



# 躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

## 造粒の数値シミュレーション： 粒子付着現象の解析からプロセス設計まで

Numerical Simulation of Granulation:  
from Particle Adhesion Phenomena to Process Design

仲村英也

Hideya Nakamura

大阪府立大学  
大学院工学研究科 化学工学分野  
准教授

### 1 はじめに

筆者は、粉体工学を専門とした研究を行っている。特に、粉体プロセスに関する研究を行っている。ご縁があり日本鉄鋼協会の資源環境調和型焼結技術創成研究会に参画させて頂いているが、その繋がりでご執筆する機会を頂いた。本研究会に参画する以前は鉄鋼や製鉄に関する仕事には縁がなく、「躍動」の執筆要領にある「これからの鉄鋼分野を支える若手研究者・技術者」にふさわしい業績はない。予めご容赦頂きたい。とはいえ、せっかくの機会を頂いたので、筆者の研究成果をご紹介させて頂く。

筆者が研究会で取り組んでいるのは、「造粒」に関する研究である。造粒とは、小さな粒子から大きな粒を造る粉粒体操作のことである。一般には、細かい微粉体を攪拌・流動させながら結合液を添加し、結合液を粉体中に分散させながら微粉を凝集させて、最終的に大きな凝集体（造粒物）を調製する操作のことを指す（図1）。造粒操作は、化学、医薬、農薬、

食品、洗剤、電池、セラミックスなど、多くの製造業で用いられている。鉄鋼分野においても、焼結プロセスの前段階の処理として、鉱石原料の造粒が行われている。製鉄プロセスにおける造粒は上工程に位置するため、造粒の良し悪しは、製鉄プロセス全体のクオリティに大きく影響する。一方で近年は、造粒が難しい微粉を多く含む原料鉱石を使用するニーズが高まっており、これに伴い、造粒工程が以前にも増して重要視されている。すなわち、原料鉱石の造粒現象を理解し、それに基づいた造粒プロセスの設計が求められている。

そこで本稿では、筆者らがこれまでに行ってきた、数値シミュレーションを用いた造粒現象の解析と造粒プロセスの設計に関する研究を紹介させて頂く。1つ目は、凝集体形成における最も基礎的な素過程である、液架橋を介した粒子同士の付着・衝突現象の数値シミュレーション解析について紹介する。2つ目は、数値シミュレーションを攪拌造粒プロセスのスケールアップ検討に活用した研究を紹介する。

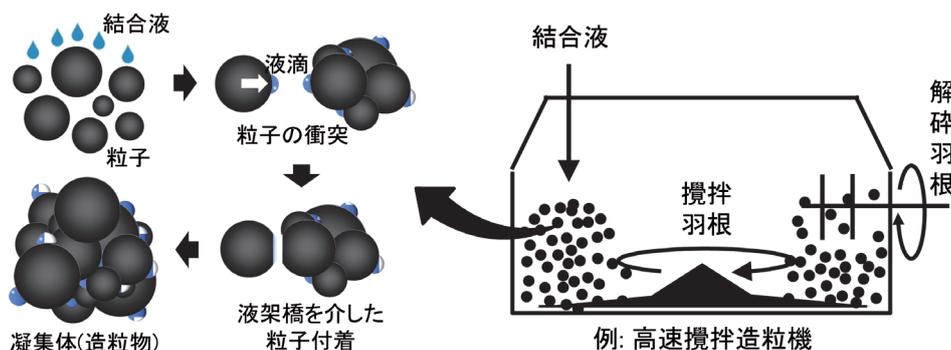


図1 造粒の模式図。攪拌・流動化させた装置内の粉体に結合液が加えられ（右図）、動的な液体架橋を介して粒子同士が付着し、造粒物が形成される（左図）

## 2 液架橋を介した粒子の衝突・付着現象の解析<sup>1-4)</sup>

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である。特に、凝集体形成における最も基礎的な素過程である、液架橋を介した粒子同士の衝突・付着現象のメカニズムを理解することは、造粒現象を深く理解するために必要不可欠である。液架橋に起因する粒子間相互作用力に関する研究は古くから盛んに行われているが、これまでに提案されてきた理論やモデルのほとんどは、液架橋形状が経時的に変化しない「静的な液架橋」を対象としている。しかしながら、実際の造粒プロセスでは、粒子間に形成される液架橋は粒子の運動に伴って変形する。すなわち、経時的に液架橋形状が変化する「動的な液架橋」を考える必要があるが、この付着現象は非常に複雑であり、実験的に解析することは極めて難しい。そこで直接数値シミュレーション (DNS) を用いて動的な液架橋による粒子間付着現象を解析した成果について紹介する<sup>1-4)</sup>。

