研究報告

チューブミルにおける滞留時間分布を考慮した 砕製物の粒度分布*

Effect of Residence Time Distribution on the Size Distribution
of Finished Product from Tube Mill

高 松 暉**
Hikaru Takamatsu

杉 本 益 規***
Masunori Sugimoto

田 中 達 夫**
Tatsuo Tanaka

緒 言

連続粉碎操作において、ミル砕製物の粒度分布を支配する重要な因子の一つとして被粉碎物の装置内での滞留時間分布が考えられる。この滞留時間分布と砕製物の粒度分布との関係については、森、神保¹⁾らをはじめ、Kelsall, Reid²⁾らの報告がある。本報告では、連続式チューブミル内の粒子の滞留時間分布と、砕製物の粒度分布との関係について述べ、さらにチューブミルの操作変数および被粉碎物の物性から滞留時間分布を推定する方法について検討する。またミルの出口の形状の粉碎におよぼす影響についても考察を加える。

1. 実験装置および実験方法

粉碎装置には、図1に示すような内径が25.5cm、長さが60cm、90cmの二種類の鉄製の円筒を使用し、直径が約3.2cmのスチールボールを粉碎媒体として100個または150個円筒内に装入了。回転数 n は67.4 r.p.m. (臨界回転数との比、 $N_c=0.8$)、粉碎媒体充填率 J (装置の内容積に対する粉碎媒体の見かけ容積割合)は11.7%で実験した。粉碎試料には、川砂(7~10mesh, 真比重2.7)を使用し、試料粒子供給速度 F は、200~500 [gr/min] の範囲で種々に変えた。

装置内の粒子の滞留時間分布を調べるためのトレーサには供給される粒子と等しい粒径を持つ重クロム酸カリウム(真比重2.7)を用い、円筒内の操作が定常状態に達した後、トレーサ投入口より瞬間的に10グラムのトレ

ーサを投入した。その投入した時間を基準として1分間ずつ出口で粒子を採取し、採取した試料中の重クロム酸カリウムを温水で溶解し、吸引口過により分離した。そのロ液を光電式比色計で定量することによって粒子の滞留時間分布を求めた。この時、試料の溶解成分の影響を除くため粉碎された川砂をロ過し、そのロ液を基準にして検量線を作製しておいた。

一方、砕製物の粒度分布を測定するためにミルの出口で排出された砕製物を採取し、その粒度分布を振とう型ふるいで求めた。

また、連続式粉碎による砕製物の粒度分布と滞留時間分布との関係を回分式粉碎をもとに検討するために、直径が25.5cm、長さが30cmの回分式ボールミルによって被粉碎物の粒度分布と粉碎時間との関係を実験的に求めた。なおボールミルによる粉碎は被粉碎物および粉碎媒体充填度、ミル回転数などは連続式チューブミルの場合とほぼ等しい条件でなされた。

また連続式チューブミル内部の軸方向の位置に関する滞留物の粒度の変化を知るために、ミルの回転を停止した後、15cm 間隔で滞留物を採取し、その粒度分布を求

図1 実験装置概略

* 昭和43年3月30日受理

** 北海道大学工学部 合成化学工学科(札幌市北十二条西八丁目)
TEL 0122-71-2111

*** 富山大学工学部化学工学科(高岡市) TEL 0766-22-2510

図 2 チューブミルの滞留時間分布の実験と計算値との比較

めた。

2. 実験結果と考察

2.1 滞留時間分布の推定に関する実験的検討

2.1.1 連続式チューブミルの粒子の滞留時間分布

滞留時間分布に関する実験結果の代表的な例を図2に示す。すなわち、チューブミルに同時に入口より入った粒子群は、同時に出口より排出されるとはかぎらない。ミル内部に入った粒子群は、粉碎媒体による混合作用や粒子自身の回転運動による混合作用を受け、ある時間の幅をもって排出される。

連続式チューブミルにおいては、図2に示すように、粒子の滞留時間分布は、ほぼ対数正規分布にしたがうことが知られている^{3,4)}。今チューブミル内の粒子の滞留時間分布が対数正規分布にしたがうと仮定すれば、その滞留時間分布の累積曲線の関数は次のようになる。

$$F(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^x \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) dx \\ = \frac{1}{2} [1 + \operatorname{erf}(x)] \quad \dots\dots(1)$$

