非等速ロール間における粉体圧縮モデルの提案

草野 巧巳*, 谷 昌明, 奥田 勝治, 中村 浩

Modeling of Differential Speed Rolling of Powder

Takumi Kusano*, Masaaki Tani, Katsuharu Okuda and Hiroshi Nakamura

Received 1 April 2021; Accepted 21 June 2021

When powder is compacted by a differential speed rolling, the roll speed ratio of the two rolls greatly affects the structure of the compacted product. However, the effect of the roll speed ratio on the structure of the compacted product has not been calculated. In this paper, for compaction process with a differential speed rolling, the weight of the compacted product per unit area was calculated by using a modified Johanson model assuming the velocity gradient of powders, and the calculated values were compared with experimental results. As a result, both the calculated and measured weight of the compacted product decreased as the roll speed ratio increased and the roll gap decreased. It was confirmed that the roll speed ratio dependence and the roll gap dependence of the weight calculated by a modified Johanson model showed the similar trend as those of the experimental results.

Keywords: Roll compaction, Powder, Nip angle, Angle of internal friction, Johanson model.

1. 緒 言

ロール圧縮プロセスは金属のシート成形や錠剤成形など、さまざまな製造分野で使用されている[1,2]。ロール圧縮は、粉体を2本のロールで圧縮することにより、シート状成形体やタブレットなどの連続体へと成形するプロセスである。この時、製品の品質を安定にするために成形体密度や圧縮応力を予想することは重要であり、等速ロール条件 (Fig. 1) での成形体密度や圧縮応力がJohansonモデルにより計算されている[3]。このモデルでは、まず、ロール壁面と粉体で滑りが生じる「Slip region」と、滑りが生じない「Nip region」があると仮定し、これらの領域が入れ替わる角度を「Nip angle」と定義される。そして、この考えの元にロールに加わる応力を計算しており、ロール上の応力分布が実測値と一致することも確認されている[4]。

Johansonモデルでは、粉体の噛み込み方向に粉体の流れを1次元的に計算しているが、実際はロール側で粉体が速く動き、ロール間のギャップ中央部では粉体の流れが遅くなると考えられる。実際、DEMシミュレーションやFEMシミュレーションによりロール表面近傍とロール間のギャップ中央部で粉体の速度に差があることがわ

Fig. 1 Schematic illustration of two-roll press

かっており、Johansonモデルで求める質量流量は実測値と異なることがわかっている[5,6]。そのため、質量流量の見積もりを行う際には、JohansonモデルよりもFEMシミュレーションが適していると考えられる[6]。しかし、JohansonモデルのNip angleは妥当であること、シミュレーションよりもパラメータが少なく計算が容易であることから、プロセス条件と成形体構造（重量）との関係を理解するためには有効なモデルである[4,7]。

一方、粉体プロセスではロールミルなど、速度の異なるロールで粉体を圧縮するプロセス（非等速ロールプロセス）も重要である[8]。非等速ロールプロセスにおいても、等速ロールプロセスと同様にプロセス条件と成形体重量との関係を明らかにすることは重要であるが、上記のJohansonモデルでは等速ロールを仮定しているため、ロール速度差の影響を考慮していない。そこで本論文で

豊田中央研究所
(〒480-1192 愛知県長久手市横道 41-1)
TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC.
(41-1 Yokomichi, Nagakute, Aichi 480-1192, Japan)
* Corresponding Author kusano@mosk.tytlabs.co.jp

$$\frac{d\sigma}{dx} = \frac{4\sigma_c \left(\frac{\pi}{2} - \theta - \nu(\delta, \varphi) \right) \tan \delta}{\frac{D}{2} \left(1 + \frac{G}{D} - \cos \theta \right) \left[\cot \left(\eta(\theta, \delta, \varphi) - \frac{\pi}{4} + \frac{\delta}{2} \right) - \cot \left(\eta(\theta, \delta, \varphi) + \frac{\pi}{4} - \frac{\delta}{2} \right) \right]} \quad (6)$$

$$2\eta(\theta, \delta, \varphi) = \theta + \nu(\delta, \varphi) + \frac{\pi}{2}$$

