

せんごう塩の流動性評価に関する検討 －流動性評価におけるモデルの適用－

鴨志田智之, 篠原 富 男

1. 緒 言

近年国内で市販される食用塩は多種多彩で、その形状、粒径分布、組成などによって、製品の商品性が異なる。商品性については、2種類の物性、すなわち流動性、溶解性などの塩自体の物性と、付着性、混合性などの食料等に対する作用に関係する物性に分けることができる。

そこで、筆者らは、これら商品性に関わる物性をモデル化することにより、用途に応じた塩製品を設計することを目的に検討を進めてきた。これまでに、形状が比較的立方体に近いせんごう塩を対象に、塩自体の物性である溶解性に着目し、モデル化およびシミュレーションを行い、実測値を良好に推定することを可能とし、本モデルが溶解性に関する設計手法に適用できることを明らかにした^{1), 2)}。

本報告では、溶解性同様に、流動性に着目したモデルを構築し、良好なシミュレーションおよび商品設計を可能としたので報告する。

2. 流動性モデルに関する検討

2.1 流動性モデルにおける指標の選定

塩の流動性には、一つひとつの粒子が相互に接触し、接触した面、あるいは点に発生する摩擦力が関係すると考えることができる。すなわち、粒子相互に働く粒子間力、粒子の充填度合い（空隙率）、粒子同士が接する面積、点接触であれば粒子が接触する数（配位数）が主要な因子となる。

一方、Rumpfは粉体の流動性を表す指標として前述の流動性の因子である粒子間力、配位数、空隙率などから構成される粉体層強度（(1)式）を提出している³⁾。

$$a_t = \frac{(1-\varepsilon)NF}{\pi D^2} \quad (1)$$

a_t : 粉体層強度 ($N \cdot m^{-2}$) D : 粒径 (m)

F : 粒子間力(N) N : 配位数 (-) ε : 空隙率 (-)

(1)式において、粒子間力 F には、分子間力に起因する van der Waals力、摩擦抵抗に起因する粘着力、帯電

力に起因する静電気力、液の負圧および表面張力に起因する液架橋付着力が挙げられるが、本報告では、結晶表面に苦汁が付着した塩製品を対象とし、その場合に最も粒子間力の中で大きく寄与すると考えられる液架橋付着力を選定して、以降の検討を実施した。

1) 空隙率、配位数の算出

鈴木ら^{4), 5)}は、粒子層全体の空隙率が着目粒子周囲の空隙率に体積基準の混合分率 V_a を乗じたものの総和で、配位数の平均値は着目粒子周囲の配位数に個数基準の混合分率 Q_a を乗じたものの総和で表されると仮定した。そして、着目粒子周囲の空隙率および配位数は、接触粒子の面積基準の混合分率 S_a に着目粒子が接触粒子だけに囲まれた場合の空隙率 ε_{jk} および配位数 N_{jk} を乗じたものの総和に比例するとし、(2)式を導出している。

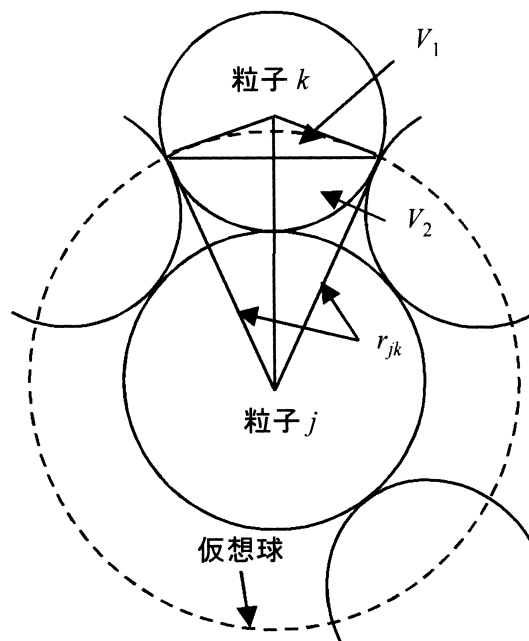


図1 空隙率および配位数算出のための球モデル

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon &= \sum_{j=1}^n V_{aj} \left\{ \beta_j \sum_{k=1}^n S_{ak} \varepsilon_{jk} \right\} \\ N &= \sum_{j=1}^n Q_{aj} \left\{ \sum_{k=1}^n S_{ak} N_{jk} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

ここで、 $\beta_j = \varepsilon_j / \varepsilon_{jj}$

j : 着目粒子 (-) k : 接触粒子 (-)
 V_a : 体積基準の混合分率 (-)
 Q_a : 個数基準の混合分率 (-)
 S_a : 面積基準の混合分率 (-)
 ε_{jk} , ε_{jj} : j が k (j) だけに囲まれた際の空隙率 (-)
 N_{jk} : j が k だけに囲まれた際の配位数 (-)
 B_j : 補正係数 (-)
 ε_j : 実測された j の空隙率 (-)

