解析により、内壁面に対する沈着層の面積占有率  $\beta$  を求めた。なお、写真ではガラス管内の手前側と後ろ側の両方の沈着層が写し出されるので、沈着層の重なりを考慮し、写真上の面積占有率  $\beta'$  から真の面積占有率  $\beta$  を算出する必要がある。 $\beta'$  は  $\beta$  と次の関係にある。

$$\beta' = 2\beta - \beta^2 \quad (6\cdot 1)$$

上式を  $\beta$  について解くと次のようになる。

$$\beta = 1 - \sqrt{1 - \beta'} \quad (6\cdot 2)$$

また、ガラス円管の左右両端では沈着層の厚さの影響により面積占有率の誤差が大きくなるため、中心角  $\pm 30$  度の範囲を画像解析の対象とした。沈着層

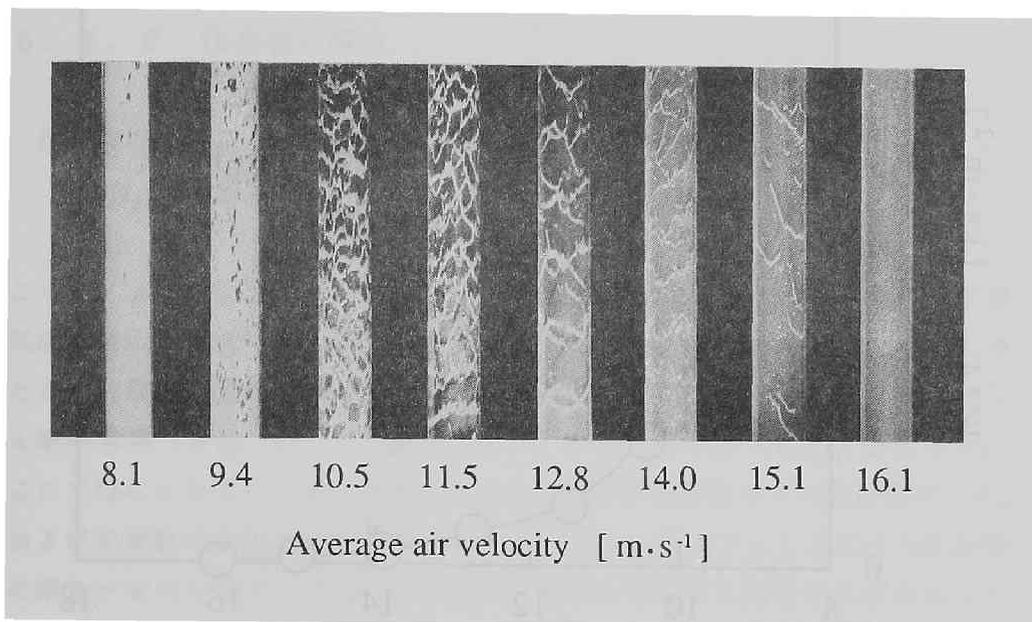


Fig. 6 • 3 Effect of air velocity on particle deposition pattern  
( $D = 0.0125$  m ,  $C = 0.033$  kg · m<sup>-3</sup> ,  $t = 1200$  s)

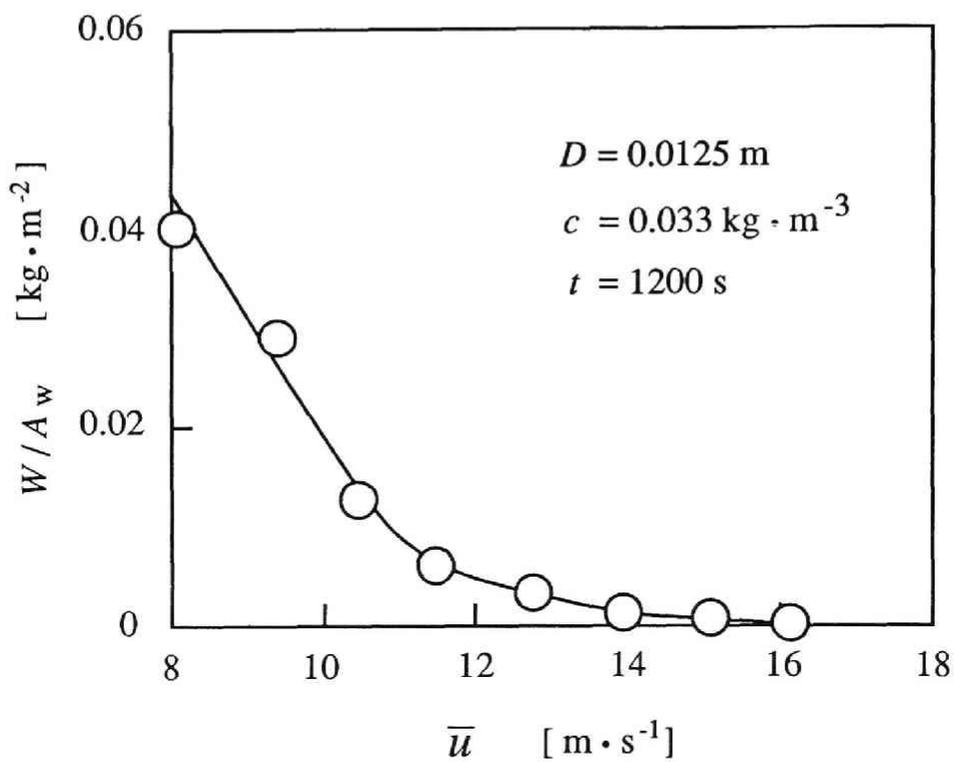


Fig. 6 • 4 Effect of average air velocity  $\bar{u}$  on mass of deposited particles per unit area  $W/A_w$

の面積占有率  $\beta$  と平均流速  $\bar{u}$  の関係を Fig. 6・5 に示す。面積占有率は平均流速が  $9\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  を超えると急激に減少するが、Fig. 6・4 と同様に  $10\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  を超えるとその変化はしだいにゆるやかになる。これらの結果を用いて、沈着層の厚さを以下で検討する。

## 6. 2. 2 沈着層の厚さ

沈着層の厚さ  $\delta_p$  は次式で近似的に表すことができる。

$$\delta_p = \frac{W / A_w}{\rho_p \phi \beta} \quad (6 \cdot 3)$$

ここで、 $\rho_p$  は粒子密度、 $\phi$  は充てん率である。形成された沈着層の定常空気流を用いた再飛散実験により、飛散限界気流せん断応力は  $1.7\text{N}\cdot\text{m}^{-2}$  (このときの飛散開始流速は  $20\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) と求められ、飛散限界気流せん断応力と充てん率の関係 (Fig. 2・12 参照) から、充てん率は  $\phi \approx 0.25$  と推定した。ここで得られた充てん率と実験から得られた単位面積あたりの沈着量  $W / A_w$  および沈着層の面積占有率  $\beta$  を Eq. (6・2) に代入することにより沈着層の厚さが求められる。Fig. 6・6 には管径の異なる 2 種類の結果を示しているが、いずれも沈着層の厚さは実線で示すように平均流速の増加とともに同じ傾向で低下する。また、平均流速が同じときには管径の大きな方が沈着層は厚く、飛散しにくいことがわかる。Fig. 6・6 の実線より次の実験式が得られる。

$$\delta_p = a \exp\left(-\frac{\bar{u}}{b}\right) \quad (6 \cdot 4)$$

ここで、 $a$  と  $b$  は実験定数であり、 $a$  は管径とともに大きくなるが、 $b$  は管径に依存していない。

ところで、飛散限界凝集粒子径が平均流速に対して指数関数的に減少することが、実験結果に基づいて報告されている<sup>3,6)</sup>。本実験結果は、沈着層の厚さが飛散限界凝集粒子径と同様の傾向で変化することを示している。

次に、沈着層の厚さを粘性底層内の気流速度分布に基づいて考察する。粘性底層の厚さ  $\delta_f$  は次式で与えられる<sup>4)</sup>。

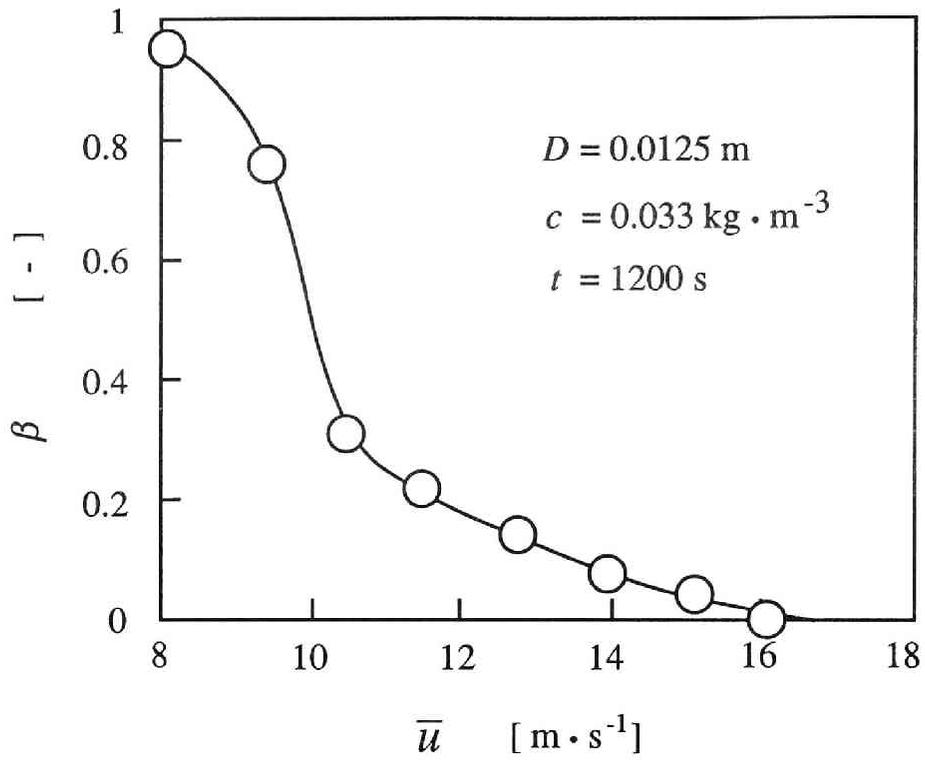


Fig. 6 • 5 Effect of average air velocity  $\bar{u}$  on area fraction  $\beta$  of deposited particle layer

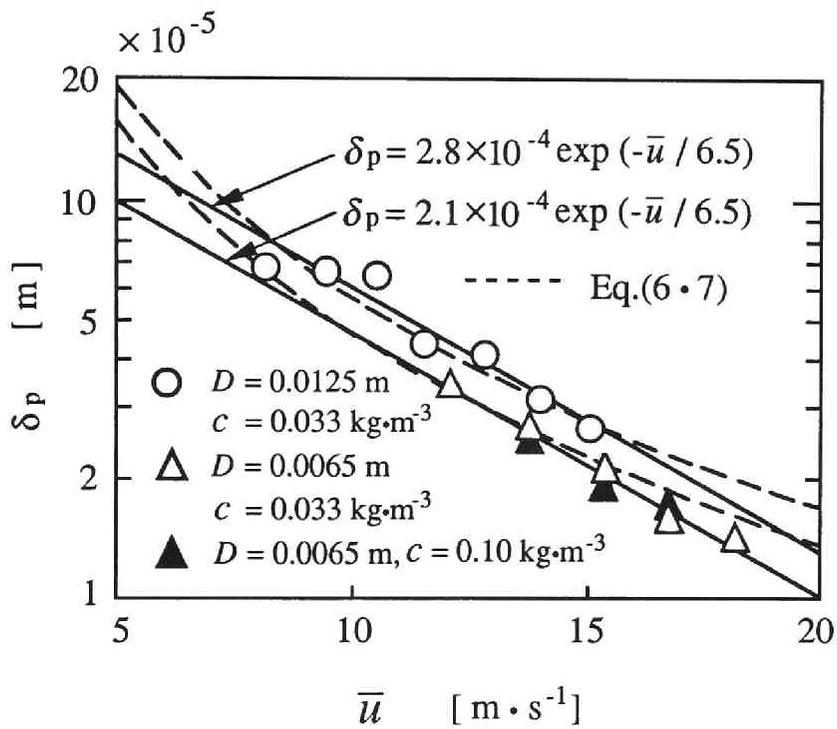


Fig. 6 • 6 Relationship between thickness of deposited particle layer  $\delta_p$  and average air velocity  $\bar{u}$

$$\delta_f = 5 \nu / u^* \quad (6 \cdot 5)$$

ここで、 $\nu$  は空気の動粘度であり、 $u^*$  は摩擦速度である。また、粘性底層内の速度分布は厳密には沈着層の影響を受けるが、平滑面における速度分布を仮定すると壁法則から次のように与えられる<sup>4)</sup>。

$$u = y u^{*2} / \nu \quad (6 \cdot 6)$$

ここで、 $y$  は壁面からの距離であり、 $u$  は位置  $y$  における気流速度である。Fig. 6・7 は摩擦速度  $u^*$  に対して沈着層の厚さ  $\delta_p$  の実験値、粘性底層の厚さ  $\delta_f$ 、および気流速度  $u$  をパラメータとして逆算した  $y$  (同じ気流速度を示す壁からの距離) を示している。沈着層の厚さ  $\delta_p$  は、粘性底層内の一定気流速度 ( $u \doteq 1.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) に対応する壁からの距離  $y$  にほぼ一致していることがわかる。すなわち、沈着層の厚さは壁近傍の気流速度によって決定されるといえる。Fig. 6・7 では、沈着層の厚さが管径によらず同一曲線 ( $\delta_p = 1.5 \nu / u^{*2}$ ) で表されている。これは、Fig. 6・6 とは異なり、同図では平均流速ではなく摩擦速度を用いているためであり、管径の影響は摩擦速度の中で考慮されている。すなわち、次式は管径の異なる場合の沈着層の厚さの推定にも適用できる。

$$\delta_p = y (u = \text{const.}) \quad (6 \cdot 7)$$

Eq. (6・7) に  $u = 1.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  を代入し、二つの異なる管径に対して  $\delta_p$  を計算した結果を前出の Fig. 6・6 に破線で示す。Eq. (6・7) は綫状沈着層が形成される範囲において Eq. (6・4) の実験線 (実線) とほぼ一致することがわかる。

### 6. 2. 3 沈着量の経時変化

単位面積あたりの沈着量  $W / A_w$  と経過時間との関係を平均流速をパラメータとして Fig. 6・8 に示す。ここでは、粒子が沈着していない状態から所定の時間まで連続してエアロゾルを流したあとで沈着量を測定しており、同一沈着層の形成過程を繰り返し測定したものではないため多少バラツキが見られる。平均流速が  $6.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  以下のときは、沈着量は経過時間に比例して増加する。しかし、平均流速が  $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  前後になると時間の経過にともなっ

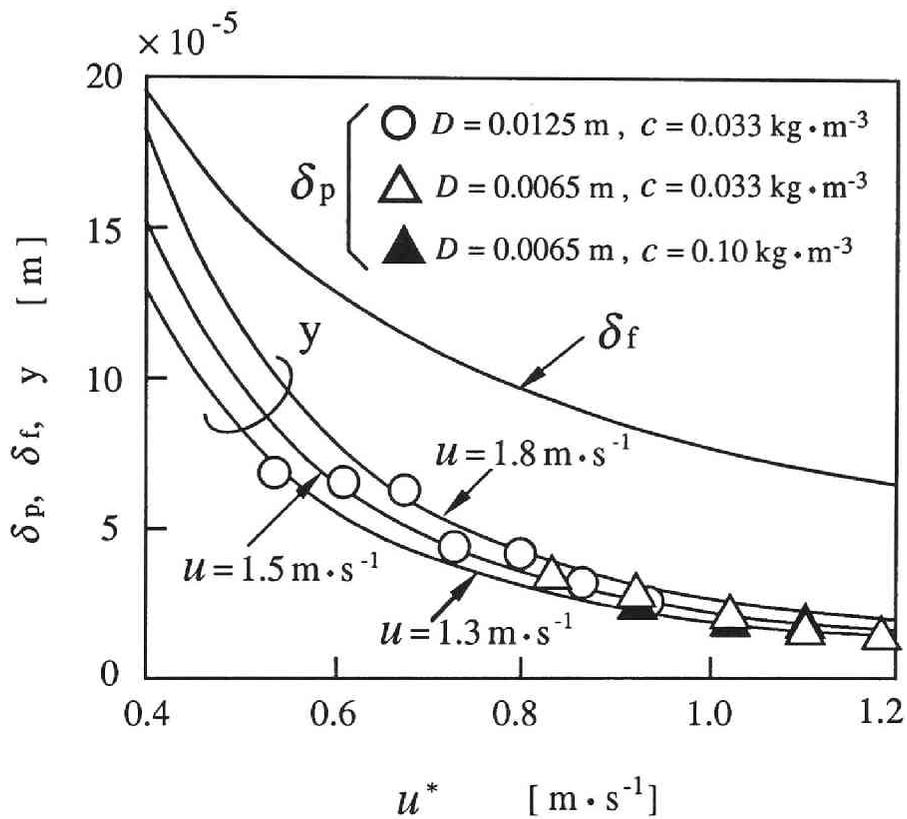


Fig. 6 • 7 Thickness of deposited particle layer  $\delta_p$  as a function of friction velocity  $u^*$

