

## 平成 20 年度研究助成報告（兼、終了報告）

研究題名	大規模粉体シミュレーションによる粒子攪拌プロセスにおける混合/偏析現象の解析に関する研究
研究期間	平成 18 年 4 月 01 日～平成 20 年 12 月 31 日
研究機関・所属 研究者名	(株)けいはんな 京都府地域結集型共同研究事業 研究員 三尾 浩

## 1. 平成 20 年度研究成果の概要

本年度は、パドル攪拌・混合プロセスにおける粒子の持つ帯電量や付着力が粒子挙動に及ぼす影響や、オーガスクルー攪拌・搬送プロセスにおける粒子循環挙動の解析を行った。パドル攪拌における付着力は、電子写真システムにおける実トナー、および、実キャリア粒子を用い、微小粒子間付着力測定器、遠心法を用いて実験的に求め、シミュレーションに導入した。計算中では DEM (Discrete Element Method, 離散要素法) の計算負荷が大きいため、トナー、キャリア粒子を実際より大きく設定し、付着力、クーロン力、接触反発力、重力は、実粒子サイズ(トナー7.4  $\mu\text{m}$ )の条件下における全ての力の相対関係が維持されるように調節した。粒子に帯電量や付着力を考慮しない場合、粒子径差(キャリア/トナー=5.0)により偏析が顕著となり、攪拌槽内壁際に多くのトナー粒子が存在するようになり、混合が進行しない。一方、粒子間付着力、クーロン力(トナー比電荷 15 $\mu\text{C/g}$ )を考慮した条件においては、トナーはキャリア粒子間に多く存在し、十分な混合状態であり、トナーが電荷を得るための十分なチャンスを持つことができる。しかし、トナー帯電量が増加すると、トナー・キャリア間の“新たな”接触頻度は急激に減少することがわかった。そのため、帯電の進行に伴い、多くのトナーがキャリア粒子表面に付着したまま運動し、新たな面での接触が少なくなり、帯電量が飽和することがわかった。

2 連のオーガスクルーにおけるトナー・キャリア粒子攪拌・搬送プロセスにおける、循環挙動は循環部に設置された障害物形状で大きく異なることがわかった。平板形状では、掻き上げに対するデッドスペースが大きくなり、トナーが偏析する。一方、循環部の粒子速度停滞領域を円筒型の障害物で埋めるようすれば、循環部の偏析を低減することができることがわかった。また、攪拌プロセスにおいて、粒子が受ける接触力は、循環部で非常に大きな作用を受けていることが判明し、循環部で停滞している粒子の劣化が酷くなることが予想される。

## 2. 助成期間内での研究成果の概要

## 1. はじめに

粉粒体混合プロセスは原料の配合や前処理、あるいは製品の最終工程に用いられることが多く、食品、医薬品をはじめ、多くの産業で用いられている。混合粉体の均質度は最終製品の品質に大きく

影響するため、その攪拌プロセスの最適化が非常に重要となる。特に、付着力や攪拌時に生じる粒子の帯電は深刻な問題を引き起こし、適切な制御が必要である。一方、2成分電子写真システムにおける現像槽内攪拌プロセスでは、トナーとキャリア粒子を攪拌、混合することにより、トナー粒子に所定の電荷を付与しており、混合時に生じる粒子の帯電現象を利用しているプロセスである。現像剤粒子（トナー、キャリア）の粒子径は非常に小さく（トナー: 5~10 $\mu\text{m}$ , キャリア: 40~80 $\mu\text{m}$ ）、混合挙動への付着力の影響も大きく、これらがプロセスを一層複雑にしている。粉体混合／偏析に関する実験的検討は古くから研究されてきたが、粒子群内部まで詳細に、かつ、リアルタイムで観察、解析することは非常に困難であり、さらには、粒子の帯電、付着力まで考慮しているモデルはほとんどない。このことが装置設計において、大きな障害となっていた。そこで本研究では、DEM (Discrete Element Method、離散要素法)を用いたシミュレーションにより、電子写真システムのパドル、あるいは、オーガスクリーパー攪拌プロセスにおける粒子混合挙動の解析を行い、帯電量や付着力が混合挙動に及ぼす影響を検討することを目標とした。具体的には助成期間3年の間に、下記の3項目について検討を行った。

- ・ モデル検証のための計算と実験との比較 (平成 18 年度)
- ・ 2成分系粒子混合における粒子偏析と帯電、付着力の影響 (平成 19-20 年度)
- ・ オーガスクリーパー搬送・混合プロセスの解析 (平成 20 年度)

