



空気透過法による蔗糖結晶粒子径の測定について

清水, 俊秀
児島, 初男
高井, 崇博

(Citation)

兵庫農科大学研究報告. 農芸化学編, 6(2):85-90

(Issue Date)

1964-12

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCOI)

<https://doi.org/10.24546/81008247>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81008247>



空気透過法による蔗糖結晶粒子径の測定について

清水俊秀・児島初男・高井崇博

Measurement of Sucrose Crystal Diameter by An Air-Permeability Method

Toshihide SIMIZU, Hatuo KOZIMA and Takahiro TAKAI

緒 論

粉体充てん層を透過する流体の流速、透過率、圧力降下、粉体層の空隙比などの関係を整理して、透過法による粉体の比表面積測定の基礎をつくったのは CARMAN (1938) である¹⁾。これは粉体充てん層における流体の透過性から、その粉体の比表面積を測定する方法であって、透過させる流体によって気体透過法と液体透過法にわかれ、前者の気体として空気を用いる方法を空気透過法 (Air permeability method) と称する。この方法は試料の大体の幾何学的表面積を知るいわゆる “insensitive measurement” である点にその特長をもつものである²⁾。

CARMAN の行った方法は液体透過法であったが、空気透過法は他の測定法にくらべて、装置および操作が簡単でしかも迅速に測定できるので、現在広く利用されている。

本研究では、空気透過法によって 0.177mm から 0.840mm の比較的大きい蔗糖結晶の粒子径を測定し、それを光学顕微鏡による測定値と比較することによって、これらの比較的大きい粒子を本法で測定可能であるかどうかということ、およびそのために必要な条件を検討した。

透過法の基本式は KOZENY-CARMAN の次式である³⁾。

$$Sv = \rho Sw = 14 \sqrt{\frac{\Delta P A t}{\eta L Q}} \cdot \frac{\epsilon^3}{(1-\epsilon)^2} \quad (1)$$

$$\epsilon = 1 - \frac{W}{\rho A L}$$

ここで Sv : 粉体の比表面積 (容量基準) [cm²/cm³]
Sw : 粉体の比表面積 (重量基準) [cm²/g]
 ρ : 粉体の密度 [g/cm³]
 ΔP : 長さ L [cm] の粉体層の両端における流体の圧力降下 [g/cm²]
A : 粉体層の横断面積 [cm²]
 η : 流体の粘度 [空気: 0.18 × 10⁻³ poise (20 °C)]
L : 粉体層の長さ [cm]
Q : t 秒間に透過した流体の量 [cm³]

ϵ : 粉体層の空隙率 [-]

W : 粉体の重量 [g]

式 (1) の A および ϵ を V, ρ , W, L でおきかえ、 $Q/t = C \cdot F$ と定義して式 (1) を変形する。さらに粉体粒子の形状がわかれば次式から平均粒子径 D_p を求めることができる³⁾。

$$D_p = \frac{\kappa}{\rho Sw} \quad (2)$$

ここに、 κ は粒子の形状係数であり、球形粒子では 6 であるが、球体から偏移するに従って 6 より大となる⁴⁾。

以上から式 (3) が得られる。ただし $\kappa = 6$ とした。

$$D_p = \frac{6 \times 10}{4} \sqrt{\frac{C \eta \rho F L^2 W^2}{(V \rho - W)^3 (P - F)}} \quad (3)$$

ここで、 D_p : 比表面積径 [mm]

C : 透過係数 [cm³/sec/g/cm²]

V : 粉体層の見かけ上の体積で L · A に相当 [cm³]

P : 試料を充てんしないときの圧力降下 [g/cm²]

F : 試料を充てんしたときの圧力降下 [g/cm²]