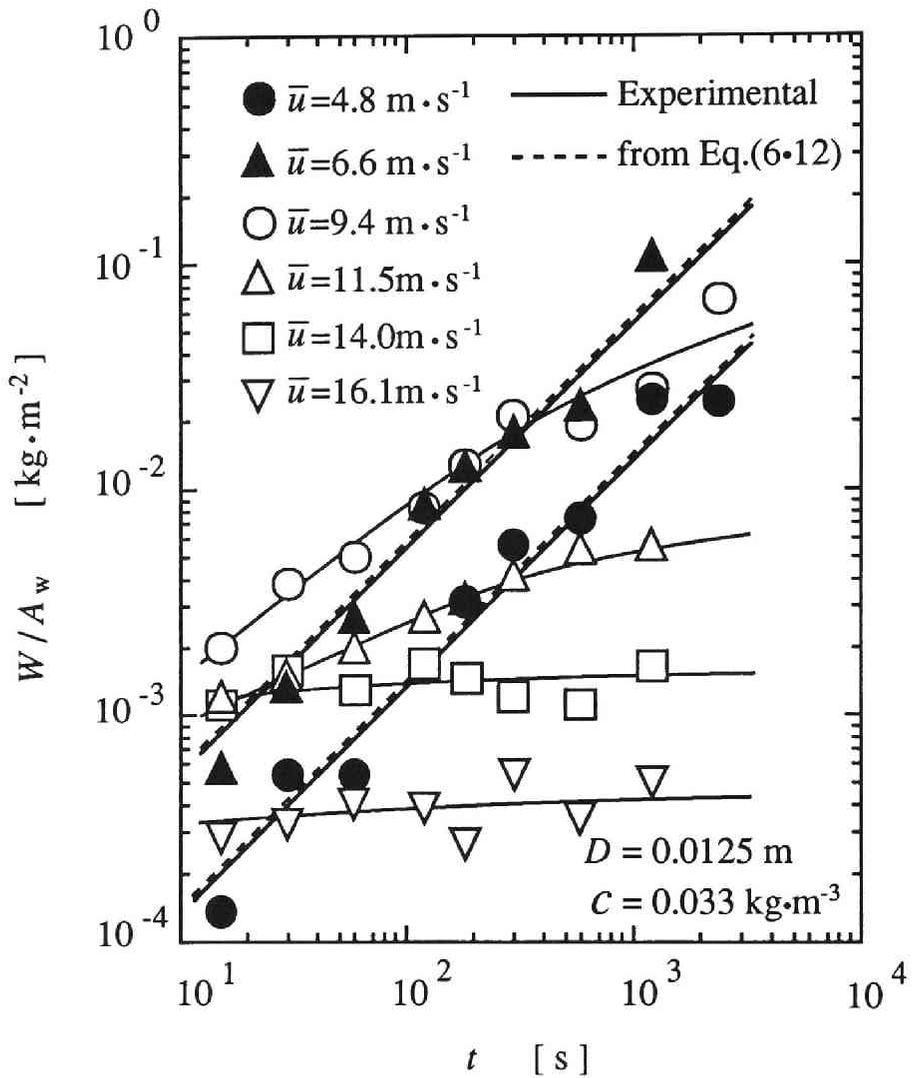


Fig. 6 • 8 Deposited particle-mass per unit area  $W/A_w$  as a function of time elapsed

て沈着量の増加はゆるやかになり、 $14\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上では経過時間に対してほとんど増加しない。

単位面積あたりの沈着量  $W/A_w$  と平均流速  $u$  の関係を経過時間をパラメータとして示すと Fig. 6・9 のようになる。沈着量は平均流速に対して上に凸の関係を保ちながら時間とともに変化する。たとえば、実験開始後15秒のとき沈着量は  $10\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  程度までは平均流速の増加とともに多くなるが、平均流速がそれ以上になると逆に減少する。沈着量の最大値に対応する平均流速の値は同図に破線で示すように時間の経過とともに小さくなっており、1200秒後には  $7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  程度まで減少する。

#### 6. 2. 4 沈着フラックスと飛散フラックス

本実験の結果に基づいて沈着フラックスおよび飛散フラックスについて考察する。

沈着速度  $V_d$  および無次元沈着速度  $V_d^+$  はそれぞれ次のように定義される。

$$V_d = J_d / C \quad (6 \cdot 8)$$

$$V_d^+ = V_d / u^* \quad (6 \cdot 9)$$

ここで、 $J_d$  は沈着フラックス、 $C$  はエアロゾル粒子濃度である。

一方、粒子緩和時間  $\tau_p$  および、無次元粒子緩和時間  $\tau_p^+$  は次のように定義される。

$$\tau_p = \frac{\rho_p D_p^2 C_m}{18 \rho_f \nu} \quad (6 \cdot 10)$$

$$\tau_p^+ = \tau_p u^{*2} / \nu \quad (6 \cdot 11)$$

ここで、 $\rho_p$  は粒子密度、 $D_p$  は平均粒子径、 $C_m$  はカニンガムのスリップ補正係数、 $\rho_f$  は空気密度である。過去の多くの沈着実験結果から、 $\tau_p^+$  が 0.2~20 の範囲にあるとき  $V_d^+$  は  $\tau_p^+$  と次の関係にあることが報告されている<sup>7)</sup>。

$$V_d^+ = k_1 (\tau_p^+)^2 \quad (6 \cdot 12)$$

ここで、 $k_1$  は実験定数である。沈着フラックス  $J_d$  は Eq. (6・12) の実験式を用いると Eq. (6・8) ~ Eq. (6・11) より次のように表される。

$$J_d = k_2 C u^{*5} \quad (6 \cdot 13)$$

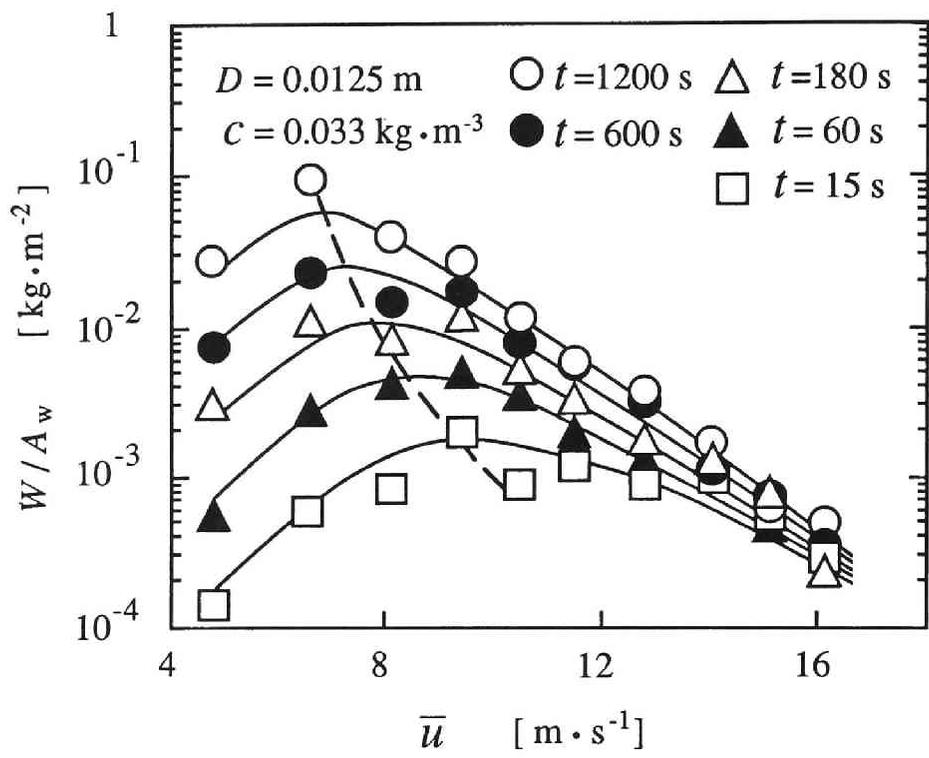


Fig. 6 • 9 Mass of deposited particles per unit area  $W/A_w$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$

ただし、

$$k_2 = \frac{k_1 \rho_p^2 D_p^4 C_m^2}{324 \rho_f^2 v^4} \quad (6 \cdot 14)$$

付着粒子の影響も再飛散もない場合、沈着フラックスは時間によらず一定であるので単位面積あたりの沈着量  $W/A_w$  は経過時間に正比例する。この関係は、Fig. 6・8の破線で示したように平均流速が  $4.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  と  $6.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  のときに見られる。Eq. (6・12)の実験式を適用して実験定数  $k_1$  と  $k_2$  を求めると、 $\bar{u} = 4.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  と  $6.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  とで両者は全く一致した ( $k_1 = 5.4 \times 10^{-5}$ 、 $k_2 = 9.6 \times 10^{-2} \text{ m}^{-4} \cdot \text{s}^4$ )。なお、本実験での  $\tau_p^*$  は 2~19の範囲にある。

一方、平均流速が大きくなると時間の経過にともなって沈着量の増加は緩やかになるが、これは沈着量の増加にともなって再飛散が生じたためと考えられる<sup>3)</sup>。すなわち、Fig. 6・8の  $\bar{u} \geq 9.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  のデータおよび Fig. 6・9の傾向は、沈着と同時に再飛散を考慮に入れないと説明できない。以下では、このときの飛散フラックスがどのように変化しているのかを、実験結果に基づいて検討する。沈着量  $W/A_w$  の経時変化は沈着フラックス  $J_d$  と飛散フラックス  $J_r$  を用いると次式で表される。

$$W/A_w = \int_0^t J_d dt - \int_0^t J_r dt \quad (6 \cdot 15)$$

$J_r$  は平均流速が小さいときゼロであるが、ある流速以上（飛散開始流速）になると正の値をとる。 $J_r/J_d$  は Eq. (6・14) の微分形である次式により求められる。

$$J_r/J_d = 1 - \frac{d(W/A_w)}{dt} \frac{1}{J_d} \quad (6 \cdot 16)$$

ここで、 $d(W/A_w)/dt$  は実験線の図微分から、 $J_d$  は  $6.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  を超えて再飛散を伴うような条件においても Eq. (6・13) が成立すると仮定することにより計算できる。得られた  $J_r/J_d$  と平均流速の関係を Fig. 6・10に示す。 $J_r/J_d$  は飛散開始流速を超えると単調に増加することがわかる。また、時間の経過によっても単調に増加するが、この傾向は低流速で顕著であり、平均流速が  $14 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  以上では実験開始後すぐに平衡状態に達することがわかる。なお、 $7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  以下の低流速では沈着量が増加すると流路の断面

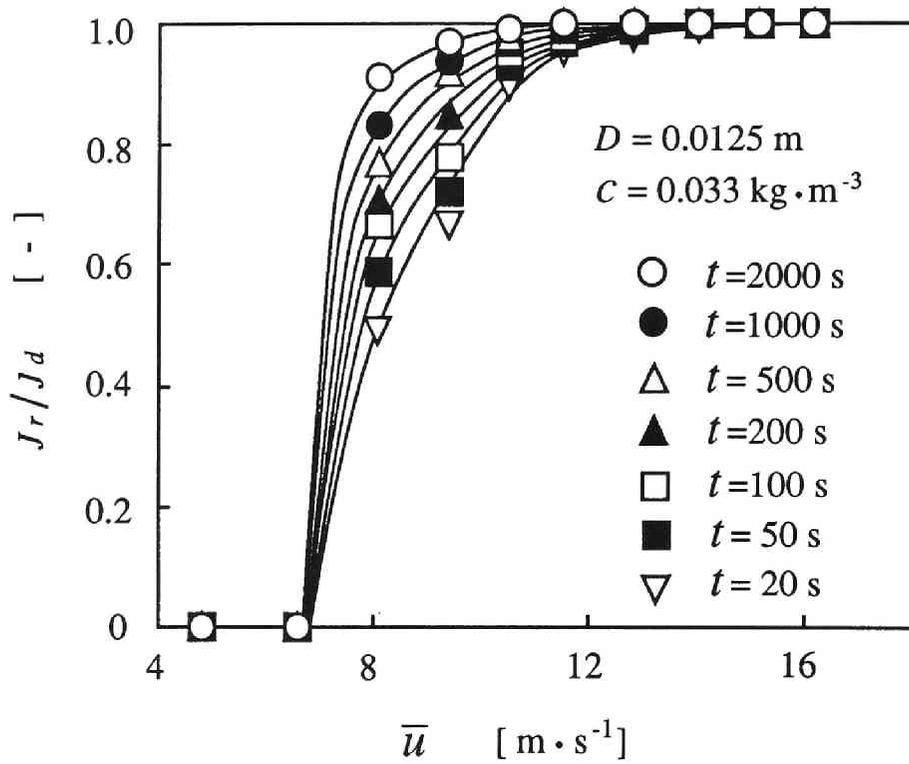


Fig. 6 • 10 Ratio of reentrainment flux  $J_r$  to deposition flux  $J_d$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$

積が小さくなって流速が大きくなり、 $\bar{u}$ が同図の右に移動して再飛散することを考慮しなければならない。

第4章では再飛散現象に対して、付着強度分布が重要であることを述べた。すなわち、再飛散のみが起こるときには、飛散の進行にともなって付着強度の小さい凝集粒子から消失するため粉体層の付着強度分布は大きい方に移動する。一方、粒子の沈着を伴う場合には、絶えず新しい粉体層表面が形成されるため付着強度分布は全体として定常と考えることができるであろう。ただし、非定常な沈着層形成過程では沈着量の増加にともなって徐々に飛散しやすくなるため、付着強度はしだいに低下するものと考えられる。したがって、本実験において得られた飛散開始流速 $\bar{u}_{c0} \doteq 7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  ( $\tau_{c0} \doteq 0.26 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ )は付着強度分布の下限値（飛散限界フラックス $J_c = 0$ ）に対応する平均流速と考えてよいであろう。

## 結 言

円管内乱流で沈着と再飛散が同時に進行するとき形成される沈着層について実験的検討を行った結果、以下の結論が得られた。

1) 沈着層形状は、初期形状によらずエアロゾル流の平均流速のみによって決定される。また、エアロゾル流は空気流に比べて再飛散を促進する効果がある。

2) 平均流速が小さいとき沈着層は内壁全面に一様に形成されるが、平均流速の増加とともに沈着層を形成しない部分が現われ、沈着層の形状は縞状になる。縞状沈着層の内壁面に対する面積占有率は平均流速が増加するにつれて低下する。

3) 沈着層の厚さは、流速の増加に対して飛散限界凝集粒子径と同様の傾向で減少し、粘性低層内の一定気流速度に対応する壁からの距離にほぼ等しい。

4) 平均流速が大きいほど沈着フラックスは大きくなるが、飛散開始流速を超えると飛散フラックスも大きくなるため、沈着層の成長速度が最大となるような平均流速が存在する。また、飛散フラックスは経過時間とともに単調に増加し、最終的には沈着フラックスに等しくなる。

## 使用記号

$A_w$	= 円管内面積	[ $m^2$ ]
$a$	= Eq. (6・4) の定数	[ $m$ ]
$b$	= Eq. (6・4) の定数	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$C$	= エアロゾル粒子濃度	[ $kg \cdot m^{-3}$ ]
$C_m$	= カニングガムのスリップ補正係数	[ $-$ ]
$D$	= ガラス管の内径	[ $m$ ]
$D_p$	= 平均粒子径	[ $m$ ]
$J_c$	= 飛散限界フラックス	[ $kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ ]
$J_d$	= 沈着フラックス	[ $kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ ]
$J_r$	= 飛散フラックス	[ $kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ ]
$k_1$	= Eq. (6・12)	[ $-$ ]
$k_2$	= Eq. (6・13)	[ $s^4 \cdot m^{-4}$ ]
$t$	= 経過時間	[ $s$ ]
$\bar{u}$	= 平均流速	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$\bar{u}_{c0}$	= 飛散開始流速 ( $J_c = 0$ のときの限界平均流速)	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$u^*$	= 摩擦速度	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$V_d$	= 沈着速度	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$V_d^+$	= 無次元沈着速度	[ $-$ ]
$W$	= 沈着量	[ $kg$ ]
$y$	= 内壁からの距離	[ $m$ ]
$\beta$	= 沈着層の面積占有率	[ $-$ ]
$\beta'$	= 見かけの沈着層の面積占有率	[ $-$ ]
$\delta_f$	= 粘性底層の厚さ	[ $m$ ]
$\delta_p$	= 沈着層の厚さ	[ $m$ ]
$\nu$	= 空気動粘度	[ $m^2 \cdot s^{-1}$ ]
$\rho_f$	= 空気密度	[ $kg \cdot m^{-3}$ ]
$\rho_p$	= 粒子密度	[ $kg \cdot m^{-3}$ ]
$\tau_{c0}$	= 飛散限界気流せん断応力 ( $\bar{u}_{c0}$ に対応するせん断応力)	[ $N \cdot m^{-2}$ ]