## 2. シミュレーション

DEM (Discrete Element Method、離散要素法)はCundallらにより提案されたシミュレーション法であり、粒子を離散体として取り扱い、個々の粒子に作用する全ての力をモデル化し、それぞれの粒子に対する運動方程式を解くことにより、粒子群挙動を解析する手法である。本研究で対象としている粒子混合プロセスは、粒子径差、密度差の存在する混合プロセスであるため、従来のDEMでは計算粒子数が不足し、十分な解析ができない。そこで、これまでに開発してきた高速化DEM<sup>1-4)</sup>をMPI(Message Passing Interface、パドル攪拌挙動解析)やOpenMP(オーガスクリーパーにおける攪拌)を利用した並列計算を行うことで、更に大規模化した。MPIでは図1に示すように、計算領域を分割することにより、計算対象粒子を各プロセッサに分散させた。

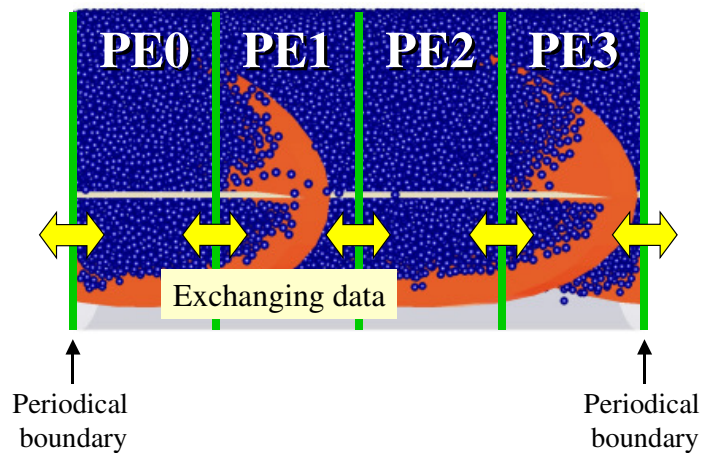


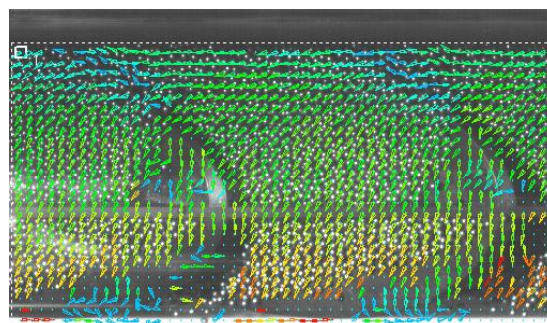
Fig. 1 Schematic diagram of parallel DEM by using MPI

## 3. 研究結果の報告

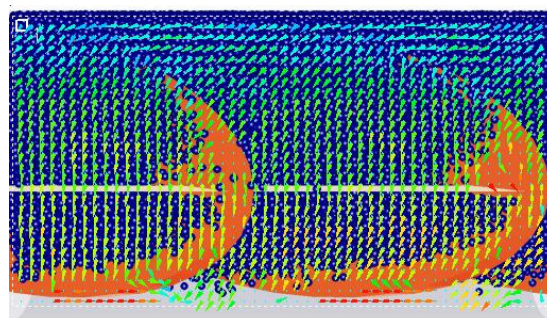
### 3.1 計算と実験との比較

DEMにおけるモデル化とその粒子挙動の妥当性を検証するため、市販の電子写真システムに用いられているパドルをアクリル製の透明円筒容器内に設置し、ビーズの攪拌挙動を高速ビデオカメラで観察し、シミュレーションと比較した。攪拌時の粒子速度はPIV(Particle Image Velocimetry、粒子画

像流速測定法、DIPP-FLOW ver.1.13)で計測し、各時間における速度分布、および、平均速度の時間変化を比較した。図2に1.5mm スチールビーズ、153.8 rpm における実験とシミュレーションの粒子速度結果を示す。図より、両者の速度は非常に類似していることがわかる。図3に攪拌槽中央領域の平均速度とパドル回転角度の関係を示す(1.0 mm スチールビーズ、159.2 rpm)。図より、中央領域内の粒子速度はパドル回転により増減していることがわかる。 $\theta_p = 90^\circ$ 、 $270^\circ$ 付近のピークはパドル間を固定するバーによる攪拌であり、 $\theta_p = 180^\circ$ 、 $360^\circ$ のピークはパドルによるものである。実験、および、シミュレーションにおける粒子速度変化は良く対応しており、シミュレーション結果はパドル攪拌挙動を良く再現していると言える。また、本報告書には載せてはいないが、ビーズ径、ビーズ密度、パドル回転速度を変化させた条件(ジルコニア: 0.5 mm、ポリスチレン: 1.0 mm、100~200 rpm)における、中央領域の平均速度とパドル回転角度の関係も同様に、良好な対応関係が得られている<sup>5)</sup>。以上のことより、本シミュレーションによって再現したパドル攪拌挙動は実験における挙動と非常に良い相関があり、その相関は攪拌条件を変化させても十分なものであることがわかった。このことより、本シミュレーションにより、パドル攪拌における基本的な粒子挙動の推算が可能であることがわかった。1成分系における粒子挙動解析は文献5を参照して頂きたい。