式 (3) において、C 以外の項は求め得るから、C の値を定めることによって D_p および Sw が容易に測定できる。

実験装置および実験方法

本研究に用いた実験装置は Fig. 1 に示した GOODEN-SMITH 法に基づく装置である⁵⁾。

まず、測定に供する試料を一定量採取して、それを試料充てん筒に入れ軽く振とうして試料層の厚さを読みとる。それをゴム管によって “Air line” に連結する。次に栓を開いて空気を導入するが、導入する空気圧を一定にしておくため、本法ではヘッドタンクを用い、一定の速さでダルマピンに水を下して、圧力調節器で調節した。すなわち、圧力が高まると空気がガラス管の先端から気泡となって水槽中にかかれ、圧力が低くなるとガラス管

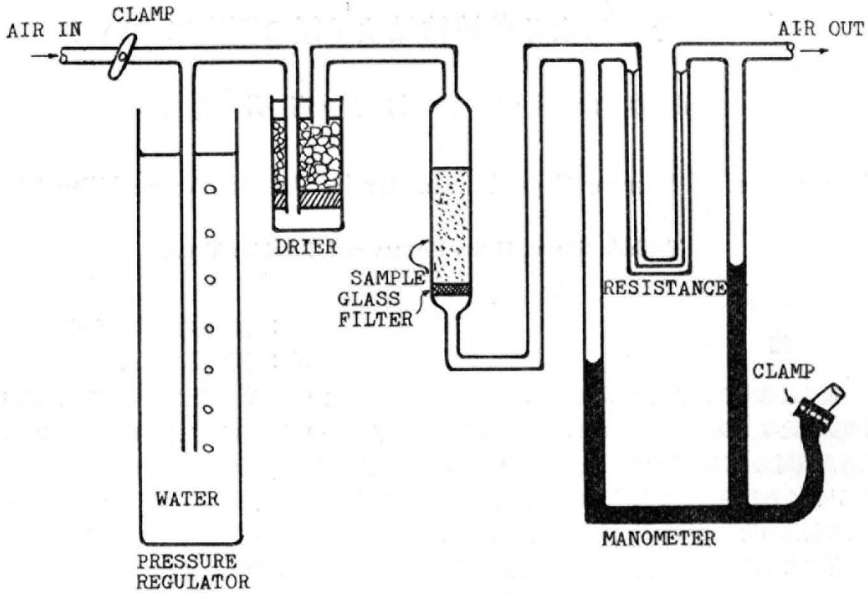


Fig. 1. Air Permeation Apparatus

中に水が入り込む、実際にはガラス管の先端からつねに気泡が緩やかに生ずる状態を保つ、その間、空気は塩化カルシウムを充てんした乾燥管中を通してつねに乾燥した空気を試料層に導入した。試料充てん筒の長さは95.0

cm、内径 3.07 cm であり、その底部には多孔性のガラスフィルターをとりつけた、試料層を通過する空気の流速はマンメーターと毛細管（抵抗管）よりなる流速計によって測定される。なお、測定する場合、より精度を高

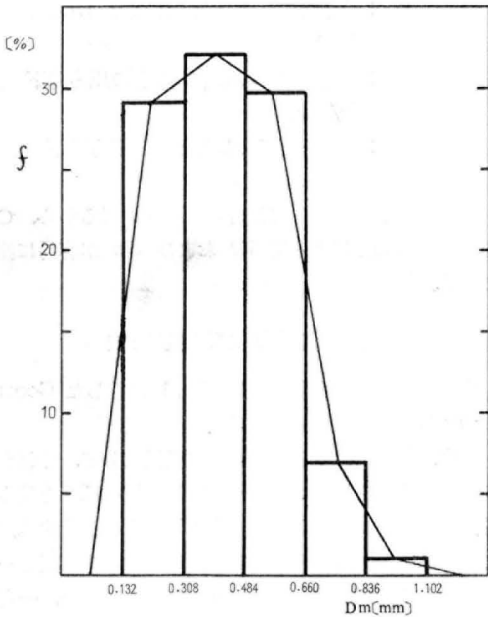


Fig. 2. Distribution of microscopic measurements of sucrose crystal diameter, which are GREEN-dia. on 500 particles. (20~40 mesh)

