

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820047

研究課題名(和文)粉体層への液の浸透メカニズムの解明とモデリング

研究課題名(英文)Modelling of liquid penetration into a particle bed

研究代表者

鷲野 公彰(Washino, Kimiaki)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：10726384

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、湿式造粒プロセスにおいて重要となる粉体と液の混合を予測するためのシミュレーションモデルの開発を行い、粒子充填構造が液の混合に与える影響について調査した。毛管現象による粉体層への液浸透を予測する直接数値計算モデル及び、粒子同士の接触による液分散モデルをそれぞれ開発することに成功した。その結果、異なる濡れ性を有する2種類の粉体を混合した場合は、見かけの接触角の余弦が粉体の混合比と線形の関係となることを明らかにした。また、接触液分散には粒子表面の部分濡れを考慮することが重要であることを示した。

研究成果の概要(英文)：In this work, numerical simulation models are developed to predict the mixing of powder and liquid in wet granulation processes. The developed models are used to investigate the impact of the microscopic particle structures on the powder-liquid mixing speed. It was succeeded to develop a DNS model to simulate the liquid penetration due to capillary action as well as a particle contact dispersion model. Linear relationship was found between the cosine of the apparent contact angle of the powder mixture with different contact angles and the volume ratio of the mixture. In addition, it was implied that the partial wetting of individual particle surface can significantly influence the contact liquid dispersion speed.

研究分野：粉体工学

キーワード：直接数値計算 離散要素法 粉体への液浸透 粉体内の液分散 数値シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

湿式造粒とは微小粉体をバインダー液と共に造粒機の中で混合させ、見かけの粒径の大きな粒子(造粒物)を生成する過程であり、粉体の流動性や溶解性の向上のために様々な製品(例えば、製薬、食品、粉末洗剤、触媒等)の製造プロセスにおいて頻繁に使用されている。とりわけ、製薬や粉末洗剤の製造プロセスにおいて造粒は基幹技術であり、造粒プロセスの向上は産業的に非常に大きなインパクトを持つ。

湿式造粒過程においては、粉体層と液の混合効率を向上させることが非常に重要である。粉体層への液の浸透や分散が悪い場合は、粉体と液が十分に混合されないことから、最終的な製品にムラが生じてしまい、結果として廃棄物の増加や品質の低下を引き起こす。一方で、液の分散のために過剰な攪拌エネルギーを与えることは製造コストの増加につながり、また造粒物の空隙率が小さくなることによる溶解性の低下が問題となる場合も多い。したがって、粉体層と液の混合を適切にコントロールすることは、生産効率や品質管理の観点において最も重要な要素の一つであり、そのメカニズムの解明が長く切望されてきた。

2. 研究の目的

粉体層と液の混合過程は、毛管現象による層内への液の浸透と、粒子同士の接触や対流による液の分散の2つに大別される。これまでに、毛管現象による液の浸透を予測する数理モデルはいくつか提案されている。これらのモデル式は粉体が一様かつ密に充填している、といった単純化された系では一定の成功を収めているが、より現実的な系では液浸透速度の実測値と数十～数百オーダー異なるということも珍しくはない。これは、粉体層内部の微視的構造に対する液の流れを十分に理解していないことに起因する。また、造粒機内での粒子の接触や対流による液分散といったダイナミックな粉体流に対する現象を実験的に観測することは容易ではない。

本研究では、粉体の湿式造粒過程に現れる、粉体層への液の浸透・分散現象を予測可能な数値シミュレーションモデルの開発を行うことを主な目的とした。また、開発されたモデルを用いて、粉体層の微視的構造が液浸透や液分散に与える影響についてそれぞれ調査した。

3. 研究の方法

本研究では、(1) 毛管現象による粉体層への液浸透を予測するシミュレーションモデルの開発と、(2) 粒子同士の接触や対流による液分散を予測するシミュレーションモデルの開発をそれぞれ行った。それぞれのモデルの概要を以下に述べる。

(1) 毛管現象による粉体層への液浸透現象は、異なる相(固相、液相、気相)が相互に影響を及ぼす流れ、すなわち混相流である。ここでは、2種類の流体相(液相及び気相)を数値流体力学(CFD)にて取り扱う Volume of Fluid (VOF) 法を用い、各粒子周りの流れを解像する直接数値計算(DNS)を行う。また、離散要素法(DEM)により得られた粒子充填層の位置データから、各粒子表面(固相)を境界とした適合格子を作成する手法の開発を行った。表面張力及び粒子表面の濡れ性は Continuum Surface Force (CSF) モデルにより与えた。