また、同様に鈴木ら^{4, 5)}は ε_{jk} および N_{jk} を図1に示す球モデルを用いて幾何学的に算出し、(3)式を得ている。

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_{jk} &= 1 - \frac{3\{V_j + N_{jk}(V_1 + V_2)\}}{4\pi r_{jk}^3} \\ N_{jk} &= \frac{0.134 N_c \{ (r_j/r_k) + 1 \}}{1 + (r_j + r_k) - \sqrt{(r_j/r_k)(r_j/r_k + 2)}} \\ r_{jk} &= \sqrt{(r_j/r_k)^2 - r_k^2} \\ V_1 &= \frac{\pi}{3} \left\{ r_{jk} - \frac{r_{jk}^2}{r_j + r_k} \right\}^2 \left\{ 3r_{jk} - \left(r_{jk} - \frac{r_{jk}^2}{r_j + r_k} \right) \right\} \\ V_2 &= \frac{\pi}{3} \left\{ \frac{r_{jk}^2}{r_j + r_k} - r_j \right\}^2 \left\{ 3r_k - \left(\frac{r_{jk}^2}{r_j + r_k} - r_j \right) \right\} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

V_j : j の体積 (m^3) V_1, V_2 : 欠球の体積 (m^3)
 r_j, r_k : j, k の半径 (m)

ここで、計算の基本となる単一粒子の配位数 N_c の算出においては、種々の実験およびモデル式が提案されているが、本稿においては(4)式に示すRidgewayら⁶⁾の式を用いた。

$$N_c = 13.8(1 - \sqrt{1.21\varepsilon - 0.297}) \quad (4)$$

(2)~(4)式を用いることにより、単一粒子の半径、混合分率および空隙率から層全体の空隙率および配位数を算出可能であるが、個々の粒子全てについて計算を行うことは計算量が膨大となり非常に煩雑である。そこで、粒径分布を平均粒径に対して1/4ごとの粒径範囲に分割し、モデルにおける単一粒子の半径をこの範囲における粒子半径の中央値 r_i 、混合分率をこの範囲に存在する粒子の混合分率 V_{ai} 、 S_{ai} 、 f_{ai} に置き換え計算を行った。なお、この粒径範囲毎の試料の空隙率は粒径、水分

によらずほぼ一定値(一般的なせんごう塩、固め見掛密度における空隙率 ≈ 0.4)と仮定し、空隙率の実測値 ε_j には全てこの値を用いた。

一方、通常の塩製品における粒径分布は、一定の確率分布(正規確率、対数正規確率およびRosin-Rammler分布)と良好に相関することが知られている⁷⁾。このような場合、上記分布式を用いることにより r_i 、 V_{ai} 、 S_{ai} および Q_{ai} は、平均粒径 D_{av} および分布関数(標準偏差 σ 、幾何標準偏差 σ_n 、均等数 m 等)から算出可能である。下記の(5)式に、正規確率分布式を用いて D_{av} および σ から、 r_i 、 V_{ai} 、 S_{ai} および Q_{ai} を算出する例を示す。

$$\left. \begin{aligned} V_{ai} &= \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left\{-\frac{1}{2}\left[\frac{0.25(i+1)D_{av}-D_{av}}{\sigma}\right]^2\right\} \\ &\quad - \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left\{-\frac{1}{2}\left[\frac{0.25iD_{av}-D_{av}}{\sigma}\right]^2\right\} \\ r_i &= \frac{0.25D_{av}(2i+1)}{2} \quad S_{ai} = \frac{V_{ai}/2r_i}{\sum_{i=0}^n V_{ai}/2r_i} \quad Q_{ai} = \frac{V_{ai}/2r_i^3}{\sum_{i=0}^n V_{ai}/2r_i^3} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

2) 液架橋付着力の算出

遠藤ら^{8~10)}は球粒子間に働く液架橋付着力を(6)式で定義している。

$$F_L = \pi r_L^2 P_L + 2\pi r_L \delta_L \quad (6)$$

F_L : 液架橋付着力 (N) P_L : 架橋液の負圧 ($N \cdot m^{-2}$)
 δ_L : 表面張力 ($N \cdot m^{-1}$) r_L : 架橋液の付着半径 (m)

なお、塩の場合は結晶自体が平衡湿度を有しているため架橋液の負圧は表面張力に比べ非常に小さく無視できると考え、本稿では F_L を(7)式で近似した。

$$F_L = 2\pi r_L \delta_L \quad (7)$$

また、せんごう塩の粒子形状は主に立方体であるため粒子間接触状態および液架橋の形状は図2のモデルで近似されると考えられた。

ここで、粉体層内の水分がすべて粒子間の接触部で液架橋を形成し、それが一定の大きさで一様に分布していると仮定すれば、図2に示した液架橋の付着半径 r_L は(8)式で算出される。

$$\left. \begin{aligned} r_L &= \sqrt{\frac{V}{\pi h}} \\ V &= \frac{2M_L \rho_p D_{av}^3}{N_{av} \rho_L} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

M_L : 水分 (-) V : 架橋液の体積 (m^3)
 h : 架橋液の厚さ (m)
 ρ_p : 粒子密度 ($kg \cdot m^{-3}$)

ρ_L ：架橋液の密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)

