

離散要素法シミュレーション によるボールミルの設計手法

住友化学(株) 生産技術センター
木村 真喜男
鳴海 雅之
児林 智成

Design Method of Ball Mill by Discrete Element Method

Sumitomo Chemical Co., Ltd.
Process & Production Technology Center
Makio KIMURA
Masayuki NARUMI
Tomonari KOBAYASHI

The grinding rate of gibbsite in tumbling and rocking ball mills using fins was well correlated with the specific impact energy of the balls calculated from Discrete Element Method simulation.

This relationship was successfully used for the scale-up of a rocking ball mill, and the optimum design and operating conditions for the rocking ball mill could be estimated by the specific impact energy of the balls calculated by a computer simulation.

はじめに

近年、表示材料、エネルギー、自動車、半導体など様々な分野において、機能性無機材料の需要が拡大している。この無機材料の性能は上記分野の製品性能に大きく影響するため、様々な組成や製造方法を検討し最適な製造条件をいかに確立するかが課題となっている。機能性無機材料を製造するに当り、重要な単位操作として「粉碎」が挙げられる。粉碎操作は単に物を砕くだけでなく、混合、輸送、物質・熱移動の促進、有価物回収のための前処理、機能発現などを目的として活用されている。

粉碎機の一つであるボールミルは、容器の中にボールと砕料（粉碎したい原料）を入れ、その容器を運動させることによって粉碎を行う装置である。構造が単純で操作が容易であるため幅広く利用されている。

しかしながら、その装置設計や条件選定の手法は経験的な知見に依存する点が多く、十分体系化されていない。そのためスケールアップが必ずしも容易ではなく、データ採取に多大な労力とコストを要してしまう。

一方、近年のコンピュータの高性能化に伴った計算技術の向上によって、さまざまな分野においてコンピュータシミュレーションによる解析が可能となっている。粉体工学の分野においても、粒子群の運動を対象としたシミュレーション法がCundall¹⁾らによって提案され、さまざまな現象解析に適用されて大きな成果を挙げている。この手法は離散要素法 (DEM : Discrete Element Method) と呼ばれ、個々の粒子運動を運動方程式に基づいて時々刻々追跡する手法である。離散要素法を用いたミル内ボール運動に関する研究はMishra²⁾、柳³⁾などによって提案され、現在までに三次元解析や複雑なライナー形状をしたシミュレーション解析^{4), 5)}、ミルの消費電力に関する研究^{6), 7)}なども報告されている。

しかしこれらはいずれもミル内のボールのみの運動を対象とした研究である。実際の粉碎においては、ボールのみがミルに入っているわけではなく、砕料も共存する。より正確に粉碎挙動をシミュレーションするためには砕料の動きもシミュレーションしなければならないが、砕料の粒子個数は膨大であるため砕料を含むすべての粒子を時々刻々追跡するのは現

在のコンピュータ性能をもってしても不可能である。したがって碎料の存在をモデル化してシミュレーションに導入しなければならない。実験で碎料共存下のボール運動を観察すると、ボール表面は碎料で被覆された状態になり、あたかも碎料被覆ボール群がミル内を運動しているように見える。そこで、加納ら⁸⁾は、ボールの摩擦係数を変化させてシミュレーションを実施し、摩擦係数のボール運動への影響が大きいことを見出し、この結果から、それぞれの碎料に対して適切な摩擦係数を選択すればボール運動を精度良く再現できると報告している。

また、ボール運動のシミュレーションから得られる情報として、ボールの衝突回数、運動エネルギー、ボール間接触力、ボールの運動軌跡等が挙げられる。これらの情報は粉碎過程における碎料の特性変化を左右する重要な因子である。加納ら⁸⁾は、それらの中でも粉碎に大きな影響を及ぼしているのが、ボールの衝突エネルギーであることを見出した。

