

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 4 月 30 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04813

研究課題名(和文) 粉体圧縮成形過程での充填・成形性の指標となる局所粉体特性評価法の開発

研究課題名(英文) Study on Local Powder Characteristics for an Index of Packing and Compression in Powder Compression Molding Process

研究代表者

後藤 邦彰 (Gotoh, Kuniaki)

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：20215487

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：粉体の圧縮成形操作は、製剤や粉末冶金など種々の製造工程で用いられており、多くの検討がなされている。このような粉体操作は、メソスコピックなスケールでの粉体挙動がマクロな挙動を支配すると言われていたが、そのメソスコピックなスケールでの粉体特性、すなわち、局所の粉体特性は定義されておらず、評価した例もない。本研究では、圧縮成形操作に限定はしているが、その操作指標となる局所粉体特性の評価法と、特性指標を提案した。また、圧縮成形での圧力伝播について、局所的な伝播圧力を実測し、金型内での圧力伝播が粒子弾性変形域内では非等方であり、圧縮方向と側壁方向の圧力伝播比が粒子特性依存することを明らかとした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微小固体の集合体である粉体の操作においては、1個粒子をミクロスケール、粒子集合体である粉体をマクロスケールとした時の中間となる、メソスコピックなスケールでの挙動が粉体操作中のマクロな挙動を支配すると言われてきた。しかし、そのメソスコピックなスケールでの粉体特性、すなわち、局所の粉体特性は定義されておらず、評価した例もない。本研究は、金型への重力充填というシンプルな操作であるが、メソスコピックなスケールでの粉体挙動を基に、操作の指標となる特性を定義した点に学術的意義がある。

研究成果の概要(英文)：The compression molding of powder has been used in various manufacturing processes such as tableting of medicine and powder metallurgy, and many studies have been reported. In such powder handling process, it is said that the powder behavior on the mesoscopic scale dominates the macro behavior, but the powder characteristics on the mesoscopic scale, that reflects local powder characteristics, have not defined. In this study, the evaluation method for local powder characteristics and characteristic indexes were proposed although the indexes can be applied to only on a gravity flow during a compression molding operation. Regarding the pressure propagation in the compression molding, the local propagation pressure was measured. It was found that the pressure propagation in the mold was anisotropic within the particle elastic deformation region, and the pressure propagation ratio in the compression direction and the side wall direction was a particle characteristic.

研究分野：粉体工学

キーワード：重力流動 流動性評価 隅角充填性 粉体圧縮成形 圧縮圧伝播 金型形状

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、立体造形法として3Dプリンティングが注目されている。しかし、同一形状の立体成形品を大量に生産するには、Fig.1に概略のフローを示す、微小な粒子状固体の集合体である「粉体」を圧縮力して成形する、圧縮成形操作の方が、装置、操作の簡便さ、生産コストなど多くの側面で優位性が高い。この圧縮成形操作は、現在でも、医薬品の錠剤成形やセラミックス焼成前成形、粉末冶金による金属粉成形体作成など、多くの製造工程で用いられている。それら製造工程では、錠剤の刻印部や成形体突起に見られる凹凸形状の隅角部など形状が複雑な箇所での割れや欠けなど成形不良が問題となっている。このため、実作業では成形性を上げるための添加材の導入や圧縮操作条件の最適化が“試行錯誤”で経験的に行われている。さらに、粉体種によっては成形可能な形状に型枠形状を変更して対応する場合もある。よって、

粉体特性評価に基づく、要求される形状で必要な強度を持つ成形体を作成のための最適操作条件予測・決定法の確立

粉体特性の改善による成形可能形状の多様化
が技術的・工学的な課題であった。

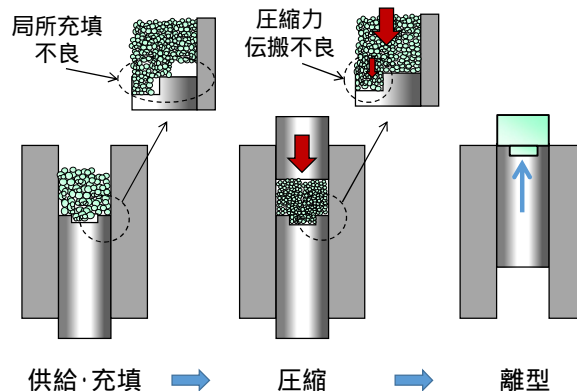


Fig.1 圧縮成形操作と成形不良要因

圧縮成形操作は古くから種々の製造工程で用いられているので、上記課題 については、多くの研究がある。例えば、圧縮過程に着目し、圧縮力と充填率の関係を表す種々の式が提案されている。また、医薬品の圧縮成形体の強度に対し、賦形剤などの添加剤や操作条件である圧縮圧、圧縮速度が成形後の錠剤強度に影響することなども報告されている。これらの中には、粉体の特性との関係を議論したものもあるが、その特性は粒子集合体 (= 粉体) としての特性ではなく、粒子の大きさや形状など粒子物性、粒子特性に着目した議論が中心である。

