

回転円筒およびチューブミル内を通過する粒子の 滞留時間分布について

杉本益規 田中達夫

Residence Time Distribution of Particles Passing
through a Rotating Cylinder and a Tube Mill

by Masunori SUGIMOTO and Tatsuo TANAKA

Abstract

The writers carried out experiments on the dynamic characteristics of solid particles passing through a continuous open-circuit tube mill, 18 cm i.d. and 80 cm long, and four rotary glass cylinders, 8.3 cm i.d. and ranging from 40 cm to 160 cm in length, where no crushing occurred. After the steady state is reached, potassium dichromate was charged, as a tracer, almost instantaneously at the inlet of the mill or the glass cylinders as case may be. From this instant, series of samples in a specified amount were taken out at the exit at appropriate intervals. The potassium dichromate in the sample was dissolved in boiling water and the solution was filtered, and its concentration was determined by colorimetry.

The results were :

1) The amount of the tracer which was discharged from the outlet of the mill and the glass cylinders followed approximately a logarithmic normal distribution with respect to the time. This tendency was independent of the filling of balls charged in the mill, the rate of feeding particles and speed of the rotation and the inclination of the cylinders.

2) The behavior of particles passing through was expressed in terms of "the fraction of the piston flow", recently proposed by Nagata and his co-workers.^{1) 2)}

3) It was found that there was a close relationship between the fraction of the piston flow and the dimensionless group, F/nL , which was obtained as a result of dimensional analysis. The empirical equations obtained were as follows :

$$\text{A) } I' = 1 - \exp \left\{ -133.2 (F/nL)^{1/2} \right\}$$

for the rotary cylinders with no crushing,

$$\text{B) } I' = 1 - \exp \left\{ -65.3 (F/nL)^{1/2} \right\}$$

for the tube mill.

where I' is the fraction of the piston flow, F is the feed rate expressed by the volume per unit time per unit cross sectional area of the cylinder, n is the speed of rotation and L is the length. As is seen from the equations, when F/nL approaches 0, the particles assume the complete mixing flow, and when it becomes larger the flow mechanism approaches the piston flow. Balls charged in the mill are supposed to promote the mixing action in the direction of the axis of rotation.

1. まえがき

連続供給回転装置はロータリーキルン、回転乾燥機あるいはチューブミルなど広く使用されているが、この中を流れる粒子の動特性についてはほとんど報告がない。しかし粒子の流動機構と操作条件の関係を具体的に知って置くと、反応率や物質移動量あるいは粉碎における碎製物の粒度分布などの解析に一層正しい基礎を与え、合理的な設計に役立つ。筆者らは粉碎媒体を装入したときと、しないときの両方について回転数、その他の変数を加えて実験を行ない、永田氏ら¹⁾²⁾³⁾の提案による層流率によってまとめ、かなり広い範囲に適用できる関係をえたのでここに報告する。

2. 実験装置および実験方法

実験装置は Fig. 1. に示すように連続式回転ガラス円筒(図G)およびチューブミル(図M)を使用した。円筒およびミルの回転数は、回転数自由に変えることのできる可変抵抗器付きの直流電動機を使用し、広範囲に変えた。粒子の供給量の調節はポッパーHの出口を開閉することにより行なった。

1) 粉砕媒体を装入しない場合の実験法

Table. 1. に示すように、内径 8.3 cm、長さ 40~160 cm の各種のガラス円筒を使用し、その各円筒の出口の部分に、口径 3.8~8.3 cm の各種の出口堰を作り、それらをとりつけられるように工夫し、各円形の出口堰についても実験を行なった。

さらに円筒の傾斜角は Fig. 1. のねじ B を調節し、 0° ~ 4° の範囲内で各角度 (Table. 1.) に固定して実験を行なった。試料としての粒子は川砂を用いた。川砂はあらかじめ、その中に含まれている土じょうを洗滌、分離した後、十分乾燥して 24~48 mesh のものを用いた。トレーサーとしては同一粒径の重クロム酸カリウムを用いた。

先ず上述の方法にて粒子の供給量を Table. 1. に示すように 180~830 g/min. の範囲の各量に一定に調節し、回転数は 17~124 r.p.m. の範囲内で各回転数 (Table. 1.) に一定に保って実験を行なった。