(2) 粒子同士の接触や対流による液分散の計算には離散要素法(DEM)を用いた。キャピラリ力や粘性力といった液架橋力を考慮することで、液で濡れた粒子の挙動を予測するモデルを開発した。DEMは系に存在する全ての粒子の運動を時間と共に追跡する手法であるため、対流による液分散を捉えることが可能である一方、粒子同士の接触による液分散は陽的にモデルとして与える必要がある。本研究では、粒子表面の部分濡れを考慮した接触液分散モデルの開発を行った。

4. 研究成果

本研究で得られた成果は多岐に渡るため、ここでは代表的な結果のみを示す。以下、1から3は毛管現象による粉体層への液浸透シミュレーション、4から6は粒子同士の接触及び対流による液分散シミュレーションについての成果である。

1. DEMを用いた粉体充填層の作成

DEMを用いて粒子群の重力沈降を計算し、得られた粒子配置より境界適合格子を作成する手法を開発した。Figure 1に球形及び立方体の粒子を用いた粉体層の例を示す。このように、本手法を用いることで、粒子径、粒子形状、粒子表面状態や充填率といった粉体層のパラメータを任意に変更したDNS計算を行うことが可能となった。また、本手法では粒子間の小さな間隙の計算セルを選択的に細分化しているため、計算時間効率の良いシミュレーションを行うことが可能である。

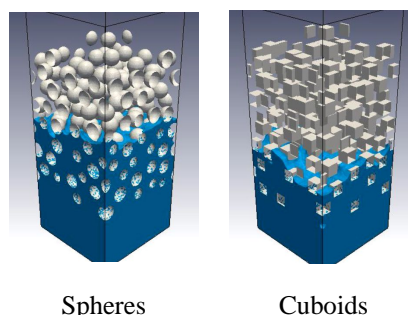


Figure 1: Packed particle column obtained from DEM simulations.

2. DNS モデル検証

本研究で開発された DNS モデルの妥当性を検証するために、幾つかのテストシミュレーションを行い、結果を理論値と比較した。球形粒子がランダムに充填された粉体層内部に気液界面が存在する場合に、表面張力による気液界面のメニスカスの形成により生じる気液内外の圧力差を Figure 2 に示す。この圧力差はラプラス圧と呼ばれ、毛管現象による液の浸透の駆動力となることが知られている。Young – Laplace の式により得られる理論値と DNS の結果は非常に良い一致を見せていることが分かる。

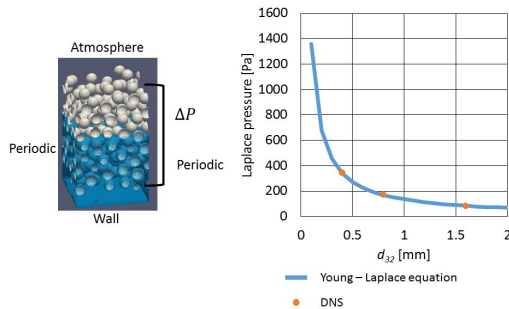


Figure 2: Meniscus due to surface tension and pressure difference across interface.

次に、同じ粉体層を一樣流体が通過する際に生じる圧力損失を DNS により計算し、Kozeny – Carman の式より求められる理論式との比較を行った。この圧力損失は粉体層を流体が流れる際の抵抗の大きさを表しており、粉体内を液が浸透する速度に大きな影響を与える。結果を Figure 3 に示す。ただし、今回用いた粉体層は層高が比較的低く、入口や出口の効果が顕著に現れる。そのため、Kozeny – Carman の式に使用するねじれ度は DNS 結果をフィッティングすることにより求めた。Figure 3 より、DNS の結果は Kozeny – Carman の式より得られる圧力損失をよく表していると言える。

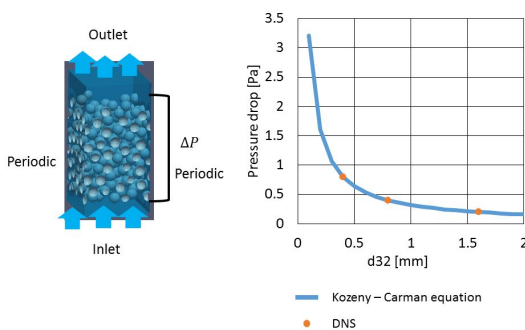


Figure 3: Pressure drop across a packed column.

