Work Index の測定が不可能な微粒子 の微粉碎性の評価法*

小 竹 直 哉¹ 山 田 俊 裕²
晴 山 美 保 子³ 神 田 良 照⁴

Evaluation of Grindability of Fine Particles and Estimation of their unmeasurable Work Index

by Naoya KOTAKE¹, Toshihiro YAMADA¹, Mihoko HAREYAMA¹ and Yoshiteru KANDA¹

1. Department of Materials Science and Engineering, Yamagata University, Yonezawa-shi 992

In a previous paper, the authors proposed a corresponding Work Index $W_{i,c}$ which is proportional to the Work Index W_i . $W_{i,c}$ can be determined from the zero-order increasing rate constant of the mass fraction finer than a cut size in a ball mill grinding.

In this paper, the authors proposed an application of $W_{i,c}$ to the fine particles such as fly ash of which the Work Index was not defined in JIS. The grinding experiments were carried out using the mill made of alumina with a diameter 144 mm and the grinding balls of alumina with a diameter 20 mm. The maximum size of fly ash used is about 75 μ m. The relationship between $W_{i,c}$ of fly ash and the cut size was studied. As the results, $W_{i,c}$ is approximately constant to a certain cut size but increases below it. $W_{i,c}$ can be useful for evaluating a grindability of fine particles.

KEY WORDS : Fly Ash, Fine Particles, Grindability, Ball Mill, Work Index

1. 緒 言

微粉体、超微粉体の製造は新素材の開発、製品の品質向上のために諸産業において必要不可欠であることは周知の事実である。粉碎は微粉体製造法の一つとして、操作性と処理量を考えると他の物理的、化学的手法に比べ経済的に最も有効である。粉碎では砕料の粒子径が微小になるほど粉碎効率が低下していくため、このときの砕料、粉碎装置（粉碎回路も含む）、粉碎条件などの微粉碎性の評価が重要となる。

砕料の粉碎性（被粉碎性）を表す尺度は、これまでにさまざまな定義、手法に基づく粉碎性指数が数多く提示されている（松居，1968），代表的指数に Work Index（粉碎仕事指数）（JIS，1976），ハードグロブ粉碎能（JIS，1993）がある。Work Index は粉碎抵抗（粉碎しにくさ）を，ハードグロブ粉碎能は粉碎しやすさを表す指標であり，主に鉱山関係の分野で用いられることが多く，JIS にもなっている。特に Work Index は測定粒子径を変えて調べることができるので，一定の粒子径（75 μ m）以下で測定するハードグロブ指数に比べると粉碎性をより正確に把握できると考えられる。さらに Work Index はセメント工業，鉱工業では粉碎装置，粉碎回路の設計および粉碎工程の管理

と広い範囲で実用的に有効利用されている（石原，1965；本間，1971；田中・吉本，1985）。

ここで Work Index に関して簡単に説明すると Work Index は 1952 年に Bond が定義した砕料の粉碎性指数（Bond，1952）であり，次式に示すように粉碎エネルギーの算出に用いられる。

$$E = W_i \left(\frac{10}{\sqrt{P}} - \frac{10}{\sqrt{F}} \right) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで， E ($\text{kWh} \cdot \text{t}^{-1}$) は粉碎エネルギー， W_i ($\text{kWh} \cdot \text{t}^{-1}$) は Work Index， F (μm)， P (μm) はそれぞれ砕料の粉碎前，粉碎後の 80 % 通過粒子径である。Work Index は一定規格のミル，砕料を用いて粉碎試験を行い，次式から算出する（Bond，1960）。

$$W_i = \frac{1.1 \times 44.5}{P_1^{0.23} G_{bp}^{0.82} \left(\frac{10}{\sqrt{P_1}} - \frac{10}{\sqrt{F}} \right)} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで， P_1 (μm) は粉碎試験に用いるふるいの目開き， P' (μm) は P_1 以下の砕成物の 80 % 通過粒子径， G_{bp} ($\text{g} \cdot \text{rev}^{-1}$) はボールミル粉碎能と呼ばれている。

Work Index を用いて微粉碎性を評価するとき，ボールミル粉碎能 G_{bp} の測定が一番の問題となる。 G_{bp} はミル 1 回転当たりのふるいの目開き P_1 以下の生成質量であるが， G_{bp} を測定するためには，循環率が 2.5 になるまで粉碎しなければならない。これを P_1 以下の生成分率に直すと $1/(1+2.5) \times 100 \approx 29\%$ になるまで粉碎を行う必要があり，乾式連続粉碎では P_1 をシングルミクロン，サブミクロンオーダーで測定することは極めて難しくなる（日本化学会，1985）。すなわち，微粉碎領域において Work Index の測定が不可能になる。