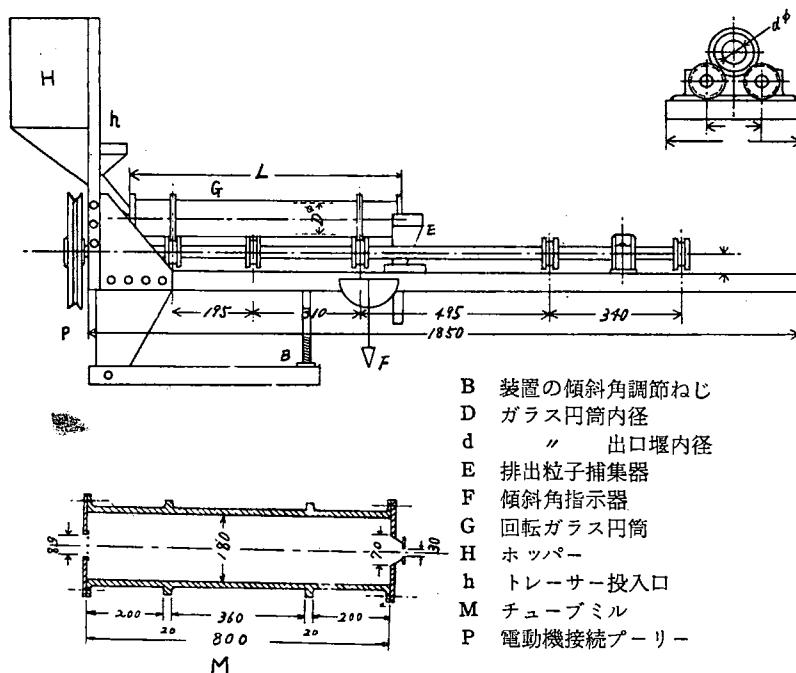


Fig. 1. Experimental Apparatus

円筒の運転後、定常状態に達した後、ホッパよりトレーサーを瞬間的に 3.000 g. を投入し、同時にストップウォッチで時間を測定し、5秒間隔で連続的に円筒の出口から排出される粒子を採取し、この試料中に含まれている重クロム酸カリウムを熱湯にて溶解し、調整した重クロム酸カリウムの標準液と比色定量分析を行なった。

2) 粉碎媒体を装入した場合の実験法

ガラス円筒を除いては、1)の場合と同じ装置を使用した。ガラス円筒の代りに内径 18 cm 長さ 80 cm の鉄製チューブミルを使用し、その出口に口径 5.8 cm の円形の出口堰をとりつけ、さらにその出口孔には粉碎媒体である鋼鉄製ボールがとび出さない程度に針金で堰をとりつけた。ミルの中には粉碎媒体の鋼球、1" と 7/8" を混合してミルの内容積に対してボールの見かけの容積 20 % および 30 % を装入した。試料として川砂（主に 16~100 mesh）、および石灰石* を用いた。トレーサーとして同一粒径の重クロム酸カリウムをホッパにより約 4 g 精秤して投入した。ミルの傾斜は常に水平に保って実験を行なった。Table. 1. に示すように粒子の供給量は 94.2~795 g/min. の範囲内において、回転数は 15.2~82 r. p. m. の範囲内の各種一定に調節し保った。試料の採取はミルの出口より 2 分間間隔で 1 分間の試料を採取した後、試料中の重クロム酸カリウムを熱湯にて溶解し、濾過、分離し、その濾液を光電光度（比色）計によって重クロム酸カリウムを定量した。なお石灰石の試料の場合にはあらかじめ石灰石の飽和溶液を用いて重クロム酸カリウムの検量曲線を作りこれによって定量した。投入量と総排出量は図積分によって求めた結果 ± 5 % 以内にて一致した。

Table. 1.

