

静岡大学 博士論文

画像解析・フラクタル次元を用いた  
固体の形態評価に関する研究

1996年10月

西本 一夫

## 目 次

第 1 章	序論	-----	1
1. 1	緒言	-----	1
1. 2	既往の研究	-----	2
第 2 章	解析方法	-----	6
2. 1	画像解析	-----	6
2. 1. 1	測定装置の概要	-----	6
2. 1. 2	数理形態学の概要	-----	7
2. 2	フラクタル次元の測定方法	-----	8
第 3 章	加硫ゴムの劣化評価	-----	11
3. 1	緒言	-----	11
3. 2	劣化試験	-----	11
3. 2. 1	試料	-----	11
3. 2. 2	劣化試験方法	-----	12
3. 2. 3	試料の前処理	-----	13
3. 3	表面亀裂形態の画像解析	-----	16
3. 3. 1	測定項目および測定方法	-----	16
3. 3. 2	結果と考察	-----	17
3. 4	表面亀裂形態のフラクタル次元	-----	20
3. 4. 1	フラクタル次元の測定	-----	20
3. 4. 2	結果と考察	-----	20
3. 5	結言	-----	25
第 4 章	ゴムの混練り状態評価	-----	26
4. 1	緒言	-----	26
4. 2	実験	-----	26
4. 2. 1	混練り実験	-----	26
4. 2. 2	混練り状態の測定	-----	27
4. 3	電力-時間曲線のスペクトル解析	-----	28
4. 3. 1	はじめに	-----	28
4. 3. 2	理論および解析方法	-----	28

4.3.3	結果と考察	29
4.4	電力-時間曲線のフラクタル次元	37
4.4.1	はじめに	37
4.4.2	理論および解析方法	37
4.4.3	結果と考察	37
4.5	結言	44
第5章	空気圧変動法による微粉体の造粒	45
5.1	緒言	45
5.2	造粒方法と造粒状態の評価	45
5.2.1	はじめに	45
5.2.2	実験	46
5.2.3	顆粒形態の評価方法	48
5.2.4	結果	48
5.2.5	考察	55
5.3	結言	56
第6章	2次元振動層内の粉体混合状態の評価	57
6.1	緒言	57
6.2	実験	57
6.3	画像解析とフラクタル次元	59
6.4	結果と考察	60
6.4.1	フラクタル特性	60
6.4.2	混合特性とフラクタル次元	63
6.5	結言	69
第7章	総括	70
使用記号		74
引用文献		77
論文リスト		83
謝辞		85

# 第 1 章 序 論

## 1. 1 緒言

自然界に存在する様々な形態や現象は、通常、非常に複雑で非線形である。このような系の現象を、従来の科学的手法で解明するのは困難な場合が多い。

本研究の対象であるゴムや粉体は、その歴史が古いにもかかわらず挙動が非常に複雑で、理論的な取り扱いが難しく、多くが未解明の状態である。

一方、近年のコンピュータ技術のめざましい発展は、複雑な問題を取り扱う新しい手法を提供している。その一つは、画像解析の手法であり、人力では数値化が不可能な複雑な図形を、種々の幾何学的因子により簡単に数値として表す。

本研究で用いた画像解析装置は、コンピュータ・ビルト社製CB-TASPERで、この装置は、数理形態学の像変換理論を基に、種々の画像処理と幾何学的諸因子の計測を行う機能を持っている。通常、CCTVカメラを通して入力された画像中には、穴あきやノイズ等の計測対象以外の画像が含まれているので、諸因子を計測する場合には、最初、2値化と呼ばれる画像のデジタル化処理を行い、次に、いくつかの像変換を組み合わせて画像の浄化処理を行った後、計測を行っている。

本研究で扱うもう一つの手法は、複雑性を解析する手法として急速に発展しているフラクタル理論である。フラクタルは、B.B.Mandelbrot<sup>1-1)</sup>が創り出した非ユークリッド幾何学の一つであるが、現在では幾何学にとどまらず複雑な系を解析する手法として広く用いられるようになってきている。図形や物理現象の複雑さの程度は、非整数次元であるフラクタル次元により表され、フラクタル次元の大きいものほどより複雑な図形（あるいは現象）であると解釈される。フラクタルは、一見、無秩序に見える複雑な図形や現象の中に潜む規則性を抽出する手法であり、その規則性とは広領域と微小領域が同じように見える性質、即ち、自己相似性である。自己相似性を持つ図形や現象は、数学的にはべき乗型の数式で表され、両対数プロットすると直線にのる特徴がある。

本研究においては、従来の科学的手法ではアプローチが困難であった複雑な形態や現象を、画像解析法を用いてユークリッド幾何学的な諸因子を計測し数値化する。更に、非ユークリッド幾何学的概念であるフラクタル次元を用い現象を定量的に評価する。本研究の前半は、ゴムの挙動に関するもので、まず、加硫ゴムが劣化したときに発生する複雑な亀裂形態を解析し、次に、密閉混合機を用いてゴムにカーボンブラックを混練りしたときの、混練り状態を解析する。後半は、粉体の挙動に関するもので、まず、新しい造粒法である空気圧変動法による微粉体の造粒を扱い、次に、振動層内の粉体の混合状態を解析する。

以上諸現象の解析結果より，本研究で用いた解析手法が，様々な物理現象を解明するための有用な方法であり，従来の手法では困難であった複雑な現象を評価するための非常に有効な手段であることを示す。

## 1. 2 既往の研究

画像解析，およびフラクタル理論の応用に関する研究は，コンピュータ技術の進歩とともに1970年代から急速に発達し，現在でもまだ発展途上にある．特に，フラクタル理論は複雑性を解析する手法として，数学，物理学，情報科学，地学，生物学，宇宙科学，社会科学，工学，医学等，非常に広範囲の分野にわたって応用研究がなされている．

本節においては，工学的諸問題を中心に，最近の画像解析・フラクタルの応用研究例をまとめる．

### (1) 画像解析に関する研究

画像解析の工学への応用研究は，種々の実験により得られた形態を，例えば，面積，周囲長，粒径，長さ，配向，重心間距離等のユークリッド幾何学的な諸因子を計測することにより数値化することが基本である．

松尾<sup>1-2)</sup>は，金属組織と機械的強度の関係を，金属の結晶粒径，析出相の大きさ，体積率，粒子間距離等を計測することにより検討した．その結果，結晶粒径が小さいほど，また，析出粒子を細かく均一に分散させるほど高強度になることを明らかにした．

林ら<sup>1-3)</sup>は，ナイロン／ポリフェニレンオキシド／ジエン系ゴムの3成分非相容性ポリマーアロイの電子顕微鏡像から，粒子の等価円半径，フェレ径，平均コード長，粒子壁間距離等を計測し，アイゾット衝撃強度，引張強度，曲げ強度，熱変形温度との関係について検討した．彼らは，アイゾット衝撃強度がマトリックス相であるナイロン相の空間的均一度，分散相（PPO，ゴム）粒子の大きさ，分散状態に依存し，引張強度がゴム相，そして曲げ強度と熱変形温度がPPO相のモルフォロジーと強い相関があることを示した．

守矢<sup>1-4)</sup>は，限外顕微鏡を高感度システムとして再構成したレーザトモグラフィにより，シリコンウェハ内の微小欠陥を観測し，欠陥密度分布，散乱強度分布を測定して欠陥の状態を定量的に評価した．

杉山<sup>1-5)</sup>，奥宮ら<sup>1-6)</sup>は，像変換理論である数理形態学を応用した画像解析法について述べ，前者は，粉体粒子の粒度分布や金属結晶粒界の粒径分布測定，繊維強化複合材料の繊維配向測定について，後者は，アルミナ焼結体粒子の粒径分

布について記述している。

本郷<sup>1-7)</sup>は、人骨断面形状を骨梁密度、幅、単位面積中の骨梁配分比、骨梁の方向成分比により数値化し、骨梁構造を定量的に表現した。

また、種々のポリマーブレンド系の相分離形態を、二次元フーリエ変換後のパワースペクトルにより数値化する研究が、西、田中らのグループによりなされている<sup>1-8)~1-12)</sup>。

McCabeら<sup>1-13)</sup>は、鋼粉末成形体の密度分布測定に画像解析を応用し、試料の前処理と実験技術が結果に大きい影響を与えることを指摘している。

Delieら<sup>1-14)</sup>は、アルミナを含有するニッケル超合金のミクロ構造を評価するため金属粒子のサイズ、形状、連結性等を測定し、金属相、含有物相、気孔相の相関関数が重要な指標であることを示した。

Maasら<sup>1-15)</sup>は、カーボンブラックを配合した加硫ゴムの切断面の原子力間顕微鏡拡大写真を基にカーボンブラックのアグリゲート間距離、サイズ分布を測定し、ゴム中のカーボンブラックのミクロ分散状態を解析した。

Hall<sup>1-16)</sup>は、耐衝撃性ポリスチレン中に分散されたゴム粒子の粒径分布を計測する手法について記述している。

画像解析は、像の識別に関する研究にも応用されており、佐橋ら<sup>1-17)</sup>は、顔画像の識別を目的として、眉、目、鼻、口、顎、耳の相対位置を計測し、これら特徴点間距離の相関比が識別に利用できることを明らかにした。また、鎬木<sup>1-18)</sup>らは、印鑑の自動照合を目的として、印影を細線化処理した後分岐点の座標を計測し、分岐点間距離の平均値と分散により識別する方法を提案している。

その他、谷田貝<sup>1-19)</sup>による非破壊検査への応用、飯沼<sup>1-20)</sup>によるX線CT画像解析への応用等の研究がある。

## (2) フラクタルに関する研究

フラクタルは、非ユークリッド幾何学の一つである。現在では幾何学のみにとどまらず、図形や物理現象の複雑性を解析する手法の一つとして広く用いられ、自己相似性を持つ様々な形態、現象をフラクタル次元で表現する。フラクタル次元は、非整数の値をとることができる特徴があり、その数値が大きいほど、複雑さがより大であると判断される。

フラクタルに関する概要は、Mandelbrot<sup>1-1)</sup>、高安ら<sup>1-21)、1-22)</sup>、Vicsek<sup>1-23)</sup>、Feder<sup>1-24)</sup>、Bundeら<sup>1-25)</sup>、Biardiら<sup>1-26)</sup>の成書に詳述されており、その他、高安<sup>1-27)~1-28)</sup>、佐野<sup>1-29)</sup>、本田<sup>1-30)</sup>らの総説に記載されている。

本項では、本研究に関連の深いフラクタルに関する既往の研究をまとめた。

### ① 粉体に関する研究

鈴木<sup>1-31)</sup>は、粒子投影像のフラクタル次元が粒子表面の凹凸状態や粉体層の流動特性を表現する指標となることを明らかにした。

落合ら<sup>1-32), 1-33)</sup>は、粉体の粉砕過程で得られる粒度分布はべき乗則にしたがいフラクタル的であること、熱分析に用いる試料粉体は、このような自己相似的粒度分布を持つものが反応速度最大となり望ましいことを示した。

Graf<sup>1-34)</sup>は、粒子のフラクタル次元を求め、二つのフラクタル次元があり、それは全体構造の複雑さと微小構造の複雑さを表すものであると記述している。

Drakopoulouら<sup>1-35)</sup>、Gerspacherら<sup>1-36)</sup>、Herdら<sup>1-37)</sup>は、カーボンブラックの一次凝集体、二次凝集体のフラクタル次元を、投影面積と周囲長の関係から求め、カーボンブラックのグレードがフラクタル次元により区別できることを明らかにした。

Caiら<sup>1-38)</sup>は、メタンと酸素の混合ガス火炎から得られる煤煙のフラクタル画像から構造係数を求めた。

また、粒子のフラクタル次元は、BET法により種々の分子径のガスを吸着させ、吸着分子数と分子半径の両対数プロットからも測定できる。Zerdaら<sup>1-39)</sup>は、カーボンブラックの測定を行い、その表面のフラクタル次元は、カーボンの種類によらず約2.2であること、Tsunoda<sup>1-40), 1-41)</sup>は、活性炭のミクロ孔のフラクタル次元を計測し約1.9であること、川口<sup>1-42)</sup>は、吸着分子が低分子であると良好な測定結果が得られるが、高分子を吸着させると正しいフラクタル次元が得られないことを示した。また、Darmstadtら<sup>1-43)</sup>は、市販カーボンブラックと熱分解カーボンブラックの表面フラクタル次元を比較し、熱分解圧力により異なったフラクタル次元を示すこと、Lebonら<sup>1-44)</sup>は、グラファイトから成る多孔質材料に塩類を注入した物質の表面フラクタル次元を測定し、塩濃度の増加とともにフラクタル次元が減少することを示した。

水野ら<sup>1-45), 1-46)</sup>は、マトリックス中のフィラーの分散状態をフラクタル次元で評価し、フラクタル次元が大きいほど分散状態が良いと記述している。

## ②破壊に関する研究

川崎ら<sup>1-47)</sup>は、セラミックスや焼入焼戻鋼の破面を計測し、フラクタル次元が破壊靱性値と密接な関係があることを示した。

松岡ら<sup>1-48)</sup>は、クロムの脆性破面を走査型トンネル顕微鏡で観察し、滑らかなクロム脆性破面は、原子レベルに近い極めてミクロな領域まで自己相似性が保たれ、フラクタルであることを明らかにした。

三橋<sup>1-49)</sup>は、コンクリート柱に水平繰り返し応力が負荷されたときに柱脚部に発生するクラックパターンのフラクタル次元を求めた結果、損傷の進行とともに

フラクタル次元が増大すること、曲げクラックよりせん断クラックの方がフラクタル次元が大きいことを示した。

中野<sup>1-50)</sup>は、摩擦面粗さと摩耗粉粒度分布解析にフラクタルを応用し、マイルド摩耗（摩耗粉が小さく摩耗率が極端に減少する摩耗形態）のフラクタル次元は、予想に反してシビア摩耗（表面粗さよりはるかに大きな摩耗粉が生成する摩耗形態）より大きいことを報告している。

その他、相転移に関する研究<sup>1-51)~1-57)</sup>、凝集体に関する研究<sup>1-58)~1-61)</sup>、物質拡散、生体組織等<sup>1-62)~1-73)</sup>多くの研究がある。

本研究では、画像解析とフラクタル次元を用い、ゴムの劣化、混練り、粉体の造粒、流動現象を調べる。



## 第 2 章 解析方法

### 2. 1 画像解析

通常、コンピュータを用いた画像解析は、フィルター操作や像変換操作といった画像ノイズの除去、画像の鮮明化等を目的とした画像処理と、デジタル化した画像情報を基に計算処理を施して幾何学的諸因子を計測するデジタル画像解析の二つに分けて考えられている<sup>2-1)~2-5)</sup>。本研究においては後者が主体となるが、一般的にビデオカメラや顕微鏡を通してコンピュータに入力された画像中には、像の重なり、穴あき、ノイズ等の計測対象以外の画像が含まれていることが多く、これらが計測の障害となる。そこで、必要に応じてフィルター操作や像変換操作といった前者の画像処理を行った後、計測に入った方が良い結果が得られることが多い。

#### 2. 1. 1 測定装置の概要

画像解析装置は、コンピュータ・ビルト社製CB-TASPERを使用した。そのシステム構成をFig. 2-1に示す。

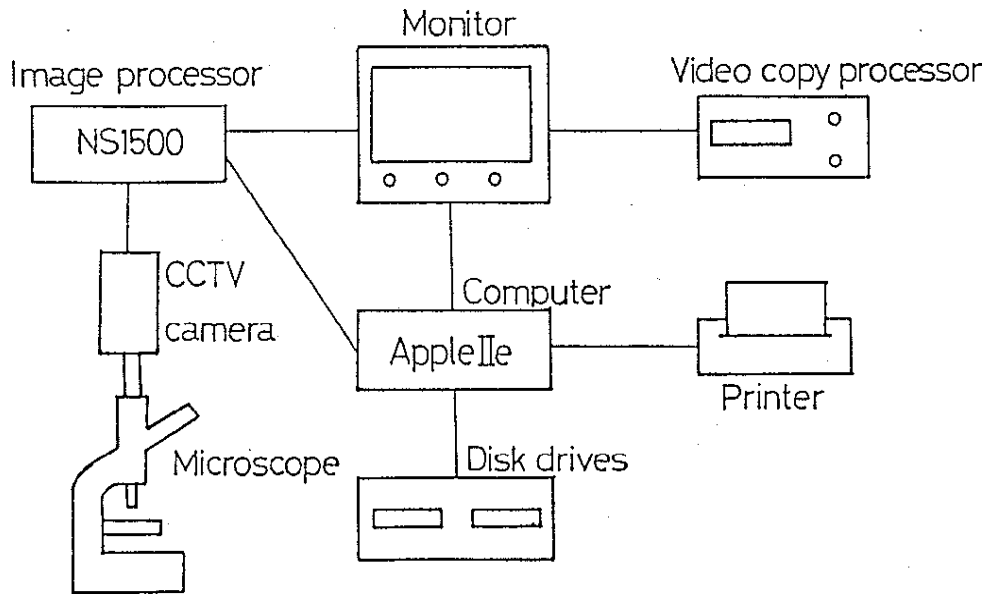


Fig. 2-1 Diagram of experimental apparatus for image analysis.

入力系は日立電子(株)製CCTVカメラで、測定対象が微細物質である場合は、これを(株)ニコン製光学顕微鏡(10倍の対物レンズ使用)に接続し、写真画像である場合は、(株)ニコン製ズームレンズをこれに取り付けて、計測対象に応じた最適画像を装置に取り込めるようになっている。画像処理装置としては、Nashet Vision社製イメージプロセッサNS1500、全体の制御、演算、司令系としては、Apple社製パーソナルコンピュータApple IIe、その他モニター、フロッピーディスク、プリンター、ビデオコピープロセッサから成り立っている。

この画像解析装置は、画像の黒から白にいたる灰色の色調を64段階に識別できるので、CCTVカメラを通して入力した画像中の計測対象画像に対応する色調範囲を予め手で探索し、この色調範囲を閾値として入力する。そうすると計測対象画像を1、背景画像を0に割り当てる2値化処理と呼ばれる画像のデジタル化が行われる。また、本装置は数理形態学の像変換理論を用いた様々な画像処理が行えるので、この機能を用いて像の浄化、鮮明化等の処理を行った後、それぞれの計測項目の測定を行う。計測項目および方法の詳細については、以下の各章においてそれぞれ別個に説明する。

## 2. 1. 2 数理形態学の概要

数理形態学は、1970年代にフランスのEcole des Mines数理形態学センター教授であるJ. Serraによってまとめられた像変換理論である<sup>2-6), 2-7)</sup>。入力された画像の中から計測対象となる図形のみを抽出するためには、像の認知、識別、浄化等の過程が必要である。数理形態学は、人間によるこれらの処理をコンピュータが自動的に行えるようにする像変換理論で、これらの過程は、様々な像変換を組み合わせることにより遂行される。

一般的な市販の画像解析装置は、画素点が正方格子状に配列されているが、本研究で用いた装置は、六方格子状に配列されているのが特徴で、ヘキサゴンと呼ばれる大きさ可変の正六角形要素を容易に発生させることができる。このヘキサゴンを用いることにより、数理形態学特有の像変換や計測を短時間に行うことが可能となる。

画像の認知は、画素点が像の内に入っている場合を1、外にある場合を0とするHit or Miss Theoryによりなされる。更に、数理形態学においては、ErosionとDilatation、二つを組み合わせたOpeningとClosingという4つの基本的な像変換機能がある。Erosionは、像を外側から削る操作で、像の個別化や浄化に使用される。これはヘキサゴンの半径(対角長の半分)の大きさだけ外周部が浸食されて像が全体的に小さくなる像変換処理である。一方、Dilatationは反対にヘキサゴンの半径分だけ像の膨張を行う操作で、隣接する像同士を連結するのに利用される。Openingは、Erosionを行った後にDilatationを行う操作で、不要な像を消去して

像の浄化を行った後、残った像を元の大きさに戻す手法である。この操作は像の浄化と同時に大きさのふるい分けを行っているため、粒度分布の測定などに応用される。Closingは、Openingと逆にDilatationを行った後にErosionを行い、像を一旦膨張させた後元の大きさに戻す。この操作により、散在する像を集団化することができ、集団の個数や集団間距離の計測に応用される。

これらの基本像変換を含めて、像の中心骨格線を抽出するスケルトン処理、交点の抽出、ポロノイ分割、その他多数の像変換機能が入っているシステムソフトが付属しており、種々の像変換を組み合わせることにより画像処理ばかりでなく、面積、長さ、配向といった様々な幾何学的諸因子の計測を行うことができる。

## 2. 2 フラクタル次元の測定方法

フラクタル次元を求める手法としては、現在、次の5種類の 방법이知られている<sup>2-8)</sup>。

- (1) 粗視化の度合いを変える方法
- (2) 測度の関係より求める方法
- (3) 相関関数より求める方法
- (4) 分布関数より求める方法
- (5) スペクトルより求める方法

測定対象により上記の方法を適用できる場合とできない場合があり、また、同一対象に対してこれら5種類の 방법이同一の結果を与えるかどうかに関しての一般論はまだない。しかし、どの方法を使っても、あまり不自然な結果を与えることはないと考えられている。以下に、各方法の概要をまとめる。

### (1) 粗視化の度合いを変える方法

この方法は、フラクタル図形を円、球、線分、正方形、立方体といった特徴的な長さを持つ基本図形の集合により構成する近似手法である。自己相似性を持つ図形の場合、その図形を長さ $r$ のスケールで分割して分割個数 $N(r)$ を求めると、 $N(r)$ と $r$ の間には、次の関係がある<sup>2-8)</sup>。

$$N(r) \propto r^{-D} \quad (1)$$

ここで、 $D$ はフラクタル次元である。両辺の対数をとると、

$$\log N(r) \propto -D \log r \quad (2)$$

となり、 $r$ と $N(r)$ の値を両対数プロットすると、その傾きからフラクタル次元 $D$ を求めることができる。傾きは、べき乗回帰分析により計算する。

粗視化を変える方法にもいくつかの方法があり、ここでは、比較的よく用いられるデバイダー法とボックスカウンティング法についてまとめる。

### ① デバイダー法

海岸線のような複雑な曲線のフラクタル次元を測定するのに用いられる方法で、まず、曲線の端点を中心とした半径  $r$  の円を描き、次に、曲線との交点を中心とした円を描く。更に曲線との新たな交点を中心とした円を描くという操作を繰り返した後、各交点を直線で結ぶと、元の曲線は長さ  $r$  の折れ線の集合で近似される。 $r$  を変化させて、それぞれの  $r$  における交点を結ぶ直線の数  $N(r)$  を求めると、(1)式または(2)式によりフラクタル次元  $D$  を計算することができる。基準長さ  $r$  を大きくするにしたがい、近似が粗くなり曲線の細かい構造が消されていくことになる。

### ② ボックスカウンティング法

この方法は、点の分布、曲線の形、分岐を持つ図形等、いろいろな図形に適用できる一般性の高い方法で、コンピュータで処理するのに適した方法である。観測面積全体を一辺が  $r$  の正方形のセルに分割し、この中で対象となる図形が一部でも含まれているセルのみを抽出し、その数  $N(r)$  を数える。セルの大きさ  $r$  を変化させてそれぞれに対応する  $N(r)$  を求め、(1)式または(2)式によりフラクタル次元を計算する。本研究においては、第3章、第6章でこの方法が用いられる。

#### (2) 測度の関係より求める方法

いろいろなサイズの粒子が散在しているような場合、個々の粒子の凹凸の状態がフラクタルであれば、一つの粒子の投影面積を  $A$ 、その周囲長を  $L$  とすると、次式が成り立つ<sup>2-9)~2-11)</sup>。

$$A^{1/2} \propto L^{1/D} \quad (3)$$

両辺の対数をとって、

$$\log A \propto \frac{2}{D} \log L \quad (4)$$

が得られる。個々の粒子の投影面積  $A$  と周囲長  $L$  は、画像解析により容易に計測できるので、(3)式または(4)式を用いてフラクタル次元  $D$  が計算される。本研究においては、第5章においてこの方法が用いられる。

#### (3) 相関関数より求める方法

空間的にランダムに分布するある量が、フラクタル分布になっている場合、相関関数  $C(s)$  はべき乗の型になる。即ち、

$$C(s) \propto s^{-\beta} \quad (5)$$

ここで  $s$  は2点間距離、 $\beta$  はべきの指数である。 $\beta$  は空間の次元  $d$  からフラクタル次元  $D$  を引いた値で、次式で表される。

$$\beta = d - D \quad (6)$$

#### (4) 分布関数より求める方法

分布関数の型からフラクタル次元を求める方法で、例えば、粉体の粒度分布や月のクレータ径の分布等からフラクタル次元を求めるのに用いられる。

粉体の粒度分布を例にとると、ある粒子の大きさを  $r$  とし、その粒子より大きい粒子の存在確率を  $S(r)$  とすると、

$$S(r) \propto r^{-D} \quad (7)$$

で表される。即ち、篩いの目開きを  $r$  とし、篩い上残分を  $S(r)$  としてその粒度分布からフラクタル次元  $D$  を求めることができる。

#### (5) スペクトルより求める方法

ある量が時間変動する場合、その変動がフラクタルであれば、時系列データをスペクトル解析して得られるパワースペクトル密度  $P(f)$  は、周波数  $f$  のべき乗型で表される。

$$P(f) \propto f^{-\beta} \quad (8)$$

ここで、べきの指数  $\beta$  とフラクタル次元  $D$  の間には次の関係がある。

$$1 < D < 2 \text{ のとき} \quad \beta = 5 - 2D \quad (9)$$

$$2 < D < 3 \text{ のとき} \quad \beta = 7 - 2D \quad (10)$$

人間が快適に感じる  $1/f$  ゆらぎは、 $\beta \doteq 1$  の場合であり、そのフラクタル次元は、 $D \doteq 2$  となる。

本研究においては、第4章でこの方法が用いられる。

# 第3章 加硫ゴムの劣化評価

## 3. 1 緒言

屋外暴露あるいは促進劣化を受けた加硫ゴム表面には、しばしば亀裂の発生が認められる。この亀裂形態は、その発生要因からオゾン亀裂と光亀裂に分類され、前者はオゾンを含んだ大気中に伸長したゴムを放置したとき伸長方向と直角方向に割れが発生するもの、後者は光による触媒作用のもとに酸化された表面層においてあらゆる方向に割れが発生するものとして区別されている<sup>3-1), 3-2)</sup>。

従来劣化ゴム表面に発生する亀裂形態に関する研究は、その形状が非常に複雑であるため、視覚的表現による定性的な評価によるものが主流である。例えば、Newton<sup>3-3)</sup>は、予め5段階の標準亀裂写真を撮っておき、これと比較して亀裂の状態を5段階で評価する方法で、また、Edwardsら<sup>3-4)</sup>は、非常に深く劣化の激しい亀裂を1とし、180°折り曲げても亀裂が発生しないものを5とした評価基準を作り、やはり亀裂の状態を5段階に等級づける方法で検討している。

本章においては、従来、定性的で感覚的な判断が主であったこれらの亀裂形態を、画像解析の手法とフラクタル理論を用いて定量的に評価し、得られた評価因子がゴムの劣化状態を示す指標となることを明らかにする。

## 3. 2 劣化試験

### 3. 2. 1 試料

用いた試料は、スチレン-ブタジエンゴム (SBR) 明色配合加硫物であり、試料配合をTable 3-1に示す。このゴム配合は、(社)日本ゴム協会の環境劣化研究分科会が、ゴムの耐候性に関する共同研究を実施したときに使用したものと同一で、実用配合を想定したモデル配合である。ゴムに各配合物を2軸ロールを用いて練り込み、その後、熱プレスによりシート状に加硫成型した。

加硫条件は、160℃、30分間とし、厚さ2 mmのシート状に成型した。

Table 3-1 Recipe

Compounding ingredient	phr <sup>*)</sup>
SBR1502	100
Zinc oxide	5
Stearic acid	1.0
Silica	30
Calcium carbonate	40
Titanium oxide	15
Process oil	10
Diethylene glycol	2.0
Antioxidant MB	1.0
Antioxidant 1010	1.5
Accelelator DM	1.0
Accelelator TS	0.5
Sulfur	2.0
Total	209.0

<sup>\*)</sup> Parts per hundred parts of rubber.