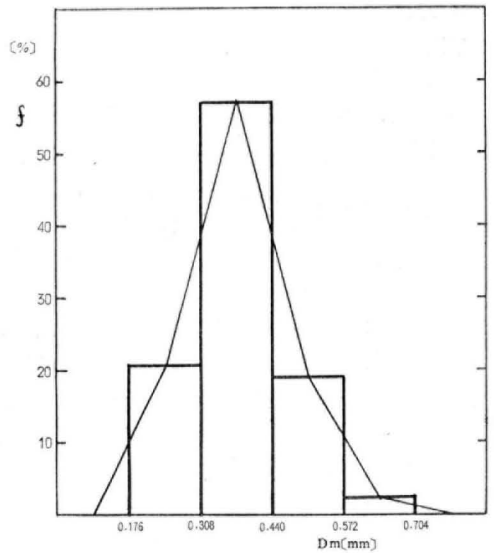


Fig. 3. Distribution of microscopic measurements of sucrose crystal diameter, which are GREEN-dia. on 500 particles. (40~60 mesh)

めるためと流速変化の影響を最小にするために計測時間を一定（5分）に保った⁶⁾。

試料としては、蔗糖結晶を真空デシケーター内で乾燥

後、Tyler 標準篩で 20~40, 40~60, 60~80 mesh の 3 種類に篩別したものをを用いた。

実験結果および考察

式 (3) における透過係数 C の値は装置の構造や測定条件によってそのつど変化するものであるから、それぞれの場合について、標準試料として粒径既知の球形粒子を用いてその測定値を式 (3) に代入して求められる。本研究では標準試料として粒径既知のイオン交換樹脂（以下 IER と略す）および鉛散弾を用いて、実験前半の \sqrt{C} の値として 0.436 [cm³/sec/g/cm²], 実験後半の \sqrt{C} の値として 0.451 [cm³/sec/g/cm²] を得た。使用した IER の代表径は 500 個について光学顕微鏡で直径を測定し、また鉛散弾は 1 個当りの重量と密度を測定した結果から粒径を算出した。その結果、IER の平均粒径は 0.471mm, 鉛散弾の平均粒径は 1.864mm であった。

蔗糖結晶の統計的径の測定には ocular micrometer をとりつけた光学顕微鏡の載物台を一定の方向に動かすことによって、試料 500 個づつの GREEN 径⁷⁾ を測定して求めた。その結果は Fig. 2, 3, 4 の如くで、各々の代表径(算術平均値)として 0.407mm (20~40 mesh), 0.369mm (40~60 mesh), 0.223mm (60~80 mesh) が得ら

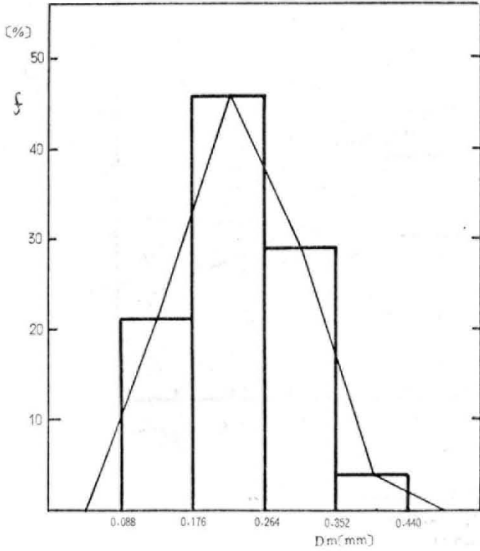


Fig. 4. Distribution of microscopic measurements of sucrose crystal diameter, which are GREEN-dia. on 500 particles. (60~80 mesh)

