14502

動的な液体架橋による粒子間付着メカニズムの解明

Elucidation of Mechanism of Particle-Particle
Adhesion by Dynamic Liquid Bridge

援助対象者 Scholarship Student: 菅 裕之 Hiroyuki KAN

菅 裕之

大阪府立大学大学院工学研究科 博士課程後期 1 年

Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University, PhD Student (D1)

E-mail: hkan@chemeng.osakafu-u.ac.jp

研究指導者 Academic Leader: 仲村 英也 Hideya NAKAMURA

准教授, Associate Professor

E-mail: hnakamura@chemeng.osakafu-u.ac.jp

成果の概要

目的

粉体を攪拌や流動化させながら結合液を添加して、粒子同士を液架橋により凝集させる造粒操作は、様々な分野で用いられている重要な粉体プロセスである。造粒物の物性は、これを元に製造される製品の品質や機能を大きく左右する。そのため、造粒においてどのように原料粒子が凝集体を形成するのかを理解することは重要な課題である。特に、凝集体形成時の最も基礎的な素過程である「液滴を介して粒子が衝突する際の粒子付着現象」の解明が重要である。この粒子付着現象は、液架橋の変形を伴いながら粒子同士が衝突・付着する非常に複雑な現象であるため、実験による詳細な解析は困難である。そこで、数値シミュレーションによるアプローチが有効であると考え、これまでにシミュレーションモデルを構築した^[1]。本研究では、構築したシミュレーションモデルを用いて、液滴を介して粒子が衝突する際の粒子付着現象

に、固体粒子表面の濡れ性（接触角）が及ぼす影響を解析した。

数値シミュレーション手法

粒子間に形成される液架橋の挙動を計算するためには、固体・液体・気体を含む 3 相流れを解く必要がある。本研究では、数値流体力学 (CFD) を用いて気液 2 相流れを解き、液架橋から受ける力を外力として考慮した粒子に関する運動方程式を解くことにより粒子運動挙動を求めた。気液 2 相流れにおける基礎方程式として、以下に示す連続の式、Navier-Stokes 式、液相カラー関数の移流方程式を用いた：

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho_f} \nabla p + \frac{\mu_f}{\rho_f} \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{f}_{sf} + \mathbf{f}_p + \mathbf{g} \quad (2)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \phi = 0 \quad (3)$$

ここで、 $\mathbf{u}$, t , ρ_f , p , μ_f , $\mathbf{f}_{sf}$, $\mathbf{f}_p$, $\mathbf{g}$ は流体速度、時間、流体密度、圧力、流体粘度、表面張力、粒子–流体間相互作用力および重力加速度をそれぞれ表す。また、液相カラー関数 ϕ は流体相の種類を区別するための変数であり、 $\phi=0$ では気相、 $\phi=1$ では液相が計算格子を占めていることを示す。気液界面の変形挙動は Eq. (3) を解くことにより求められる。Eq. (3) の数値計算手法として Constrained Interpolation Profile (CIP) 法^[2]を用いた。表面張力 $\mathbf{f}_{sf}$ は Continuous Surface Force (CSF) モデル^[3]、粒子–流体間相互作用力 $\mathbf{f}_p$ は埋め込み境界法^[4]を用いて算出した。次に、粒子の運動挙動は以下の運動方程式を数値積分することにより求めた：

$$M_p \frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = \mathbf{F}_d + \mathbf{F}_{sf} + \mathbf{F}_{cp} + M_p \mathbf{g} \quad (4)$$

ここで、 M_p , $\mathbf{u}_p$, $\mathbf{F}_d$, $\mathbf{F}_{sf}$, $\mathbf{F}_{cp}$ は粒子質量、粒子速度、流体抗力、表面張力および毛管圧力をそれぞれ示す。流体抗力 $\mathbf{F}_d$ は粒子–流体間相互作用力 $\mathbf{f}_p$ を粒子体積で積分することにより求め、表面張力 $\mathbf{F}_{sf}$ は Continuous Capillary Force (CCF) モデル^[5]を用いて算出した。また、毛管圧力 $\mathbf{F}_{cp}$ は固液気3相境界で囲まれた面積および液相と気相の圧力差から求めた。