その粉体特性について、これまで粉体工学分野では、安息角や内部摩擦角など、マクロな粉体挙動に基づく粉体特性しか定義されていない。一方で、圧縮形成に限らず、種々の操作中での粉体挙動は、1個粒子をミクロスケール、粒子集合体である粉体をマクロスケールとした時の中間となるメソスコピックなスケールでの挙動がマクロな挙動を支配すると言われている。しかし、メソスコピックなスケールでの粉体特性、すなわち、局所の粉体特性は定義されておらず、評価した例もない。

2. 研究の目的

本研究では、前述のように工業的用途の多い複雑形状の圧縮成形操作を対象とし、上記課題の解決のため、圧縮成形操作の指標となる局所粉体特性を提案し、その有効性を検討することを目的とした。そのための具体的目的として、実際の圧縮成形工程 (Fig.1) を想定し、

(1) 型枠内へ重力充填する際の充填不良

(2) 圧縮成形する際の型枠凹部または凸部での圧縮力不足

を成形不良の要因として着目した。これらを粒子挙動として捉えると、

(1) 粒子の自重と粒子間および粒子壁面間の摩擦等相互作用に依存する流動性の違い

(2) 粒子間および粒子壁面間と壁面形状に依存する圧縮方向 (= 底部方向) および側壁方向への圧力伝播特性の違い

が、メソスケールでの粉体特性、すなわち、評価すべき局所粉体特性と考え、それらの特性評価法の検討と指標の提案を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 局所重力流動性の評価指標に対する検討のため、微小金型内の隅角を、角度調整可能な二枚の板で形成される隅角部でモデル化した評価装置 (Fig.2) を試作した。この評価装置を用いた実験では、まず試料粉体を図中左側に示した容器に投入した。容器中央には回転軸に取り付けた平板が設置しており、それを上方に移動させると、平板上にスパチュラ角を持つ粉体層が形成される。軸取り付け部に所定の衝撃を加えた後、軸を回転させることで、平板上の試料を、平板

2枚で形成されたくさび状の隅角部（モデル成形器）に充填する。充填状態はカメラで撮影し、画像解析より充填状態を定量化した。

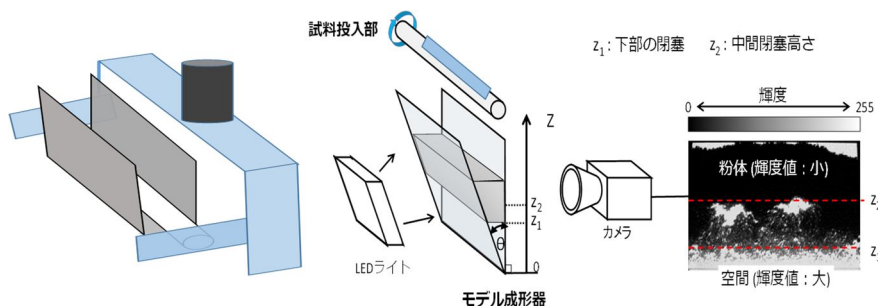


Fig.2 モデル隅角を用いた充填性評価装置

(2)圧力伝播特性については、圧縮成形には円筒型成形器を用い、実験では金型の下降として Fig.3 に示す円筒形（ $\phi 10\text{mm}$ ）および、微細な凹凸を持つ複雑形状のモデルとして二重円筒型成型体の成型用に中央に $\phi 6\text{mm}$ 、深さ 1mm の窪みを持つ凹型、同じく中央に $\phi 6\text{mm}$ 、高さ 1mm の突起を持つ凸型の3種を使用した。これら金型を用い、油圧ポンプにより圧縮圧 $P = 24.45 \sim 81.5 \text{MPa}$ の範囲で一軸圧縮成形した。