### 3. 2. 2 劣化試験方法

劣化試験として、屋外暴露試験と2種類の耐候試験機を用いた促進劣化試験を行った。屋外暴露試験は、東京都国分寺市（財）鉄道総合技術研究所屋上（郊外地区）の南面30度に試料をセットし、400日間の暴露を行った。促進劣化試験は、スガ試験機(株)製デューサイクル・サンシャインスーパーロングライフウェザーメータWEL-SUN-DC（以下、SUNと略記）、およびデューパネルウェザーメータDPWL-5R（以下、DPWと略記）を使用して行った。前者は120分間中18分間散水の条件で、後者は紫外線照射4時間、湿潤4時間、照射時試験槽温度50℃、湿潤時試験槽温度40℃、紫外線照射強度30 W/m<sup>2</sup>の条件で、それぞれ1000時間の暴露を行った。試料寸法は、幅100 mm、長さ200 mm、厚さ2 mmとした。

### 3. 2. 3 試料の前処理

画像解析の精度を高めるためには、できるだけ鮮明な画像を入力する必要がある。そこで、エチルアルコールにカーボンブラックを分散させたペーストを劣化試料表面に擦り込んだ後、水に濡らした綿棒の先で軽く擦りながら試料表面の余分なカーボンブラックを除去する方法で、カーボンブラックを亀裂中に埋め込んだ。その結果、白色のゴム表面に黒色の亀裂が浮かび上がった鮮明な亀裂画像が得られた。屋外暴露によりSBR試料表面に発生した亀裂の時間変化の光学顕微鏡による拡大画像をFig. 3-1(a)～(d)に、SUN促進劣化およびDPW促進劣化の亀裂画像をFig. 3-2(a)～(e)、Fig. 3-3(a)～(e)に示す。

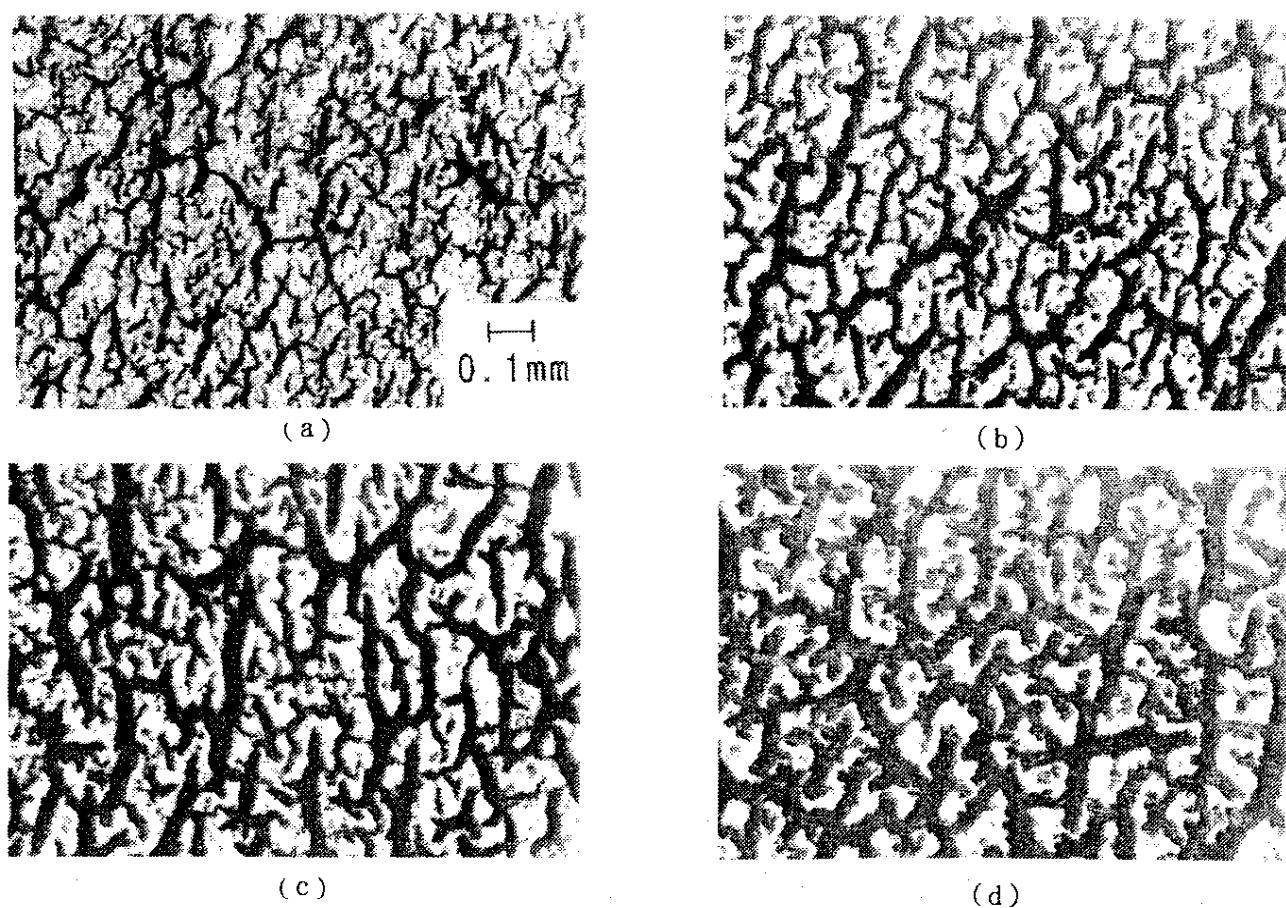
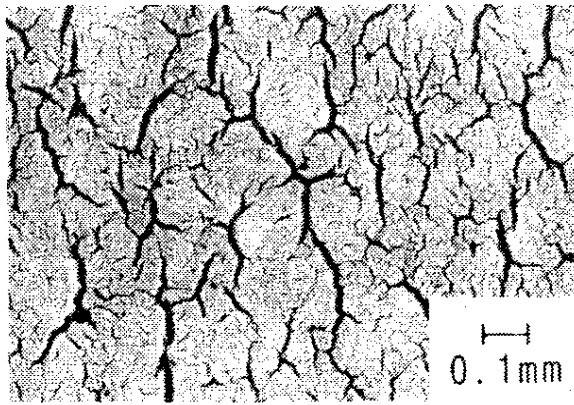


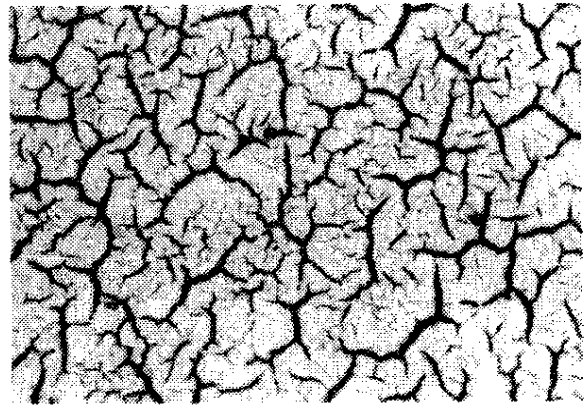
Fig. 3-1 Microscopic photographs of degraded SBR surface crazing (Outdoor exposure).

(a), 100 days; (b), 200 days; (c), 300 days; (d), 400 days.

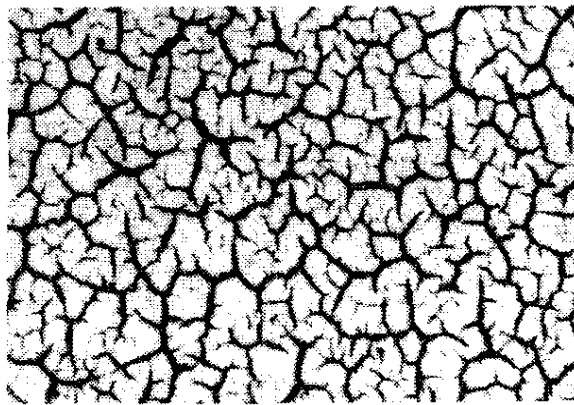




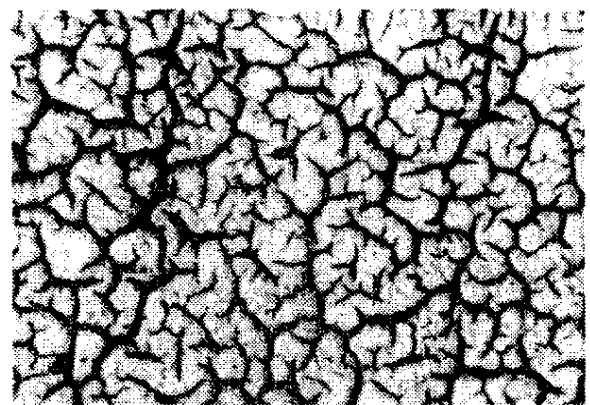
(a)



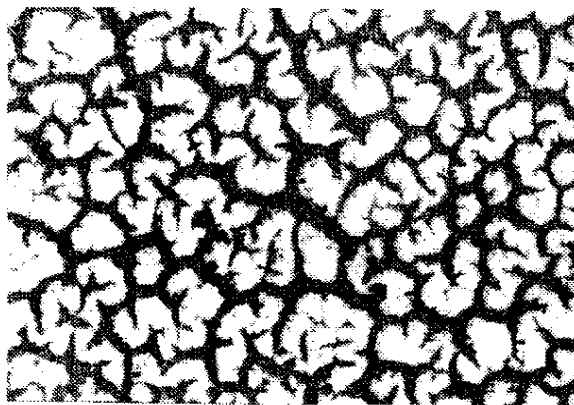
(b)



(c)

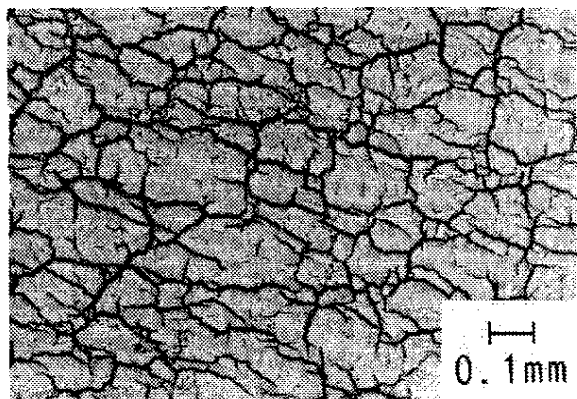


(d)

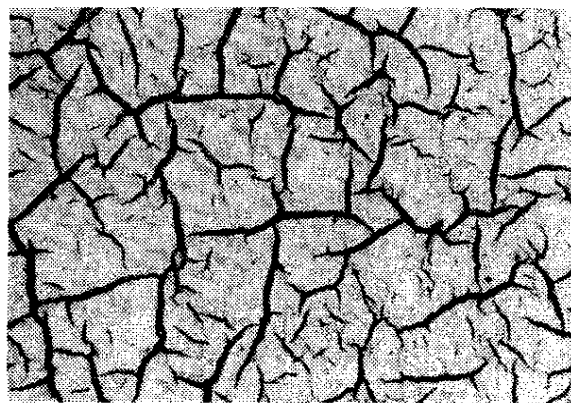


(e)

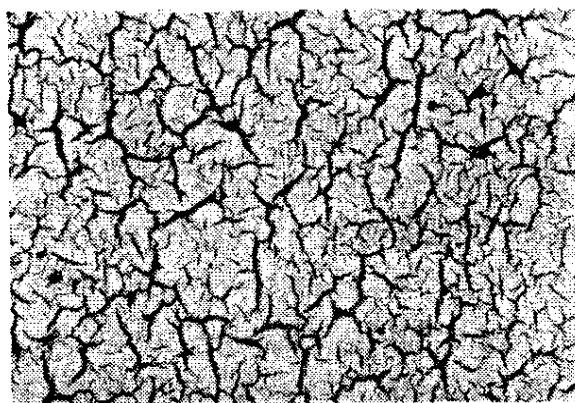
Fig. 3-2 Microscopic photographs of degraded SBR surface crazing  
(Accelerated degradation by SUN weatherometer).  
(a), 100 h; (b), 200 h; (c), 300 h; (d), 500 h; (e), 1000 h.



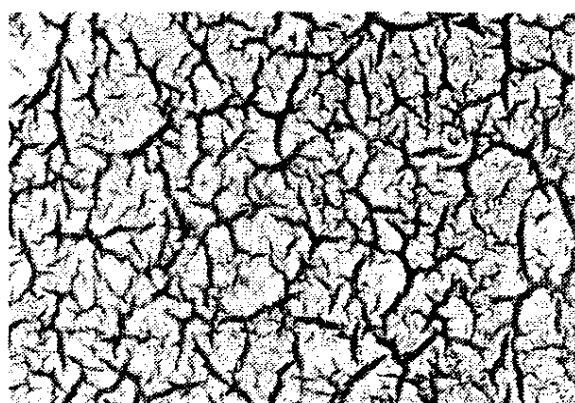
(a)



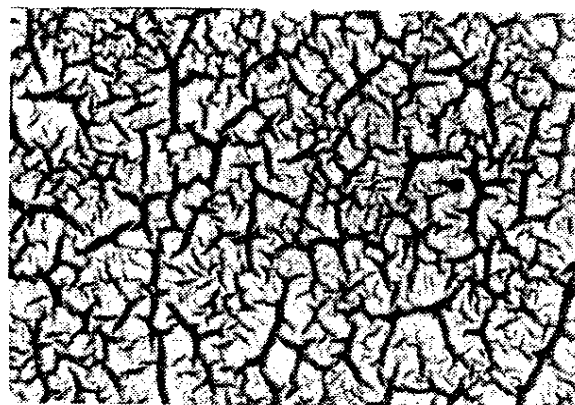
(b)



(c)



(d)



(e)

Fig. 3-3 Microscopic photographs of degraded SBR surface crazing  
(Accelerated degradation by DPW weatherometer).

(a), 100 h; (b), 200 h; (c), 300 h; (d), 500 h; (e), 1000 h.

### 3.3 表面亀裂形態の画像解析<sup>3-5), 3-6)</sup>

#### 3.3.1 測定項目および測定方法

屋外暴露および耐候試験機を用いた促進暴露により劣化させたSBRゴム表面に発生した複雑な亀裂形態を、画像解析装置を用いてユークリッド幾何学的因子を測定し、定量的に評価した。280倍に拡大された亀裂画像を装置に入力後、亀裂部分（黒色部）を1、ゴム表面部分（白色部）を0に割り当てる2値化処理を行い、数理形態学に基づく像変換を実施して、以下に示す諸因子を測定した。

##### (1) 亀裂長さ密度L。

亀裂の主軸骨格線のみを抽出するスケルトン処理を行った後、観測面積中に存在する全亀裂長さを計測し、これを観測面積で割って単位面積当たりの亀裂長さを求め、亀裂長さ密度とした。

##### (2) 亀裂幅分布

大きさが可変の六角形要素（ヘキサゴン）を用い、このヘキサゴンが亀裂幅に内接したとき、その対角長をこの部位の幅として認識する方法により、観測面積中に存在する全亀裂の幅分布（ $N(W)/N(W_{all})$ とWの関係）を計測した。

ここで、Wはヘキサゴンの対角長、 $N(W)$ はWのヘキサゴンの占める面積、 $N(W_{all})$ は亀裂面積である。

##### (3) 亀裂面積比A。

観測面積中に存在する全亀裂面積を計測し、観測面積に対する亀裂面積の比率を算出した。

### 3. 3. 2 結果と考察

#### (1) 亀裂長さ密度 $L_s$

屋外暴露および促進劣化試験における亀裂長さ密度  $L_s$  の経時変化を Fig. 3-4, Fig. 3-5 に示す。屋外暴露においては、暴露初期に亀裂長さ密度は急激に増大し、約100日間暴露で最大となった。その後、暴露時間の増加とともに亀裂長さ密度は減少し、200日暴露以後は一定の値となった。

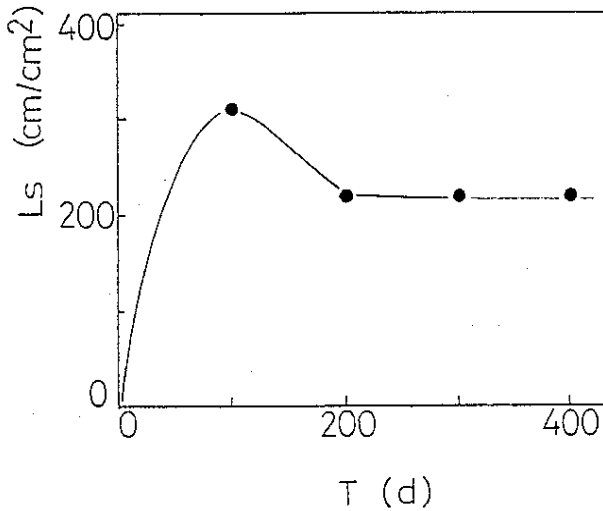


Fig. 3-4 Relation between specific length of crazings and exposure time (Outdoor exposure).

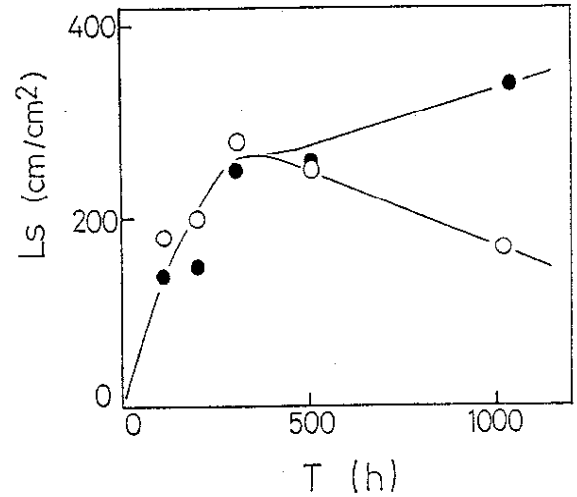


Fig. 3-5 Relation between specific length of crazings and exposure time (Accelerated degradation :  
○, SUN-degradation ;  
●, DPW-degradation).

促進劣化の場合も屋外暴露と同様に劣化初期において亀裂長さ密度の急激な増大が認められたが、SUN促進劣化においては暴露時間300時間で最大値を示し、その後減少するのに対し、DPW促進劣化では増加し続ける傾向を示した。これは光源の波長、照射エネルギー等暴露条件の違いによるものと考えられるが、詳細は明確でない。屋外暴露およびSUN促進劣化で亀裂長さ密度の減少が生じたのは、劣化の進行とともに亀裂同士の幅方向の合一が生じ、多数の細かい亀裂から、少数の太い亀裂に形態変化したことによるものと考えられる。

(2) 亀裂幅分布

屋外暴露および促進劣化試験における亀裂幅分布の時間変化をFig.3-6, Fig.3-7(a), (b)に示す。いずれの劣化試験においても劣化初期に幅の狭い亀裂が発生し、その後、暴露時間の増加とともに隣接する亀裂同士の合一が生じて幅の広い亀裂に移行する傾向が認められた。

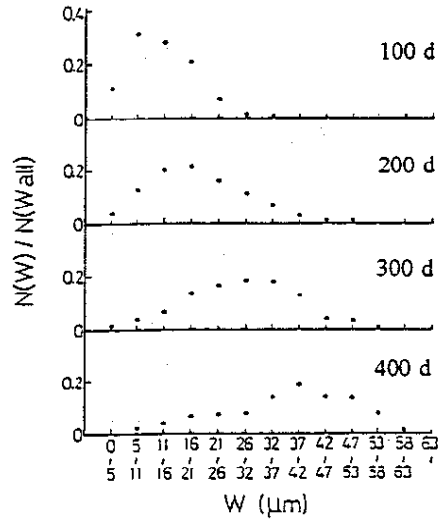
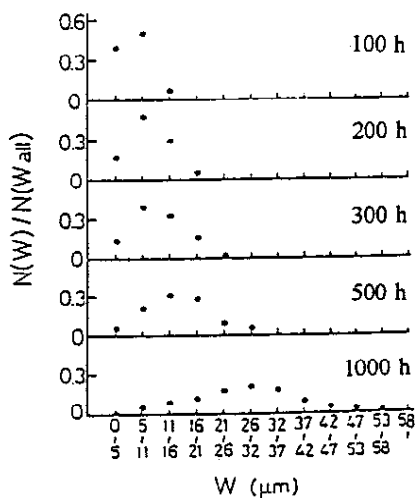
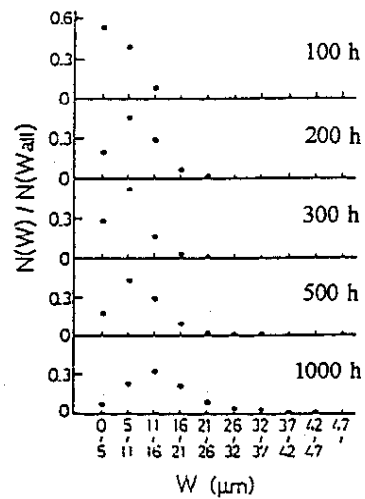


Fig. 3-6 Distribution of crazing widths  $N(W)/N(W_{all})$  of SBR by outdoor degradation.



(a)



(b)

Fig. 3-7 Distribution of crazing widths  $N(W)/N(W_{all})$  of SBR by accelerated degradation.

(a) SUN-degradation ; (b) DPW-degradation

### (3) 亀裂面積比 $A_s$

屋外暴露および促進劣化試験における亀裂面積比  $A_s$  の経時変化を Fig.3-8, Fig.3-9 に示す。いずれの劣化試験においても亀裂面積比は暴露時間の増加とともに単調に増大することが分かった。亀裂長さ密度は、劣化試験方法により最大値をとる場合や単調増加する場合など異なった時間変化を示すが、亀裂面積比は、劣化試験方法に無関係に単調増加すること、および劣化後のゴム物性と直線関係にあること<sup>3-5)</sup>から、ゴムの劣化状態の有用な評価指標となると考えられる。

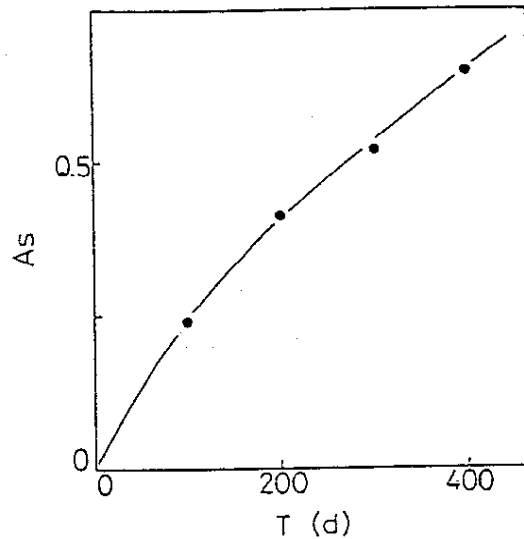


Fig. 3-8 Relation between specific crazing area and exposure time (Outdoor exposure).

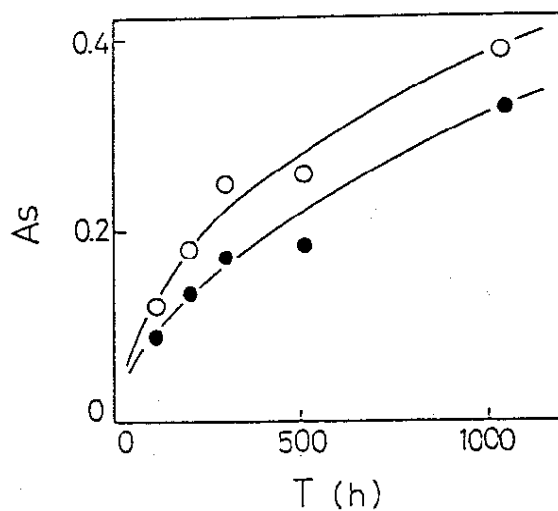


Fig. 3-9 Relation between specific crazing area and exposure time (Accelerated degradation : ○, SUN-degradation ; ●, DPW-degradation).

### 3. 4 表面亀裂形態のフラクタル次元<sup>3-7)</sup>

#### 3. 4. 1 フラクタル次元の測定

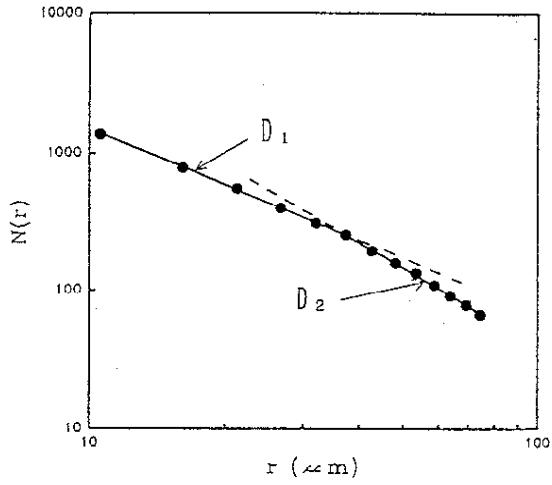
前節の画像解析で用いたものと同じ試料を使用し、その複雑な亀裂形態をフラクタル理論を適用して解析することを試みた。まず、亀裂形態が自己相似性をもつか否かを検証してフラクタル図形であることを確認した後、そのフラクタル次元を測定した。得られたフラクタル次元により亀裂形態の複雑さを評価するとともに、フラクタル次元とゴムの劣化状態との関係、および画像解析結果との関係について検討した。

フラクタル次元の測定は、2. 3. 3節の(1)粗視化の度合いを変える方法の中で述べた、ボックスカウンティング法を用いて行った。測定に際しては、画像解析装置CB-TASPERを用い、自作のボックスカウンティング計測プログラムを使用した。計測手順は、まず、入力した亀裂画像全体を一辺が $r$ の正方形セル(ボックス)で覆い、亀裂を一部でも含むセルのみを抽出してその数 $N(r)$ を計測する。次に、セルの大きさ $r$ を順次変化させてそれぞれの $N(r)$ を求めた後、 $N(r)$ と $r$ の関係を両対数プロットする。このプロットが直線にのれば自己相似性があることになり、フラクタル図形であることが確認される。(2)式の関係からその直線の傾きがフラクタル次元 $D$ に相当し、べき乗回帰分析によりこの値を求めた。

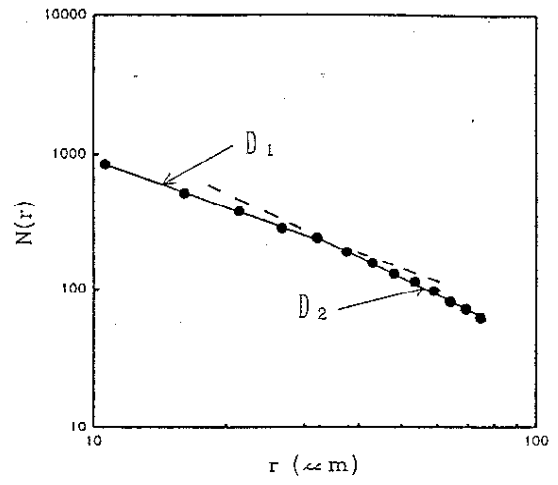
#### 3. 4. 2 結果と考察

フラクタル次元の測定例をFig. 3-10(a)~(c)に示す。(a)は屋外暴露100日、(b)はSUN促進劣化200時間、(c)はDPW促進劣化300時間の場合のそれぞれの $r$ と $N(r)$ の関係を両対数プロットしたもので、いずれも二つの傾きを持った折れ線になり、二つのフラクタル次元を持つフラクタル図形であることが分かった。他の劣化条件の亀裂も同様に、二つのフラクタル次元を持つことが分かり、これらの測定結果をまとめてTable 3-2に示した。

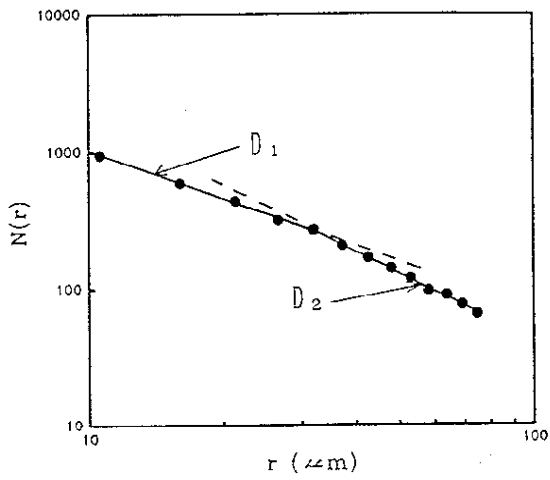
二つのフラクタル次元を持つ図形の場合、小さいスケール範囲で計測されるフラクタル次元 $D_1$ が図形の微小構造の複雑さを、大きいスケール範囲で計測されるフラクタル次元 $D_2$ が図形の全体構造の複雑さを表していると考えられる<sup>3-8)</sup>。この考え方にしたがえば、 $D_1$ はゴム表面の凹凸あるいは亀裂の微小な分岐等に起因する亀裂周囲の細かい凹凸の複雑さを表しており、 $D_2$ は亀裂全体の骨格および亀裂の全体的な分布状態の複雑さを表していると解釈される。



(a)



(b)



(c)

Fig.3-10 Relation between box size and the number of box that contains crazing image.

(a) 100 days of outdoor exposure

(b) 200 h of accelerated degradation by SUN-weatherometer

(c) 300 h of accelerated degradation by DPW-weatherometer



Table 3-2 Fractal dimensions of degraded SBE surface crazing under various conditions.