	長さ <i>L</i> (cm)	内 径 <i>D</i> (cm)	堰の内径 <i>d</i> (cm)	粒子の供給量 <i>f</i> (g/min.)	回 転 数 <i>n</i> (r.p.m.)	傾 斜 角 <i>α</i> (°)
ガラス円筒	40	8.3	3.8 5.3	180 234 267	17 30 55	0 0.35
	69		6.0 7.0	474 483 612		1 2 3
	120		8.3	816 830	75 100 124	4
	160					
チューブミル	80	18	5.8	94.2 108 192	15.2 31 67	0
				240 270 280	75 78 81.5	
				286 402 795	82	

3. 実験結果とその整理

1) 層流率 *I* とその適用

流通系装置内の流体の流動は一般に押し出し流れと完全混合の流れとの組合せられた中間の状態であると考えられる。この混合状態の解析の一つとして層流率 *I* が永田氏らによって提案された。すなわち、永田氏らは多段翼攪拌液相連続反応装置内において液の一部分、その比率 (*I*) は押し出し流れをなし、他の部分、その比率 ($1 - I$) は完全混合流れをなすものと仮定し、この二種の流れの合成された混合状態を模型的に表わそうとするものである。

今、装置内のトレーサーの残余濃度曲線は実測値を点綴すれば、Fig. 2. の曲線⑥のように表わされる。これを半対数紙上に点綴すると、 $\phi (= t/\theta)$ (但し *t* は測定時間、 θ は見かけの滞留時間) のある値の後に直線的に減少する。ここで押し出し流れと完全混合流れの場合は次の両式にて示されることは良く知られている。

* 重クロム酸カリウムと石灰石の粉碎性は殆んど等しい⁵⁾

$$\begin{array}{ll} \text{押し出し流れの場合} & 0 < \phi \leq 1 \quad \left. \frac{C}{C_o} = 1.0 \right\} \\ & 0 \quad \phi > 1 \quad \left. \frac{C}{C_o} = 0 \right\} \end{array} \quad (1. a)$$

$$\text{完全混合流れの場合} \quad 0 \leq \phi \quad \frac{C}{C_o} = e^{-\phi} \quad (2. a)$$

但し、 C は装置内のトレーサーの残余量 C_o は装置内のトレーサーの初期の量

これらを図示すると Fig. 2 のように押し出し流れの場合には直線①によって、完全混合流れの場合は曲線③によって表わされる。これらはいずれも半対数紙上に点綴すれば直線となる。そこで押し出し流れと完全混合流れとが同時に組合わされた場合には、前者の流れの比率 I 、後者の流れの比率を $(1 - I)$ とした場合の模型を理論的に示せば曲線⑤のようになり $\phi = 0 \sim I$ の区間にて直線を有する曲線となる。この模型はまた次式によって示される。

$$\begin{array}{ll} 0 < \phi \leq I & \left. \frac{C}{C_o} = 1.0 \right\} \\ I < \phi & \left. \frac{C}{C_o} = e^{-S(\phi-I)} \right\} \end{array} \quad (3. a)$$

$$\begin{aligned} \int_0^\infty \left(\frac{C_o}{C} \right) d\phi &= \int_0^I d\phi + \int_I^\infty e^{-S(\phi-I)} d\phi \\ &= [\phi]_0^I + [e^{-S(\phi-I)} / S]_I^\infty \\ &= I + \frac{1}{S} \end{aligned} \quad (4. a)$$

しかも物質収支より (1. a) 式によって示される直線 OABC によって囲まれた面積と等しい筈であるから

$$1.0 = I + \frac{1}{S} \quad (5. a)$$

となり、(5. a) 式は当然満足される筈である。但し式中の S はいずれも (3. a) 式を半対数紙上に示したときの直線の勾配である。したがってある流動状態が層流率で近似的に仮定されるならば、(5. a) 式は近似的に満足される筈である。永田氏らは、今 Fig. 2 の実測値 ⑥を数対数紙上に点綴すると ϕ のある値の後に直線的に減少を示す（それらの一例

は Fig. 5. に示されている。）ことから、この直線を延長して（これは Fig. 2 の曲線⑥の延長した点線に相当する。）、これが $C/C_o = 1.0$ の横軸と交わる切片の値 I' とすれば、 I は決定するが、多くの場合 (5. a) 式は満足されない。このことから当然 I の適用範囲に限界があると報じている。このことをもう少し考えてみると (5. a) 式を満足されるには、 $\phi = 1.0$ のときに $C/C_o = 1/e \approx 0.367$ の値を示す場合のみ (5. a) 式が満足されうることになる。このことから筆者らは永田氏らの層流率の決定方法において、次のように時間のパラメーターを補正することによって、その I の適用範囲が拡大されうるものと考えた。すなわち、時間のパラメーターであるところの円筒およびミル内を