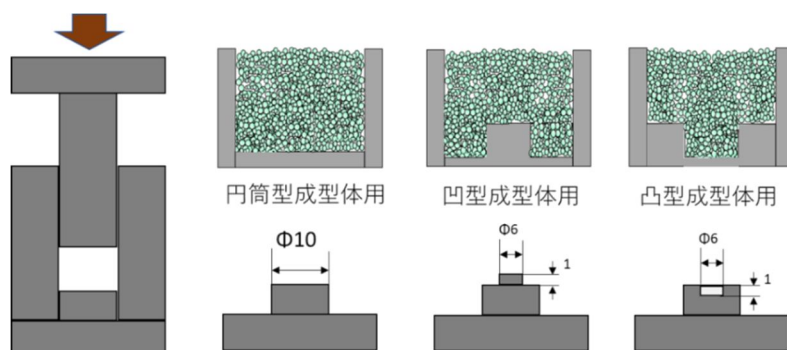


Fig.3 成形器形状

圧力の測定にはフランジの締め圧などの測定に用いられている圧力測定フィルムを用いた。このフィルムは力が加わることで発色材層のカプセルが割れ、中の薬品と顕色剤層が反応し、作用した圧力に応じた発色をする。その色の濃淡から圧力を測定することができる。このフィルムを成型器の底面および側壁に張り付け、粉体を充填、圧縮後の発色したフィルムの画像から画像解析により発色域輝度を算出し、予め作成した校正曲線により、圧力に変換した。

4. 研究成果

(1)局所重力流動性の評価指標に対する検討として、評価装置画像上に観察される試料閉塞高さを定量的に測定した例を Fig.4 に示す。撮影画像を囲む緑色の枠を解析の対象領域とした。このとき、グラフ x 軸は対象領域内での垂直方向の距離を示し、y 軸は、対象領域の水平方向にピクセル輝度の平均を計算した値である。

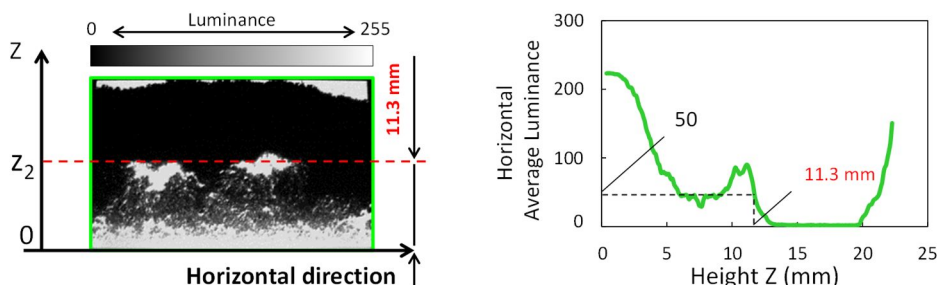


Fig.4 局所重力充填実験結果の一例

ここで、グラフ y 軸の値 50 を閾値としたとき、図に示すように x 軸の値 11.3mm を得ることができる。この値を画像上で当てはめてみると、定性的に試料が閉塞していると考えられる試料閉塞高さとはほぼ一致していることが分かる。よって、撮影画像の輝度分布を測定することで、定量

的に試料閉塞高さを得られることが明らかとなった。このほか、種々の試料粉体で充填実験をおこなった結果、Fig.5 に示す複数の指標が、粉体種ごとに異なる重力充填性を表わす定量指標として用いることができることが明らかとなった。

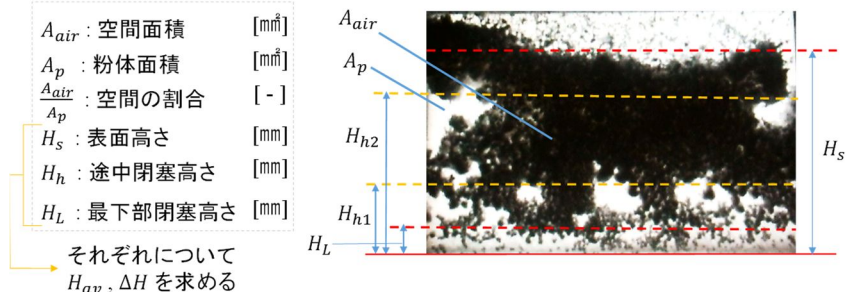


Fig.5 粉体種ごとの充填性を定量化できる指標

(2)圧力伝播特性について、球形金属粒子 Fe 粒子 (粒子径 72.7 μm) を試料粒子として用い、3種の金型について圧縮方向 (= 底部方向) および側壁方向での伝播圧力を測定した結果を Fig.6 に示す。圧力の測定は成型体の隅角部、図中の矢印で示した部分で行った。その結果それぞれの金型で底面平均伝播圧力と側面伝播圧力の比率に大きな違いは見られないことから、圧力伝播に金型形状は依存しないことが明らかとなった。