* 1997 年 7 月 22 日受付 11 月 10 日受理

1. 工博 山形大学助手 工学部物質工学科

2. 山形大学大学院生 工学研究科物質工学専攻（現 大日精化工業（株））

3. 山形大学学生 工学部物質工学科（現 東北大学大学院生 工学研究科地球工学専攻）

4. 正会員 工博 山形大学教授 工学部物質工学科

〔著者連絡先〕 FAX 0238-26-3414（山形大・物質）

キーワード：フライアッシュ，微粒子，粉碎性，転動ミル，粉碎仕事指数

著者らはボールミル粉碎能の代わりに、任意粒子径以下の生成速度定数を測定して算出する Work Index 相当数を提案し、これまでに砕料、粉碎機の微粉碎性の評価に関する問題の解決に取り組んできた（小竹ら，1994；小竹ら，1996）。さらに JIS による Work Index の測定に必要な砕料の最大粒子径は $3,360 \mu\text{m}$ であるが、ここで実験試料として用いたフライアッシュのように原料の大きさがこれに満たない砕料については、JIS による Work Index の測定ができないことになる。そこで本報では Work Index 相当数の応用として、フライアッシュの粉碎を行いその可能性を検討した。また、微粉碎域での所要エネルギーの予測についても考察したので報告する。

2. Work Index 相当数

Work Index 相当数についてはすでに報告（小竹ら，1994）してあるが、本報を進めるに当たりその説明が必要なため以下に簡単に述べる。

これまでの Work Index 測定の調査や研究によれば、(2)式で求めた Work Index の値と Bond が最初に提案した(3)式（Bond，1952）から求められる値には大差のないことが報告されている（石原，1964）。

$$W_i = 1.1 \times 16 (P_1/100)^{0.5} G_{bp}^{-0.82} \quad \dots\dots\dots (3)$$

一般に、ボールミル粉碎では、粉碎初期においてフィード粒子径に比べて微小な任意粒子径 x_c 以下の生成分率 Q_{xc} （一）と、粉碎時間 t （min）との間に次式の 0 次の生成速度式の成立が知られている（Arbiter and Bharny，1961；Herbest and Fuerstenaу，1968；神田・下飯坂，1968）。

$$\frac{dQ_{xc}}{dt} = k_{xc} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 k_{xc} (min^{-1}) は粒子径 x_c 以下の生成速度定数である。(4)式より

$$Q_{xc} = k_{xc} t \quad \dots\dots\dots (5)$$

となり、粉碎時間 t における粒子径 x_c 以下の生成質量 W_{xc} (g) は(6)式となる。

$$W_{xc} = Q_{xc} W_s = k_{xc} W_s t \quad \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 W_s (g) はフィード質量である。

(6)式の両辺を t で除すと

$$W_{xc}/t = k_{xc} W_s \quad \dots\dots\dots (7)$$

となり、 W_{xc}/t は単位時間当たりの x_c 以下の生成質量であるので、(3)式のボールミル粉碎能 G_{bp} ($\text{g} \cdot \text{rev}^{-1}$) と次の比例関係が成り立つ。

$$G_{bp} \propto W_{xc}/t \propto Q_{xc} W_s/t \propto k_{xc} W_s \quad \dots\dots\dots (8)$$

さらに P_1 はふるい目開きであるので $P_1/100 \propto x_c$ とおけ、(3)式と(8)式により次式が導ける。

$$W_i = 1.1 \times 16 (P_1/100)^{0.5} G_{bp}^{-0.82} \propto (P_1/100)^{0.5} G_{bp}^{-0.82} \propto x_c^{0.5} (k_{xc} W_s)^{-0.82} \quad \dots\dots\dots (9)$$

こうして Work Index は(9)式により簡略化することができる。(9)式の右辺は Work Index に比例する値であるので、ここでは(9)式の右辺を $W_{i,c}$ ($\mu\text{m}^{0.5} \cdot (\text{g} \cdot \text{min}^{-1})^{-0.82}$) とおいて(10)式で表し、 $W_{i,c}$ を Work Index 相当数と呼ぶことにした。

$$W_{i,c} = x_c^{0.5} (k_{xc} W_s)^{-0.82} \quad \dots\dots\dots (10)$$

3. 実験用砕料および実験方法

砕料は Table 1 に示す東北電力(株)仙台火力発電所のフライアッシュを用いた。粉碎実験には内径 144 mm、内容積 2.1 l のアルミナ製ポットミルを使用し、粉碎媒体に直径 20 mm のアル

Table 1 Properties of fly ash.