ここで、 σ_c は粉体にロールから加わる応力を表し、Nip angle の計算の際は任意の定数とする。Nip region と Slip region で σ_c が同じであることを仮定して計算を行うため、 σ_c は任意の定数であるが Eq. (10) とは同じ値を用いる。CSL や WYL はせん断速度によらず一定と仮定しているため、Eq. (6) を非等速ロールプロセスにも、そのまま適用することとする。

2.1.2 「Nip region」での微小面積にかかる応力

既報[8]にて、溶媒を含む粉体を2本の非等速ロールで圧縮した際に、粉体が速度の速いロール側でより延伸される形で、速度勾配を持って圧縮されることがDEMシミュレーションにより明らかとなっている。そこで本論文でも、溶媒を含む粉体が速度勾配を持って圧縮されることを想定し、Nip region の式は、以下を仮定して求める。

- (i) A ロールより B ロールが速く、A ロール側と B ロール側の粉体の噛み込み量の比は B ロールと A ロール側の速度比 $r (= S_B/S_A)$ に等しくなる。つまり、B ロール側で角度 θ で噛み込んでいる粉体は、A ロール側で θ/r の角度にいる粉体と同時に動くとする (Fig. 4)。
- (ii) Nip angle α で噛み込んだ粉体はロールとともに移動し、 $\theta=0$ まで圧縮されながら移動する。

計算領域の微小範囲を ΔL とすると、任意の角度 θ で噛み込む粉体体積 V_θ は微小台形 (Fig. 4 の黒色部) に成形幅を掛けた体積に等しくなるため、成形幅 H を用いて以下の Eq. (7) で表せる。

$$V_\theta = \frac{H}{2} \left(\frac{\Delta L}{r} \cos \frac{\theta}{r} + \Delta L \cos \theta \right) \left\{ G + \frac{D}{2} \left(2 - \cos \theta - \cos \frac{\theta}{r} \right) \right\} \quad (7)$$

ここで、 σ_θ 、 V_θ はそれぞれ角度 θ における粉体へ加わる応力と粉体の体積を表す。粉体を圧縮した際の応力 σ_θ と体積 V_θ の間に以下の Eq. (8) の関係が成り立つことを仮定する。

$$\sigma_\theta = \sigma_0 \left[\frac{V_0}{V_\theta} \right]^K \quad (8)$$

Fig. 4 Modified Johanson model assuming the velocity gradient of powders between A and B rolls

ここで、 σ_0 、 V_0 はそれぞれ $\theta=0$ における応力と体積、 K は材料によって決まる圧縮係数である。Nip angle で噛み込んだ粉体が任意の角度 θ に存在する時に粉体へ印加される応力は、Eq. (7) と Eq. (8) より以下の Eq. (9) となる。

$$\sigma_\theta = \sigma_0 \left\{ \frac{\frac{G}{r} + G}{\left(\frac{1}{r} \cos \frac{\theta}{r} + \cos \theta \right) \left[G + \frac{D}{2} \left(2 - \cos \theta - \cos \frac{\theta}{r} \right) \right]} \right\}^K \quad (9)$$

この式を $x = (-\frac{D}{2} \sin \theta)$ に関して微分すると以下の Eq. (10) のように表される。

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{dx} &= \frac{K\sigma_c E(D, r, G, \theta)}{\frac{D}{2} \cos \theta \left(\frac{1}{r} \cos \frac{\theta}{r} + \cos \theta \right) \left(G + \frac{D}{2} \left(2 - \cos \theta - \cos \frac{\theta}{r} \right) \right)} \\ E(D, r, G, \theta) &= D \sin \theta \cos \theta \\ &\quad + \frac{D}{r^2} \sin \left(\frac{\theta}{r} \right) \cos \left(\frac{\theta}{r} \right) + \left(\frac{D}{2r} + \frac{D}{2} \right) \\ &\quad \left(\sin \theta \cos \left(\frac{\theta}{r} \right) + \frac{1}{r} \sin \left(\frac{\theta}{r} \right) \cos \theta \right) \\ &\quad - (G + D) \sin \theta - \frac{1}{r} \left(\frac{G}{r} + \frac{D}{r} \right) \sin \frac{\theta}{r} \end{aligned} \quad (10)$$

