## 粉体工学情報センター理事長 山田 幸良 殿

# 平成21年度研究助成報告(兼、終了報告)

研究題名	DEM シミュレーション支援による微粒子造粒プロセスの高効率化
研究期間	平成 2008 年 4 月 1 日~平成 2010 年 3 月 31 日
研究機関・所属	東北大学・多元物質科学研究所
研究者名	加納純也

#### 1. 平成21年度研究成果の概要

離散要素法によってパン型造粒機内の粒子挙動のシミュレーションモデルの構築を試みた.そのシミュレーションモデルの妥当性を確認するために、パン型造粒機を使用して、炭酸カルシウム粉末の運動の様子を観察した.さらに実際に炭酸カルシウム粉末の造粒実験を行い、パン型造粒機の回転数や傾斜角が造粒物粒子径におよぼす影響を検討した.

炭酸カルシウム粉末にバインダーとして水を添加しあらかじめ混合した.このときの添加し た水は炭酸カルシウム粉末に対して 10wt%でとした.水を添加した炭酸カルシウムのパン型 造粒機に入れ,所定の回転数で造粒を行った.パン型造粒機内の運動の様子をビデオカメラで 観察した.シミュレーションにおいて,一つ一つの粒子を追跡する従来のモデルではなく,粒 子集合体である造粒体を一つの粒子として扱うモデルを構築した.摩擦係数を適切に選択すれ ば,パン型造粒機内の造粒体の運動をシミュレーションできることが分かった.粒子の動きは 粒子の成長過程と密接に相関しているので,粒子の成長を支配している粒子の挙動の探索を行 った.その結果,粒子の回転が粒子成長を支配していることが判明した.この結果は,造粒操 作の最適化や転動造粒機の設計に大きく寄与するものと考えられる.

#### 2. 助成期間内での研究成果の概要

#### 1. はじめに

造粒は、粉体の凝集や成形、固体粒子表面の被覆、溶液の乾燥などによって粒状の粒子を造 る操作である.身近なところでは、錠剤や細粒などの医薬品、粉ミルク、インスタントコーヒ ー、パスタなどの食品、ペットフードなどの飼料の他、肥料、セラミックス、製鉄など多岐に わたる産業で行われている.造粒の目的は、微粉の飛散抑制、流動性、成型性、溶解性、形態、 反応性、焼結性、溶融性、通気性などの制御である.

主な造粒する方法には、粒子成長法、粉体圧密法、液滴凝固法がある.細粒や鉄鉱石は粒子 成長法で、錠剤、ペットフード、パスタは粉体圧密法で、粉ミルクやインスタントコーヒーは 液滴凝固法で一般的には行われている.とりわけ粒子成長法の一つである転動造粒法は、操作 が単純であり、比較的に安価に大量の造粒物が得られることから広い分野で使われている.転 動造粒法は、ドラム型あるいはパン型回転容器内に原料粉体を投入し、容器を転動させながら バインダーを散布し、液体の界面エネルギーを利用して粉体を雪だるま式に凝集させ、造粒物 を得る方法である.その様子を Fig.1 に示す.転動造粒法では、造粒機の傾斜角度、回転速度 の他、粉体供給速度、滞留時間、液体(バインダー)添加量とその添加速度など、造粒性能を 支配する操作因子が多いという問題点もある.また、これらが複雑に関与するため、多数の因 子を考慮して最適化を行うには膨大な時間を要する.



Fig.1 Picture of pan type granulator

転動造粒法における造粒性に及ぼす各因子の影響については、実験的検討が多数ある.例えば、造粒機の回転速度や傾斜角を変化させたときの造粒物の最適径を求めることや、容器(パン)の最適形状に関する研究などもある<sup>D</sup>.

それらの研究で得られた造粒性に関する結果は、実験を行った条件での限られた情報を示す に留まっており、その情報は、造粒装置がスケールアップされた場合や、異なる操作条件にな った場合は、新たな情報を得るための実験が必要になる.このように実験的手法に基づく造粒 操作の最適化あるいは造粒機の最適構造・スケールアップについては、実験による試行錯誤で は多大な労力や時間を要し、自ずと限界がある.この問題点を解決するには、斬新かつ大胆な 手法を取り入れることが大切であり、そのための造粒現象の予測、造粒効率向上のための普遍 的な手法開発が強く望まれている.

そこで本研究では、離散要素法(Discrete Element Method: DEM)をパン型造粒機内の粉体 粒子挙動に適用し、その挙動から造粒性能を支配する運動因子を見出し、普遍的な造粒現象の 予測を可能にし、高効率化を達成できるシミュレーション法を構築を目指す.