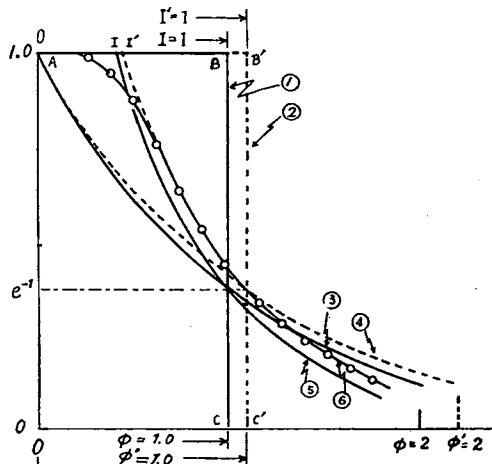


Fig. 2. Graphical interpretation of the relation between I and I' vs. ϕ & ϕ'

通過する粒子の見かけの滞留時間 $\theta (= H/f)$ を、装置内の粒子の流動が層流率に近似するものと仮定する場合には、(4.a) および (5.a) の両式が満足される筈であるから、上述のように残余濃度比 $C/C_0 = 1/e$ の値に達した時間をその流動系における滞留時間 θ' として、 θ の補正值とし、 $t/\theta' = \phi'$ とすれば (4.a) および (5.a) 両式は満足されうる。もちろん $C/C_0 = 1/e$ の値を示す時間は $\phi' = 1$ とする。このようにして円筒およびミル内の粒子の Hold-up, H , と供給量 f の関係から求められる θ の代りに、上述のように実験値の C/C_0 よりもとめうる θ' と置きかえても、層流率の性格（常に層流率は $\phi = 1$ に対する割合として示される。）から層流率の近似値として ϕ' に対する層流率 I' を述べることは可能であると考える。もちろん $I' = 1$ は補正された θ' による $t/\theta' = \phi' = 1.0$ に相当する。したがって ϕ' の適用による完全混合流れの理論式は $C/C_0 = e^{-\phi'}$ と書きかえられ、Fig. 2. の点線（曲線）④として表わされる。なお、(3.a), (4.a) および (5.a) 式を θ' を用いて書き直せば下記のようになる。以下実験結果は下式によってまとめてみた。

$$\left. \begin{array}{l} 0 < \phi \leq I' \\ \frac{C}{C_0} = 1.0 \\ \phi' > I' \\ \frac{C}{C_0} = e^{-S(\phi'-I')} \end{array} \right\} \quad (3.b)$$

$$\int_0^\infty \frac{C}{C_0} d\phi = I' + \frac{1}{S} \quad (4.b)$$

$$1.0 = I' + \frac{1}{S} \quad (5.b)$$

但し $\phi' = t/\theta' \quad 1.0 = OAB'C'$ の面積

2) 実験結果と考察

筆者らは上述の定義にもとづいて層流率 I' を回転円筒およびチューブミルの粒子の流動に適用し、その流動状態を定量的に解析してみた。

Fig. 3. は $\phi' (= t/\theta')$ とそのときの円筒およびミルの出口から排出されたトレーサーの排出頻度を示したものである。点線 A は完全混合流れの場合の理論的な排出頻度分布を示した場合であり、点線 B は押し出し流れの場合のものである。実線 C は実測値を点綴したもので $I' = 0.27$ に相当する排出頻度分布を示し、実線 D は $I' = 0.96$ に相当する排出頻度分布を示したものである。これより層流率 I' と排出頻度を比較してみると、その関係は定性的にも近似しうることがわかる。さらにトレーサーの流出累積値 (%) を時間 t に対して点綴すれば対数正規確率紙上ではほぼ直線となる。この関係はその他の実験結果より、ガラス円筒およびチューブミルにおいてはボールの装入有無、装入量、粒子の供給量および回転数に無関係に、対数正規確率紙上ではほぼ直線関係となる。この一例を Fig. 4. に示す。この場合の条件は $L = 80 \text{ cm}$, $f = 108 \text{ g/min}$, $n = 81.5 \text{ r.p.m.}$, $J = 20 \%$ である。このことから回転ガラス円筒およびチューブミルのトレーサーの流出頻度(滞留時間分布)は常に対数正規分布関数にしたがうことがわかる。なお対数正

