

|           |  |
|-----------|--|
| 氏名        | 桑原好孝   |
| 授与学位      | 工学博士   |
| 学位授与年月日   | 昭和 60 年 7 月 10 日                                       |
| 学位授与の根拠法規 | 学位規則第 5 条第 2 項   |
| 最終学歴      | 昭和 40 年 3 月<br>名城大学理工学部機械工学科卒業                         |
| 学位論文題目    | 振動ボールミルの粉碎速度論的研究                                       |
| 論文審査委員    | 東北大学教授 八嶋 三郎 東北大学教授 川島 俊夫<br>東北大学教授 大谷 茂盛 東北大学助教授 千田 侑 |

## 論文内容要旨

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 Rittinger がいわゆる Rittinger のエネルギー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エネルギー則と砕成物の粒度分布関数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エネルギーに関する法則と砕成物の粒度分布関数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理論的な研究である。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、従来から一般に回転円筒式ボールミルあるいは振動ボールミルが使用されてきている。振動ボールミルは、回転円筒式ボールミルに比べると、粉碎速度が大で装置を小型にできる、という特長をもち、さらには、振動ボールミルによってえられる砕成物の特性が、その後のプロセスにより有効に作用することが明らかとなってきて、最近では微粉をえるため振動ボールミルが広く利用されるようになってきた。

振動ボールミルの粉砕機構は、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破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、振動ボールミル粉砕における選択関数と分布関数という2つの破壊関数についての実験的、理論的な解析を推進するのが、振動ボールミルの粉砕過程を定量的には握するために本質的に重要な研究であることを示唆している。

そこで、本研究では既往における粉砕速度論に関する研究の推移、ならびに粉砕機内における粉砕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、振動ボールミル粉砕における選択関数と分布関数についての実験的検討、そして、粉砕の進行に伴う破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、選択関数と分布関数についての解析を行い、これらの破壊関数の実験結果をも考慮して求めた粉砕速度式により、振動ボールミルの粉砕過程を定量的に明らかにしようとするのが目的である。

本研究は6章から構成されている。

第1章では、振動ボールミル粉砕における粉砕現象を解析する手法としての粉砕速度論について述べ、さらに、本研究の必要性と、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、振動ボールミル内における粉砕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調べた。

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と試験片の破壊確率との関係について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。

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。この第2章では、これ以降の章において選択関数の理論的解析を進める上で必要な結論を導いた。

第3章では、振動ボールミル粉砕における選択関数と分布関数の実験的検討と、分布関数に関する考察を進めた。この結果から、単位時間当りに砕料が粉砕される確率、ならびに粉砕によって生じる破成物の粒度分布を求め、両者の関係から振動ボールミルの粉砕現象を定量的には握ることができた。

まず、ボールの直径、ならびにボールと媒体のミルへの充填条件が選択関数と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、破碎片の粒度分布をあらわす分布関数については、既往の理論をさらに拡張することによって、新しい分布関数である指数分布式を導出した。そして、分布関数についての実験結果に対して、こ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碎片を生成する、という傾向を明らかにすることができた。

さらに、選択関数と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填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填率に反比例する、という結論をえた。この結論は、粉碎エネルギー法則の研究でえられている既往の実験結果とよく一致するものであり、粉碎速度論による新しい概念によっても、従来からの粉碎エネルギー法則に基づく説明と同様に、よく実験結果を説明できることを明らかにした。

第4章では、振動ボールミル粉碎に関する選択関数について理論的解析を行った。粉碎現象を確率過程的現象としてとらえれば、選択関数を、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、ii)かみ込まれた碎料粒子が破壊する確率、iii)上述したi)、ii)の確率事象が単位時間内に生じる数、の3つの項目によってあらわすことができる。そこでこの章では、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章で得た実験結果と比べて、両者がよく一致することを確かめ、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ミュレーション解析し、ボールの衝撃速度および単位時間当りのボールの衝突回数をミル振幅ならびにミル振動数の関数として求めた。そして、このシミュレーションの結果を既往の研究報告の結果と比較し、解析結果が妥当であることを述べた。

