研 究 速 報

フラクタル概念に基づく粉砕エネルギー則の統一的考察

鈴 木 徹[*] 矢 野 俊 正[**]

Interpretation of the Relationship Between Energy and Size Reduction on the Basis of the Fractal Concept

by

Tooru SUZUKI[†] and Toshimasa YANO[††]

Using the fractal concept,the energy E required for the size reduction of a solid is explained by a Fractal－Rittinger equation $dE/d(d_p) \propto d_p^{D-4}$, where d_p is particle diameter, and D is the fractal dimension ranging from 2 to 3. Lewis' and Holmes' equation, which is generally applicable to the comminution of solid material but when the physical meaning of the parameters is uncertain, is involved in the Fractal－Rittinger equation with the fractal dimension of the surface of the size - reduced material.

The fractal dimensions calculated from the literature values of the exponents in Lewis' and Holmes' empirical equations agree well with those experimentally obtained for the corresponding materials.

Key Words: Fractal, Size-reduction, Rittinger's law, Comminution Energy, Fractal-Rittinger equation

1. 緒 言

粉砕に要するエネルギーについては種々の立場から多くの議論があるが，ここでは，集合粉砕を含まない理想的粉砕前後における粒径の変化と，それに要するエネルギーを関連付けようとする立場に立つ。この立場の古典的理論にはRittinger則（1867）とKick則（1885）があり，この両者は古くから相容れない理論として知られており，現在でも真の解決には至っていない[1]。またこれらの折衷案であるBond則（1952）は工業的に非常によく使われているが，理論的根拠は薄弱とされる[1]。さらにこれら3つの式を包括する意味でLewis則[2]がよく知られている。

$$dE/d(d_p) \propto d_p^{-n} \qquad n=1\sim2 \tag{1}$$

Eq.(1)は$n=1$でKick則，$n=1.5$でBond則，$n=2$でRittinger則になる。また他にもKick則を修正したHolmes[3]の式等が知られているが

$$dE/d(d_p) \propto d_p^{-r-1} \qquad r=0\sim1 \tag{2}$$

やはり指数rに理論的根拠がないといわれる[4]。また考え方の相違はあるが近年，神田，八嶋ら[2]は確率論を取り入れた材料力学的手法により強度の寸法効果を考慮し，次の式を導いた。

$$dE/d(d_p) \propto d_p^{-(m+5)/m} \tag{3}$$

この式のmは粉体（試験片）中のクラックの強さの分布がWeibull分布にしたがうと仮定した場合の係数で，Weibullの均一性係数といわれ数学的定義では$m>1$であるとされている。これらLewis，Holmes，神田

昭和63年9月2日受付

＊東京水産大学食品生産学科（〒108 港区港南4-5-7）
TEL 03-471-1251 内線308

＊＊東京大学農学部農芸化学科（〒113 文京区弥生1-1-1）
TEL 03-812-2111 内線5165

† Department of Food Technology and Engineering, Tokyo University of Fisheries, Konan 4, Minato-Ku, Tokyo 108

†† Department of Agriculture Chemistry, Faculty of Agriculture, University of Tokyo, Yayoi 1, Bunkyo-Ku, Tokyo 113

・八嶋らの式は形の上では同形であり，その指数パラメータによってRittinger，Kickの両法則，およびBond則を表わしうる。しかし，そのパラメータが異なると何故それぞれの法則を満足するかについての解答は得られていない。

一方，近年発展してきたフラクタル概念を適用して固体の衝撃粉砕による破砕物の不規則形状をフラクタル次元で定量化し，粉砕エネルギーと関連付けようとした試みがMandelbrotら[5,6]，および遠藤ら[7]によってなされてきたが，その形状の捕らえ方がマクロ的であること，また3次元物体の2次元投影像に対する解析であることなどの問題が残されており，破砕物形状と粉砕エネルギーとの関連を充分明かにするに至っていない。