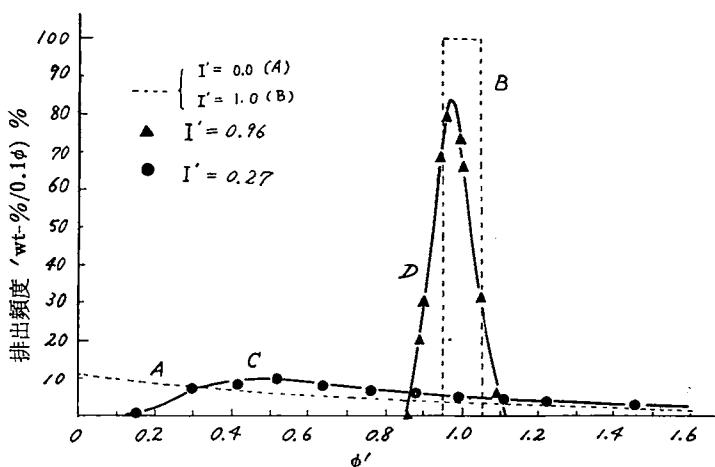


Fig. 3. The Frequency of the discharged tracer vs. ϕ'

規分布関数は一般に次式によって示される。

$$P(t) = \frac{M}{\sqrt{2\pi}\sigma t} \exp\left[-\frac{(\log t - \log t_e)^2}{2\sigma^2}\right]$$

$$M = \log e = 0.43429 \dots$$

σ = 標準偏差

t = 時間

t_e = 滞留時間の中央値

時間に対するトレーサーの流出累積値から、逆に装置内の残余濃度比 C/C_0 を求め、これより I' を知ることもできる。(4. b) 式の両辺の対数をとると次式がえられる。

$$\ln C/C_0 = -S(\phi' - I')$$

これより、 $C/C_0 : (\phi' - I')$ を半対数紙に点綴すれば、 $(-S)$ の勾配の直線をうる。Fig. 5. は各条件の異なる実験結果を点綴した場合の例である。すなわち、●印および▲印は本実験の粉碎媒体を装入した場合、しない場合の実験結果で、前者は $L = 80 \text{ cm}$, $D = 18 \text{ cm}$, $n = 81.5 \text{ r.p.m.}$, $J = 20\%$, $f = 108 \text{ g/min}$ の条件下で行なわれた

結果で、 $\phi' > 4$ において C/C_0 は直線的に減少をしている。後者の場合は $L = 120 \text{ cm}$, $D = 8.3 \text{ cm}$, $n = 30 \text{ r.p.m.}$, $J = 0$, $f = 234 \text{ g/min}$ のガラス円筒による実験結果である。この場合は $C/C_0 < 0.8$ で ϕ' 対して C/C_0 はやはり直線的に減少している。これら各々の直線関係をそれぞれ延長し、 $C/C_0 = 1.0$ との交点より $I' = 0.27$ および $I' = 0.96$ をうることができる。また○印は山崎氏⁴⁾の実験結果を筆者らがまとめた結果、同様にして $I' = 0.66$ をえた。なおこのようにしてえられた直線と I' および

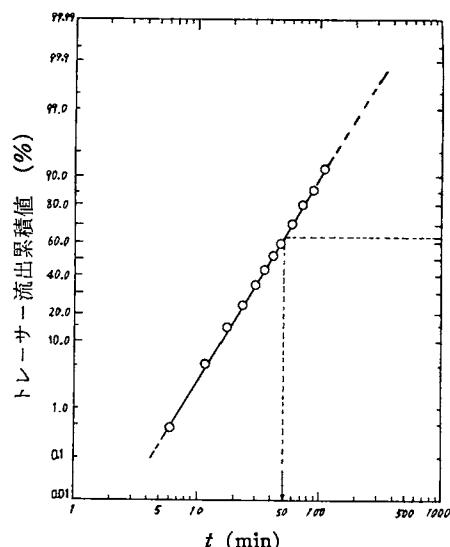


Fig. 4. Cumulative percent of the tracer discharged vs. time on log. probability paper