我々は、粉碎時に碎料が容器へ付着凝固するのを防止するために、揺動ミル（容器を自転させつつ揺動させるボールミル）を使用しており、そのスケールアップ検討を行っていたが、前述の通りデータ採取に苦勞を要していた。そこで離散要素法に着目し、揺動ミルのシミュレーションによるスケールアップ法の確立を目的とし、東北大学齋藤教授および加納講師との共同研究を行った。

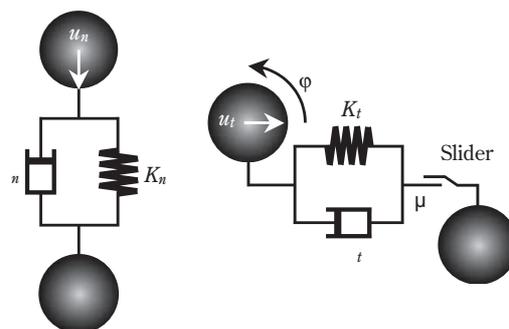
本稿では、離散要素法によるシミュレーション解析と実験検討の組み合わせにより、羽根板を有する転動ミルおよび揺動ミル内での粉碎現象を予測した結果および、それらのスケールアップ手法やボールミル設計条件の最適化手法について紹介する。

シミュレーション

1. 離散要素法シミュレーション

離散要素法は、互いに接触した粒子間に働く弾性反発力や摩擦力などの接触力をモデル化し、接触力が作用する個々の粒子の運動を、それぞれの運動方程式を基にして、数値解析する方法である。ボールミル内において、2つのボールあるいはボールとミル壁との衝突は、Fig. 1に示すように物体の持つ弾性的および非弾性的性質を接触点間に挿入した弾性スプリング（弾性定数 K ）と粘性ダッシュポット（粘性係数 μ ）で表現するVoigtモデルで表される。ただし、ボールの接触到付随する摩擦相互作用を表すために相互作用力の接線成分に摩擦スライダ（摩擦係数 μ ）が挿入されている。

ボール間接触力は法線方向圧縮力（ F_n ）および接線方向せん断力（ F_t ）として次式で与えられる。



(a) Compressive force

(b) Shear force

Fig. 1 Model of interactive forces between two balls

$$F_n = K_n \Delta u_n + \mu_n \frac{\Delta u_n}{\Delta t} \quad (\text{Eq. 1})$$

$$F_t = \min \left\{ \mu F_n, K_t \Delta (u_t + r\phi) + \mu_t \frac{\Delta (u_t + r\phi)}{\Delta t} \right\} \quad (\text{Eq. 2})$$

ここで、 u 、 ϕ はそれぞれ着目した二粒子間の相対変位、相対回転変位であり、 K 、 μ 、 r は、バネ定数、粘性係数、摩擦係数、粒子半径を表す。

法線方向の弾性係数 K_n は、Hertzの弾性接触理論により、ボールおよびミル壁のヤング率 E 、ポアソン比の値を用いて次式で与えられる。添字 i 、 j および w は、それぞれボール i 、 j およびミル壁を表す。

$$K_{nij} = \frac{4}{3} \left[\frac{1}{i+j} \right] \sqrt{\frac{r_i r_j}{r_i + r_j}} \quad (\text{Eq. 3})$$

$$K_{niw} = \frac{4}{3} \sqrt{r_i} \frac{1}{i+w} \quad (\text{Eq. 4})$$

$$i = \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} \quad (\text{Eq. 5})$$

$$j = \frac{1 - \nu_j^2}{E_j} \quad (\text{Eq. 6})$$

$$w = \frac{1 - \nu_w^2}{E_w} \quad (\text{Eq. 7})$$

接線方向の弾性係数 K_s は物質のせん断率とヤング率の関係を表す（Eq. 8）に示すラメ定数の定義式に基づいて得ることができる。

$$K_s = \frac{K_n}{2(1 + \nu)} \quad (\text{Eq. 8})$$

また、弾性スプリングと粘性ダッシュポットを有する一自由度の振動方程式において、もっとも減衰が速いのは、

$$= 2\sqrt{m \cdot K} \quad (\text{Eq. 9})$$

のときである。Cundall¹⁾は、この決定にあたり、要素間の衝突によって生じる跳ね返り現象を出来るだけ

速やかに減衰させる (Eq. 9) の関係を考慮することを提案しており、本シミュレーションでも同決定法を採用した。

今回の計算に用いた物理定数を Table 1 に示す。

Table 1 Physical properties for DEM simulation

Young's modulus	[Pa]	3.5×10^8
Poisson's ratio	[-]	0.23
Frictional coefficient	[-]	0.8
Density of balls	[kg/m ³]	3452
Time step	[μs]	10.0

