粉体層によるぜい性材料の粉碎 — 微粒子製造に与えるフィード粒子径の影響 —

神田良照*, 小山田忠昭*, 中山了至*, 松尾孝之*

The Compressive Crushing of Brittle Materials in a Powder Bed. — The Effect of Feed Size on the Production of Fine Particles —

by

Yoshiteru KANDA[†], Tadaaki OYAMADA[†],
Ryoji NAKAYAMA[†] and Takayuki MATSUO[†]

Roller mills have come to be actively used for the production of fine particles. In this paper, stress conditions in a roller mill were simulated by the slow compression of powder beds between parallel platens, and compressive crushing of brittle materials in powder beds was also carried out to fundamentally study the grinding mechanism of a roller mill. The effect of the feed size on the production of fine particles was investigated when the applied load and the mass of the feed were constant. The crushing energy is defined as the energy input in a powder bed. The specific crushing energy to produce fine particles (the crushing resistance) was experimentally calculated. The samples used were limestone, quartz, and quartz glass.

The following results were obtained :

(1) When the applied load and the mass of feed were constant, the feed size with a minimum deformation of powder beds was observed.

(2) The size distribution of the crushed product changed depending on the kinds of solids, and the difference in the size distributions increased with the decrease in the feed size.

(3) The feed size with the same mass of micronized product was observed and found to have a certain range. This range was enlarged with the decrease in the size of the product.

(4) The specific crushing energy to produce fine particles changed with the kinds of solids and feed size.

(5) Then, in order to produce micronized particles for a higher energy utilization by a roller mill, it is necessary to evaluate the grindability of materials in advance.

Key Words : Powder Bed, Compressive Crushing, Crushing Resistance,
Fine Particles.

1. 緒 言

現在、我が国では、大量の粉粒体が破碎・粉碎処理

平成4年3月12日受付

粉体工学会1991年度秋期研究発表会(199年11月, 東京)にて発表

* 山形大学工学部物質工学科(〒992 米沢市城南4-3-16)
TEL. 0238-22-5181 内線 285

† Dept. of Materials Science and Engineering, Yamagata Univ.
4-3-16, Jonan, Yonezawa 992

されているが、その工程には膨大なエネルギーを必要とするため、省エネルギー化を目的とした研究が盛んに行われている。その一つに粉碎機の見直しが挙げられ、セメント工業におけるクリンカーや石炭の微粉碎には、従来ボールミルが用いられてきたが、近年、ローラーミルが用いられるようになってきている¹⁾。ローラーミルの粉碎機構は、ローラーの回転運動に伴う遠心力、垂直荷重により、ミル壁や円盤上の砕料を圧縮せん断しながら粉碎を行うもので、このような粉碎機

構の基礎となるのが、粉体層の圧縮粉碎である。粉体層の圧縮粉碎とは、自然に充てんした粉体層、すなわち粒子の質量と粒子間の付着力や摩擦力が釣り合った状態の粉体層が、外力を受けることにより最初に粒子の再配列が起こり、その後さらに外力を受けることにより、粒子は変形を経て破壊に至る粉碎過程をいう。

この粉体層の圧縮粉碎に関して、古くは松居ら²⁾の粉碎正味仕事量に関する研究がある。またHanishら³⁾により、粉碎性に与えるプランジャー形状の影響、単一粒子破碎との比較などについて実験および検討が行われている。また著者らは試料フィード質量および粒子径、粉体層に加える荷重を変化させ、粉碎確率やエネルギー効率の点から検討を行い、単位質量の粉碎産物を得るのに必要なエネルギーが小さくなるフィード質量範囲があることを見いだした⁴⁾。さらにフィード粒子径を一定にして、フィード質量、圧縮荷重を変化させて粉碎実験を行い粉碎産物の粒子径分布に与えるフィード質量、圧縮荷重、粉碎確率の影響について実験的検討を行った^{5,6)}。

近年、微粒子製造への関心の高まりと共に粉碎技術もより一層微粉化へと研究が進められている。そこで、本研究では、粉体層の圧縮粉碎によりミクロンオーダーの粉碎産物を得ることを目的として、試料に石灰石、石英、石英ガラスの3種類を用い、試料の微粉碎特性の検討、試料の違いによる微粉碎特性の比較、エネルギー効率についてフィード粒子径を種々変えて粉碎実験を行い比較検討をした。