## 2. パン型造粒機内粒子の DEM シミュレーション

## 2.1 離散要素法(Discrete Element Method: DEM)

近年,高性能コンピュータの導入により,種々の現象解明の有力な手段としてシミュレーション法が導入され,成果を上げている.粉体工学の分野においても粒子群の運動を解析する手法として,離散要素法(Discrete Element Method:DEM)が Cundall らによって提案された<sup>2,3</sup>.この手法は粒子個々の要素が運動方程式を満足し,粒子間に働く力を求めることで粒子の動的挙動を解析するものであり,粉体粒子の運動の特徴である離散的性格を表現し,個々の粒子の運動状態を時間的に,空間的に表示できるようになった.DEM はビーズミル 4 などの粉砕機内における媒体(ボールやビーズ)運動の表示に用いられている他,サイロからの粒子の排出<sup>5</sup>,流動層内における浮遊粒子の運動<sup>6</sup>,ふるい分け分級<sup>7</sup>等,粉体が関与する様々な運動表示に適用され,観察が困難な装置内の粉体の運動を解析する上で重要なツールになっている.

DEM は、互いに接触した粒子間に働く弾性反発力を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にもとづいて、数値解析する方法である.以下に本シミュレーションのモデルを記す.パン型造粒機内において、二つの粒子あるいは粒子と造粒機壁との衝突は、粒子及び造粒機壁が完全な弾性体でなく、また、接触点近

傍の局所的な塑性変形や破損などのために完全弾性衝突とはならない.したがって、衝突時の物体内における応力-変形挙動は衝突速度に依存し、また、それぞれの物体の運動エネルギーは衝突前後で異なるものと考えられる.この衝突に伴う物体のエネルギー消費は粘性体として理解され、そのため粒子中心間距離と反発力の関係は非線形となる.そこで、造粒機内粒子の衝突要素モデルを Fig. 2 に示すように物体の持つ弾性体的及び非弾性的性質を接触点間に挿入した弾性スプリングと粘性ダッシュポットで表現するフォークトモデルで仮定する.ただし、粒子間あるいは粒子と造粒機壁との接触においては摩擦相互作用を呈するので、接線成分に摩擦スライダーが挿入されている.



Fig.2 Simulation model of contact force between two particles

2.2 パン型造粒機への離散要素法の適用

造粒現象を DEM によりシミュレーションする研究は、国内はもとより国外でもほとんどな されていないのが現状である.本研究では、パン型造粒機の造粒性の予測や最適な操作条件・ 装置構造の設計指針を与えることを目指しており、同造粒機内における粉体の造粒現象をシミ ュレーションによって再現できれば、造粒物の粒度分布の予測や造粒物の特性制御が可能にな るものと期待される.

パン型造粒機での造粒現象をシミュレーションするに当たり、いくつかの仮定がある.まず 一つ目として造粒物径が経時変化する点が挙げられる.原料粉体では粒子径がマイクロメート ルオーダーであるが最終的な造粒物ではその径が 10mm ほどまで成長する.現段階では扱う 粒子径が経時変化する様子を表現することができないので、これを解決するために、造粒物径 を代表造粒物径のみの一粒子径として扱うこととした.その他、造粒物の形状が非球形であ り、均一でないということが挙げられるが、これは摩擦係数を変化させることにより表現す る.これらの仮定に基づき造粒現象を DEM でシミュレーションすることを試みる.

## 3. 造粒機内粒子運動のシミュレーションと造粒性の予測

3.1 造粒機内における粉体粒子の運動のシミュレーション

3.1.1 摩擦係数の決定

非球形造粒物の形状を球で表現できるように、DEM シミュレーションにおける摩擦係数を 決定する.粉体粒子のパン型容器内における上昇比H,動的安息角0,共回りする回転速度の 比較により摩擦係数を決定した.ここで上昇比は、パンの直径に対する造粒物の持ち上がった 高さの比と定義する(Fig.3).動的安息角は、上昇した造粒物がなだれ下降をする際に形成する 角度と定義する(Fig.3).パンの傾斜角とその回転速度を変化させた造粒実験を行い、粒子の挙 動を観察した.同条件下で、摩擦係数を変化させてシミュレーションを行い、粒子の上昇比と 動的安息角の二つの評価指標により運動を評価する.



Fig.3 Definition of rising ratio and dynamic repose angle

粉体粒子がパンと共回りするパンの回転速度を臨界回転速度と定義し、実験により求めた臨 界回転速度と比較し、摩擦係数を確定した. Fig.4 に本実験で用いたパン型造粒機の模式図を 示す.また、Table 1 に実験に用いたパン型造粒機のパンの寸法を示し、Table 2 にシミュレ ーションにおける摩擦係数の決定に関する条件を示す.試料として炭酸カルシウム (MC-35, 旭鉱末製)を使用した.