Test method	Exposure time	Fractal dimension	
		$D_1$	$D_2$
Outdoor exposure	100 (day)	1.36	1.87
	200	1.46	1.85
	300	1.57	1.94
	400	1.82	2.01
SUN-weatherometer	100 (h)	1.17	1.49
	200	1.17	1.54
	300	1.33	1.89
	500	1.25	1.79
	1000	1.52	1.89
DPW-weatherometer	100 (h)	1.25	1.68
	200	1.20	1.49
	300	1.19	1.61
	500	1.25	1.71
	1000	1.34	1.87

屋外暴露における暴露日数とフラクタル次元の関係をFig.3-11に示した。二つのフラクタル次元 $D_1$ 、 $D_2$ は暴露日数の増加とともに増大する傾向を示し、このことから、ゴムの劣化の進行とともに亀裂の複雑さが増していくことが明らかとなった。また、暴露日数が増加するに従い $D_1$ と $D_2$ の差が縮まる傾向が認められた。SUN促進劣化、およびDPW促進劣化における暴露時間とフラクタル次元の関係をFig.3-12、Fig.3-13に示した。SUN促進劣化、DPW促進劣化共に、 $D_1$ 、 $D_2$ は屋外暴露と同様に、暴露時間の増加に従い増大する傾向を示した。劣化試験方法によって $D_1$ 、 $D_2$ は、それぞれ異なった値を示しており、このことは各劣化試験方法特有の亀裂形態となっていることを示唆している。屋外暴露、SUN促進劣化、DPW促進劣化の各暴露時間における亀裂面積比とフラクタル次元の関係をFig.3-14に示した。フラクタル次元 $D_1$ 、 $D_2$ は、亀裂面積比 $A_s$ と直線関係があることが分かり、特に、亀裂の微小構造に関連すると考えられるフラクタル次元 $D_1$ の直線性が良好であった。回帰分析の結果、決定係数 $R^2=0.920$ で次の回帰式が得られた。

$$D_1 = 1.13A_s + 1.03 \quad (11)$$

前項の画像解析結果において、亀裂面積比 $A_s$ がゴムの劣化状態を示す有用な指標となることを示したが、これと直線関係にあるフラクタル次元 $D_1$ も同様にゴムの劣化状態を示す一つの指標となることが示唆された。

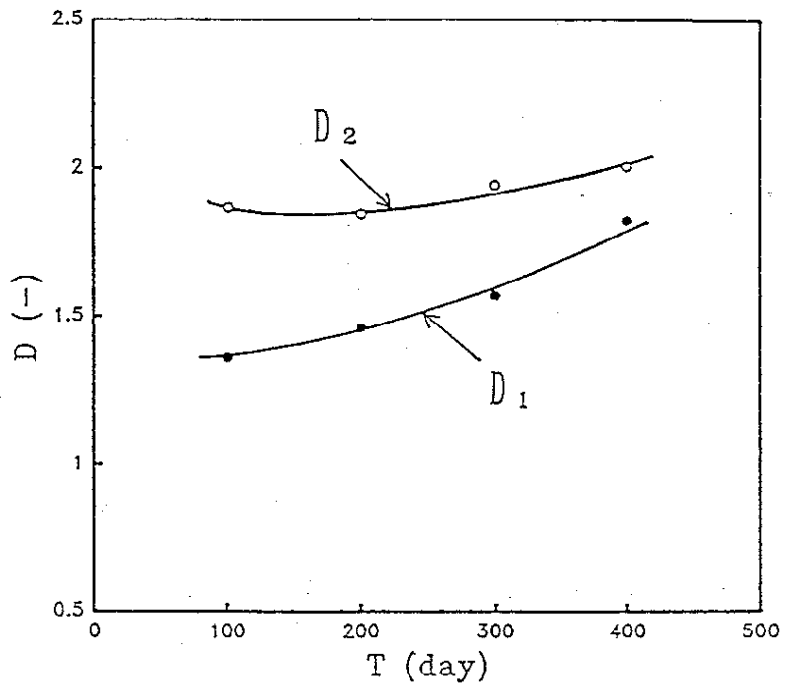


Fig. 3-11 Relation between fractal dimension and exposure time (Outdoor exposure).

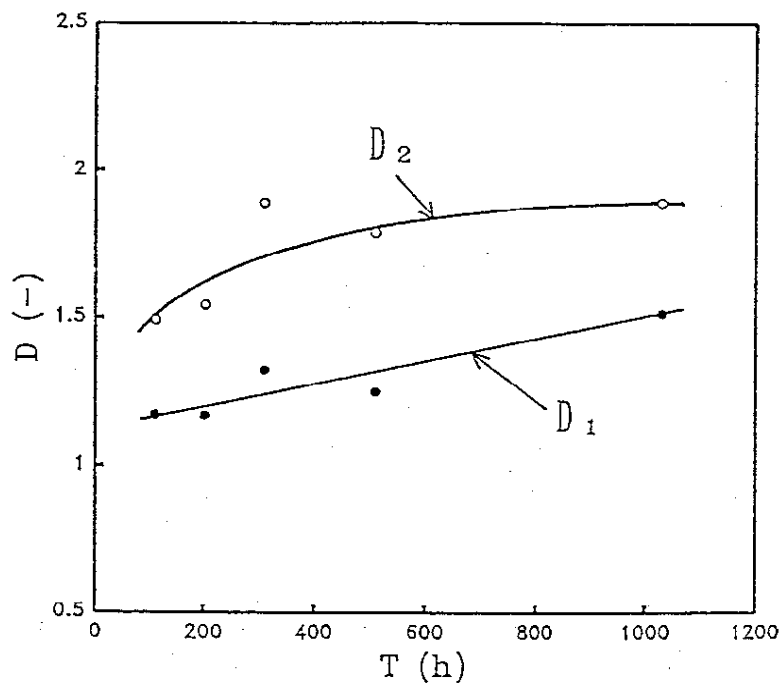


Fig. 3-12 Relation between fractal dimension and exposure time (Accelerated degradation by SUN-weatherometer).

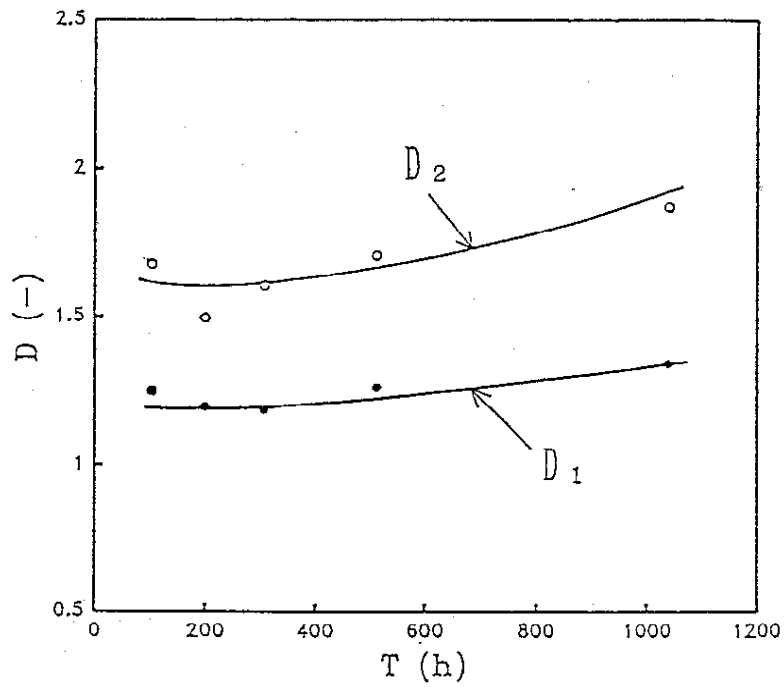


Fig. 3-13 Relation between fractal dimension and exposure time (Accelerated degradation by DPW-weatherometer).

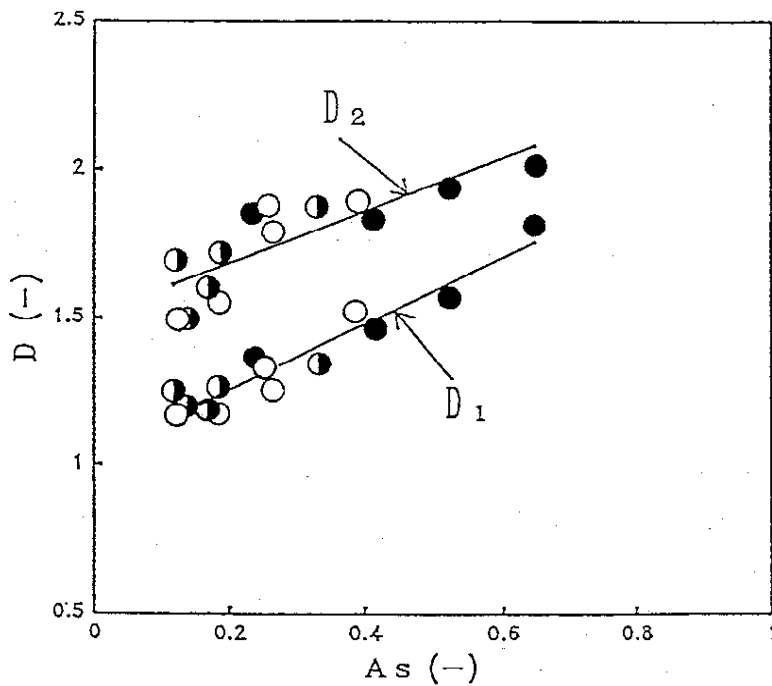


Fig. 3-14 Relation between fractal dimension and specific crazing area (crazing area per unit test piece area).

●, Outdoor exposure ; ○, SUN-weatherometer ; ○, DPW-weatherometer.

### 3. 5 結言

屋外暴露および促進暴露により劣化させたスチレンーブタジエン（SBR）加硫ゴムの表面に発生した複雑な亀裂形態を，画像解析の手法，およびフラクタル理論を用いて解析し，定量的な評価を行った．

3. 3節では，画像解析の手法により亀裂長さ密度，亀裂幅分布，亀裂面積比，の3因子で亀裂形態を数値化し，これら因子と暴露時間との関係，劣化試験方法による影響について検討した．その結果，以下の結論を得た．

①亀裂長さ密度は，屋外暴露，SUN促進劣化の場合，劣化初期に最大値を示すが，DPW促進劣化の場合，増加し続ける傾向を示す．劣化試験方法により変化傾向に差があるのは，促進劣化試験が必ずしも屋外暴露を忠実に促進している訳ではなく，むしろそれぞれの劣化試験方法特有の劣化状態となることを示唆している．

②亀裂幅分布は，いずれの劣化試験においても劣化初期に幅の狭い亀裂が発生し，劣化の進行とともにしだいに幅の広い亀裂に移行する傾向を示している．

③亀裂面積比は，劣化試験方法に無関係に暴露時間の増加とともに単調に増大する傾向を示し，また，劣化ゴムの物性と直線関係にあることから，ゴムの劣化状態を示す有用な評価指標となる．

3. 4節では，ボックスカウンティング法によりフラクタル次元を測定し，亀裂形態の複雑性を評価するとともに，暴露時間，試験方法との関係について検討した結果，次の結論が得られた．

①ゴム表面に発生した亀裂形態は，二つのフラクタル次元を持つフラクタル図形である．

②フラクタル次元は，試験方法に無関係に暴露時間の増加とともに増大する傾向を示す．このことは劣化の進行とともに，より複雑な亀裂形態に移行することを示唆している．

③各劣化試験方法により異なったフラクタル次元を示し，それぞれの劣化試験方法特有の亀裂形態となっている．

④フラクタル次元は，ゴムの劣化状態の有用な評価指標である亀裂面積比と直線関係にあり，したがってゴムの劣化状態を示す一つの指標となる．

本章で得られた結果により，劣化ゴムの亀裂形態には，従来の視覚的判断では分からなかった多くの情報が含まれていることが明らかとなり，特に，亀裂面積比  $A_s$  と亀裂の微小構造に関係するフラクタル次元  $D_1$  の2因子は，ゴムの劣化状態を評価する有用な指標となるとの結論を得た．

# 第4章 ゴムの混練り状態評価

## 4. 1 緒言

密閉混合機によるゴムの混練り機構についてはまだ不明な点が多く、いろいろな視点から数多くの研究がなされている。例えば、チャンバ内のゴム流動に関する流体力学的な研究<sup>4-1)~4-4)</sup>、透視外壁を持つ密閉混合機を用いた混練り挙動の可視化の研究<sup>4-5)~4-8)</sup>、実験用小型混合機から生産用大型混合機へのスケールアップに関する研究<sup>4-2), 4-9), 4-10)</sup>、チャンバ内壁に取り付けられた圧力センサによるゴムの流動状態の解析<sup>4-5), 4-11), 4-12)</sup>、混練り時のカーボンブラック分散に関する微視的研究<sup>4-13)~4-15)</sup>等がある。

一方、生産現場においては、密閉混合機の消費電力の時間変動を記録し、電力-時間曲線による管理が古くから行われている。この場合、曲線全体の形、総消費電力、Beachら<sup>4-16)</sup>が提案したBIT (Black Incorporation Time)として知られている第二ピークにいたるまでの時間等が、品質管理指標として用いられている。

東、松本ら<sup>4-17), 4-18)</sup>は、この電力-時間曲線中には、ゴムの混練り挙動に関する種々の情報が内在しているはずであると考え、スペクトル解析法を用いて検討した。その結果、混練り状態を示す新しいパラメータとして、平均混練電力、混練電力の分散、スペクトルの片対数プロットの傾きの3因子を提案した。

本章においては、密閉混合機を用いてアクリロニトリル-ブタジエンゴム (NBR) にカーボンブラックを混入したときの電力-時間曲線をスペクトル解析し、得られたスペクトルピークの物理的意味の解釈を行い、混練り状態との関係について検討する。また、スペクトル解析結果から得られるフラクタル次元と混練り状態との関係についても検討し、ゴムの混練り挙動がフラクタル現象として記述できることを明らかにする。

## 4. 2 実験

### 4. 2. 1 混練り実験

日本ロール製造(株)製5.7リットル実験用密閉混合機(バンバリータイプ、2枚羽根ロータ)を用い、冷却水温度30℃、材料充填率70vol%で混練り実験を行った。使用したゴムはNBRで、配合をTable 4-1に示す。

混練りはアップサイドダウン法により、材料投入30秒→主混練り→スィープ操作30秒→後混練り→排出のパターンで行った。材料投入順序はゴム半量→ZnO→カーボンブラック→ステアリン酸→ゴム半量の順とした。ゴムは予め約60mm角のブロック状に裁断したものを使用した。

Table 4-1 Compound recipe.

NBR 1052	100
Carbon black (N330)	40
ZnO	3
Stearic acid	1

All quantities in weight per hundred parts of rubber.

積算電力，ロータ回転速度，ロータ回転比の3因子がゴムの混練り状態に及ぼす影響について検討するため，材料投入から排出までの混合機の電力変動を記録し，それぞれの実験条件における電力-時間曲線を得た．実験条件をTable 4-2に示す．

Table 4-2 Experimental conditions.

Run No.	Electric energy		Rotor revolution		Revolving ratio $\alpha^{b)}$ (-)
	Initial <sup>a)</sup>	Overall	Rotor A	Rotor B	
	$E_i$ (Wh)	$E_a$ (Wh)	$R_a$ (rpm)	$R_b$ (rpm)	
1	500	785	65	57	1.14
2	700	1028	65	57	1.14
3	900	1220	65	57	1.14
4	700	1028	40	35	1.14
5	700	1028	80	70	1.14
6	700	1028	69	53	1.30
7	700	1028	73	49	1.49
8	500	785	61	61	1.00
9	700	1028	61	61	1.00
10	900	1220	61	61	1.00
11	700	1028	40	40	1.00
12	700	1028	80	80	1.00

a) Electric energy of initial mixing stage

b)  $\alpha = R_b/R_a$

#### 4. 2. 2 混練り状態の測定

ゴムの混練り状態は，カーボンブラックの分散状態により評価できる．カーボンブラックの分散状態とゴムシートの電気抵抗の間には一定の関係があり，分散状態が良好となるほど体積固有抵抗が増大することが知られている<sup>4-14), 4-19), 4-20)</sup>．

混練り終了後のゴムをロールで1.5 mm厚さに分出し，Tangent社製のカーボンブラック分散計 (Electroscanner) を使用して未加硫ゴムシートの導電率を測定した．測定は常温で行い，導電率の値からゴムの混練り状態を評価した．

## 4. 3 電力-時間曲線のスペクトル解析<sup>4-21)</sup>

### 4. 3. 1 はじめに

スペクトル解析は、不規則に変動しているように見える観測データから、周期成分を分離抽出する手法であり、その本来の目的は、複雑に時間変動する観測データ中に、どのような周波数成分がどの程度の強さで含まれているかを明らかにすることである。したがって、密閉混合機によるゴムの混練りに時に記録された電力-時間曲線をスペクトル解析すれば、新たな知見が得られる可能性がある。即ち、スペクトルピーク群中には、いろいろな情報が含まれていると考えられるので、その情報を明らかにすることにより、ゴム混練り機構に関する理解を深めることができるものと思われる。

本節においては、電力-時間曲線をスペクトル解析して得られたスペクトルピークの物理的意味について検討し、スペクトルピークがロータの回転周期と密接な関係にあることを示し、更に、混練り状態評価指標の一つと考えられている未加硫ゴムシートの導電率が、積算電力、ロータ回転速度、ロータ回転比等の値に関係なく、ロータ総回転数の指数関数で表されることを示した。

### 4. 3. 2 理論および解析方法

スペクトル解析の手法は、Brackman-Tukey法、高速フーリエ変換法、最大エントロピー法（以下MEM法と略記する）等の計算方法が知られている。本章では、その中で最もスペクトルの分解能、安定性に優れているとされているMEM法を用いて計算を行う。

MEM法は、1967年にBurgによって提案された方法で、次式で定義される情報エントロピー $H$ を最大にするという条件でスペクトルを求める手法である<sup>4-22)</sup>。

$$H = - \int_{-f_n}^{f_n} \log P(f) df \quad (12)$$

ここで、 $P(f)$ はパワースペクトル密度、 $f$ は周波数、 $f_n$ はナイキスト周波数である。

解くべき連立方程式は次式で示される。

$$\begin{bmatrix} C_0 & C_1 & \cdots & C_m \\ C_1 & C_0 & \cdots & C_{m-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ C_m & C_{m-1} & \cdots & C_0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ \gamma_{m1} \\ \vdots \\ \gamma_{mm} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} P_m \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix} \quad (13)$$

ここで、 $C_k$ はラグ $k\Delta t$ の自己相関関数、 $\gamma_{mk}$ は $m$ 点予測誤差フィルター、 $P_m$ は $m+1$ 点予測誤差フィルターからの平均出力を表す。

パワースペクトル密度 $P(f)$ は、(13)式を解き未知数である $\gamma_{mk}$ 、 $P_m$ 、 $C_k$ が求

まると次式で計算される。

$$P(f) = \frac{\Delta t P_m}{\left| 1 + \sum_{k=1}^m r_{mk} e^{i 2\pi f k \Delta t} \right|^2} \quad (14)$$

得られた電力-時間曲線が定常で、かつエルゴード的であると仮定して、MEM法によるスペクトル解析を行った。まず、電力-時間曲線からデジタイザによりデータのサンプリングを行い、次にこのデータを用いて各周波数  $f$  におけるパワースペクトル密度  $P(f)$  を計算した。ただし、サンプリング時間間隔  $\Delta t$  は 0.2 秒とした。

#### 4. 3. 3 結果と考察

##### (1) スペクトルピークの評価

電力-時間曲線の一例（等速回転の場合）を Fig. 4-1 に示した。I は材料投入、II は主混練り、III はスイープ操作、IV は後混練りの各工程を表す。各実験条件における電力-時間曲線のスペクトル解析結果の例を、Fig. 4-2 (a) ~ (c) に示した。

(a) は互いのロータが異速回転の場合で、ロータ回転比 1.14、平均ロータ回転速度 61 rpm において主混練り部積算電力を 700 Wh としたとき、(b) はロータ回転比 1.14、主混練り部積算電力 700 Wh において平均ロータ回転速度を 75 rpm としたとき、(c) はロータが等速回転（ロータ回転比 1.00）の場合で、ロータ回転速度 61 rpm において主混練り部積算電力を 700 Wh としたときの結果を示す。

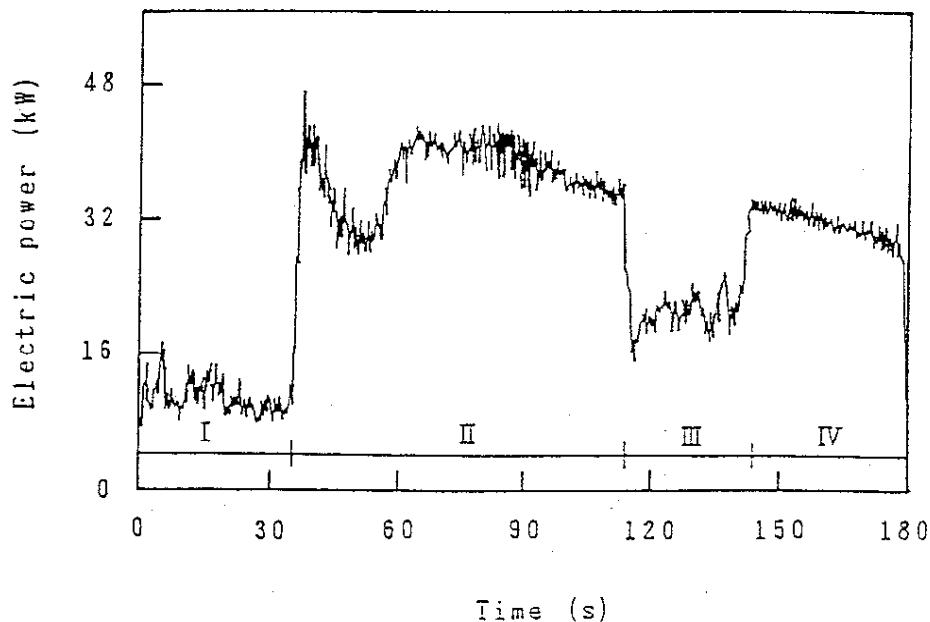
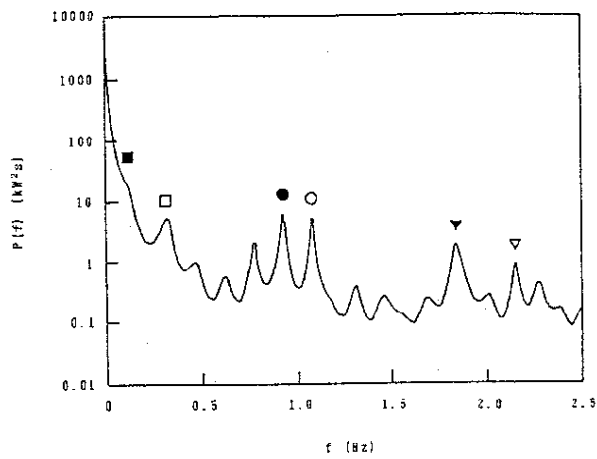
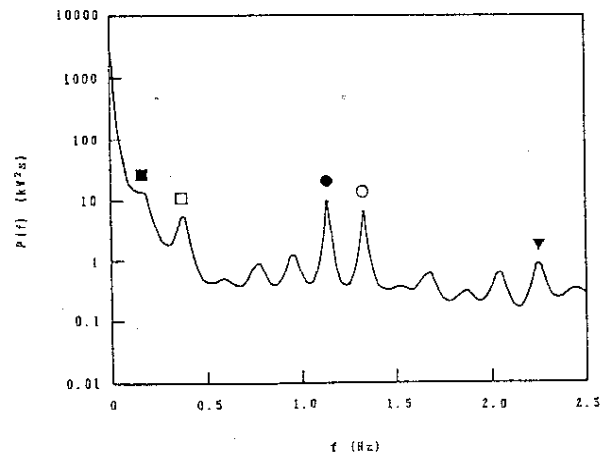


Fig. 4-1 Electric power consumption chart [Run No. 9] ; I, material input (30 s) ; II, initial mixing stage ; III, sweeping operation (30 s) ; IV, second mixing stage.

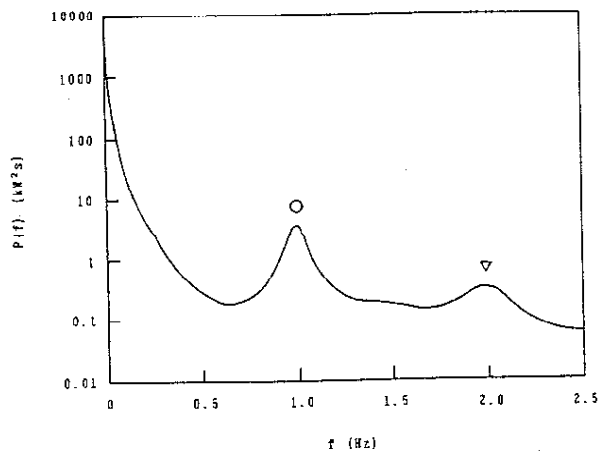




(a)



(b)



(c)

Fig. 4-2 Relation between power spectral density and frequency ;  $\circ$ ,  $\bullet$ , spectral peaks corresponding to rotor revolutions ;  $\nabla$ ,  $\blacktriangledown$ , spectral peaks corresponding to twofold rotor revolutions ;  $\blacksquare$ ,  $\square$ , spectral peaks corresponding to one and a twofold encountering cycles of two wing rotors.

(a) Run No. 2, (b) Run No. 5, (c) Run No. 9

Fig. 4-2 (a)を例にとって、スペクトル曲線中の各ピークについて、その物理的意味を以下に考察する。

まず、1 Hzを挟んだ二つのピーク（●，○で示した）について考える。これらは、0.916 Hzと1.068 Hzであるが、rpm単位に換算するとそれぞれ55.0rpm, 64.1 rpmとなり、二つのロータの設定回転速度（57rpm, 65rpm）に近い値を示す。ゆえに、これらは、ロータ回転速度に関連するピークであると解釈できる。混合機は、設定値通りに正確に回転しているとは限らず、負荷のかかり方しだいで、若干、回転にずれが生じる可能性がある。よって、スペクトルピークが示す回転速度と設定回転速度の間にずれが生じることが当然考えられ、この場合、スペクトルピークが示す回転速度の方が、真の回転速度を表していると考えるのが妥当であろう。次に、2 Hzを挟んだ二つのピーク（▼，▽で示した）について考える。これらは、1.832 Hzと2.141 Hzであるが、rpm単位に換算すると、それぞれ110rpm, 128rpmとなり、ちょうどロータ回転速度の2倍に相当する値となる。今回使用した混合機は、2枚羽根ロータを用いているが、2枚羽根ロータは、大羽根と小羽根が対角線上に配置された複雑の形状をしており、ロータが1回転する間に2回負荷がかかるようになっている。このことは、土岐<sup>4-12)</sup>が、チャンバ内壁に圧力センサを取り付けた混合機を用いて混練り時の圧力プロファイルについて検討し、2枚羽根ロータの大羽根と小羽根の影響により、1回転の間に二つの圧力変動ピークを生じることを報告していることから明らかである。よって、2 Hz付近に生じたロータ回転速度の2倍に相当するピークは、2枚羽根ロータを用いたことにより生じたものであり、やはり、ロータ回転速度に依存するピークであると考えられる。

次に、低周波領域に生じるピーク（■，□で示した）について考察する。二つのロータが異速回転速度で回転している場合、互いの羽根の噛み合わせ位置により、負荷のかかり方が大きいときと小さいときが周期的に繰り返されていることが考えられる。即ち、ある噛み合わせ位置で最も負荷がかかったとすると、それから1回転するごとに羽根の噛み合わせ位置がずれていき、負荷のかかり方がいったん小さくなった後、また元の高負荷の噛み合わせ位置に戻ってくるであろう。このようなロータ羽根の噛み合わせの周期的変動が、負荷の変動となって電力-時間曲線中に内在している場合、これがスペクトルピークとして表れてくるはずである。この考え方に従って、ロータ羽根の噛み合わせ周期の計算を試みた。まず、ロータ回転速度は、それぞれ64.1rpm, 55.0rpmであったので、低速側ロータが1回転する間に高速側ロータは1.165回転し、0.165回転だけ先に進むことになる。よって、元の噛み合わせ位置近辺に戻るまでに低速側ロータは、6.06回転する。これに要する時間は、0.110分で、周波数に換算すると、0.15 Hzとなる。即ち、ロータ羽根の噛み合わせ周期に起因する周波数は、0.15 Hzとなる。また、2枚羽

根ロータを用いているから、これの2倍の周波数である0.30 Hzにもピークが表れることが予想される。Fig.4-2(b)には、0.11 Hzにショルダー (■で示す) が、0.32 Hzにピーク (□で示す) がそれぞれ表れており、これらがロータ羽根の噛み合わせ周期に相当するピークであると考えられる。

同様の検討を他の実験条件でも行い、ロータ回転速度に関連する主要スペクトルピークの位置をFig.4-2(a)~(c)に示し、各スペクトルピーク周波数とロータ回転速度の値をTable 4-3, Table 4-4にまとめて表示した。

Fig.4-2(a), (b)は異速回転実験の場合のスペクトルを示し、二つのロータの回転速度に起因するピークが認められる。これに対し、Fig.4-2(c)は等速回転実験の場合であり、回転速度に起因するピークのみが表れ、当然のことながらロータ羽根の噛み合わせ周期に相当するピークは認められない。

Fig.4-2(a)~(c)の主要ピークは、以上のごとくロータの設定回転速度、その2倍の回転速度、更に2枚羽根の相互作用に基づくものであることが、本研究で初めて明らかにされたが、それ以外にまだいくつかのピークが認められる。現時点では、それらのピークの物理的意味を説明することは困難である。チャンバ内での材料の軸方向流動、偶発的な材料の不規則流動、その他混合機固有の特性等が複雑に絡み合っただけの多くのスペクトルピークが現れるのではないかとと思われる。

## (2) 導電率とロータ総回転数の関係

混練り状態を示すパラメータとして、電力-時間曲線のスペクトル解析結果が利用されており<sup>4-17), 4-18)</sup>、本章においては、これまでの検討でスペクトルピークとロータ回転速度との間に密接な関係があることを明らかにした。例えば、Table 4-3において異速回転のRun No.4 (設定ロータ回転速度が40rpm, 35rpm) と、等速回転のRun No.11 (設定ロータ回転速度が40rpm) の二つの場合について考えると、主要スペクトルピーク周波数から求めた回転速度は、Run No.4の場合、38.5rpmと33.2rpm、また、Run No.11の場合、38.7rpmで、これらはいずれもロータ回転速度にほぼ相当する値であり、主要スペクトルピーク周波数がロータ回転速度により決定されることを示唆している。よって、主要スペクトルピーク周波数は、ゴムの混練り状態を直接表現するものではないが、ロータ回転が混練り状態に大きく影響することを考えると、主要スペクトルピーク周波数を基にして得られるロータ回転に関するパラメータで混練り状態を表現できると考えられる。

Shen と Rains<sup>4-23)</sup> は、密閉混合機による短繊維とゴムの混練りに関する研究を行い、繊維の分散状態が、チャンバ内のせん断領域を材料が通過する頻度により決まることを示した。即ち、彼らは、次式で示される無次元分散数  $N_{RS}$  を定義し、 $N_{RS}$  と繊維の分散度の関係をプロットした結果、ゴム種類、混合機の大きさが変わっても単一曲線上にのることを明らかにした。

Table 4-3 Experimental one and a twofold rotor revolution frequencies.

