論 文

石英ガラス粉体層の圧縮粉碎による扁平な粒子の除去

神 田 良 照,* 友 近 太 一,** 儀 同 良 光***

Elimination of Flakelike Particles by a Compressive Crushing of Quartz Glass in Powder Bed

by

Yoshiteru KANDA†, Taichi TOMOCHIKA†† and Yoshimitu GIDO†††

The particle shape affects the grindability of powdered or granular materials. In this work, the compressive crushing of quartz glass in powder beds were carried out in order to eliminate flakelike or acicular particles and get more spherical ones. The sample used was 3.5~4 mesh (5.66~4.76mm) quartz glass. The shape index defined by (diameter of a circumscribed circle/thickness) was measured manually with great care by slide caliper. The effect of the mass of feed and the applied load on the shape index of unfractured particles were studied. The relationship between the shape index of unfractured particles and the energy input in a powder bed or the probability of crushing were calculated experimentally. As a result, it was found that the mean shape index of unfractured particles decreased with increase in the energy input, that is, increase in the probability of crushing and the experimental equations between these were obtained.

Key Words : Particle Shape, Shape Index, Elimination, Quartz Glass, Compressive Crushing

1. 緒 言

一般に扱われている粉粒体は、粒子径に広い分布を持つとともに個々の粒子の形も異なっているのが普通である。粒子形状は、粉粒体の基本物性である粒子径の定義に関わるとともにその測定値にも影響を与える¹⁾。さらに形状の違いは製品の品質に影響を及ぼす

とともに粉体に関連する単位操作や現象に影響することは良く知られている²⁾。そのため、これまでに粒子形状を定義する多くの係数、指数が提案³⁾、議論され、これらの係数、指数と粉体に関わる現象との関係が種々検討されている。また粉体材料の機能化にともない粒子の形状分離^{4,5)}や形状制御^{6,7)}も重要になり実験、研究がさかんに行われている。さらに、最近の地球環境や資源リサイクルの必要性からこれらの研究分野においても形状分離技術が応用されるようになってきている^{8,9,10)}。

粉体製造の多くの部分をしめている粉碎も粒子形状との関係が深い¹¹⁾。著者らは、この中から粉碎と砕料

平成9年2月24日受付

* 山形大学工学部物質工学科 〒992 米沢市城南4-3-16

** 山形大学工学部物質工学科 (現 太陽石油 (株))

*** 山形大学工学部物質工学科 (現 三井鉱山 (株))

† Department of Materials Science and Engineering,

Yamagata Univ. 4-3-16, Jonan, Yonezawa, 992, Japan

の粒子形状との関連性について実験、検討を行ってきた^{2, 12, 13, 14)}。その結果、ふるいで整粒した同一物質から成る粉粒体でもその破碎性、粉碎性は粒子形状によって異なり、様々な形状を有する粉粒体を分級-粉碎-分級プロセスで粉碎し易い扁平な粒子を除去できることがわかった。石英ガラスは半導体用フィラー材として用いられているが、これには加熱、成形した球形粒子が使われている。ここではその前処理の基礎実験として石英ガラスの粗粒子を用いて粒子の動きの少ない粉体層の圧縮粉砕を行い、扁平な粒子を粉碎、除去することを試みた。以下にその結果を報告する。

2. 試料の調整と形状指数の定義

実験に用いた試料は、九州セラミックス(株)製の石英ガラスである。大きさが数 cm の石英ガラスをジョークラッシャーで粗砕し、手ふるいでおおよそふるい分けした後、一回のふるい分け質量を約100gとし、ロータップで5分間再度ふるい、3.5~4mesh(表示目開き5.66~4.76mm)間の整粒粒子を得た。粒子形状の指標としては、前報^{2, 12)}において粉碎性と関連づけるのに適していた形状指数のひとつを用いた。それは、Fig. 1に示すように粒子が最も安定すると思われる状態に静置したときの厚み T と粒子の真上からの投影図の外接円の直径を最長径 N と名付けて、これらを直接ノギスで測定し算出した (N/T) である。Table 1に測定した石英ガラス粒子6,639個の N , T , N/T の平均値と変動係数を示した。