ボールミル内の離散要素法シミュレーションにおいては、ボールの摩擦係数が最も重要な因子であり、ヤング率およびポアソン比から算出される弾性係数および粘性係数はボール運動に大きな影響を及ぼさないことが報告されている⁹⁾。摩擦係数については、砕料との間に相関性があり、水酸化アルミニウムの場合はおおむね0.3 ~ 0.8である⁸⁾と報告されていることからここでは0.8とした。

2. ボールの衝突エネルギー

離散要素法によるシミュレーションによって、ボールの衝突回数、運動エネルギー、ボール間接触力、ボールの運動軌跡等ミル内ボールの運動情報を時間的、空間的に任意に得ることができる。加納ら⁸⁾は、前述の通りその中でも粉碎に大きな影響を及ぼしているのが、(Eq. 10) で定義されるボールの衝突エネルギー (E_w) であることを見出した。

$$E_w = \frac{1}{W} \sum_{j=1}^n \frac{1}{2} m_j v_j^2 \quad (\text{Eq. 10})$$

ここで、 W は砕料重量、 n は衝突回数、 m はボールの質量、 v_j は他のボールまたは壁面と衝突する時の相対速度である。

実験方法

砕料には水酸化アルミニウム ($\text{Al}(\text{OH})_3$ 、平均粒子径 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ 、住友化学(株)、CHP-340S) を使用した。

Fig. 2には、本研究で用いた揺動ミル(愛知電機(株)製)の概略を示す。揺動ミルは、一般的な転動ミルの転動回転軸とそれに直交する揺動回転軸を有しており、容器を自転させつつ揺動させることが可能な粉碎装置である。ミル内部には三枚の羽根板(フィン)が設置されており、ポット容積が60Lおよび300Lの二種類のミルを使用した。

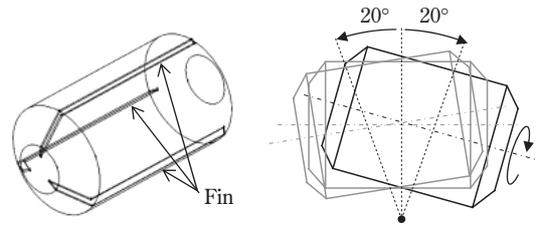


Fig. 2 Schematic diagram of the rocking ball mill

ミル内には直径15mmのナイロン被覆鉄球を充填し、ミルの回転速度 N は(Eq. 11)で定義される臨界回転速度 N_c を基準とし、その40% ~ 100%の範囲で変化させた。臨界回転速度 N_c とは、遠心力によりボールがミル内壁に張り付いて共廻りする時の限界速度である。

$$N_c = \frac{60}{\pi} \sqrt{\frac{g}{2D_m}} \quad (\text{Eq. 11})$$

ここで、 D_m はミルの内径、 g は重力加速度である。

粉碎は180分間行った。その間の特定時間にミルを停止して少量サンプリングを実施し、砕料の粒子径を測定した。砕料の粒子径はマスターサイザー2000(シスメックス(株)製)で測定した。実験の詳細条件はTable 2に示す。

Table 2 Mill configuration and experimental conditions

		60L mill	300L mill
Pot diameter	[mm]	344	590
Pot depth	[mm]	690	1185
Height of fin	[mm]	20	40
Swing speed	[spm]*	12	12
Critical rotational speed	[rpm]	72	55
Number of balls	[-]	7870	39120
Weight of gibbsite	[kg]	10.2	51