ただし

図 3 チューブミル内の層流率

$$x = \frac{\ln t - \ln \bar{t}_g}{\ln \bar{t}_g - \ln t_{16}} = \frac{\ln t - \ln \bar{t}_g}{\sigma_o} \quad \dots\dots(2)$$

ここで t は任意の時間、 $\bar{t}_g$ は幾何平均滞留時間、 t_{16} は累積率16%に相当する時間、 σ_o^2 は滞留時間分布の分散である。また滞留時間分布の頻度分布を示す式は(1)式を t で微分したものであるからその関係は次のようになる。

$$\frac{dF(x)}{dt} = f(t) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \cdot t} [\exp(-x)] \quad \dots\dots(3)$$

また幾何平均滞留時間 $\bar{t}_g$ と算術平均滞留時間 $\bar{t}$ との関係は、理論的に次の式で示される⁵⁾。

$$\bar{t}_g = \frac{\bar{t}}{\exp(0.5 \times \sigma_o^2)} \quad \dots\dots(4)$$

2.1.2 連続式チューブミル内の粒子の滞留時間分布の層流率および分散

筆者らはさきに、永田らの提案した層流率⁶⁾によって、チューブミル内を通過する粒子の滞留時間分布についてかなり広範囲に適用できる実験的関係を求めた⁷⁾。

本報告では、その後の実験結果をもとに、さらに適用範囲が広く、定性的な説明がよくつく式を求めるためにミルの長さ L のかわりにミルの直径 D を組み入れ、また層流率の大小に影響を与えるであろうと思われる粉碎媒体充填率 J を考慮した次のような実験式を得た。

$$I = 1 - \exp \left[-290 \times J^{-0.744} \times \left(\frac{F^*}{nD} \right)^{1/2} \right] \quad \dots\dots(5)$$

ここで I は近似的層流率⁷⁾、 F^* は装置単位断面積に対

図 4 チューブミル内の粒子滞留量

する粒子供給量である。(5)式によって求めた計算結果と実験によって求めた層流率の関係を図3に示す。

一方、層流率と滞留時間分布との関係については、理論的に検討されているが³⁾、本報では滞留時間分布が対数正規分布にしたがうと仮定した場合の I と σ_0^2 との近似的な関係を求めて、次の結果を得た。

$$I = \exp(-2.75\sigma_0^2) \quad \dots\dots(6)$$

2. 1. 3 連続式チューブミル内の滞留量および算術平均滞留時間

算術平均滞留時間 $\bar{t}$ は、滞留量 H を粒子供給速度 F で除したものに等しいから次式が成立する。

$$\bar{t} = \frac{H}{F} \quad \dots\dots(7)$$

他方、トラニオン型排出部を持つチューブミル内の滞留量について次元解析を行なうと結果は次式のようになる。

$$\left(\frac{H}{L\rho_p D^2}\right) = K \left(\frac{F}{D^{5/2} \cdot \rho_p \cdot g^{1/2}}\right)^a (N_c)^b (J)^c \times \left(\frac{D_e}{D}\right)^d \left(\frac{\rho_p}{\rho_B}\right)^e (\mu_p)^f \left(\frac{d_p}{D}\right)^g \left(\frac{d_B}{D}\right)^h \quad \dots\dots(8)$$

ただし、 N_c は回転数 n と臨界回転数との比、 ρ_p 、 ρ_B は粒子および媒体の真密度 [gr/cm³]、 d_p 、 d_B は粒子および媒体の直径 [cm]、 D_e は出口開口部の直径 [cm]、 μ_p は粒子の摩擦係数 [-]、 g は重力加速度 [cm/sec²] であ

る。本実験では右辺の μ_p 、 (d_p/D) 、 (d_B/D) 、については一定であることから、これらを除く6つの無次元項について検討し、媒体がゴムボール⁹⁾ およびスチールボールである場合のデータより、それぞれの項のべき数、定数 K を定め、次のような実験式を得た。

$$\left(\frac{H}{L\rho_p D^2}\right) = 0.0544 \left(\frac{F}{D^{5/2} \cdot \rho_p \cdot g^{1/2}}\right)^{0.13} \cdot N_c^{-0.145} \times \left(\frac{D_e}{D}\right)^{-1.5} \cdot J^{-0.06} \left(\frac{\rho_p}{\rho_B}\right)^{-0.075} \quad \dots\dots(9)$$

