参 考 資 料

造粒のシュミレーション Random Walk Model 2*

砂 田 久 一**
Hisakazu SUNADA大 塚 昭 信**
Akinobu OTSUKA川 島 嘉 明***
Yoshiaki KAWASHIMA竹 中 英 雄***
Hideo TAKENAKA

1. 緒 言

サスペンション中の粒子の凝集現象を利用して行なう湿式球形造粒法は、最近、各方面で注目されている。その造粒体の形成過程は、二次過程であることが知られている¹⁾。われわれは、かつてこの機構を解明するために、電子計算機を用い Random Walk Model による造粒の二次元シュミレーションを行なった²⁾。この場合には、左右上下四方向のうちの一方にモデル粒子を動かし、衝突、凝集させ、粒子群の生長過程を造粒時間とともに追跡したものである。なお、粒子は凝集したときには、合一体積に等しい球形粒子となるものとしている。

本報では、前報の方法をさらにすすめて、粒子群の生長過程だけでなく、時間の経過ともなう粒子形状の変化も追跡するために、粒子の動く方向を四方向から六方向に改めた。こうすることにより、粒子の動きをより精密にし、形状変化の状態を現実により近いものにすることができると考えられる。したがって今回のモデルは、凝集後も基本粒子はそのまま一次粒子として存在する。

2. 方 法

Fig. 1a に示されているような、二重円筒型造粒機を想定し、この間隙にサスペンション粒子を導入して円筒を回転すると、粒子は衝突、凝集をくり返し造粒される。いま、この二重円筒の間隙が十分狭いと仮定すれば、この造粒過程は Fig. 1b で示されるような、二次平面での粒子の衝突、凝集現象としてあらわすことができる。

いま、二次平面を Fig. 1b で示されるような 60×60

Double Cylindrical
equivalent
agglomerator

Fig. 1a, 1b Modeling of Agglomeration Process

の xy 座標であらわし、この座標上の交点に直径 1.0 の等大円板粒子 100~750 個を完全に分散した状態に置く。それぞれの粒子の位置は、粒子一個につき二個の一樣乱数を発生させ、その値に対応する xy 座標を求めて決定した。これらの粒子を座標軸上の六方向のいずれかの方向に、擬似乱数により Random Walk させた。移動により他の粒子と衝突した場合には、擬似乱数を発生させ、その値とあらかじめ定めておいた凝集確率とを比較し、凝集確率の方が大きければ、その位置で接触凝集させ、小さければ、はね返ってもとの位置に戻すものとした。このようにすると、凝集粒子と基本粒子との凝集確率は同じであるが、凝集体が生長して大きくなればなるほど他の粒子と衝突する可能性が大きくなるので、小粒子は凝集体と衝突、凝集して、すみやかにこの系から消失するものと考えられる。

Fig. 1b には、一次粒子である基本粒子と、一次粒子 2 個および 3 個から形成された凝集体が示されている。このような凝集体の移動、すなわち Random Walk は、その凝集体を構成する基本粒子のなかで y 座標が一番小さなもののうち、 x 座標が一番小さい粒子に着目して行ない、しかもすべての構成基本粒子の平行移動によって行なった。また、計算を複雑にし、膨大な計算を

昭和56年3月16日受付

*第18回粉体に関する討論会(1980年11月・豊橋)

**名城大学薬学部(〒468 名古屋市天白区天白町八事裏山15)

TEL 052-832-1336

***岐阜薬科大学(〒502 岐阜市三田洞東5-6-1)

TEL 0582-37-3931

Fig.2 Simulation Results of Agglomeration Process

Fig.3 Reduction of Particle Number as a Function of Agglomeration Time

Fig.4 First Order Kinetic Plots of Agglomeration Process

必要とするので、今回は凝集体粒子の回転や、一部分離などはないものとした。

このような操作を、平面上に存在するすべての粒子について順次行ない、その回数を造粒時間に対応させて、時間ごとに凝集体を形成している基本粒子の数や位置、凝集体の個数、大きさ、形状などを記録した。

3. 結果および考察

Fig. 2 には結果の一部が示されている。最初の基本粒子数 N_0 が 500、凝集確率 P が 1.0 の場合の初期状態、すなわち $t=0$ と 3、9 の場合の結果が示されている。図中のゼロは、その位置に基本粒子が存在しないこと

を、1 は存在することを示し、おのおのの凝集体は、その形状がよくわかるように実線で囲んである。この図でよくわかるように、時間が経過するのにしたがい、粒子形状が複雑に変化する。

Fig. 3 には、造粒時間と粒子数の関係が示されている。粒子数の変化、すなわち凝集体の生長過程は式(1)または(2)で示されるような速度過程に属すると考えられる。

$$\ln N = -k_1 t + \ln N_0 \quad \cdots \cdots (1)$$

$$1/N = k_2 t + 1/N_0 \quad \cdots \cdots (2)$$

ただし N は t 時間後における粒子数、 k_1 、 k_2 はそれぞれ速度定数である。いずれの速度式に適合するかを調

Fig.5 Second Order Kinetic Plots of Agglomeration Process

べるために Fig.4,5 を描いたところ、初期粒子数や凝集確率にかかわらず、計算時間の広範囲にわたり Fig.5の方がより直線性を有することから、式(2)によく適合し、この過程が二次過程であることがわかる。このこと