* spm : frequency of swing per minute

結果および考察

1. ミル内ボール挙動に及ぼす羽根板の影響について
離散要素法を用いてボールミル粉碎挙動を予測するためには、まず実際のミル内ボール挙動をシミュレーションで再現する必要がある。

加納ら⁸⁾は、羽根板を有しない転動ボールミルにおける砕料共存下のボール挙動が、適切なボールの摩擦係数を与えてシミュレーションを行うことによって再現できることを明らかにしている。その適切な摩擦係数は、ボールのみの場合は0.17、水酸化アルミ

ニウム共存下の場合はおおむね0.3～0.8の範囲であることが示されている。

本稿では、ボールの摩擦係数を0.15～0.8の範囲で変化させてシミュレーションを行い、その結果得られるボールの衝突エネルギーを比較することによって、ボール挙動に及ぼす摩擦係数の影響を確認した。羽根板がない60L転動ミルの場合の摩擦係数とボールの衝突エネルギーの関係を図. 3に、羽根板を有する60L転動ミルの場合を図. 4に示す。

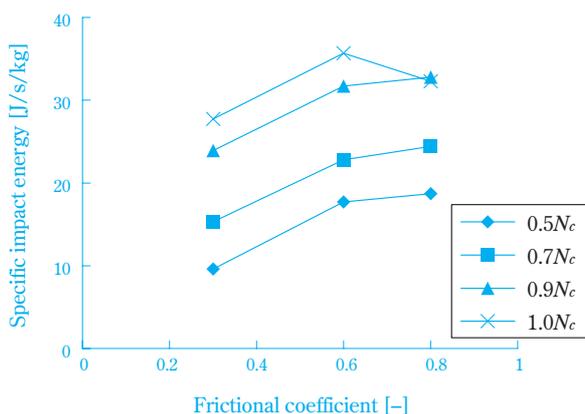


Fig. 3 Relation between specific impact energy and frictional coefficient of 60L tumbling mill without fin

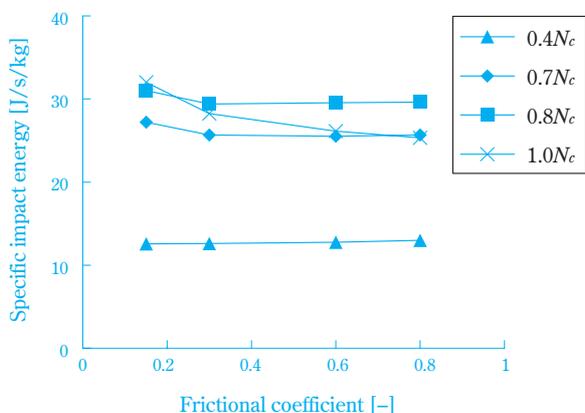


Fig. 4 Relation between specific impact energy and frictional coefficient of 60L tumbling mill with fin

羽根板がない場合、摩擦係数が変化すると衝突エネルギーも大きく変化していることがわかる。一方、羽根板を有する場合は転動回転数が1.0N_cの場合に摩擦係数が変化すると衝突エネルギーも変化していく傾向がみられるものの、転動回転数0.8N_c以下の場合にはほぼ同じ衝突エネルギーの値となっていることがわかる。羽根板のないミルの場合、摩擦係数が変化するとミル壁との摩擦によって持ち上げられるボ-

ールの高さも変化するため、同じ転動回転数であってもボールの挙動に違いが現れる。しかし羽根板が設置されたミルの場合、ボールは羽根板によって持ち上げられることになるため、摩擦係数の影響は極めて小さくなると考えられる。以上のことから、羽根板を有する転動ミルの場合、臨界回転数より小さな転動回転数においては碎料の有無にかかわらずミル内ボール挙動はほぼ同じになると考えられる。

そこで、羽根板を有するミル内ボール運動の可視化観察実験を行いシミュレーション結果との比較を行った。Table 3には転動ミルの結果を、Table 4には揺動ミルの結果を示した。