3. 異なる濡れ性を有する粉体混合層への液浸透シミュレーション

製薬等の分野では、造粒の際に 2 種類以上の粉体の混合物を用いるケースが多く、その濡れ性の違いにより液浸透速度も大きく異なる。そこで、異なる濡れ性を有する 2 種類の粉体が均一に混合した層への液浸透シミュレーションを行い、その混合比が見かけの接触角に与える影響について調査を行った。ここで、見かけの接触角とは、混合粉体をある 1 種類の粉体として考えた時に相当する接触角のことである。Figure 4 の緑色は濡れ性の良い粒子（接触角 30°）であり、白色は濡れ性の悪い粒子（接触角 60°）である。混合比 m は濡れ性の良い粒子の体積割合を示している。このように、本研究で開発された DNS モデルでは各粒子に任意の濡れ性を与えることが可能である。

ユレーションを行い、その混合比が見かけの接触角に与える影響について調査を行った。ここで、見かけの接触角とは、混合粉体をある 1 種類の粉体として考えた時に相当する接触角のことである。Figure 4 の緑色は濡れ性の良い粒子（接触角 30°）であり、白色は濡れ性の悪い粒子（接触角 60°）である。混合比 m は濡れ性の良い粒子の体積割合を示している。このように、本研究で開発された DNS モデルでは各粒子に任意の濡れ性を与えることが可能である。

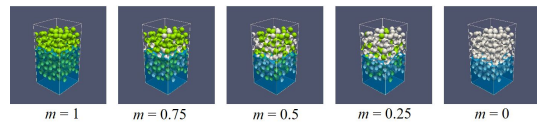


Figure 4: Packed columns made of powder mixture with different contact angles.

Figure 5 に、混合比 m と層の見かけの接触角の関係を示す。これより、混合層の見かけの接触角の余弦は、混合比と線形の関係があることが明らかとなった。

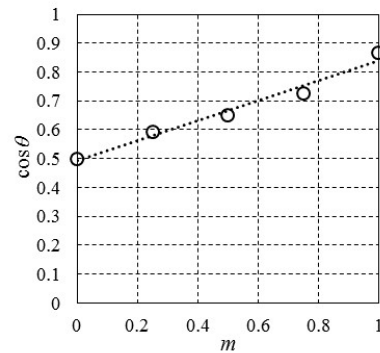


Figure 5: Relationship between apparent contact angle and volume ration of the particles with better wettability.

4. 液架橋力を考慮した DEM シミュレーション

本研究では、液で濡れた粒子の挙動をシミュレートするために、DEM にキャピラリ力及び粘性力からなる液架橋力モデルを組み込んでいる。用いた液架橋力モデルの妥当性を評価するため、回転ドラム内の粒子挙動のシミュレーションを行い、同条件にて行われた実験結果との比較を行った。実験で用いた粒子は 3 mm のアルミニウム、液には水を使用しており、粒子を液で均一に濡らしてから観測を行った。得られたスナップショットを Figure 6 に示す。これにより粒子層の動的安息角や、液架橋力による粒子のドラム内壁への付着の様子が、シミュレーションと実験で良い一致を見せていることが確認され、シミュレーションで使用している液架橋力モデルの妥当性が示された。

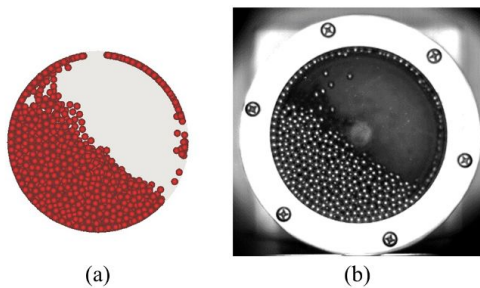


Figure 6: Snapshots of wet particles in a rotary drum obtained from (a) simulation and (b) experiment.

5. 粒子表面の部分濡れを考慮した接触液分散モデルの開発

本研究で開発された接触液輸送モデルでは、粒子表面を細分化することにより、粒子表面の部分的な濡れを表現する。開発されたモデルの詳細については「主な発表論文等」の1に記述している。このモデルでは、表面の分割数が少ないと部分濡れを十分に捉えることが出来ない。一方で、分割数が多すぎると計算負荷が増大し、現実的な時間スケールでのシミュレーションが困難となるため、分割数の最適化をする必要がある。Figure 7に粒子表面の分割数を変化させて行った回転ドラムのシミュレーションにおける、Mixing indexの時間変化を示す。Mixing indexは液分散状態を定量的に評価するための指標であり、値が1に近づくと液が粒子層全体に均一に分散されていることを示す。Figure 7より、分割数が極端に小さい場合は液の分散を過小評価する傾向があるが、分割数を36より多くしても液分散傾向に変化が無いことが見て取れる。これより、開発されたモデルでは、粒子表面分割数が36程度あれば部分濡れを十分に表現できることが分かった。

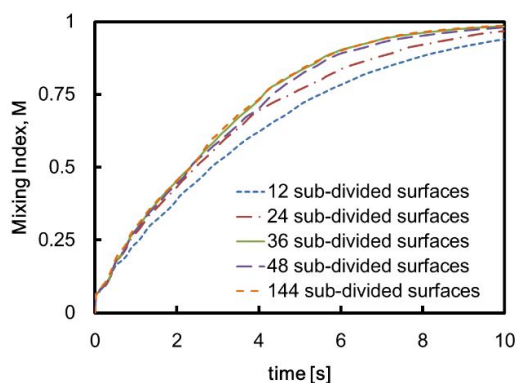


Figure 7: Temporal change of mixing index with the number of particle surface division varying from 12 to 144.