動的な液架橋による粒子間付着現象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、直接数値シミュレーションにより、この現象をモデル

化した。すなわち、数値流体力学 (CFD) を用いて非定常気液2相流れを解くとともに、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数値計算で解いて非定常粒子運動を求めた。非定常気液2相流れにおける基礎方程式としては、連続の式、運動量保存式および液相カラー関数の移流方程式を用いた。液相カラー関数とは流体相の種類を区別する変数であり、気液界面の変形挙動はこの液相カラー関数の移流方程式を解くことで求められる。求めた気液2相流れから一意的に求まる液架橋の形状や内部圧力分布などを基に、粒子に作用する表面張力、毛管圧力に起因する力、流体抗力を求め、これらを外力項に考慮して粒子運動挙動を求めた<sup>1)</sup>。図2aに結果の一例を示す。ここでは、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・付着する現象を計算しており、異なる粒子衝突速度における結果を示している。衝突速度1.0 m/sの場合、最終的に粒子同士は付着したが、衝突速度を増加させると (5.0 m/s)、粒子同士の反発後、粒子の運動量は減衰せず液架橋が破断して最終的に2粒子は分離した。このように、構築した直接シミュレーションモデルを用いることで、実験的な解析が困難である粒子付着現象を解析することができた。

このモデルを活用して、粒子の濡れ性 (液滴の接触角)<sup>2)</sup> や

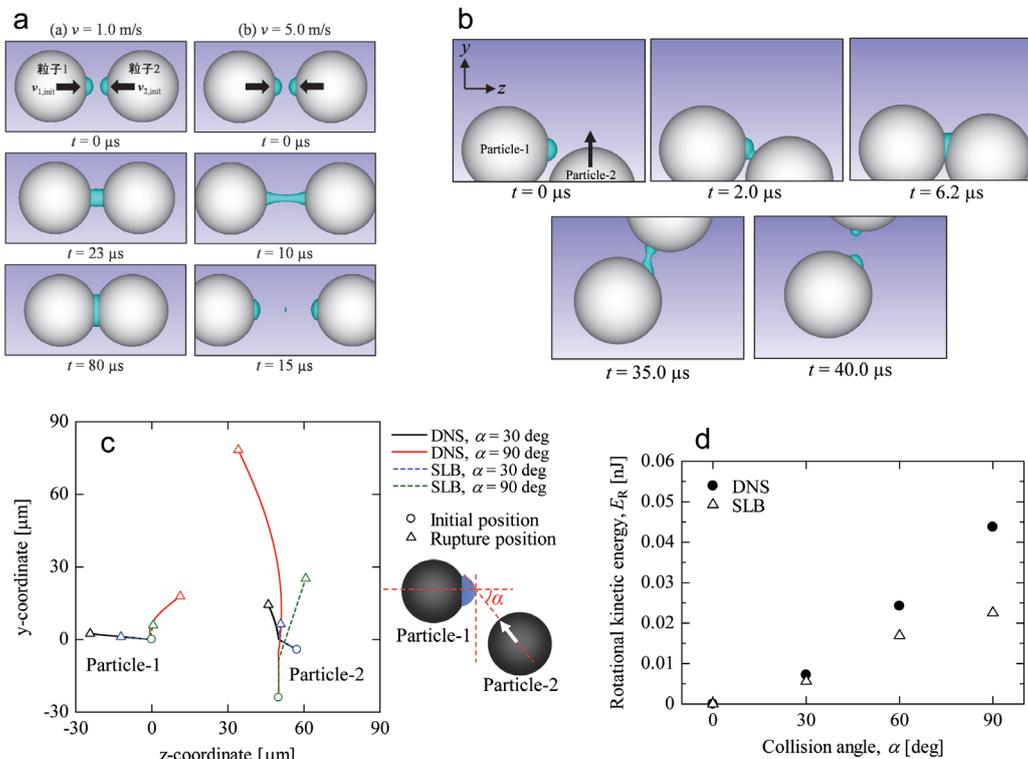


図2 液架橋を介した粒子の衝突・付着現象の解析。(a) 異なる衝突速度における2粒子の付着および反発挙動。(b) 接線方向衝突時の粒子挙動 (c) 直接数値シミュレーション (DNS) および静的液架橋 (SLB) の場合の衝突する2粒子の軌跡。より厳密な液架橋力と既存の静的液架橋モデル (SLB) との間には大きな差が確認できる。(d) DNSとSLBにおける回転運動エネルギーの比較。衝突角度が大きいほど、厳密な液架橋力 (DNS) では強い回転運動が誘起されることが分かる