一方、(8)式における h は測定したせんごう塩の残留平衡状態の水分 (M_{Leq}) の値を用いて、 $M_L = M_{Leq}$ のとき、 $2r_L = D_{av}$ として算出し、平均粒径の関数として (9) 式のように表した。

$$h = 3.27 \times 10^{-6} D_{av}^2 + 1.04 \times 10^{-3} D_{av} + 2.23 \quad (9)$$

(7)～(9)式より、液架橋付着力 F_L は主に平均粒径 D_{av} および水分 M_L に依存して変化する因子であると考えられることができる。

3. モデルの検証

粒径調製塩を用い、 $D_{av} (\mu\text{m}) / \sigma (\mu\text{m}) = 385/103, 593/148, 785/325$ 、 $M_L = 0.1 \sim 2\%$ とした試料塩について、流動性の実測方法の1つである圧縮度 P を測定し、3項で構築した各モデルを用いて算出した粉体層強度 α_f と比較した結果を図3に示す。

図3より、圧縮度と粉体層強度を流動性指標としてシミュレーションした結果は良好に一致し、本モデルがせ

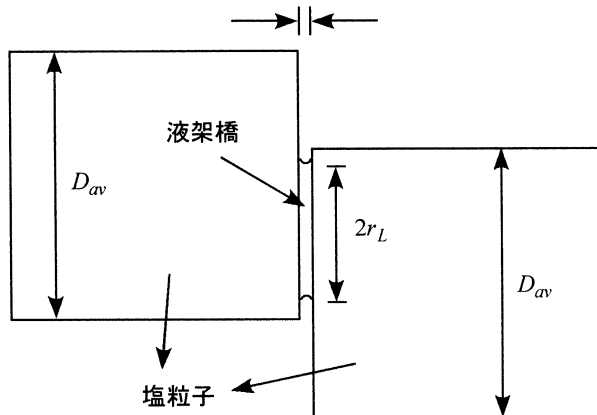


図2 せんごう塩の粒子接触モデル

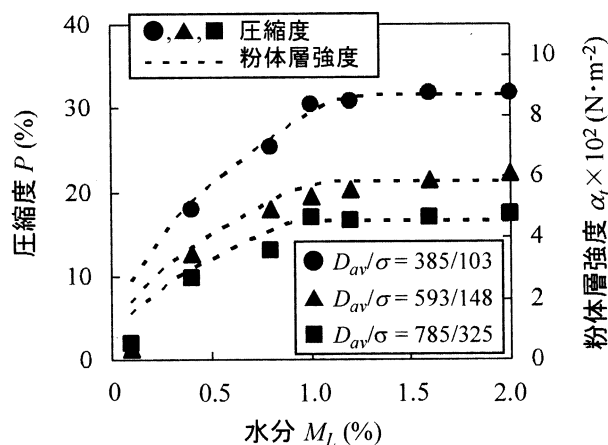


図3 モデル化した粉体層強度と圧縮度の関係

んごう塩の流動性に関する商品設計法として有用であることが明らかとなった。しかし、水分0.1%での圧縮度はモデルより算出した粉体層強度より小さくなる傾向が見られ、この点については液架橋付着力だけでなく、粘着力など、他の粒子間力の影響を考慮する必要があるとも考えられ、今後の課題とした。

4. 結 言

せんごう塩の流動性評価指標として、Rumpfが提出した粉体層強度に着目し、その構成因子である粒子間力、配位数、空隙率をモデル化することによって、せんごう塩における新たな流動性設計手法を構築した。

引用文献

- 1) 党弘之, 鴨志田智之, 谷井潤郎, 篠原富男: 日本海水学会誌, **56**, pp. 256-260 (2002)
- 2) 鴨志田智之, 党弘之, 篠原富男: 日本海水学会誌, **56**, pp. 318-322 (2002)
- 3) Rumpf, H.: Chem. Ing. Tech., **42**, p. 538 (1970)
- 4) 鈴木道隆, 八木章, 渡辺球雄, 大島敏男: 化学工学論文集, **10**, p. 721 (1984)
- 5) 鈴木道隆, 市場久貴, 長谷川勇, 大島敏男: 化学工学論文集, **11**, pp. 438-443 (1985)
- 6) Ridgway, K. and K. J. Tarbuck: Brit. Chem. Eng., **12**, p. 384 (1967)
- 7) 鴨志田智之, 長谷川正巳: 海水総合研究所研究報告, **4**, pp. 41-45 (2002)
- 8) 遠藤禎行: 化学工学論文集, **18**, pp. 950-955 (1992)
- 9) 遠藤禎行: 化学工学論文集, **20**, pp. 542-548 (1994)
- 10) 遠藤禎行: Pharm Tech Japan, **11**, pp. 577-583 (1995)

Abstract**Examination Concerning Flowability Evaluation of Vacuum Pan Salt
– Application of Model to Flowability Evaluation –**

Tomoyuki KAMOSHIDA and Tomio SHINOHARA

A new flowability design method for vacuum pan salt was proposed with the selection of powder strength that Rumpf submitted as the flowability evaluation index of vacuum pan salt, and the modeling interparticle force, ligancy, and void fraction, which is the composition factor.