3. 実験装置と実験方法

実験装置の概略図を Fig. 2 に示した。②が荷重測定用のロードセル、④が変位測定用のダイヤルゲージである。⑥、⑦の粉碎容器は窒化ケイ素製で、Fig. 3にその詳細図を示した。粉碎実験は質量、個数、形状指数が測定済みの試料を粉碎容器内に平らに充填し、杵(プランジャー)を介して圧縮荷重を加え行った。荷重条件は、変位速度を一定としメーカー表示の0.5 mm/minとした。粉体層に加えた荷重 P は $10^3 \sim 10^4$ N 間の8点である。充填した試料質量は9gの整数倍で9~54g間の4種類である。なお基準とした質量を9gとした理由は、実験に用いた3.5~4meshの粒子を粉碎容器内に目測で一層となるように充填したとき、その質量が約9gであったことによる。実験条件を

Fig. 1 Definition of diameter of a circumscribed circle and thickness

Table 1 Mean particle sizes and shape indices of 6,639 specimens

	Mean	Coefficient of variation(-)
N	9.75(mm)	0.186
T	3.51(mm)	0.311
N/T	3.71(-)	0.492

- ① Pellet Testing Machine
- ② Load cell
- ③ Load indicator
- ④ Dial gauge
- ⑤ Displacement indicator
- ⑥ Crushing vessel
- ⑦ Plunger
- ⑧ x-y recorder

Fig. 2 Schematic diagram of experimental apparatus

Fig. 3 Crushing apparatus

Table 2 Experimental conditions

Density of quartz glass ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	2.12×10^3
Feed size (mm)	5.66~4.76
Mass of feed (g)	9, 18, 36, 54
Applied load (N)	10^3 , 2×10^3 3×10^3 , 4×10^3 5×10^3 , 6×10^3 8×10^3 , 10^4
Cross-head speed ($\text{mm} \cdot \text{min}^{-1}$)	0.5

Table 2にまとめて示した。粉体層に加えたエネルギー E は、X-Yレコーダに記録した荷重—変位曲線を図積分して求めた。

粉碎実験後、試料の整粒に用いた目開きの小さい 4mesh のふるいを用いてロータップで試料を整粒したときと同じ 5 分間ふるい、ふるい上に残った粒子を未粉碎粒子と定義した。この未粉碎粒子の質量、個数、形状指数を再度測定した。粒子径分布の表示には個数、質量基準があり互いに関連づけることができるが、ここでは、前述したように未粉碎粒子の粒子径範囲は狭いので、未粉碎確率として以下の Eqs. (1), (2)に示す

ように個数、質量基準で定義し、それぞれの実験について比較、検討した。

$$1-P_f = (n/n_i) \quad (1)$$

$$1-P_f(m) = (m/M) \quad (2)$$

ここで、 n_i と M は実験に供した粒子個数と質量、 n と m は未粉碎粒子の個数と質量をそれぞれ表す。

4. 実験結果と考察

4.1 粉碎確率と粉体層に加えたエネルギーの関係

試料質量が 36g の粉体層に 10^4 N の圧縮荷重を加えたときの荷重—変位曲線を Fig. 4 に示した。荷重の増加にともない石英ガラスの破壊ならびに粉体層内での粒子の再配列等の影響が現れ、曲線が複雑になっている。このことについては後でまた述べる。Fig. 5 には、Eqs. (1), (2) で定義した個数基準の未粉碎確率 $1-P_f$ と質量基準の未粉碎確率 $1-P_f(m)$ との関係を示したが、全体的に両者に差がないものとして、以下の整理には未粉碎確率として個数基準の $1-P_f$ を用いた。Fig. 6 に試料質量が 9, 18, 36, 54g について粉碎確率 P_f と試料の単位質量に加えたエネルギー E/M との関係を示した。各試料質量についてその関係を求めると以下ようになる。

Fig. 4 Load-deformation curve

Fig. 5 Relationship between probability of crushing based on mass and number of particles