液滴径<sup>3)</sup>などの種々の因子の影響解析を行った。その中から、以下では、「粒子衝突角度」の影響を解析した事例を紹介する<sup>4)</sup>。図2bに示すように、液滴に対して接線方向から粒子が衝突する場合における粒子の並進・回転運動の変化を解析した。そして、既存の静的液架橋力モデルを用いた場合の結果と比較した。その結果、液滴に対して斜め方向から粒子が衝突する場合において、粒子の並進運動はDNSで計算される厳密な液架橋力と既存の静的液架橋力モデルでは大きな差が生じることを明らかにした(図2c)。さらに、回転運動にも着目すると、DNSの方が高い回転エネルギーを示しており、液架橋力を厳密に考慮すると、斜め方向の衝突の際に粒子の回転運動が強く誘起されることも分かった(図2c)。これらの違いをより深く理解するために、粒子の回転運動および液架橋の変形挙動に着目した。直接数値シミュレーションでは、液架橋は粒子表面を滑らず付着したままであり、斜め方向の衝突時の液架橋のずり変形に伴って粒子の回転運動が強く誘起される。一方、既存の静的液架橋力モデルでは、液架橋は2粒子の重心を結ぶ法線に沿って形成されるものとして単純に扱われる。これを現象論的に捉えると、液架橋は粒子表面を滑っていることに相当し、これは非現実的な挙動である。以上のことから、動的な液架橋による粒子付着現象を正確にモデリングするには、粒子表面に対する液架橋の滑りなしの挙動を考慮する必要があることを示した。

### 3 離散要素法 (DEM) を用いた造粒プロセスのスケールアップ<sup>5-7)</sup>

この研究で対象としたのは、バッチ式の攪拌造粒プロセスのスケールアップである。スケールアップの目標は、小規模造粒機で得られた造粒物と同等の物性を示す造粒物(例えば粒子径分布、密度、硬さ、流動性、圧縮成形性など)を、大型の造粒機で生産するための設計・運転条件を決定することである。しかしながら、製造現場においては、攪拌造粒プロセスのスケールアップはしばしば経験則や試行錯誤に頼って行われることが多い。このアプローチでは、スケールアップの本質を捉えることができないため、予期せぬトラブルに対処法的にしか対応できず、結果的に膨大なコストを要することも多い。従って、科学的・合理的根拠に基づいた攪拌造粒プロセスのスケールアップ手法が強く求められていた。合理的なスケールアップを行うためには、造粒機の内部で起こっている現象を把握した上で、異スケール間の相似則(幾何学的・運動学的・力学的相似性)を議論することが必要である。そこで、造粒装置内部の粉粒体流れや内部応力を詳細に把握することができる離散要素法 (DEM) に着目した。攪拌造粒プロセスの運動学的相似性および力学的相似性の両方

をDEMシミュレーションで解析し、その結果を元に運動学的相似と力学的相似の両方を満足するスケールアップ手法(Combined kinematic-dynamic scale-up method)を提案した<sup>5-7)</sup>。さらに、実際の造粒実験結果と比較し、提案した手法の妥当性確認まで行った。以下では、この研究事例について紹介する。