$\tau_p$	= 粒子緩和時間	[ s ]
$\tau_p^+$	= 無次元粒子緩和時間	[ - ]
$\phi$	= 粒子充てん率	[ - ]

## 引用文献

- 1) Cleaver, J. W. and B. Yates : *Chem. Eng. Sci.*, 31, 147 (1976)
- 2) Friedlander, S. K. and H. F. Johnstone : *Ind. Eng. Chem.*, 49, 1151 (1957)
- 3) 生三俊哉, 和歌山久男, 増田弘昭 : 化学工学論文集, 12, 589 (1986)
- 4) 化学工学協会編 : "化学工学便覧", 改定 5 版, p117, 丸善 (1988)
- 5) Masuda, H., Y. Ito and K. Iinoya : *J. Chem. Eng. Japan*, 6, 278 (1973)
- 6) 増田弘昭 : 静電気学会誌, 12, 324 (1988)
- 7) Papavergos, P. G. and A. B. Hedley : *Chem. Eng. Res. Des.*, 62, 275 (1984)
- 8) Reeks, M. W. and D. Hall : *J. Fluids Eng.*, 110, 165 (1988)

## 第7章 固気二相流による再飛散の促進効果

### 緒言

前章では、円管内乱流で沈着と再飛散が同時に進行するときに形成される沈着層について実験的検討を行い、沈着層の厚さが流速の増加に対して飛散凝集粒子径と同様の傾向で減少し、粘性底層内の一定気流速度に対応する壁からの距離に等しいことがわかった。また、沈着層の成長過程における沈着フラックスと飛散フラックスのそれぞれについて検討し、飛散フラックスが沈着量の増加にともなって大きくなり最終的には沈着フラックスに等しくなることが確認された。さらに、沈着と再飛散の同時現象は単に沈着と再飛散が一次結合したものではなく、エアロゾル流は気流のみよりも再飛散を促進する効果があることも確認された。これまでも粒子の衝突を含めた再飛散現象の研究は幾つか報告されている<sup>1-4)</sup>が、再飛散の促進効果を定量的に表したものはない。

本章では、円管内壁に形成させた微粉体層を用いて気流のみによる再飛散実験と気流中に粗粒子を添加した固気二層流による再飛散実験を行い、飛散量および飛散開始流速について両者を比較し、固気二層流の飛散促進効果について検討する。

### 7. 1 実験装置および方法

実験装置の概略をFig. 7・1に示す。気流はエアーポンプ（イワキ製AP 450D）により発生させ、脈流を防止するために緩衝容器を経路内に設置した。固気二相流の実験を行うときには、テーブルフィーダ（三協バイオテク製MFOV-1）を用いて粉粒体を一定の割合で供給し、エジェクタを通して気流中に混合分散させた。なお、エジェクタを用いるとポンプの吸引流量よりテスト部に送風される流量の方が多くなるため、エジェクタからの吸い込み流量を検定して補正した。テストチューブはFig. 7・2に示すように長さ100 mm、内径10.0mmの真ちゅう管であり、管の円周方向に不均一な重力の

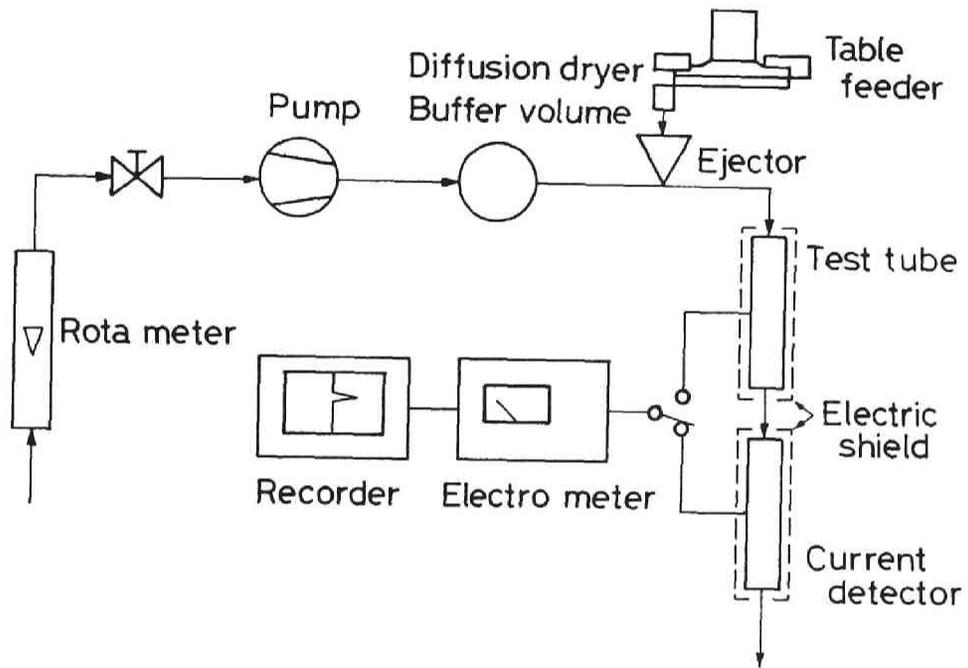


Fig. 7 • 1 Experimental apparatus

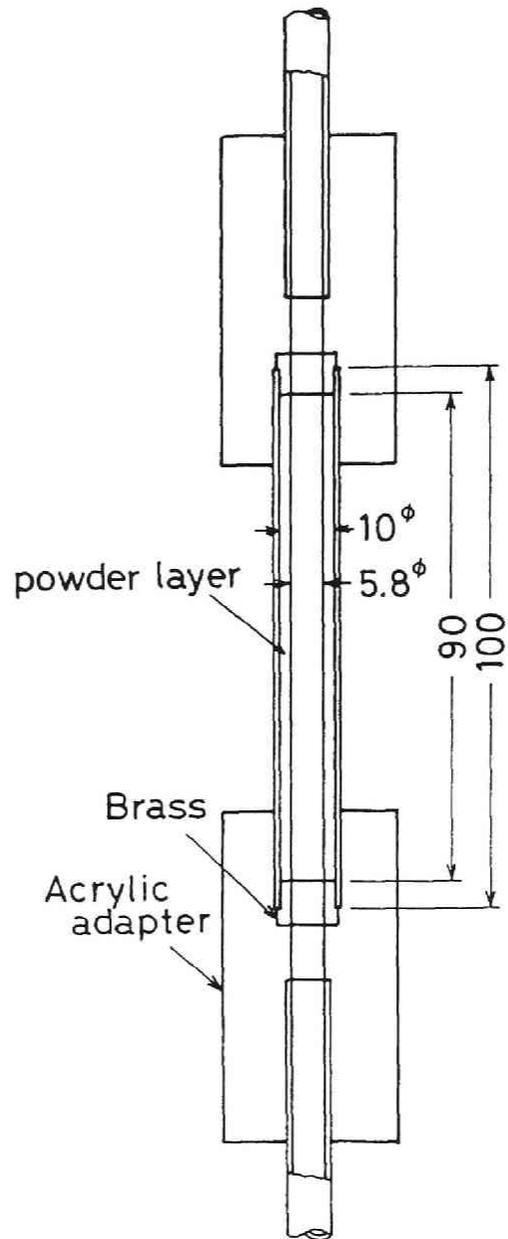


Fig. 7 - 2 Details of test tube

影響が加わらないように鉛直方向に設置した。飛散の連続計測には静電気式検出法を適用し、テストチューブおよび検出管に検流計（アドバンテスト製 TR8651）を接続して飛散時に発生する電流と電荷を記録した。なお、テストチューブおよび検出管は電氣的にシールドされている。

試料粉体は試験用ダスト（JIS Z-8901）フライアッシュ10種（粒子密度  $2.46 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、質量中位径  $4.2 \mu\text{m}$ ）とタルク9種（粒子密度  $2.66 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、質量中位径  $4.0 \mu\text{m}$ ）であり、空気流に添加した固体粒子はケイ砂（粒子密度  $2.65 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、 $250 \mu\text{m}$ 以上  $350 \mu\text{m}$ 以下）である。

円管内壁に均一に薄い粉体層を形成させることは技術的にかなり難しく、ここでは約2mmの厚さの付着粉体層を以下の手順で形成させた。内径10mmのテストチューブの下部および上部に5.8 mmの穴の開いた真ちゅう製の栓をし、同径（5.8 mm）のガラス棒を貫通させ、鉛直に保ったのちテストチューブおよびガラス棒をそれぞれ支持台に固定した。上部の栓をガラス棒の上方へ押し上げ、試料粉体（110℃で12時間以上乾燥したもの）を円筒状の空間にテストチューブを振動させながら上端から5 mmの高さまで充てんしたのち、上部に真ちゅう製の栓をしてガラス棒を引き抜いた。各微粉体層の充てん率は、充てん後の粉体重量の実測結果から求めた。フライアッシュ10種の充てん率は0.41から0.46の範囲で、タルク9種は0.17から0.21であり、これより低い充てん率では管内に粉体層を保つことはできなかった。なお、粉体を充てんしたテストチューブは110℃で4時間乾燥させてから実験に使用した。

粉体層が均一で表面から飛散が一様に生じると仮定すると、粉体層の重量変化と容積変化の関係から次式が得られる。

$$\frac{W_0 - W_1}{W_0} = \frac{r_1^2 - r_0^2}{r_w^2 - r_0^2} \quad (7 \cdot 1)$$

ここで、 $W_0$ と $W_1$ はそれぞれ実験前後の粉体層重量、 $r_0$ と $r_1$ はそれぞれ飛散前後の粉体層内半径、 $r_w$ はテストチューブの内半径（粉体層外半径）である。また、飛散後の平均流速 $\bar{u}_1$ は空気流量を $Q$ とすると次式より求められる。

$$\bar{u}_1 = Q / \pi r_1^2 \quad (7 \cdot 2)$$

Eq. (7・2) は Eq. (7・1) を用いると次のようになる。

$$\bar{u}_1 = Q / \pi \left\{ \frac{W_0 - W_1}{W_0} (r_w^2 - r_0^2) + r_0^2 \right\} \quad (7・3)$$

すなわち、飛散後の平均流速は飛散前後の粉体層重量から近似的に求められる。

## 7. 2 実験結果および考察

### 7. 2. 1 気流による再飛散

気流を徐々に増加させ (約  $0.6\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$ ) 所定の流量で10分経過させたときの無次元飛散量と飛散前の平均流速の関係を Fig. 7・3 に示す。データには多少バラツキがみられ、それらの上下限をフライアッシュは2本の実線で、タルクは2本の破線でそれぞれ示した。フライアッシュは  $29\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  から飛散しはじめ、無次元飛散量は流速の増加にともなって高くなり、 $38\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  でほぼ1に達する。平均流速の増加にともなって飛散量が大きくなる傾向は、これまで検討してきた結果と基本的には同じである。一方、タルクは  $25\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  で飛散しはじめるが、これよりわずかに流速を大きくすると無次元飛散量はほぼ1に達しており、一度飛散が起こりはじめると粉体層は完全な崩壊状態に達するという特異な現象を示す。タルク9種とフライアッシュ10種の中位径は同程度であるが、フライアッシュの粒子形状が球形であるのに対してタルクは薄片状であり、粒子形状の違いが充てん構造や粒子間付着力に大きく影響しているものと考えられる。タルクはフライアッシュに比べて充てん率を高くすることが難しく、低充てん率でも飛散しにくいことが確かめられている (Fig. 2・9 参照)。本実験のように充てん率  $\phi=0.17\sim 0.21$  になると粉体層内の付着強度はかなり大きくなっていると予想されるが、これに比べて壁面あるいは壁面近傍の付着強度がそれほど大きくなっておらず、粉体層表面から微小凝集粒子が均一に飛散するのではなく、全粉体層がほぼ一度に飛散したと考えられる。

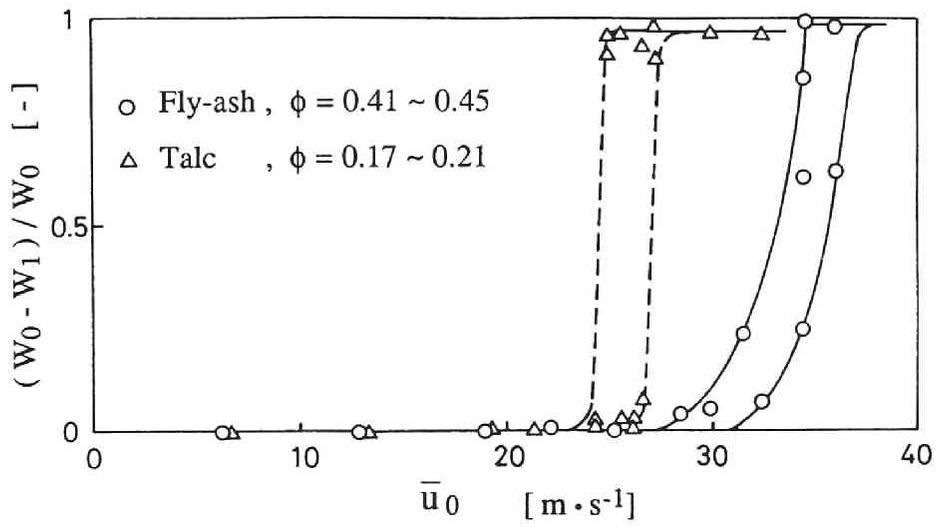


Fig. 7 • 3 Relationship between dimensionless mass of reentrained particles and initial average air velocity

## 7. 2. 2 固気二相流による再飛散

フライアッシュは粉体層表面から比較的均一に飛散し、平均流速の増加に伴って飛散量が大きくなることが確かめられたため、固気二相流による再飛散の検討ではフライアッシュについて検討することにした。

気流に粗粒子（ケイ砂）を加えて10分間飛散実験を行ったときの無次元飛散量の測定結果を Fig. 7・4 に示す。横軸は混合比  $m$ 、すなわち粗粒子流量と空気流量の比である。平均流速は  $12.1$ 、 $15.8$ 、 $18.9\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  の3条件であり、いずれも  $m=0$ 、すなわち気流のみでは飛散は生じないが、飛散量は混合比とともに大きくなっており、粗粒子が飛散に対して影響を及ぼしていることがわかる。粗粒子が壁面に衝突するたびに飛散が生じると考えると、混合比の増加に伴わない粗粒子が粉体層の表面に衝突する頻度（粗粒子の衝突フラックス）が増加することで再飛散現象を定性的に説明できる。

Fig. 7・5 は気流のみによる再飛散と固気二相流による再飛散の結果を比較したものである。図中の白ぬき印は飛散前の平均流速  $\bar{u}_0$  に対して、黒印は Eq. (7・3) から求めた飛散後の平均流速  $\bar{u}_1$  に対して無次元飛散量を表している。同一混合比における飛散前後の無次元飛散量をそれぞれ同図の実線と破線で示すが、無次元飛散量がゼロにおいて二つの曲線は交わるはずであり、この流速が飛散開始流速  $\bar{u}_{c0}$ （飛散限界フラックス  $J_c=0$  に対応する平均流速）になる。気流のみの場合には  $\bar{u}_{c0}=29\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  であるが、固気二相流では混合比によらず  $\bar{u}_{c0}=7\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  である。固気二相流の飛散開始流速は一個の粗粒子が粉体層表面へ衝突するときの状態に依存すると考えられるので混合比（粗粒子の衝突フラックス）の影響を受けないのは当然の結果と考えられる。

以上の結果から、気流中に  $300\mu\text{m}$  程度の粗粒子を混合比  $m=0.003$ （容積濃度  $0.00014\%$ ）という極微量加えることによって気流のみによる飛散に比べ、飛散開始流速を約  $1/4$  に低下させられることがわかった。このことは、管内壁に付着した粉体層の除去を目的とするときには好ましいといえる。一方、集塵操作において粗粒子が混入することは捕集粉塵の再飛散を促進する可能性があることを示している。