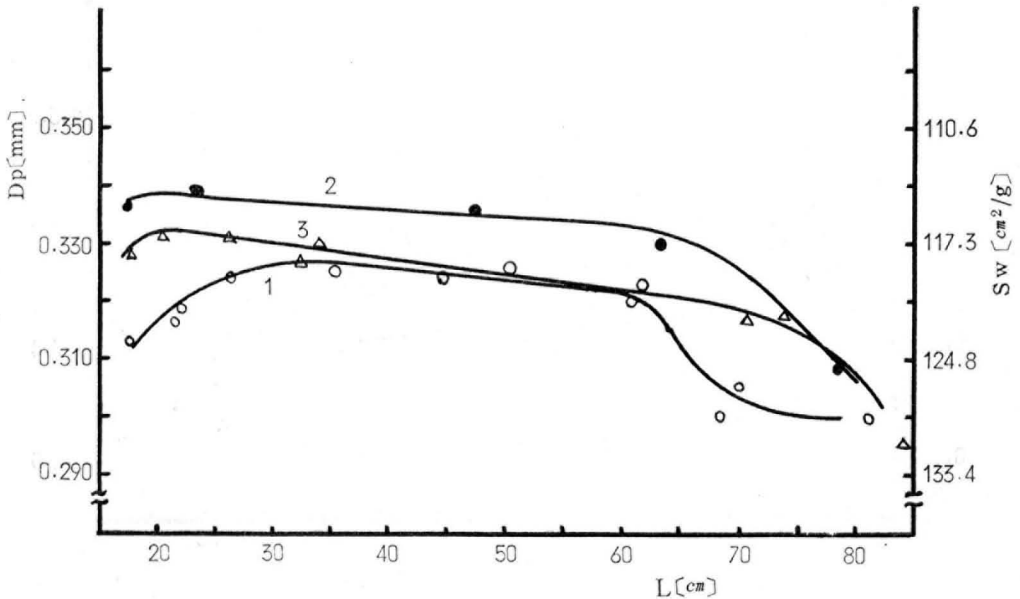


Fig. 5. Relation between Dp, Sw measurements and L.

Sample: Sucrose crystal, 20~40 mesh

- 1 —○— $\epsilon = 0.48 \sim 0.50$
- 2 —●— $\epsilon = 0.51 \sim 0.53$
- 3 —△— $\epsilon = 0.54 \sim 0.56$

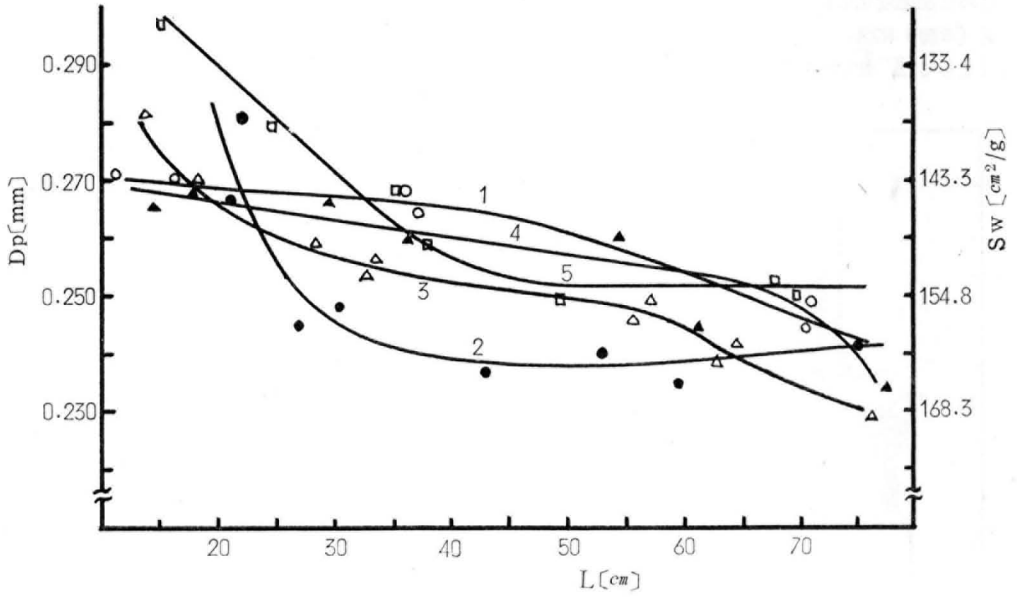


Fig. 6. Relation between D_p , S_w measurements and L .