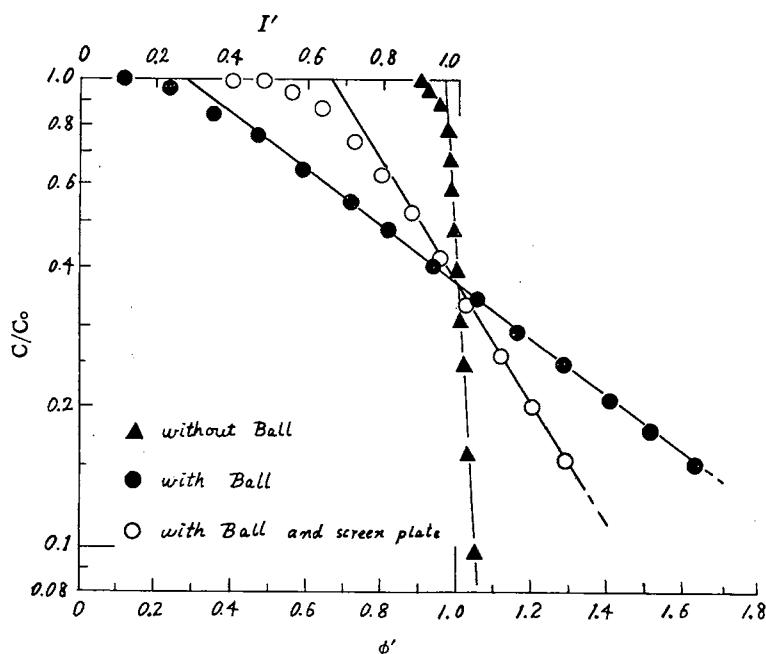


Fig. 5. C/C_0 vs. ϕ' and the graphical determination of I' on semi-log. paper

(-S)との関係はいずれも(3.b)(4.b)(5.b)式を満足させる。かくしてえられた I' と、回転ガラス円筒およびチューブミルの各要素との関係を次元解析の結果次式がえられる。

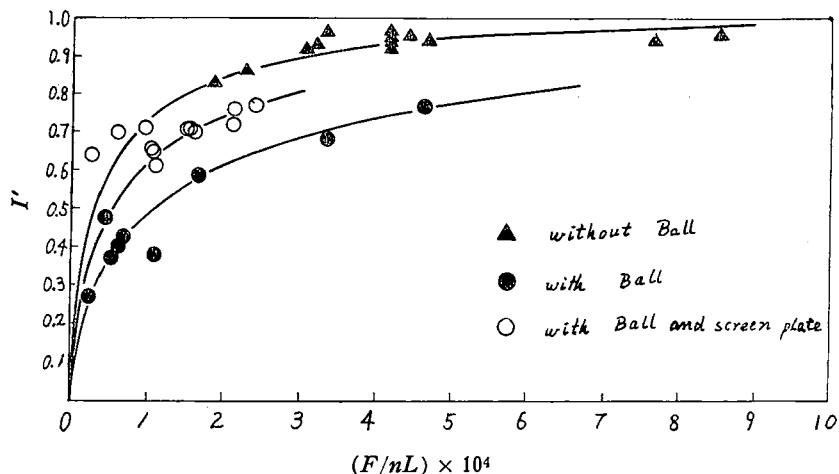
$$I' = K (F/nL)^a \cdot (D/L)^b \cdot J^c \cdot A^d (\rho_B/\rho_P)^e \cdot (\tan \alpha)^f$$

但し

$K = \text{定数}$	$\alpha = \text{回転ガラス円筒およびミルの傾斜角} [^\circ]$
$F = \text{円筒およびミルの単位断面積に対する粒子の供給容量速度} [\text{cm}^3/\text{cm}^2\text{min}]$	$J = \text{ミルの内容積に対するポールの見かけの容積の割合} [\%]$
$n = \text{円筒およびミルの回転数} [\text{r.p.m.}]$	$A = \text{円筒およびミルの断面積に対する出口堰の開口面積の割合} [\%]$
$L = \text{円筒およびミルの長さ} [\text{cm}]$	$D = \text{円筒およびミルの内径} [\text{cm}]$
$\rho_B, \rho_P = \text{ポールおよび粒子の密度} [\text{g/cm}^3]$	