Fig. 6 Variation of probability of crushing with specific energy input

$$P_f = 4.4 \times 10^{-2} (E/M)^{0.45} \quad (M = 9 \text{ g}) \quad (3)$$

$$P_f = 4.9 \times 10^{-2} (E/M)^{0.45} \quad (M = 18 \text{ g}) \quad (4)$$

$$P_f = 4.8 \times 10^{-2} (E/M)^{0.44} \quad (M = 36 \text{ g}) \quad (5)$$

$$P_f = 5.6 \times 10^{-2} (E/M)^{0.42} \quad (M = 54 \text{ g}) \quad (6)$$

Eqs. (3)~(6)と Fig. 6 から P_f と E/M の関係は、本実験の範囲内では試料質量 M の影響はないとみなす

ことができる。この観点から Fig. 6 の関係を求める以下になる。それを同図に示した。

$$P_f = 4.9 \times 10^{-2} (E/M)^{0.44} \quad (0 \leq P_f \leq 0.8) \quad (7)$$

また, Eqs. (2), (7)から

$$M-m = 4.9 \times 10^{-2} E^{0.44} \cdot M^{0.56} \quad (8)$$

となり, $M-m$ への影響は試料質量 M の方が粉体層に加えるエネルギー E より大きいことがわかる。また粉体層に加えるエネルギー E が一定の場合, 試料質量 M が多くなるほど, 砕成物が多くなることが分かる。これは, 本実験装置では, 粉碎容器内壁とプランジャーとのクリアランスが5mm あるため, 粉体層が厚くなると荷重を加えたとき粒子の移動が起こりやすく, 粒子の先端が欠けるなどの部分破壊が起こり, その結果, 砕成物が多くなるものと考えている。

4.2 未粉碎確率と未粉碎粒子の形状指数の関係

Fig. 7 に試料質量が36g のときの未粉碎粒子の形状指数の積算個数分布を, 粉体層に加えた圧縮荷重をパラメーターにして示した。ただし, $P = 0$ は実験前の分布である。ここには示さなかった他の実験結果も含めて, 形状指数の分布曲線は, 荷重の増加にともない左に移動し分布の幅も狭くなり形状指数の大きい粒子が粉碎除去されていくことがわかる。Fig. 8 に未粉碎粒子の形状指数の算術平均値 (N/T) av (以下 N/T

Fig. 7 Cumulative distribution of shape index

の平均と呼ぶ)と未粉碎確率との関係を示した。粉碎の進行とともに N/T の平均値は直線的に減少し、扁平な粒子が粉碎除去されていることがわかる。ただし、試料質量が 9 g の場合は、前述したように粉碎容器に試料を充填すると一層となり厚み T の大きい、すなわち N/T の小さい粒子が荷重を受ける確率が高くなり、Fig. 8 に示した他の試料質量のような傾向が見られなかったためここでは除いた。このことと Eq. (8) から扁平な粒子を粉碎除去するには試料質量を多くしたほうが良いことがわかる。各試料質量について Fig. 8 の関係を求めると以下になる。

$$(N/T)_{av} = 3.2 - 1.2 P_f \quad (M = 18g) \quad (9)$$

$$(N/T)_{av} = 3.2 - 1.2 P_f \quad (M = 36g) \quad (10)$$

$$(N/T)_{av} = 3.1 - 1.3 P_f \quad (M = 54g) \quad (11)$$

Eqs. (9)~(11)と Fig. 8 から $(N/T)_{av}$ と P_f の関係には試料質量の影響はないとみなし Fig. 8 の関係をもとめると以下になる。それを同図に示した。

Fig. 8 Relationship between probability of crushing and mean shape index of unfractured particles

$$(N/T)_{av} = 3.2 - 1.2 P_f \quad (12)$$

Fig. 9 には $(N/T)_{av}$ を粉碎前の試料の N/T の平均 $(N/T)_{f,av}$ で除した値の $1 - P_f$ による変化を示した。 N/T の平均を約30%減少させることができています。 Fig. 8 と同様に試料質量により差がないとして両者の関係を求めると以下になる。

$$\frac{(N/T)_{av}}{(N/T)_{f,av}} = 1 - 0.38 P_f \quad (13)$$

4.3 荷重-変位曲線の変化から粉碎された粒子個数の推定について

Fig. 4 を見ると荷重は変位の増加に対して増減を繰り返しながら増加していく。この荷重が一時的に減少する原因は粒子が破壊するか、粉体層中での粒子の再配列が起こるかである。そこで試料質量が 36g の場合について荷重-変位曲線からこの減少した荷重を直接読みとり、粉碎した粒子個数 $n_f - n$ と任意の荷重が減少した回数 ΔP_n との関係調べた。そして、一時的に減少した荷重が $\Delta P = 20N$ の場合を Fig. 10 に、 $\Delta P = 40N$ の場合を Fig. 11 それぞれ示した。少々強引

Fig. 9 Relationship between probability of crushing and specific mean shape index

Fig. 10 Relationship between number of fractured particles and number of dropped load ($\Delta P = 20 \text{ N}$)

Fig. 11 Relationship between number of fractured particles and number of dropped load ($\Delta P = 40 \text{ N}$)