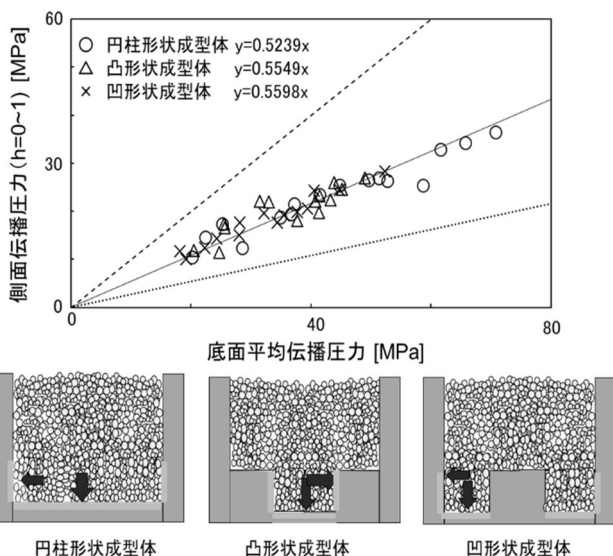


Fig.6 複雑形状での球形 Fe 粉の圧力伝播比率

また、図を見るとデータ点は1本の直線で表される、すなわち、圧縮圧力に依らず底面と側壁の伝播比率は一定であることがわかる。一般に、液体の場合、圧縮圧力は上下、左右に等方的に伝播するので、圧力伝播比率は1 (図中破線) となる。一方、固体の場合、縦ひずみに対する横歪みの割合はポアソン比 (実線) となる。固体の集合体であり粉体は、その液体と固体の中間的な伝播比率を持つことがわかる。他の粉体で同様の測定をした結果、この圧力伝播比率は粉体ごとに異なり、粉体特性として定義できることが明らかとなった。この結果は圧縮圧力を、粉体粒子の弾性変形域内で行った場合であり、塑性変形域まで圧縮圧力を増加させると、伝播比率は1に近づく、すなわち、等方的な圧力伝播となることも明らかとなった。

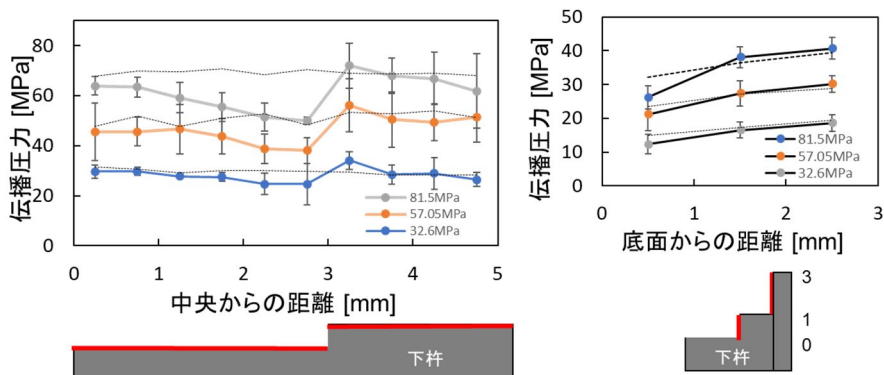


Fig.7 凸形状成型体の圧力伝播分布（球状 Fe 粒子）

球形 Fe 粉で凸形状成型体での底面及び、側面の圧力伝播分布を Fig.7 に示す。図中で円柱形状での圧力分布を破線で示している。底面でも側面でも突起部で特に段差に近い部分で伝播圧力が低下していることが確認できるほか、段差の下側部分の突起部分で圧力が低下していることに対し段差の上側部分では逆に伝播圧力が大きくなる傾向を持つことが確認できる。ここで得られた複雑形状での圧力分布から、突起部内伝播圧力の差を p と圧縮圧 P の比 p/P を求めたところ、Fig.8 に示すように、この比は底面伝播圧力に対する側面伝播圧力の比と相関があることが明らかとなった。