本報では，ガス（N_2およびKr）吸着法により求めた比表面積と粒径に関するPfeiferら[8~12]の知見をもとにすれば，Rittinger理論の基本的考え方（粉砕に要するエネルギーは新生表面積に比例する）によって粒径変化と粉砕エネルギーに関する既往の諸関係式を統一的に理解することができることを示す。

2. 比表面積S_wとふるい粒径d_pの関係

従来の粉砕エネルギー論の中では比表面積と粒径の関係は，常に

$$S_w = \eta d_p^{-1} \tag{4}$$

であり，ηはd_pによらず不変であるとの見方がされてきた。これに対し，Pfeiferら[8~12]は分子レベルのスケールで多くの固体（粉粒体）表面不規則構造がフラクタル（自己相似）であることを示し，窒素ガス（またはKrガス）吸着法で求めた比表面積S_wの粒径d_pによる変化の仕方が，表面構造のフラクタル次元Dをもちいて

$$S_w \propto d_p^{D-3} \quad D = 2 \sim 3 \tag{5}$$

で表わされることを明らかにした。

この結果によれば，従来認められてきたEq.（4）の関係は球，立方体などの規則的形状の粒子に対しては成り立つものの，粒子が不規則な自己相似形状を持つ場合には必ずしも成り立たないことになる。Pfeiferら[8]は，まず一個の粒子に対して固体表面がD次元フラクタルであれば測度の関係[6,13]から次式が成り立つことを示した。

$$S^{1/D} \propto d_p \tag{6}$$

（S：粒子一個の表面積，D：表面のフラクタル次元，2～3の値）

また，粉粒体の密度ρが一定と仮定すれば単位質量当りの粒子数kは

$$k \propto 1/\rho \cdot d_p^{-3} \tag{7}$$

一方，

$$S_w = kS \tag{8}$$

であるのでEq.（6）とEq.（7）をEq.（8）に代入してEq.（5）が導かれる。

Eq.（5）を書き直せば

$$\log S_w \propto (D-3)\log d_p \tag{9}$$

Pfeiferらは，窒素吸着法によって求めた比表面積S_wについて，多くの物質で$\log S_w$対$\log d_p$をプロットして傾きが－1でない直線になることを実証し，その傾きからフラクタル次元を求めた。その結果，Dは2～3の範囲を取り，シリカゲルのような多孔性物質では$D = 3.04 \pm 0.05$とほぼ3に近い値をとり[12]，また方解石のようなものでは$D = 2.16$[10,11]であった。筆者ら[14]も米粉粒，脱脂米粉粒および小麦粉に対して実験的に同様の方法で比表面積の粒径依存性を確かめたところ，ある範囲でEq.（9）が成立することを認め，米粉粒，脱脂米粉粒では$D = 2.29$（$d_p < 400\,\mu m$），小麦粉では$D = 2.42$（$d_p < 100\,\mu m$）を得た。比表面積の測定法にはいろいろな方法があるが，粉砕による新生表面は分子レベルでの結合の切断であるから，分子レベルでの凹凸のある表面の面積については窒素吸着法で求めた値の方がより適切であると考えられる。

3. フラクタル概念を考慮に入れたRittinger則の修正

Rittinger則には2通りの表現形がある。1つは

$$\Delta E \propto (S_{w_2} - S_{w_1}) \tag{10}$$

であり粉砕前後の比表面積の変化とエネルギーの関係を示す形，いま1つは，粉砕前後の粒径変化と対応付けるためEq.（4）をEq.（10）に代入して

$$\Delta E \propto (1/d_{p_2} - 1/d_{p_1}) \tag{11}$$

と表す形である。筆者らはRittinger理論の基本である「粉砕によって生ずる新生表面積は粉砕に要するエネルギーに比例する」なる仮定，すなわちEq.（10）から出発した。Eq.（10）に，Eq.（4）ではなく，フラクタル概念を導入して導かれたEq.（5）を代入すると，次式が導かれる。