(9)式でわかるように、べき数を考慮すれば、 J 、 (ρ_p/ρ_B) の項は他の項に比べて滞留量に与える影響が少ない。したがって最終的には、(9)式を次式で近似した。

$$\left(\frac{H}{L\rho_p D^2}\right) = 0.0544 \left(\frac{F}{D^{5/2} \cdot \rho_p \cdot g^{1/2}}\right)^{0.13} \cdot N_c^{-0.145} \times \left(\frac{D_e}{D}\right)^{-1.5} \quad \dots\dots(10)$$

図4に、(10)式による計算値と、実測値との比較を示す。以上の結果より、粒子の物性および操作変数である F 、 F^* 、 L 、 D 、 D_e 、 J 、 ρ_p 、 N_c 、 n 、が決まれば、(5)式によって層流率が求まり、(6)式によってその滞留時間分布の分散が求まる。一方、(10)式によって滞留量を求めることができ、 F との関係から(7)式により算術平均滞留時間が、(4)式によって幾何平均滞留時間が求まる。したがって、滞留時間分布は(1)式または(3)式によって計算できる。

図2の直線は、(3)、(4)、(5)、(6)、(10)式によって計算した結果である。

2. 2 連続式チューブミルの碎製物の粒度分布と粒子の滞留時間分布

チューブミルの中を粒子が通過しながら粉碎される場合、ミルの中に滞留する時間が異なるいくつかの粒子群を考え、それが粉碎される時にはそれぞれの粒子群は互いに干渉しないと考える。供給された粒子群のうちで、滞留時間、 t をもつ粒子群の全体に対する割合は、(3)式における $f(t)$ で与えられる。すなわち、 $t=0$ で入口よりミルに入った粒子群が、時間 $(t+dt)$ で排出される確率が $f(t)$ である。したがって、 t 時間かかってミルを通過する粒子群の碎製物の粒度分布に対する寄与は、その粒子群の粒度分布に $f(t)$ を乗じたものである。よって、出口で観測される碎製物全体の粒度分布は、 t について積分し、次のようになる。

図 5 回分式ボールミル内の粒度の時間的变化

$$g(y) = \int_0^{\infty} B(y, t) \cdot f(t) dt \quad \dots\dots(1)$$

ここで $g(y)$ は碎製物中の粒子径 y をもつ粒子の頻度、 $B(y, t)$ は連続式チューブミルと同じ粉碎条件で、供給粒子が t 時間粉碎された時の粒子径 y をもつ粒子の頻度である。この $B(y, t)$ については、粉碎速度論の立場から、ある物性定数（破碎関数、選択関数）が決定できると求めることができるとの報告²⁾もある。

Reid らは、カルサイトおよび石英の粉碎においては、粉碎速度は一次反応によく近似できると報告している²⁾。そこで本報告では、粉碎が一次反応に近似できると仮定して、碎製物の粒度分布を(1)式で計算した。この計算に使用した $B(y, t)$ は、連続式チューブミルと粉碎条件がほぼ等しい回分式ボールミルを使用し、粒子の粒度の粉碎時間に対する変化を測定して求めた。その結果を図5に示す。この $B(y, t)$ と、前節で導出した $f(t)$ をもとに、(1)式により計算し、連続式チューブミルの碎製物の粒度分布を推定すると、図6における点線の結果となる。また実験によって求めた粒度分布は、実線のようにになった。同様にして求めた推定粒度分布の他の一例を図7に示す。この場合、被粉碎物の粉碎が、物性および時間のみの関数で規定され、周囲の粒子の影響を受けないとすれば、一次反応と同様に粒子の滞留時間分布を考慮するだけで、回分式ミルの粒度分布から、連続式チューブミルの碎製物の粒度分布を、(1)式により計算でき、実験結果と計算値は一致するはずである。

しかし図6、7あるいは他の報告¹⁾にも見られるように、粉碎時間すなわちミル内の粒子の滞留時間が長くなるにつれて、測定される碎製物の粒度分布と(1)式による計算の結果は多少ずれてくる。これは回分式ミル内の粒子の粒度の時間的变化と、連続式チューブミル内で粒子が粉碎される場合の周囲の粒度の時間的变化が異なる