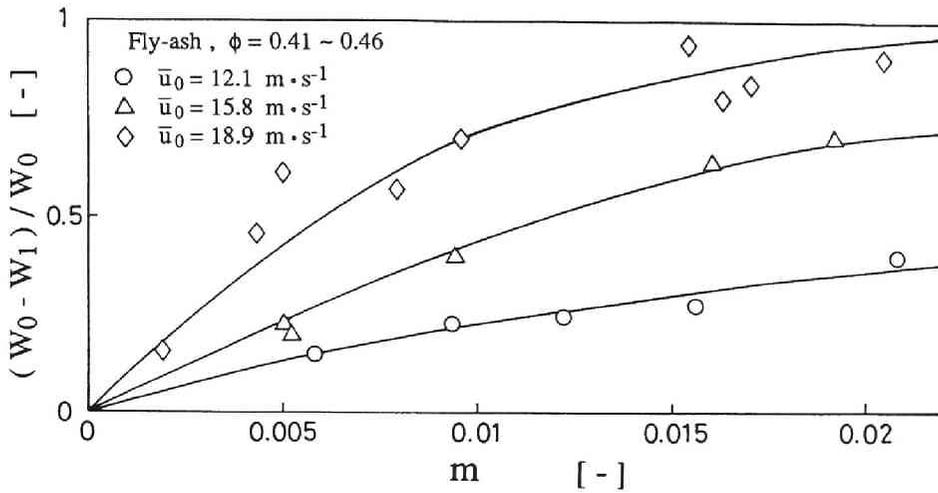


Fig. 7 • 4 Relationship between dimensionless mass of reentrained particles and mass flow ratio

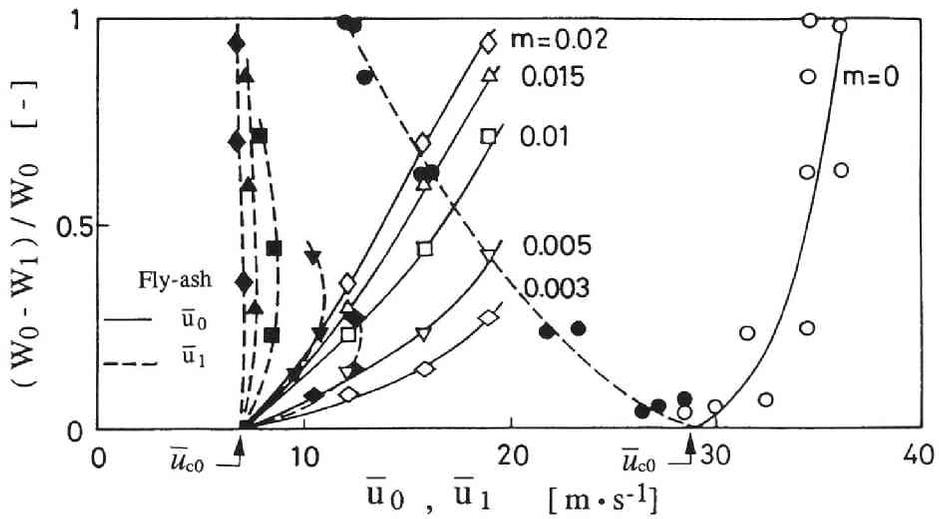


Fig. 7 • 5 Relationship between dimensionless mass of reentrained particles and average air velocity  $\bar{u}_0, \bar{u}_1$

### 7. 2. 3 飛散の経時変化

固気二相流における無次元飛散量の経時変化を Fig. 7・6 に示す。飛散量は時間とともに増加するが、増加の割合はしだいに小さくなり、ある値に漸近する傾向が見られる。飛散量が増加し続ける時間は40分程度にも及ぶが、増加の割合はきわめて安定していることから、緩やかではあるが均一に飛散が進行していることがわかる。固気二相流による再飛散では粗粒子が粉体層へ衝突するときに飛散が生じると考えると、飛散の進行は粗粒子の衝突フラックスに依存することになり、飛散が緩やかに安定して進行することも定性的に説明できる。また、飛散後の粉体層表面を観察した結果、充てん率が多少高いえに粉体層の形成方法が難しいため、気流のみの再飛散の後では多少凹凸が見られたが、固気二相流では滑らかであることが確認された。

次に、静電気式検出法による飛散の経時変化の測定例を気流のみの場合と固気二相流の場合に分けて Fig. 7・7 (a)、(b) に示す。(a) は気流のみによる飛散結果で、実験開始後2分間に発生電流が集中していることがわかる。測定レンジを1桁小さくしたときにも数分経過したのちには連続した発生電流は検出されなかった。一方、(b) は固気二相流による飛散結果であり、時間が経過しても微小な電流が発生し続けていることがわかる。なお、(b) は(a) に比べて発生電流の測定レンジが1桁小さいが、バックグラウンドのノイズの影響は現れていない。また、予備実験で二相流中の粗粒子が検出管に衝突するときの発生電流を測定したが、バックグラウンドと同程度であり、再飛散実験での発生電流への影響はなかった。

### 7. 2. 4 接触帯電および剥離帯電の電流・電荷の検討

本実験では、真ちゅう製のテストチューブ内に微粉体層を形成させており、飛散時に発生する剥離帯電について検討を行うことができる。Fig. 7・8 は剥離帯電と検出管での接触帯電を同時に記録しものである。剥離帯電は接触帯電の発生電流と対応しており、剥離帯電を測定することによっても飛散の経時変化を測定できる可能性があることがわかった。また、テストチュー

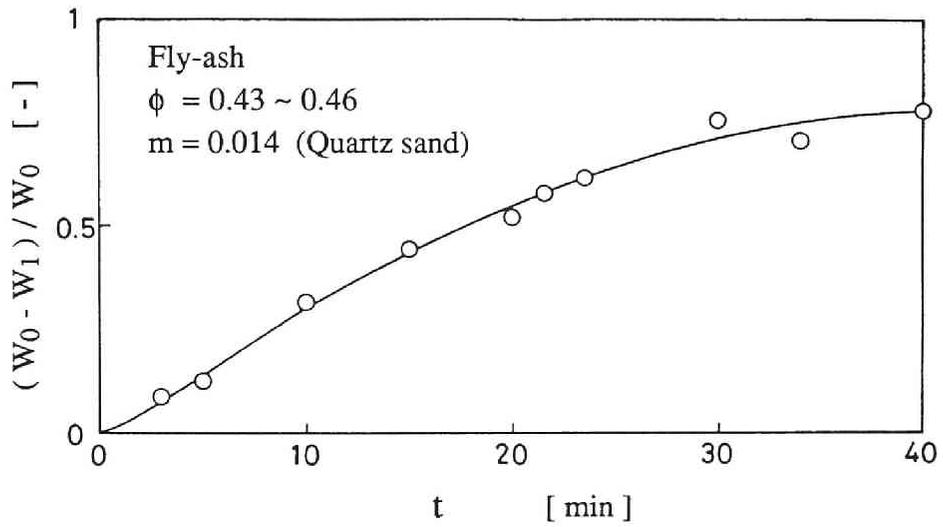


Fig. 7 • 6 Dimensionless mass of reentrained particles as a function of time elapsed

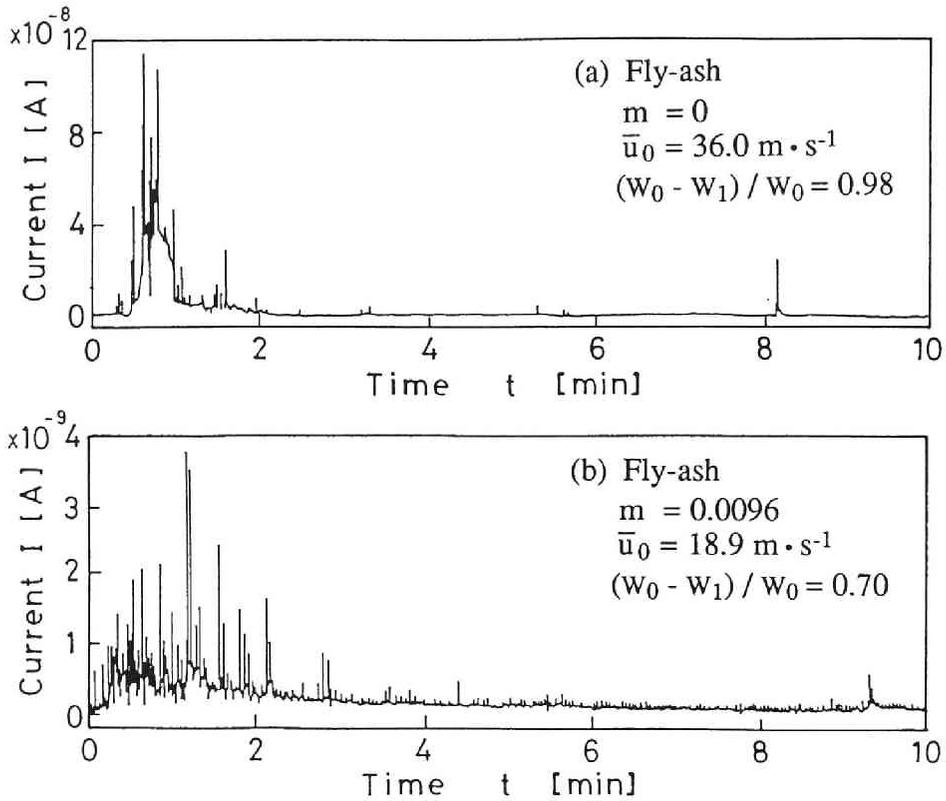


Fig. 7 • 7 Generated current by particle reentrainment

(a) clean-air flow

(b) gas-solid two phase flow

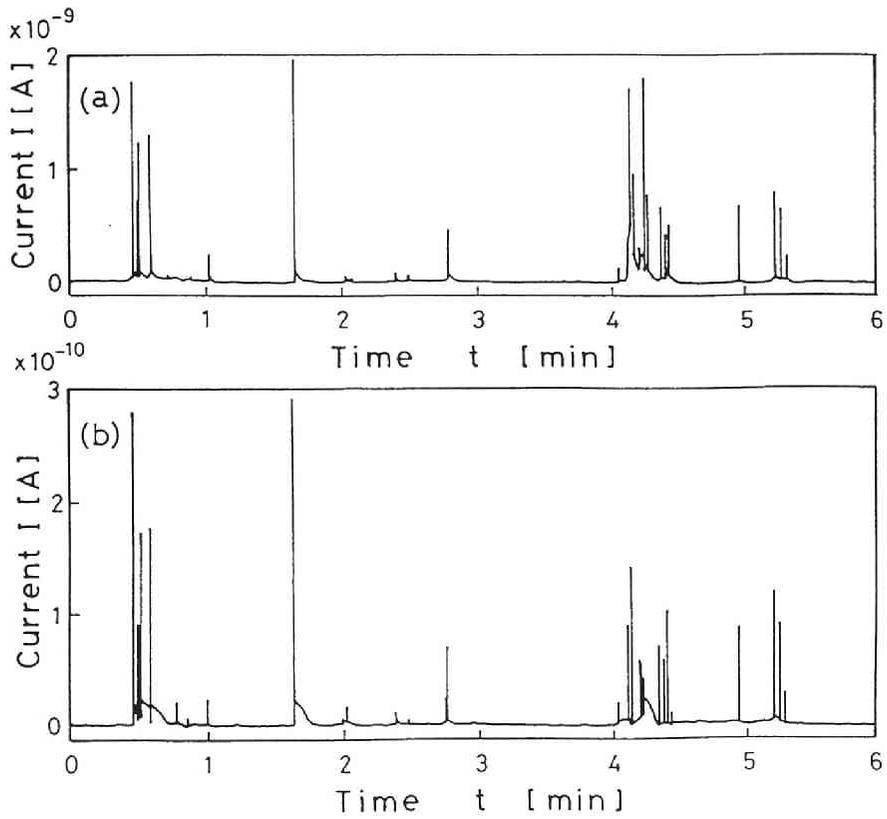


Fig. 7 • 8 (a) Current generated by test tube  
 (b) Current generated by current-detector tube

ブは電氣的にシールドされており、テストチューブが一種のファラデーケー  
ジになっている。したがって、剥離帯電により蓄積した電荷を連続測定する  
ことも可能である。Fig. 7・9 にテストチューブに蓄積した電荷と検出管  
で発生した電流を同時に記録した結果を示すが、両者に対応していることが  
わかる。発生電流は飛散フラックスに対応し、発生電流の積算値すなわち電  
荷は飛散量を表すため、電荷を測定することにより飛散量が直接計測でき  
ることになる。

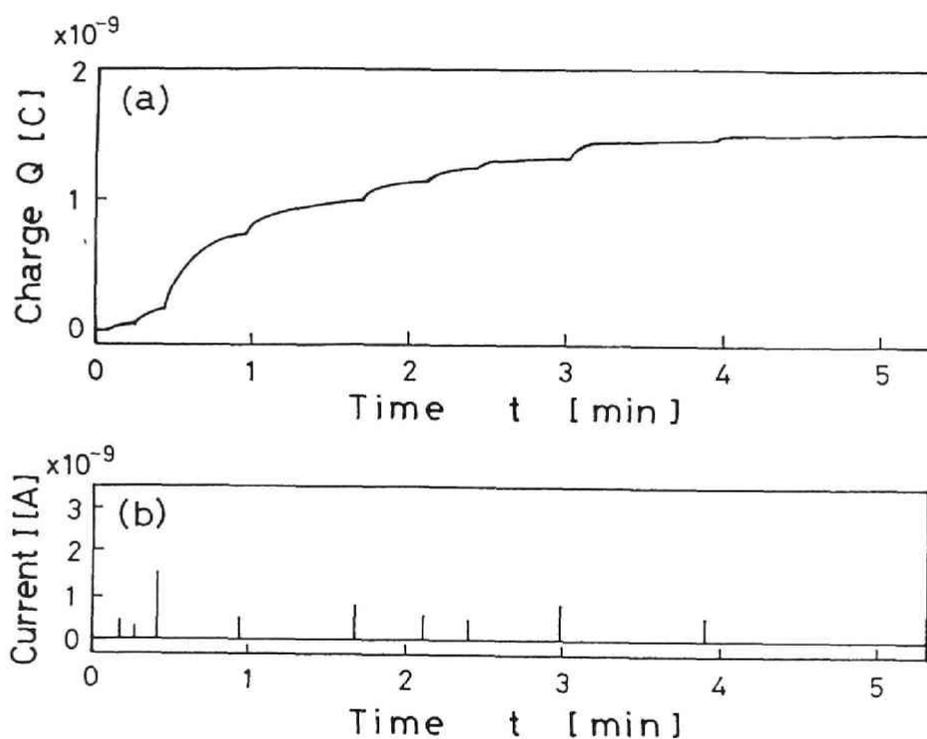


Fig. 7・9 (a) Charge generated by test tube  
(b) Current generated by current-detector tube

## 結 言

円管内壁に形成させた微粉体層を用いて気流のみによる再飛散実験および気流中に粗粒子を添加した固気二相流による再飛散実験を行い以下の結論が得られた。

1) 微粉体を密に充てんすると、粉体層の付着強度に対して粒子形状の影響が大きくなる。球形のフライアッシュでは飛散開始流速を超えると飛散量は平均流速の増加にともなって大きくなるが、薄片状のタルクは一度飛散が起こりはじめると粉体層は完全な崩壊状態に達するという特異な現象を示す。

2) 気流中に300  $\mu$  m程度の粗粒子を微量加えることによって、飛散開始流速は粗粒子の混合比によらず約1/4に低下させることができた。また、飛散の進行は均一かつ安定しており、飛散後の粉体層表面は滑らかであった。

3) 付着粉体層が飛散するときの剥離帯電による発生電流は検出管での接触帯電による発生電流と対応する。また、剥離帯電により蓄積した電荷の変化と対応することも確認された。

## 使用記号

$I$	= 帯電による発生電流	[A]
$J_c$	= 飛散限界フラックス	[k g · m <sup>-2</sup> · s <sup>-1</sup> ]
$m$	= 混合比	[-]
$Q$	= 空気流量	[m <sup>3</sup> · s <sup>-1</sup> ]
$q$	= 電荷	[C]
$r_w$	= テストチューブの内半径 (粉体層外半径)	[m]
$r_0$	= 飛散前の粉体層内半径	[m]
$r_1$	= 飛散後の粉体層内半径	[m]
$\bar{u}_{c0}$	= 飛散開始流速 ( $J_c = 0$ のときの平均流速)	[m · s <sup>-1</sup> ]
$\bar{u}_0$	= 飛散前の平均流速	[m · s <sup>-1</sup> ]
$\bar{u}_1$	= 飛散後の平均流速	[m · s <sup>-1</sup> ]

$W_0$	= 飛散前の粉体層重量	[ k g ]
$W_1$	= 飛散後の粉体層重量	[ k g ]
$\phi$	= 粒子充てん率	[ - ]

## 引用文献

- 1) Bagnold, R. A. : *Int. J. Air. Poll.*, 2, 357 (1960)
- 2) Fletcher, B. : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 9, 913 (1976)
- 3) John, W., W. Winklmayr and H. C. Wang : *Aerosol Sci. Technol.*, 14, 165 (1991)
- 4) John, W., D. N. Fritter and W. Winklmayr : *J. Aerosol Sci.*, 22, 723 (1991)

