粉体の充填に関する研究 (第4報) 二次元モデルによる
粉体充填のシミュレーション¹⁾

砂田久一, 大塚昭信
名城大学薬学部²⁾

Studies on Packing of Powder. IV. The Use of Digital Computer for Simulation
of Powder Compaction on Two-Dimensional Model¹⁾

HISAKAZU SUNADA and AKINOBU OTSUKA
Faculty of Pharmacy, Meijo University²⁾

(Received December 25, 1975)

Compaction of a powder has been simulated on two-dimensional model by employing a digital computer. In the process of formation of the initial bed, 400 discs of equal size were dropped one by one into a container, introducing the probability P to make each two discs cohere in contact. Compaction of the beds by tapping was also simulated by shifting each disc into the hole present in the lower layer. In this process the coordination number of a disc and the cohesion probability P' were taken into consideration. Another probability P'' was introduced in the step of insertion of a disc into the hole created by the transfer of the former disc.

The relation between porosity and tapping number was fitted in 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. It was also indicated that the cohesion probability P' is closely related to the rate constant in these equations.

粉体の充填過程や充填機構を解明する手段として、従来よりタッピングによる衝撃力、圧縮力、遠心力などの外力を加えて充填を行ない、加えられた外力が粉体層に与える影響を観察する方法が行われてきた。しかし充填中の粒子の挙動はつかみ難く、またその充填性は粒子の大きさ、密度、表面状態、粒子間相互作用、あるいは粒子を取り巻く外界の状態により複雑な影響を受けているために、これらの研究を困難にしていた。

このような複雑な粉体層中の粒子の様子を調べるために、最近粒子モデルを用いた模擬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。³⁻⁷⁾ しかしこれらはいずれも実際どおり三次元の現象として取り扱っているために、電子計算機を用いてはいるが、計算が繁雑であり、多くのメモリーと多大な計算時間を必要とした。一方梅屋⁸⁾ は二次元モデルを用いて粉体圧縮などの研究を行ない、非常に興味ある結果を得ている。その他、二次元モデルを用いた充填に関する二三の報告がある。⁹⁻¹¹⁾

- 1) 日本薬学会第92年々会, 大阪, 1972年および第93年々会, 東京, 1973年で発表, 第3報: A. Otsuka, K. Danjo, H. Sunada, *Chem. Pharm. Bull.* (Tokyo), **21**, 428 (1973).
- 2) Location; Yagoto Urayama, Tenpaku-cho, Tenpaku-ku, Nagoya.
- 3) M.J. Vold, *J. Colloid Sci.*, **14**, 168 (1959); *idem*, *J. Phys. Chem.*, **63**, 1608 (1959); *idem*, *J. Phys. Chem.*, **64**, 1616 (1960).
- 4) 中垣正幸, 砂田久一, 薬誌, **81**, 1570 (1961); **82**, 629 (1962); **83**, 78 (1963); **88**, 705 (1968); **92**, 59 (1972).
- 5) H.P. Hutchison, D.N. Sutherland, *Nature*, **206**, 1036 (1965).
- 6) A.I. Medalia, *J. Colloid & Interface Sci.*, **24**, 393 (1967).
- 7) D.N. Sutherland, *J. Colloid & Interface Sci.*, **25**, 373 (1967).
- 8) 梅屋 薫, 第6—10回粉体に関する討論会要旨集 (1968—1972).
- 9) 久野 洋, 粉体および粉末冶金, **19**, 85 (1972).
- 10) 樋口伊佐夫, 林知己夫, 駒沢 勉, “情報処理と統計数理,” 産業図書株式会社, 東京, 1971年.
- 11) M. William, *Nature*, **239**, 504 (1972).

著者らはタップ充填過程を調べるために、粒子の二次元モデルを用い、充填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、タップ充填のシミュレーションを行なった。その際、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填を行ない、従来提出されている充填の速度式に対する適合性について検討を行なった。

Fig. 1. Tapping Process by Two-Dimensional Model

達して静止するか、あるいはそれ以前に落下した粒子に接触してその位置に留まるものとした。(付着力=100%)

充填方法-II: 容器内の1から N までの位置に順次粒子を充填するのであるが、その際、付着確率を示す一定数 P を定め、粒子を一個充填するたびに発生させた1から100までの擬似乱数と P とを比較し、乱数の方が大きければ、Fig. 1-Bに示されているように、先に充填された二個の粒子(B_1, B_2)により支えられて B_3 の位置に留まるものとした。たとえ先に充填された粒子が一個でも(B_1 または B_2)、付着力により B_3 の位置に留まるものとした。 B_1 または B_2 のように下方の位置に粒子が存在しないならば、たとえ乱数の値が P よりも大きくても支える粒子が存在しないため、この粒子を系より除外し、 B_3 の位置には粒子を充填しないものとした。もちろん乱数の値が P よりも小さければ、その位置には粒子の充填は行なわれず、空席のままとなる。充填位置が最下層の場合には、擬似乱数の値が P よりも大きければ、粒子は器底に支えられて充填されるものとした。