以下にその結果について報告する。

2. 試料と実験方法

2.1 実験装置

実験に用いた装置は前報⁴⁾と同じである。その実験装置の概略図をFig. 1に、窒化ケイ素製の粉碎装置図をFig. 2に示した。

2.2 実験試料

実験に用いた試料は石灰石、石英、石英ガラスの3種類である。石灰石は塑性的性質を含む試料として⁷⁾、石英は完全弾性体に近い試料として選び⁷⁾、石英ガラスは製造工程が一定であるため標準試料として選んだ。3試料の密度 ρ と、ハードグロブ指数H. G. I. をTable 1に示した。これらの試料をジョークラッシャーと人手により粗砕後、JIS 標準ふるいを用いてロータップふるい振とう機により、Table 2に示した6種類の粒度区間に整粒した。ふるい分け条件は一度おおよその粒度範囲にふるい分けた後、再度、各ふるいに100g程度入れて整粒した。ただし、ロータップふるい振とう機

によるふるい分け時間は、最初が10分、後が5分である。この整粒済みの試料を粉碎実験前日に、湿式手ぶ

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus.

Fig. 2 Crushing apparatus.

Table 1 Properties of samples

Sample	ρ (kg/m ³)	H. G. I. (—)
Quartz	2.62×10^3	37
Limestone	2.70×10^3	73
Quartz glass	2.12×10^3	58

Table 2 Feed size and crushing conditions

Feed size (mesh)	Feed size (μm)
12~ 14	1410~1190
24~ 28	710~ 590
42~ 48	350~ 297
80~100	177~ 149
170~200	88~ 74
325~400	44~ 37

Mass of feed : 18g
Crosshead speed : 0.5mm/min
Applied load : 10^4N

るい法により再度整粒し、乾燥後、実験試料とした。ただしこのときのふるい分け終点は、目測で粒子がふるいを通過しなくなったときとした。

2.3 実験方法

粉碎実験は、臼内に試料を平らに充てんし、昭和測機製のペレット試験機を用い、メーカー表示の一定変位速度0.5mm/minで本試験機の最大荷重である 10^4N を粉体層に加え粉碎実験を行った。圧縮荷重はロードセルを、粉体層の変位はダイヤルゲージを通して指示計に表示し、X-Yレコーダーで記録した。そしてこのとき得られた荷重-変位曲線を図積分し、求められたエネルギーを粉碎エネルギー E と定義した。

また粉碎後、全試料を400mesh(37 μm)までは、試料づくりと同様の湿式手ふるい法でふるい分け、以下20 μm から3 μm までは電磁振動器と超音波洗浄器を併用し、ふるい分け⁹⁾、粒子径分布を求めた。

3. 粉碎実験用試料質量の決定

前報^{5,6)}で述べているように粉碎産物の粒子径分布は粉碎装置内へのフィード質量によって変化するため、最初に粉碎実験用試料質量 M の決定を行う必要がある。試料質量は粒子径分布測定用に十分な粉碎産物が得られれば、できるだけ少ない方がよいが、ここでは試料単位質量当りに消費される粉碎エネルギーの点からも検討した。フィード粒子径を本実験における最大粒子径である12~14mesh(1410~1190 μm)とし、また質量、粉体層に加える荷重を変えて粉碎実験を行った。その結果を石英についてFig. 3に示した。Fig. 3の結果からフィード質量は単位質量当りの粉碎エネルギーが少なくなる18gとした。

4. 結果と考察

4.1 荷重-変位曲線

最初にフィード粒子径による荷重-変位曲線の違いを見るために、Fig. 4に石灰石の測定結果を示した。

Fig. 3 Relationship between specific energy consumption and mass of feed.