ここで、 σ_c は粉体にロールから加わる応力であり、Nip angle の計算の際は Eq. (6) の σ_c と同じ値を用いる。

2.1.3 Nip angle α の算出

Eq. (6) と Eq. (10) の値の大小は、「Slip region」と「Nip region」の安定性を決める。つまり、この交点の角度から粉の噛み込みが始まると考えられるため、この角度を Nip angle α とする (Fig. 5)。Eq. (6) と Eq. (10) より、 α は成形プロセス条件 (D : ロール直径、 G : ロール間ギャップ、 r : ロール速度比) だけでなく、粉体特性 (δ : 内部摩擦角、 φ : 壁面摩擦角、 K : 圧縮係数) によっても決まることがわかる。

2.2 Nip angle からの圧縮成形体重量の算出

本計算では Nip angle で噛み込んだ粉体は、そのまま $\theta=0$ まで圧縮されながらロールとともに移動すると仮定している。そのため、B ロールが ΔL 進んだ際に $\theta=0$ を通過する圧縮成形体重量 W_{calc} は Nip angle での噛み込み体積 V_α に比例すると考えられる (Fig. 6)。また、Nip angle での粉体の密度 ρ がわかれば、以下の Eq. (11) のよ

Fig. 5 θ dependence of $d\sigma/dx$

Fig. 6 Assumed powder volume change between $\theta = \alpha$ and $\theta = 0$

うに全圧縮成形体重量 $W_{\text{total_calc}}$ を求めることができる。

$$W_{\text{total_calc}} = \rho V_{\alpha} = \frac{\rho H}{2} \left(\frac{\Delta L}{r} \cos \frac{\alpha}{r} + \Delta L \cos \alpha \right) \left\{ G + \frac{D}{2} \left(2 - \cos \alpha - \cos \frac{\alpha}{r} \right) \right\} \quad (11)$$

ここで、単位面積あたりの圧縮成形体重量 W_{calc} は $W_{\text{total_calc}}$ を圧縮成形体とロールの接触面積である $H \times \Delta L$ で規格化し（割り）、以下の Eq. (12) で表す。

$$W_{\text{calc}} = \frac{\rho}{2} \left(\frac{1}{r} \cos \frac{\alpha}{r} + \cos \alpha \right) \left\{ G + \frac{D}{2} \left(2 - \cos \alpha - \cos \frac{\alpha}{r} \right) \right\} \quad (12)$$

本論文では ρ はかさ密度と仮定して計算を行う。

3. 実験方法

3.1 粉体試料の作製

本論文では、モデル粉体としてシリカ粒子とポリエチレングリコール（PEG）に水を加えて、溶媒を含む粉体を作製した。微粒子は粒子形状が球形で粒径分布が小さいことからシリカ粒子を選択し、バインダーとしては水中で高分子同士が凝集体を形成しない PEG を選択した。シリカ粒子は株式会社日本触媒製シーホスター KE-P250（粒径 $2.5 \mu\text{m}$ ）、PEG は富士フィルム和光純薬株式会社製ポリエチレングリコール 20,000（分子量 20,000）を用いた。シリカ粒子と PEG と蒸留水をパーティカルグラニュレーター（株式会社パウレック製 VG-01）を用いて、攪拌羽根周速 9 m/s 、時間 30 s で攪拌して、粉体試料を作製した。また、粉体試料は固形分（シリカ粒子、PEG）

