振動ボールミルの粉碎速度論的研究

桑 原 好 孝*

Yoshitaka KUWAHARA

1. 研究を始めた動機

我々の生活の営みの中に粉碎という操作が取り入れられた歴史は古いが、粉碎という操作に対して科学的な考察が加えられたのは、1867年に Rittinger がいわゆるリッティンガーの粉碎仕事法則を発表したのが初めてであり、以降、多くの研究者が粉碎仕事法則と粉碎粒度分布則に関する研究を発表してきた。しかし、これらの研究はどれも粉碎機をブラックボックスとして取り扱い、粉碎が進行する過程を定性的に説明するにとどまらざるをえなかった。一方、1960年代に入ると、それまでの考え方とは異なる粉碎速度論の研究が活発に行われるようになった。この粉碎速度論はさきの粉碎仕事法則と粉碎粒度分布則とを結びつけた考え方であり、粉碎の進行に伴う粒度分布の推移を数式的に記述する研究である。そして、1970年代以降においては、粉碎速度論の研究が粉碎の研究の主流をなすようになり、粉碎速度論で扱われている選択関数ならびに粉碎分布関数に関する実験的検討を中心に、多くの研究がなされてきている。

近年、各種の工業分野において、比表面積の大きい微細な粉体が広く用いられている。この微細な粉体を製造するために振動ボールミルが利用されるようになってきた。振動ボールミルの粉碎機構は、互いに衝突するボールの間に砕料がかみ込まれることによって個々の砕料粒子がボールから衝撃エネルギーを受けて破碎され、破砕片を生成するものと考えられる。そして、このプロセスが繰り返されることによって振動ボールミル内での砕成物の粒度分布が推移する。このことから、砕料単粒子の衝撃荷重下における破壊特性を明確

にし、振動ボールミル粉碎における選択関数と粉碎分布関数についての実験的、理論的な解析を推進するのが、粉碎過程を定量的に把握するために本質的に重要な研究であると考えた。

2. 主な成果

本研究では既往における粉碎速度論に関する研究の推移、ならびに粉碎機内における粉碎現象の基本的な問題点を考慮し、砕料単粒子の衝撃荷重下での破壊特性に関する実験的検討、振動ボールミル粉碎における選択関数と粉碎分布関数についての実験的検討、そして、粉碎の進行に伴う砕成物の粒度分布の推移についての実験的検討を行い、さらに、これらの実験結果に対して理論的検討を加えた。これらの結果にもとづいて、衝撃荷重下における単粒子の破壊挙動を明らかにするとともに、選択関数と粉碎分布関数についての解析を行い、これらの関数の実験結果を考慮して求めた粉碎速度式により、振動ボールミルの粉碎過程を定量的に明らかにするのを目的とした。

本研究は6章から構成されている。

第1章は、「緒論」であり、本研究の必要性和、これを実施するための研究の方針と内容の概要を述べた。

第2章では、「破壊関数に関する基礎的研究」と題し、振動ボールミル内における粉碎現象を理解するために重要である衝撃荷重下での単粒子の破壊現象を実験的に検討した。

まず、代表的なぜい性砕料としてガラス質球形試験片を選び、粒子径を異にする5種類の試料について静的な圧壊実験を行い、試験片の破壊強度と破壊するまでにたくわえられるひずみエネルギーとの関係を検討して、Hertzの接触応力理論の適合性を確認した。

ついで、試作した重錘落下試験装置を用いて、同一試験片について試験片が破壊するかしないかの破壊限界レベル以下での動的な圧壊実験を行った。この実験

昭和61年4月9日受付

* 工業技術院名古屋工業技術試験所

(〒462 名古屋市北区平手町1)

TEL 052-911-2111 内486

は重錘の材質を4種類に変えて、衝撃エネルギーを変化させた状態で行い、実験結果を整理して衝撃エネルギー(E)と試験片の破壊確率(P_f)との関係について次式の実験式を導くとともに、衝撃エネルギーと試験片に発生する衝撃荷重との間にHertzの接触応力理論が成立することを確かめた。

$$P_f = 1 - \exp[-(E/E_0)^{1.5}] \quad (1)$$

さらに、衝撃実験によって求められた試験片の破壊強度が静的圧壊実験で求めた破壊強度とほぼ等しい値を示し、また、その試験片体積依存性についても両者の結果がよく一致していることを明らかにした。

