二次元モデルによる粉体充てんのシミュレーション*

砂 田 久 一** 佐 藤 安 寛** 大 塚 昭 信**

The Use of Digital Computer for Simulation of Powder Compaction
on Two-Dimensional Model

by

Hisakazu SUNADA, Yasuhiro SATO and Akinobu OTSUKA

(Faculty of Pharmacy, Meijo University, Nagoya)

A simulation of powder compaction on two dimensional model introducing cohesion probability P' has been reported previously²⁾.

In the present work the coordination number of a disc was taken into consideration in the process of shifting the disc to the lower layer, and another probability P'' was introduced in the step of insertion of a disc into the hole created by shifting of the former disc.

The data of porosity and tapping number followed Kawakita's equation when P' was relatively large and P'' small. On the other hand, Kuno's equation was applicable when P' was small and P'' large.

Furthermore, comparisons between two-dimensional porosity ϵ_d and three-dimensional porosity ϵ_v were made using both the regular packing model and the random packing model.

(Received Mar. 6, 1973)

1 緒 言

粉体の充てん機構を解明する手段として、最近粒子の二次元モデルを用いた思考実験がいくつか行なわれ、良好な結果が得られたことが報告されている¹⁾。

著者らはタップ充てん過程を調べるために、粒子の二次元モデルを用い、充てん性に特に関係があると考えられる粒子間に働く付着力をいろいろ仮定して、タップ充てんのシミュレーションを行なった²⁾。本報では、粒子の抜けた跡に粒子をはめ込む確率を変化させたり、一個粒子の付着力を接触数により変化させて充てんを行ない、従来より提出されている充てんの速度式に対する適合性について検討を行なった。さらに二次元と三次元の充てん層の比較検討も行なった。

2 方 法

2・1 初充てん層の形成

用いた粒子モデルはすべて半径1の等大円板とし、これを幅40の一定容器内に順次充てんするのであるが、その際三つの方法を試みたが、方法-IおよびIIについては前報において述べた。

充てん方法-IIIは容器内に充てん座席を定めずに、全くランダムに充てんを行なう方法である。すなわち、擬似乱数により x 座標を定めた粒子を、順次容器内に垂直に落下させ、他の粒子に接触するたびに発生させた擬似乱数と付着確率とを比較し、付着確率よりも乱数の方が大きい場合には、付着力によりその位置に留まるものとし、小さい場合には、接触した粒子に沿ってさらに下方に滑り落ちるものとした。また同時に二個の粒子と接触した場合には、乱数の大きさに関係なくその位置で静止する。この方法により形成された充てん層は、三次元の充てん層との比較に用いた。

また器壁の影響を除くために、Fig. 1Aに示されているように、前報と同じような処置を行なった。

2・2 タッピング操作

以上のようにして形成された充てん層中の粒子を、下方に移動させることにより、タッピング操作を表現した。この場合にも付着確率 P' を定め、これと擬似乱数とを比較し、乱数の方が大きくて、しかも Fig. 1 C, D に示されている C_2, D_2 の位置に粒子が存在しない場合には、 C_3, D_3 の位置にある粒子は矢印の方向、すなわち C_2, D_2 の位置に移動するものとした。

* 原稿受理 昭和48年3月6日

** 名城大学薬学部 名古屋市昭和区天白町八事

Fig. 1. Packing process by two-dimensional model.

このとき C_3 , D_3 の位置があくことになるが、その場合の処置として次の三つの操作を行なった。

(1) タッピング操作-I' C_3 , D_3 の位置にあった粒子により支えられていた上方の粒子は、支えがなくなったために、 C_3 , D_3 の位置まで下がる。したがって、それよりさらに上にある粒子は順次一段ずつ下がることになる。

(2) タッピング操作-II' C_3 , D_3 の位置があいた跡に、ある確率 P'' で粒子をはめ込む。これは操作-I' と同様に粒子を一段ずつ下方に移動させることになるのであるが、そのとき最上段にある粒子は、充てん層の表面にある粒子とは考えずに、充てん層中にあるものと考え、一段分抜けただけ上方より最上段に一個粒子が補給される。すなわち上段付近の不均一さが充てん層に与える影響を消去するという考えである。この処置をすると、下方の粒子が移動しても上方付近の構造は不変である。