Run No.	Rotor revolution frequency		Experimental rotor revolution frequency				Experimental twofold rotor revolution frequency						
	Rotor A (rpm)	Rotor B (rpm)	Spectral peak frequency (Hz)	f <sub>1</sub> (Hz)	f <sub>2</sub> (Hz)	Conversion (Hz → rpm) (rpm)	R <sub>1</sub> (rpm)	R <sub>2</sub> (rpm)	Spectral peak frequency (Hz)	f <sub>3</sub> (Hz)	f <sub>4</sub> (Hz)	Conversion (Hz → rpm) (rpm)	R <sub>3</sub> (rpm)
1	65	57	1.071	0.911	0.911	64.3	54.7	2.149	1.843	1.843	128.9	110.6	
2	65	57	1.068	0.916	0.916	64.1	55.0	2.141	1.832	1.832	128.5	109.9	
3	65	57	1.073	0.916	0.916	64.4	54.9	2.141	1.846	1.846	128.5	110.8	
4	40	35	0.642	0.553	0.553	38.5	33.2	1.285	1.106	1.106	77.1	66.4	
5	80	70	1.328	1.135	1.135	79.7	68.1	-	2.243	2.243	-	134.6	
6	69	53	1.136	0.873	0.873	68.2	52.4	2.291	1.717	1.717	137.5	130.0	
7	73	49	1.209	0.786	0.786	72.5	47.2	2.400	1.578	1.578	144.0	94.7	
8	61	61	0.991	-	-	59.5	-	1.990	-	-	119.4	-	
9	61	61	0.990	-	-	59.4	-	1.980	-	-	118.8	-	
10	61	61	0.987	-	-	59.2	-	1.985	-	-	119.1	-	
11	40	40	0.646	-	-	38.7	-	1.291	-	-	77.5	-	
12	80	80	1.302	-	-	78.1	-	-	-	-	-	-	

Table 4-4 One and a twofold encountering cycles of two wing rotors.

Run No.	Experimental frequency		Calculated frequency	
	$f_s$	$f_s$	$f_s'$	$f_c'$
	(Hz)	(Hz)	(Hz)	(Hz)
1	-	0.32	0.16	0.32
2	0.11	0.32	0.15	0.30
3	0.12	0.30	0.16	0.32
4	-	0.17	0.088	0.18
5	0.17	0.37	0.19	0.38
6	0.26	0.54	0.26	0.53
7	0.39	0.79	0.42	0.84
8	-	-	-	-
9	-	-	-	-
10	-	-	-	-
11	-	-	-	-
12	-	-	-	-

Run No.8-12 have no encountering cycles of two wing rotors  
because two rotors were revolved at the same speed.

$$N_{RS} = \frac{V_s}{V_0} R \theta \quad (15)$$

ここで、 $V_s$ はせん断容量、 $V_0$ はチャンバ容積、 $R$ はロータ回転速度、 $\theta$ は混練り時間である。

本実験においては、すべての実験を同一混合機を用いて行っているから、(15)式における $V_s/V_0$ は一定であり、したがって、 $N_{RS}$ は総回転数 $R\theta$ のみに影響されることになる。混練り状態が未加硫ゴムシートの導電率により評価できることより、導電率 $\lambda$ も $R\theta$ の関数として表現できるのではないかと考え、以下の検討を行った。

本実験においては、Fig. 4-1に示した電力-時間曲線の中で、ラムが降りているIIとIVの工程で主に混練りが進むと考えられるので、混練り時間はII、IV工程の合計時間 $\theta'$ で表すのが妥当であると思われる。よって、ラムが降りている期間の総回転数 $N$ （以下は総回転数と記述する）は、ロータ回転速度に相当する周波数 $f_R$ を使用して、次式により計算する。

$$N = f_R \theta' \quad (16)$$

ここで、異速回転の場合の周波数 $f_R$ は、二つのロータの平均回転周波数 $\{f_R = (f_1 + f_2) / 2\}$ を用いることにした。

Table 4-3より得られた $f_R$ を用いて(16)式より各実験における総回転数 $N$ を求め、導電率 $\lambda$ に対して片対数プロットしたのがFig. 4-3である。図中の直線は、回帰分析して得られたもので、次の実験式を示す。

$$\lambda = 1.35 \times 10^{-3} e^{-0.0204N} \quad (17)$$

但し、決定計数 $R^2 = 0.877$ であった。 $\lambda$ 、 $f_R$ 、 $\theta'$ と $N$ の値をTable 4-5に示した。

Fig. 4-3より明らかなように、総回転数が増加するにしたがって、導電率は指数関数的に減少し、この傾向は積算電力、ロータ回転速度、ロータ回転比の各実験条件を変動させても成り立つことが判明した。混練りが進んでカーボンブラックの分散が良好となるほど、ゴムシートの導電率が減少することが知られており(4-14)、(4-19)、(4-20)、このことから、混練り状態は、総回転数の増加とともに指数関数的に良好となっていくものと思われる。

密閉混合機によるゴムの混練りにおいては、チャンバ内壁全周にわたって、ロータ羽根の通過時に同等の負荷がかかるとは考えられず、最も負荷のかかる位置があって、ロータ羽根がこの位置を通過するときに負荷が増大し、通過後は減少するというパターンを繰り返しながら混練りが進んでいくものと思われる。このことは、電力-時間曲線のスペクトルピーク周波数の中にロータ回転速度に相当する周波数が認められることから推察される。(17)式は、混練り状態が、この高負荷領域をロータ羽根が通過する回数に支配され、ロータ総回転数の関数となることを示唆している。しかし、本実験は単一の混合機と原材料配合の実験であるので、今後更に検討が必要であろう。

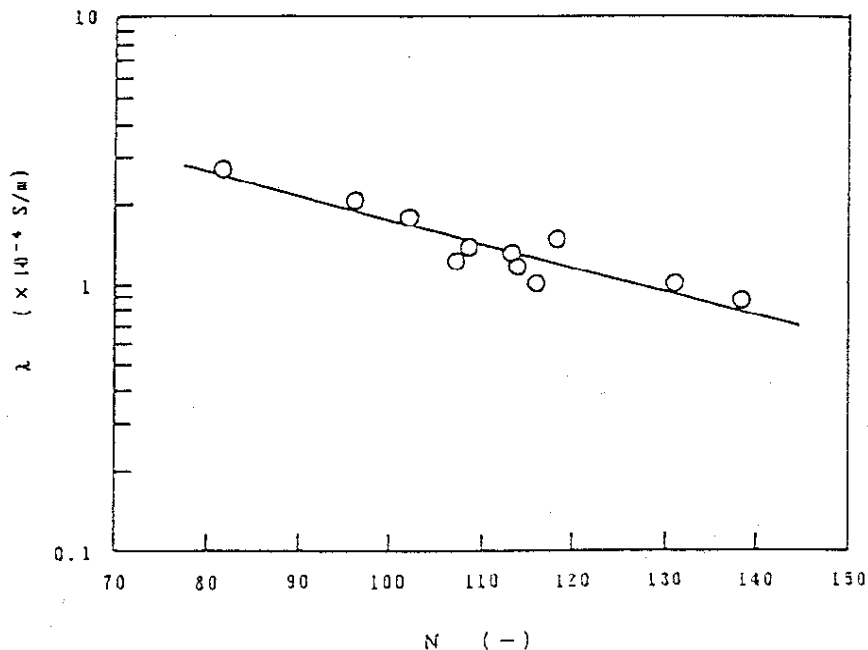


Fig. 4-3 Relation between electrical conductivity and total rotor revolution number when the ram was lowered.

Table 4-5 Electrical conductivity and total rotor revolution number when the ram was lowered.

Run No.	Electrical conductivity $\lambda$ ( $\times 10^{-4}$ S/m)	Average rotor revolution frequency $f_R$ (Hz)	Mixing time when the ram was lowered $\theta'$ (s)	Total rotor revolution number $N$ (-)
1	2.74	0.991	82.2	81.5
2	1.77	0.992	114.6	113.7
3	0.88	0.994	139.2	138.4
4	2.07	0.998	160.6	96.0
5	1.32	1.232	91.8	113.1
6	1.02	1.005	115.2	115.7
7	1.37	0.998	108.6	108.3
8	2.68	0.991	82.2	81.5
9	1.48	0.990	119.4	118.2
10	1.01	0.987	132.6	130.9
11	1.79	0.846	157.8	101.9
12	1.23	1.302	82.2	107.0

## 4. 4 電力-時間曲線のフラクタル次元<sup>4-24)</sup>

### 4. 4. 1 はじめに

前節では、電力-時間曲線をスペクトル解析して得られたスペクトルピークの物理的意味について考察し、混練り状態とロータの総回転数の間に深い関係があることを示した。本節においては、スペクトル解析により得られたパワースペクトル密度と周波数の関係からフラクタル次元を求め、密閉混合機によるゴムの混練り挙動がフラクタル的であることを示す。そして、得られたフラクタル次元とゴムの混練り状態との関係についての検討結果を示す。

### 4. 4. 2 理論および解析方法

2. 3. 3節で述べたように、時系列データがフラクタル的変動を示している場合、スペクトル解析して得られるパワースペクトル密度  $P(f)$  は、周波数  $f$  のべき乗型で示される。電力-時間曲線を4. 3. 2節で述べた方法によりスペクトル解析し、パワースペクトル密度  $P(f)$  を求めて周波数  $f$  との関係を両対数プロットする。もし、ゴムの混練り挙動がフラクタル的であるならば、この両対数プロットは直線となり、その傾き（べき指数  $\beta$ ）から2. 3. 3節で示した(8)式、(9)式を用いてフラクタル次元  $D$  を算出することができる。

一般的なスペクトル解析の研究においては、べき指数  $\beta$  はその現象特有の値を示すとされている<sup>4-22)</sup>が、フラクタル理論によれば、観測データ変動の複雑さを示す指標と考えることができ、 $\beta$  が小さくなるほど ( $D$  が大きくなるほど) 観測データの複雑さが増大すると解釈される。

### 4. 4. 3 結果と考察

#### (1) 混練り状態の評価

ゴムの混練り状態は、先に述べたように導電率で評価でき、導電率の小さいものほどカーボンブラックの分散が良好であり、混練り状態が良いと解釈される。

積算電力と導電率の関係をFig. 4-4に示した。これより、積算電力が増大するほど導電率が減少し、混練り状態が良くなることを示している。これは、カーボンブラックの分散度は投入エネルギーに依存するという従来の考え方<sup>4-19)</sup>と同様である。

平均ロータ回転速度と導電率の関係をFig. 4-5に示した。平均ロータ回転速度が増大するほど導電率が減少し、混練り状態が良好となることが分かった。ロータの周速が速くなるにしたがってゴムに負荷されるせん断応力が大きくなり<sup>4-25)</sup>、混練りが進むものと考えられる。

ロータ回転比と導電率の関係をFig. 4-6に示した。ロータ回転比と導電率の間には明確な関係が認められなかった。



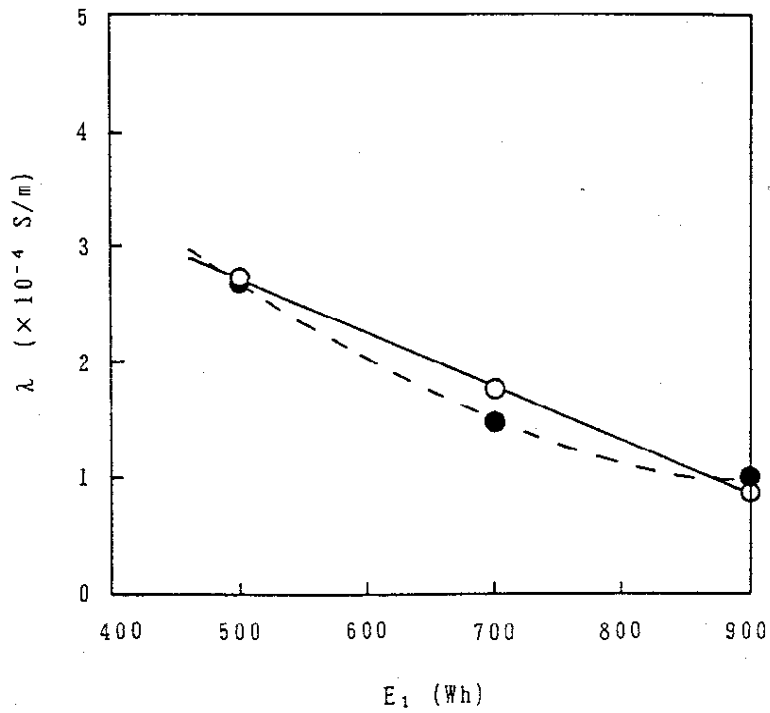


Fig. 4-4 Relation between electric energy of initial mixing stage and electrical conductivity [ $R_{av}=61$  rpm]. ;  $\circ$ ,  $\alpha=1.14$  ;  $\bullet$ ,  $\alpha=1.0$

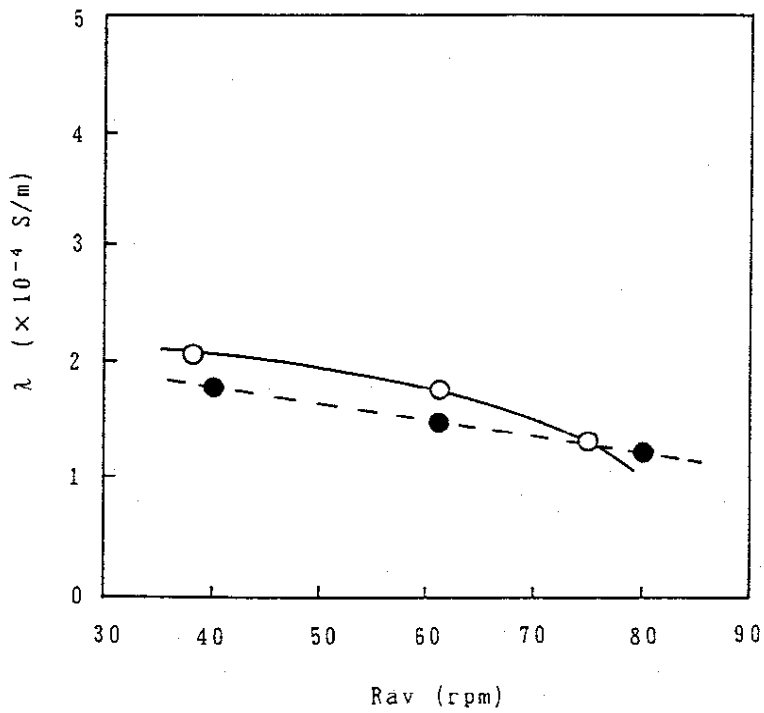


Fig. 4-5 Relation between average rotor revolution and electrical conductivity [ $E_1=700$  Wh]. ;  $\circ$ ,  $\alpha=1.14$  ;  $\bullet$ ,  $\alpha=1.0$

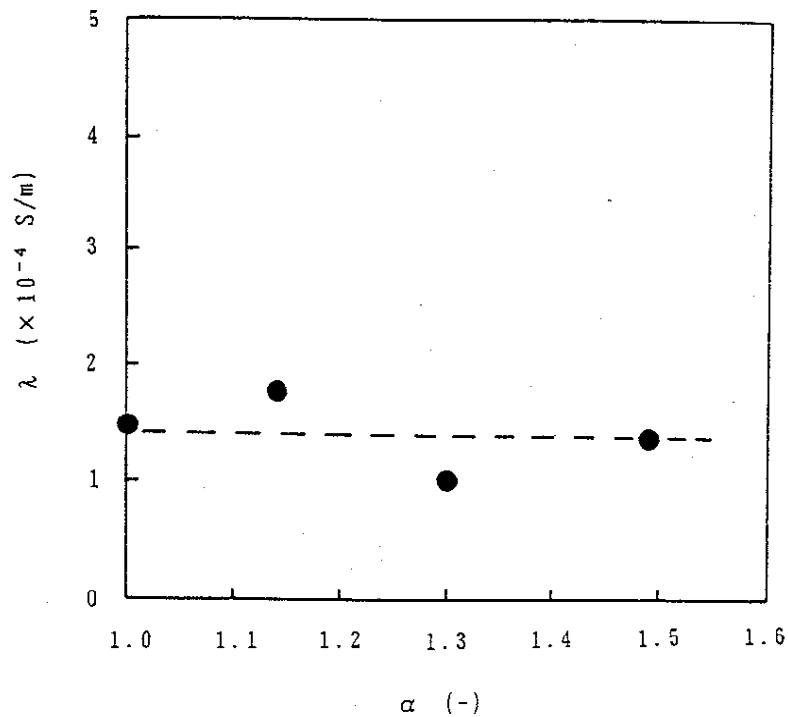


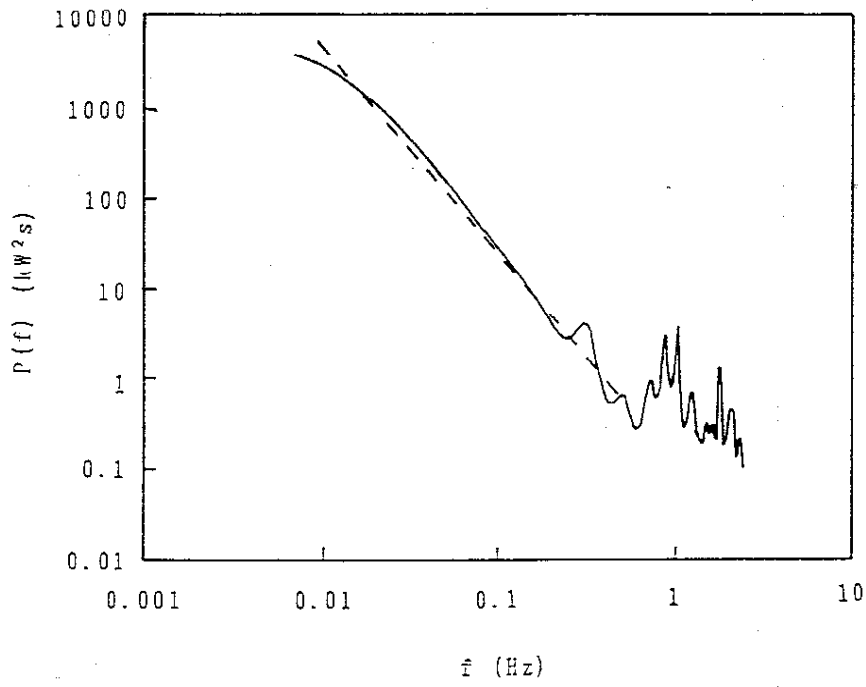
Fig.4-6 Relation between revolving ratio and electrical conductivity  
 [ $R_{av}=61 \text{ rpm}$ ,  $E_1=700 \text{ Wh}$ ].

## (2) フラクタル次元

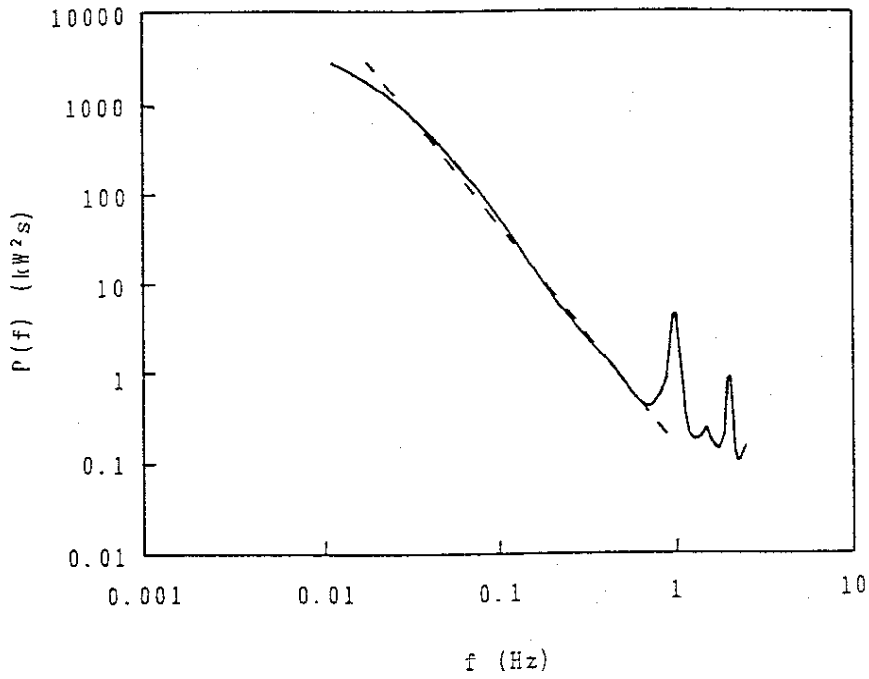
電力-時間曲線をスペクトル解析した結果の例をFig.4-7(a), (b)に示した。これより、パワースペクトル密度と周波数の関係を両対数プロットすると、低周波領域でほぼ直線関係を示し、(8)式の関係が成り立つことが分かった。パワースペクトル密度が周波数の小さい領域でべき法則に従うような現象はフラクタル的であると考えられていること<sup>4-26)</sup>、また、橋爪<sup>4-3)</sup>によれば、ゴムの混練りはロータフロント部において発生する材料の渦流によって生ずるとのことであり、渦流はフラクタル現象であること<sup>4-26)</sup>、<sup>4-27)</sup>等を考え合わせると、密閉混合機によるゴムの混練りは、フラクタル現象として記述することができる。

フラクタル次元の計算結果、および導電率の測定結果をTable 4-6に示した。また、フラクタル次元と積算電力の関係をFig.4-8に示した。積算電力が増加するほどフラクタル次元が増大する傾向を示し、特に、異速回転( $\alpha=1.14$ )のときにこの傾向は顕著であった。また、異速回転の方が等速回転より大きいフラクタル次元となる傾向が認められ、これは、異速回転の場合、より複雑な混練り挙動を示すためであると思われる。

フラクタル次元と平均ロータ回転速度の関係をFig.4-9に示した。平均ロータ回転速度が増加するほどフラクタル次元が増大すること、また、Fig.4-8と同様に異速回転の方が大きいフラクタル次元を示すことが分かった。



(a)



(b)

Fig.4-7 Relation between power spectral density and frequency.

(a) Run No.1, (b) Run No.8

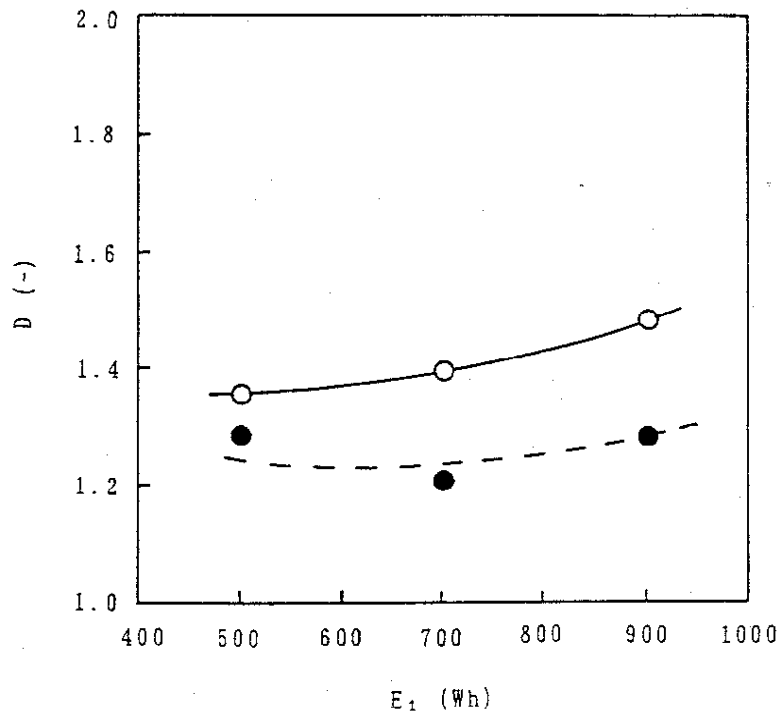


Fig. 4-8 Relation between fractal dimension and electrical energy of initial mixing stage [ $R_{av}=61$  rpm]. ;  $\circ$ ,  $\alpha=1.14$  ;  $\bullet$ ,  $\alpha=1.0$

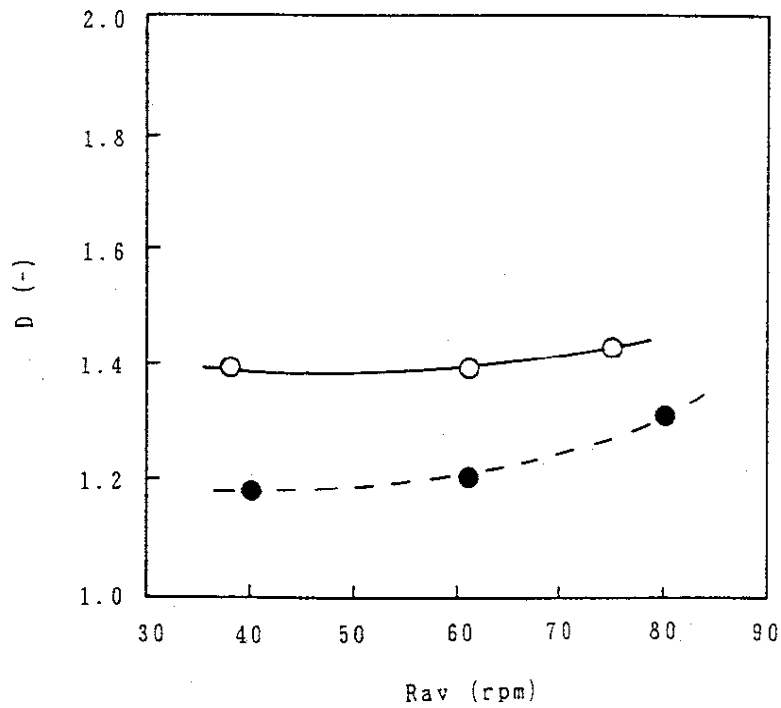


Fig. 4-9 Relation between fractal dimension and rotor revolution [ $E_1=700$  Wh]. ;  $\circ$ ,  $\alpha=1.14$  ;  $\bullet$ ,  $\alpha=1.0$

Table 4-6 Electrical conductivities and fractal dimensions.