図 6 碎製物の粒度分布

図 7 碎製物の粒度分布

ために生じたものと考えられる。すなわち、この試料の粉碎は、厳密な意味で一次反応に近似することが無理であると考えられる。しかし一般に、そのような粉碎される粒子の周囲の環境の変化を考慮して解析することは非常に困難であり、また式が導出されても計算が不可能な場合も起こりうる。本報告では粉碎を一次反応に近似して計算を行なったが、実験値と計算値はほぼよい一致を示し、その結果、粒度分布の推定がある程度可能であると考えられた。

2.3 滞留時間分布とミル碎製物の粒度分布の推定計算例

操作変数が次のように定められた場合の計算例を示す。

$$\begin{aligned} D &= 25.5(\text{cm}), L = 60(\text{cm}), D_e = 18(\text{cm}) \\ F &= 384(\text{gr/min}), J = 11.2(\%) \\ n &= 67.4(\text{r.p.m.}), \rho_p = 2.7(\text{gr/cm}^3) \end{aligned}$$

(5)式より層流率 I を求めると

$$I = 1 - \exp \left\{ -290 \times (11.2)^{-0.744} \right. \\ \left. \times \left(\frac{0.2786}{67.4 \times 25.5} \right)^{\frac{1}{2}} \right\}$$

(6)式より分散 σ_o^2 を求めると

$$\sigma_o^2 = -\frac{2.30}{2.75} \times \log 0.4567 = 0.285$$

(10)式より滞留量を求めると

$$H = 0.0544 \left(\frac{384}{25.5^{5/2} \times 2.7 \times 980^{1/2}} \right)^{0.13} \times (0.8)^{-0.145} \\ \times \left(\frac{18}{25.5} \right)^{-1.5} \times (60 \times 2.7 \times 25.5^2) \\ = 4314 \text{ (gr)}$$

(7)式により算術平均滞留時間を求めると

$$\bar{t} = \frac{4314}{384} = 11.2 \text{ (min)}$$

(4)式により幾何平均滞留時間を求めると

$$\bar{t}_g = \frac{11.2}{\exp(0.5 \times 0.285)} = 9.8 \text{ (min)}$$

したがって滞留時間分布関係の式は次のようになる。

$$f(t) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \cdot t} \left[\exp \left(-\frac{\ln t - \ln 9.8}{0.5339} \right) \right]$$

この式によって計算した結果を実際のトレーサ法による実験値と比較したのが図2の直線である。また操作条件が異なる場合の他の一例も同図に示す。

つぎにミル碎製物の粒度分布を図5における $B(y, t)$ と、今求めた $f(t)$ とから(1)式により推定すれば、図6における点線の結果となる。

2. 4 トラニオン型排出部をもつチューブミル内の軸方向の粒子の粒度分布

実験によってミルの軸方向の各位置における粒度分布を測定したが、その分布を定量化するために被粉碎物の相対的細かさを示す算術平均径を求めた。この平均径 $\bar{d}_p$ をミルの位置 l についてプロットしたのが図8の(a)である。ここでミル内部の粒子の拡散状態が、入口から出口まで一定であると仮定すれば、出口で観測または計算さ

図 8 チューブミル内部の粒子の粒度の軸方向の変化

れる滞留時間分布より求められる拡散係数およびそれぞれの位置における算術平均滞留時間から、それぞれの位置における滞留時間分布は推定できる。また粉碎が周囲の粒子の影響を受けずに行なわれると考えれば、前に述べた回分式のボールミル内の粒子の粒度分布 $B(y, t)$ と、滞留時間分布によりその位置における粒子の粒度分布が推定できる。このようにして推定した粒度分布の算術平均径をミルの位置についてプロットしたのが同図の(b)である。この結果より明らかにこの試料の粉碎物の粒度は、計算結果と異なる。これはミル内部の粒子の拡散状態が一樣でないか、または粉碎が一次反応に近似できないかのどちらかであろうと考えられる。また60cm, 90cm, いずれの長さのミルについても端効果のため、その出口付近のミル内部の粒度の実測値は異常に細くなっている。そして逆に排出されたミル碎製物の粒度は出口付近のミル内部の粒度より粗く、さらに推定計算値よりもわずかに粗くなっている。この結果はトラニオン型排出部における排出抵抗の結果、細かい粒子の排出がなされない状態でミル内の粒度分布が定常に達したものと考えられる。