(a) Experimental



(b) Simulation

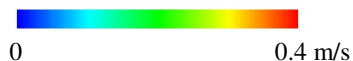


Fig. 2 Velocity field during mixing analyzed by PIV

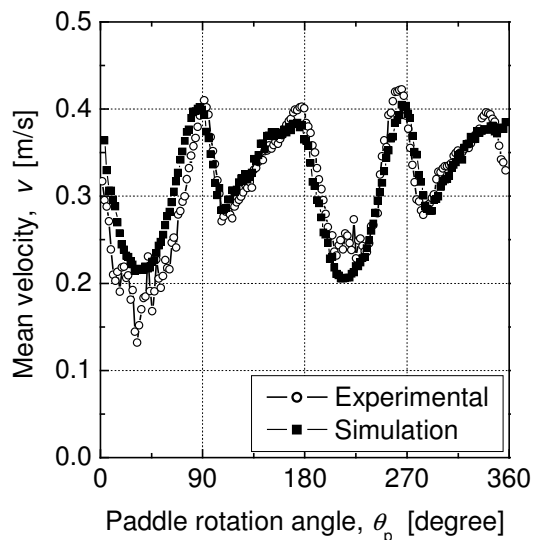


Fig. 3 Relation between mean velocity at the center and paddle rotation angle

### 3.2 2成分系粒子混合における粒子偏析と帯電、付着力の影響

2成分電子写真システムにおける現像槽内では、トナーとキャリア粒子を攪拌、混合し、トナーを帯

電させている。本混合プロセスは粒子径差(サイズ比: 5~10程度)、密度差(密度比: 3~5程度)の存在するプロセスであり、DEM で扱うには非常に困難なターゲットである。また、粒子径に対する攪拌槽サイズが非常に大きく、高速化・並列化を行ったDEMにおいても、実サイズ粒子を扱うことは不可能である。そのため、計算

中では粒子径を実際よりも大きく設定した。キャリア粒子(粒子径: 1000  $\mu\text{m}$ 、密度: 4900  $\text{kg/m}^3$ 、48782 個)とトナー粒子(粒子径: 200  $\mu\text{m}$ 、密度: 1100  $\text{kg/m}^3$ 、277297 個、重量濃度: 1.02wt%)を攪拌槽に投入し、193 rpm でパドルを回転させた(7500 万ステップ)。図4に0.67秒後のスナップショットを示す。図は横からの視点であり、粒子色は青:キャリア粒子、黄:トナー粒子である。図より、トナー粒子が外壁近傍に偏析していることがわかる。これは、トナー粒子径がキャリアの1/5であるため、攪拌中のキャリア粒子群の空隙をすり抜け、壁付近に偏析したためである。図5に各攪拌装置部材とトナー粒子間の接触数の時間変化を示す。図より、外壁との接触数が時間の経過に従って増加しており、トナー粒子が壁際に偏析している傾向がよくわかる。一般的な粉粒体混合プロセスにおいては、このような偏析が生じるが、本

研究で対象としている電子写真システムにおいては、攪拌、混合において、トナーに電荷を付与している。そのため、粒子間クーロン力や、付着力の影響を考慮する必要がある。そこで、微小粒子間付着力測定器<sup>6)</sup>を利用し、実験により実粒子間に作用する付着力を測定し、シミュレーションに導入することとした。しかし、先にも述べたように、本計算では粒子径を実際の粒子よりも大きく設定している。そのため、実測データをそのまま導入することはできない。従って計算中では、実際の粒子径の条件における粒子間反発力、付着力、クーロン力、重力それぞれの相対関係が、計算条件(粒子径を大きく