Run No.	$\lambda$ ( $\times 10^{-4}$ S/m)	$\beta$ (-)	D (-)
1	2.74	2.29	1.36
2	1.77	2.21	1.40
3	0.88	2.04	1.48
4	2.07	2.21	1.40
5	1.32	2.14	1.43
6	1.02	2.18	1.41
7	1.37	2.45	1.28
8	2.68	2.43	1.29
9	1.48	2.48	1.26
10	1.01	2.43	1.28
11	1.79	2.63	1.18
12	1.23	2.38	1.31

$\lambda$ , Electrical conductivity ;  $\beta$ , Slope of  $\log p(f)$  v.s.  $\log f$  plot ; D, Fractal dimension

フラクタル次元とロータ回転比の関係をFig.4-10に示した。フラクタル次元は、ロータ回転比が1.14~1.30の間で最大となり、ロータ回転比が大きすぎる場合や等速に近づいた場合に減少することが分かった。等速の場合は、電力-時間曲線が比較的単純なため、また、ロータ回転比が大きい場合は、高速回転側ロータの電力変動の影響が強くて電力-時間曲線が単純になりフラクタル次元が減少するものと思われる。

フラクタル次元と導電率の関係をFig.4-11に示した。フラクタル次元の増加にともない導電率が減少する傾向を示し、特に、異速回転 ( $\alpha = 1.14$ ) のときにこの傾向は顕著であった。また、Fig.4-8, Fig.4-9と同様に異速回転の方が等速回転より大きいフラクタル次元を示した。

以上のことから、ゴムの混練り状態が良くなるとフラクタル次元が増大する傾向が認められ、フラクタル次元は混練り状態を表す一つの指標となりうるものと思われる。フラクタル次元が大きいということは、電力-時間曲線がより複雑であることを意味しており、このことから、ロータ回転比一定で比較した場合、複雑な電力変動を示すものほど良く混練りされていると考えることができる。等速回転のときバラツキが認められたが、これについては今後の検討が必要である。

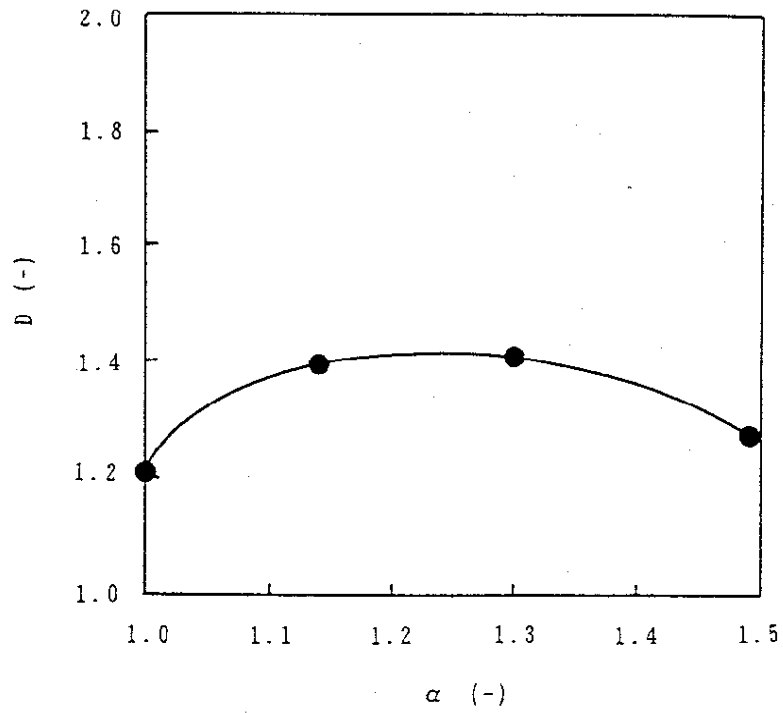


Fig.4-10 Relation between fractal dimension and revolving ratio  
 [ $R_{av}=61$  rpm,  $E_1=700$  Wh].

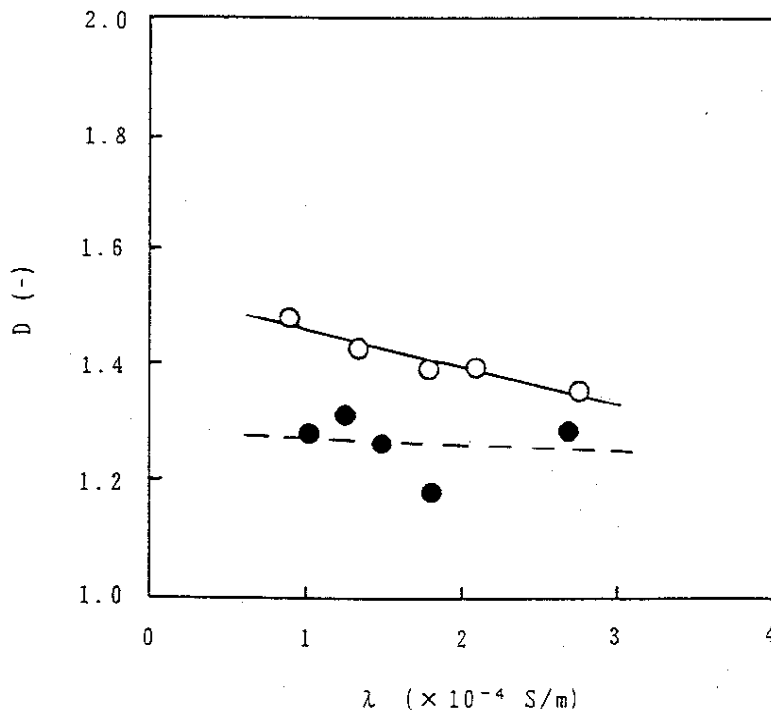


Fig.4-11 Relation between fractal dimension and electrical conductivity.  
 ;  $\circ$ ,  $\alpha=1.14$  ;  $\bullet$ ,  $\alpha=1.0$

## 4. 5 結言

密閉混合機によるNBRゴムの混練り状態を，電力-時間曲線のスペクトル解析結果と，スペクトルを用いて求めたフラクタル次元により評価することを試みた。

4. 3節では，スペクトルピークの物理的意味および混練り状態の評価に関する検討を行い，以下の結論を得た。

- ①ロータ回転数，およびロータ回転数の2倍に相当するピークが認められる。ロータ回転数の2倍のピークは，ロータが1回転する間に2回の負荷変動があることを示し，これは，2枚羽根ロータを用いたために生じたものである。
- ②二つのロータ回転が異速回転の場合，互いのロータ羽根の噛み合わせ周期，およびその2倍の周期に相当するスペクトルピークが，低周波領域に認められる。
- ③未加硫ゴムシートの導電率は，積算電力，ロータ回転速度，ロータ回転比の値に関係なく，ラムが降りている期間のロータ総回転数の指数関数（(19)式）で表される。これは，ゴムの混練り状態がロータ総回転数に支配されることを示唆している。

4. 4節では，ゴム混練り状態の解析にフラクタル理論の適用を試み，以下の結論を得た。

- ①ゴムの混練りは，フラクタル現象の一つと考えられ，電力-時間曲線のスペクトル解析結果から得られるフラクタル次元により，混練り状態を評価できる。
- ②積算電力，および平均ロータ回転速度が増加すると導電率が減少し，フラクタル次元は増大する。
- ③ロータ回転比と導電率の間には，明確な関係が認められないが，フラクタル次元はロータ回転比1.14~1.30の間で極大値を持つ。
- ④ゴムの混練りが進行するにしたがい導電率が減少し，フラクタル次元が増大する傾向があり，このことは，混練り時に複雑な電力変動をするものほど良く混練りされていることを示す。

本章で得られた結果により，複雑に変動する電力-時間曲線中には，多くの有用な情報が隠されており，スペクトル解析の手法とフラクタル理論を適用することにより，これらの情報を分離抽出できることを明らかにした。特に，フラクタル次元は，ゴムの混練り状態の有用な評価指標になるとの結論を得た。

# 第5章 空気圧変動法による微粉体の造粒

## 5.1 緒言

粉体の造粒は，加工技術における重要な一分野である．造粒の必要性は，様々な理由によって生じるが，例えば，ゴム中への粉体の混練り操作を容易にするための重要な技術の一つである．造粒方法としては，顆粒形成（Granulation），結晶化（Crystallization），ペレット形成（Pelletization）等，用途によって異なった手法が用いられる．顆粒は，粉体の流動特性や取り扱い性を改善するため，粉体加工分野で広く用いられている．また，顆粒成形することにより，分離の防止，均一充填，物質移動速度や化学反応の制御というような多くの有益な効果もたらされる<sup>5-1)~5-5)</sup>．

顆粒形成の動力学と成長機構については，Sastry と Fuerstenau<sup>5-6)</sup> が，合体（Coalescence），破壊（Breakage），削摩による移動（Ablation transfer），雪だるま式増殖（Snowballing）の4つの機構に分類している．

一般的に，顆粒形成には顆粒成長と機械的成形の2種類の様式がある．顆粒成長は，揺動，流動層中でのスプレー，攪拌等の操作によるものである．機械的成形は，強制的な篩いがけ，圧搾，押し出し成形，溶融等の方法によるものである．

本章においては，我々が開発した新しい顆粒成形方法である「空気圧変動法」と名付けた造粒方法の概要，および様々な粉体をこの方法で造粒したときの操作条件と顆粒状態の関係，個々の粉体物性と顆粒状態との関係等について検討する．得られた顆粒の状態は，画像解析の手法を用いて測定した粒度分布により，また，その形態は，フラクタル次元によりそれぞれ評価する．

## 5.2 造粒方法と造粒状態の評価<sup>5-7)</sup>

### 5.2.1 はじめに

本節では，超微粉無水珪酸（以下SASFと記載する）の空気圧変動法による造粒を中心に検討し，珪藻土の造粒についても検討する．SASFは，通常，シリコーンゴムの硬度，引張強さ，耐摩耗性等の機械的特性を向上させるためにゴム中に混練りして使用される．SASFは，その他添加剤として使用して，溶液状樹脂にチクソトロピー性を付与したり，粉体の流動性の増加，コート液中の分散粒子の凝固防止というような多くの有用な特性を持っている．ゴムのような有機材料中へ，SASFのような無機微粉末を混入することは，互いの相溶性が悪



いため容易ではない。そこで、2物質間の親和力を増加させるカップリング剤を加  
 工工程中に添加することが一般的に行われている。しかし、これらの操作を行っ  
 ても、S A S Fは非常にふわふわした状態であるので、ゴム中に容易に混合でき  
 ないし、均一に分散させることも難しい。また、空気中に容易に舞い上がり、こ  
 れを取り扱う人の深刻な健康障害をもたらす。更に、S A S Fの強い静電気の作  
 用で、連続操業する場合に正確な供給速度の調節が困難になる。

これらの不都合を改善するために、本節ではS A S F（平均粒径12 nm，嵩密度  
 50 kg/m<sup>3</sup>）の新しい造粒方法について検討する。造粒により、S A S Fの取り扱  
 い性が改善されるのは明らかであるが、ここで得られた顆粒は、ゴム中に混練り  
 されるときに容易に崩壊する程度の強さと構造を持っていることが重要である。

我々が開発した空気圧変動法は、この目的に適する手法で、2段階の工程から成  
 る。第1段階は、粉体が入った容器を減圧後、大気を急速に注入することにより微  
 粉体の圧搾を行う。第2段階は、圧縮された微粉体の入っている容器の空気を圧縮  
 後、瞬時に大気に放出する。このとき固められた粉体が砕かれ顆粒となる。この  
 造粒方法を珪藻土（平均粒径8.3 μm，嵩密度350 kg/m<sup>3</sup>）についても適用し、S A  
 S Fと同様に、良好な顆粒が得られることを確認した。

## 5. 2. 2 実験

実験装置の概要をFig.5-1に示す。主要装置は、内径15.8 cm，高さ35 cmの容器  
 で、排出ポンプとコンプレッサーに接続されている。内径5.7 cm，高さ14.6 cmの  
 アクリル樹脂槽内に粉体を充填した後、これを容器内にセットする。なお、アク  
 リル樹脂槽の底部は空気の流通が可能な多孔質体で作られている。

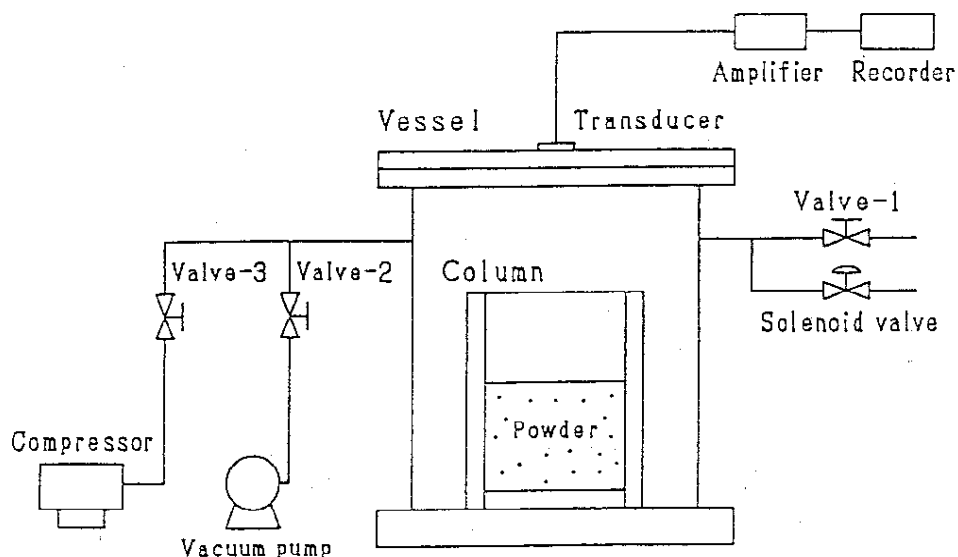


Fig. 5-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

5 cmと7 cmの二つの層高さで実験を行った。これらに相当する充填量は、それぞれSASFの場合5 gと7 g、珪藻土の場合33 gと55 gである。本研究で提案した造粒方法は、2段階の工程から成る。第1段階は、粉体の空気圧搾工程で、Akiyamaら<sup>5-8)</sup>によって既に報告されている。最初、真空ポンプにより容器内の圧力が設定値になるまで減圧される。次に、バルブ2を閉め、バルブ1を開けて (Fig.5-1参照) 大気を容器内に導入し、粉体の圧縮を行う。第2段階は、圧縮された粉体が空気により破碎される工程で、コンプレッサーにより容器内の圧力を設定値になるまで加圧した後、電磁弁を開いて加圧空気を一気に大気中に放出する。このとき、圧縮された粉体層にクラックが入り、破碎が生じる。Fig.5-2(a)~(c)は、初期状態、空気圧搾後、破碎後のそれぞれの層の状態を示したものである。圧搾は、軸方向、径方向の両方に生じること (Fig.5-2(b))、層体積は破碎によって変化しないこと (Fig.5-2(c)) が分かる。空気圧の変動は、容器の頂部で圧力変換器により測定し、電磁オシログラフに記録する。実験条件を Table 5-1 に示す。ここで、 $\Delta P_c$ と $\Delta P_s$ は、圧搾工程と破碎工程に対するそれぞれの設定空気ゲージ圧である。

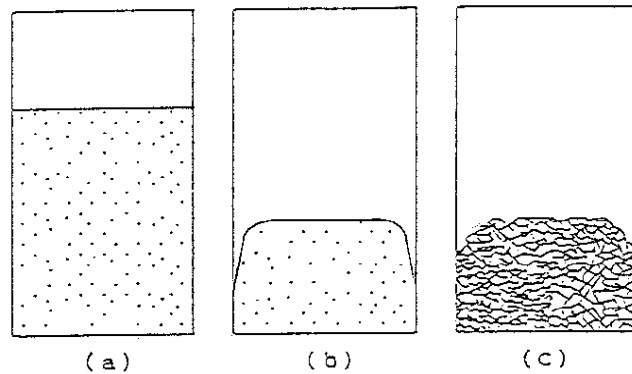


Fig.5-2 Transformation of solid bed ; (a) initial bed, (b) bed after air compaction, (c) bed after size reduction.

Table 5-1 Initial gauge air pressure.

	SASF	Diatomaceous earth
$-\Delta P_c$ (kPa)	73.3, 79.9, 86.6, 93.3, 97.3	20.0, 40.0, 60.0, 79.9
$\Delta P_s$ (kPa)	49.0, 98.1, 147.1, 196.1	49.0, 98.1, 147.1, 196.1

## 5. 2. 3 顆粒形態の評価方法

### (1) 画像解析による粒度分布の測定

造粒後の顆粒の写真をもとにCCTVカメラを通して画像を入力し、2値化処理を行う。Opening処理により約0.3 mm以下の微細な2値化像を消去した後、残った顆粒像の粒度分布を測定する。粒度分布の測定は、以下の方法で行う。

大きさ可変の六角形要素（ヘキサゴン）を発生させ、そのヘキサゴンがちょうど内接する顆粒像のみを抽出し、そのヘキサゴン群の全顆粒像面積に対する面積比を計測する。ヘキサゴンの大きさを変化させながら順次それぞれの面積比を計測して行く。そうすると、ヘキサゴンの対角長が粒径に相当し、面積比がその大きさの顆粒が含まれる割合となり、これらの関係をプロットすることにより粒度分布の図が得られる。この手法は、言い換えれば、様々なサイズの篩いを用いて顆粒の分級を行ったのと同様の効果があり、ヘキサゴンの対角長がメッシュの目の開きに相当している。

### (2) フラクタル次元の測定

フラクタル次元は、2. 3. 3節(2)項の”測度の関係より求める方法”を用いて測定する。この方法は、まず、画像解析により各顆粒の投影面積Aとその周囲長Lを計測し、次に任意に選択したサイズの異なる顆粒20個のデータを(3)式または(4)式に適用してフラクタル次元Dを計算する手法である。ここで、画像解析を行うにあたっては、計測画面の境界部に存在する顆粒を全て消去している。なぜなら、境界部の顆粒は、像が欠けておりその顆粒の全体の大きさが分からないからである。

## 5. 2. 4 結果

### (1) 空気圧と空気圧搾

典型的な空気圧変動状態をFig.5-3に示す。これより、粉体の圧搾、顆粒形成に要する圧力変動は、0.20秒以下の短時間で生じることが分かった。圧力の初期変化速度（破線の傾き）は、容器中に粉体が存在してもしなくてもほとんど変わらなかった。この変化速度と設定空気ゲージ圧の関係をFig.5-4にプロットした。これは、システムのスケールアップに使用される値として重要である。

Fig.5-5に粉体層の体積減少率 $V_p/V_0$ と設定減圧 $\Delta P_c$ の関係を示す。この圧搾実験は内径5.7 cm、高さ30 cmの亚克力樹脂円筒を用い、層高10 cmで行った。ここで、 $V_0$ と $V_p$ は、空気圧搾前後のそれぞれの粉体層体積を示す。この図から、S A S Fと珪藻土の双方の体積減少率は、 $|\Delta P_c| = 80 \sim 100 \text{ kPa}$  のとき約50%に達することが明らかとなった。

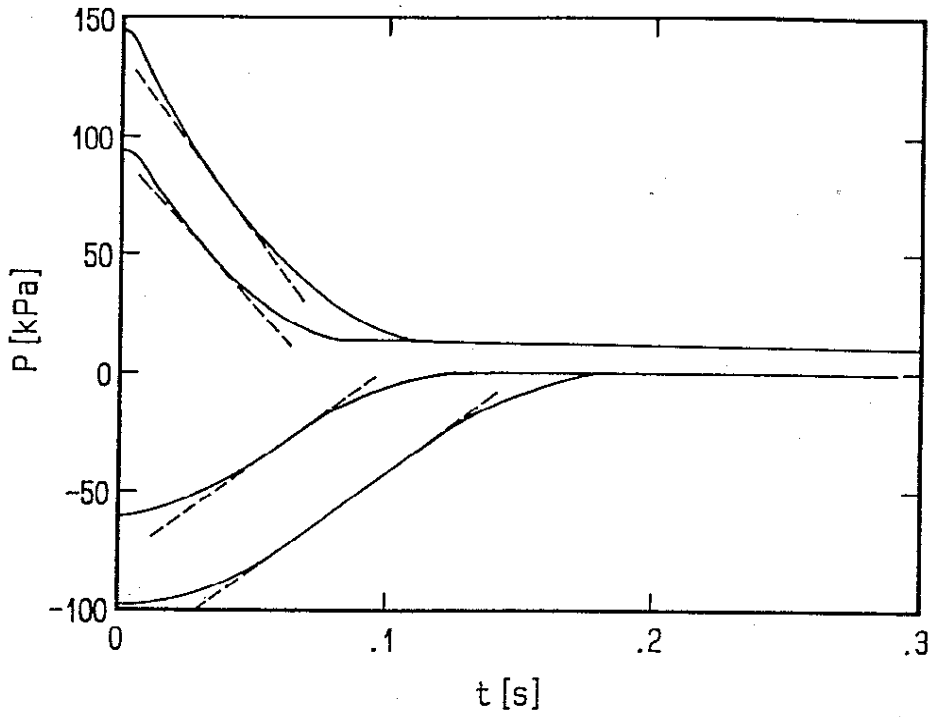


Fig. 5-3 Transient gauge air pressure profiles.

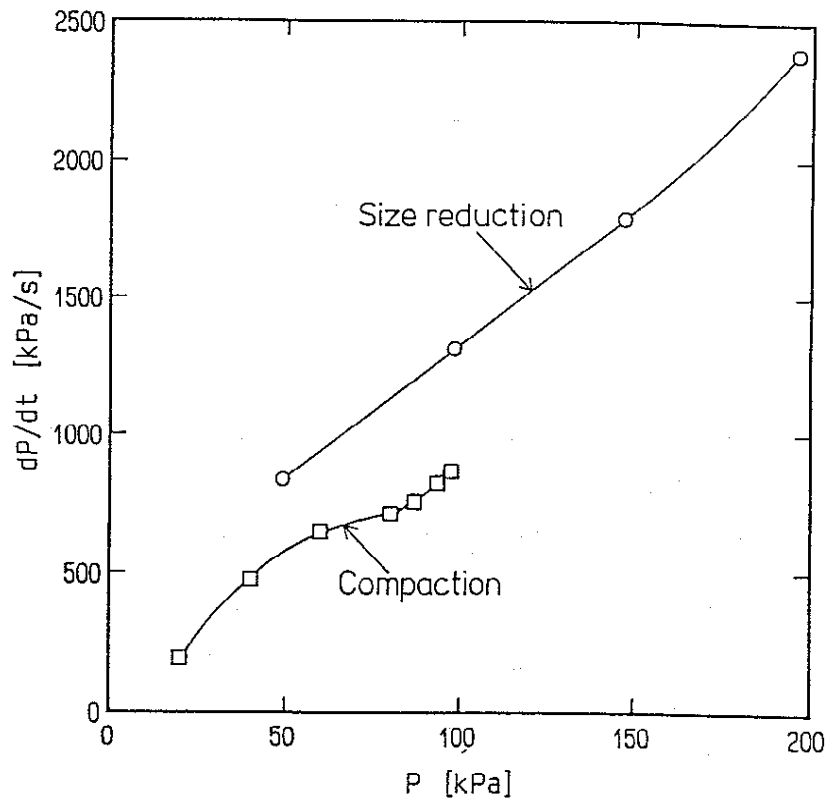


Fig. 5-4 Relation between rate of change in air pressure and initial gauge air pressure.

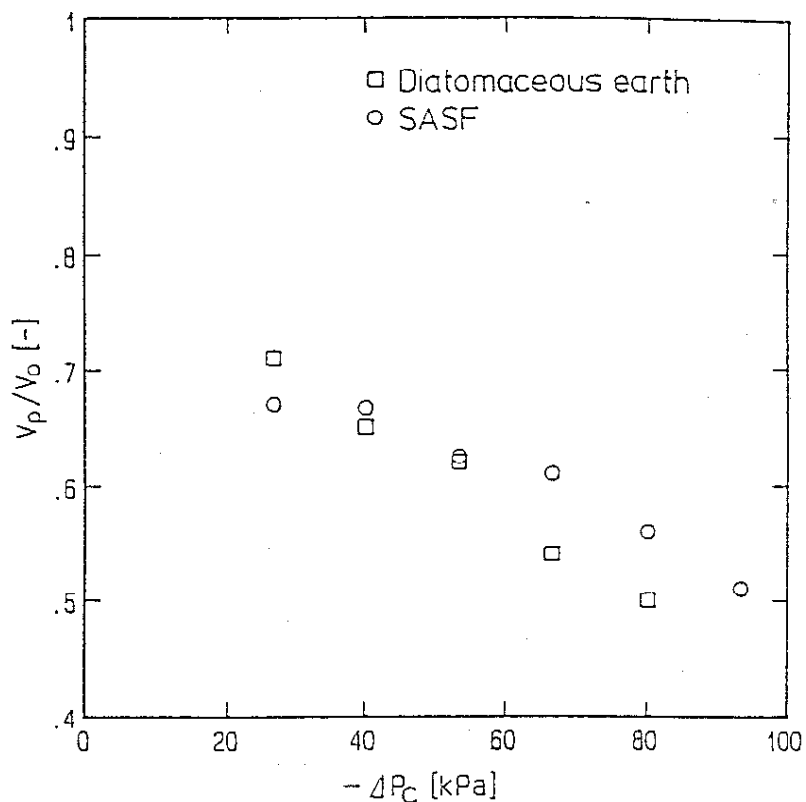


Fig. 5-5 Dependence of powder bed volume reduction on initial gauge air pressure.

## (2) S A S F

顆粒画像の鮮明化を図るため、顆粒を黒色紙上に2回注いだ後、再度撮影した。造粒後の粉体を紙シート上に注ぐと、微粉のSASFが最初の紙上に残り、2回目の紙上には、顆粒状のSASFのみが選択されて残る。2回目の紙上に注がれた代表的なSASF顆粒の写真を図.5-6に示す。この写真は、顆粒の輪郭が鮮明で画像解析が可能である。他の実験条件における写真（略して示さない）からは、 $|\Delta P_c| > 73.3$  kPa (Fig.5-4から $V_p/V_0=0.6$ ) に対して、 $\Delta P_s$ が98.1~196.1 kPaの範囲にあるときに顆粒形成が十分であることが分かった。しかし、 $|\Delta P_c| < 73.3$  kPaに対しては、 $\Delta P_s$ の値によらず造粒不十分であった。Fig.5-6の粒度分布測定結果を、Fig.5-7に示した。縦軸は画像解析にしたがう度数で、横軸は粒径 $d_s$ である。実験因子 ( $\Delta P_c$ ,  $\Delta P_s$ , 層高) の粒度分布への影響を定量的に評価するために、重回帰分析を変数増減法を用いて行った。得られた回帰式を以下に示す。

$$\bar{d}_s = -1.45 + 4.10 \times 10^{-2} |\Delta P_c|, \quad R=0.622 \quad (18)$$

$$\sigma = -0.21 + 1.30 \times 10^{-2} |\Delta P_c|, \quad R=0.439 \quad (19)$$

ここで、 $\bar{d}_s$ は平均粒子径、 $\sigma$ は標準偏差、 $R$ は重相関係数である。 $R$ は実験データがいかに良く相関しているかを示すもので、 $R$ が1に近いほど相関精度が高いこと

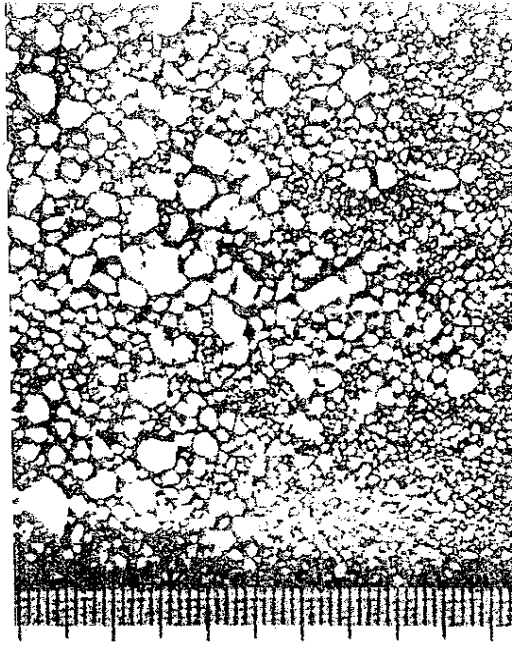


Fig. 5-6 SASF granules (bed height = 5 cm,  $\Delta P_c = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 196.1$  kPa, scale in mm).

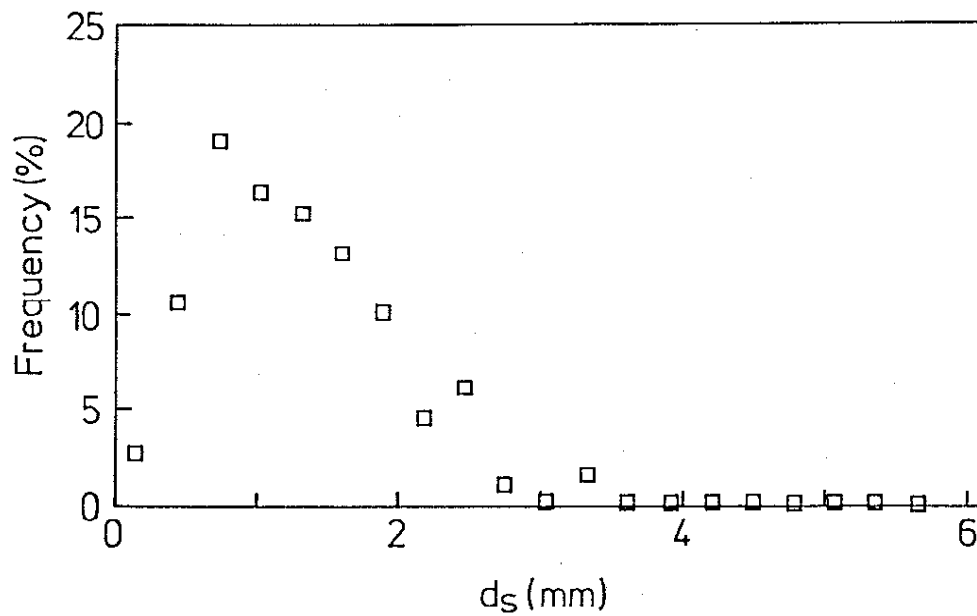


Fig. 5-7 Size distribution of SASF granules (bed height = 5 cm,  $\Delta P_c = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 196.1$  kPa).