Table 2 Simulation and experimental condition					
Material	Calcium carbonat	e			
Particle diameter	25.2	[µm]			
Granule diameter	10	[mm]			
Density of granule	0.192	[g/cm <sup>3</sup> ]			
Filling ratio	2.12	[%]			
Rotational speed	30, 40	[rpm]			
Angle of gradient	45, 60	[deg]			

3.1.2 粉体粒子の上昇比と動的安息角による評価

Fig.4(a), (b), (c) には粉体粒子の各傾斜角,パンの回転速度による粉体粒子の上昇比と動的安息角のシミュレーション結果と実験結果を示す.グラフ中の赤い破線が実験における上昇比の値,紫色の破線が実験における動的安息角をそれぞれ示している.

Fig.4(a)と(b)を比較すると、同一傾斜角においてパンの回転速度が上昇すると、H が大きな 値をとることがわかる.また Fig.4(a)と(c)を比較すると、同一パン回転速度では低傾斜角の方 が、H が大きな値をとることがわかる.また、パンの回転速度、傾斜角によらず、摩擦係数が 0.4 以上ではシミュレーションでの上昇比と動的安息角の値が一定となり、実験値とほぼ一致 していることがわかる.このことから造粒機内粒子運動を再現できる摩擦係数は少なくとも 0.4 以上であり、またパンの回転速度や傾斜角には無関係であることが示された.







(c) Rotational speed 90rpm, angle of gradient 45° Fig.5 Influence of rotational speed on the particle motion

このように低回転速度では造粒物はなだれ下降を起こしているが、回転速度の上昇に伴い、 共回りする造粒物が増え、90rpmでは全造粒物が共回りする.したがって傾斜角 45°における 臨界回転速度は 90rpm であることがわかる.

次いで, 傾斜角 45°回転速度 90rpm の条件で, 摩擦係数を変化させて造粒物運動をシミュ レーションした.

Fig.6 に各摩擦係数での粒子運動のスナップショットを示す. 摩擦係数が 0.4 付近では明ら かに共回りをしていないが,摩擦係数を大きくしていき,2.0 の時に全粒子が共回りをする. 摩擦係数をさらに大きくすると,共回りをするものの,パン壁から剥がれ落ちる粒子が増加す ることが観察される. したがって,造粒機内粒子運動をシミュレーションできる摩擦係数は 2.0 であるといえる.



が個々の粒子と会合して、粉体構成粒子間の接触点のまわりにおいて不連続な凹レンズ状の液体架橋を作ることにより、凝集体が形成される.この凝集体は、最初はゆるく、弱い結合状態であるが、転動運動させることにより、次第に圧密しながら他の微粒子を付着結合してより大きな凝集体となる.このようにして核が生成される.成長段階では、生成された核が他の核と衝突する際、自ら変形してそのまま相手を抱き込むか、または相手の結合状態が弱ければ、これを破壊してその破片を自らの表面に練りこみ成長する.また成長すると共に転動圧密化を進め強度の高いものとなる.

完成段階では、造粒物の過剰の液分は成長のために使い果たして、他と衝突してもほとんど 自ら変形しなくなる.また他を吸収する能力も消滅して造粒物の成長が停止する.この成長段 階までのメカニズムは雪だるまを作ることと同じメカニズムである.

3.2.2 回転移動距離

この転動造粒のメカニズムから造粒性を予測するパラメータとして回転移動距離を提案する.回転移動距離は粒子が回転して移動した距離と定義した.転動造粒では粒子が回転しながら他の粒子を取り込み成長するため、粒子の回転量が重要であると考えられる.またホイールスピンするように、その場で回転だけをするような状況では造粒は進行しないと考えられるので、回転し、移動することが重要であると思われる.

また回転移動距離に加味する要因として、転動造粒における領域と他の粒子やパン壁との接触を考慮した.まず、転動造粒における領域では、パン型造粒機内粒子運動は、(I)上昇、(II)反転、(III)なだれ下降、(IV)落下・循環の4つの領域に分類することができる(Fig.7)<sup>D</sup>.造粒が最も進行するのは(III)のなだれ下降する領域であることが分かっているため、本研究では回転移動距離をなだれ下降する領域に限定して測定した.また、粒子が他の粒子や壁と接触していない場合、つまり粒子が跳ねるなどして宙に浮いている時の回転移動距離は加算しないこととし、逆に接触している粒子が複数ある場合はそれを考慮し、回転移動距離に加味することとした.