図中の数字はフィード粒子径の大きいものから順にならべてある。この図から明らかなように、粉体層に加えた荷重 $P(N)$ が一定の場合、変位量 $\Delta(mm)$ はいったん粒子径の減少に伴い減少するが、粒子径が42~48 mesh(350~297 μm)のところを境にして、さらに粒子径を小さくすると、変位量は増加している。この最小変位量を示すフィード粒子径は、石英では80~100mesh(177~149 μm)、石英ガラスでは170~200mesh(88~74 μm)と違いがあるが、全体として石灰石と同様な傾向を示した。最初のフィード粒子径の減少に伴う変位量の減少は、粒子径が大きいほど強度が低下すること⁹⁾、部分破壊を含めた一個の粒子の破壊の影響が大きく変位量に現れるためによる。このことはフィード粒子径の減少と共に荷重-変位曲線が滑らかになることからわかる。その後のフィード粒子径の減少に伴う変位量の増加は、自然充てんにおける粒子径の減少に伴う空隙の増加も含まれると思われるが、本粉碎装置では、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、粒子径が小さくなるにつれ流動性が良くなり、その結果、変位量が大きくなるのが主な原因と考えられる。しかし、これらの現象についてはフィード粒子径を連続的に変えて実験、測定を行っていないためこの境界粒子径は正確な値とは言えず、重要な意味を持った値とは言えない。

Fig. 4 Load-deformation curve.

Fig. 5 Relationship between crushing energy and feed size.

4.2 粉碎エネルギーのフィード粒子径による変化

Fig. 4に示したように、荷重-変位曲線はフィード粒子径により変化するため、粉碎エネルギー E と粒子径との関係を調べ、Fig. 5に示した。なお、図中の粉碎エネルギーは4～6回の粉碎実験の平均である。図から明かのように3試料とも粉碎エネルギーが低くなるフィード粒子径が存在し、この粒子径は前述した、粉体層の変位量 d が小さくなる粒子径にほぼ対応している。

4.3 粉碎産物の粒子径分布

Fig. 6. (a)に石英ガラスについて、フィード粒子径を変えた場合の粉碎産物の粒子径分布を、ふるい下積算分布 $Q(-)$ で示した。この図よりフィード粒子径が大きくなるに従い、分布はブロードになっており、フィード粒子径が大きいくほど小さい粉碎産物が相対的に多く得られることがわかる。

Fig. 6. (b)には先のFig. 6. (a)の結果を明確にするため、粉碎産物の粒子径 x をフィード粒子径の最大粒子径 x_f で無次元化した粒子径比 $x/x_f(-)$ を横軸に取り、同様にふるい下積算分布 Q を示した。この図よりフィード粒子径が大きいくほど、分布曲線がブロードになる傾向がより明かとなり、粒子径比の小さい粉碎産物が相対的に多く得られることがわかる。これはフィード粒子径が大きいくほど強度が低下し粉碎され易くなるためと考えられる。このことは石英、石灰石の粉碎産物についても同様であった。

次に試料の種類による粉碎産物の粒子径分布の違いを見るために、Fig. 6. (c)にフィード粒子径が12～14mesh(1410～1190 μm)と最も大きい場合と、325～400mesh(44～37 μm)と最も小さい場合について示した。この図よりフィード粒子径が一定の場合でも、試料の違いにより粒子径分布に違いがあり、その差は、

(a) Influence of feed size.

(b) Influence of feed size.

(c) Influence of samples.

Fig. 6 Cumulative size distribution of crushed product.

ここに示さなかった他のフィード粒子径の結果も含めて、フィード粒子径が小さくなるに従い顕著になっていくことがわかる。

4.4 任意粒子径以下の粉碎産物質量のフィード粒子径による変化

以上に示したように、粉碎産物の粒子径分布がフィード粒子径により異なること、またフィード粒子径が

一定でも試料の違いによって、分布曲線に違いがあることから、Fig. 7. (a)には任意の粒子径 x_c 以下の粉碎産物質量 $m_{x,c}$ (g)のフィード粒子径による変化を示した。ここでは代表例として石英ガラスの場合を示した。分級粒子径 x_c (μm)が $10\mu\text{m}$ と大きい場合は、フィード粒子径が24~28mesh($710\sim 590\mu\text{m}$)までは粉碎産物質量は変化しないが、これよりフィード粒子径を小さくすると増加し始める。そして分級粒子径を小さくしていくと、粉碎産物質量に影響を及ぼさない粒子径範囲が広くなっている。以上のような傾向は他の試料についても認められたが、試料によるその違いを見るために、Fig. 7. (b)に分級粒子径 x_c が $10\mu\text{m}$ の場合、Fig. 7. (c)に分級粒子径が $3\mu\text{m}$ の場合を3種類の試料についてそれぞれ示した。分級粒子径が大きい $10\mu\text{m}$ の場合、石灰石

(a) Quartz glass.

(b) Product finer than $10\mu\text{m}$.