を表す。前述したように、微粒SASFは、SASF顆粒の画像解析において省略されているので、(20)式、(21)式は真の粒度分布を表したものではない。しかし、これらの式は、造粒機構を考える上で、実験因子の相対的な影響力を考察するための重要な情報を与えているといえる。

次に、Fig. 5-6のフラクタル次元測定結果を、Fig. 5-8に示す。縦軸は顆粒の投影面積、横軸は顆粒投影像の周囲長である。これらのプロットが直線にのることから、造粒後の顆粒形態がフラクタル図形であることが分かる。直線の傾きKをべき乗回帰分析により求め、フラクタル次元D ( $D = 2 / K$ )を計算すると、1.096となった。他の実験条件についても同様にフラクタル次元を計算し、重回帰分析を用いて実験因子の影響について検討した。その結果、各因子のフラクタル次元に及ぼす影響は小さく、フラクタル次元は1.041~1.159の間でばらついており(平均1.107)、有意な回帰式が得られなかった。このことは、SASFの場合、顆粒周囲の凹凸の状態は実験条件にあまり影響されないことを示している。

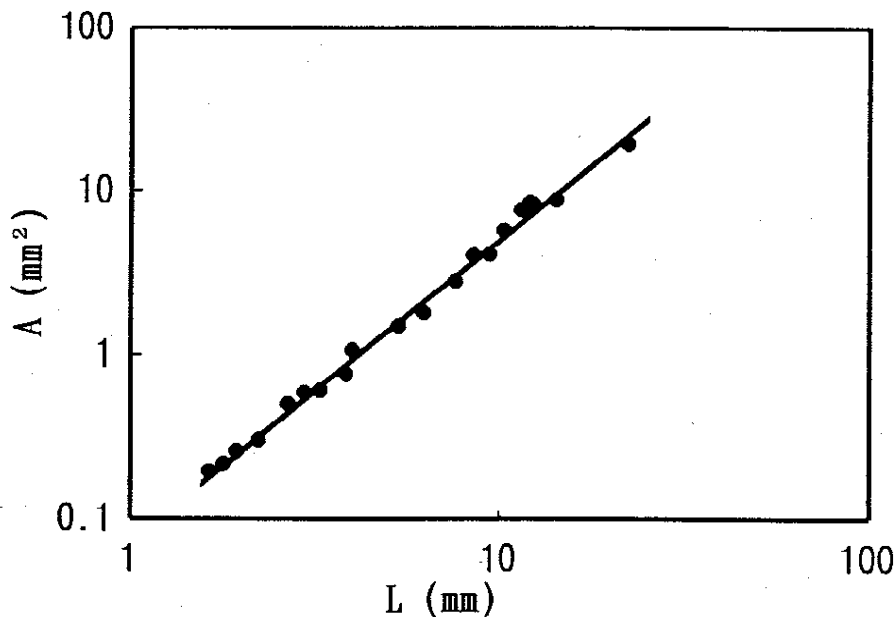


Fig. 5-8 Perimeter-area plot for SASF granules (bed height = 5 cm,  $\Delta P_c = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 196.1$  kPa).

### (3) 珪藻土

珪藻土は、S A S Fと異なって微粉末を除去する前処理を必要とせず、造粒後の状態のまま容易に画像解析を行うことができた。実験後に得られた珪藻土顆粒の写真をFig. 5-9に示す。これは、造粒品を紙シート上に注いだ後の顆粒である。 $\Delta P_c$ が十分に大きくなければ ( $V_p/V_0 = 0.65$ )、造粒が不十分となる。Fig. 5-9から画像解析により測定した粒度分布を、Fig. 5-10に示す。

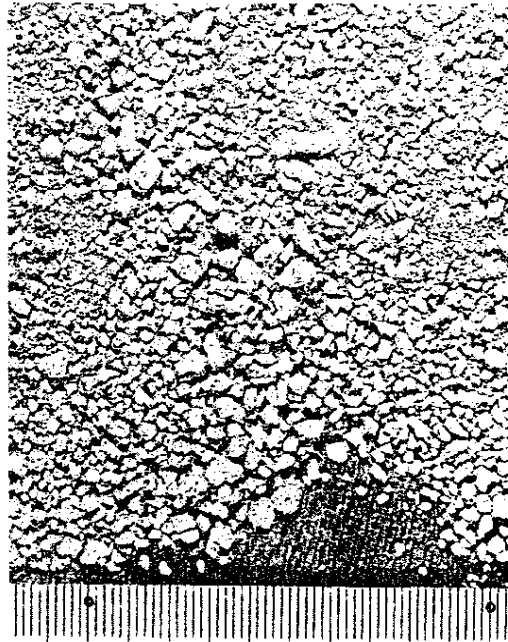


Fig. 5-9 Diatomaceous earth granules (bed height = 5 cm,  $\Delta P_c = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 98.1$  kPa, scale in mm).

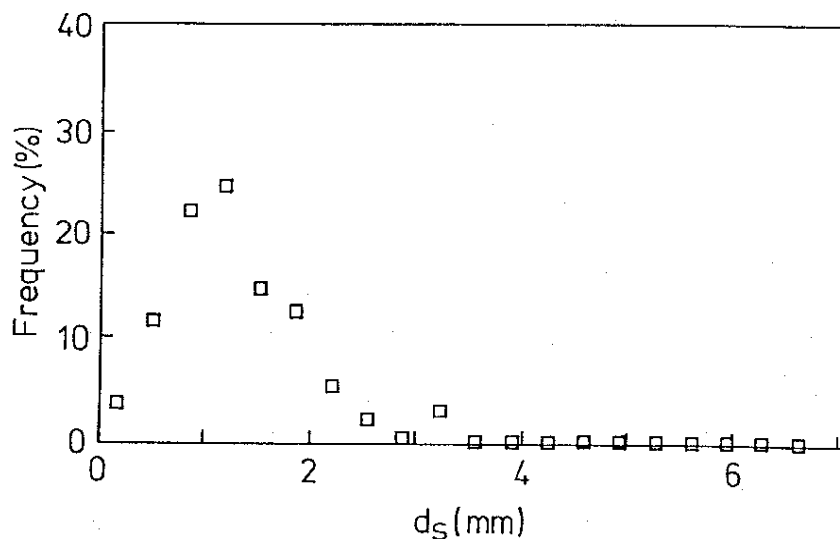


Fig. 5-10 Size distribution of diatomaceous earth granules (bed height = 5 cm,  $\Delta P_c = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 98.1$  kPa).



重回帰分析により得た $\overline{ds}$ と $\sigma$ に対する回帰式を次に示す。

$$\overline{ds} = 1.53 - 1.99 \times 10^{-3} \Delta P_s, \quad R=0.496 \quad (20)$$

$$\sigma = 0.69 - 1.33 \times 10^{-3} \Delta P_s, \quad R=0.471 \quad (21)$$

SASFの造粒の場合と逆に、上式は、 $\Delta P_o$ よりむしろ $\Delta P_s$ の影響が大きいことを示している。2種類の粉体間に現れたこの差異は、粒子の物性や、成形時に適用された $\Delta P_o$ の範囲の差異によるものと考えられる。(18)式～(21)式のRの値が1に近くないということは、 $\Delta P_o$ ばかりでなく $\Delta P_s$ も造粒に対する決定的な要因でないことを示唆している。しかし、これらの値が十分に大きいときにのみ造粒が成功することは確かである。

次に、Fig.5-9のフラクタル次元測定結果を、Fig.5-11に示す。この傾きから計算したフラクタル次元は、1.163であった。同様に他の実験条件についてもフラクタル次元を計算し、重回帰分析を行った結果、次の回帰式が得られた。

$$D = 1.27 - 8.88 \times 10^{-4} |\Delta P_o|, \quad R=0.430 \quad (22)$$

SASFのときは、実験条件因子の影響が現れなかったが、珪藻土においては、 $\Delta P_o$ の影響が現れた。珪藻土の場合、圧搾工程での圧力の絶対値が大きいほど、フラクタル次元が小さくなり、凹凸の少ない顆粒形態になる傾向を示している。しかし、上記同様、(22)式においてもRが1に近くないので決定的な要因ではない。

粉体物性と造粒特性の関係については、次節で詳細に検討する。

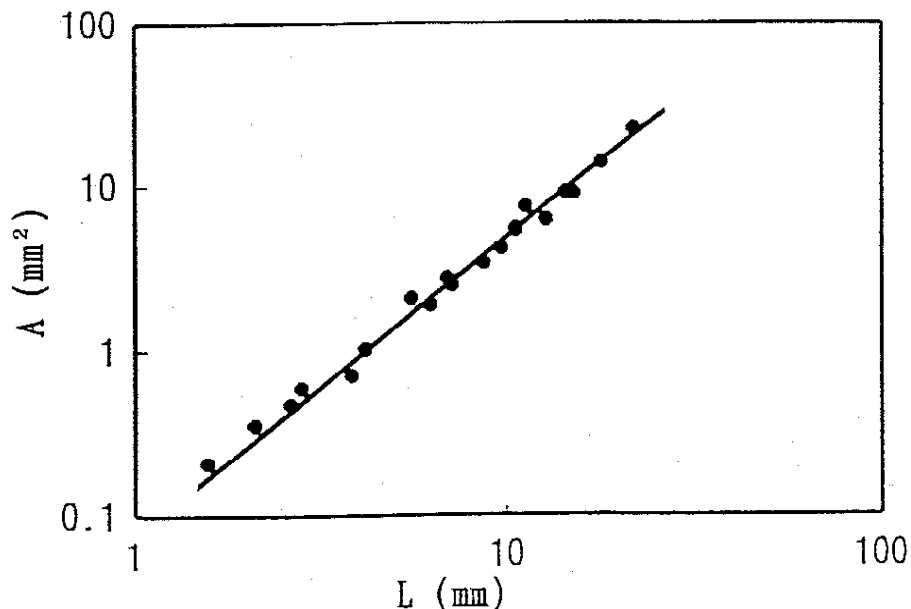


Fig. 5-11 Perimeter-area plot for diatomaceous earth granules  
(bed height = 5 cm,  $\Delta P_o = -79.9$  kPa,  $\Delta P_s = 98.1$  kPa).

## 5. 2. 5 考察

WieseとSchwedcs<sup>5-9)</sup>は、気体相が突然に圧力変化する粉体の挙動について研究した。しかし、彼らの数学モデルは、粉体の空隙率が一定の場合にのみ適用可能である。造粒の第一段階（粉体の空気圧搾）の機構は、Akiyamaら<sup>5-10)</sup>によって研究されている。ここでは、造粒の第二段階での物理的プロセス、又は圧縮された粉体層に破碎やクラックを引き起こすメカニズムについて検討する。以下に、圧力と流体慣性に従う力を概算した。

WieseとSchwedcs<sup>5-9)</sup>によると、不浸透性を仮定した粉体層の上部と下部の力のバランスは、次式で表される。

$$\Delta\sigma = \rho_b g L + \frac{F}{A} + P - P_b \quad (23)$$

ここで、 $\Delta\sigma$ は層の表面と底の間の縦方向の応力差、 $\rho_b$ は粉体層の嵩密度、 $g$ は重力の加速度、 $L$ は層高、 $A$ は容器の断面積（容器の直径は粉体層の直径に等しいと仮定）、 $F$ は層の表面と底のモーメント差から得られる力である。これは、容器から離脱する空気と、粉体層底部を通して浸透する空気の運動量変化の差によって近似させることができる<sup>5-9)</sup>。

$$F = \frac{V^2}{ART} \left[ \left( \frac{dP}{dt} \right)^2 \frac{1}{P} - \left( \frac{dP_b}{dt} \right)^2 \frac{1}{P_b} \right] \quad (24)$$

ここで、 $V$ は容器体積、 $R$ はガス定数、 $T$ は絶対温度、 $P$ は容器内圧力、 $P_b$ は粉体層底部での圧力、 $t$ は時間である。この力のバランスの式において、破碎時の粉体層の体積変化は小さいので、粉体層の流動に基づく慣性力を無視する。また、Fig.5-2(b)に示したように、粉体層が空気圧搾を受けたとき、粉体層と円筒壁の間に間隙が生じるために、壁の摩擦力も無視する。

以下に、破碎の初期段階における $F/A$ と $P - P_b$ の値の比較を行う。具体的な数値で比較するために、 $\Delta P_b = 100$  kPaのときの $t = 0.02$ 秒における力を計算する。Fig.5-3から $P = 70$  kPa（ゲージ）、Fig.5-4から $dP/dt = 1300$  kPa/sを得る。これらから次式が導かれる。

$$\frac{V^2}{ART} \left( \frac{dP}{dt} \right)^2 \frac{1}{P} = 1.38 \times 10^{-3} \quad \text{kPa} \quad (25)$$

$dP_b/dt$ と $P_b$ の測定がなされなかったので、(24)式の第2項が計算できないが、少なくとも、 $F/A$ の値は $10^{-3}$  kPaのオーダーか、これより小さいことは確かである。

直径6  $\mu\text{m}$ の粉体（珪藻土）から成る圧搾された粉体層内の空気圧の変化速度は、層表面上の空間の変化速度と同じくらいの速さを持つ。（定常状態において、直

径6  $\mu\text{m}$ ，長さ3 cmで，30 kPaの圧力差をもつ管に流れる空気量は，0.02秒間に1 cmより少ない)。よって， $P - P_0$ の値は，1 kPaのオーダーか，これより大きくなると考えられる。

これらのことは，破碎が，空気流に従う慣性力というよりむしろ，速い脱圧にともなうショック波によって生じていることを意味している。

### 5.3 結言

空気圧変動法と名付けた新しく開発した造粒方法の概要，および種々の粉体をこの方法で造粒したときの操作条件と顆粒の状態の関係，個々の粉体物性と顆粒の状態の関係等について検討した。空気圧変動法は2段階の工程から成る。第1段階は，粉体が入った容器を減圧後，大気を急速に注入することにより微粉体の圧搾を行う。第2段階は，圧縮された微粉体の入っている容器の空気を圧縮後，瞬時に大気に放出する。このとき固められた粉体が砕かれて顆粒となる。顆粒の状態は，画像解析により測定した顆粒の粒度分布により，また，その形態はフラクタル次元により評価した。

空気圧変動法による超微粉無水珪酸 (S A S F) と珪藻土の造粒を行った。実験は，層高5 cmと7 cmで行い，得られたS A S F顆粒を用いると，ゴム中への混練り性を著しく改善できることを確認した。また，珪藻土についても同様の方法で造粒できることが分かった。

S A S Fの場合， $|\Delta P_c| > 73.3 \text{ kPa}$ ， $\Delta P_s > 98.1 \text{ kPa}$ の条件で，また，珪藻土の場合は， $|\Delta P_c| > 40 \text{ kPa}$ ， $\Delta P_s > 49.0 \text{ kPa}$ の条件で良好な顆粒が得られた。本実験範囲内では， $\Delta P_c$ ， $\Delta P_s$ 共に，顆粒の粒度分布を決める決定的な要因ではなかったが，造粒を成功させるためには上記条件を満たす必要があることは確かである。また，層高は顆粒の粒度分布にほとんど影響しないことが分かった。

顆粒の投影像がフラクタル図形であることを確認し，そのフラクタル次元を求めた。S A S Fの場合，実験条件はフラクタル次元に影響を及ぼさなかったが，珪藻土の場合は， $\Delta P_c$ の影響が若干認められた。

本章で得られた結果より，粉体の造粒技術においても画像解析，フラクタル理論の適用の有用性が明らかとなり，画像解析で求めた顆粒の粒度分布，およびフラクタル次元は，成形した顆粒の状態を定量化するための評価指標となる。

# 第6章 2次元振動層内の粉体混合状態の評価

## 6.1 緒言

Mandelbrot<sup>6-1)</sup>により創出されたフラクタル幾何学の概念は、非整数次元により不規則物体の形態を定量化する有用な手法として、様々な応用研究が試みられている。本来、これは幾何学問題を扱う手法として発展したが、最近では、化学的、物理的プロセスへの応用研究が盛んである<sup>6-2)~6-6)</sup>。本章では、縦方向に振動する2次元振動層内の粉体の混合状態をフラクタル次元により評価することを試みる。

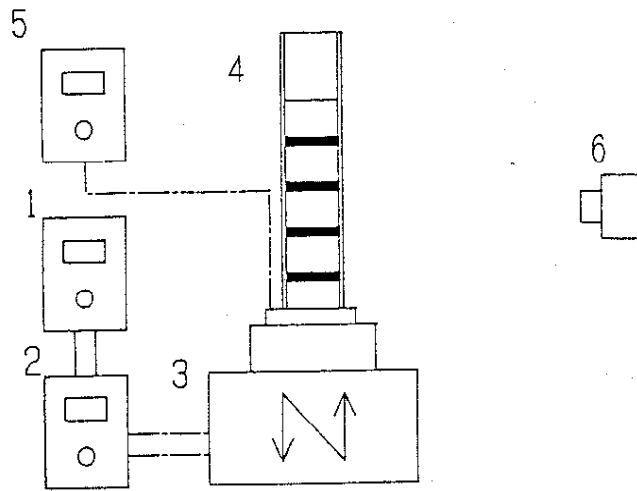
近年、振動層を含む粉体システムの動力学を、コンピュータシミュレーションにより表現する研究が増加してきている<sup>6-7), 6-8)</sup>。Taguchi<sup>6-7)</sup>は、粒子の対流運動が、振動強度の増加とともに層の表面から底部へ広がることを示した。また、Akiyamaら<sup>6-9)</sup>は、振動層内の最大空気圧が、層の底部ではなく表面から約1/4深さのところにあることを実験的に示した。

空気圧分布は、粒子の対流運動により影響されると考えられる。そこで、層内空気圧分布と対流運動の関係を調べるため、粒子混合の高さ方向の変化を定量的に評価することにした。本章においては、対流運動の強さを解析するために、層をいくつかの領域に分割し、各領域ごとにフラクタル解析を行う。ここでは、粒子の循環パターンの幾何学構造については検討せず、層内に配置されたトレーサー粒子の分布の経時変化が、フラクタル的性質を持つことを示す。そして、トレーサー粒子の分布の均一性の度合いが、フラクタル次元により定量化されることを明らかにする。

## 6.2 実験

実験装置の概要をFig. 6-1に示した。可視化を目的として、容器（高さ 200 mm, 幅 100 mm, 厚さ 30 mm）はアクリル板で作られ、容器内には白と黒の対照色のガラスビーズ層をそれぞれ交互に積層して充填してある。バイブレータにより容器全体に振動を加え、対照色のそれぞれのガラスビーズ層の流動状態の時間変化を写真撮影した。黒色のガラスビーズは、白色のガラスビーズを染色したもので、同粒径である。ガラスビーズは、3種類の大きさ [粒径  $d_s = 75 \sim 124, 209 \sim 246, 247 \sim 417 \mu\text{m}$  (平均粒径  $\bar{d}_s = 99, 227, 332 \mu\text{m}$ )] のものを用いた。

実験条件は、振動周波数  $f = 50 \text{ Hz}$ , 静止時の層高  $L = 80 \sim 140 \text{ mm}$ , 重力の加速



- |                   |               |
|-------------------|---------------|
| 1 Oscillator      | 4 Vessel      |
| 2 Power amplifier | 5 Accelerator |
| 3 Vibrator        | 6 Camera      |

Fig. 6-1 Schematic diagram of experimental apparatus.

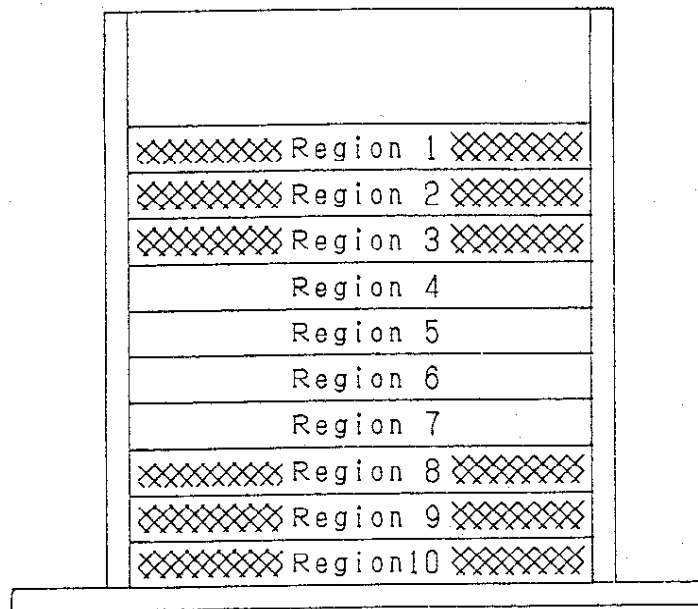


Fig. 6-2 Division of particle bed.

度に対する振動加速度比  $\Lambda = 3, 5$  である。写真撮影は、最初の5秒までは毎秒、その後は、より長い時間間隔で行った。なお、写真中には、画像解析時の色調補正のために、リファレンス色（日本ペイントメーカー協会によるペイントの標準色帯）を写してある。

### 6. 3 画像解析とフラクタル次元

20 cm × 25 cm に拡大した写真を用い、画像解析を行った。使用した画像解析装置 CB-TASPER の標準画素数は、192 (縦) × 280 (横) ピクセルであるので、層高の如何にかかわらず、層高さを全て 192 ピクセルに固定し、横方向のピクセル数を層高に応じて変えた。即ち、層高  $L = 140, 120, 100, 80$  mm に対する横方向ピクセル数は、それぞれ 161, 191, 231, 280 とした。まず、振動開始後、十分に長い時間 ( $t \geq 30$  s) 経過後の写真を用いて、各ピクセルごとに、0 (黒) から 63 (白) の範囲の灰色の色調を読み、その層全体の平均色調  $Th_a$  を求めた。 $Th_a$  は、粒子が完全混合した時の色調に相当する。近似的に、 $Th_a \pm 8$  ポイントの範囲にある色調が完全混合時の色調であると仮定すると、粒子の混合が進行するにしたがい、層内にこの色調成分が増加していくので、これを混合状態の評価指標とすることができる。 $Th_a \pm 8$  を閾値として 2 値化処理を行い、抽出された像のピクセル数  $N_1$  をカウントし、計測領域内の全ピクセル数  $N_2$  に対する比  $A_1$  ( $A_1 = N_1 / N_2$ ) を求めた。 $A_1$  は、 $Th_a \pm 8$  の色調成分の面積比を表しており、層内の粒子の対流運動と混合を特徴づける物理因子である。

混合状態を示すもう一つの評価指標として、フラクタル次元を用いた。フラクタル次元の測定は、2. 3. 3 節で示したボックスカウンティング法によった。 $Th_a \pm 8$  の範囲で 2 値化処理し、次に、観測範囲全体を一辺が  $r$  の正方形のボックスに分割した後、2 値化画像を一部でも含むボックス数  $N_r$  を計測した。 $N_r$  と  $r$  の両対数プロットの傾きよりフラクタル次元  $D$  を求めた。

$D$  が層内でのトレーサー粒子の分布の均一性の度合いを表すのに対し、 $A_1$  はトレーサー粒子の濃度を表している。ボックスカウンティング法の定義から、十分に長い時間後の  $D$  は、2 になるべきであることが明らかである。本研究においては、ピクセルサイズが使用した粒子サイズよりわずかに大きいだけであるので、 $A_1$  は一般的に 1 に近づくことができず、 $A_1$  の限界値を評価することが難しい。このことから、混合の度合いの指標としては、 $A_1$  より  $D$  の方が望ましいことが分かる。

最初の計測時には、Fig.6-2 に示したように層全体を上下方向に 10 分割し、頂部 (1) から底部 (10) にかけて番号をつけた。しかし、ボックスカウンティング法を適用するとき、分割があまりに小さいとフラクタルデータがばらつく傾向があった。

そこで、様々な層の分割を試みた結果、(1~3, 4~7, 8~10)の3分割が、層内の対流運動と粒子混合の特性を記述するのに最もふさわしいということが判明した。

## 6. 4 結果と考察

### 6. 4. 1 フラクタル特性

粒子運動の経時変化を示す代表的な写真を、Fig. 6-3(a)~(c)に示す。写真内には、基準色帯が写し込まれている。層の中央部で生じる粒子の循環運動のために、明色層と暗色層の境界が、時間経過とともに拡散していく様子が伺える。

典型的な  $N_r$  と  $r$  の両対数プロットを Fig. 6-4 に示す。これは、層内でのトレーサー粒子（暗色層の粒子）の分布が時間とともに増大しており、そのことがフラクタル次元の増大をもたらすことを示している。フラクタル特性は、以下に説明するように、ある限られた実験条件下で現れる。

いま、簡略化のために長さ  $\ell$  (単位は任意) カクのボックスを考える。このボックスは、 $t=0$  において、Fig. 6-5(a) と (b) に示すように 45 vol% の白色粒子と 55 vol% の黒色粒子（斜線部分）で満たされた2つの異なったパターンをとるとする。ボックスが振動を受け粒子混合が始まると、十分に長い時間経過した後には、黒色粒子の比である 0.55 の濃度を持ったランダム混合の状態に達する。ここで、ランダム混合というのは、与えられた成分の粒子が見つかる可能性が混合物全ての点で同じであり、混合物全体のどの点においてもその成分の割合が等しいときの状態として定義する。

Fig. 6-5 において、ピクセルサイズを長さ 1 カクとすると、Fig. 6-5(a), (b) に示したように、濃度 0, 0.5, 1 の部分のピクセル数は、それぞれ 12, 6, 18 と 14, 2, 20 である。ここでは、黒色と白色の粒子が等体積であるピクセルを、濃度 0.5 の単位カクとしてみなしている。濃度が 0.50 から 0.60 の範囲にあるピクセルに注目して以下の考察を行う。

フラクタル解析を確実にするためには、1ピクセルのリファレンス濃度は、固定値ではなく、一定範囲の濃度を与えることが重要である、なぜなら、Fig. 6-5 に描かれたピクセルの濃度は、ランダム混合状態で 0.55 であるのに対し、0.5 だからである。

Fig. 6-5 においては、 $r=1, 2, 6$  を選ぶことができる。実際のシステムで選択するボックスサイズは、ピクセルサイズよりはるかに大きく、その選択はよりフレキシブルである。というのは、ボックスサイズが、考慮しているシステムのサイズより相当に小さいとき、一番外側のボックス ( $r$  カク) の影響が小さいから

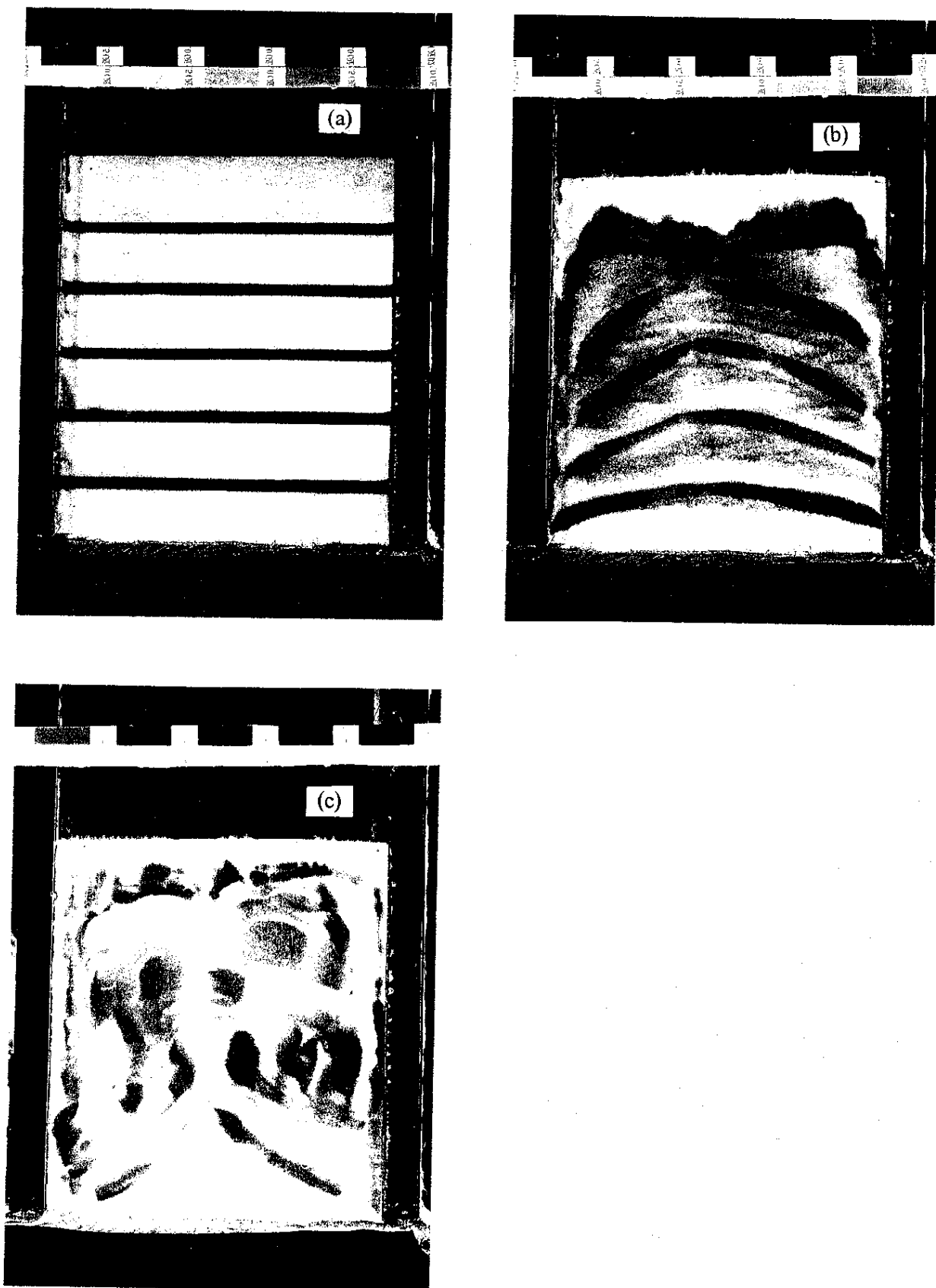


Fig. 6-3 Time evolution of particle bed ; (a)  $t=0$  s, (b)  $t=2$  s, (c)  $t=5$  s,  
( $\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}$ ,  $L = 120$  mm,  $\Lambda = 3$ )



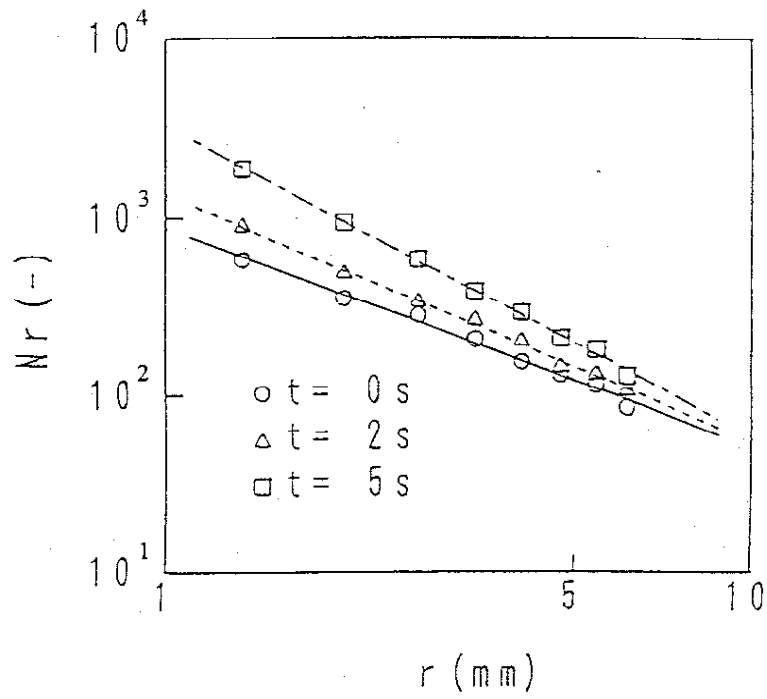


Fig. 6-4  $N_r$  vs. characteristic length  $r$ .