Fig.6 Agglomeration Process and Radius-equivalent Ellipse of Agglomerates

Table 1 Rate Constant $k_2(\times 10^{-4} \text{ l/tN})$

No	P				
		0.25	0.50	0.75	1.00
100		0.595	1.90	2.66	3.51
250		1.75	3.15	4.35	5.16
500		3.03	5.26	6.56	8.16
750		5.93	8.08	9.20	10.67

は、実際の湿式造粒過程の実験結果¹⁾とも一致する。

Medalia³⁾ は凝集体の顕微鏡写真より得られたシルエットより、凝集体の二次元の形態定数を求めた。すなわち、シルエットを細かく分割してその座標よりシルエットの面積を求め、回転半径 K_A , K_B , 非等軸度 Q , 二次元的 bulkiness B , 立体因子 S , K_A が x 軸となす角度 θ を算出した。しかし彼は、これらの値の造粒にともなう時間的変化については、その報文中にふれていない。

Fig.7 Two-dimensional Bulkiness of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

Fig.8 Average Two-dimensional Bulkiness of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

Fig.9 Average Anisotropy of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

また、この種の実験の困難の故もあって、かつて、凝集体の形態の経時変化を実験的に追跡した報告もない。そこでわれわれは、今回、シミュレーション法により凝集体の時間変化を求めてみた。Fig. 6は17個の基本粒子からなる凝集体の形成過程を図示したものであり、Medaliaの方法による等価だ円と径が示されている。この図より、凝集体が生長するのにつれて、その形状が変化する様子を、等価だ円の形の変化として表すことができるということがわかる。

これらの凝集体の二次元的 bulkiness の変化を示したのが Fig. 7で、それぞれ基本粒子が15個および17個よりなる凝集体である。いずれの場合にも、凝集体が生長するのにつれて、二次元的 bulkiness が増大してゆくことがわかる。

以上是一个の凝集体についての変化であるが、系全体についての二次元的 bulkiness の平均値および非等軸度の平均値の変化を示したものが Fig. 8, 9である。いずれも $N_0=500$ の場合で、系全体の平均値も時間と

ともに、すなわち凝集体の生長とともに増大してゆくことがわかる。なお立体因子については、顕著な変化の傾向が認められなかった。

4. 結 論

二次元の Random Walk Model を用いて、モンテカルロ法による造粒のシミュレーションを行ない、造粒時間と粒子数や粒子形状との関係求めた。その結果、この過程は二次過程となり、造粒実験の結果と一致した。また実際の造粒実験では圧密過程が起り、凝集体の bulkiness は小さくなるという報告¹⁾がある。今回の結果では bulkiness は増大しているが、これは圧密過程が始まるまでの現象のシミュレーションであると考えられる。今回の手法を実験結果に適用すれば、凝集体の形態変化を定量的に論ずることができるであろう。

終りに、計算に協力された当時学生の松本匡代君に感謝する。

参 考 文 献

- 1) Kawashima, Y. and Capes C.E.; *Powder Technol.*, 10, 85 (1974); 13, 279 (1976); 材料, 25, 637 (1976)
- 2) 川島嘉明, 竹中英雄, 砂田久一, 大塚昭信: 材料, 27, 614 (1978)
- 3) Medalia, A.I. J.: *Colloid & Intr. Sci.*, 32, 115(1970)

Authors' Abstract

Simulation of Agglomeration III (Random Walk Model 2)

by

Hisakazu SUNADA, Akinobu OTSUKA,* Yoshiaki KAWASRIMA, and Hideo TAKENAKA**

(*Faculty of Pharmacy, Meijo University, **Gifu College of Pharmacy)

Monte Carlo simulation of agglomeration in liquid suspension was made by a two-dimensional random walk model. Initially, arbitrary numbers of uniform discs, the diameter of which was unity, were randomly dispersed on a plane. Subsequently, each particle was moved in one direction of the six, which was determined by a pseudo-random number generated by a computer. When a moving particle came in contact with another particle, a pseudo-random number was generated again, which was compared with the probability coefficient of aggregation (P) to determine whether aggregation could occur or not. Such a procedure was taken on each particle and the new locations of these were determined. After that, the number of agglomerates present in the plane was calculated. The decrease in number of agglomerates during the process agreed with the second order rate equation. Change in shape, bulkiness and anisometry of agglomerates with time were also examined.

List of Figures and Table

Fig. 1 Modeling of Agglomeration Process

Fig. 2 Simulation Results of Agglomeration Process

Fig. 3 Reduction of Particle Number as a Function of Agglomeration Time

Fig. 4 First Order Kinetic Plots of Agglomeration Process

Fig. 5 Second Order Kinetic Plots of Agglomeration Process

Fig. 6 Agglomeration Process and Radius-equivalent

Ellipse of Agglomerates

Fig. 7 Two-dimensional Bulkiness of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

Fig. 8 Average Two-dimensional Bulkiness of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

Fig. 9 Average Anisometry of Agglomerates as a Function of Agglomeration Time

Table 1 Rate Constants k_2

★ 四分法の原稿を募集中!!

会誌がお手もとに届くと、まず「四分法」という方が多いようです

この人気ある四分法に気軽にご投稿されませんか……………

長さは575字以内で内容はできるかぎり粉に関連したものが

望ましいのですが、限定はいたしません。ご投稿を心よりお待ちしております。