Density	: $2,100 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$
Carbon content	: 3.15 wt. %
Size range	: $1.5 \sim 75 \mu\text{m}$
Median diameter	: $12.5 \mu\text{m}$

Table 2 Grinding conditions.

Mill	: alumina
Diameter	: 144 mm
Volume	: 2.1 l
Grinding ball	: alumina
Diameter	: 20 mm
Ball mass	: 2 kg
Feed size	: $1.5 \sim 75 \mu\text{m}$
Feed mass	: 200 g
Rotational speed of mill	: 108 rpm

ミナボールを用いた。媒体質量はミル内容積の見かけ 50 % に当たる 2 kg、フィード質量は 200 g とし、ミル回転速度は臨界速度の 90 % に相当する 108 rpm 一定とした。このときの媒体質量とフィード質量は本研究室で基準砕料として用いている石英ガラスのボールミル粉碎における最適粉碎条件（小竹ら，1993）と同一条件である。Table 2 に本粉碎条件をまとめて示す。粉碎実験は回分式であり、時間は 15～1,500 分間の 13 点で調べた。

砕成物の粒子径分布測定は湿式ふるい分けとレーザー光回折散乱法を併用した。湿式ふるい分けは、砕成物から約 3 g をサンプリングし目開き $45 \mu\text{m}$ の JIS 試験用ふるいを用いて、超音波洗浄器（周波数 38 kHz、出力 45 W）内で手ふるいにより行った。このときの分散媒は $0.005 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ のピロリン酸ナトリウム水溶液を使用した。ふるい下の粒子懸濁液については再度約 10 分間、超音波洗浄器内で分散させた後、レーザー光回折散乱法（日機装(株)製マイクロトラック FRA）で粒子径分布を測定した。

4. 実験結果および考察

4・1 砕成物の粒子径分布

Fig. 1 は粉碎時間による砕成物の粒子径分布の変化である。粒子径分布は粉碎時間の増加により徐々に微粒側に移動し、フィードの粒子径分布とはほぼ相似な分布形を保持して粉碎が進行していることがわかる。

4・2 生成速度定数の測定

Figs. 2(a), (b) に任意の粒子径以下の生成分率と粉碎時間の関係を示す。粉碎初期では両者に直線関係が認められ、(4)式が成立し生成速度定数 k_{xc} を求めることができる。また、Fig. 2(a) より $2 \mu\text{m}$ 以下の生成分率は粉碎時間が数 100 分近くまで 0 次の生成速度式が成立しているのがわかる。これはフライアッシュが細かい球状粒子を多く含んでいるためその流動性が良く、長時間粉碎を行っても媒体およびミル内壁への砕成物のコーティングが少なく、フライアッシュ粒子が媒体から受ける粉碎エネルギーが有効に作用するためと理解できる。

4・3 Work Index 相当数の算出

Fig. 3 に、測定した生成速度定数 k_{xc} を(10)式に代入して求めた Work Index 相当数 $W_{i,c}$ と分級粒子径の関係を示す。同図に

Fig. 1 Size distribution of ground products.

Fig. 2 (a) Relationship between mass fraction finer than size x_c and grinding time ($0.49 \mu\text{m} \leq x_c \leq 1.94 \mu\text{m}$). Fig. 2 (b) Relationship between mass fraction finer than size x_c and grinding time ($2.75 \mu\text{m} \leq x_c \leq 11 \mu\text{m}$).

は基準砕料として用いている石英ガラスの結果 (小竹ら, 1994) も併せて示してある。フライアッシュの $W_{i,c}$ は石英ガラスの場合と同様にある粒子径範囲ではほぼ一定になり、砕料の固有値としての性質が認められるが、分級粒子径 $4 \mu\text{m}$ 未満では増加しており微粒域の粉砕の難しさを表している。このような微粒域における Work Index の増加は Smith ら (1968), 石原 (1965) も認めている。Fig. 3 においてフライアッシュと石英ガラスの $W_{i,c}$

Fig. 3 Relationship between corresponding Work Index and cut size.