本実験では、可視化観察を可能にするためミル蓋として透明アクリル板を用い、ミル始動後ボール運動が十分に安定したところで、転動回転数0.4N_c～1.0N_cの条件におけるボール運動をビデオカメラで撮影した。碎料を投入すると、透明アクリル板に碎料が付着してミル内ボール挙動の可視化が困難となるため、ここではボールのみ充填した場合の結果を示している。一方、シミュレーションは摩擦係数を0.8

Table 3 Snapshots of the motion of balls in the tumbling mill (Experiment and DEM simulation results)

	Experiment	Simulation
0.4N _c		
0.6N _c		
0.8N _c		
1.0N _c		

Table 4 Snapshots of the motion of balls in the rocking mill (Experiment and DEM simulation results)

0.4N _c		0.6N _c		0.8N _c		1.0N _c	
Experiment	Simulation	Experiment	Simulation	Experiment	Simulation	Experiment	Simulation

として実施した結果を示している。その結果、いずれの条件においてもミル内ボール挙動は、シミュレーション結果と良好に一致しており、ボール挙動をシミュレーションで再現できることが確認できた。

2. 粉砕速度定数と転動回転数の関係

Fig. 5に60L転動ミルにおける転動回転数を変化させて粉砕実験を行ったときの砕料粒径比 (D_t/D_0) の時間変化を示す。ここで、 D_0 は初期平均粒子径、 D_t は t 秒粉砕後の平均粒子径である。粒径比は時間とともに指数関数的に減少していることがわかる。この過程は実線で示されているように (Eq. 12) で近似できる。

$$\frac{D_0 - D_t}{D_0 - D_l} = \exp(-K_p t^{0.5}) \quad (\text{Eq. 12})$$

ここで K_p を粉砕速度定数と定義する。また D_l は粉砕限界粒子径を表し、実測値より $D_t/D_0 = 0.135$ とした。

同様に、60L揺動ミルにおける砕料粒径比 (D_t/D_0) の時間変化をFig. 6に示す。

Fig. 7に、(Eq. 12) で定義される粉砕速度定数と転動回転速度比 (N/N_c) の関係を示す。0.8N_c以下の転動回転数においては、転動ミルおよび揺動ミルの粉

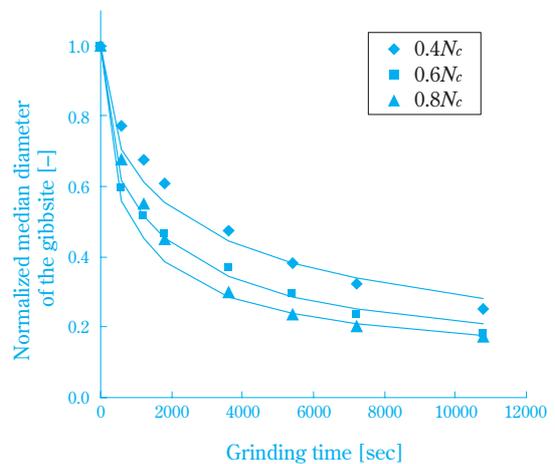


Fig. 5 Relation between normalized median diameter of the gibbsite and grinding time at 60L tumbling mill

砕速度はほぼ同じ値を示していることがわかる。また揺動ミルにおいて、粉砕速度定数はミルの転動回転数の上昇とともに増加し、転動回転数が1.0N_cになると急激に減少するという傾向が見られた。これは、転動回転数の上昇に伴ってボールの運動が激しくなり粉砕が進行するが、転動回転数が1.0N_cに達すると

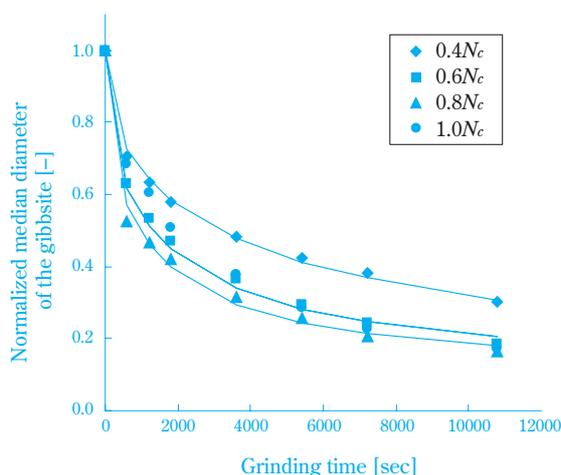


Fig. 6 Relation between normalized median diameter of the gibbsite and grinding time at 60L rocking mill