## 第 8 章 飛散現象を利用した粉体特性の測定と評価

### 緒 言

微粉体層の再飛散現象を解明するため、理論的および実験的検討を多角的に行い、基本的な再飛散機構および支配因子について明らかにしてきた。しかし、これまで実験に用いてきた試料粉体は主に試験用ダスト（JIS Z 8901：フライアッシュ）であり、様々な粉体の飛散現象を予測するには、それぞれの粉体特性について検討する必要がある。付着強度およびその分布は飛散特性の重要な要因であり、遠心法などによる一次粒子の付着力の測定や粉体層の各種破断試験による応力の測定から求めることも可能であるが、飛散は粒子の付着強度と気流による分離強度との均衡に支配されるため、飛散限界粒子径や飛散開始流速についても同時に検討しなければならない。凝集粒子の再飛散機構について応力バランスを基礎とするモデルを提出して解析しており、分離強度は壁面気流せん断応力と飛散に関する無次元の形状因子の積として表されることを明らかにしたが、粉体ごとに異なる形状因子の値を理論的に推定することは難しい。しかし、飛散に対応する壁面気流せん断応力を測定すれば、付着強度と飛散に関する形状因子を含めた実質的な粉体操作特性を求めることができる。

本章では、応力バランス機構から求めた飛散限界気流せん断応力や非定常再飛散モデルで検討した付着強度分布などの考え方を応用するとともに気流を連続的に増加させて飛散させる手法や静電気式検出法などの測定に関するこれまでの知見を活かして、様々な粉体について再飛散実験を行い飛散率と壁面気流せん断応力の関係を求める。さらに、粉体操作特性を求めるための新規測定法として必要な基礎的検討を行う。

### 8. 1 実験装置および方法

試験装置の概略構成を Fig. 8・1 に示す。本装置は、壁面上に付着した微量の粉体を気流により飛散させるものであり、粉体特性を測定するため

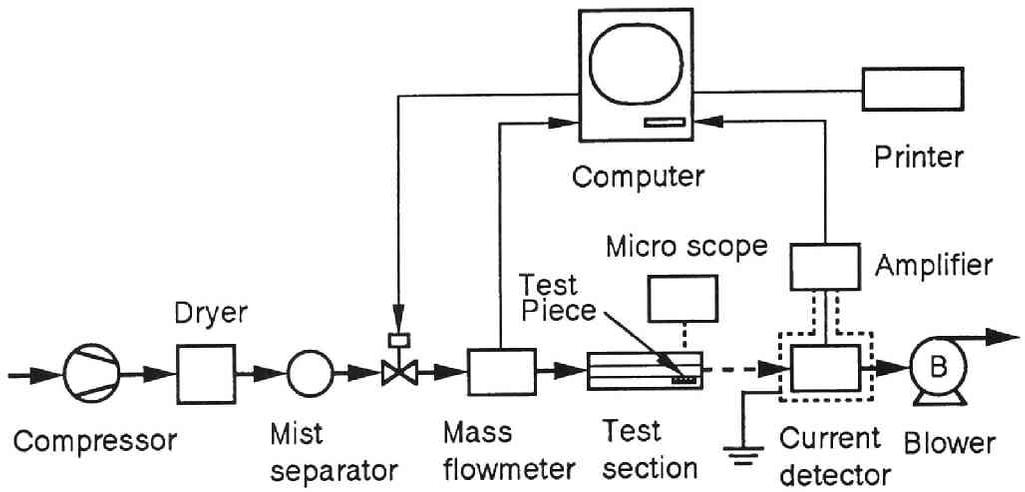


Fig. 8 • 1 Experimental apparatus

の汎用試験システムを構築するという観点から、小型化およびデジタル処理によるデータ解析の自動化を図った。なお、1回の測定で必要な粉体量は数mg以下であり、測定時間は約15分である。

粒子の飛散には乾燥した清浄圧縮空気を用い、空気流量は電磁弁をパソコンで制御して一定の割合で増加させた。テスト部の平均流速は、質量流量計の出力信号をパソコンに取り込んで求めた。なお、演算処理には容積式ガスメータにより検定した出力信号の補正計算が組み込んである。テスト部から排出されるエアロゾルは、飛散粒子検出器に吸引され、単位時間単位面積あたりの飛散量が求められる。すなわち粒子飛散フラックスは、飛散粒子が検出管に衝突するとき発生する微小電流の大きさから検定により求めることができる。静電気式検出法は感度が高いため、特に低濃度のエアロゾル粒子流の検出に適しており、検出管には内径6mm、長さ70mmのステンレス製(SUS 304)の短管を使用した。ステンレスは表面が硬い酸化膜で覆われているため、検出管としての経時的安定性に優れている<sup>7)</sup>。また、飛散粒子の衝突速度の変化によって発生電流の基準値がずれないように、検出管内の平均流速は常に一定に保つ必要がある。本装置のテスト部と検出器は配管では接続されておらず、テスト部を通過する圧縮空気の最大流量よりも検出部への吸引流量の方が大きくなるように設定してある。検出器で発生した微小電流は、増幅されたのち電圧に変換され、デジタル信号として自動的にサンプリングされる。サンプリング周期は100msであり、1回の測定で8000点(平均流速が $1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 増加する間に50点以上)のサンプリングが行われる。また、発生電流の最小デジタル入力単位は0.05pAであり、最大100pAの測定を行うことができる。なお、通常的环境下における室内のバックグラウンドは0.05pA以下であった。

テスト部は、上面にガラス窓のあるステンレス製の矩形流路(幅8mm、高さ1mm、全長135mm)であり、試料粉体を付着させるためのテストピース(幅8mm、長さ35mm)は助走距離100mmの後方に流路内面と同じ高さで設置される。テストピースの材質は任意に選べるが、ここでは汎用ステンレス材(SUS 304)を用い、表面仕上は通常の機械切削加工(中心線平均粗さ $0.1\sim 0.2\ \mu\text{m}$ )とした。試料粉体はTable 8・1に示すようにマイクロ

Table 8 • 1 Test powders used

No.	Material	$D_{p50}$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\rho_p \times 10^{-3}$ [ $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ]	$W/A_w \times 10^3$ [ $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ ]
1	Quartz powder (JIS Z8901-3)	7	2.7	1.7 ~ 4.6
2	Talc (JIS Z8901-4)	8	2.8	1.7 ~ 2.3
3	Talc (JIS Z8901-9)	4	2.8	1.7 ~ 4.0
4	Fly ash (JIS Z8901-5)	15	2.2	3.4 ~ 11.7
5	Fly ash (JIS Z8901-10)	5	2.2	3.4 ~ 8.6
6	Kanto loam (JIS Z8901-8)	7	3.0	1.1 ~ 5.7
7	Kanto loam (JIS Z8901-11)	2	3.0	2.3 ~ 4.6
8	Calcium bicarbonate (JIS Z8901-16)	4	2.8	1.7 ~ 4.0
9	Calcium bicarbonate (JIS Z8901-17)	2	2.8	1.1 ~ 2.3
10	Alumina (APPIE standard powder No.1)	3	4.0	1.7 ~ 3.4
11	Alumina (APPIE standard powder No.2)	5	4.0	1.7 ~ 4.0
12	Alumina CB-A05 (spherical particle)	3	4.0	1.7 ~ 2.9
13	Alumina WA-#320	44	4.0	5.7 ~ 17.2
14	Alumina WA-#1000	17	4.0	3.4 ~ 10.9
15	Alumina WA-#8000	1	4.0	2.9 ~ 4.0
16	Antimony trioxide	7	5.2	5.7 ~ 13.2
17	Antimony trioxide (fine)	4	5.2	0.4 ~ 11.5
18	Copper	20	8.9	1.7 ~ 3.4
19	Toner	12	1.2	0.6 ~ 1.7
20	Polymethyl methacrylate (PMMA)	7	1.1	1.7 ~ 4.0
21	Polytetrafluoroethylene (PTFE)	30	2.2	2.9 ~ 12.1

ンオーダの試験用ダストを中心とし、その他にアルミナ研磨剤、金属、高分子など幅広く選定した。試料粉体のうち、乾燥器（120℃）で変質しない無機酸化物については12時間以上乾燥して使用した。テストピース上への粉体の付着には、ふるいをを用いる方法を採用した。ふるいの目開きは、ミクロンオーダの微粉体が通常の振動で適量落下することを考慮して74 μm（200メッシュ）に統一した。エタノールで洗浄して自然乾燥させたテストピースの上面中央（幅6mm、長さ30mm）に試料粉体を重力落下させ、直ちに飛散試験を行った。

## 8. 2 実験結果および考察

### 8. 2. 1 装置特性

テスト部流路内の壁面近傍の流れは、粒子の飛散に直接関係するため特に重要である。一般に、壁面近傍の流れの解析には、次式で定義される摩擦速度  $u^*$  が用いられる。

$$u^* = \sqrt{\tau_w / \rho} \quad (8 \cdot 1)$$

ここで、 $\tau_w$  は壁面気流せん断応力であり、 $\rho$  は空気密度である。また、第2章で検討したように、壁面気流せん断応力は粒子飛散に関する分離強度と正比例の関係にあり、本装置の流路特性（壁面気流せん断応力と平均流速の関係）は予め求めておく必要がある。壁面気流せん断応力  $\tau_w$  は次式で与えられる。

$$\tau_w = \Delta p D_e / (4L) \quad (8 \cdot 2)$$

ここで、 $\Delta p$  は区間Lにおける圧力損失、 $D_e$  は流路の相当直径である。テストピースの装着位置に圧力タップ（間隔25mm）を取り付け、隔膜式微差圧計により圧力損失を測定した。Fig. 8・2の実線で示すように、壁面気流せん断応力は2つの領域に分けられ、いずれも平均流速に対してべき乗の関数で近似できた。なお、ここで得られた関数はプログラムに組み込みデータの解析に用いた。参考として、層流域と乱流域のそれぞれにハーゲンポアズイユの式とブラジウスの実験式を適用した結果を2本の破線で示す。

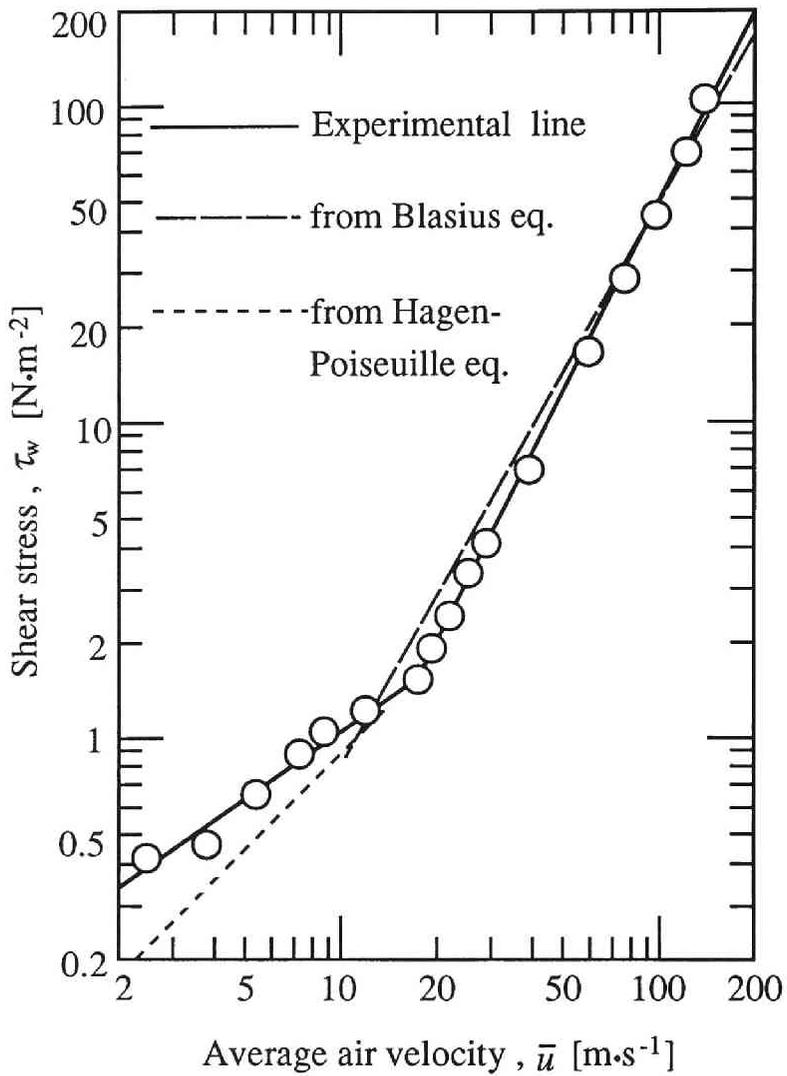


Fig. 8 • 2 Characteristics of flow

## 8. 2. 2 試料粉体の付着状態と飛散状態

テストピース上の試料粉体の付着状態を Fig. 8・3 に示す。中位径の小さい関東ローム(Z 8901-8) では島状に大きな凝集体が目だつ。一方、中位径の大きいアルミナ WA-#320は、大部分が一次粒子の状態であることが確認できる。

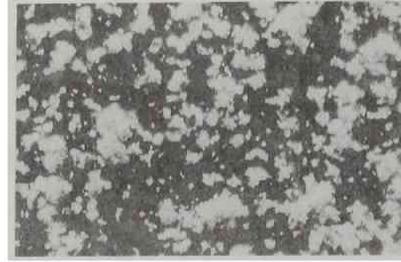
微粉体の飛散の進行過程を関東ローム(Z8901-8) とフライアッシュ(Z8901-5)を代表例として Figs. 8・4、8・5 に示す。微粉体の基本的な飛散傾向は類似しており、低流速では島状凝集体から比較的大きな凝集粒子が急激に飛散し、平均流速が数十  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  に達するとテストピース上には大きな凝集体はほとんど見られなくなる。気流の上昇に伴って小さな凝集粒子が連続的に飛散し続けるようになるが、一次粒子あるいはきわめて微小な凝集粒子は飛散しにくく、平均流速が  $100 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  を越えても粒子は極微量残存する。ただし、粉体の種類により凝集粒子の飛散の程度は異なる。また、アルミナ WA-#320のようにテストピース上に初めから凝集粒子がほとんどなく比較的大きな一次粒子のみが存在する場合には、飛散は比較的穏やかに進行する。

## 8. 2. 3 飛散粒子の検出と解析

アルミナ研磨材の飛散試験を例として、飛散粒子が検出管に衝突したときに発生する電流の経時変化の出力結果を Fig. 8・6 に示す。同図の最下段には平均流速の経時変化を示している。これらは、サンプリング毎に演算処理した結果を折線グラフにより表示し、それをハードコピーしたものである。瞬間的な飛散に対応してパルス状の電流が検出されるが、実際には検出管内で同時に複数の飛散粒子が衝突するため、パルス状電流が積算された状態で測定される。したがって、発生電流はテストピース上の粒子飛散フラックスに対応し、発生電流の全体的な増減から飛散傾向を読み取ることができる。さらに、発生電流の瞬間的な変動状態からも飛散に関する情報を得ることができる。すなわち、変動が大きい発生電流は不連続あるいは不均一な飛散状態を表し、逆に発生電流の変動が小さいときには連続的で均一な飛散が生じ



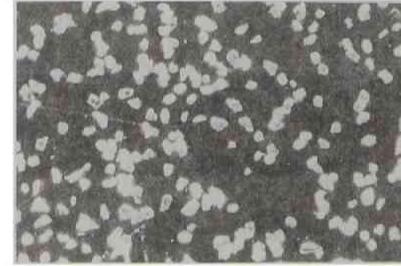
(1) Kanto loam (Z8901-8)  
 $D_{p50} = 7 \mu\text{m}$ ,  $W/A_w = 5.7 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$



(2) Fly ash (Z8901-5)  
 $D_{p50} = 15 \mu\text{m}$ ,  $W/A_w = 1.17 \times 10^{-2} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$



(3) Copper  
 $D_{p50} = 20 \mu\text{m}$ ,  $W/A_w = 2.9 \times 10^{-3} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$



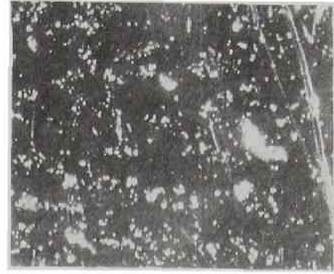
(4) Alumina WA-#320  
 $D_{p50} = 44 \mu\text{m}$ ,  $W/A_w = 1.21 \times 10^{-2} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$

0 500  $\mu\text{m}$

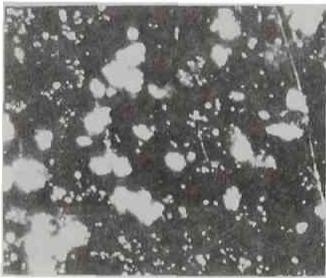
Fig. 8 • 3 Photomicrographs of test powders adhered on test piece