異なる容器サイズでDEMシミュレーションを行い、その結果からはじめに運動学的特性を解析した。図3aに、攪拌羽根直上断面の典型的なスナップショットを示す。各粒子はその速度に応じて色付けされている。結果より、鉛直方向に沿った粒子の速度勾配が確認できる。そこで、異なる容器スケールおよび攪拌羽根回転速度において、DEMより計算した鉛直方向速度勾配から無次元せん断速度を算出し、運動学的相似性を考察した。図3bに、異なる容器サイズにおける無次元せん断速度と攪拌羽根先端速度の関係を示す。興味深いことに、無次元せん断速度と攪拌羽根先端速度は、容器サイズに依らず一つのマスターカーブで相関できることが分かった。すなわち、スケールアップの際に攪拌羽根先端速度を一定に保つことで、運動学的相似性が成立することを見出した。攪拌羽根先端速度を一定に設定することは、経験的にもよく知られたスケールアップ手法である<sup>5-7)</sup>。我々がDEMシミュレーションより見出した知見は、この経験則の物理的根拠を示したとも言える。次に、粒子間衝突エネルギーを算出し、力学的相似性を解析した。詳細は割愛するが、容器サイズを増大させても、造粒時間を適切にスケールアップすることで、粒子間衝突エネルギーを一定に保つことを見出した。以上の知見を元に、我々は運動学的相似と力学的相似の両方を満足するスケールアップ手法(Combined kinematic-dynamic scale-up method)を提案した<sup>5-7)</sup>。最後に実際に造粒実験を行い、提案したスケールアップ手法の妥当性を検証した。実験では、典型的な医薬品賦形剤である乳糖・コーンスターチ・微結晶セルロースからなる粉体原料を用いた。各容器サイズにおける運転条件(攪拌速度および造粒時間)は、前述の提案した手法(Combined kinematic-dynamic scale-up method)から決定した。そして、この条件で調製した造粒物の物性を図3cに示す。粒子径分布および圧壊強度ともに、各容器サイズで一致している。以上の結果より、DEMシミュレーションを元に提案した本スケールアップ手法の妥当性が示唆された。

### 4 おわりに

本稿では、各種数値シミュレーションを駆使して、粒子同士の動的液架橋付着現象を解析した研究と、造粒プロセスの設計(スケールアップ)に活用した研究を紹介した。前者は、