これらの各無次元項について筆者らの実験範囲(Table. 1.)内において、検討した結果、 I' と (F/nL) との関係を除いては、特別に顕著な関係が認められなかったので、 (F/nL) と I' との関係について追求してみた。その結果をFig. 6.に示す。この結果より、①粉碎媒体が装入された場合、されない場合のいずれの場合においても、 (F/nL) の値が0に接近するにしたがい、 I' もまた急激に0に接近することが認められる。すなわち、 (F/nL) が小さい値になるにしたがい完全混合流れの比率が大となる。一方 (F/nL) が大きくなるにしたがい、 $I' = 1.0$ に漸近する。混合流れの比率が少なく押し出し流れに近くなる。この理由について、 (F/nL) が0に近づくことは、粒子の供給量が少なく、したがって、装置内の軸方向への粒子の運動(流動速度)が小さくなる。これに比して装置の内径 D 、回転数 n および長さ L が大きくなることを意味し、これにより D が大きくなれば粒子の落下距離を増大せしめ、 n が増大すれば粒子の落下の回数等を増大させる。また L が増大することは D および n による粒子の運動を増大することになり、主として装置内の粒子に半径方向の運動を大きくする。このように (F/nL) が小さいことは粒子の軸方向への運動に比して半径方向の運動を激しくする結果、混合作用が行なわれるものと考える。②粉碎媒体が装入された場合と、されない場合について比較すると、前者の場合に比して後者の場合の方が、 $(F/nL) 10^4 < 10.0$ においては、同じ (F/nL) の値に対して I' の値は大きい。押し出し流れ比率が大である。すなわち、 $(F/nL) \approx 3.0 \times 10^{-4}$ において、粉碎媒体の装入されていない場合には約90%が押し出し流れに粒子は流動しているのに対し、粉碎媒体を含むチューブミルでは約75%の押し出し流れの比率しか認められない。この傾向は山崎氏の実験結果を参考に筆者らがまとめた結果においても、粉碎媒体の装入しないものに対して I' は一般に小さいことが認められる(Fig. 6. ○印)。

この理由として、ポールが粒子の攪拌作用を行なうことがあると考える。すなわち、装置を通過する粒子の装置の軸方向への前進速度に比して、ポールのその速度はほとんど無視されうるほど小さい。したがって粒子の前進運動はポールによって妨害され、粒子の軸方向への運動は複雑化される。それにポールの運動はミルの回転によって半径方向の運動を行ない、回転によるポールの落下による粒子のはねかえりのために、粒子の飛散の確率を高める。かくしてポールによる粒子の攪拌効果は n および L の増大とともに大きくなる。また一方筆者らが層流率 I' でまとめた山崎氏の実験結果に比して本実験の結果において、ポールを装入した場合の I' に相違が認められる。この原因の一つは、ミルの出口孔の構造によるものと考えられる。すなわち、山崎氏の出口堰は皿状のものでミルの断面(出口部の)に多くの出口孔が分散して存在しているのに比して、本実験の出口堰はミルの断面の中心に一ヵ所の円形出口堰を有しているにすぎない。このことは装置内を通過する粒子の運動は、唯一つの出口孔に向って行なわれるよりも出口全面に存在する多くの出口孔に向って行なわれる方がより単純化されるものと考えられる。

Fig. 6 I' vs. $(F/nL) \cdot 10^4$

これらの実験結果より I' と (F/nL) との実験式をもとめると、実験結果より、 $-\log(1 - I')$: (F/nL) を両対数紙に点綴すれば、いずれも $1/2$ の勾配の直線関係となる。これを Fig. 7. に示す。したがって次のような実験式をえた。