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章でえられた結果を考慮し、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導いた。そして、こ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い、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、振動ボールミル粉碎の選択関数の解を求め、これによる計算結果と、第3章でえた実験結果とを比べて、両者がきわめて良い一致を示すことを明らかにした。

このようにして、第4章では単粒子破碎の現象から集合破碎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破碎機構を理解することをこころみた。

第5章では、振動ボールミル破碎の場合の破碎時間に伴う碎成物の粒度分布の推移を破碎速度式から求め、また、この結果に対して実験的な検討を加えた。さらに、振動ボールミル破碎の破碎速度に及ぼすボールの径とミルの振幅の影響を実験的に検討し、振動ボールミルの破碎特性を明らかにした。

まず、物質収支に基づく破碎速度式について、第3章でえた選択関数と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破碎の累加法則式と同一の破碎速度式をえた。これより、従来からの経験則を破碎速度論の立場から説明づけることができた。

ついで、振動ボールミル破碎における、破碎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、破碎過程を確率過程論的現象であると考えるときに、その破碎過程にマルコフ性が成り立つことを明らかにした。

さらに、振動ボールミル破碎の破碎速度に及ぼすボールの径ならびにミルの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破碎においては、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、破碎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。

## 審査結果の要旨

近時、振動ボールミルによる粉碎は微粒子を製造するための有効な方法の1つとして、多くの工業の分野で用いられるようになった。しかし、回転型ボールミルに比べるとその歴史は短く、粉碎現象の基礎的な解明がおこなわれている現状にある。

本研究は粉碎速度論を振動ボールミルの粉碎過程に適用し、粉碎機構を解析すると共に最適操作条件を明らかにした研究成果をまとめたもので、全編6章より成る。

第1章は緒論であり、既往の研究を概観すると共に、本研究の意義と目的を述べている。

第2章では、ミル内における粉碎現象の基礎となる単一粒子の破壊挙動をガラスの小球を試料として衝撃荷重下で調べた結果を述べている。粒子に外部から加えられるエネルギーと、それによって生ずる荷重の間にはヘルツの接触理論が成立することを確かめ、粒子が破壊する確率に関する実験式を導いて、これらの結果が以降の章で選択関数を求めるために必要であると述べている。

第3章では、粉碎速度式を構成する選択関数と分布関数に、数種の砕料を用いて実験的検討を加えた結果を述べている。選択関数の値は特定の粒子径において最大値を示す傾向にあり、分布関数については、理論的に導いた指数分布式が分布関数としてよく成立することを実験結果を用いて確かめている。

第4章では、選択関数を理論的に解析した結果を述べている。選択関数はミル内で互いに衝突するボールの間に砕料粒子がかみ込まれる確率と、その粒子が破壊する確率と、単位時間内にこれらの確率事象が発生する数の積で表されるものと考えて、粒子が破壊する確率の計算値が第2章で求めた実験結果とよく一致することを確認した。この結果を用いて選択関数の理論的解を求め、第3章で求めた実験結果と比較すると両者はよく一致し、その解が妥当であることを述べている。この結果は振動ボールミルの最適操作要因を求めることを可能にしたもので、著者が明らかにした重要な成果の1つである。

第5章では、以上で求めた選択関数と分布関数を用いた粉碎速度式を導き、ミルによる砕成物の粒度分布の粉碎時間による変化を測定した結果を用いて、この粉碎速度式が実際の振動ボールミルの粉碎過程をよく表すことを述べている。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、振動ボールミルの粉碎過程を表す粉碎速度式を理論的に導き、これに実験的検討を加えて、粉碎機構を解明すると共に最適操作条件を明確にしたものであり、その成果は鉱物処理工学ならびに粉体工学とその工業に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。