Sample: Sucrose crystal, 40~60 mesh

- 1 —○— $\epsilon = 0.42 \sim 0.44$
- 2 —●— $\epsilon = 0.44 \sim 0.47$
- 3 —△— $\epsilon = 0.47 \sim 0.49$
- 4 —▲— $\epsilon = 0.50 \sim 0.51$
- 5 —□— $\epsilon = 0.52 \sim 0.53$

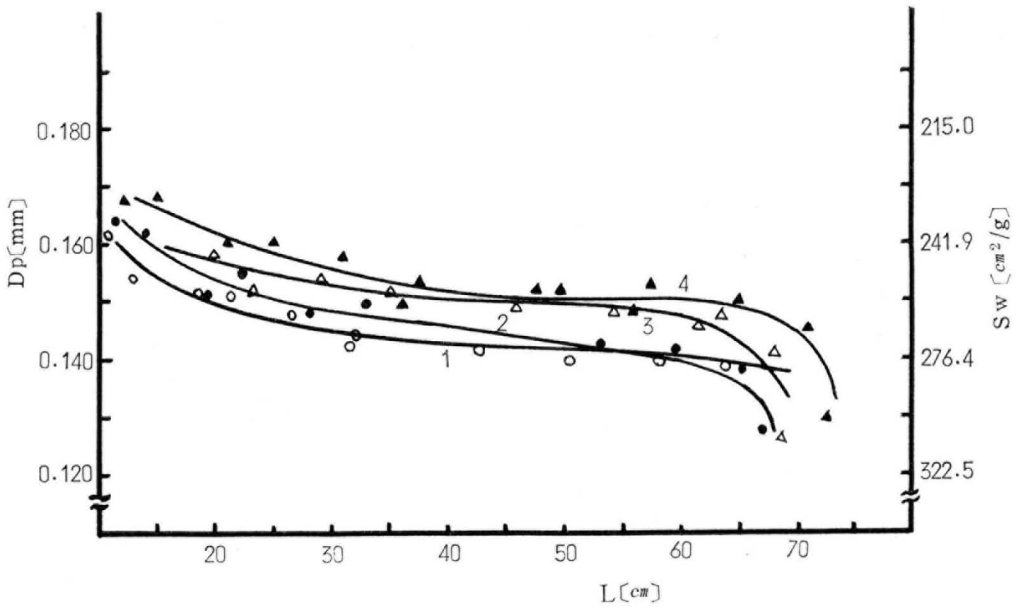


Fig. 7. Relation between D_p , S_w measurements and L .

Sample: Sucrose crystal, 60~80 mesh

- 1 —○— $\epsilon = 0.44 \sim 0.46$
- 2 —●— $\epsilon = 0.46 \sim 0.48$
- 3 —△— $\epsilon = 0.49 \sim 0.50$
- 4 —▲— $\epsilon = 0.51 \sim 0.53$