第3章では、「振動ボールミル粉碎における破壊関数の実験的検討」と題し、選択関数と粉碎分布関数の実験的検討と、粉碎分布関数に関する考察を進めた。

まず、ボールの直径、ならびにボールと媒体のミルへの充てん条件が選択関数と粉碎分布関数に及ぼす影響を実験的に明らかにした。これから、選択関数は碎料の粒子径に比例して増加するが、碎料の粒子径が大きくなると逆に低下する傾向にあること、さらに、碎料の粒子径が細かい領域では、ボールの直径が小さいほど選択関数が大きくなるが、碎料の粒子径が大きい場合には、ボールの直径が大きいほど選択関数が大きくなることを示した。

ついで、破砕片の粒度分布をあらわす粉碎分布関数、 $B(y, y_{max})^a$ 、については、既往の理論をさらに拡張することによって、新しい粉碎分布関数である次式の指数分布式を導出した。

$$B(y, y_{max}) = [1 - \exp\{-\alpha(y/y_{max})\}] / [1 - \exp(-\alpha)] \quad (2)$$

ここで、 α はパラメータである。そして、実験結果に対して式(2)の指数分布式がきわめてよく適合するのを認めた。また、この指数分布式を構成するパラメータ α と選択関数との関係を調べることによって、粉碎されやすい碎料ほど微細な破砕片を生成する傾向にあることを明らかにした。

さらに、選択関数と粉碎分布関数の積で求められる粉碎の推移の確率が粉碎速度をあらわすことから、推移確率に及ぼすミル充てん条件の影響を検討することによって、粉碎速度はボール空間充てん率に反比例する、という結論をえた。

第4章では「振動ボールミル粉碎における選択関数の理論的解析」と題し、粉碎現象を確率過程の現象と

してとらえて、選択関数を解析した。すなわち、i) 互いに衝突する一対のボール間に碎料粒子がかみ込まれる確率(P_n)、ii) かみ込まれた碎料粒子が破壊する確率(P_f)、iii) 上述したi)、ii)の確率事象が単位時間内に生じる数(Z)、の3つの項目により選択関数、 $S(y_{max})^b$ 、を次式の関係であらわした。

$$S(y_{max}) = P_n \cdot P_f \cdot Z \quad (3)$$

そして、以上の3つの項目をそれぞれ解析することによって、振動ボールミル粉碎における選択関数の解を導き、その結果を第3章でえた実験結果と比べて、両者がよく一致することを確認、この章で導いた解が妥当であることを述べた。

まず、振動ボールミルの粉碎機構の根幹をなす、ミル内でのボールの運動をシュミレーション解析し、ボールの衝撃速度(u)および単位時間当りのボールの衝突回数(Z)をミル振幅(a_0)ならびにミル振動数(F)の関数として求めた。

ついで、碎料粒子がボールの間にかみ込まれる確率を、粒子とボールの幾何学的関係から求めた。また、碎料粒子が破壊する確率に関しては、ぜい性破壊における最弱リンク説をもとにして、これを拡張することによって碎料粒子の破壊確率に関する基本的な解を導いた。そして第2章でえた式(1)での結果を考慮し、碎料粒子に衝撃エネルギーが作用したときに粒子に生ずる応力(σ_m)をHertzの接触応力理論に基づいて求め、その碎料粒子の静的破壊強度(σ_f)を基準値として、これら両者をその解に代入することによって碎料粒子の破壊確率を求める式を以下の関係として導いた。

$$P_f = 1 - \exp[-(\sigma_m/\sigma_f)^{2.5}] \quad (4)$$

$$\sigma_m = \frac{2.8}{y_{max}^2} A^{2/5} \left(\frac{5}{2} \frac{\eta E}{k} \right)^{3/5} \quad (5)^c$$

$$A = \frac{2\sqrt{2}}{3} \left(\frac{1 - \nu_p^2}{Y_p} + \frac{1 - \nu_b^2}{Y_b} \right)^{-1} \left(\frac{y_{max}}{y_{max} + d_b} \right)^{1/2} \quad (6)$$

$$E = \frac{1}{2g_c} m_b u^2 \quad (7)$$

$$u = 1.8 a_0 \omega \quad (8)^d$$

そして、以上の式による粒子の破壊確率の計算値と、第2章でえた実験値との比較を行った。その結果の一例も図1に示すが、これより両者がよく一致することを認め、以上に求めた碎料粒子の破壊確率に関する考