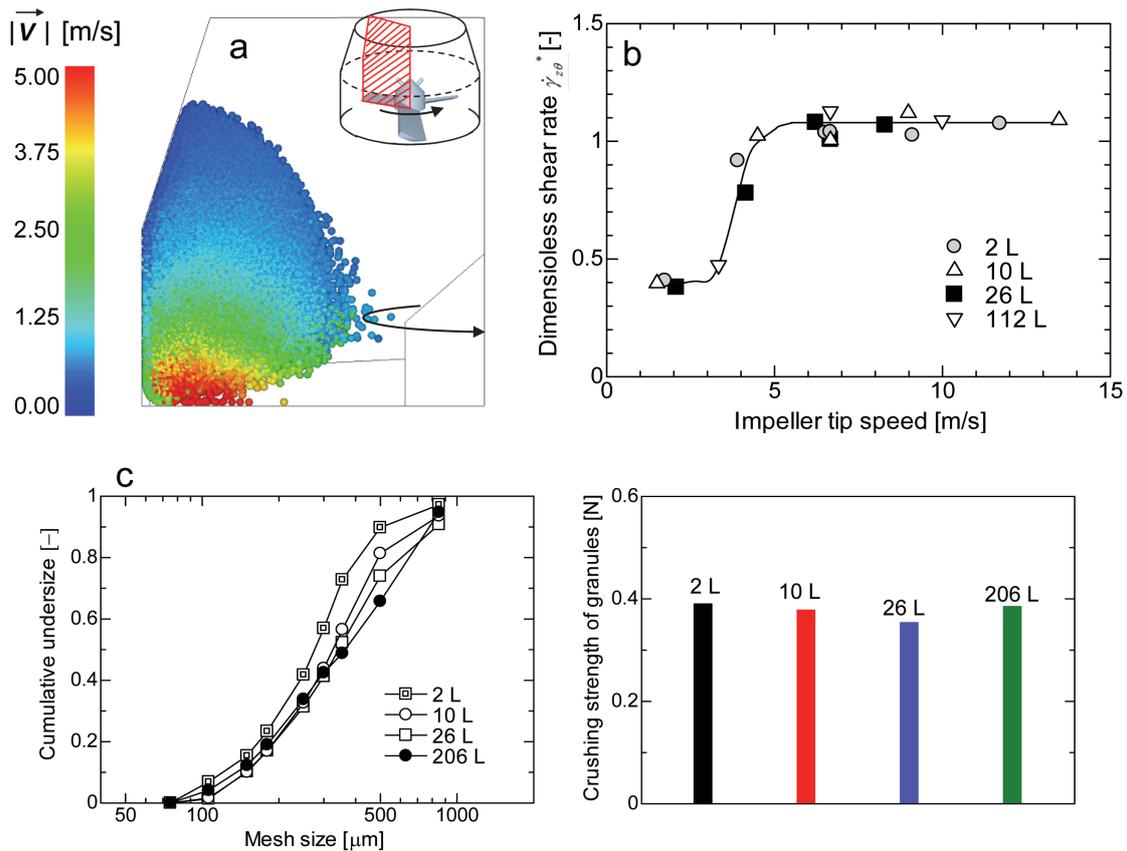


図3 離散要素法 (DEM) を用いた攪拌造粒プロセスのスケールアップ。(a) DEMより明らかとなった攪拌羽根直上断面の粒子速度分布。鉛直方向に粒子速度分布の勾配が確認できる。(b) DEMより求めた無次元せん断速度と攪拌羽根先端速度の関係。容器サイズに依らず一つのマスターカーブで相関できることを見出した。(c) スケールアップ実験の結果 (左図：積算粒子径分布。右図：造粒物圧壊強度)。各容器スケールの運転条件 (攪拌羽根回転速度および造粒時間) はDEMの結果を元に決定した

造粒をミクロな視点で捉えた研究に、後者はマクロな視点で捉えた研究に相当する。造粒のモデリングにおける最大のボトルネックは、この両者の幅広い時空間スケールに亘るマルチスケール問題をどう解くのか？ということに帰着する。新しいアイデアが必要なのは言うまでもなく、課題も山積しているが、粉体工学を軸にしつつ様々な分野のエッセンスを取り入れながら、今後も造粒の基礎研究を進めていきたい。

本稿で紹介した内容はいずれも研究会に参画する以前の研究成果であり、鉱石原料を直接のターゲットにしたものではないが、鉄鋼分野の皆様にもご一読頂き、ご批評を頂ければ幸甚である。また、液滴を介した粒子の衝突・付着現象の直接シミュレーションモデルについては、2粒子から多粒子群を対象としたものへと展開し、これを用いて「微粉鉱石造粒の数値シミュレーション」と題して、参画中の資源環境調和型焼結技術創成研究会で研究に取り組んでいる。研究を進め、鉄鋼分野にも貢献していきたい。

#### 参考文献

- 1) H. Kan, H. Nakamura and S. Watano : Chem. Eng. Sci., 138 (2015), 607.
- 2) H. Kan, H. Nakamura and S. Watano : Powder Technol., 302 (2016), 406.
- 3) H. Kan, H. Nakamura and S. Watano : Powder Technol., 321 (2017), 318.
- 4) H. Kan, H. Nakamura and S. Watano : Adv. Powder Technol., 29 (2018), 1317.
- 5) H. Nakamura, H. Fujii and S. Watano : Powder Technol., 236 (2013), 149.
- 6) H. Nakamura : Handbook of Pharmaceutical Wet Granulation 1st Edition : Theory and Practice in a Quality by Design Paradigm, ed. by A. Narang and S. Badawy, Elsevier, (2018), 737.
- 7) 仲村英也 : 化学プロセスのスケールアップ, 連続化, 技術情報協会, (2019), 5章3節.

(2019年6月21日受付)

## 先輩研究者・技術者からのエール

東北大学 大学院環境科学研究科 先端環境創成学専攻 准教授

村上 太一

今回、「躍動」の執筆者に仲村先生を推薦させていた  
 できました。先生は粉体工学の分野ではすでに一  
 流の研究者として認められ大変活躍されておりますが、  
 鉄鋼研究の仲間になっていただいてから数年ですので、  
 ぜひこの素晴らしい先生を皆さんにご紹介したく、思い  
 立った次第です。

仲村先生と初めにお会いしたのは2016年の10月でし  
 た。新しい焼結のII型研究会（「資源環境調和型焼結技術  
 創成」）を主査として立ち上げるにあたり、原料・焼結  
 分野は国内に大学の研究者の数が少ないため、すそ野を  
 広げるためにも焼結研究の経験がない方にも入っていた  
 だきたいと思い、造粒の研究ができる方として新日鐵住  
 金（当時）の方からご紹介いただき、仲村先生を大阪府立  
 大学まで訪問させて頂きました。挨拶をかわし、一通り  
 説明をし終え、雑談を始めると、「府立大の先輩に東北  
 大の丸岡伸洋先生がいるんだけどご存知ですか？」と聞  
 かれました。よく知っていること返事をして、彼の話を盛り  
 上がりました。大学に戻り、丸岡先生に聞くと、非常に  
 しっかりと信頼のできる後輩であるとのコメントで  
 期待が確信に変わったことを覚えています。