濃度が 75 wt% になるように調製した。シリカ粒子と PEG の重量比は 98:2 とした。

3.2 ロール圧縮成形

粉体試料を 2 本ロール圧縮成形機（ロール直径 $D = 150 \text{ mm}$ ）を用いて成形した。2 本ロール成形の模式図を Fig. 7 に示す。A ロール速度を S_A 、B ロール速度を S_B とし、A-B ロール間ギャップを G とする。本実験では、 $S_B = 1500 \text{ mm/min}$ 、 $800 \leq G < 850 \mu\text{m}$ に設定して、 S_A のみを変化させる実験と、A、B ロール速度を一定（ $S_A = 600 \text{ mm/min}$ 、 $S_B = 1500 \text{ mm/min}$ ）にして、 G を変化させる実験を行った。ここで、各ロール速度は周速度を表す。圧縮成形体重量に関しては、圧縮成形体を 1 cm^2 に打ち抜き、重量を測定し、10 箇所を平均を求めた。

3.3 セン断試験による粉体特性評価

圧縮成形体重量の予測値を計算するために必要な粉体特性を求めるために、粉体試料のせん断特性と圧縮特性を粉体層せん断試験装置（株式会社ナノシーズ製 NS-S500）を用いて求めた。

粉体試料について、せん断試験により限界状態線（CSL）と壁面崩壊線（WYL）を求め、それらの傾きからそれぞれ内部摩擦角 δ と壁面摩擦角 ϕ を求めた[9,10]。壁面摩擦角に関しては粉体試料と、ロール表面と同じ表面加工を行った SUS 基板との壁面摩擦角を求めた。セルは直径が 15 mm のものを用い、せん断速度は $10 \mu\text{m/s}$ で行った。また、垂直応力 σ と粉体体積 V との関係から圧縮係数 K を求めた。

以下に Fig. 8 を参照しながら、粉体層せん断試験の手順を述べる。ここで、壁面摩擦測定は以下の粉体層せん断試験においてセル下部を基板に変更して、同様の方法で行った。

- (1) 粉体試料をセルに詰め、一番小さい垂直応力条件から順にせん断試験を開始した。荷重増加でせん断試験を繰り返し、垂直応力-せん断応力の関係（CSL）を求めた（Fig. 8①）。
- (2) 測定点を線形近似し、その直線の傾きより内部摩擦角を求めた（Fig. 8②）。

Fig. 7 Schematic illustration of two-roll press with differential speed

Fig. 8 Schematic overview of the shear test procedure

4. 実験結果および考察

粉体層せん断試験と壁面摩擦試験の結果を Fig. 9 (a) に示す。粉体層せん断試験により CSL, 壁面摩擦試験により WYL をそれぞれ求めた。CSL が WYL よりもせん断応力が大きくなっているが、これは粉体間の摩擦が粉体壁面間の摩擦よりも大きいためと考えられる。また、圧縮試験の結果を Fig. 9 (b) に示す。粉体試料の体積 V と垂直応力 σ の対数が、広い垂直応力範囲で線形関係を示していた。これは Eq. (3) の仮定が成り立っていることを意

味する。これらの結果より求めた内部摩擦角, 壁面摩擦角と圧縮係数は, それぞれ $\delta = 42.4$, $\varphi = 23.7$, $K = 31.5$ であり, これらの値を用いて以降の計算を行った。

A ロール速度 S_A を変化させた時の (ロール速度比 $r = S_B/S_A$ を変化させた時の), 単位面積あたりの圧縮成形体重量を測定した実測値と, 上記の式を用いて算出した計算値の比較を Fig. 10 (a) に示す。Fig. 10 (a) より, 計算値は S_A が遅くなると, すなわち r が大きくなると減少した。本計算では, 速度の遅い A ロール側での粉体噛み込み量が減少するため, 圧縮成形体重量が減少した。実測値でも同様の傾向が見られており, 計算によりロール速度比依存性を表せていることがわかった。

次にロール間ギャップ (G) を変化させた際の, 圧縮成形体重量の計算値と実測値の比較を Fig. 10 (b) に示す。計算値は, G が大きくなると増加した。本計算では, ロール間ギャップが大きくなると粉体噛み込み量が増加するため, 圧縮成形体重量が増加した。実測値でも同様の傾向が見られており, 本モデルにより実験の傾向が再現できていることがわかった。

一方で, Fig. 10 に示したように, 絶対値は実測値が計算値よりも大きくなっていた。この理由としては, ロール間の粉体の速度勾配の仮定が実際と異なることやロール間ギャップが実際は変化していることなどが考えられる。また, 計算ではニップアングルでの粉体密度をかさ