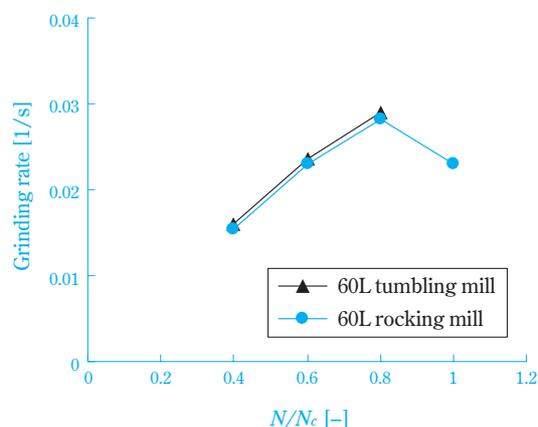


Fig. 7 Relation between grinding rate and relative rotational speed

遠心力の影響でボールが壁面に張り付く共廻り状態となってボール間の衝突が著しく減少するため、粉碎速度定数が急激に減少したと考えられる。

3. ボールの衝突エネルギーと転動回転数の関係

Fig. 8にシミュレーション結果より算出されたボールの衝突エネルギー (E_w) と転動回転速度比 (N/N_c) の関係を示す。転動ミルの場合は $0.8N_c$ 付近で極大値を示し、揺動ミルの場合は、 $1.0N_c$ 付近で極大値を示す傾向にあることがわかる。この理由は、粉碎速度定数と転動回転速度比の関係と同様、転動回転数の上昇とともにボールの運動が激しくなるため、それによってボールの衝突エネルギーも大きくなると考えられる。そして、転動回転数が $1.0N_c$ 付近になると遠心力によってボールが共廻り状態となりボール間の衝突が著しく減少するため、ボールの衝突エネルギーも減少すると考えられる。

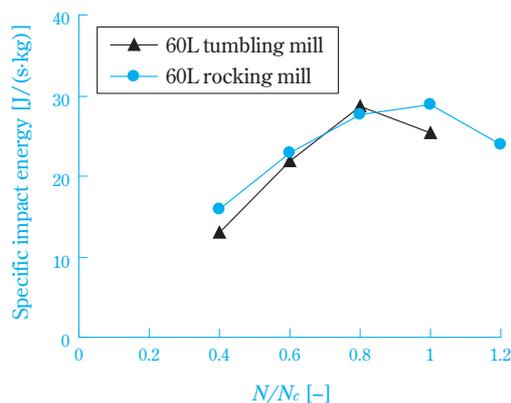


Fig. 8 Relation between specific impact energy and relative rotational speed

4. 粉碎速度定数とボールの衝突エネルギーの関係

粉碎速度定数とミルの転動回転速度比の関係 (Fig. 7) ならびに離散要素法を用いて粉碎実験と同様の条件下でボール運動をシミュレーションして算出したボールの衝突エネルギーとミルの転動回転速度比の関係 (Fig. 8) を比較すると、臨界回転数より小さな回転数においてはおおむね類似した傾向となっていることがわかる。