Fig.7 Snapshot of granule behavior (I) Rising (II) Reverse (III) Avalanche depression (IV) Fall, cycle 3.3 シミュレーション結果および考察

**Table 3** に示す条件でパン型造粒機内の粒子挙動のシミュレーションを行った.また,モデルとしたパン型造粒機は Table 1 で示したものと同一のものとした.シミュレーションにおいて回転速度と傾斜角を変化させた際の回転移動距離を計算した. **Fig.8** に傾斜角,回転速度が回転移動距離に及ぼす影響を示す.

Condition of simulations and	d physical parameters
eter 10	[mm]
$3 \times 10^{-5}$	[sec]
2.12	[%]
2.0	[-]
$15 \sim 100$	[rpm]
$25 \sim 70$	[deg]
	Condition of simulations an   oter 10   3×10 <sup>-5</sup> 2.12   2.0 15~100   25~70 25~70



Fig.8 Influence of rotational speed and angle of gradient to Rotational Movement Distance

いずれの傾斜角においても、回転速度の増加に伴い回転移動距離が増加し、ある回転速度において最大値をとりその後減少している。つまり回転移動距離を最大にする回転速度が存在する。これは回転速度が小さいと、造粒機内粒子に与えられる回転力が小さく、回転速度が大きすぎると共回りを起こし充分に転動されないためである。また、傾斜角が大きくなるにつれ、回転移動距離が最大となる回転速度が高回転速度側へシフトしている。傾斜角によっても回転移動距離が変化し、傾斜角35~45°で最大となっている。また、低回転速度では低傾斜角の方が、回転移動距離が大きくなることがわかる。

## 4. 実験による造粒現象の把握と予測との比較

#### 4.1 試料と造粒実験

造粒実験に用いたパン型造粒機は 3.1 節で用いたものと同一である. Table 5 に実験条件を示す. 試料として炭酸カルシウム (MC-35, 旭鉱末製)を使用した.

Table 5 Conditions of granulate experiment					
Material	Calcium carbona	ate			
Particle diameter	25.2	[µm]			
Filling ratio	2.12	[%]			
Granulate time	3	[min]			
Binder	Water	[-]			
Binder volume	10	[g]			
Rotational speed	$15 \sim 60$	[rpm]			
Angle of gradient	45~70	[deg]			

本実験においてバインダーの添加方法は、実験の再現性を得るために予めビーカー内で混合 しておいた.バインダー量は予備実験において造粒が最も効果的であった値としたが、その値 は重量比で10%であった.造粒物の評価は、篩を用いその目開きが11.1mm、5.66mm、 4.0mm、2.0mmの篩で分級し、篩上の粒子群の重量を求めた.



4.2 造粒実験結果









各傾斜角において造粒物径 11.1mm 以上の重量が最大になるところを最適回転速度と定義すると、その値は傾斜角毎に存在することがわかる.また傾斜角毎に造粒性能に差が生じ、傾斜角 65°において最も高い造粒性を示した.

4.3 シミュレーションによる予測と実験結果の比較

Fig.8 と Fig.10 を比較すると、各傾斜角において最適回転速度が存在することは予測と一致 していた.しかしながら、最適回転速度の値は一致していない.傾斜角 45°の場合、シミュレ ーションによる結果では最適回転速度は 60rpm であったが、実験結果では 20rpm である.ま た、傾斜角により造粒性が変化することは分かったが、最適傾斜角の値が一致していない.シ ミュレーションによる結果では、最適傾斜角は 35~45°であったが、実験結果は 65°であった.

4.4 考察

シミュレーションによる結果が実験結果と一致しない理由として、造粒を妨げる要因が考慮 されていないことが考えられる.すなわち、シミュレーションでは造粒物が途中で崩壊するこ とを考慮していないが、実際の造粒では、その過程で造粒のみならず崩壊も起こる.この造粒 物の崩壊は、造粒体がパンを落下する際に崩れることを意味し、これがシミュレーションでは 考慮されていないのではと考えられる.つまりシミュレーションにおいて、造粒が回転移動距 離によって進行することだけでなく、崩壊することも考慮する必要性があると思われる.

ここで造粒を妨げるパラメータとして、衝突エネルギーを提案する.衝突エネルギーとは、 粒子の衝突時に消費される運動エネルギー量のことであり、粉砕における評価指標として著者 ら<sup>®</sup>によって提案された.これまでと同一のシミュレーション条件下における衝突エネルギー を求めたものを **Fig.11** に示す.