$$\Delta E \propto (d_{p_2}^{D-3} - d_{p_1}^{D-3}) \tag{12}$$

またこれを微分形で表せば

$$dE \propto d_p^{D-4}\, d(d_p) \tag{13}$$

となる。これを以後Fractal-Rittinger式と呼ぶことにする。

フラクタル次元Dが2～3の間の値を取り得るので，

$D=2$ の時は従来の Rittinger 則 Eq. (11) になり，$D=3$ の時 Kick 則，また中間の 2.5 では Bond 則になる。すなわち，これまで対立していた粉砕理論は，得られる粒子の表面不規則性を考慮すれば統一的に理解できる。フラクタル次元 $D=2$ というのは表面構造が従来の考え方 (Euclidean) による規則的な形状の面と同等であることを意味し，従来の Rittinger 則との一致は当然である。また $D=3$ の場合には，新生表面を得るための分子間結合切断に要するエネルギーは見掛け上体積に比例することになる。これは Kick 則の "粉砕に要するエネルギーは体積に比例する" という解釈[1]と一致する。さらに多くの固体表面のフラクタル次元が 2～3 の中間であること[10,14]から Bond 則も近似式として無理なく受け入れられる。

4. 従来の一般式との関連

本報で得られた Fractal - Rittinger 式は形式上一般則といわれる Lewis 則 Eq. (1)，また Holmes の式 Eq. (2)，さらに神田，八嶋らの式 Eq. (3) と一致する。しかし，Fractal - Rittinger 式における指数パラメータ D に意味があるのに対して，その他の式では n，r，m に対する意味があいまいであった（m には数学的定義が与えられているが，その物理的意味との関連が明らかでない)。しかしながら，一般則の指数パラメータについては今日まで多くの知見が経験的に積み重ねられてきている[2~4]。ここではこれらパラメータとフラクタル次元 D との関係について調べた。

先ずその取り得る範囲について，Lewis 則のパラメータ n は経験上 1～2 とされ[2] 微分形の Eq. (1) における粒径の指数 ($-n$) は -2～-1 の範囲をとる。一方フラクタル次元 D は理論的に 2～3 であるので Fractal - Rittinger 式 Eq. (13) における粒径の指数 ($D-4$) は -2～-1 をとり，両式の粒径にかかる指数の範囲は過不足なく一致する。また，微分形で表わした諸エネルギー式間の指数は同値であると仮定すると，そのパラメータどうしの相互関係は **Table 1** のようになる。n と r に関しては，その経験的範囲とフラクタル次元 D の範囲から計算された範囲とは一致する。m に関しては八嶋ら[2] のデータにみられるように多くの材料で $m>2$ であるのに対してフラクタル次元からの計算値では $m>5$ となり，その最小値についてのくい違いがみられた。この点に関しては，式の意味の違いをも含めて今後十分検討する必要があろう。

Table 1 Relation among exponents in equations for size - reduction

	D	n	r	m
D	***	$n=4-D$	$r=3-D$	$m=5/(3-D)$
n	$D=4-n$	***	$r=n-1$	$m=5/(n-1)$
r	$D=3-r$	$n=r+1$	***	$m=5/r$
m	$D=3-5/m$	$n=1+5/m$	$r=5/m$	****
Experimental value	2～3	1～2	0～1	2～∞
Calculated value from D_{exp}	****	1～2	0～1	5～∞

D : fractal dimension shown in Eqs.(5) and (13).
n : exponent in Lewis' equation Eq.(1).
r : exponent in Holmes' equation Eq.(2).
m : exponent in Eq. (3)

Table 2 Calculation of fractal dimensions from literature values of the exponents in Eqs. (1)～(3), and their comparison with those experimentally obtained

Material	Values of exponent	D_{cal}	D_{exp}
Quartz	$r=0.68$～0.70[3]	2.32 ～ 2.30	2.14[11] ～2.31
Small coal	$m=5.5$～18.0[2]	2.10 ～ 2.72	2.33[10] ～2.52
Calcite	$n=2.0$[15]	2.0	2.16[11]
Glass	$n=2.0$[15]	2.0	2.15[11]
	$m=5.9$[2]	2.15	