そこで、臨界回転数より低い回転数における粉碎速度定数と、シミュレーションによって求めたボールの衝突エネルギーの関係をFig. 9に示す。

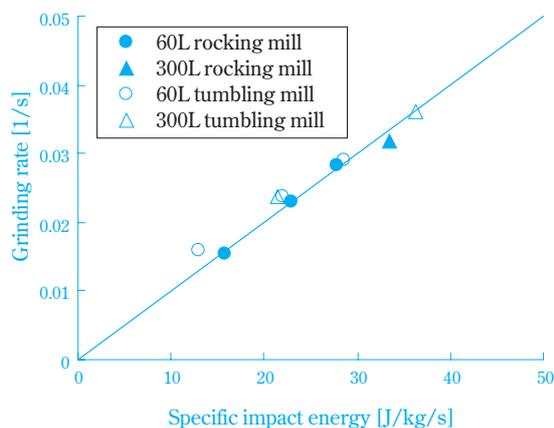


Fig. 9 Relation between grinding rate and specific impact energy

この図中には、300L転動ミルおよび300L揺動ミルにおける粉碎速度定数およびボールの衝突エネルギーの結果も合わせてプロットした。

プロットした点には良好な相関関係が認められ、この関係はミル容量および揺動の有無にかかわらず成立していることがわかる。

この関係を用いれば、離散要素法シミュレーションによりボールの衝突エネルギーを求めることで粉碎速度定数が求まり、(Eq. 12) にその粉碎速度定数の値を代入することで実際の粉碎における平均粒子径の時間変化を予測することが可能になる。

5. 転動ミルおよび揺動ミルのスケールアップ手法

Fig.9より、実験によって求められる粉碎速度定数とシミュレーションによって算出されるボールの衝突エネルギーとの間には、ミル容量および揺動の有無にかかわらず相関関係が認められることから、この関係を用いて転動ミルおよび揺動ミルのスケールアップを行うことが可能となる。

その手順を以下に示す。

- ① 最適なボールの摩擦係数を設定し、実際のボール挙動をシミュレーションで再現する。
- ② 小スケールの転動ミルにおいて、碎料の種類ごとに数回の実験とシミュレーションを行う。
- ③ 碎料の種類に応じた粉碎速度定数とボールの衝突エネルギーの相関関係を求める。
- ④ スケールアップした転動ミルもしくは揺動ミルのシミュレーションを行って、ボールの衝突エネルギーを算出する。
- ⑤ ③の相関関係を用いて揺動ミル粉碎時の粉碎速度定数を予測する。

以上のような実験とシミュレーションを組み合わせたスケールアップ手法を用いれば、これまで試行錯誤的に行ってきた実験の回数を最小限に抑えることが可能となり、スケールアップ検討に要する労力とコストの削減に貢献できる。

6. ボールミル設計条件の最適化手法

シミュレーションであればミル形状等さまざまな条件を自在に変化させることが可能となる。さまざまな条件でシミュレーションを行い、その結果算出されるボールの衝突エネルギーを比較することにより、転動ミルおよび揺動ミル設計条件の最適化を行うことも可能となる。ここでは60L転動ミルにおいてボール径および羽根板高さの影響について検討した例を示す。

(1) ボール径の影響

Fig. 10に転動回転数 $0.8N_c$ におけるボール径とボールの衝突エネルギーの関係を示した。ボール個数はボール重量が等しくなるように設定し (Table 5)、碎料量は10.2kgで一定とした。