研究会が立ち上がり、進捗をディスカッションしてい  
 くと、始めたばかりの時はもちろん焼結プロセスをご存

じないため、プロセスに関するディスカッションには参  
 加されておられませんでした。造粒の原理原則に関する  
 ディスカッションには積極的にかつ的確な質問やコメ  
 ントをされておりました。一つの学問を修めた研究者の  
 姿がそこにありました。今では焼結事前処理プロセスを  
 理解され、研究会での重要なメンバーです。

昨年秋には、研究会の中間報告会を講演大会のシンポ  
 ジウムで開催しました。そこでも仲村先生には進捗を報  
 告いただきました。終わった後、色々な方から仲村先生  
 について聞かれました。その多くは、「素晴らしい研究者  
 ですね。しっかりとこの分野での研究を継続させてくだ  
 さい。」というもので、「研究会以降も引き続き継続して  
 いただきたいと思っていますところ。」とお答えしま  
 した。

製鉄プロセス、特に製鉄は固体粒子を取り扱うプロセ  
 スが多く存在するため、粉体工学は非常に重要な学問で  
 す。一方で、不均一な粒子を取り扱うため、現象を理解す  
 ることが非常に難しいプロセスでもあります。仲村先生  
 のような製鉄研究をターゲットのひとつにする粉体工学  
 のエキスパートが今後さらに増え、製鉄研究の新しい切  
 り口を開いてくれることを期待します。そして一緒にチャ  
 レンジングな試みができることを楽しみにしています。

日本製鉄（株） 技術開発本部 プロセス研究所 製鉄研究部

上席主幹研究員

松村 勝

仲村先生へエールを送る機会をいただき、ありがと  
 うございます。

仲村先生におかれましては、現在活動中の焼結研究会  
 が鉄鋼製鉄へ関わっていただく初めてのお仕事です。こ  
 こでは鉄鋼業に携わっていただいた経緯についてご紹介  
 させていただきます。

さて、鉄鉱石焼結プロセスにおける生産性や歩留へ多  
 大な影響を及ぼす因子として、焼結機本体における焼成  
 の前段階である造粒処理および装入処理が挙げられます。

その理由として、「焼結層の通気抵抗が焼結層の流通  
 ガス速度を決定し、焼結速度はほぼ流通ガス速度に比例  
 する」というプロセスの特徴が挙げられます。さらに、  
 焼結層の通気抵抗は、造粒処理による造粒物粒子径上昇  
 および装入処理による焼結層空隙率上昇が直接関与しま  
 す。後者の装入処理については、加納純也教授がDEMに  
 よる粒子運動の表現を深化されて、原料層における雪崩  
 現象まで表現できるに至りました。他方、前者の造粒処  
 理については、まだまだ現象整理も道半ばです。

このような背景を踏まえ、現在活動中の焼結研究会の  
 企画していた2016年、重要課題「造粒」をご担当される  
 先生を増やすべきとの方針の下、粉粒体の運動を扱う専

門家を探すこととなりました。粉体工学に暗い小生は、  
 弊社三尾氏へ相談。そして、彼が推薦したのが仲村先生  
 でした。物理現象に基づいたモデル構築、つまり正攻法  
 の研究アプローチが推薦理由でした。

2016年9月、村上先生、前田先生とともに大阪府立  
 大学を訪問した際に、「どうして私に行き着いたのです  
 か？」と問われ、「実は弊社の…」と打ち明けたところ、  
 「そうか」と照れてらっしゃったのが印象的でした。

2017年スタートした研究会において、仲村先生は斬  
 新な着想でモデル構築中です。実験による検証において  
 は、研究会委員諸氏諸先生との熱い議論を通じて、初め  
 て扱う「鉄鉱石」の物理的特徴を把握されつつあります。  
 順調にいけば、独創性の高い研究成果が得られること  
 でしょう。

今後、製鉄分野を担う中核となっていたいただきたく、い  
 ろいろな機会を活用して、先生と仕事をご一緒させてい  
 いただきたいと考えています。製鉄の風習？にとらわれな  
 い研究センスに接することで、小生の古い頭にも鑑がか  
 かるでしょう。引き続き、ご指導をよろしく願います

最後に、ますますのご活躍を期待しております。