1) 粉碎媒体を装入しない場合

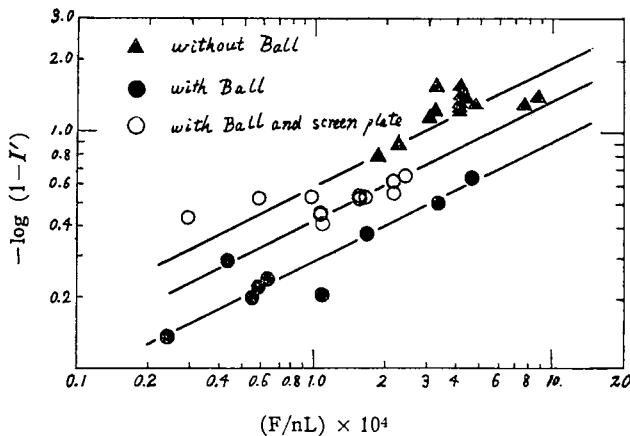
$$I' = 1 - \exp\{-133.2(F/nL)^{1/2}\}$$

2) 粉碎媒体を装入した場合

A) 唯一の円形出口堰の場合 $I' = 1 - \exp\{-65.3(F/nL)^{1/2}\}$

B) 山崎氏の実験結果より

皿皿状の出口堰の場合 $I' = 1 - \exp\{-95.5(F/nL)^{1/2}\}$

Fig. 7 Logarithmic plot of $-\log(1 - I')$ vs. $(F/nL) \cdot 10^4$

4. 総括

- 回転円筒およびチューブミル内を通過する粒子の滞留時間分布は粉碎媒体の有無、装入量、ミルの回転数および粒子の供給量に対して、無関係に常に対数正規分布を示す。
- 回転円筒およびチューブミル内を通過する粒子の流動状態は時間のパラメーターの見かけの滞

留時間を補正することにより層流率を適用し近似的に定量化することが可能である。

3) 回転円筒およびチューブミル内を通過する粒子の流動はそれらの装置の無次元項 (F/nL) に密接な関係があり、その流動の押し出し流れの比率 I' とすると、次の実験式がえられる。

$$(A) \text{ 粉碎媒体を装入しない場合} \quad I' = 1 - \exp \{-133.2(F/nL)^{1/2}\}$$

$$(B) \text{ 粉碎媒体を装入した場合} \quad I' = 1 - \exp \{-65.3(F/nL)^{1/2}\}$$

4) 回転円筒およびチューブミル内を通過する粒子の混合状態は粉碎媒体を装入した場合の方が、しない場合に比して混合作用が大きい。これはボールによる攪拌作用のためと考えられる。

5) チューブミル内を通過する粒子の混合状態は、ミルの出口の構造に関係し、皿状の出口堰の方が、唯一の円形出口孔の出口堰よりも混合作用は小さいものと推測される。

本実験の一部に協力された当時学生であった田川克次氏、川端邦雄氏、佐藤安彦氏に深く感謝の意を表します。

使 用 記 号

A = 装置の断面積に対する円形出 口孔の開口比	[%]	S = 層流率における率対数紙上の 直線の勾配	[—]
C = 装置内のトレーサの残余量	[g]	n = 装置回転数	[r.p.m.]
C_0 = 装置内へ投入されたトレ サの量	[g]	$P(t)$ = 対数正規分布函数	
D = 装置の内径	[cm]	t = 時間	[min]
f = 粒子の供給量	[g/min]	t_e = 対数正規分布による中央値	[min]
F = 装置の単位断面積に対する粒 子の供給容量	[cm ³ /cm ² min]	θ = 粒子の見かけの滞留時間 (=H/f)	[min]
H = 粒子の装置内の Hold-up	[g]	θ' = 層流率にもとづく補正された 滞留時間	[min]
I = 層流率	[—]	ϕ = 時間のパラメータ (=t/θ)	[—]
I' = 時間のパラメータの補正によ って拡大された層流率		ϕ' = 補正された時間のパラメータ = (t/θ')	[—]
J = 装置の内容積に対する粉碎媒 体の見かけの容積の割合	[%]	σ = 標準偏差	[—]
L = 装置の長さ	[cm]	ρ_B = 粉碎媒体 (鋼球) の密度	[g/cm ³]
M = log e = 0.43429...	[—]	ρ_P = 粒子の密度	[g/cm ³]
		α = 装置の傾斜角度	[°]

参 考 文 献

- 1) 永田進治、江口弥ら：「化学工学」，17，387（1953）
- 2) 永田進治、江口弥ら：「化学工学」，19，163（1955）
- 3) 白井 隆：「流動層」P 143～163
- 4) 山崎昌男：「日本セメント株式会社研究所要報」，第246号，Nov. (1961)
- 5) 田中達夫、川合清一：「化学工学」，26，792（1962）

(原稿受付 1962年9月30日)