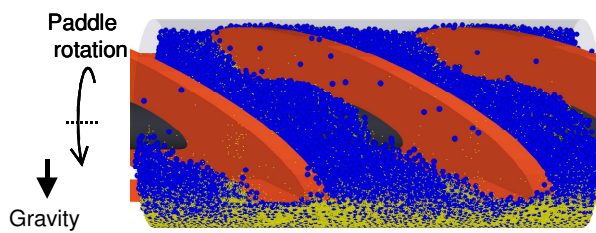


Fig. 4 Snapshot of particle mixing behavior

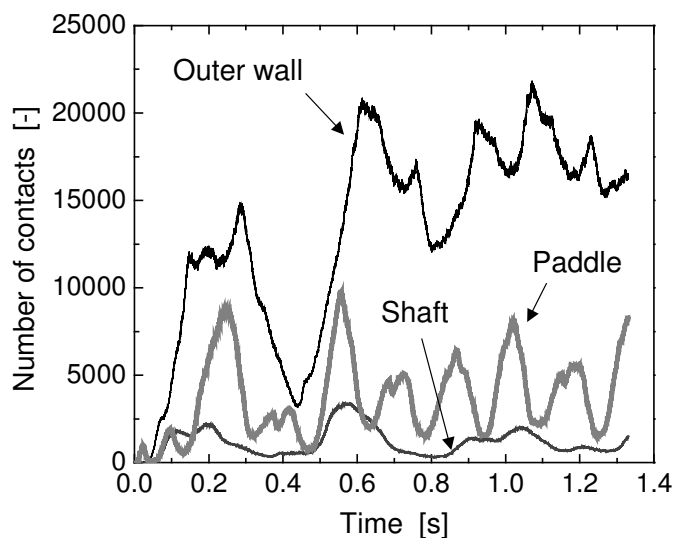


Fig. 5 Number of contact between toner and parts of agitation system

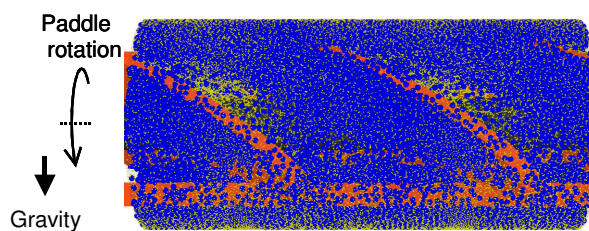


Fig. 6 Snapshot of particle mixing behavior with considering adhesion force and electrostatic force between particles

設定)でも保持されるように、各力を調節した。詳しくは文献 7 を参照して頂きたい。図 6 にトナー比電荷  $15 \mu\text{C/g}$  で付着力を考慮した時の、0.67 秒後の攪拌挙動の様子を示す。図 4 の挙動に比べて、粒子が攪拌槽内全体に広がっていることがわかる。これは、粒子作用力を調節したため、重力が通常の  $200 \mu\text{m}$  粒子よりも小さくなっているためである。また、トナー粒子は付着力やクーロン力の作用により、キャリア粒子間に多く存在し、壁際に偏析している傾向は確認できない。図 7 に、トナー・キャリア粒子間の接触数の経時変化を示す。付着力、帯電量を考慮しない場合では、トナーが壁際に偏析するため、接触数は非常に少ない。一方、付着力、帯電量を考慮すると、両者は引き寄せられ、接触数が著しく増加することがわかる。しかし、トナー・キャリア粒子間の“新たな”接触数の経時変化(図 8)に着目すると、その関係は大きく異なる。ここで、“新たな”接触数とは、時刻  $t$  において接触状態にあるトナー・キャリア粒子ペアのうち、時刻  $t-\Delta t$  で接触状態になかったものをカウントしたものである。図より、付着力等を考慮しない場合は、両粒子間の作用力は、接触反発力が支配的であるため、接触、分離を繰り返す。一方、付着力等を考慮した場合は、新たな接触数は次第に減少していく。このことより、トナーはキャリア粒子表面に接触した状態の