充填方法-Iでは粒子を器底に向かって垂直に落下させ、しかも粒子間の付着力が非常に強いので、粒子の落下位置を定める擬似乱数の値とは無関係に、ほぼ一定の空隙率を有する充填層が得られるが、充填方法-IIでは、それぞれの位置に粒子を充填するかどうかを充填の付着確率 P によって決定するのであるから、付着確率 P の値を変えることによりいろいろな空隙率を有する充填層を得ることができる。

なお器壁の影響を除くために、この容器を大きな容器の一部と考え、この容器の内部と同じ構造のものが左右に広がっているものとした。たとえばFig. 1-Aにおいて、41の位置にある粒子は、40'の位置に粒子を仮定し(40の粒子の位置は二段目の右端)、この粒子に支えられて存在するものとした。

以上のような方法で400個の位置(20×20)に粒子モデルの充填を行なった。

タッピング操作 以上のような方法で形成された充填層にタッピング操作を加えるのであるが、この場合には粒子を下方に移動させるかどうかを決める付着確率 P' を定め、これと擬似乱数(1—100)とを比較し、乱数の方が大きくて、しかもFig. 1-C, Fig. 1-Dに示されている C_2, D_1 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_1 の位置に移動するものとした。このとき C_3, D_3 の位置が空くことになるが、その場合の処置として次の三種の操作を行なった。

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 の位置まで下る。したがって、それよりさらに上方にある粒子は一段ずつ下ることになる。

タッピング操作-II': C_3, D_3 の位置が空いた跡は必ずしも上方から粒子が落ちてきてその位置を埋めるとは限らない。この埋める確率を P'' として空いた位置に粒子をはめ込むという方法である。これはタッピング操作-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填層の表面にある粒子とは考えずに、充填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填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、上方付近の構造には大きな変化は生じない。

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(1—100)をその粒子の接触数で除した値(接触数が大きいほど小さな値となる。たとえば接触数4の粒子では0—25の乱数となる)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た。すなわち接触数の大きい粒子ほど、その粒子について発生させた乱数の値が P' より大きくなる確率が小さくなるので、その粒子が下方に移動する機会が少なくなる。このような方法で粒子を下方に移動させ、タッピング操作-II'と同様に、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、そのつど粒子の移動した位置を記録した。

実験の部

初充填層の作成 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填するのであるが、その容器内には、粒子が最密充填されたときの位置に下層より1から N までの番号をつけ、粒子はこの位置以外には充填されることはないものとした。(Fig. 1-A)

充填方法-I: 電子計算機により発生させた擬似乱数により、中心の x 座標を定めた円板粒子を容器内に順次落下させる。その際、落下した粒子は容器の底に

結 果 と 考 察

Fig. 2 は充填方法-I により形成された初充填層を, Fig. 3 はこれをタッピング操作-I' により, 付着確率 $p'=50(\%)$ で 25 回タッピングを行なった結果をそれぞれ示している. 数字は粒子の位置と番号を, 数字のない部分は粒子が充填されず, 粒子間空隙が存在していることを示している.

Fig. 4 は充填方法-II で, 付着確率 $P=20(\%)$ により形成された初充填層であり, Fig. 5 はこの充填層を, 粒子を下方へ移動させるときの付着確率 $P'=90(\%)$ で 6 回タッピング(タッピング操作-II')を行なった結果である. 同一数字は粒子の移動した径路を示している.

Fig. 6 は充填方法-II で, 付着確率 $P=30(\%)$ により形成された初充填層を, Fig. 7 はこの充填層を付着確率 $P'=30(\%)$, 粒子が移動したあとに新しい粒子をはめ込む確率 $P''=50(\%)$ として, 10 回タッピングをタッピング操作-III' で行なった結果を円板粒子によって示したものがある.