a) 粒子径 y_{max} の碎料粒子が粉碎されて粒子径 y 以下の破砕片を生成する割合

b) 粒子径 y_{max} の碎料粒子が単位時間内に粉碎される割合

c) η はエネルギー伝達係数であり、 k は互いに衝突する一対のボール間にかみ込まれる碎料粒子の数である。

d) ミル内でのボールの衝撃速度のシュミレーション解析で導かれた式であり、 $a_0 \omega$ はミルの振動速度である。

察が妥当であることを明らかにした。

さらに、以上の解析結果を総合して、振動ボールミル粉砕の選択関数の解を次式として導出した。

$$S(y_{max}) = \frac{3}{2U} \mu^2 \left(\frac{1 - \epsilon_b}{\epsilon_b} \right) \left(\frac{y_{max}}{d_b} \right) RFP_f \quad (9)^e$$

そして、式(9)による計算結果と、第3章でえた実験結果とを比較した。その結果を図2に示すが、両者はきわめて良好な一致を示しており、本考察が満足すべき内容のものであることを確認した。このようにして、第4章では単粒子破碎の現象から集合粉砕の現象を説明することができる可能性を述べ、また、選択関数の解析を通して振動ボールミルの粉砕機構を理解することをこころみた。

第5章では、「振動ボールミル粉砕の粉砕過程の解析」と題し、粉砕時間に伴う碎成物の粒度分布の推移を粉砕速度式から求め、また、この結果に対して実験的な検討を加えた。

まず、物質収支に基づく粉砕速度式について、第3章でえた選択関数と粉砕分布関数についての実験結果を考慮して解き、その特殊解として従来から経験式として提案されている粉砕の累加法則式と同一の粉砕速度式をえた。

ついで、振動ボールミル粉砕における、粉砕の進行に伴う碎成物の粒度分布の推移を実験的に検討し、この実験結果がさきの解と一致することを示した。そして、粉砕過程を確率過程論的現象であると考えるときに、その粉砕過程にマルコフ性が成り立つことを明らかにした。

図1 粒子の破壊確率に関する解と実測値の相関
 $\left\{ \begin{array}{l} P_f C: \text{解にもとづく計算値} \\ P_f T: \text{(第2章の実験における)実測値} \end{array} \right\}$

e) ここで U は碎料のボール空間充てん率、 μ はボールと碎料との動摩擦係数、 ϵ_b はボール間空けき率、 d_b はボール径、 R はミルの振動に対するボールの跳躍比である。

図2 振動ボールミル粉砕の選択関数の解の実測値に対する適合性
 $(S(y_{max}): \text{選択関数}, y_{max}: \text{粒子径})$

さらに、振動ボールミル粉砕の粉砕速度に及ぼすボール径ならびにミル振幅の影響について実験的な検討を加えた。これにより、セラミックス質ボールを用いた振動ボールミル粉砕においては、ボールの直径が15~20mmの場合が最適な直径であること、ならびに、粉砕速度はミルの振幅の1.5乗に比例することを示した。

第6章は「結論」であり、各章の内容を要約して述べた。

3. 研究を終えて

この研究に着手して約15年、国の一行政研究機関に所属して思いつくままに実験し、あるいは解析して学会発表をさせてもらってきた。その考察は、時として、自ら深い井戸に入り込んで、独善的なところとなっていたのではあるまいか。今回、学位を授与される幸運に浴したが、本論文をまとめる過程で諸先生方から数多くの有益な御教示やご助言をいただいた。そこでの幾多の質問は、本論文内容の一貫性と客観性に関する点であり、正にこれまでの研究姿勢が問われたもので、恐ろしく身の引締る思いをしたのが今でも印象深い。研究年令の折返し点でこの貴重な体験を得ることができたのは、今後の仕事を進める上で大きな収穫であった。

本研究を終えた現在でも、粉砕現象はきわめて複雑である、ということを実感として抱いている。そして、より複雑な現象を追いつめることになるかもしれないが、今後はサブミクロン領域までの微粉砕技術と碎成物の物理的・化学的特性の変化を中心に勉強させていただく考えでいる。

(学位授与、1985年7月東北大学)