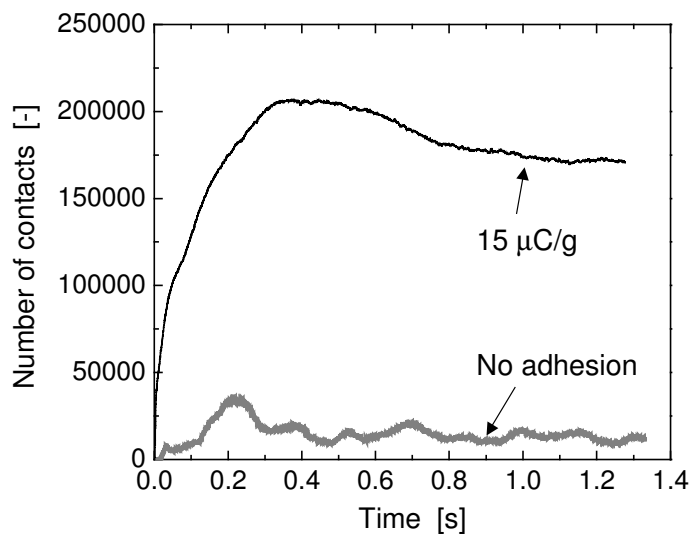


Fig. 7 Number of contact between toner and carrier particles

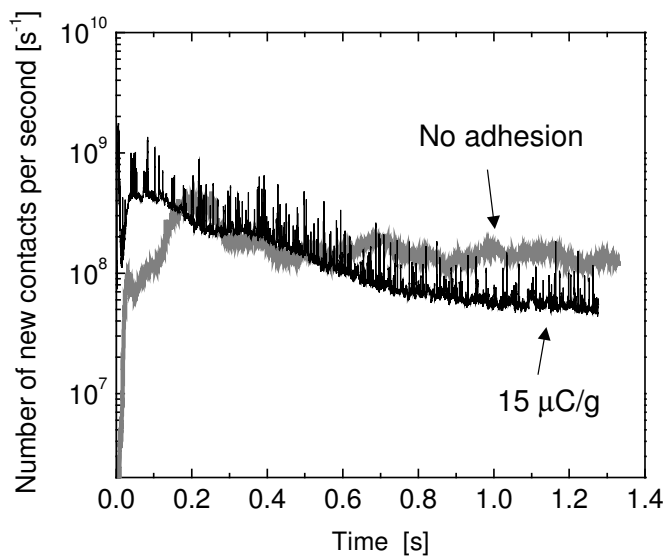


Fig. 8 Number of “new” contacts between toner and carrier particles

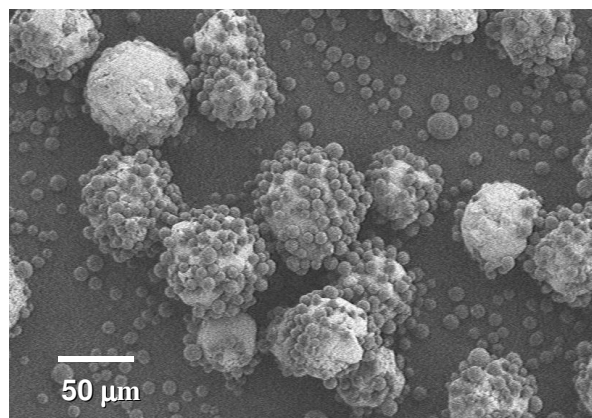


Fig. 9 SEM image of particles after tribocharging test



まま運動していることが推算される。よって、時間の経過と共に新たな接触が減少し、電荷を得る機会が減少すると考えられる。このことが、帯電実験においてトナー比電荷が飽和する理由であると推算できる。トナー・キャリアの攪拌後のSEM画像を図9に示す。十分な帯電処理後、シミュレーションでも予想されたように、トナー粒子はキャリア表面にしっかりと付着していることが確認できた。本シミュレーションを用いて、各帯電量における新たな接触頻度を求め、その頻度に応じた電荷移動をモデル化することにより、各攪拌条件におけるトナー帯電の推算式が提案できると考えられる。

### 3.3 オーガスクリーパー搬送・混合プロセスの解析

2 成分電子写真システム現像槽における攪拌翼形状は、装置サイズや印刷速度により使い分けられる。一般的にパドルやオーガスクリーパーが多く、小型機になると後者が多用される。現像槽内では2連のスクリーパーを設置し、現像剤をオーガスクリーパーによって搬送・循環させながら、現像領域にトナーを供給している。現像槽内では、トナー濃度分布や帯電量の均一化が非常に重要であるが、攪拌・搬送過程における粒子間作用力等による、トナーの劣化が大きな問題となる。特に、2連のオーガスクリーパーの循環部において、トナーの受ける力をいかに低減させるかということが重要である。図10にオーガスクリーパーによる現像剤攪拌・搬送過程のシミュレーション結果を示す。計算条件は、キャリア粒子(500  $\mu\text{m}$ , 299398個)、トナー粒子(250  $\mu\text{m}$ , 79878個)であり、回転速度 300 rpm とした(2000 万ステップ)。計算は OpenMP を利用した共有メモリ型並列計算を行い、4 コアを用いて高速化した。図中の粒子色は黄:キャリア、緑:トナーを表す。図より、左端に位置していたトナー