Fig. 8, 9 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

393	394	396	398	400	381	383	384	386	388	389	390	391
373	375	376	374	380	362	363	364	365	366	369	371	
354	356	357	359	360	341	343	344	346	349	351		
334	337	338	340	321	323	325	326		330	331		
315	318	320	302	303	305	306			310	311	313	
294	295	299	281	282	283	285	286	288	291	292		
275	278	279	280	261	262	263	264	265	266	268	269	271
255	258	259	260	242	244	245	246	249	251	253		274
	239	240	222	225	226	229	230	231	233	235		
	220	201	202	206	207	210	211	213	215			
	181	182	183	186	187	191	193		196			
	162	163	165	167		172	173		176			
159	142	143	146	147		151	153		157			
139	122	124	127	128		132	134	135	137			
119	102	103	104	107	109	112	114	115	118			
99	100	82	84	87	89	93	94	95				
80	63	64	65	68	69	74	75	76			79	
60	44	45	47	49	50	55	56	57				
21	25	27	30			35	36	37				
1	5	6	8	10	12	16	17		19			

Fig. 2. Location of Discs in the Container

number of tapping $N=0$, packed by the method I

						366	384					
						363	386					
		398	359	379	381	360	380	285	383	365		391
371		376	396	357	281	364	400	303	344	305		390
351		259	340	338	264	341	323	362	266		349	369
331	295	375	354	356	320	202	302	321	283	265	311	306
315		394	318	337	260	222	282	245	207		325	326
393		373	299	279	240	242	262	244	187	246	269	230
334		278	239	220	182	225	261	206	343	226	191	172
274		258	201	162	163	165	145	280	288	286	268	229
255		122	103	124	143	183	127	89	186	263	249	210
159	139	102	64	84	65	181	87	69	107	128	167	173
80	119	82	63	25	45	47	142	49	68	50	147	151
1	21	100	44	5	6	27	8	104	10	30	12	109
												93
												35
												16
												17
												37
												19
												60

Fig. 3. Location of Discs in the Container

number of tapping $N=20$, cohesion probability $P'=50(\%)$, packed and tapped by the method I, I'

392	393	394	395	396		398	399		383	385	386	387	388		390	391					
372		374	375	376	377		379	380	361		363	364	365	366	367	368	369	370			
		354	355		357			360	341		343	344	345		347	348	349	350	351	352	
333	334	335			338			321	322	323	324	325		328		330	331	332			
	314	315				319	320	301	302	303	304	305			308	309	310	311	312		
294	295						300	281	282	283	281		286	287	288	289	290	291	292	293	
	275							261	262	263		265	266	267	268	269		271	272	274	
255	256					260	241	242	243	244	245	246		248		250	251	252		254	
	236	237		239			221	222	223	224		226		228		230	231	232	233	234	235
216	217		219				202	203		205	206	207	208		210	211		213		215	
	197	198	199	200	181			183		186	187	188	189	190	191	192		194	196	196	
		178	179	180		162		164	165	166	167		169	170	171	173		175	176		
	158	159	160				143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153		156	157	
138	139	140	121			123	124	125	126		128		130		132	133			137		
	119	120	101				104	105	106	107		109	110		113	114		116	117	118	
99	100	81	82	83	84			86		88		90			94			97	98		
	80	61	62	63		65	66		68			71	72	73	74				78	79	
60	41	42		44		46	47	48			51	52		54					59		
	21	22	23	24			27	28	29		31	32	33	34	35	36	37			40	
1	2	3	4				8	9			12	13	14	15	16	17	18	19	20		

Fig. 4. Location of Discs in the Container

number of tapping $N=0$, cohesion probability $P=20(\%)$, packed by the method II

392	393	394	395	396	398	399	383	385	386	387	388	390	391				
372	393	374	375	376	377	379	380	361	363	364	365	366	367	368	369	370	390
372	354	355	375	357	379	360	341	343	344	345	365	347	348	349	350	351	352
333	334	335	357	338	321	322	323	324	325	345	347	328	349	330	331	332	
314	315	335	338	319	320	301	302	303	304	305	325	308	309	310	311	312	332
294	295	319	300	281	282	283	284	286	287	288	289	290	291	292	293		
275	300	261	262	263	284	265	266	267	268	269	289	271	272	293	274		
255	256	260	241	242	243	244	245	246	266	248	269	250	251	252	254		
236	237	239	221	222	223	224	245	226	228	230	231	232	233	234	235		
216	217	219	239	220	202	203	224	205	206	207	208	210	211	213	234	215	
197	198	199	200	181	183	205	186	187	188	189	190	191	192	213	194	195	196
196	178	179	180	162	164	165	166	167	188	164	170	171	172	192	175	176	
158	159	160	162	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153	156	157	
138	139	140	121	123	124	125	126	146	128	148	130	132	133	153	156	137	
119	120	101	104	105	106	107	128	109	110	113	114	116	117	118			
99	100	81	82	83	84	104	86	106	88	109	90	110	94	97	98		
80	61	62	63	65	66	68	71	72	73	74	97	78	79				
60	41	42	44	46	47	48	68	51	52	73	54	74	77	77	59		
21	22	23	24	27	28	29	31	32	33	34	35	36	37	40			
1	2	3	4	8	9	12	13	14	15	16	17	18	19	20			

Fig. 5. Location of Discs in the Container

number of tapping $N=6$, cohesion probability $P=20$, $P'=90$ (%) packed and tapped by the method II, II'.