Fig. 12 Relationship between dropped load and coefficient in Eq. (16)

であるが両者の間に原点をとる直線関係が成立するとしてその関係を求めると、つぎようになる。

$$\Delta P_n = 1.2 (n_f - n) \quad (\Delta P = 20N) \quad (14)$$

$$\Delta P_n = 0.86 (n_f - n) \quad (\Delta P = 40N) \quad (15)$$

この関係を

$$\Delta P_n = C (n_f - n) \quad (16)$$

と表し ΔP を変えて係数 C の値を求め、その関係をFig. 12に示した。グラフ上から係数 C が1となるのは ΔP が約30Nのときで、これは約30Nの荷重が一時的に減少した回数と粉碎した粒子個数とがほぼ同じになることを意味している。以上の結果は、本実験のような粉体層の圧縮粉碎においては ΔP_n を計測することにより粉碎した粒子個数を予測できることを示唆している。

5. 結 言

ここで定義した形状指数の大きい、いわゆる針状あるいは扁平な粒子はその他の粒子に比べて粉碎されやすく粉碎工程を通ることにより粉碎除去できることがわかった。ここでは石英ガラスの加熱、球形化の前処理のための基礎実験として粗粒子を用いて、分級—粉体層の圧縮粉碎—分級、プロセスにより扁平な粒子の除去を試みた。その結果、未粉碎粒子の形状指数は粉体層に加える荷重の増加、すなわち粉碎の進行とともに減少し、平均値にして原料粒子の約70%まで減少させることができた。

[謝辞] 石英ガラスを提供いただいた九州セラミックス(株)に謝意を表する。

Nomenclature

C : Coefficient in Eq. (16)	(-)
E : Energy input	(J)
E/M : Specific energy input	(J/kg)
M : Mass of feed	(g), (kg)
m : Mass of unfractured particles	(g), (kg)
N : Diameter of a circumscribed circle	(mm)
N/T : Shape index	(-)

(N/T) _{av} , (N/T) _{f,av} : Arithmetic mean of shape index of unfractured and feed particles	(-)
n, n _f : Number of unfractured and feed particles	(-)
P : Load	(N)
P _f , P _f (m) : Probability of crushing based on number and mass of particles	(-)
ΔP : Dropped load	(N)
ΔP_n : Number of dropped load	(-)
Q : Cumulative fraction of shape index	(-)
T : Thickness	(mm)
Δ : Deformation	(mm)

References

- 1) Arakawa, M., T. Yokoyama, T. Yamaguchi and T. Minami : J. Soc. Materials Science, Japan, 32, 966 (1983)
- 2) Kanda, Y., Y. Makuta and T. Imanura : J. Min. Materials Processing, Inst., Japan, 105, 995 (1989)
- 3) 山口賢治, 柴田俊春 : 第34回粉体工学研究講習会テキスト, 粉体工学会 (1987)
- 4) 茂呂端生, 岩田博行, 大矢仁史 : 固体粒子の形状分離技術に関する調査研究, 通商産業省 工業技術院 公害資源研究所 (1989)
- 5) Sano, S. : J. Soc. Materials Engineering for Resources, Japan, 3, 128 (1990)
- 6) Otani, M., T. Uchiyama, T. Minoshima, K. Shinohara, K. Takayashiki and H. Nakao : ibid, 7, 35 (1994)
- 7) Taniguchi, S., T. Kato and M. Nakamura : J. Soc. Material Science, Japan, 43, 1444 (1994)
- 8) Izumikawa, C., H. Sasaki, H. Ohya, S. Endoh and H. Iwata : J. Soc. Powder Technol., Japan, 32, 378 (1995)
- 9) Koyanaka, S., S. Endoh and H. Iwata : ibid, 32, 385 (1995)
- 10) Sano, S., Y. Kanda and T. Honma : EARTH '95 in Taipei, 21 (1995)
- 11) Shibata, T., M. Aosaki and K. Yamaguchi : J. Soc. Materials Engineering for Resources, Japan, 4, 32 (1991)

- 12) Kanda, Y., T. Yamashita, H. Sasaki and S. Niiyama : J. Soc. Powder Technol., Japan, 24, 635 (1987)
- 13) Kanda, Y., K. Enomoto : ibid, 28, 619 (1991)
- 14) Kanda, Y., E. Kimura : J. Soc. Materials Engineering for Resources, Japan, 3, 142 (1995)