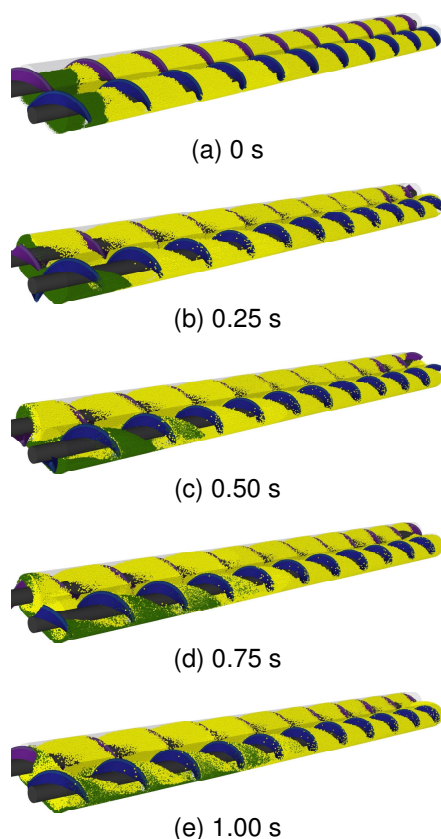


Fig. 10 Snapshots of particle behavior during auger mixing

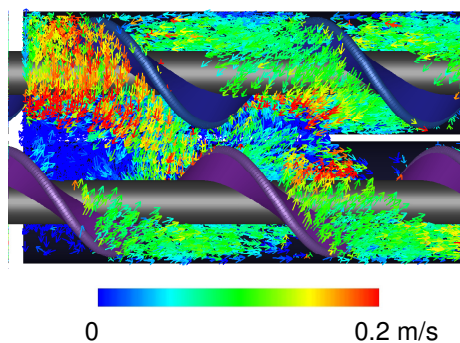


Fig. 11 Snapshots of particle velocity

粒子が時間の経過に従って攪拌、搬送されていく様子がわかる。また、粒子径偏析によりトナーは下壁近傍に多く存在していることが確認できる。図11に循環部の粒子速度ベクトルの様子を示す。図より、循環部での粒子挙動は非常に複雑であることが容易に推測できる。また、オーガにより逆方向に再び戻される流れも存在することがわかる。図12に軸方向の断面における粒子速度ベクトルを示す。図より、オーガスクリーパーの中間部における粒子はオーガによる掻きあげ効果が小さく、デッドスペースとなり、粒子が停滞していることがわかる。そこで、この領域に障害物(平板、三角形、円筒)を設置し、それ

らの影響を検討した。図 13 に 2 秒後の粒子挙動の様子を示す。障害物が平板や三角形の時はデッドスペースがより顕著になり、トナー（小粒子径、低密度）が停滞する。一方、フラットや円筒型ではトナーの偏析は少なく、粒子の循環挙動への影響は小さいことがわかる。特に、円筒型はデッドスペースをほぼ解消しているため、粒子の掻きあげ効果も上昇する。図 14 には、攪拌開始から 2 秒間にトナーが受けた積算接触力の様子を示す。図中の粒子色は力の大きさにより設定されており、また、トナーを見やすくするため、キャリア粒子は表示していない。図より、循環部におけるトナー粒子が非常に大きな力を受けていることがわかる。一方、オーガにより搬送されている領域の粒子の接触力は非常に小さい。図 15 に、4 つの異なる循環領域条件において、攪拌開始から 2 秒間に受けた接触力の頻度分布を示す。図より、どの条件においても広い分布を持つことがわかる。また、循環部に平板や三角形の障害物を設置した時は、他のものに比べて分布が高い方向にシフトしていることが確認できる。これは、明確なデッドスペースが存在し、その領域に溜まった粒子が圧縮作用を常に受けているためであると推測される。一方、フラットや円筒型では比較的小さいことがわかり、特に円筒型では、先に述べたように循環部における掻きあげ効果の増加もあり、非常に有効なものであることがわかった。