(1)  $\bar{u} = 0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



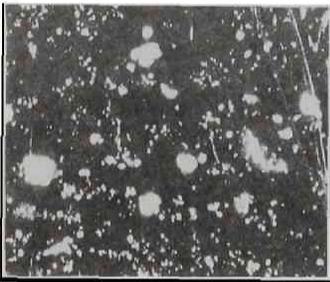
(4)  $\bar{u} = 25 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(2)  $\bar{u} = 3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(5)  $\bar{u} = 64 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(3)  $\bar{u} = 12 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(6)  $\bar{u} = 132 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

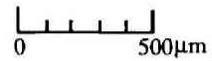
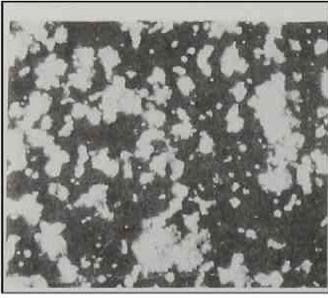
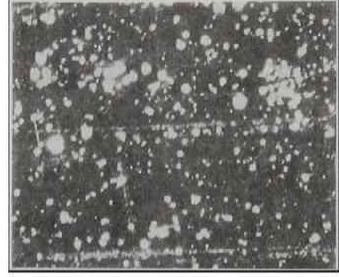


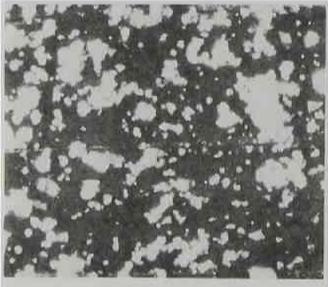
Fig. 8 • 4 Photomicrographs of particles remained on surface  
(Kanto loam, JIS Z 8901-8)



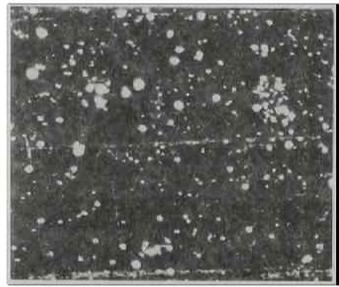
(1)  $\bar{u} = 0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



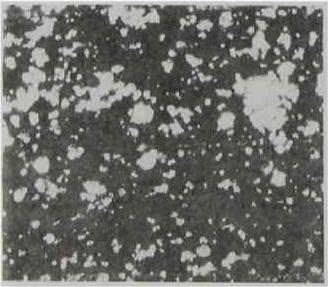
(4)  $\bar{u} = 29 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



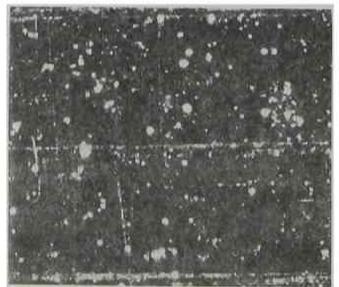
(2)  $\bar{u} = 5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(5)  $\bar{u} = 71 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(3)  $\bar{u} = 12 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$



(6)  $\bar{u} = 131 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

0 500 $\mu\text{m}$

Fig. 8 • 5 Photomicrographs of particles remained on surface  
(Fly-ash, JIS Z 8901-5)

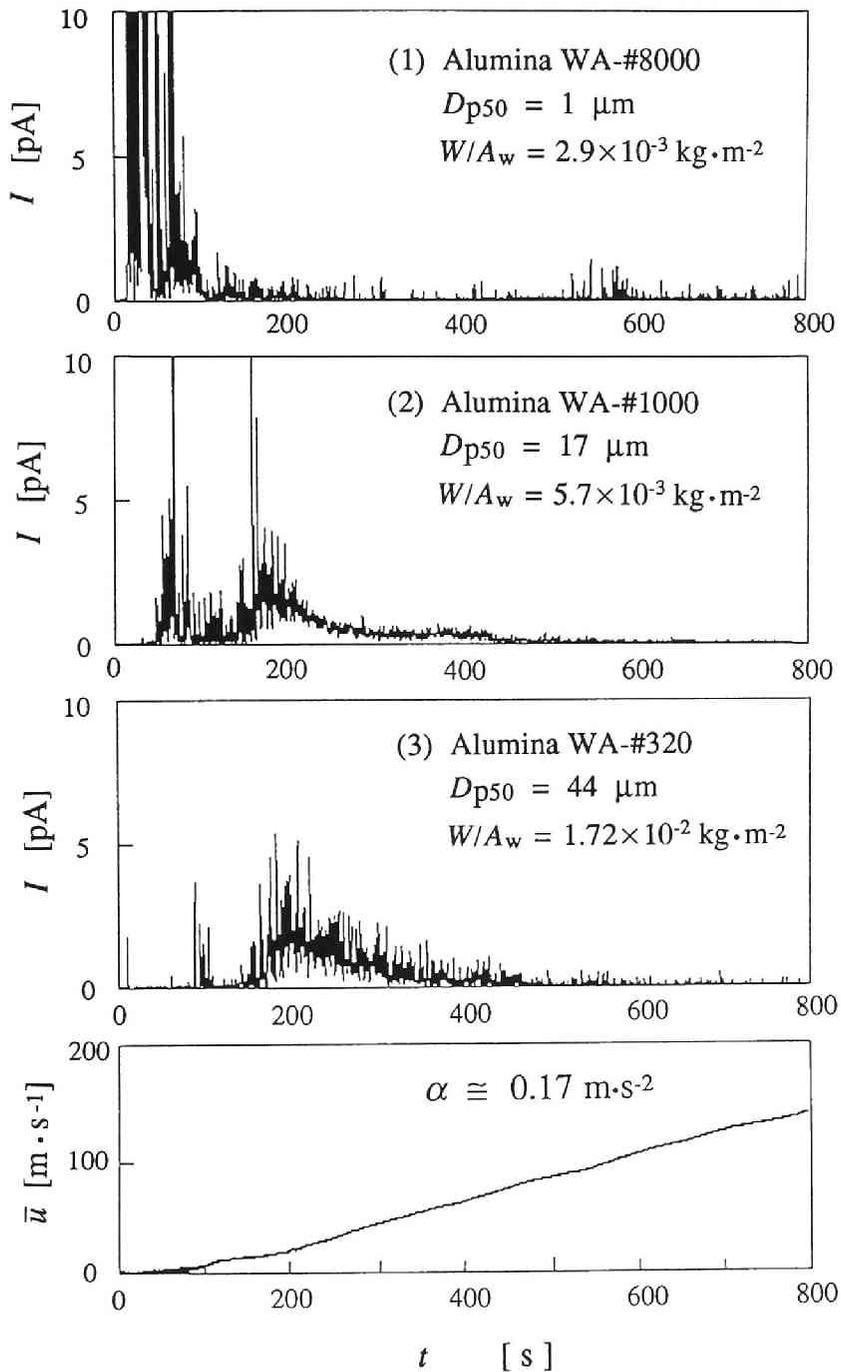


Fig. 8 • 6 Generated currents and average air velocity as a function of time elapsed

ていることを表す。基本的には、流速の増加とともに粒子が飛散しやすくなるため発生電流は大きくなるが、さらに飛散が続くとテストピース上に残存する粒子量が減少するため電流はしだいに小さくなる。このような発生電流は次に述べるように、粉体の特性によりいくつかのパターンを示すことがわかった。

Fig. 8・6では同質（アルミナ、WA）で中位径が異なる3種類（ $D_{p50} = 1, 17, 44 \mu\text{m}$ ）の粉体の飛散試験結果を示している。中位径の小さいWA-#8000（ $D_{p50} = 1 \mu\text{m}$ ）では低流速において発生電流が激しく変動するが、流速が高くなってこの状態が終了すると微小な電流が発生し続ける。8.2.2で述べたように、低流速における発生電流は比較的大きな凝集粒子の急激な飛散に対応し、不均一な飛散状態であることがわかる。流速が高いときの発生電流は小さな凝集粒子の飛散に対応するが、ここではその量はきわめて少ない。中位径が少し大きなWA-#1000（ $D_{p50} = 17 \mu\text{m}$ ）でも低流速において電流の発生が認められるが、WA-#8000と比較するとその値は小さい。しかし、さらに流速が高くなると再び電流が増加しはじめ最終的には緩やかに減少する。このとき、各瞬間の発生電流の下限値にも同様に増加と減少の傾向が見られるが、これはパルス状電流が連続的に発生し続けているためであり、微小凝集粒子あるいは一次粒子が連続して飛散していることを表している。中位径のさらに大きなWA-#320（ $D_{p50} = 44 \mu\text{m}$ ）では初めから凝集粒子がほとんどなく（Fig. 8・3（4）参照）、一次粒子の飛散に対応する電流の発生が明らかに認められる。このように、一次粒子径の違いは凝集性に影響し、テストピース上での粉体の付着・凝集状態が発生電流の経時変化に現われることが確認できた。

さて、発生電流の時間積分を行うと積算飛散量に対応する帯電量が求められるが、この帯電量を次式のように無次元化すると積算飛散率 $\eta$ を求めることができる。

$$\eta = \int_0^t I \, dt / \int_0^{t_e} I \, dt \quad (8 \cdot 3)$$

ここで、 $t_e$ は測定終了までの時間である。前述のアルミナ研磨材について、積算飛散率と平均流速の関係の出力結果をFig. 8・7に示す。本試験では、

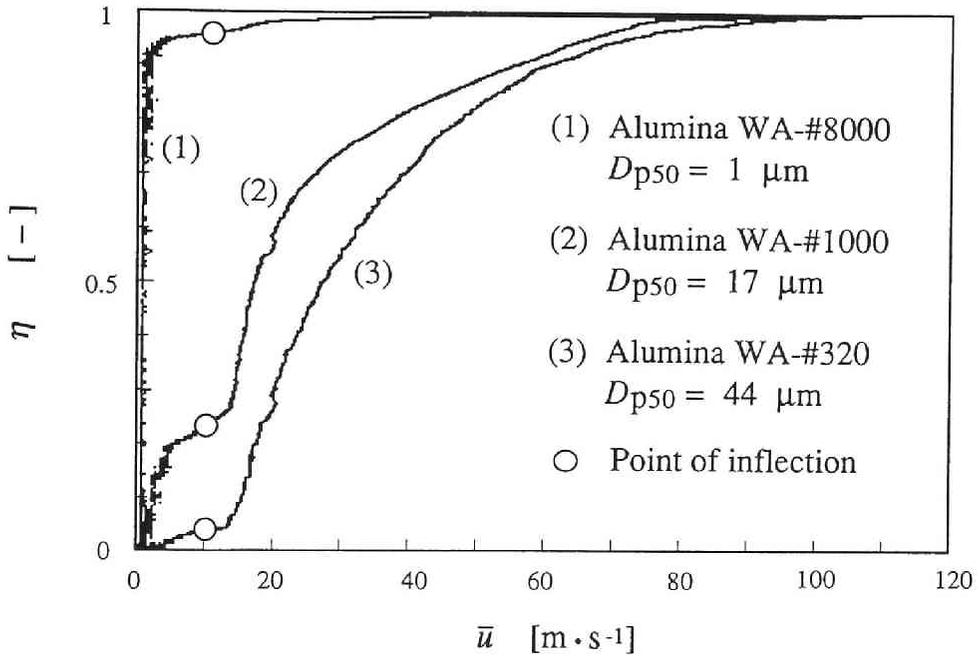


Fig. 8 • 7 Relationship between cumulative reentrainment efficiency  $\eta$  and average air velocity  $\bar{u}$

平均流速が増加し続ける動的な飛散の状態を測定しており、厳密には飛散率  $\eta$  に飛散の時間的な遅れの影響が含まれている。各粉体ともに平均流速の増加にしたがって飛散率  $\eta$  は増加するが、中位径によりその傾向に違いが見られる。ここで、低流速における比較的大きな凝集粒子の全粒子に対する飛散の割合を  $\eta_L$  と定義する。 $\eta_L$  は同図の○で示すように変曲点における飛散率である。 $\eta_L$  には顕著な違いが見られ、WA-#8000 ( $D_{p50} = 1 \mu\text{m}$ ) は  $\eta_L = 0.95$ 、WA-#1000 ( $D_{p50} = 17 \mu\text{m}$ ) は  $\eta_L = 0.25$ 、WA-#320 ( $D_{p50} = 44 \mu\text{m}$ ) は  $\eta_L = 0.05$  であった。一般に、中位径の小さいものほど飛散しにくいという考え方が受け入れられているが、これは一次粒子の飛散に対して適用すべきものであり、実際には粒子径が小さくなるほど大きな凝集粒子を形成しやすいことを考慮しないと、予測と結果が反対になることを示唆している。なお、テストピース上への粉体の付着量によっては初期の凝集状態が変化することも予想されるが、Table 1 に示す付着量の範囲では明かな影響は見られなかった。これは、粉体量が増加したとき、高さ方向に粒子が積み重なることよりもテストピース上での粉体の占有面積が広がる効果の方が大きいためと考えられる。当然のことながら、テストピースの表面が見えなくなるほど付着量が多い場合には、付着量が飛散状態に対して大きな影響を及ぼすことになる。また、比較的大きな凝集粒子の飛散は  $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  以下の低流速で見られ、微小凝集粒子あるいは一次粒子の飛散は  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  を超えると急速に進行しはじめる。なお、Fig. 8・2で示したようにテスト部での流れが大きく変化するの平均流速が  $19 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  のときであるが、このとき飛散状態にはきわだった変化がないことから、ここで得られた飛散結果は本装置に固有のものではなく、粉体操作特性の評価に、一般的に適用できるものと考えられる。

次に、積算飛散率  $\eta$  の平均流速  $\bar{u}$  に対する変化率を Fig. 8・8 に示す。これは、Fig. 8・6 に示した発生電流の経時変化を平均流速に対応させて表したものである。ここでは、瞬間的な発生電流の変動に隠されて見えなかった飛散のプロフィール全体を明確に読み取ることができる。すなわち、低流速において比較的大きな凝集粒子が飛散する割合と微小な凝集粒子を含む一次粒子が飛散する割合が一次粒子の中位径によって変化する様子を定量的に

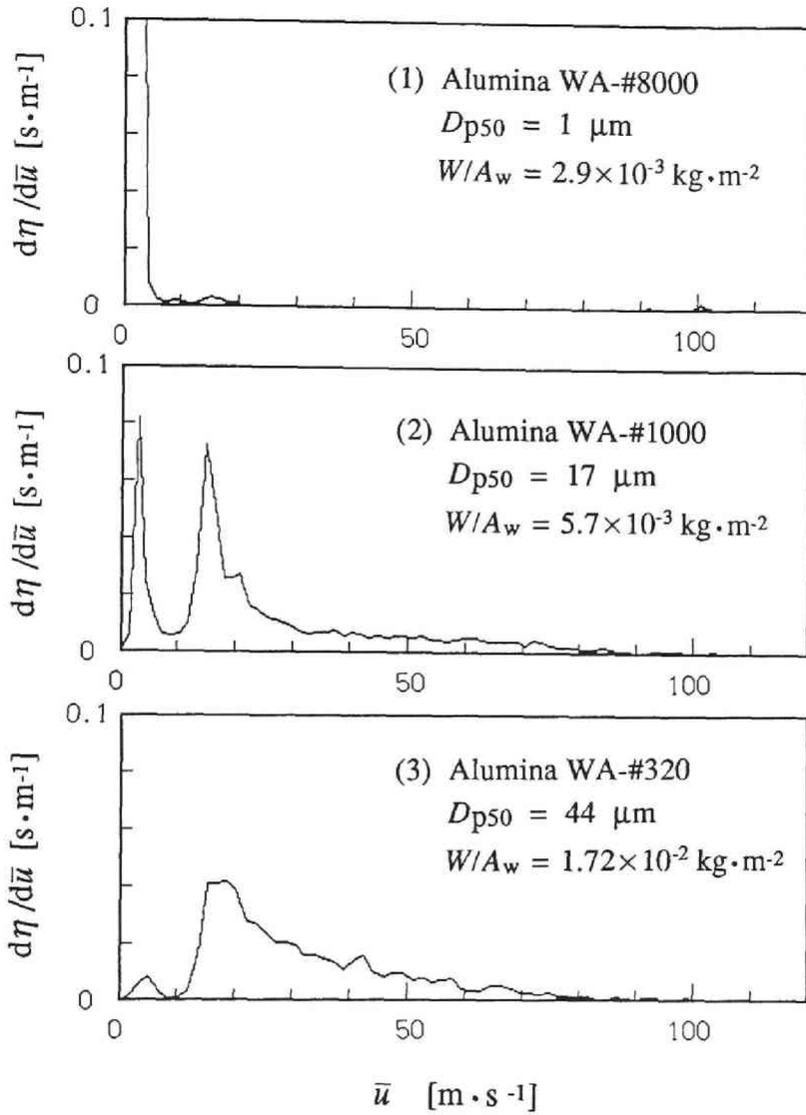


Fig. 8 • 8 Reentrainment efficiency distributions  $d\eta/d\bar{u}$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$