の分級粒子径による変化が近似したのは、フライアッシュは石炭の燃焼によって石炭に含まれる粘土質の灰分 (主成分は SiO_2) が溶融してガラス化したものである (篠崎, 1996), 石英ガラスに近い粉砕機構を持ったためと推察される。しかし、フライアッシュは $W_{i,c}$ が一定と見なせる最小粒子径が石英ガラスの $20 \mu\text{m}$ に比べて約 5 分の 1 ほど微細になっており、かなりの微粉砕域まで粉砕性 (粉砕機構) を一定に保持すると考えられる。図中の水平線 (点線) は $W_{i,c}$ がほぼ一定となる粒子径範囲の $W_{i,c}$ の平均値を示し、曲線 (実線) は Bond が提案した (11) 式の $70 \mu\text{m}$ 以下の微粉砕域における Work Index の補正係数 (微粉砕係数) A_1 (Bond, 1961) を, (12) 式のように適用する粒子径範囲を $70 \mu\text{m}$ から $x_1 (\mu\text{m})$ と変えて $W_{i,c}$ を補正した結果を示している。

$$A_1 = \frac{P+10.3}{1.145P} \quad (P \leq 70 \mu\text{m}) \quad (11)$$

$$A_1' = \frac{(70/x_1)x_c + 10.3}{1.145(70/x_1)x_c} \quad (x_c \leq x_1) \quad (12)$$

ここで、フライアッシュは $x_1 = 3.9 \mu\text{m}$, 石英ガラスは $x_1 = 20 \mu\text{m}$ である。図のように (12) 式による補正でもフライアッシュは石英ガラスに比べ微粉砕性の予測が難しくなっており、Bond の微粉砕係数 A_1 に基づく補正の限界を表している。このことから本研究で提案した $W_{i,c}$ は絶対値ではなく W_i に比例する値であるが、 $W_{i,c}$ をあらかじめ測定することで砕料の微粉砕性の予測がより正確になり、JIS による Work Index の測定が不可能な砕料についても微粉砕性の評価に適用できると考えている。

4・4 フライアッシュの Work Index の推定

(9) 式の関係から

$$W_i = C W_{i,c} \quad (\therefore C: \text{定数}) \quad (13)$$

とおくと次式が得られる。

$$\frac{W_{i, \text{Fly ash}}}{W_{i, \text{Silica glass}}} = \frac{W_{i,c, \text{Fly ash}}}{W_{i,c, \text{Silica glass}}} \quad (14)$$

$W_{i, \text{Fly ash}}$, $W_{i, \text{Silica glass}}$ はそれぞれフライアッシュ, 石英ガラスの Work Index, $W_{i,c, \text{Fly ash}}$, $W_{i,c, \text{Silica glass}}$ はそれぞれ Fig. 3 の点線で示したフライアッシュ, 石英ガラスの Work Index 相当数がほぼ一定になるときの平均値であり, $W_{i,c, \text{Fly ash}} = 2.78 \mu\text{m}^{0.5} \cdot (\text{g} \cdot \text{min}^{-1})^{-0.82}$, $W_{i,c, \text{Silica glass}} = 3.09 \mu\text{m}^{0.5} \cdot (\text{g} \cdot \text{min}^{-1})^{-0.82}$ である。 $W_{i, \text{Silica glass}}$ の実測値は $14.8 \text{ kWh} \cdot \text{t}^{-1}$ であり (八嶋, 1986), これらの値を (14) 式に代入すると $W_{i, \text{Fly ash}} = 13.3 \text{ kWh} \cdot \text{t}^{-1}$ が得られる。このように JIS による Work Index の測定が不可能な規格外の砕料について Work Index が既知の基準砕料のボールミル粉砕を行い、基準砕料および JIS 規定外の砕料の

Work Index 相当数を測定すれば JIS 規定外の碎料の Work Index がある程度推定できる。

4・5 粉碎エネルギーの予測

(1)式の Bond の式を基にして微粉碎域の Work Index の変化を、Work Index 相当数により予測する粉碎エネルギー式を(15)式、(12)式の Bond の微粉碎係数に準拠して予測する粉碎エネルギー式を(16)式に示す。

$$E = \frac{W_{i,c}}{W_{i,c, \text{const.}}} W_i \left(\frac{10}{\sqrt{P}} - \frac{10}{\sqrt{F}} \right) \quad \dots\dots\dots (15)$$

$$E = A_1' W_i \left(\frac{10}{\sqrt{P}} - \frac{10}{\sqrt{F}} \right) \quad \dots\dots\dots (16)$$