結果および考察

流動層造粒における粒子凝集過程を単純化した系として、粒子表面上に付着した液滴を介して2粒子が衝突・付着する現象を解析した。Fig. 1 ($t=0 \mu\text{s}$) に示すように、液滴が付着した2粒子を法線方向に衝突させた。粒子物性には $50 \mu\text{m}$ のラクトース、液体物性には水を用いた。本検討では、粒子の相対衝突速度 $v(=|\mathbf{v}_{1,\text{init}} - \mathbf{v}_{2,\text{init}}|)$ を変化させ、接触角 θ が粒子付着現象に及ぼす影響を解析した。

Fig. 1 に、 $\theta=30, 120 \text{ deg}$ における $v=1.0 \text{ m/s}$ のシミュレーション結果を示す。 $\theta=30 \text{ deg}$ の場合 (Fig. 1 (a))、粒子同士の衝突・反発後、液架橋は破断することなく最終的に2粒子は付着した。一方、 $\theta=120 \text{ deg}$ の場合 (Fig. 1 (b))、

粒子同士が衝突する前に反発し、液架橋が粒子表面から離れて2粒子は最終的に分離した。このように、同じ相対衝突速度であっても、接触角によって粒子および液架橋の運動挙動は大きく異なることが分かった。

Fig. 2 に、粒子付着・分離の境界速度である臨界衝突速度 v_c と接触角の関係を示す。接触角の増加に伴って臨界衝突速度も増加するが、 $\theta=60 \text{ deg}$ で極大値を示し、それ以降では減少した。このように、臨界衝突速度はある接触角において極値を持つことが分かった。これについて詳細に解析したところ、 $\theta=60 \text{ deg}$ は粒子間液架橋がより大きく伸長することができ、か

Fig. 1 Behaviors of particles and liquid bridge at different contact angles ($v=1.0 \text{ m/s}$).

Fig. 2 Critical velocity for particle adhesion as a function of contact angle.

つ粒子運動を減衰させるエネルギーが最大となる条件であった。

まとめ

数値シミュレーションを用いて、液滴を介して粒子が衝突する際の粒子付着現象における、濡れ性が及ぼす影響を検討した。その結果、臨界衝突速度はある接触角において極値を持ち、臨界衝突速度には液架橋の伸長距離が大きく寄

与することを明らかにした。

参考文献

- [1] H. Kan et al., *Chem. Eng. Sci.*, **138**, 607–615 (2015)
- [2] T. Yabe et al., *J. Comput. Phys.*, **169**, 556–593 (2001)
- [3] J. U. Brackbill et al., *J. Comput. Phys.*, **100**, 335–354 (1992)
- [4] T. Kajishima et al., *Int. J. Heat Fluid Flow*, **23**, 639–649 (2002)
- [5] K. Washino et al., *Chem. Eng. Sci.*, **93**, 197–205 (2013)

外部発表成果

論文発表

- 1. Kan H., Nakamura H. and Watano S, Numerical simulation of particle-particle adhesion by dynamic liquid bridge, *Chem. Eng. Sci.* **138** (2015), 607–615.

口頭・ポスター発表

- 1. 菅 裕之, 仲村 英也, 綿野 哲, “湿式造粒プロセスにおける粒子間付着現象の数値解

析”, 粉体工学会第 50 回技術討論会「造粒と成形」(大阪, 2015 年 6 月).

- 2. 菅 裕之, 仲村 英也, 綿野 哲, “液滴を介して粒子が衝突する際の粒子付着現象の数値解析”, 2015 年度第 2 回粉体操作に伴う諸現象に関する勉強会 (滋賀, 2015 年 8 月).
- 3. 菅 裕之, 仲村 英也, 綿野 哲, “液滴を介して粒子が衝突する際の粒子付着現象の解析”, 第 32 回製剤と粒子設計シンポジウム, 愛知 (2015 年 10 月).
- 4. 菅 裕之, 仲村 英也, 綿野 哲, “固体表面の濡れ性が粒子付着現象に及ぼす影響”, 化学工学会第 81 年会, 大阪 (2016 年 3 月).