(3) タッピング操作-III' 一個粒子の付着力は、接触数に比例して大きくなると考えられるので、擬似乱数をその粒子の接触数で除したものと、付着確率 P' とを比較することにより一個粒子の付着力を変化させて充てんを行ない、粒子の抜けた跡に確率 P'' で粒子をはめ込む。

以上のような操作を容器内の 1 から 400 までの位置に存在する粒子に対して行ない、これをもって一回タッピングを行なったものとした。この操作を数回から数 10 回繰り返す、その都度粒子の移動した位置を記録した。

なお充てん方法-I, II およびタッピング操作-I' と $P''=100\%$ の場合の II' についてはすでに報告した。

3 結果と考察

Fig. 2 は付着確率 $P=30\%$ で、充てん方法 II により形成された充てん層を、Fig. 3 はこれを付着確率 $P'=30\%$ 、粒子をはめ込む確率 $P''=50\%$ で 10 回タッピングを操作-III' で行なったものを示している。

Fig. 4, 5 は計算結果の一例を示したもので、それぞれタッピング操作-II', III' の場合について、タッピング回数と空隙率の減少を示したものである。

従来より、粉体のタップ充てんに関する速度式として、川北および久野の式が提出されている。

$$\frac{1}{\epsilon_n - \epsilon_f} = K_n + \frac{1}{\epsilon_0 - \epsilon_f} \quad (1) \quad (\text{川北の式})$$

Fig. 2. Location of discs in the container, number of tapping $n=0$, cohesion probability $P=30(\%)$, packed by the method II.

Fig. 3. Location of discs in the container, number of tapping $n=10$, cohesion probability $P=30(\%)$, $P''=50(\%)$, packed by the method II and tapped by the method III'.

Fig. 4. Reduction of porosity by tapping treatment, packed by the method II and tapped by the method II'.

Fig. 5. Reduction of porosity by tapping treatment, packed by the method II and tapped by the method III'.

$$\epsilon_n - \epsilon_f = (\epsilon_0 - \epsilon_f) e^{-K'/n} \quad (2) \quad (\text{久野の式})$$

ただし ϵ_0 , ϵ_n , ϵ_f は最初の、 n 回タップ時のおよび最終の空隙率、 K , K' は充てんの速度に関する定数である。いま著者らが得た結果のこれらの式に対する適合性を調べるために、横軸にタッピング回数、縦軸

Fig. 6. Kawakita and Kuno plot using data packed by the method II and tapped by the method II'.

Fig. 7. Kawakita and Kuno plot using data packed by the method II and tapped by the method III'.

Fig. 8. Variation of rate constant by cohesion probability P' , the case of Fig. 6.

Fig. 9. Variation of rate constant by cohesion probability P' , the case of Fig. 7.

に $1/(\epsilon_n - \epsilon_f)$ および $\log(\epsilon_n - \epsilon_f)$ をとり図示すると Fig. 6, 7 のような直線関係が得られ, Fig. 7 のタッピング操作-III' の方がよりよく適合していることがわかる.

Fig. 6, 7 の各直線部分の傾斜より K, K' を求め, 横軸に $(100 - P')$ をとり, P および P'' をパラメータとして示したのが Fig. 8, 9 であり, 良い相関性が見られ, P' が充てんの際の速度に関する定数と密接に結びついていることがわかる.

Fig. 6 よりも Fig. 7 の方がより直線性を示していることより, タッピング操作-III' の方がより現実にそくしていると考えられるので, この場合について, いろいろの P' と P'' の値の組合せの結果の, 川北および久野の式への適合性の度合について検討を行なった. Table I において (○) 印はよく適合していることを, (△) 印は比較的良好に適合していることを, (×) 印はあまりよく適合していないことを示している. これより P' が大きく P'' が小さい場合には川北の式によく適合している. すなわちこの場合の充てん過程は $-d\epsilon/dn$ が ϵ の 2 乗に比例しているとみなすことができる. P' が小さくて P'' が大きい場合には, 久野の式によく適合し, 充てん過程は $-d\epsilon/dn$ が ϵ に比例しているとみなすことができる.

Table I. Adaptation of data to Kawakita's and Kuno's empirical equation.