Fig. 9 (a) Measured CSL (circles) and WYL (squares), (b) results of compaction test

Fig. 10 (a) Roll speed S_A dependence and (b) roll gap G dependence of the weight calculated by modified Johanson model and measured weight of the compacted product per unit area W

密度と仮定したが、実際はかさ密度よりも大きいと考えられ、このことも絶対値のずれに影響していると考えられる。

5. 結 言

2本のロール速度が異なるロール圧縮プロセスで粉体を圧縮成形する場合について、速度勾配を考慮して補正したJohansonモデルを提案し、実測値との比較を行うことでその妥当性を評価した。計算値と実測値はともに、2本のロール速度比 r が大きくなると減少し、ロール間

ギャップが大きくなると増加した。計算値と実測値で傾向は一致しており、本モデルの妥当性を確認することができた。一方で、絶対値は実測値が計算値よりも大きくなっていた。この理由としては、ロール間の粉体の速度勾配の仮定が実際と異なるためやロール間ギャップが実際は変化していることなどが考えられる。また、計算ではニップアングルでの粉体密度をかさ密度と仮定したが、実際はかさ密度よりも大きいと考えられ、このことも絶対値のずれに影響していると考えられる。

Nomenclature

D	: roll diameter	[mm]	σ	: normal stress	[kPa]
S_A	: peripheral speed of A roll	[mm/min]	σ_θ	: normal stress at an angle of compaction position θ	[kPa]
S_B	: peripheral speed of B roll	[mm/min]	V	: volume of powder	[cm ³]
r	: peripheral speed ratio of A roll and B roll (S_B/S_A)	[mm/min]	θ	: angle of compaction position	[degrees]
G	: roll gap	[μ m]	H	: compaction width	[mm]
δ	: angle of internal friction	[degrees]	L	: compaction length	[mm]
φ	: angle of wall friction	[degrees]	W	: weight of compacted product per unit area	[mg/cm ²]
K	: compressibility constant	[μ m]			

References

- [1] P. Kleinebudde, Roll compaction/dry granulation: pharmaceutical applications, *Eur. J. Pharm. Biopharm.* 58 (2004) 317–326.
- [2] S. C. Deevi, Powder processing of FeAl sheets by roll compaction, *Intermetallics* 8 (2000) 679–685.
- [3] J. R. Johanson, A rolling theory for granular solids, *J. Appl. Mech.* 32 (1965) 842–848S.
- [4] G. Bindhumadhavan, J. P. K. Seville, M. J. Adams, R. W. Greenwood, S. Fitzpatrick, Roll compaction of a pharmaceutical excipient: Experimental validation of rolling theory for granular solids, *Chem. Eng. Sci.* 60 (2005) 3891–3897.
- [5] K. Odagi, T. Tanaka, Y. Tsuji, Compressive flow property of powder in roll-type presses—numerical simulation by discrete element method—, *J. Soc. Powder Technol., Japan* 38 (2001) 150–159.
- [6] A. R. Muliadi, J. D. Litster, C. R. Wassgrenb, Validation of 3-D finite element analysis for predicting the density distribution of roll compacted pharmaceutical powder, *Powder Technol.* 237 (2013) 386–399.
- [7] Y. A. Yusof, A. C. Smith, B. J. Briscoe, Roll compaction of maize powder, *Chem. Eng. Sci.* 60 (2005) 3919–3931.
- [8] M. Sakai, K. Takabatake, K. Tamura, K. Hatano, A. Minakuchi, Why do wet-particles adhere to a high-speed roll in a three-roll mill? *Phys. Fluids* 31 (2019) 033302.
- [9] Y. Shimada, S. Hatano, S. Matsusaka, A new method for evaluating powder flowability using constant volume shear tester, *J. Soc. Powder Technol., Japan* 54 (2017) 90–96.
- [10] JIS, Z8835, Direct shear testing method for Critical State Line (CSL) and Wall Yield Locus (WYL) of powder bed.