Fig.11 Impact energy as a function of rotational speed with a parameter of angle of gradient

Fig.11において、赤い破線は造粒物径 10mm の造粒物が 50%の確立で崩壊する衝突エネル ギーを示しており、黒い破線は同様に 100%の確立で崩壊する衝突エネルギーを示している. ここで 50%、100%の確立で崩壊するとは、ある高さから造粒物を落下させる実験を行い、そ の高さにおいて崩壊する造粒物の個数割合を表したものである.この図より、パンの回転速度 30rpm 以上で 50%の確立で崩壊する衝突エネルギーのラインを越えていることが分かる.また傾斜角 60°以上の高傾斜角ではパンの回転速度 50rpm 以上で 100%の確立で崩壊するライン を越えている.

この衝突エネルギーの計算結果を踏まえたうえで、もう一度シミュレーションによる予測と 実験結果の比較を行う. 傾斜角 45°に着目すると、シミュレーションによる予測では最適回転 速度が 60rpm と高い値であったが、このパンの回転速度では造粒物に加わる衝突エネルギー がかなり大きくなり、崩壊することも考えられるため実際にはもっと低い回転速度で最適回転 速度をとると考えられる. このことは、実験結果では 20rpm で最適回転速度をとっているこ とから衝突エネルギーを考慮することで、よりシミュレーションによる予測を実験結果に近づ けることができる可能性を示唆している.

しかしながら、衝突エネルギーが造粒を妨げるパラメータとして有用である可能性は示唆さ れたが、実際にどの程度影響を及ぼすのかといった検討はまだできておらず今後の研究の課題 である.

## 5. まとめ

本研究では、パン型造粒機内における粒子運動の再現と造粒性の予測手法の提案、検討を行った.造粒性を予測する指標として回転移動距離を定義し、DEM シミュレーションによる予測と実験結果を比較することにより、造粒におけるシミュレーションの有用な知見を得た.

- (1) 離散要素法シミュレーションで、摩擦係数を適切に決定することにより、パン型造粒機内の粒子運動を再現できた.
- (2) 造粒性を予測するパラメータとして回転移動距離を定義した.
- (3) 傾斜角ごとに最適回転速度が存在し、高傾斜角になるほど最適回転速度が高回転速度となる傾向がある.
- (4) 回転移動距離に造粒を妨げるパラメータを加味することにより,造粒性を予測できる可能性が示唆された.

参考文献

1)日本粉体工業技術協会 編:"造粒ハンドブック"オーム社, (1991)

- 2)P.A. Cundall and O.D. L. Strack:"A Discrete numerical model for granular assemblies", *Geotechnique*, **29**, 47-65(1979)
- 3)P.A. Cundall :"Explicit finite difference method in geomechanics ", second Int. Conf. Numerical Methods in Geomechanics, **2**, 132-150(1976)
- 4) 曽田力央: "湿式媒体撹拌ミル最適設計のためのシミュレーション手法の開発", 修士論文, 東北大学(2008)
- 5)吉田順: "サイロ払出し時の挙動に及ぼす摩擦係数の影響に関する解析的研究", 粉体工学誌, 29, 261, (1992)

6)Y. Tsuji, T. Kawaguchi and T. Tanaka, "Discrete particle simulation of two-dimensional fluidized bed" *Powder Technol.* **77**, 79-87(1993)

- 7)下坂厚子, 東原茂徳, 日高重助: "コンピュータシミュレーションにもとづくふるい分け速 度の推算", 粉体工学会誌, 35, 242-249(1998)
- 8) J. Kano, H. Mio, F. Saito and M. Tanjo : "Estimation of Size Reduction Rate of Gibbsite in Tumbling Mill with Different Diameter by Computer Simulation" *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **32**, 77-751(1999)

### 3. 研究発表

DEM シミュレーションによる微粒子転動造粒挙動の予測の試み 石原 真吾,八木 圭亮,曽田 力央,加納 純也,齋藤 文良 粉体工学会 2010 年度春期研究発表会

DEM による連続式ドラムミキサー内の粒子挙動の解析 加納純也,曽田力央, 葛西栄輝,齋藤文良,原 応樹,川口尊三 日本鉄鋼協会第 159 回春季講演大会(2010.3.29)

Numerical Simulation for Granulation Kinetics of Iron Ores Junya Kano, Eiki Kasai, Fumio Saito, Takazo Kawaguchi International Symposium on Recent Progress on Mathematical Modeling in Ironmaking 2008, Tokyo(2008.10.17)

離散要素法シミュレーションによる連続式ドラム型造粒機内の粒子挙動の解析 加納純也,曽田力央,葛西栄輝,齋藤文良,原応樹,川口尊三 日本鉄鋼協会第156回秋季講演大会,熊本(2008.9.24)