次に同種の物質について実験的に得られてきた一般則中のパラメータと，やはり実験的に求められたフラクタル次元 D との比較を行った。**Table 2** のカラム 3 (D_{cal}) はカラム 2 のパラメータの範囲をもちいて **Table 1** に示した換算式でフラクタル次元の対応範囲を計算したものであり，またカラム 4 (D_{exp}) は Pfeifer らが実験データに基づきまとめたフラクタル次元である。個々の測定材料や測定条件の相違によるバラツキを考慮すれば，よく一致しているといえる。

Fractal - Rittinger 式が Lewis 則，Holmes 則などの一般則を包含するものであり，破砕物表面のフラクタル次元が Lewis 則，Holmes の式などの指数に反映されるという考えを示した。しかし実際の粉砕に要するエネルギーと理想的理論粉粋エネルギーとの差については依然解答を与えてはいない。

〔謝　辞〕本研究に種々有益なご助言を賜りました前東京水産大学教授青木隆一博士，北海道大学教授田中達夫博士に厚くお礼申し上げます。

Nomenclature

d_p	: particle diameter	[m]
d_{p1}	: particle diameter befor size reduction	[m]
d_{p2}	: particle diameter after size reduction	[m]
D	: fractal dimension	[−]
D_{cal}	: calculated fractal dimension	[−]
D_{exp}	: experimental fractal dimension	[−]
E	: energy required for size reduction	[J]
k	: number of particles per unit mass	[1/kg]
m	: coefficient in Weibull's distribution	[−]
n	: exponent in Lewis' equation	[−]
r	: exponent in Holmes' equation	[−]
S	: surface area of a particle	[m^2]
S_w	: specific surface area	[m^2/kg]
S_{w1}	: specific surface area befor size reduction	[m^2/kg]
S_{w2}	: specific surface area after size reduction	[m^2/kg]
η	: shape factor	[m^3/kg]
ρ	: density of particle	[kg/m^3]

References

1) Inoue, T. : *J. Soc. Powder Technol., Japan*, **22**, 403 (1985)
2) Yasima, S. : "Chemical Engineering Series 10, Funsai To Funtaibussei", Baifukan, Tokyo (1986)
3) Holmes, J. A. : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **35**, 125 (1957)
4) Kawakita, K., M. Koisi and S. Taneya : "Funtai Kogaku (Oyohen)", Maki Shoten, Tokyo (1974)
5) Mandelbrot, B. B., D. E. Passoja and A. J. Paullay : *Nature*, **308**, 721 (1984)
6) Mandelbrot, B. B. : "The Fractal Geometry of Nature", Freeman Co., New York (1982)
7) Endoo, S., et al : Preprints for Spring Meeting of the Soc. of Chem. Eng., Japan, c204 (1988)
8) Pfeifer, P. and D. Avnir : *J. Chem. Phys.*, **79** (7), 3558 (1983)
9) Avnir, D., D. Farin and P. Pfeifer : *J. Chem. Phys.*, **79** (7), 3566 (1983)
10) Avnir, D., D. Farin and P. Pfeifer : *Nature*, **308** (15) 261 (1984)
11) Avnir, D., D. Farin and P. Pfeifer : *J. Colloid Interface Sci.*, **103** (1), 12 (1985)
12) Pfeifer, P., D. Avnir and D. Farin : *J. Stat. Phys.*, **36**, 699 (1984)
13) Takayasu, H. : "Fractal", Asakura Shoten, Tokyo (1986)
14) Yano, T. and T. Suzuki : Preprints for Annual Meeting of the Agric. Chem. Soc. of Japan, p. 772 (1987)
15) Kagaku Kogaku Kyokai : "Kagaku Kogaku Binran 3rd ed.", Maruzen, Tokyo, p. 1033 (1968)