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ピング充填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。

$$\frac{1}{\varepsilon_n - \varepsilon_f} = Kn + \frac{1}{\varepsilon_0 - \varepsilon_f} \quad (\text{川北の式})$$

$$\varepsilon_n - \varepsilon_f = (\varepsilon_0 - \varepsilon_f)e^{-K'n} \quad (\text{久野の式})$$

ただし ε_0 , ε_n , ε_f はそれぞれ最初の, n 回タップ時の, および最終の空隙率, K , K' は充填の速度に関する定数で

Fig. 6. Location of Discs in the Container

number of tapping $n=0$, cohesion probability $P=30(\%)$, packed by the method II.

Fig. 7. Location of Discs in the Container

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

Fig. 8. Reduction of Porosity with Tapping Treatment

packed by the method II and tapped by the method II

Fig. 9. Reduction of Porosity with Tapping Treatment

packed by the Method II and tapped by the method III'

Fig. 10. Kawakita and Kuno Plots using the Data

packed by the method II and tapped by the method II'

A : $\frac{1}{\epsilon_n - \epsilon_f} = Kn + \frac{1}{\epsilon_0 - \epsilon_f}$, 1) Kawakita
B : $\epsilon_n - \epsilon_f = (\epsilon_0 - \epsilon_f)e^{-k'n}$, 2) Kuno

Fig. 11. Kawakita and Kuno Plots using the Data

packed by the method II and tapped by the method III'

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、縦軸に $1/(\epsilon_n - \epsilon_f)$ および $\log(\epsilon_n - \epsilon_f)$ をとり図示すると Fig. 10, 11 のような直線関係が得られた。Fig. 11 の方がより直線性のよいことから、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. 12. Variation of Rate Constant with Cohesion Probability P' .

(from the data in Fig. 10)

Fig. 13. Variation of Rate Constant with Cohesion Probability P'' .

(from the data in Fig. 11)

TABLE I. Adaptation of Data to Kawakita's and Kuno's Empirical Equations

$P=30$	Kawakita P''						$P=30$	Kuno P''					
	10	30	40	50	70	100		10	30	40	50	70	100
$P' 0$		Δ		$\times$	$\times$		$P' 0$		Δ		Δ	$\circ$	
10	Δ	$\times$	$\times$	$\times$	$\times$		10	Δ	Δ	Δ	Δ	Δ	
30		$\times$		$\times$	$\times$	Δ	30		$\times$		Δ	Δ	Δ
40			$\circ$		Δ		40			$\circ$		Δ	
50	Δ	Δ		$\times$	$\times$		50	$\times$	$\times$		$\times$	$\times$	
70	Δ	Δ		$\times$	$\times$	$\times$	70	$\times$	$\times$		$\times$	$\times$	$\times$

$\circ$: good Δ : fairly good $\times$: poor

Fig. 10, 11 の各直線部分の傾斜より K, K' を求め、横軸に $(100-P')$ および P'' をとり、 P'' および P' をパラメータとして示したのが Fig. 12, 13 であり、それぞれ良い相関性がみられ、 P', P'' が充填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. 10 よりも Fig. 11 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' の方がより現実に則していると考えられるので、この場合について、いろいろな p' と p'' の値の組合せによる実験の結果に対して、川北および久野の式への適合性の度合を検討した。Table 1 において ($\circ$) 印はよく適合していることを、(Δ) 印は比較的よく適合していることを、($\times$) 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（付着力が比較的大きい場合）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填過程は $-de/dn$ が ε の二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（付着力が比較的小さい場合）には久野の式によく適合し、充填過程は $-de/dn$ が ε に比例しているとみなすことができる。

結 論

電子計算機を用いた二次元モデルによる粉体充填のシミュレーションを、いろいろな充填方法により行なったが、タッピング操作-III' がより現実に則しており、川北および久野の式への適合性を調べた結果、充填過程は P' が大きく P'' が小さい場合には川北の式、 P' が小さく P'' が大きい場合には久野の式であらわされることがわかった。

謝辞 本研究の実施にあたり協力された、岡本光美、山本伸行、佐藤安寛、坪井利治の諸君に深謝致します。