6. 開発された接触液輸送モデルと既存のモデルとの比較

湿式造粒でしばしば用いられるスプレード

ラム内における、比較的粘度の高い噴霧液 (100 mPa·s) の粉体層への分散シミュレーションを行い、既存のモデルを用いた結果との比較を行った。Figure 8に、既存の接触液輸送モデルとしてShi & McCarthyモデルを用いた場合(左列)、本研究で開発された接触液輸送モデルを用いた場合(中央列)、また、比較として接触による液輸送を考慮しない場合(右列)についてのシミュレーション結果を示す。Figure 8のカラーマップは、各粒子表面の液体積を粒子一つの体積で無次元化したものを表す。Figure 8より、既存のモデルを用いた結果は、粉体層への液分散が非常に早く進行していることが見て取れる。これは、既存のモデルでは粒子の部分的な濡れが考慮されておらず、接触によって輸送された液は即座に粒子表面全体に広がり、近接粒子との液架橋形成に使用されるためであると考えられる。一方、開発されたモデルを用いた場合は、接触液輸送を考慮していない場合に比べると液が層内に分散しているが、その速度は既存のモデルから得られるものとは大きく異なる。これらの結果より、接触液分散をモデル化する際に粒子表面の部分的な濡れを考慮することの重要性が示唆された。

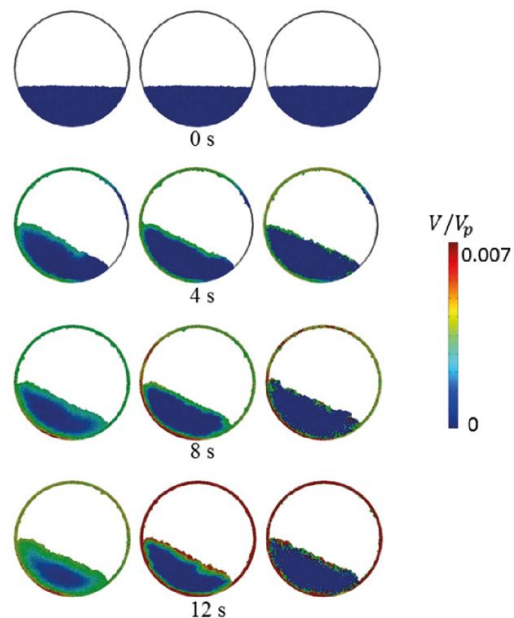


Figure 8: Snapshots of spray drum. (Left) Shi and McCarthy model, (middle) proposed model and (right) no contact dispersion.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

1. Kimiaki Washino, Koki Miyazaki, Takuya Tsuji and Toshitsugu Tanaka, A New Contact Liquid Dispersion Model

for Discrete Particle Simulation,
Chemical Engineering Research and
Design, Advance online publication.
DOI: 10.1016/j.cherd.2016.02.022
(2016).

〔学会発表〕(計5件)

1. Kimiaki Washino, Takuya Tsuji and Toshitsugu Tanaka, Direct Numerical Simulation of Liquid Penetration into a Packed Particle Column, The 7th World Congress on Particle Technology, Beijing (China), 19-22 May (2014).
2. 鷲野 公彰, 湿式造粒プロセスにおける固液間相互作用の数値シミュレーション, 日本伝熱学会関西支部 第21期 第3回講演討論会(招待講演), 神戸市(兵庫県), 2014年12月3日.
3. 鷲野 公彰, 湿式造粒プロセスにおける固液間相互作用の数値計算, 日本混相流学会 若手研究者夏季セミナー(招待講演), 高知市(高知県), 2015年8月6-7日.
4. 鷲野 公彰, 辻 拓也, 田中 敏嗣, VOF法による固気液三相流の数値シミュレーション, 日本流体力学会 年会2015, 目黒区(東京都), 2015年9月26-28日.
5. Kimiaki Washino, Koki Miyazaki, Takuya, Tsuji and Toshitsugu Tanaka, A New Contact Liquid Dispersion Model for Discrete Particle Simulation, 7th International Granulation Workshop, Sheffield (UK), 1-3 July (2015).

6. 研究組織

(1)研究代表者

鷲野 公彰 (Kimiaki Washino)

大阪大学 工学研究科 助教

研究者番号: 10726384