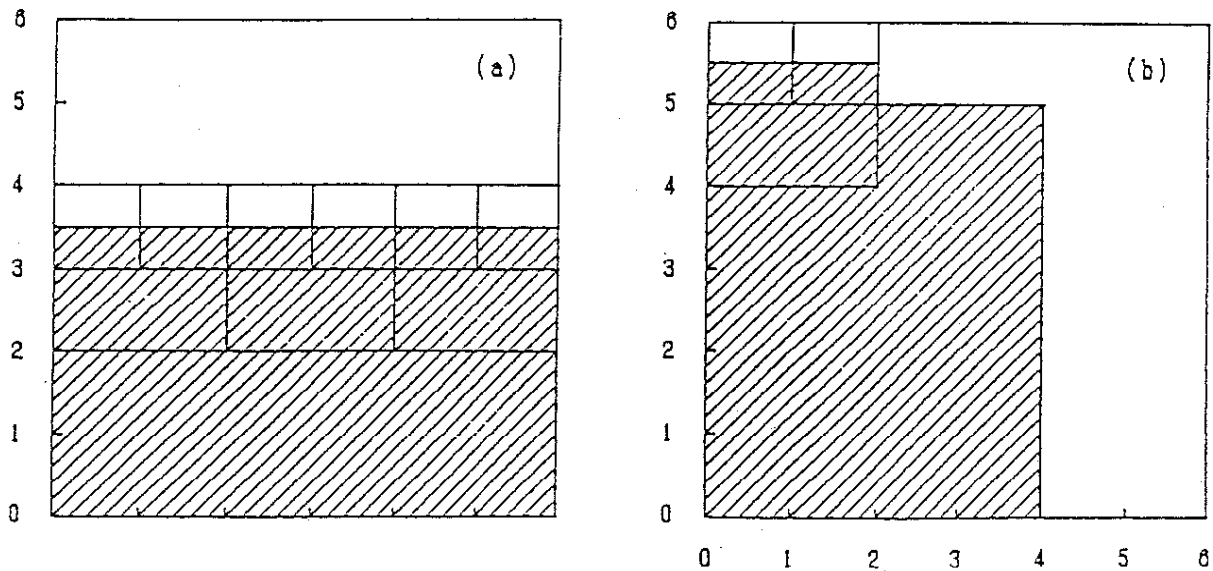


Fig. 6-5 Fractal property and initial distribution of different-coloured particles.

である。各  $r$  に対して、Fig. 6-5 (a) と (b) から、それぞれ  $N_r = 6, 3, 1$  と  $2, 1, 1$  であることが分かる。このことから、(1) 式で示される指数法則が、Fig. 6-5 (a) に対しては適用され、そのフラクタル次元  $D = 1$  であるが、Fig. 6-5 (b) には適用できず、フラクタル性がないことを示している。

また、重要な点は、 $N_r$  が濃度 0.50 から 0.60 の範囲にあるピクセルを含む  $r$  カクのボックス数を表していることである。そのため、全体としての  $r$  カクボックス自体の濃度は、 $r = 3$  の場合に見られるように、必ずしも 0.50 から 0.60 の範囲に入る必要はない。もし、濃度が 0.50 から 0.60 の範囲にある  $r$  カクボックスの数を  $N_r$  とするならば、Fig. 6-5 にフラクタル性はない。

ランダム混合の状態では、 $r = 1, 2, 6$  に対して、それぞれ  $N_r = 36, 9, 1$  となる。これは、(1) 式が十分に長い時間の後には  $D = 2$  となることを示している。

上記の考察は、多層の場合にも容易に拡張できる。ボックスカウンティング法を用いたときにフラクタル性が生じる物理的構造は、 $t = 0$  におけるフラクタル特性によって決まる。もし、トレーサー粒子を、層幅全体をカバーするように水平方向にセットし、1ピクセルのリファレンス濃度を適切な範囲に選び、任意の水平断面のトレーサー濃度が場所によりあまり大きい変化をせずに混合が進行するように、適度の振動強度を負荷するならば、ボックスカウンティング法を使用したときに、全ての時間に対して、近似的にフラクタル性を保つことができると考えられる。このことはシミュレーション計算で示されている<sup>6-10)</sup>。

本研究で扱うフラクタル特性は統計的であり、トレーサー粒子分布の最初のパターンが重要な役割を担っている。

#### 6. 4. 2 混合特性とフラクタル次元

平均粒径  $\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}$  のガラスビーズ層の典型的なフラクタル次元の経時変化を Fig. 6-6 に示す。理論的には  $D$  は時間とともに単調に増加するべきであるが、いくつかの時間において一時的に減少する傾向が認められた。この  $D$  の減少は、実験的に理想的な 2次元層を実際実現させることができず、水平断面方向のトレーサー濃度が均一でないために生じたものであると考えられる。

種々の予備実験の結果、多くの場合、 $D$  が 2 になるランダム混合に到達するのに 10 分以上必要であることが分かった。この事実は、Fig. 6-6 とそれ以外の全ての  $D$  と時間の図において、なぜ  $D$  が 30 秒間で 2 に到達しないかを説明している。本研究の主要目的は、ランダム混合の状態に到達するのに要する時間を測定することではなく、混合特性をフラクタル次元で記述することの有用性を示すことである。そこで、 $t \leq 30 \text{ s}$  に対する  $D$  のみについて検討した。混合に影響する因子の情報は、この時間範囲内で十分に得ることができるためである。 $t = 0$  での  $D$  の値は、通常 1 ではない。なぜなら、ガラスビーズで容器を満たす過程において、暗色層と

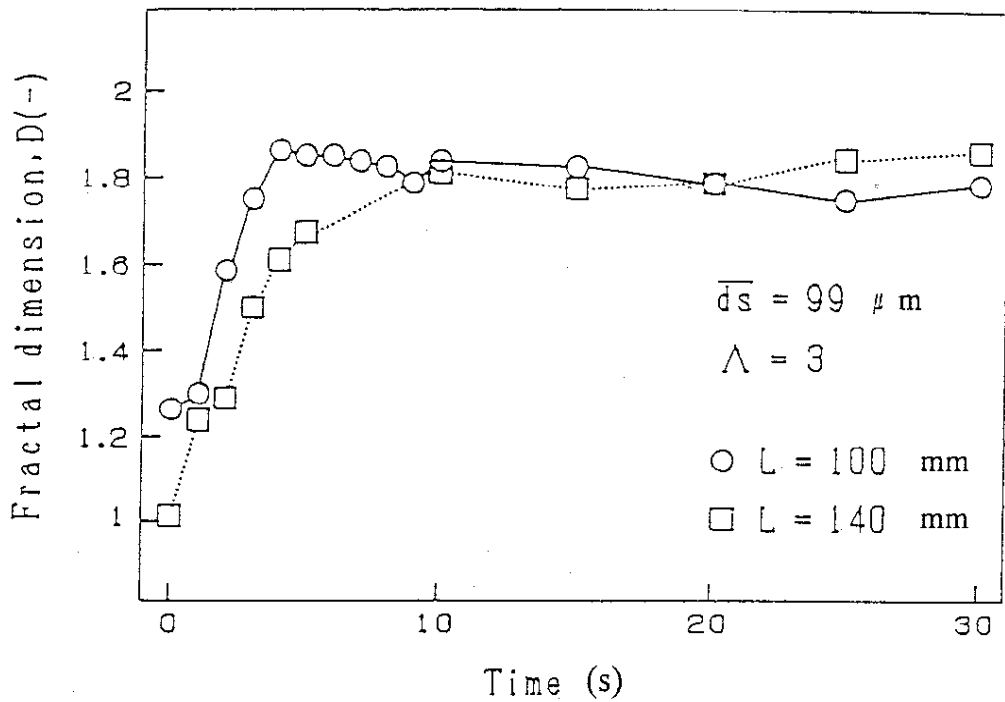


Fig. 6-6 Time profile of fractal dimension  $D$ . ( $\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}$ )

明色層の界面で両者の混合が生じてしまうためである。

混合初期において、 $\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}$  の場合、 $D$  は、層高が小さいとき ( $L = 100 \text{ mm}$ ) より、大きいとき ( $L = 140 \text{ mm}$ ) の方がゆっくり増加することが Fig. 6-6 より分かる。しかし、 $\bar{d}_s = 227, 332 \mu\text{m}$  の場合は、反対の傾向が観察された。小さい粒子から成る層が、大きい粒子から成る層と異なったふるまいをする理由は、以下に述べるように、空気の流れ抵抗のためである。

大きい粒子から成る浅い層は、層内での流れ抵抗が小さいので、縦方向の振動を受けるとピストンのような挙動をする。層高の増加とともに、対流運動が重要な役割をする<sup>6-8)</sup>。このとき、粒子混合が促進され、 $D$  の時間変化速度が増大する。一方、小さい粒子から成る層は、浅い層においても流れ抵抗が支配的な役割を演じる。層の頂部と底部近辺に、静止層が観察されるとき、層高は、粒子サイズの増加とともに増大する。 $L = 140 \text{ mm}$  の小粒子層の場合、容器底部近くで静止層が優勢となり、層全体の均一混合を妨げる。このとき、全ての  $D$  の時間変化速度が小さくなる。

層高に沿ったフラクタル次元の変化を研究するため、層の様々な分割を検討したが、前項で述べたように、1-3, 4-7, 8-10 の3分割が、層の挙動を記述するのに最も適しているという結果となった。

$\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}$  の場合の  $L = 80, 120, 140 \text{ mm}$  に対する3領域での  $D$  の経時変化を、それぞれ Fig. 6-7 ~ Fig. 6-9 に示した。4-7 領域での  $D$  は、層高に無関係に初期に非常に速く増加する。1-3 領域での  $D$  は、反対にゆっくり増加し、特に  $L = 80 \text{ mm}$  のときにこの傾向が顕著である。 $L = 140 \text{ mm}$  の場合の  $\bar{d}_s = 227, 332 \mu\text{m}$  に対する3領域での  $D$  の経時変化を、それぞれ Fig. 6-10, Fig. 6-11 に示した。Fig. 6-9 ~ Fig. 6-11 を比較すると、粒子径の増加とともに層高に沿って  $D$  が減少することが分かった。

Fig. 6-7 と同一条件下における面積比  $A_i$  の経時変化を、Fig. 6-12 に示した。 $D$  と  $A_i$  の時間変化の間にはいくつかの差異が認められるものの、全体を通じた時間変化プロファイルは、ほとんど同等である。 $A_i$  と  $D$  双方ともに、初期に4-7 領域で最も速く増加する。

もし、 $t = 0$  において、実験因子と  $D$  の経時変化速度の関係を明らかにできれば非常に興味深い。しかし、層が最初に振動を受ける実験開始時において、部分的な層の収縮が生じるため、 $D$  の経時変化が滑らかでなく、 $dD/dt |_{t=0}$  を正確に評価することが難しい。

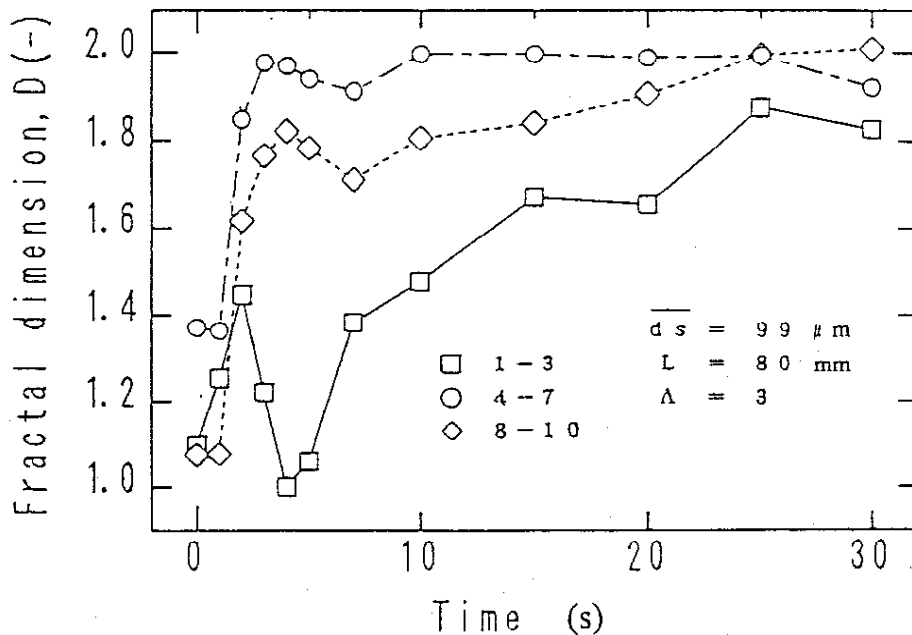


Fig. 6-7 Time profile of local fractal dimension.  
 $(\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}, L = 80 \text{ mm})$

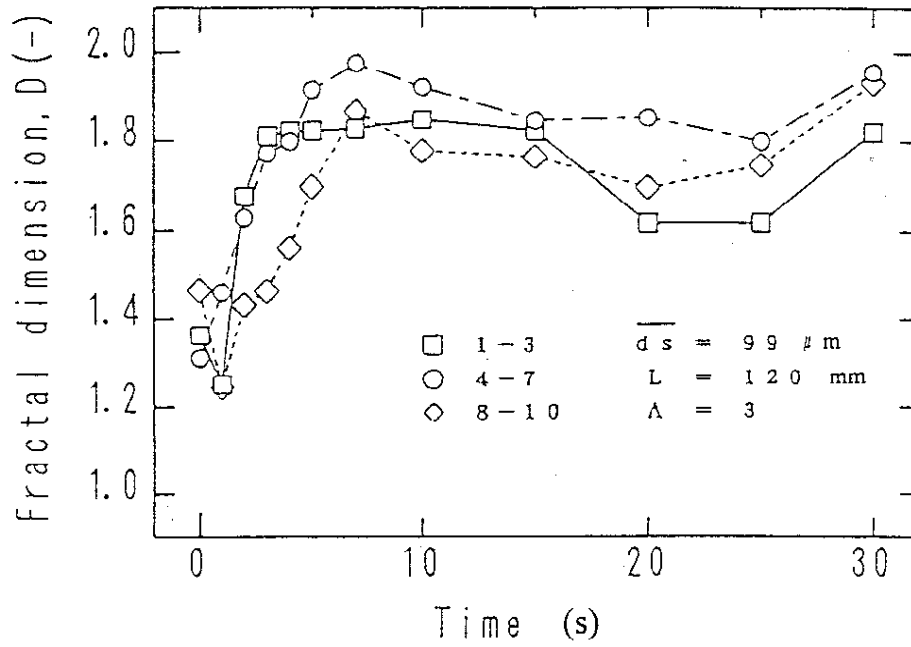


Fig. 6-8 Time profile of local fractal dimension.  
 $(\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}, L = 120 \text{ mm})$

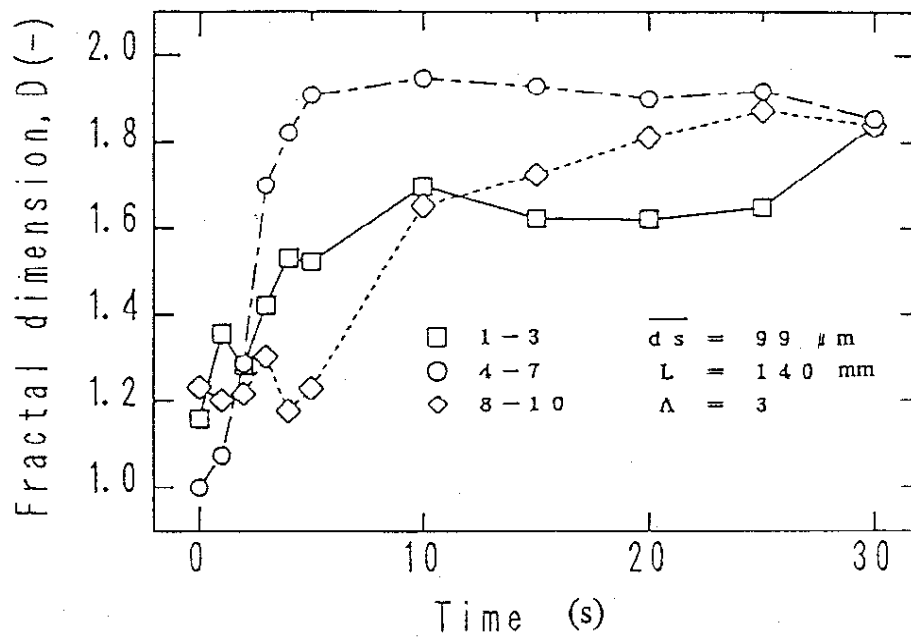


Fig. 6-9 Time profile of local fractal dimension.  
 $(\bar{d}_s = 99 \mu\text{m}, L = 140 \text{ mm})$

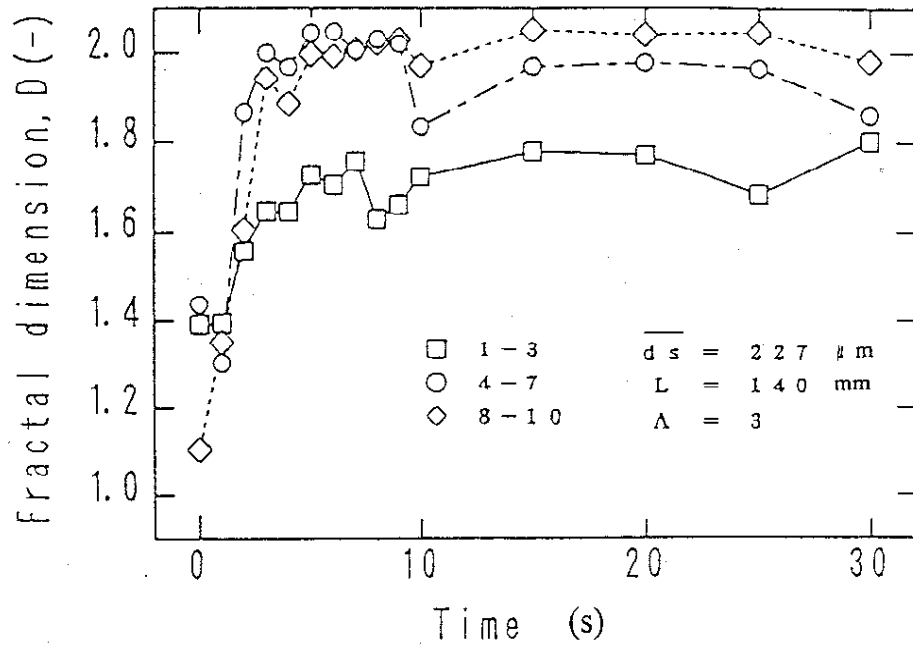


Fig. 6-10 Time profile of local fractal dimension.  
 ( $\overline{ds} = 227 \mu\text{m}$ ,  $L = 140 \text{ mm}$ )

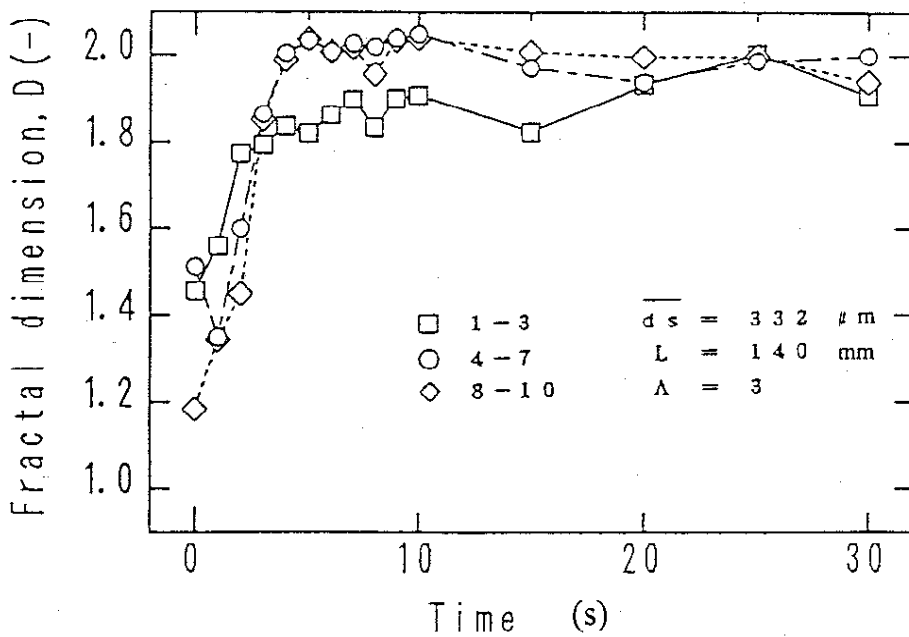


Fig. 6-11 Time profile of local fractal dimension.  
 ( $\overline{ds} = 332 \mu\text{m}$ ,  $L = 140 \text{ mm}$ )

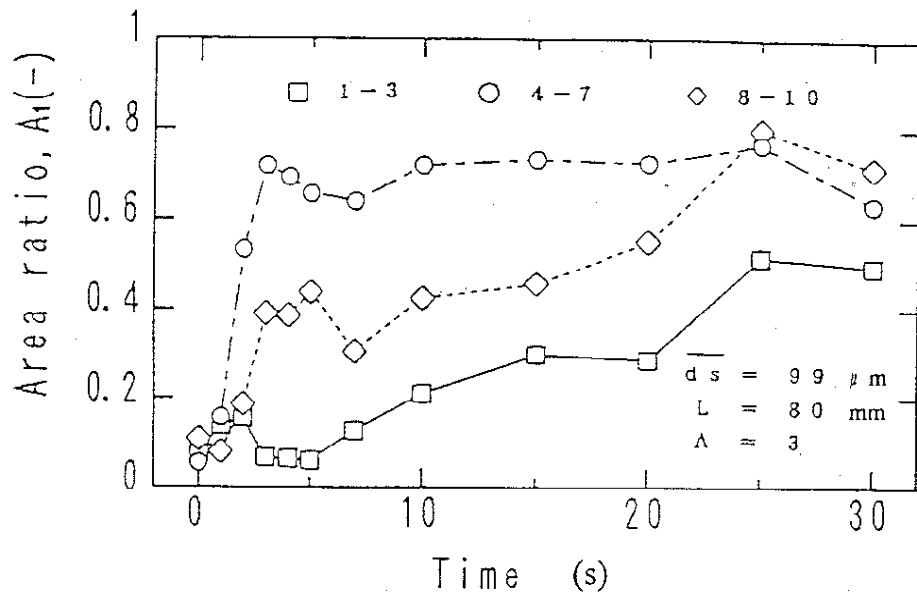


Fig. 6-12 Time profile of local area ratio  $A_1$ .  
 $(\overline{ds} = 99 \mu\text{m}, L = 80 \text{ mm})$

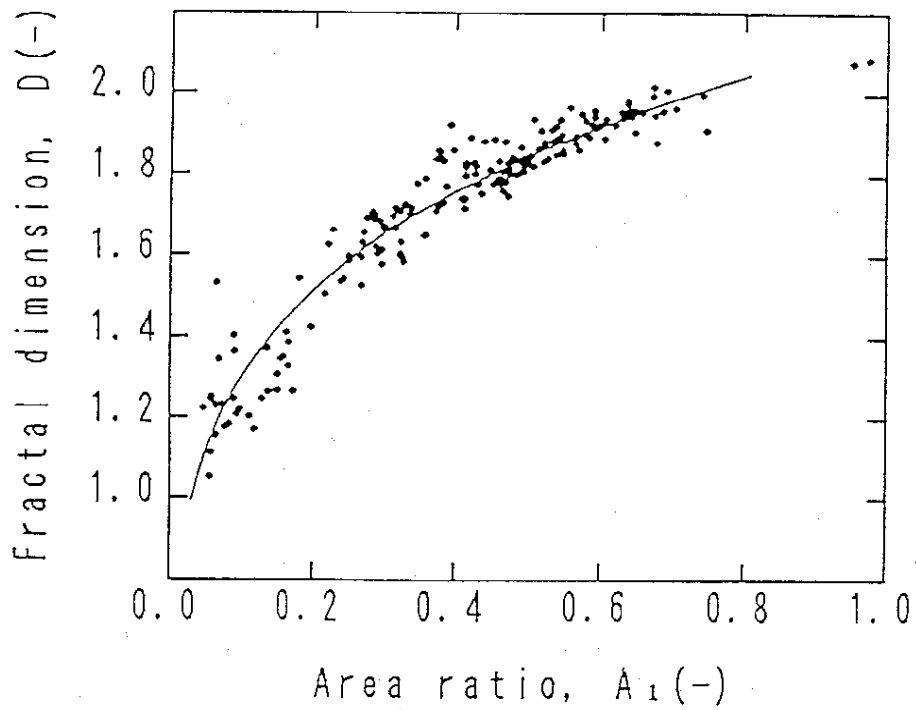


Fig. 6-13 Relationship between fractal dimension  $D$  and area ratio  $A_1$ .

$t \leq 30$  s での  $D$  と  $A_1$  の関係を, Fig. 6-13 にプロットした. 実線は, 次の回帰式を表す.

$$D = 2.15 A_1^{0.218} \quad R^2 = 0.919 \quad (28)$$

ここで,  $R^2$  は決定係数である.  $A_1$  の指数が 1 より小さい理由は,  $Tha \pm 8$  の閾値を持つ粒子の大きいかたまりが, 小さいかたまりに分割されるのに時間がかかるためである.

## 6. 5 結言

対照色のガラスビーズ (平均粒径  $\bar{d}_s = 99, 227, 332 \mu\text{m}$ ) の層で交互に満たした 2次元容器に縦方向の振動を加え, 層内の粒子運動の時間変化を写真撮影した. 得られた写真を画像解析し, 粒子運動がフラクタル次元により特徴づけられることを示した. 更に, フラクタルパターンを引き起こす実験条件について説明した. 振動層におけるフラクタル特性は統計的なものであり, ボックスカウンティング法を適用するにあたっては, トレーサー粒子の分布の最初のパターンが重要であった.

フラクタル次元の経時変化は, 混合速度と混合度合いの定量的な情報を表しているので, 層高に沿う混合速度の変化を示すために, フラクタル次元は有効である. 層高と粒子径に無関係に, 層の中央部において混合速度は最も速く増大し, また, 層高に沿う混合速度の変化は, 粒子径が大きくなるほど減少することが分かった.

以上のことから, 従来の様々な科学的手法ではアプローチが不可能であった, 2次元振動層の複雑な粒子運動挙動の解析において, フラクタル理論の適用が非常に有用であることが明らかとなり, 複雑な挙動も, 統計的なフラクタル次元により定量的に評価可能であるとの結論を得た.