理解することができる。

#### 8. 2. 4 種々の粉体の飛散結果

中位径の異なる粉体の飛散傾向については前節で検討したが、ここでは中位径が  $4\sim 7\mu\text{m}$  の狭い範囲の各種微粉体の飛散を検討する。Fig. 8・9 に5種類の粉体の発生電流の経時変化を示す。粉体の種類により発生電流値が大きく異なるため、単純に相互を比較することはできないが、それぞれの発生電流の経時変化に違いが見られる。また、Fig. 8・10にはEq. (8・3)の積算飛散率  $\eta$  から求めた  $d\eta / d\bar{u}$  を示す。関東ローム(Z8901-8)と重質炭酸カルシウム(Z8901-16)は低流速における凝集粒子の飛散が支配的であり、タルク(Z8901-9)、フライアッシュ(Z8901-10)、白色溶融アルミナ (APPIE standard No.2)の順に低流速における凝集粒子の飛散の割合が減少していく様子がわかる。ここで示したのは代表的な結果であるが、その他の微粉体でも概ねこれらのプロフィールのいずれかにあてはまる。

次に、積算飛散率  $\eta$  の出力結果を Fig. 8・11 に示す。ここでは試験流路の大きさの影響を取り除いて実装置への適用を図るため、横軸には平均流速  $\bar{u}$  ではなく壁面気流せん断応力  $\tau_w$  を用いた。それぞれの曲線は、各粉体を同一の条件のもとで壁面に付着させたときの飛散に関する特性を示している。ミクロンオーダの微粉体を全く壁面に付着させないような特殊な条件が要求されるときには、壁面気流せん断応力をきわめて大きくしなければならないことがわかる。しかし、一般的な粉体プロセスでは付着量をコントロールすることも重要であり、飛散率  $\eta$  で示された特性曲線はそのような条件の選定に役立つものである。たとえば、実プロセスにおいて粉体の付着量を現在の  $1/n$  に減少させるためには、現プロセスの壁面気流せん断応力に対応する飛散率  $\eta_0$  から新しい条件での飛散率  $\eta_1$  を求め、 $\eta_1$  に対応する壁面気流せん断応力を新しい条件として与えればよい。なお、 $\eta_1$  と  $\eta_0$  には次の関係がある。

$$\eta_1 = 1 - \frac{1}{n} \frac{\eta_0}{\tau_w} \quad (8 \cdot 4)$$

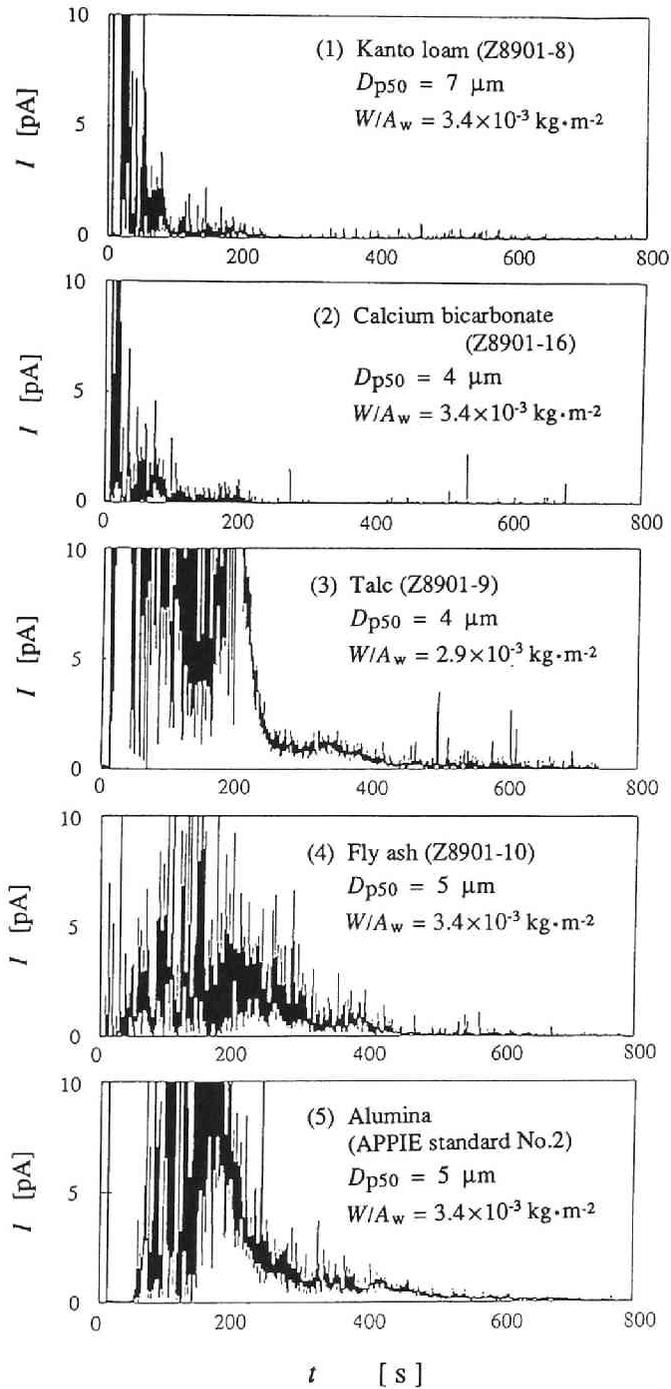


Fig. 8 • 9 Generated current as a function of time elapsed  
 $(\alpha = 0.17 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2})$

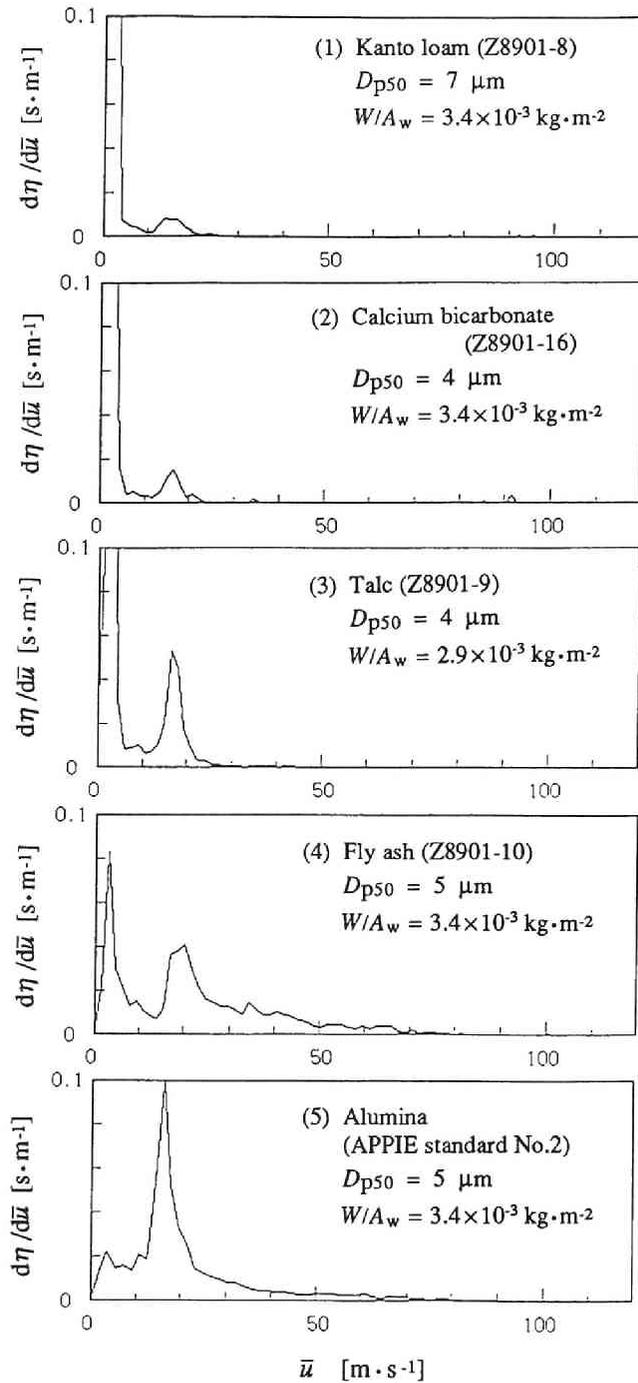


Fig. 8 • 10 Reentrainment efficiency distributions  $d\eta/d\bar{u}$  as a function of average air velocity  $\bar{u}$

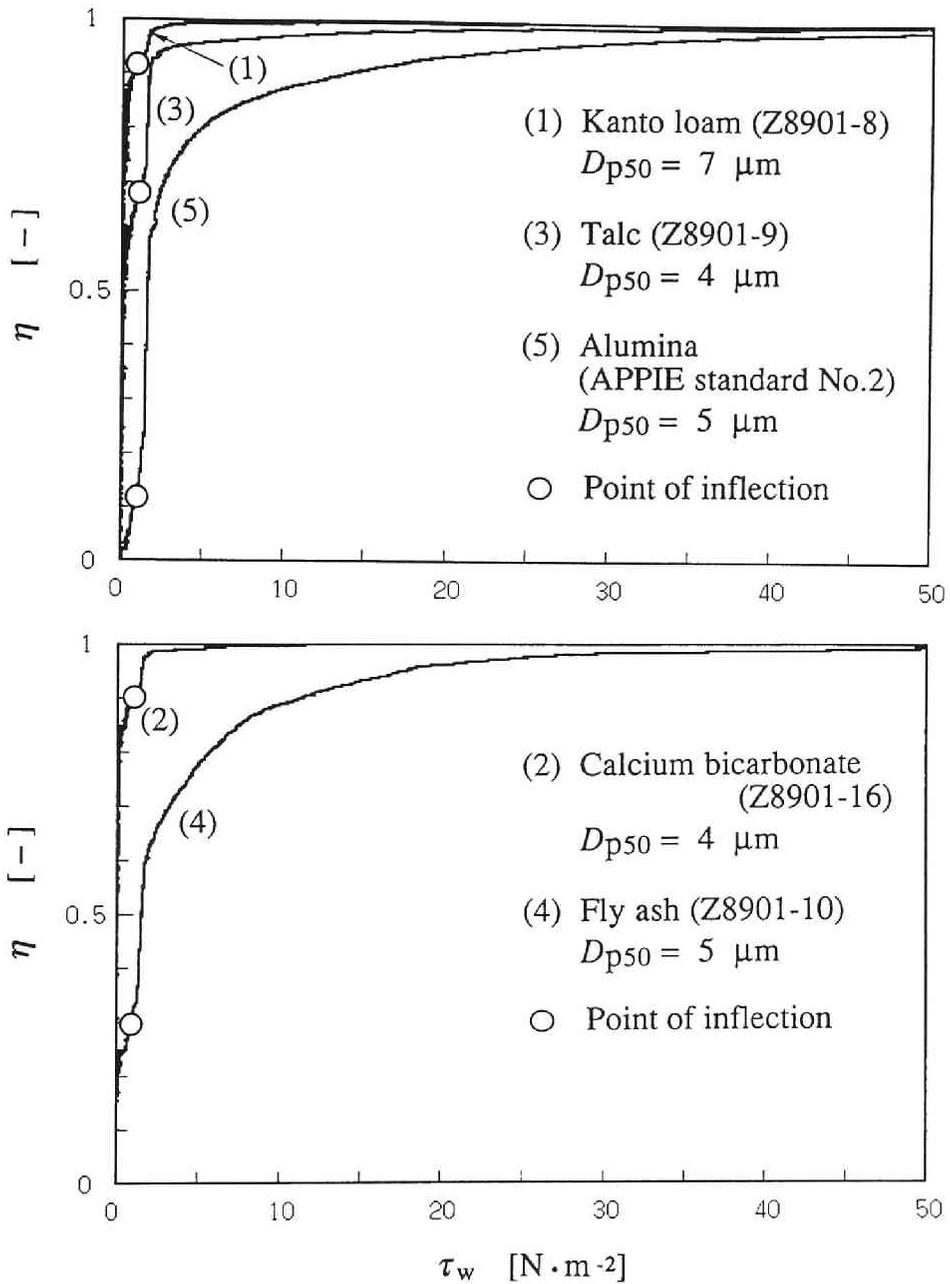


Fig. 8 • 11 Relationship between cumulative reentrainment efficiency  $\eta$  and shear stress  $\tau_w$

本試験では主に凝集粒子の飛散を対象としてきたが、低流速における大きな凝集粒子の飛散の割合  $\eta_L$  を全試料粉体について Fig. 8・12 にまとめた。ある程度のばらつきはあるが、粉体によりその特徴が現れており、 $\eta_L$  は凝集性と飛散性を含めた特性と考えることができる。 $\eta_L$  が 1 に近いほど低流速で飛散しやすいことを表している。すなわち、このような粉体は粒子-粒子間の付着性が大きく、大きな凝集粒子を作りやすい。逆に、 $\eta_L$  が小さいときには凝集体内部よりも凝集体-壁間の付着応力が大きく作用するような粉体である。特に、凝集性の極端に高いもの ( $\eta_L \cong 1$ ) と、逆に低いもの ( $\eta_L \cong 0$ ) については再現性はかなり良い。

最後に、静電気式検出法の各種粉体に対する適用性についても検討した。全試料粉体の単位質量あたりの帯電量  $q/w_p$  を Fig. 8・13 に示す。粉体には正に帯電するものと負に帯電するものがあるが、Fig. 8・13 は帯電列の一種と考えられる。試料粉体は無機酸化物の他に金属や高分子材も含まれており、 $q/w_p$  は  $10^{-2} \sim 10$  mC/kg のオーダーに及ぶ。これらはいずれも十分に検出することができた。

なお、試料粉体をテストピースに付着させる方法により粒子の壁面付着状態は異なり、飛散状態にも影響が現われるはずである。ここでは最も簡便なふるいを用いる方法を採用しているが、中位径による凝集状態の違いも模擬できており、穏やかに沈着した凝集粒子が飛散するようなプロセスに対しては実用的な方法と考えられる。しかし、適用するプロセスに応じて粒子の付着方法を見直す必要がある。すなわち、完全分散した一次粒子が沈着する場合、凝集粒子が沈着する場合、沈着するときの粒子慣性や壁面材質の影響、さらに環境条件などについても実プロセスにできるだけ近い条件を選定すべきである。これらの条件を満たすような付着方法を用いて測定することはさほど難しいことではなく、データの解析についても本報で述べた方法が十分に適用できると考えられる。

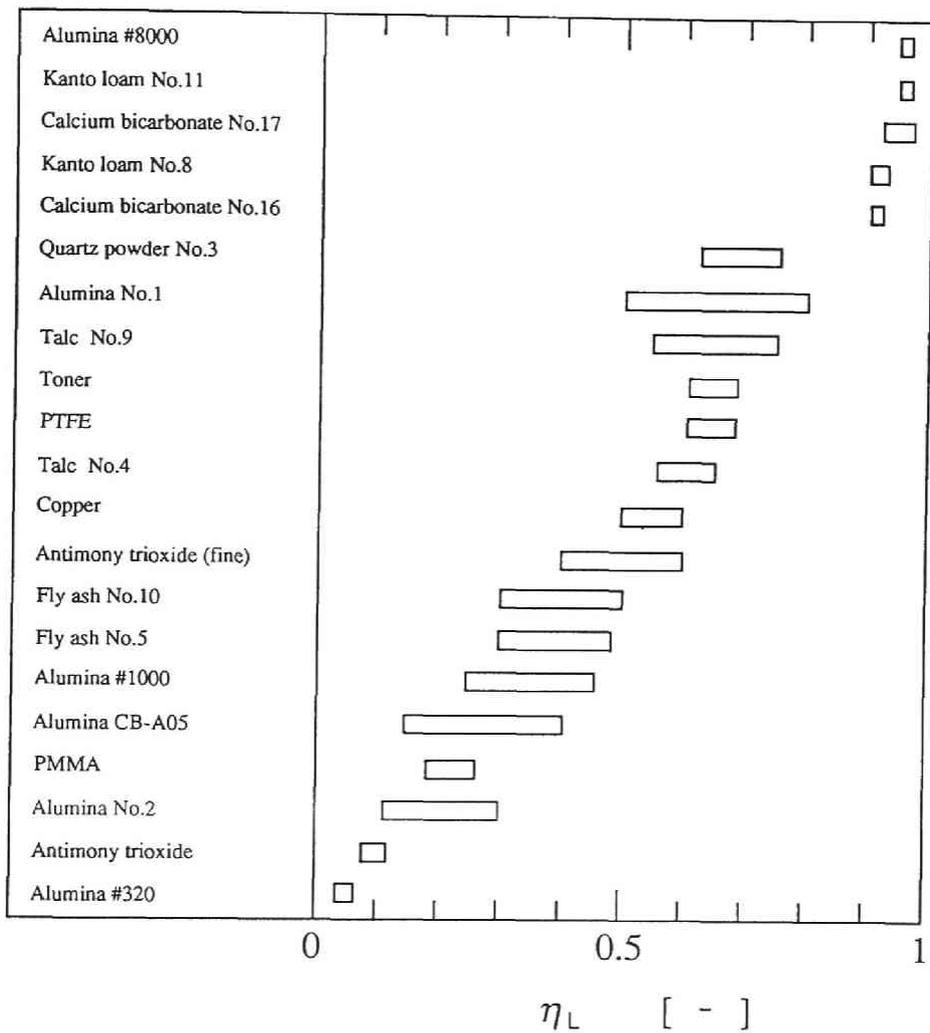


Fig. 8 • 12 Mass ratio of reentrained large aggregates to total particles  
(cf. Table 8 • 1)