ここで $W_{i,c, \text{const.}}$ は Work Index 相当数の一定値である。

実操業で Work Index を用いて粉碎エネルギーを算出するとき、Work Index は目的とする碎成物の 80 % 通過粒子径 P に近い粒子径で測定することが望ましいので (JIS, 1976), Fig. 4 に Work Index 相当数の分級粒子径 x_c と生成粒子径 P が等しいと仮定し、(15)式、(16)式により求めた粉碎エネルギーと生成粒子径の関係を示す。ただし、原料の 80 % 通過粒子径 F はフライアッシュは $25 \mu\text{m}$ 、石英ガラスは $1,850 \mu\text{m}$ (小竹ら, 1993) である。図中のプロットは(15)式、破線は(16)式の計算値で、フライアッシュの粉碎エネルギーの計算には前項で推定した Work Index の値 $13.3 \text{ kWh} \cdot \text{t}^{-1}$ を用いている。両者を比較すると(16)式では $2 \sim 3 \mu\text{m}$ 付近が粉碎エネルギーの予測の限界と思われる。また、同図には奥田らが種々の粉碎機、碎料を用いた実操業における粉碎エネルギーと碎成物の平均粒子径 (メディアン径) の関係を調査し、一般的傾向をまとめた結果 (奥田・崔, 1980) も示してある。これと本研究の結果では碎料の種類や代表粒子径のとり方が違うのでエネルギーの大きさを単純に比較できないが微粒

Fig. 4 Relationship between grinding energy and product size.

域の粉碎エネルギーの増加傾向は近似しており、Work Index 相当数による微粉碎性の評価は碎料の粉碎エネルギーの予測にも利用できるものと考えている。

5. 結 言

本研究では転動ボールミルを用いてフライアッシュの粉碎実験を行い、JIS による Work Index の測定が不可能な微細な碎料の微粉碎性の評価を Work Index 相当数により検討した結果、以下の知見を得た。

- 1) フライアッシュのボールミル粉碎では、任意粒子径以下の生成速度には 0 次式が成立した。
- 2) 先に提案した Work Index 相当数がフライアッシュのような JIS による Work Index の測定が不可能な微粒子の微粉碎性の評価にも有効であることを示した。このとき、Bond の提案した微粉碎係数では適用粒子径の範囲を変えてもフライアッシュの微粉碎性の評価は難しいことを示した。
- 3) Work Index 相当数によりフライアッシュの Work Index の推定を行った。また、Work Index 相当数と Bond の式を用いて粉碎エネルギーの予測を試み、その有効性を示した。

謝辞 本研究の遂行に当たり東北電力(株)仙台火力発電所よりフライアッシュを提供していただいた。ここに記して謝意を表する。

引 用 文 献

- Arbiter, N. and U. N. Bhargava (1961): Aufbereitungs Technik. Vol. 2, p. 265-272
- Bond, F. C. (1952): Trans. AIME Min. Engr., Vol. 4, p. 484-494
- Bond, F. C. (1960): Trans. AIME, Vol. 217, p. 139-153
- Bond, F. C. (1961): Brit. Chem. Engr., Vol. 6, p. 378-385
- Herbst, J. A. and D. W. Fuerstenau (1968): Trans. AIME, Vol. 241, p. 538-549
- 本間榮五郎 (1971): 粉体工学研究会誌, Vol. 8, p. 505-512
- 石原 透 (1964): 日本鉱業会誌, Vol. 80, p. 924-928
- 石原 透 (1965): 日本鉱業会誌, Vol. 81, p. 1064-1071
- JIS M 4002 (1976)
- JIS M 8801 (1993)
- 神田良照・下飯坂潤三 (1968): 日本鉱業会誌, Vol. 84, p. 1077-1081
- 小竹直哉・下平起市・西原 浩・安部保志・神田良照 (1993): 材料, Vol. 42, p. 1265-1270
- 小竹直哉・庄司ひとみ・長谷川政裕・神田良照 (1994): 粉体工学学会誌, Vol. 31, p. 626-630
- 小竹直哉・渡邊祐一朗・石崎武正・神田良照 (1996): 化学工学論文集, Vol. 22, p. 106-112
- 松居国夫 (1968): 化学工学, Vol. 35, p. 269-276
- 日本化学会編 (1985): "化学工学総説 No. 48 超微粒子—化学と応用", 学会出版センター (東京), 96 p.
- 奥田 聡・崔炳植 (1980): 粉体工学学会誌, Vol. 17, p. 383-391
- 篠崎貞行 ((財)石炭利用総合センター): 1996 年資源・素材学会春季大会企画発表 (分科研究会) 講演資料 1 p.
- Smith, R. W. and K. H. Lee (1968): Trans. AIME, Vol. 241, p. 91-101
- 田中俊行・吉本勝彦 (1985): R & D 神戸製鋼技報, Vol. 35, p. 34-37
- 八嶋三郎編 (1986): "粉碎と粉体物性", 培風館 (東京), 77 p.