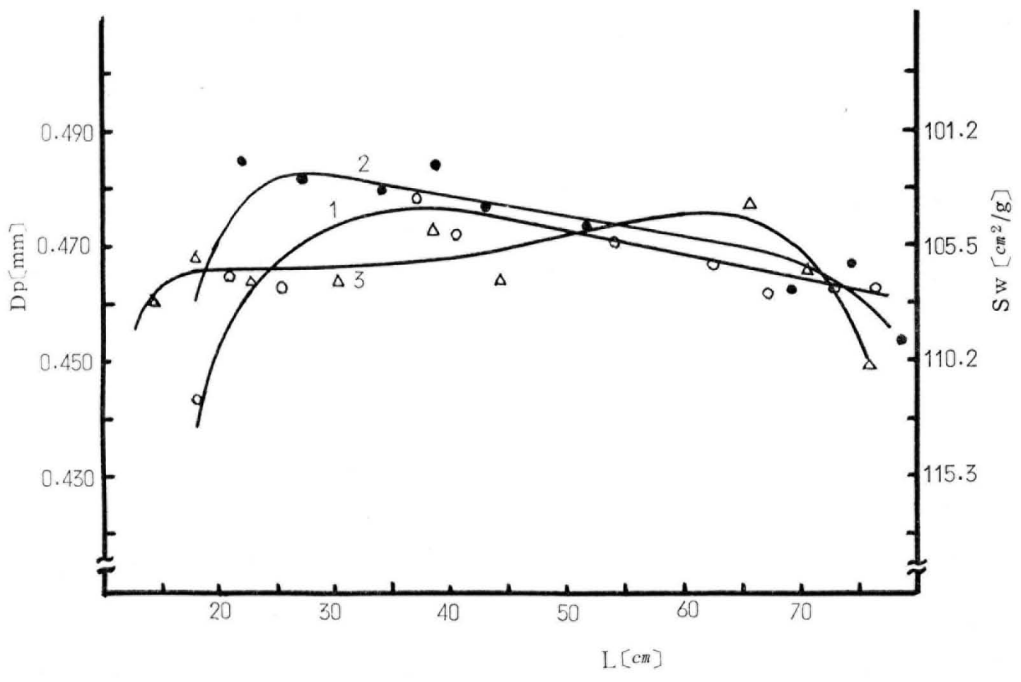


Fig. 8. Relation between Dp, Sw measurements and L.

Sample: Ion exchange resin, 20~40 mesh

- 1 —○— $\epsilon = 0.38 \sim 0.39$
- 2 —●— $\epsilon = 0.40 \sim 0.41$
- 3 —△— $\epsilon = 0.42 \sim 0.44$

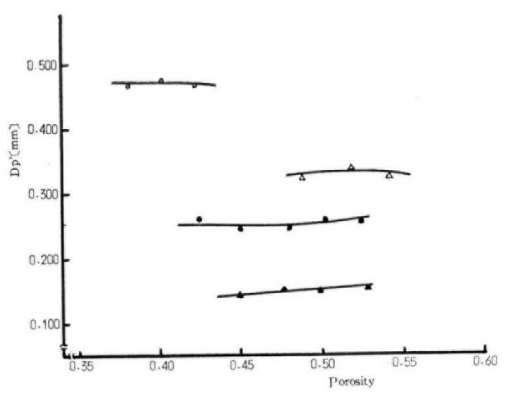


Fig. 9. Relation between Dp' and porosity.

- I.E.R. 20~40 mesh
- △— Sucrose cry. 20~40 mesh
- Sucrose cry. 40~60 mesh
- ▲— Sucrose cry. 60~80 mesh

れた。

空気透過法による測定結果は Fig. 5~8 に示した。各試料について空隙率を数段階に分けてプロットしたが層高 30 cm から 60 cm の範囲ではほぼ一定の粒径値を示している。粒径の測定値が一定性を示す範囲の平均値 (Dp') と空隙率の関係を求めると Fig. 9 の如くなる。

Fig. 9 によると空隙率 0.38 から 0.56 の範囲内では空隙率と Dp の間には式 (3) の関係が成立することを示している。Fig. 5 から Fig. 8 において両端で急激に上昇または下降しているのは、その範囲外ではもはやこの装置の測定限界外とみなされる。

IER を除いて各グラフの値は顕微鏡による測定値よりもかなり小さいものである。このことから本法の適用限界は空隙率よりも他の因子に制限されるものである。このうち形状係数 (κ) については、一般に球形粒子に対しては $\kappa=6$ であるが、蔗糖結晶とその形状が比較的類似したものでは角ばった砂に対しては $\kappa=8.0 \sim 8.6$ (GREEN and AMPT), 圭角の多い砂では $\kappa=9.0$ (DONAT) 丸味をおびた砂には $\kappa=7.2$ (DONAT) と報告されている。⁹ 本研究では試料すべてに $\kappa=6$ を用いて計算したために差を生じたものとみなされるので、それぞれの試料に対して適合する κ の値を求めるために、顕微鏡による値 (Dm) と空気透過法による測定値の平均値 (Dpm) が等しくなるための κ の値 (κ^*) を求めた。すなわち $Dm = Dpm$ より $\kappa^* = 6 \times Dm / Dp'$ で求められる (Table 1)。