ボールの衝突エネルギーは径の小さなボールの方が大きくなる傾向となっており、粉碎速度定数も同様の傾向を示すと推測される。ボール重量および碎

料量を一定とした条件においては、ボール径が小さくなるほど粒子個数が増えて衝突回数が増加するため、このような傾向になると考えられる。

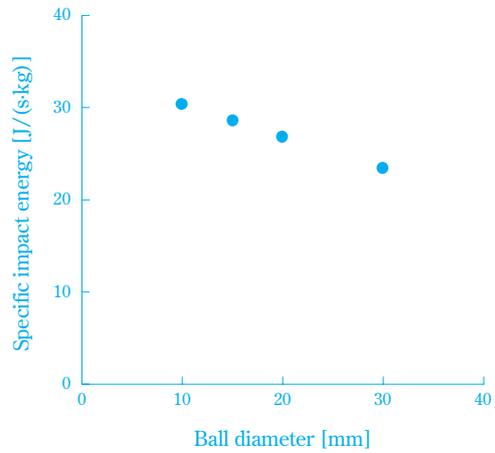


Fig. 10 Relation between ball diameter and specific impact energy

Table 5 Calculation conditions

Ball diameter	Number of balls
10mm	26560
15mm	7870
20mm	3320
30mm	984

(2) 羽根板高さの影響

Fig. 11には転動回転数 $0.6N_c$ および $0.8N_c$ の条件での羽根板高さとの関係を示した。羽根板を設置することによりボールの衝突エ

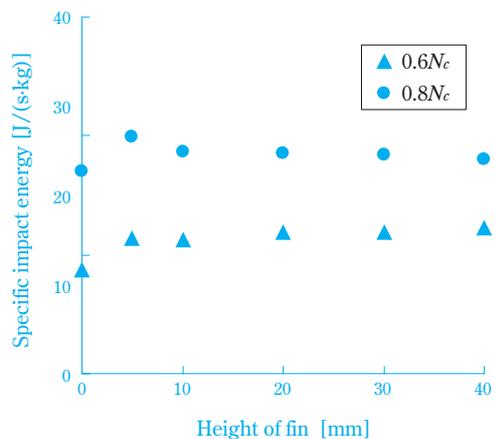


Fig. 11 Relation between the height of fin and specific impact energy

エネルギーは大きくなるのがわかる。また、回転回転数が $0.8N_c$ の場合、羽根板高さが5mmの時にボールの衝突エネルギーが最も大きくなる傾向を示した。このような結果から、最適な羽根板高さを推測することが可能となる。

おわりに

離散要素法によるシミュレーション解析と実験検討の組み合わせにより、揺動ミル内での粉碎現象を精度良く再現、予測できる手法を確立した。臨界回転数より小さな回転数において、揺動の有無ならびに装置サイズにかかわらず、粉碎速度定数とボールの衝突エネルギーの間には良好な相関関係が成立することが明らかとなり、この関係を用いれば最小限の実験回数でスケールアップ、最適な操作条件や設計条件を求めることが可能となる。

今後は湿式媒体攪拌ミルや振動ミル等の粉碎機器への水平展開を図っていきたくと考えている。実現できれば、この手法を用いて粉碎機器の機種選定も可能となり、粉碎プロセス開発の高度化と迅速化が実現できると考えている。

さらに、近年注目されているメカノケミカル反応にも同様のアプローチ手法を適用できることから、その方面にも展開を図っていきたく。

謝辞

本研究は、共同研究として東北大学 多元物質科学研究所の齋藤文良教授、加納純也講師より多岐に渡るご指導を頂戴いたしました。ここに付記して感謝申し上げます。

引用文献

- 1) P.A. Cundall and O.D.L. Strack, *Geotechnique*, **29**, 47 (1979).
- 2) B. K. Mishra and R. K. Rajamani, *KONA*, **8**, 92 (1990).
- 3) H. Ryu, H. Hashimoto, F. Saito and R.Watanabe, *Shigen-to-Sozai*, **108**, 549 (1992).
- 4) P. W. Cleary, *Minerals Engineering*, **11**, 1061 (1998).
- 5) R. K. Rajamani, B. K. Mishra, R. Venugopal and A.Datta, *Powder Technology*, **109**, 105 (2000).
- 6) A.Datta, B. K. Mishra, and R. K. Rajamani, *Canadian Metallurgical Quarterly*, **38**, 133 (1999).
- 7) M. A. van Nierop, G. Glover, A. L. Hinde and M. H. Moys, *International Journal of Mineral Processing*, **61**, 77 (2001).
- 8) J. Kano, N. Chujo and F. Saito, *Advanced Powder Technology*, **8**, 39 (1997).
- 9) 粉体工学会編, “粉体シミュレーション入門”, 初版, 産業図書 (1998), p.74.

PROFILE



木村 真喜男

Makio KIMURA

住友化学株式会社
生産技術センター
主席研究員



児林 智成

Tomonari KOBAYASHI

住友化学株式会社
生産技術センター
研究員



鳴海 雅之

Masayuki NARUMI

住友化学株式会社
生産技術センター
研究員