Kawakita							Kuno									
		P'							P''							
P	30	10	30	40	50	70	100	P	30	10	30	40	50	70	100	
	0					x	x		0							o
	10	Δ	x	x	x	x			10	Δ	Δ	Δ	Δ	Δ	Δ	
	30		x		x	x	Δ		30		x		Δ	Δ	Δ	
	40				o		Δ		40				o		Δ	Δ
	50	Δ	Δ		x	x			50	x	x		x	x		
	70	Δ	Δ		x	x	x		70	x	x		x	x	x	

○ ; Good △ ; Fairly good × ; Poor

4 二次元と三次元の充てん層の比較

従来より充てん層中の種々の現象に関して, 二次元および三次元の理論や実験は少なからず行なわれているが, この二つを関連づける研究はあまりみられない. 最近 Kausch³⁾ は球形粒子の充てん層の断面に現われた円の面積の分布より

$$\epsilon_v = \frac{0.178 + 0.822 \epsilon_A}{0.8446 + 0.1554 \epsilon_A} \quad (3)$$

を導いた. ここで ϵ_A は二次元の充てん層の空隙率, ϵ_v は三次元の充てん層の空隙率である. また 梅谷¹⁾ は二次元モデルと三次元モデルを比較することにより

$$\epsilon_v = \epsilon_A^{0.42} / 1.27 \quad (4)$$

を得た. 一方 Meissner⁴⁾ は球形粒子の三次元の規則

充てんに“Open-beam packing”なる充てん形式を導いた。すなわち“Open-beam cubic packing”では

$$1-\varepsilon_v = \frac{\pi(1+3n)}{6(n+1)^3} \quad (5)$$

“Open-beam hexagonal packing”では

$$1-\varepsilon_v = \frac{\pi(1+3n)}{3(n+1)^3} \quad (6)$$

ここで $(n+1)$ は単位構造一稜当たり存在する粒子の数である。

(5), (6)式に対応する二次元の充てん層の空隙率を示す式を求めてみると

$$1-\varepsilon_A = \frac{\pi(1+2n)}{4(1+n)^2} \quad (7)$$

$$1-\varepsilon_A = \frac{2\pi(1+n)}{3\sqrt{3}(1+n)^2} \quad (8)$$

著者らは付着確率 P をいろいろ変化させて、いろいろの空隙率を有する三次元の充てん層を作ったが、今回も充てん方法-Ⅲにより、 P を変化させていろいろの空隙率を有する二次元の充てん層を作った。

Fig. 10. Comparison between two-dimensional porosity ε_A and three-dimensional porosity ε_v .

Fig. 10 には(3), (4)式および同じ n の値を有する充てん層は対応するものとして(5)~(7)式, (6)~(8)式より計算した ε_A と ε_v の関係を、同様に同じ付着確率 P により形成された充てん層は対応するものとして ε_A と ε_v の関係を図示したものである。

これより著者らの結果と“Open-beam packing”および黒丸で示された規則充てんとはよい一致を示しているが、(3), (4)式とは ε_A が 0.4~0.5 付近ではかなりのずれがみられる。

5 結 論

電子計算機を用いて二次元モデルによる粉体充てんのシミュレーションを、いろいろな充てん方法により行なったが、タッピング操作-Ⅲ'がより現実には則しており、川北および久野の式への適合性を調べた結果、充てん過程は P' が大きく P'' が小さい場合には川北式で P' が小さく P'' が大きい場合には久野式であらわされることがわかった。

さらに二次元と三次元の充てん層の関連づけを行なうことができた。

最後に計算の一部を担当されました当時学生であった坪井利治君に深謝します。

(昭和47年11月1日 第10回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 梅谷 薫他, 第6~10回粉体討論会要旨集 (1968~1972).
- 2) 砂田久一, 山本伸行, 岡本光美, 大塚昭信, 材料, **21**, 508 (1972).
- 3) Kausch, H.H., J. Colloid & Interface Sci., **37**, 603 (1971).
- 4) Meissner, H.P., et al., I & EC Process Design and Development, **3**, 202 (1964).
- 5) 中垣正幸, 砂田久一, 薬誌, **81**, 1570 (1961); **82**, 629 (1962); **83**, 78 (1963).