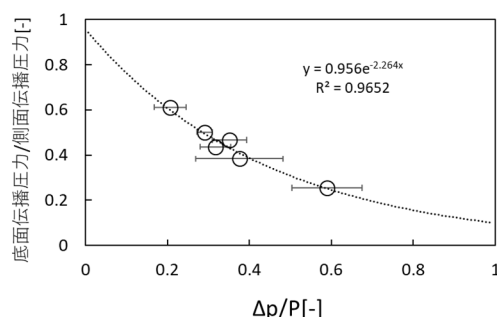


Fig.8 底面伝播圧力に対する側面伝播圧力の比率と凸形状成型体での段差による圧力伝播分布の偏りの相関

複雑形状での段差によって生じる圧力伝播分布の偏りは、段差によって圧縮挙動中の粒子の移動が妨げられることにより発生していると考えられるため、この圧力分布の偏りの大きさは圧縮挙動中の粒子の移動しやすさ、圧縮流動性の影響を受けていると考えられる。よって、この複雑形状での圧力伝播分布の偏りの大きさと相関性を持つ底面伝播圧力に対する側面伝播圧力の比率も圧縮流動性の影響を受けていると考えられる。すなわち、金型内での圧力伝播の非等方性は、粉体圧縮時の再配列中での横方向への粒子の移動しやすさを示していると考えられる。

本研究では、当初、局所重力充填性および圧力伝播特性を評価した試料粉体で圧縮実験を行い、隅角部での欠け率や強度測定結果することで成形不良を防ぐことのできる特性領域を定量化できると想定し、検討を行った。実際に重力充填性の評価を行った結果、上述のように、粉体ごとに異なる充填状態を定量的に表わす指標を定義することができた。一方、圧縮成形後の圧力伝播を実測した結果、粉体種ごとに圧縮方向（＝底面）と側壁方向の圧力伝播比率が異なり、その比率は金型形状に依存しないこと、および、その比率と複雑形状金型の突起部周りで生じる圧力伝播不足と相関することが明らかとなった。

複雑形状の粉体形成体の隅角部での欠けや、成形体の強度低下は、局所重力充填性と圧力伝播の異方性、それぞれに影響されると考えられるが、壁面と粉体との摩擦に主に依存すると想定していた局所充填性において、Fig.5に見られるように、メソスケールの粒子凝集体が空間的に構造を形成する粉体があることがわかった。このような粉体では、例えば、貯蔵部から金型に粉体を供給する際に質量流量が、空間構造の大きさに起因する時間変動を起こすと考えられる。供給質量流量の変動が、金型内充填量に比べて小さい場合には、変動は金型内での充填ムラとして強度の低下要因となると予想される。一方、質量流量変動が充填量に比べて大きい場合には、繰り返し圧縮充填を行う打錠成形のようなプロセスにおいて、歩留まりに影響する、成形体間の強度のバラツキに影響すると予想される。すなわち、当初の想定とは異なり、局所充填性の違いは、金型への供給質量流量変動を介して、隅角部の欠けや成形体強度低下に影響すると考えられる。そこで、本研究の展開として、現在、工業的に多く用いられる貯槽装置であるホッパーを模した試験装置を試作し、重力流動による質量流量変動と局所充填性との関係を実験的に検討している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 糸 裕, 三野 泰志, 中曾 浩一, 後藤 邦彰
2. 発表標題 粉末冶金における高圧縮荷重での成形性に対する粒子特性の影響
3. 学会等名 化学工学会中国四国支部・関西支部合同徳島大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 糸 裕, 三野 泰志, 中曾 浩一, 後藤 邦彰
2. 発表標題 高荷重下での金属粉末の圧縮成形体強度に及ぼす粒子特性の影響
3. 学会等名 2019年度粉体工学会西日本談話会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中 泰帆, 三野 泰志, 中曾 浩一, 後藤 邦彰
2. 発表標題 粉体層 - 固体壁面間付着特性評価方法の検討
3. 学会等名 粉体工学会2020年度秋期研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林 亮太, 後藤 邦彰, 三野 泰志, 中曾 浩一
2. 発表標題 粉体圧縮成形時の金型内底面および側面への伝播圧力に及ぼす粉体特性の影響
3. 学会等名 化学工学会姫路大会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 杉山 綾菜, 三野 泰志, 中曾 浩一, 後藤 邦彰
2. 発表標題 粉体の局所重力充填特性に及ぼす粒子物性の影響
3. 学会等名 第22回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
その他の国・地域	Chang Gung University, Taiwan		