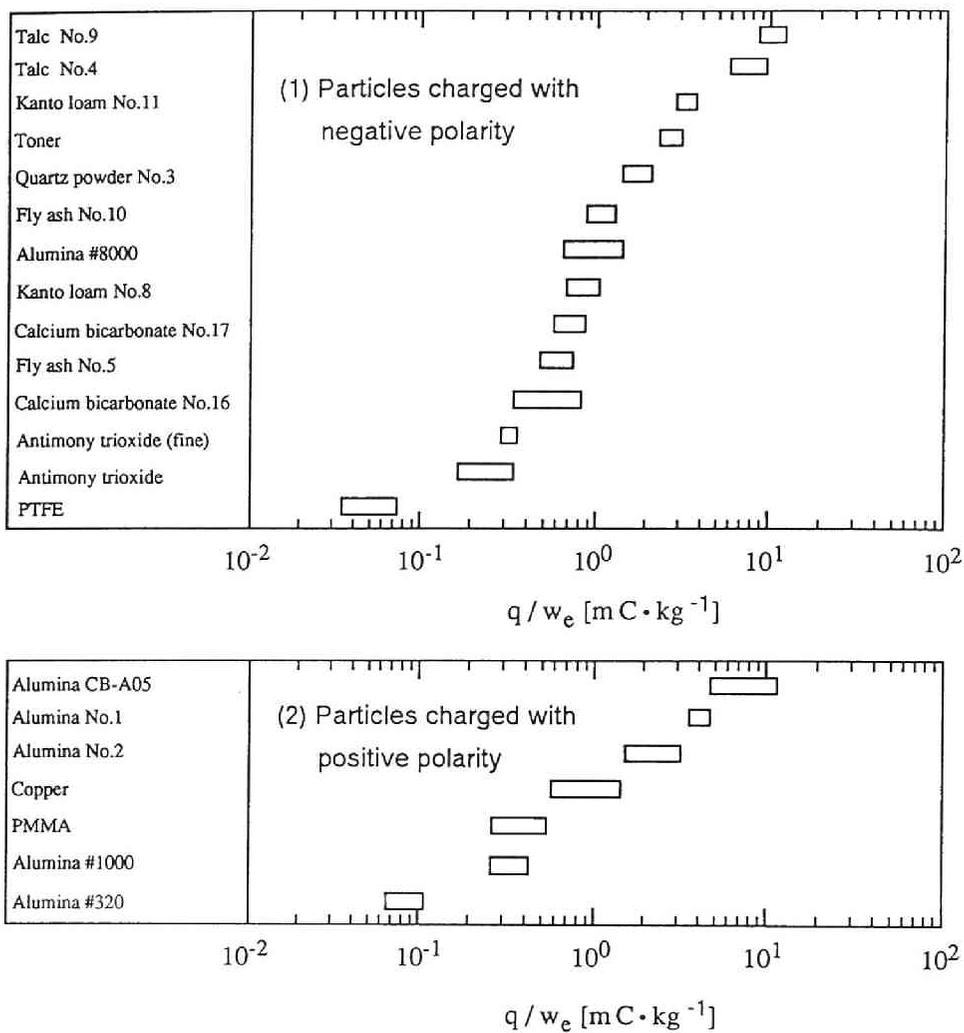


Fig. 8 • 13 Characteristics of particle electrification (cf. Table 8 • 1)

## 結 言

気流速度を連続的に増加させる方法により、種々の粉体の飛散試験を実施して以下の結論が得られた。

1) 静電気式検出法による発生電流値から、飛散のプロフィールを求めることができ、低流速における比較的大きな凝集粒子の不均一な飛散と高流速における微小凝集粒子あるいは一次粒子の均一な飛散とに大別されることがわかった。

2) 中位径の小さな粉体ほど凝集性が強く、低流速での飛散が支配的であるが、粉体の種類によって凝集性および飛散性に大きな差が認められた。

3) 発生電流の時間積分から積算飛散量に対応する帯電量を求めることができ、全飛散量に対応する帯電量で無次元化することにより積算飛散率を求めることができる。この積算飛散率と壁面気流せん断応力の関係は飛散に関する粉体特性曲線を与え、この曲線を用いて壁面に付着する粉体量をコントロールするための気流の条件を決定することができる。

## 使用記号

$A_w$	= 沈着粒子に覆われたテストピースの表面積	[ $m^2$ ]
$D_e$	= 流路の相当直径	[ $m$ ]
$D_{p50}$	= 質量中位径	[ $\mu m$ ]
$I$	= 検出管との接触帯電による発生電流	[ $pA$ ]
$L$	= 圧力タップ間距離	[ $m$ ]
$\Delta p$	= 圧力損失	[ $Pa$ ]
$q$	= 全電荷	[ $mC$ ]
$t$	= 経過時間	[ $s$ ]
$t_e$	= 測定時間	[ $s$ ]
$\bar{u}$	= 平均流速	[ $m \cdot s^{-1}$ ]
$u^*$	= 摩擦速度	[ $m \cdot s^{-1}$ ]

$w$	= 沈着粒子量	[ k g ]
$w_e$	= 飛散粒子量	[ k g ]
$\alpha$	= 気流加速度	[ m · s <sup>-2</sup> ]
$\eta, \eta_0, \eta_1$	= 飛散率	[ - ]
$\eta_L$	= 低流速において飛散する凝集粒子の割合	[ - ]
$\rho$	= 空気密度	[ k g · m <sup>-3</sup> ]
$\rho_p$	= 粒子密度	[ k g · m <sup>-3</sup> ]
$\tau_w$	= 壁面気流せん断応力	[ N · m <sup>-2</sup> ]

## 引用文献

- 1) Ikumi, S., H. Wakayama and H. Masuda : *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 12, 589 (1986)
- 2) Kousaka, Y., K. Okuyama and Y. Endo : *J. Chem. Eng. Japan*, 13, 143 (1980)
- 3) Kanaoka, C., H. Emi, N. Kikukawa and T. Myojo : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 24, 233 (1987)
- 4) Reeks, M. W., J. Reed and D. Hall : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 21, 574 (1988)
- 5) Wen, H. Y. and G. Kasper : *J. Aerosol Sci.*, 20, 483 (1989)
- 6) Wang, H. C. : *Aerosol Sci. Technol.*, 13, 386 (1990)
- 7) Masuda H. : *Kagaku Kogaku*, 54, 431 (1990)

## 第9章 結 論

工業製品に対する高品質化・高機能化の要求に対応して、エアロゾル微粒子に関する単位操作の技術レベルは確実に進歩してきたが、機器の性能が高くなるにつれて、壁面沈着粒子の再飛散の影響が注目されるようになった。特に、沈着粒子量が増加して粉体層を形成するようになると、凝集粒子が比較的容易に再飛散する。本論文は、微粉体層から凝集粒子が再飛散するときの現象を解明し、再飛散の予測とコントロールを可能にすることを目的として、理論的および実験的に検討を行った結果をまとめたものであり、各章ごとに得られた成果は以下のとおりである。

第2章では、微粉体層表面から凝集粒子が気流により再飛散するときの機構を解明するために、応力バランスを基礎とするモデルを立てて理論的な検討を行った。粉体層表面の微小粗さの突出部を球形凝集粒子が粉体層内に埋まった状態とみなして、凝集粒子に働く流体効力に基づく粉体層内部応力を求める理論式を誘導した。主な粉体層内部応力は曲げ応力とせん断応力であり、どちらも壁面気流せん断応力と無次元形状因子を用いて表すことができた。ただし、無次元形状因子は仮想球形凝集粒子の位置により変化し、曲げ応力とせん断応力ではそれぞれ異なる関数で表される。理論計算の結果、凝集粒子の再飛散には曲げ応力の方が有効であることがわかった。曲げ応力が作用すると粉体層内に引張応力が生じて破断することから、凝集粒子と粉体層との付着強度についてはRumpfの引張破断強度を用いて検討した。低湿度条件での粒子間付着力をファン・デル・ワールス力で近似すると、粉体層の引張破断強度が一次粒子径に反比例することがわかった。また、矩形空気流路を用いて再飛散実験を行い、飛散開始流速を超えると凝集粒子が粉体層の全表面からランダムかつ連続的に飛散することを確認した。飛散開始流速および飛散限界気流せん断応力は、充てん率が高いほど、一次粒子径が小さいほど、あるいは粉体層の表面粗さが小さいほど大きくなり、逆に飛散凝集粒子径は小さくなることがわかった。飛散限界気流せん断応力はRumpfの粉体層引張破断強度とよく対応することが確認され、最大曲げ応力と引張破断強

度との均衡から無次元形状因子を推算した結果、仮想球形凝集粒子の約1/2が粉体層内に埋まった状態に相当することもわかった。

第3章では、微粉炭燃焼におけるフライアッシュの集塵操作のような高温再飛散現象を想定し、電気炉を用いて400℃までの再飛散実験を行い、第2章で提案したモデルを用いて結果を解析した。その結果、粒子間付着力の温度依存性を考慮すれば、高温においても飛散限界気流せん断応力は  $R_{umpf}$  の粉体層引張破断強度と対応することが確認された。再飛散実験により得られた飛散限界気流せん断応力の変化から、200℃までは比較的飛散しやすく、温度が上昇するにつれて飛散しにくくなり、260℃を超えると再び飛散しやすくなることがわかった。高温での付着力をファン・デル・ワールス力で近似すると、200℃から260℃にかけて飛散しにくくなるのは、粒子間の吸着水の離脱による Hamaker 定数の変化を考慮することにより、また260℃を超えると再び飛散しやすくなるのは、粒子表面の粗さの増加を考慮することにより定性的に説明することができた。

第4章では、飛散フラックスの経時変化を予測するために、微粉体層内の付着強度分布、凝集粒子の飛散に伴う粉体層表面の更新効果および気流の時間的空間的変動による飛散の時間的な遅れを考慮して数学的モデルを立て、実験結果と比較検討した。付着強度を飛散限界気流せん断応力で表わしたとき、その分布が対数正規で近似できることが実験により確かめられた。付着強度分布と粉体層表面更新モデルを組み合わせることにより、任意の流速における飛散可能量を推定することができるようになった。さらに、再飛散現象は短い遅れの飛散と長い遅れの飛散から成り、定常流における飛散フラックスの経時変化は簡単な指数関数の一次結合で表すことができた。また、定常流に達するまでの気流加速度は、加速時のみならず定常流での飛散フラックスにも影響を及ぼすことが実験的にも、モデルによる推算からも確認され、スタートアップ時等に見られる加速流は再飛散現象の重要な要因となることがわかった。

第5章では、空気加速流による再飛散現象への影響について理論的および実験的検討を行った。飛散フラックスは平均流速とともに増加し、増加の割合も流速とともに大きくなること、および飛散フラックスは気流加速度には

は正比例することがわかった。また、飛散開始流速は気流加速度の増加とともに低下するが、気流加速度が小さいほどこの影響は顕著に現われることが明らかになった。なお、これら空気加速流による再飛散現象は、第4章で提案した非定常再飛散モデルによる推算結果とよく一致することが確認された。

第6章では、円管内乱流で沈着と再飛散が同時に進行するときに形成される沈着層について実験的検討を行った。沈着形状は初期形状によらずエアロゾル流の平均流速に依存し、平均流速が小さいとき沈着層は内壁全面に様に形成されるが、平均流速の増加とともに沈着層を形成しない部分が現われ、沈着層の形状は縞状に変化した。このとき縞状沈着層の内壁面に対する面積占有率は平均流速が増加するにつれて低下した。沈着層の厚さは流速の増加に対して飛散限界凝集粒子径と同様の傾向で減少するが、粘性底層内の速度分布に依存することが明らかになった。また、平均流速が大きいほど沈着フラックスは大きくなるが、飛散開始流速を超えると飛散フラックスも大きくなるため、沈着層の成長速度が最大なるような平均流速が存在することがわかった。また、飛散フラックスは経過時間とともに単調に増加し、最終的には沈着フラックスに等しくなることが確かめられた。さらに、エアロゾル流は空気流に比べて再飛散を促進する効果があることが認められた。

第7章では、円管内壁に形成させた微粉体層を用いて気流のみによる再飛散実験および気流中に $300\mu\text{m}$ 程度の粗粒子を微量添加した固気二相流による再飛散実験を行った。気流のみによる再飛散実験では、微粉体を密に充てんとすると、比較的大きな凝集体が不均一に飛散することがわかった。この傾向は球形粒子のフライアッシュよりも薄片状のタルクの方が顕著であった。固気二相流では、飛散は均一かつ安定しており、飛散後の粉体層表面は滑らかであった。飛散開始流速は、粗粒子の混合比によらず気流のみのときに比べて約 $1/4$ に低下させることができた。

第8章では、これまでに得られた知見を活かし、様々な粉体の飛散に関する特性を評価するための試験システムを開発した。気流速度を連続的に増加させることにより壁面上の粉体を飛散させ、静電気式検出法により飛散粒子を連続測定した結果をパソコンに取り込んでデータ解析の自動化を図った。ここでは、試験用ダストの他に金属や高分子などを含む21種類の粉体について

て再飛散実験を行った。静電気式検出法の発生電流の経時変化から求めた飛散プロフィールから、低流速における比較的大きな凝集粒子の不均一な飛散と高流速における微小凝集粒子あるいは一次粒子の均一な飛散に大別されることがわかった。中位径の小さな粉体ほど凝集性が強く、低流速での飛散が支配的であるが、粉体の種類によって凝集性および飛散性に大きな差が認められた。また、発生電流の時間積分から積算飛散量に対応する帯電量が得られ、全飛散量に対応する帯電量で無次元化することにより積算飛散率を求めた。この積算飛散率と壁面気流せん断応力の関係は飛散に関する粉体特性曲線を与え、この曲線を用いて壁面に付着する粉体量をコントロールするための気流条件を決定することが可能になった。

以上、本研究で得られた成果について述べた。微粉体層からの粒子再飛散機構および飛散の経時変化は本論文で提出したモデルにより説明でき、集塵・分級・分散などの単位操作、あるいはエアロゾルの輸送配管やダクト、さらに粉体プロセス評価のためのエアロゾルサンプリング導管内での再飛散現象にも適用できる。本モデルは、壁面近傍の気流の流れを考慮して再飛散現象を解析しており、壁面気流せん断応力が同一であれば、基本的には同じ再飛散現象が生じるため、スケール・アップした場合にも適用可能と考えられる。ただし、拡大・縮小・曲がり管あるいは凹凸を持つ壁面における再飛散現象や気流以外の外力が加わるときについては検討が行われておらず、今後、研究を進めていかなければならない。また、沈着・再飛散同時現象の検討により、沈着層の形状および沈着量の変化について明かにしたが、沈着層の微視的な形成メカニズムやエアロゾル微粒子による飛散促進効果の理論的な解明については今後の課題として残されている。さらに、粉体操作特性を評価するために開発した飛散試験システムのアプリケーションについても検討の余地がある。

超微粒子の製造に見られるように工業粉体のファイン化は今後一層進むと予想されるが、微粒化に伴って品質管理は格段にきびしくなり、諸現象の解明を踏まえたハンドリング技術の確立が必須条件になるであろう。メンテナ

ンス・フリーを考慮すると、実用レベルではようやくミクロンオーダーに達したところであり、本研究の成果がエアロゾル微粒子にかかわる機器設計や操作条件の選定に参考となれば幸いである。

## 謝 辞

本研究を行なうにあたり、終始ご指導、ご教示を賜りました京都大学工学部化学工学教室 増田弘昭教授に心から感謝の意を表します。

また、本研究にご理解とご助言をいただきました京都大学東谷 公教授ならびに京都大学高橋幹二教授に厚くお礼申し上げます。さらに、研究室においてご協力いただきました後藤邦彰助手をはじめ研究室の皆様に深く感謝いたします。

本研究をすすめるにあたって実験と解析にご協力いただいた当時の広島大学大学院生および学部学生の生三俊哉、住浦康弘、岡西茂実の諸氏ならびに京都大学大学院生および学部学生の清水正信、中村泰隆、青柳晃夫、今村維克の諸氏に改めてお礼申し上げます。