κ^* の値は球形である IER に対しては理論値とはほぼ一致する。蔗糖結晶に対しては、7.4 (20~40 mesh), 8.8 (40~60 mesh), 9.1 (60~80 mesh) を得た。

Table 1

	Sw (cm ² /g)	Dm (mm)	Dp' ** (mm)	κ^*
Sucrose cry. 20~40 mesh	117.3	0.407	0.327	7.4
" 40~60	153.9	0.369	0.253	8.8
" 60~80	263.3	0.223	0.147	9.1
IER 20~40	107.0	0.471	0.468	6.1

** この Dp' は $\kappa=6$ として式(3)から求めた値

試料層の厚さ(L)の限界は各グラフの急激に上昇あるいは下降している部分は測定限界外とみなされるので、本装置に適用し得るLの範囲の上限は、蔗糖結晶では60cm, IERでは70cmであり、下限は粒径および空隙率によって異なるが、一般に粒径の小さいものほど低くなり約30cmで、同一粒径でも粒形の均一のものではさらに低くなる傾向を示している。また、全般的にLが大きくなるにつれて比表面積は小さくなる傾向があるが、これはLが大きくなると試料充てんの際に粒子間の摩擦によって試料層が部分的にとくに緊密につまり、全体の見かけの空隙率が一定でも部分的には空隙率が変化するためと、充てん層の器壁の影響すなわち試料と器壁との接触のしかたによるものと考えられる。

総 括

従来、空気透過法は粒径 0.5μ から 50μ の間の小さな粒子の比表面積測定に適するといわれているが⁹⁾、本法で用いた装置では粒径および粒形のできるだけ均一のものを用いて、空隙率を $0.38\sim 0.56$ 、試料層の厚さを $30\sim 60$ cm にした場合には、比較的大きな粒子(粒径 0.177 mm ~ 0.840 mm)の比表面積測定に適用できることを見出した。また、蔗糖結晶粒子の形状係数(式(2)における k)は $20\sim 40$ mesh のものは 7.4 、 $40\sim 60$

mesh のものは 8.8 、 $60\sim 80$ mesh のものは 9.1 、IER では $20\sim 40$ mesh のものは 6.1 であった。

(農産化学機械学講座 昭 39. 8. 31. 受理)

文 献

- 1) J. M. DALLAVALLE: *Fine Particle Measurement*, 134 (1959) (MAC MILLAN).
- 2) 下飯坂: *J. Mining Inst. Japan*, **71**, 639 (1955).
- 3) 久保等: 粉体(理論と応用), 161 (1992) (丸善).
- 4) 水渡: 科学, **24**, 466 (1954).
- 5) E. L. GOODEN and C. M. SMITH: *I. E. C.*, **12**, 479 (1940).
- 6) R. M. CAHAN and J. MARECHAL: *Anal. Chem.*, **35**, 259 (1963).
- 7) 丸山, 中島: 化学の領域, **16**, 48 (1962).
- 8) 化学工学協会編: 化学工学便覧, 656 (1958) (丸善).
- 9) 亀井: 基礎化学工学, 361 (1961) (いずみ書房).

Summary

The permeability method gives a direct measure of specific surface and an indirect determination of average size. It is generally known that an air permeability method suits for the measurement of specific surface area of fine particle in the range of diameter from 0.5 to 50 microns.

From this experimental results with comparative large particles (from 0.177 to 0.840mm in diameter), it was found that the specific surface area of such particles could be measured by this method under the following conditions: (1) The range of porosity of sample bed was set from 0.38 to 0.56. (2) The length of sample bed was chosen from 30 to 60cm. And as the shape factor, k in eq. 2, for sucrose crystal 7.4 was obtained for 20- to 40-mesh, 8.8 for 40- to 60-mesh and 9.1 for 60- to 80-mesh.

(Laboratory of Chemical Engineering)