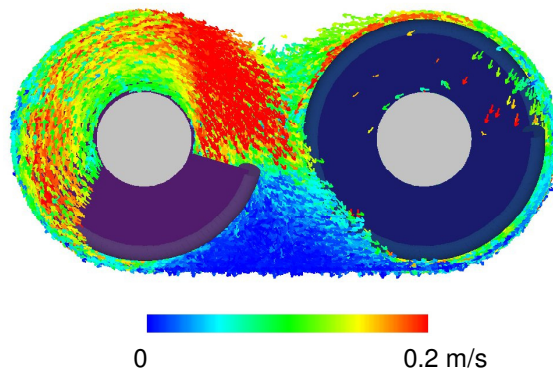


Fig. 12 Snapshots of particle velocity of cross section

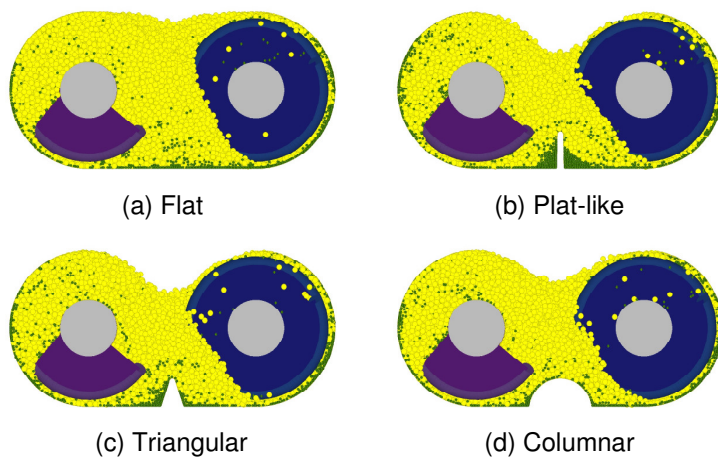


Fig. 13 Snapshots of particle behavior at circulating area

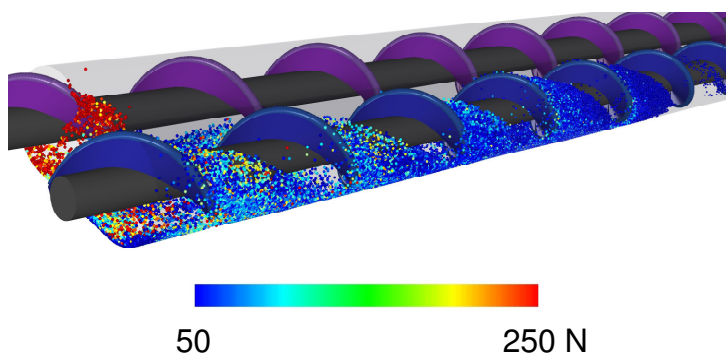


Fig. 14 Snapshots of toner particles colored by the accumulated contact force

#### 4. おわりに

本助成を頂き、3 年の間に 2 成分電子写真システム現像槽内におけるパドル攪拌、および、オーガスクリーによる搬送・攪拌プロセスの基本的なプログラムの構築は完成した。本研究では、電子写真システム内の微粒子混合プロセスに着目し、各操作条件や粒子間付着力等が混合挙動に及ぼす影響を検討してきた。粉粒体の混合プロセスは電子写真プロセスだけでなく、多くの分野で活用されており、食品や医薬品業界等でも重要なもので

ある。当然、本シミュレーションを適応することは可能であり、他の分野でも十分に役に立てるレベルであると思われる。しかしながら、従来 DEM よりも高速化・並列化したプログラムを用いているが、解析粒子数はまだまだ不足している。特に、粒子径差の大きい微粒子を対象としているため、計算規模の拡大、計算速度の向上は、引き続き大きな課題であると考えている。