(c) Product finer than $3\mu\text{m}$.

Fig. 7 Relationship between mass of product and feed size.

及び石英ガラスでは、フィード粒子径がそれぞれ42~48mesh($350\sim 297\mu\text{m}$), 24~28mesh($710\sim 590\mu\text{m}$)までは、粉碎産物質量はフィード粒子径によらずほぼ一定と見なせるが、フィード粒子径が小さくなると増加を始める。しかし石英の場合は一度減少した後、増加の傾向にある。

また分級粒子径 x_c が $3\mu\text{m}$ の場合は、石灰石は分級粒子径が $10\mu\text{m}$ のときと同様に、フィード粒子径が42~48mesh($350\sim 297\mu\text{m}$)までは粉碎産物質量は一定であり、その後に増加する。そして石英ガラスは、フィード粒子径によらず粉碎産物質量はほぼ一定と見なせ、石英になると、フィード粒子径が大きい程、粉碎産物質量は増加しており興味深い結果となっている。

以上の結果から粉碎産物質量 $m_{x,c}$ は、試料によってフィード粒子径の影響を受けない範囲が存在し、その範囲は試料によって異なる。また同一試料でも分級粒子径 x_c が小さいほど、フィード粒子径の粉碎産物質量に及ぼす影響の無い範囲が広がっている。これらのことから、試料によって微粉碎特性が大きく異なることがわかる。

4.5 任意粒子径以下の粉碎産物を得ためのエネルギー

次に試料の微粉碎特性をより明確にするため、粉碎エネルギー E を考慮し、比較を行った。Fig. 8. (a), (b), (c)に、任意の分級粒子径 x_c 以下の粉碎産物を単位質量 $m_{x,c}$ 得るのに要するエネルギー、すなわち粉碎抵抗 $E/m_{x,c}$ (J/kg)のフィード粒子径による変化をそれぞれの試料について示した。Fig. 8. (a)は石灰石の結果である。石灰石の場合はどの分級粒子径においても、フィード粒子径の減少と共に粉碎抵抗も減少している。これはフィード粒子径の減少は分級粒子径に近づくことでありごく一般的な結果といえる。しかし減少割合は分級粒子径を小さくすると減少していく。

Fig. 8. (b)に示した石英ガラスの場合は、分級粒子径が大きい $10\mu\text{m}$ では、フィード粒子径の減少と共に粉碎抵抗は減少するが、分級粒子径が小さくなるにつれ、粉碎抵抗の減少の割合が少なくなり、分級粒子径 $3\mu\text{m}$ では粉碎抵抗はほぼ一定となり、フィード粒子径の影響を受けなくなる。

これに対してFig. 8. (c)に示した石英の結果は、分級粒子径が $10\mu\text{m}$ と大きい場合は、わずかではあるが他の試料と同様に、フィード粒子径の減少と共に粉碎抵抗も減少している。そして分級粒子径が $5\mu\text{m}$ では、フィード粒子径によらず粉碎抵抗はほぼ一定であり、分級粒子径がさらに小さい $3\mu\text{m}$ では、フィード粒子径が減少するにつれ、粉碎抵抗は増大している。以上の

(a) Limestone.

(b) Quartz glass.

(c) Quartz.

Fig. 8 Effect of feed size on crushing resistance.

ように粉碎抵抗の分級粒子径による変化は試料の種類により著しく異なるため、その違いを明確にするため分級粒子径が10および3 μ mの結果について比較した。

Fig. 9. (a) には分級粒子径が10 μ mの結果を示した。石灰石、石英ガラス、石英ともフィード粒子径の減少と共に粉碎抵抗も減少しており、これはフィード粒子径が小さくなるほど分級粒子径に近づくことから説明できる。

次に**Fig. 9. (b)** に分級粒子径が小さい3 μ mの場合を比較した。石灰石はフィード粒子径が小さくなるに従い、粉碎抵抗も減少するが、石英ガラスの場合はほぼ変化せず、そして石英の場合は、フィード粒子径が小さくなるにつれ、粉碎抵抗は逆に増加している。すなわち石英については粉体層の圧縮粉碎により粒子径5 μ m以下(**Fig. 8. (c)** 参照)の微粒子を得るためにはフィード粒子径を大きくした方が、エネルギー効率が良

(a) Product finer than 10 μ m.

(b) Product finer than 3 μ m.