## 第 7 章 総括

自然界に存在する様々な形は，不規則で複雑なものが多く，また，自然現象においても非線形で複雑なものがほとんどである．このように自然界の現象は，通常，非常に複雑であり，これを予測し説明することは多大な困難を伴う．

特に，本研究の対象であるゴムと粉体は，その歴史が古く，現在にいたるまでに多くの研究者により様々な角度から多種多様の科学的アプローチがなされているが，多くの未説明の問題が残されている．

しかし，近年のコンピュータ技術のめざましい発展にともない，従来，不可能と思われた諸現象を比較的簡単に解析できるようになり，複雑な形態や現象を数値として定量的に取り扱えるようになった．本研究においては，全く視点の異なる二つの手法を用いてこれらの複雑な諸問題の説明を試みた．その一つは画像解析の手法であり，コンピュータに取り込んだ複雑な画像をデジタル化した後，様々なユークリッド幾何学的諸因子を計測するものである．もう一つは，非ユークリッド幾何学の一つであり，複雑な諸現象を解析する手法として急速に発展しつつあるフラクタル理論を適用する手法である．

本研究の前半は，ゴムに関するもので，劣化ゴム表面に発生した複雑な亀裂形態を解析した研究と，密閉混合機によるゴムの混練り状態を解析した研究から成る．後半は，粉体に関するもので，新しく開発した空気圧変動法による粉体の造粒に関する研究と，2次元振動層内の粉体の混合状態を解析した研究から成る．

本研究においては，これらのゴムと粉体に関わる複雑な諸問題を，画像解析とフラクタルの自作プログラムを用いて解析評価した．そして，従来のアプローチでは解析が困難であった固体や粉体の様々な挙動，機構等に対する定量化に成功し，新しい知見を提供した．

本研究で得られた結論を以下に総括する．

第 1 章では，ゴムと粉体に関する複雑な諸問題を画像解析とフラクタルの手法を用いて研究する意義と，本研究の目的および概要を述べた．さらに，本研究に関連した既往の研究をまとめた．

第 2 章では，本研究で用いる解析手法である画像解析法とフラクタル理論の概要と測定方法についてまとめた．画像解析は，コンピュータに入力された画像を 2 値化処理によりデジタル化し，次に，数理形態学の像変換理論に基づいた像変換を組み合わせて画像の浄化を行い，ユークリッド幾何学的諸因子を計測し数値化

する手法である。フラクタル理論は、複雑な図形や現象の中で自己相似性を持つものに適用でき、非整数次元であるフラクタル次元により複雑さの度合いを数値化する手法である。

第3章では、屋外暴露および促進暴露により劣化させたスチレンーブタジエンゴム（SBR）の表面に発生した複雑な亀裂形態を、画像解析法とフラクタル理論を用いて解析した。画像解析においては、亀裂長さ密度、亀裂幅分布、亀裂面積比、の3因子により亀裂形態を数値化し、これら因子と暴露時間の関係、劣化試験方法による影響について検討した。そして、劣化の進行にともない亀裂幅方向の合一が生じること、亀裂面積比がゴムの劣化の有用な評価指標となること等を明らかにした。フラクタル解析においては、亀裂形態は二つのフラクタル次元を持つフラクタル図形であること、フラクタル次元は劣化の進行とともに増大し、劣化の評価指標となること、劣化試験方法により異なったフラクタル次元を示し、劣化試験方法特有の亀裂形態となること等を明らかにした。

第4章では、密閉混合機によるアクリロニトリルーブタジエンゴム（NBR）の混練り状態を、混合機の電力ー時間曲線のスペクトル解析結果と、スペクトルから求めたフラクタル次元により評価した。まず、得られた種々のスペクトルピークの物理的意味の解釈を行い、ロータ回転に相当するピークと、その2倍の回転周期のピーク、および二つのロータが異速回転の場合、互いのロータ羽根の噛み合わせ周期と、その2倍の周期が含まれることを明らかにした。そして、ゴムの混練り状態は、ロータ総回転数に支配されることを示した。

次に、スペクトル解析により求めたパワースペクトル密度と周波数の関係がべき法則に従うことを示し、ゴムの混練りがフラクタル現象であることを明らかにした。そして、フラクタル次元は、積算電力、平均ロータ回転速度が増加すると増大すること、ロータ回転比1.14~1.30の間で極大値を持つこと、フラクタル次元の大きいものほど混練り状態が良好で、フラクタル次元は混練り状態の評価指標となることを明らかにした。

第5章では、空気圧変動法と名付けた新しく開発した造粒方法の概要、および操作条件と粉体物性が顆粒状態に及ぼす影響について検討した。空気圧変動法は、2段階の工程から成る。第1段階は、粉体が入った容器を減圧後、大気を急速に注入して微粉体の圧搾を行う。第2段階は、圧縮された微粉体の入っている容器の空気を圧縮後、瞬時に大気に放出する。このとき固められた粉体が砕かれて顆粒となる。造粒後の顆粒の状態を、画像解析により測定した粒度分布とフラクタル次

元により評価した。

超微粉無水珪酸と珪藻土を用いて造粒実験を行った。第1段階での減圧度と第2段階での加圧度が、超微粉無水珪酸の場合、それぞれ73.3 kPaと98.1 kPa以上、珪藻土の場合、40.0 kPaと49.0 kPa以上の操作条件で造粒が成功すること、層高は顆粒形成にほとんど影響しないことを明らかにした。また、得られた顆粒形態はフラクタル図形であり、超微粉無水珪酸の場合、実験条件はフラクタル次元に影響しないこと、珪藻土の場合、第1段階での減圧度が若干影響することを示した。

第6章では、2次元振動層内の粒子層の運動挙動と混合状態をフラクタル次元により評価した。白色と黒色のガラスビーズの層で交互に満たした透明な2次元容器に縦方向の振動を加え、層内の粒子運動を撮影した写真を基に、均一混合時に到達する色調が含まれる割合（面積比）を画像解析により測定した。また、その分布状態をフラクタル次元で評価した。

フラクタル次元の経時変化は、混合速度と混合度合いの定量的な情報を表しており、混合速度は、層高と粒子径に無関係に、層の中央部で最も速く増大すること、また、層高に沿った混合速度の変化は、粒子径が大きくなるほど減少することを明らかにした。更に、フラクタルパターンを引き起こす実験条件について検討し、ボックスカウンティング法を適用するにあたっては、トレーサー粒子（黒色粒子）の分布の初期のパターン（縞模様配置）が重要であることを示した。

現在、フラクタルが生成する主要原因として、以下の3項目が知られている（7-1）、7-2）。

#### ①非線形フィードバック

自分の出力を自分に入力する操作を繰り返すことにより発生するカオス現象で、カオスのアトラクタがフラクタル構造となる。

#### ②相転移

秩序状態から無秩序状態に変化する相転移点（臨界点）においてフラクタルが発生する。

#### ③非可逆過程

成長現象、破壊現象、凝集現象というような、いったんその状態になったら元に戻らない現象を非可逆過程といい、このときフラクタルが発生する。自然界の大部分は非可逆過程であり、このような現象は、以下に示す特徴を持つ。

- ・自動的にフラクタル状態に収束する。
- ・生成したフラクタル状態は強い安定性を持つ。
- ・大きいものがより大きくなる選択成長の傾向を持つ。

・成長時にランダムな分岐，分裂を伴う。

本研究で扱った全ての問題は，この非可逆過程に相当する現象であることは明らかである。そのため，フラクタル的特徴が現れたと考えられるが，この方法が複雑な現象全てに適用できる手法であるという保証はなく，個々の課題のフラクタル性に関しては，十分な検討が必要である。

画像解析，フラクタルに関する研究は，現在，まだ確立された工学的手法という段階ではなく発展途上にある。今後，これらの研究がどのように進展するかは予測できないが，本研究で示したように，物理的，工学的諸問題の解析手法としては非常に有望であることは間違いない。将来，様々な分野で応用されるようになるものと思われる。

## 使用記号

A	投影面積
A	容器の断面積
$A_1$	面積比
$A_s$	亀裂面積比
$C_k$	ラグ $k\Delta t$ の自己相関関数
$C(s)$	相関関数
d	空間次元
d	顆粒径
ds	粒子径
$\overline{ds}$	平均粒子径
D	フラクタル次元
$D_1$	小さいスケール範囲で計測されるフラクタル次元
$D_2$	大きいスケール範囲で計測されるフラクタル次元
$D_s$	非整数次元
$E_1$	主混練り部の積算電力
f	周波数
f	振動周波数
$f_n$	ナイキスト周波数
$f_R$	ロータ回転速度に相当する周波数
F	モーメント変化による力
g	重力の加速度
H	情報エントロピー
K	両対数プロットの傾き
L	周囲長
L	層高
$L_s$	亀裂長さ密度
N	ラムが降りている期間の総回転数
$N_1$	抽出像のピクセル数
$N_2$	計測領域内の全ピクセル数
$N_r$	像を含むボックスの数
$N_{RS}$	無次元分散数
$N(r)$	分割個数

$N (W_{all})$	亀裂面積
$N (W)$	Wのヘキサゴンの占める面積
P	容器内空気圧
$P_b$	粉体層底部の空気圧
$P_m$	m+1点予測誤差フィルターからの平均出力
$P (f)$	パワースペクトル密度
$\Delta P_c$	圧搾時の設定空気圧
$\Delta P_s$	顆粒形成時の設定空気圧
r	分割スケール長さ
r	ボックスの大きさ
r	粒子の大きさ (篩いの目開き)
$r_{mk}$	m点予測誤差フィルター
R	ロータ回転速度
R	ガス定数
R	重相関係数
R	篩い上残留累積率
$R_{av}$	平均ロータ回転速度
$R^2$	決定係数
s	2点間距離
$S (r)$	存在確率
t	時間
T	温度
Tha	十分長い時間経過後の平均閾値
V	容器体積
$V_0$	チャンバ容積
$V_0$	空気圧搾前の粉体層体積
$V_p$	空気圧搾後の粉体層体積
$V_s$	せん断容量
W	ヘキサゴンの対角長

$\alpha$	ロータ回転比
$\beta$	べき指数
$\theta$	混練り時間
$\theta'$	主混練りと後混練りの合計時間
$\lambda$	導電率
$\Lambda$	振動加速度比
$\rho_b$	粉体層の嵩密度
$\sigma$	標準偏差
$\Delta\sigma$	縦方向の応力差

## 引用文献

### 第1章

- 1-1)Mandelbrot,B.B. : "The fractal geometry of nature", W.H.Freeman and Company, New York(1977)
- 1-2)松尾孝 : 材料科学, Vol.26,No.4,183(1989)
- 1-3)林隆史,渡邊昭彦,田中肇,西敏夫 : 高分子論文集, Vol.49,No.4,373(1992)
- 1-4)守矢一男 : 材料科学, Vol.24,No.4,169(1989)
- 1-5)杉山幸平 : 金属臨時増刊号, No.4,55(1988)
- 1-6)奥宮正太郎, 安井至 : Inorganic Materials,Vol.2,No.258,346(1995)
- 1-7)本郷貴士 : 齒科学報, Vol.87,No.12,1569(1987)
- 1-8)Tanaka,H.,Hayashi,T. and Nishi,T. : J. Appl. Phys., Vol.59,No.2,653 (1986)
- 1-9)Tanaka,H.,Hayashi,T. and Nishi,T. : J. Appl. Phys., Vol.59,No.11,3627 (1986)
- 1-10)田中肇,西敏夫 : 日本レオロジー学会誌, Vol.15,5(1987)
- 1-11)西敏夫 : 日本ゴム協会誌, Vol.60,No.11,659(1987)
- 1-12)西敏夫,田中肇 : 高分子, Vol.38,No.3,208(1989)
- 1-13)McCabe,T.J.,Godby,L.V. and Trasorras,J.R.L. : Adv. Powder Metall. Part Mater.,Vol.2,175(1994)
- 1-14)Delie,F. and Bouvard,D. : Mater. Sci. Eng. A,Vol.184,No.1,65(1994)
- 1-15)Maas,S. and Gronski,W. : Kautsch. Gummi Kunstst.,Vol.47,No.6,409 (1994)
- 1-16)Hall,R.A. : J. Appl. Polym. Sci.,Vol.36,No.5,1151(1988)
- 1-17)佐橋哲也,野崎寿弘,岡本教佳,川口英雄 : 関東学院大学工学部研究発表講演要旨集, 47(1989)
- 1-18)籾木利明,岡本教佳,佐橋哲也 : 関東学院大学工学部研究発表講演要旨集, 49(1989)
- 1-19)谷田貝豊彦 : 材料科学, Vol.26,No.4,163(1989)
- 1-20)飯沼武 : 材料科学, Vol.26,No.4,177(1989)
- 1-21)高安秀樹 : "フラクタル", 朝倉書店(1986)
- 1-22)高安秀樹編 : "フラクタル科学", 朝倉書店(1987)
- 1-23)Vicsek,T. : "Fractal growth phenomena", World Scientific Publishing, New Jersey(1989)



- 1-24)Feder, J. : "Fractals", Plenum Press, New York(1988)
- 1-25)Bunde, A. and Havlin, S. : "Fractals and disordered systems", Springer  
-Verlag, New York(1991)
- 1-26)Biardi, G., Giona, M. and Giona, A. : "Chaos and fractals in chemical  
engineering", World Scientific Publishing, New Jersey(1995)
- 1-27)高安秀樹 : 日本機械学会誌, Vol.96, No.900, 965(1993)
- 1-28)高安秀樹 : 日本音響学会誌, Vol.49, No.1, 40(1993)
- 1-29)佐野雅己 : 化学工学, Vol.57, No.2, 106(1993)
- 1-30)本田勝也 : 高分子, Vol.43, No.3, 222(1994)
- 1-31)鈴木道隆 : 化学工学, Vol.57, No.2, 130(1993)
- 1-32)落合萌, 小棹理子 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1181(1991)
- 1-33)小棹理子, 落合萌 : Gypsum & Lime, No.235, 524(1991)
- 1-34)Graf, J.C. : Powder Technol., Vol.67, 83(1991)
- 1-35)Drakopoulou, A., Feke, D.L. and Manas-Zloczower, I. :  
Rubber Chem. Technol., Vol.67, No.1, 17(1994)
- 1-36)Gerspacher, M. and O'Farrell, C.P. : Elastomerics, April, 35(1991)
- 1-37)Herd, C.R., McDonald, G.C. and Hess, W.M. : Rubber Chem. Technol.,  
Vol.65, 107(1992)
- 1-38)Cai, J., Lu, N. and Sorensen, C.M. : J. Colloid Interface Sci., Vol.171,  
470(1995)
- 1-39)Zerda, T.W., Yang, H. and Gerspacher, M. : Rubber Chem. Technol.,  
Vol.65, 130(1992)
- 1-40)Tsunoda, R. : J. Colloid Interface Sci., Vol.152, No.2, 571(1992)
- 1-41)角田亮一 : 神奈川県工業試験所研究報告, No.62, 84(1991)
- 1-42)川口正美 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1194(1991)
- 1-43)Darmstadt, H., Roy, C. and Kaliaguine, S. : Rubber Chem. Technol., Vol.68,  
No.2, 330(1995)
- 1-44)Lebon, S. and Hillel R. : J. Colloid Interface Sci., Vol.173, 215(1995)
- 1-45)水野善久, 寺下敬次郎, 宮南啓 : 化学工学論文集, Vol.19, No.1, 21(1993)
- 1-46)水野善久, 寺下敬次郎, 宮南啓 : 粉体工学会誌, Vol.30, No.6, 435(1993)
- 1-47)川崎正, 元家勝彦 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1198(1991)
- 1-48)松岡三郎, 住吉英史, 石川圭介 : 日本機械学会論文集 (A編), Vol.56,  
No.530, 2091(1990)
- 1-49)三橋博三 : セメント・コンクリート, No.533, July, 1(1991)
- 1-50)中野隆 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1202(1991)

- 1-51) 矢久保考介, 中山恒義 : 日本物理学会誌, Vol.44, No.11, 833(1989)
- 1-52) 鈴木睦 : 化学工学, Vol.57, No.2, 113(1993)
- 1-53) 池田宏信 : 日本物理学会誌, Vol.46, No.12, 1021(1991)
- 1-54) 鈴木増雄 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1190(1991)
- 1-55) 原田誠, 木下正広, 塩井章久 : 化学工学, Vol.57, No.2, 116(1993)
- 1-56) Ishida, A., Matsubara, H., Furukawa, K., Miyayama, M. and Yanagida, H. :  
J. Ceramic Society Japan, Vol.103, No.10, 996(1995)
- 1-57) Kluppel, M : Rubber Chem. Technol., Vol.68, No.4, 623(1995)
- 1-58) 宮島佐介 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1175(1991)
- 1-59) 斎藤幸夫 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1186(1991)
- 1-60) Jlang, Q. and Logan, B.E. : Environ. Sci. Technol., Vol.25, No.12, 2031  
(1991)
- 1-61) Ehrburger-Dolle, F., Mors, P.M. and Jullien, R. : J. Colloid Interface  
Sci., Vol.147, No.1, 192(1991)
- 1-62) Shlesinger, M.F. : J. Statistical Physics, Vol.36, No.5/6, 639(1984)
- 1-63) Drahos, J., Bradka, F. and Puncochar, M. : Chem. Eng. Sci., Vol.47,  
No.15/16, 4069(1992)
- 1-64) 横山秀史, 永田茂, 片山恒雄 : 生産研究, Vol.43, No.12, 633(1991)
- 1-65) Kinoshita, M., Harada, M., Kishida, M. and Nakamura, Y. :  
A.I.Ch.E. Journal, Vol.38, No.10, 1667(1992)
- 1-66) Tam, C.M., Matsuura, T. and Tremblay, A.Y. : J. Colloid Interface Sci.,  
Vol.147, No.1, 206(1991)
- 1-67) Allen, J.P., Colvin, J.T., Stinson, D.G., Flynn, C.P. and Stapleton, H.J. :  
Biophys. J., Vol.38, 299(1982)
- 1-68) Rice, J.A. and Lin, J. : Environ. Sci. Technol., Vol.27, No.2, 413(1993)
- 1-69) 菊地恒男, 桐生昭吾, 佐藤宗純, 三浦甫 : 日本音響学会誌, Vol.47, No.11, 818  
(1991)
- 1-70) 武者利光 : 日本音響学会誌, Vol.50, No.6, 485(1994)
- 1-71) Matsushita, M. and Ouchi, S. : Physica D38, 246(1989)
- 1-72) 松下貢 : セラミックス, Vol.26, No.11, 1169(1991)
- 1-73) 松下貢 : ながれ, Vol.9, 145(1990)

## 第2章

- 2-1) Tanaka, H., Hayashi, T. and Nishi, T. : J. Appl. Phys., Vol.59, No.2, 653  
(1986)

- 2-2)Tanaka,H.,Hayashi,T. and Nishi,T. : J. Appl. Phys., Vol.59,No.11,3627  
(1986)
- 2-3)田中肇,西敏夫 : 日本レオロジー学会誌, Vol.15,5(1987)
- 2-4)西敏夫 : 日本ゴム協会誌, Vol.60,No.11,659(1987)
- 2-5)西敏夫,田中肇 : 高分子, Vol.38,No.3,208(1989)
- 2-6)Serra,J. : "Image analysis and mathematical morphology", 1, Academic  
Press Ltd.,London(1982)
- 2-7)Serra,J. : "Image analysis and mathematical morphology", 2, Academic  
Press Ltd.,London(1988)
- 2-8)高安秀樹 : "フラクタル", 朝倉書店(1986)
- 2-9)Drakopoulou,A.,Feke,D.L. and Manas-Zloczower,I. :  
Rubber Chem. Technol., Vol.67,No.1,17(1994)
- 2-10)Gerspacher,M. and O'Farrell,C.P. : Elastomerics, April,35(1991)
- 2-11)Herd,C.R.,McDonald,G.C. and Hess,W.M. : Rubber Chem. Technol.,  
Vol.65,107(1992)

### 第 3 章

- 3-1)近藤暁夫 : ゴム, Vol.15,No.1,23(1968)
- 3-2)占部誠亮 : 高分子, Vol.18,No.204,174(1969)
- 3-3)Newton,R.G. : Rubber Chem. Technol., Vol.18,504(1945)
- 3-4)Edwards,D.C. and Klingender,R.C. : Rubber Age, Vol.96,65(1964)
- 3-5)御船直人,永井靖隆,西本一夫,竹本喜一 : 高分子論文集, Vol.48,No.9,567  
(1991)
- 3-6)御船直人,西本一夫,永井靖隆,竹本喜一 : 高分子論文集, Vol.49,No.1,51  
(1992)
- 3-7)西本一夫,永井靖隆,秋山鐵夫,御船直人 : 日本ゴム協会誌, Vol.66,No.8,545  
(1993)
- 3-8)Graf,J.C. : Powder Technol., Vol.67,83(1991)

### 第 4 章

- 4-1)Funt,J.M. : "Mixing of rubber", Rubber and Plastics Reseach of Great  
Britain(1977)
- 4-2)Funt,J.M. : Plastics and Rubber Processing, Vol.12,127(1977)
- 4-3)橋爪慎治 : 日本レオロジー学会誌, Vol.15,19(1987)
- 4-4)橋爪慎治 : 日本レオロジー学会誌, Vol.15,26(1987)

- 4-5)Freakley,P.K. and Wan Idris,W.Y. : Rubber Chem. Technol., Vol.52,134  
(1979)
- 4-6)Min,K. and White,J.L. : Rubber Chem. Technol., Vol.60,361(1987)
- 4-7)Morikawa,A.,Min,K. and White,J.L. : Intern. Polym. Proc., Vol.4,23  
(1989)
- 4-8)森川明彦 : 日本ゴム協会誌, Vol.62,173(1989)
- 4-9)占部誠亮 : 日本ゴム協会誌, Vol.54,437(1981)
- 4-10)河西和雄,楊井啓吉,尾畑寛 : 日本ゴム協会誌, Vol.63,25(1991)
- 4-11)Toki,S.,Takeshita,M. and Morimoto,Y. : Presentation at a meeting of  
the rubber division, American Chemical Society, Houston,Texas,  
Oct.25(1983)
- 4-12)土岐重之 : 日本ゴム協会誌, Vol.62,132(1989)
- 4-13)志賀周二郎,吉田元信 : 日本ゴム協会誌, Vol.55,491(1982)
- 4-14)志賀周二郎 : 日本ゴム協会誌, Vol.60,126(1987)
- 4-15)志賀周二郎 : 日本ゴム協会誌, Vol.62,123(1989)
- 4-16)Beach,K.C.,Cowper,L.F. and Lowery,V.E. : Rubber Age, Vol.85,253(1959)
- 4-17)東篤,松本敏敬,萩野雅章 : 日本ゴム協会年次大会研究発表講演会予稿集,  
79(1989)
- 4-18)松本敏敬,和田法明 : 日本ゴム協会年次大会研究発表講演会予稿集,  
33(1990)
- 4-19)占部誠亮 : ポリマーダイジェスト, Vol.39,No.2,93(1987)
- 4-20)占部誠亮 : ポリマーダイジェスト, Vol.39,No.4,57(1987)
- 4-21)西本一夫,占部誠亮,秋山鐵夫 : 日本ゴム協会誌, Vol.65,No.8,465(1992)
- 4-22)日野幹雄 : " スペクトル解析" , 朝倉書店, 210(1977)
- 4-23)Shen,K.S. and Rains,R.K. : Rubber Chem. Technol., Vol.52,764(1979)
- 4-24)西本一夫,占部誠亮 : 日本ゴム協会誌, Vol.65,No.7,430(1992)
- 4-25)橋爪慎治 : 日本ゴム協会誌, Vol.63,71(1990)
- 4-26)高安秀樹 : " フラクタル" , 朝倉書店(1986)
- 4-27)Mandelbrot,B.B. : " The fractal geometry of nature" ; W.H.Freeman and  
Company, New York(1977)

## 第 5 章

- 5-1)Association of Granulation : "Handbook of granulation (in Japanese)",  
Ohmsha,Tokyo(1975)
- 5-2)Stanley-wood,N.G. (ed.) : "Enlargement and compaction of particulate

solids", Butterworths, London(1983)

- 5-3) Rhodes, M. (ed.) : "Principle of powder technology", Ch.9, Wiley, Chichester(1990)
- 5-4) Iinoya, K., Gotoh, K. and Higashitani, K. (eds.) : "Powder technology handbook", Marcel Dekker, New York(1991)
- 5-5) Pietsch, W. : "Size enlargement by agglomeration", Wiley, Chichester (1991)
- 5-6) Sastry, K.V.S. and Fuerstenau, D.V. : Powder Technol., Vol.7, 97(1973)
- 5-7) Akiyama, T., Nagao, T., Kono, M. and Nishimoto, K. : Powder Technol., Vol.81, 9(1994)
- 5-8) Akiyama, T., Miyamoto, Y., Nakayama, N. and Zhang, J.Q. : Powder Technol., Vol.46, 173(1986)
- 5-9) Wiese, N. and Schwedes, J. : Powder Technol., Vol.77, 221(1993)
- 5-10) Akiyama, T., Iwai, A., Yamaboshi, H. and Shimomura, T. : Powder Technol., Vol.62, 235(1990)

## 第 6 章

- 6-1) Mandelbrot, B.B. : Pro. Natl. Acad. Sci. USA, Vol.72, 3825(1975)
- 6-2) Gutfraind, R. and Sheintuch, M. : Chem. Engng. Sci., Vol.47, 4425(1992)
- 6-3) Giona, M. and Roman, H.E. : Chem. Engng. J., Vol.49, 1(1992)
- 6-4) Drahos, J., Bradka, F. and Puncochar, M. : Chem. Engng. Sci., Vol.47, 4069 (1992)
- 6-5) Kinoshita, M., Harada, M., Kishida, M. and Nakamura, Y. : A.I.Ch.E.J., Vol.38, 1667(1992)
- 6-6) Vlad, M.O. : J. Colloid Interface, Vol.159, 21(1993)
- 6-7) Taguchi, Y-h. : Phys. Rev. Lett., Vol.69, 1367(1992)
- 6-8) Gallas, J.A.C., Herrman, H.J. and Sokolowski, S. : Phys. Rev. Lett., Vol.69, 1371(1992)
- 6-9) Akiyama, T., Yamaboshi, H. and Matsuda, T. : Advanced Powder Technol., Vol.4, 287(1993)
- 6-10) Akiyama, T., Aoki, K., Iguchi, T. and Nishimoto, K. : Chem. Engng. Sci., Vol.51, No.13, 3551(1996)

## 第 7 章

- 7-1) 高安秀樹 : 日本音響学会誌, Vol.49, No.1, 40(1993)
- 7-2) 本田勝也 : 高分子, Vol.43, No.3, 222(1994)

## 論文リスト

### 1. 本研究の関連論文

- 1) 御船直人, 永井靖隆, 西本一夫, 竹本喜一: " スチレン-ブタジエンゴム (SBR) 加硫物の天候劣化に伴う表面き裂の画像解析と動的粘弾特性", 高分子論文集, Vol. 48, No. 9, 567 (1991)
- 2) 御船直人, 西本一夫, 永井靖隆, 竹本喜一: " スチレンブタジエンゴム (SBR) 加硫物の促進劣化に伴う表面き裂の画像解析と動的粘弾特性", 高分子論文集, Vol. 49, No. 1, 51 (1992)
- 3) 西本一夫, 永井靖隆, 秋山鐵夫, 御船直人: " 劣化したスチレン-ブタジエンゴム (SBR) 加硫物の表面亀裂形態とフラクタル", 日本ゴム協会誌, Vol. 66, No. 8, 545 (1993)

以上 第3章

- 1) 西本一夫, 占部誠亮, 秋山鐵夫: " 電力-時間曲線のスペクトル解析", 日本ゴム協会誌, Vol. 65, No. 8, 465 (1992)
- 2) 西本一夫, 占部誠亮: " フラクタル次元によるNBR混練り状態の評価", 日本ゴム協会誌, Vol. 65, No. 7, 430 (1992)

以上 第4章

- 1) Akiyama, T., Nagao, T., Kono, M. and Nishimoto, K.: " Size enlargement of fine powders by means of air pressure", Powder Technol., Vol. 81, 9 (1994)

以上 第5章

- 1) Akiyama, T., Aoki, K., Iguchi, T. and Nishimoto, K.: " A fractal property of vertically vibrated beds of granules", Chem. Engng. Sci., Vol. 51, No. 13, 3551 (1996)

以上 第6章

## 2. 本研究以外の関連論文

- 1) 御船直人, 永井靖隆, 西本一夫, 石丸暁: ” スチレン・ブタジエンゴム (SBR) 加硫物の劣化に伴う物性変化と動的粘弾特性” , 高分子論文集, Vol. 48, No. 7, 437 (1991)
- 2) 西本一夫: ” 画像解析によるゴムの劣化評価とフラクタル” , マテリアルライフ, Vol. 6, No. 2, 55 (1994)
- 3) 御船直人, 西本一夫, 永井靖隆: ” スチレンブタジエンゴムの表面き裂形態と動的粘弾性変化” , 「エラストマーの耐候(光)性-第1次共同研究報告-」 日本ゴム協会環境劣化研究分科会編, 武蔵野クリエイト (1994)

## 謝 辞

本論文をまとめるにあたり，終始御懇篤なる御指導，御鞭撻を賜りました静岡大学工学部 秋山鐵夫 教授に心より感謝の意を表します。

また，有益な御意見，御教示を賜りました静岡大学工学部 上野晃史 教授，佐々木 彰 教授，藤安 洋 教授ならびに藤田郁夫 教授に謹んで感謝申し上げます。

本研究を進めるにあたり，多くの御指導，御助言を頂きました元日本ゴム協会副会長・藤倉ゴム工業株式会社顧問・ニチアス株式会社技術顧問 占部誠亮氏に深甚なる謝意を表します。

さらに，いろいろ御配慮頂きましたニチアス株式会社取締役研究開発本部長 皆木敏宏 研究所長に深く感謝致します。

最後に，本研究の実施に際し，多大なる御協力を頂きました財団法人鉄道総合技術研究所 工学博士 御船直人氏，神奈川大学理学部 永井靖隆氏に厚く御礼申し上げます。