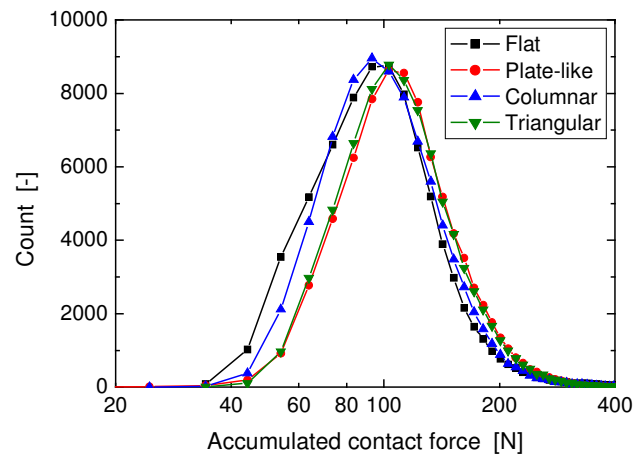


Fig. 15 Distribution of accumulated contact force

#### 参考文献

- 1) H. Mio, A. Shimosaka, Y. Shirakawa and J. Hidaka : *J. Chem. Eng. Jpn.*, **38**, 969 (2005).
- 2) H. Mio, A. Shimosaka, Y. Shirakawa and J. Hidaka : *J. Chem. Eng. Jpn.*, **39**, 409 (2006).
- 3) H. Mio, A. Shimosaka, Y. Shirakawa and J. Hidaka : *Adv. Powder Technol.*, **18**, 441 (2007).
- 4) 三尾浩、下坂厚子、白川善幸、日高重助 : 粉体工学会誌, **44**, 206 (2007).
- 5) 三尾浩、樋口亮平、石丸和花奈、下坂厚子、白川善幸、日高重助: 粉体工学会誌, in press (2009).
- 6) Y. Shimada, Y. Yonezawa and H. Sunada : *J. Pharm. Sci.*, **92**, 560 (2003).
- 7) H. Mio, R. Higuchi, W. Ishimaru, A. Shimosaka, Y. Shirakawa and J. Hidaka : *J. Imaging Soc. Jpn.*, in press (2009).

#### 3. 助成期間内での研究発表

##### 学術論文

- 1) 並列化 DEM による電子写真システム内粒子攪拌挙動に及ぼすパドル回転速度の影響  
三尾浩、樋口亮平、石丸和花奈、下坂厚子、白川善幸、日高重助  
粉体工学会誌, in press, (2009)



2) Effect of Electrostatic Charge of Toner Particle on Mixing Behavior in Two-component Electrophotographic System by Parallel Discrete Element Method

Hiroshi Mio, Ryohei Higuchi, Wakana Ishimaru, Atsuko Shimosaka, Yoshiyuki Shirakawa and Jusuke Hidaka

Journal of the Imaging Society of Japan, in press (2009)

## 解説

1) 高速 DEM による粉粒体プロセス内粒子挙動の解析事例

三尾浩

実用産業情報, **42**, 8-14 (2007)

## 口頭発表

1) 並列化 DEM による 2 成分現像槽内オーガ攪拌における粒子挙動の解析

三尾浩、石丸和花奈、樋口亮平、下坂厚子、白川善幸、日高重助

日本画像学会, Imaging Conference JAPAN 2008 Fall Meeting, 京都, 2008 年 11 月

2) 粒子混合過程に及ぼすパドル攪拌条件と粒子帯電量の影響

三尾浩、樋口亮平、石丸和花奈、下坂厚子、白川善幸、日高重助

粉体工学会, 第 44 回夏期シンポジウム, 京都, 2008 年 8 月

3) Analysis of developers mixing behavior in two-component electrophotographic system by parallel Discrete Element Method

Hiroshi Mio, Ryohei Higuchi, Wakana Ishimaru, Atsuko Shimosaka, Yoshiyuki Shirakawa, Jusuke Hidaka

Pan-Pacific Imaging Conference '08 (PPIC'08), Tokyo (Japan), June 2008

4) Effect of Electrostatic Charge on Particle Mixing Behaviour in Agitation System by Parallel Discrete Element Method

Hiroshi Mio, Ryohei Higuchi, Atsuko Shimosaka, Yoshiyuki Shirakawa, Jusuke Hidaka

International Symposium Reliable Flow of Particulate Solids IV (RELPOWFLO IV), Tromsø (Norway), June 2008

5) Analysis of Granular Flow in Particulate Process by Large-scale Discrete Element Method

Hiroshi Mio

International Seminar on Mineral Processing Technology (MPT2008), Trivandrum (India),

April 2008

- 6) Analysis of Particle Mixing Behavior having Different Size and Density by using Parallel Discrete Element Method

Hiroshi Mio, Atsuko Shimosaka, Yoshiyuki Shirakawa, Jusuke Hidaka

Core-to-Core Young Researchers Symposium, Melbourne (Australia), December 2007

- 7) 高速化 DEM による最新の粉粒体プロセス解析事例とこれからの粉体シミュレーション  
三尾浩

化学工学会関西支部セミナー, 生駒市, 2007 年 6 月

- 8) Analysis of Particle Mixing Behavior in Agitation System by Large-scale Discrete Element Method

Hiroshi Mio, Atsuko Shimosaka, Yoshiyuki Shirakawa, Jusuke Hidaka

International Congress for Particle Technology 2007 (PARTEC2007), Nuremberg (Germany),  
March 2007

- 9) 大規模粉体シミュレーションによる現像槽内攪拌挙動の解析

三尾浩、下坂厚子、白川善幸、日高重助

日本画像学会, Imaging Conference JAPAN Fall Meeting, 京都, 2006 年 11 月