2. 5 トラニオン型排出部をもつチューブミルの碎製物の粒度分布に関する考察

通常、粉碎を一次反応に近似して計算する方法では、実際にミルの出口より排出される碎製物の粒度より細かいという結果が得られることが知られている¹⁾。本実験でも同様にミルより排出された碎製物の粒度は、計算値より粗いという結果を得た。この原因の一つとしては、ミルを通過する粒子がミルのある長さのところから出口まで粉碎されずに排出されたことが考えられる。

他方、前節で述べたように、ミル内部の出口付近では異常に細かい粒子が多くなっていることが認められた。この点から、ミル内部の細かい粒子が多く存在する場所

ではクッション効果によって粒子が粉碎されずに排出されたと考えられる。すなわち出口排出機構にもとづく排出抵抗のため、実際に粉碎に使用されている有効なミルの長さは減少している。したがって細かい粒子のミル内での集積を比較的避けることができると考えられる湿式、または排出部が目皿板の場合には、さらに計算値が実験値に近くなることが期待できる。しかし排出抵抗をあまり小さくすれば、ミル内部の粒子滞留量が減少しそのため粉碎時間が短くなり、ミルの粉碎効率は低くなるであろう。

3. 結 言

連続式チューブミル内の粒子滞留量と操作変数との関係を求め、さらにそれらの操作変数および物性定数から層流率 I 、滞留時間分布の分散 σ_0^2 などを媒介として、

各時間における粒子の滞留時間分布の期待値を求める式を導出した。また粉碎が一次反応に近似できると仮定して、連続式チューブミルの碎製物の粒度分布を、連続式と同じ粉碎条件下で得た回分式ボールミル内の粒子の粒度分布から、前述の上記滞留時間分布を考慮して求めた。その結果、実測値と推定値はほぼ良い一致を示した。

またトラニオン型排出部をもつミル内部の粒度分析の結果から、出口付近の粒度は異常に細かくなっていることが認められた。したがってこの部分を通過する粒子は、細かい粒子のクッション効果によりある長さより出口まで粉碎されずに通過する結果、碎製物の粒度は計算値よりも粗くなったと考えられる。

〔付記〕

本研究にあたり、実験および計算に協力された学生の五十嵐稔君、高木義統君に謝意を表します。

記 号

D	: ミルの直径	[cm]
D_e	: ミル出口開口部の直径	[cm]
d_B	: 粉碎媒体の直径	[cm]
d_p	: 粒子の直径	[mm]
F	: 粒子供給速度	[gr/min]
F^*	: 粒子のミル単位断面積当りの容積供給速度	[cm ³ /cm ² ・min]
I	: 滞留時間分布の層流率	[—]
J	: 媒体充填率 (ミルの内容積に対する粉碎媒体のみかけ容積比)	[%]

L	: ミルの長さ	[cm]
n	: ミルの回転数	[r.p.m.]
N_c	: 臨界回転数と n との比	[—]
t	: 時間	[min]
$\bar{t}$	: 算術平均滞留時間	[min]
t_g	: 幾何平均滞留時間	[min]
μ_p	: 粒子の摩擦係数	[—]
ρ_B	: 粉碎媒体の真密度	[gr/cm ³]
ρ_p	: 粒子の真密度	[gr/cm ³]
σ_0^2	: 滞留時間分布の分散	[—]

引 用 文 献

- 1) 森, 神保, 山崎: 粉体工学研究会誌, Vol. 4, No. 3 (1967)
- 2) Reid, J., Kelsall, D. F.: *A. I. Ch. E. Sym. Series*, No. 4
- 3) “粉体の物性と工学” p.27 化学同人 (1967)
- 4) 森, 神保, 山崎: 化学工学, 28, 204 (1964)
- 5) “粉体工学ハンドブック” p. 44~47 朝倉書店
- 6) 永田, 江口, 田中: 化学工学, 17, 387 (1953)
- 7) 杉本, 田中: 金沢大学工学部紀要, Vol. 3, No. 1
- 8) 白井隆: “流動層”, p. 151, 科学技術社
- 9) 杉本益規: 化学工学, 32, 87 (1968)