Fig. 9 Effect of feed size on crushing resistance.

いことがわかる。他の石英ガラス、石灰石についても粉碎抵抗のフィード粒子径による減少割合を**Fig. 8.**

(a), (b) に示したように分級粒子径の減少と共に減少するため、分級粒子径を1, 0.5 μ mとさらに小さくしていくと**Fig. 8. (c)** に示した石英と同様な結果が得られることが予想される。以上のことは非常に興味のあることであり、今後実験検討する必要がある。

Fig. 8. (c) に示したように、あるいは**Fig. 8. (a), (b)** から予想されるように、ミクロンオーダー以下の粉碎産物を得たい場合、エネルギー効率が良くなるフィード粒子径が存在し、あるいは存在が予想され、またそのフィード粒子径は試料の種類によって異なることがわかった。

5. 結 言

ローラーミルの基礎的研究として、ミクロンオーダー以下の粉碎産物を得ることを目的とし、石灰石、石英、石英ガラスの3種類の試料を用い、フィード粒子径を変えて粉体層の圧縮粉碎を行った。そして以下の結果を得た。

(1) 荷重-変位曲線については、粉体層に加える荷重が一定の場合、フィード粒子径が小さくなると変位量は減少する。しかしある粒子径を境に変位量は増加

を始める。

(2) 粉碎産物の粒子径分布は試料の種類により異なり、この差はフィード粒子径が小さくなると著しくなる。

(3) 任意粒子径以下の粉碎産物質量に影響を及ぼさないフィード粒子径範囲が存在し、その範囲は試料の種類によって異なるが、分級粒子径が小さくなると広がる。

(4) 任意粒子径以下の粉碎産物を単位質量得るための粉碎エネルギー、すなわち粉碎抵抗は分級粒子径が大きい場合は、フィード粒子径の減少にともない減少するが、分級粒子径が小さくなると、フィード粒子径

の影響を受けなくなる分級粒子径が存在し、この粒子径は試料の種類によって異なる。また石英においては逆に粉碎抵抗がフィード粒子径の減少に伴って増加する分級粒子径が認められ、他の試料についても同様な粒子径の存在が予想される。以上のことから、粉体層の圧縮粉碎によってミクロンオーダー以下の粒子を効率的に得たい場合、分級粒子径により適したフィード粒子径が存在し、このフィード粒子径は試料の種類により異なるため、扱う砕料の微粉碎特性を正しく把握する必要がある。

〔謝辞〕 最後に、本研究に対して御協力いただいた株式会社栗本鉄工所に感謝の意を表します。

Nomenclature

E	: energy	(J)	P	: load	(N)
E/M	: specific energy consumption	(J/kg)	Q	: mass fraction of undersize	(-)
E/m_{x-c}	: crushing resistance	(J/kg)	x	: particle size	(μm)
H. G. I.	: Hardgrove Grindability Index	(-)	x_c	: cut size	(μm)
M	: mass of feed	(g), (kg)	x_f	: maximum size in feed	(μm)
m	: mass of product	(g), (kg)	Δ	: deformation	(mm)
m_{x-c}	: mass of product finer than size x_c	(g), (kg)	ρ	: density	(kg/m ³)

References

- 1) Kagaku Kogaku Kyokai : "Funryutai Kougaku" p. 36, Maki Shoten(1985)
- 2) Matsui, K., T. Sekiguchi and H. Ikahata : *Kagaku Kogaku*, 35, 788(1971)
- 3) Hanish, J. and H. Schubert : 15th. Int. Conf. of Mineral Processing, Cannes, Tome 1, 201(1985-6)
- 4) Kanda, Y., S. Takahashi, Y. Hata and T. Honma : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 25, 292(1988)
- 5) Kanda, Y., S. Takahashi and N. Sakaguti : *Powder Technol.*, 63, 221(1990)
- 6) Kanda, Y., M. Hasegawa, T. Oyamada and S. Sato : Proc. of 2nd. W. C. P. T., p. 297, Kyoto(1990-9)
- 7) Yashima, S., F. Saito, T. Sagawa, T. Numata, S. Sano and K. Kuwahara : *J. Min. Inst., Japan*, 91, 535(1975)
- 8) Kanda, Y., Y. Abe and T. Hosoya : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 24, 81(1987)
- 9) Yashima, S. and S. Saito : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, 16, 174(1979)