

## 密度依存モデルを用いた湿潤粉体圧縮試験の FEM シミュレーション

草野 巧巳\*, 谷 昌明, 中村 浩

### Finite Element Analysis of Wet Granule Compression Using a Density-Dependent Modified Model

Takumi Kusano\*, Masaaki Tani and Hiroshi Nakamura

Received 28 February 2024; Accepted 23 April 2024

Prediction of wet granule compression process is significant for the industry. In this study, finite element method (FEM) simulation using the modified density-dependent Drucker-Prager Cap model (mDPC model) is performed to improve the deviation of actual stress values from calculated stress values of wet granules under compression. FEM simulation using the DPC model is also performed as a reference. The results show that the axial stress at the top surface and the radial stress of the wall obtained from the FEM simulation using the mDPC model were more consistent with the experimental values than those obtained by the DPC model.

**Keywords:** Wet granules, Finite element method, Powder compression, Modified Drucker-Prager Cap model.

#### 1. 緒 言

湿潤粉体は乾燥粉体に少量の液体を添加・混練することで作製され、充填性が高いことから、錠剤成形などで利用されている[1,2]。さらに近年、リチウムイオン電池電極の製造プロセスにおいても、スラリーの代わりに湿潤粉体を用いることで乾燥時に除去する液量を低減することができ、プロセスの低コスト化および低エネルギー化につながるため、新たなプロセスとして期待されている[3,4]。以上のような用途では、湿潤粉体は圧縮成形されることで最終製品となる。そのため、粉体の圧縮挙動を理解することは重要なこととなる。

粉体の圧縮挙動を計算する方法として、有限要素法 (FEM) シミュレーションがある。この FEM シミュレーションにおける粉体の圧縮挙動を表すモデルとしては、Drucker-Prager Cap (DPC) モデルがもっともよく使用されている[5–8]。DPC モデルは、材料の破壊包絡線に引張と圧縮のキャップサーフェイスを適用したものであり、それにより圧縮時の粉体の破壊と圧密の効果を両方表すことが可能となっている。さらに、粉体物性は圧縮に伴う密度の増加によって変化すると考えられ、密度に依存してパラメータを変化させる、修正 DPC (modified Drucker-Prager Cap, mDPC) モデルも考案されている[9]。

われわれはこれまで、リチウムイオン電池を想定した

湿潤粉体の力学特性と圧縮挙動との関係を計算してきた[10,11]。前報[11]にて DPC モデルを用いた FEM シミュレーションにより湿潤粉体の圧縮試験の再現を試みたが、湿潤粉体は低密度と高密度で粉体特性や溶媒の分布が大きく変化するため、特に低密度側で計算値と実験値に乖離が生じた。そこで、本論文では mDPC モデルを用いて、粉体の密度に依存してヤング率とポアソン比を変化させながら FEM シミュレーションを行うことで、湿潤粉体の圧縮試験の再現性の向上を試みた。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 湿潤粉体の作製

黒鉛とカルボキシメチルセルロース (CMC) の粉末に蒸留水を加え、攪拌して固形分 (黒鉛 + CMC) 濃度 70 wt% のリチウムイオン電池用湿潤粉体を作製した。黒鉛にはレゾナック社製 SMG (粒径約 15  $\mu\text{m}$ )、CMC には日本製紙社製 MAC800LC (1%水溶液粘度 9.5 Pa·s) を用い、黒鉛と CMC の重量比は 99 : 1 とした。攪拌は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 (ブレード) 回転数 500 rpm、解砕羽根 (クロススクリー) 回転数 3000 rpm、時間 30 s で攪拌して、湿潤粉体を作製した。

##### 2.2 圧縮試験

前報[11]と同様に薄肉円筒にひずみゲージを設置したセルを用いた。セルは直径 16 mm で壁面厚み 1.0 mm のアルミ製円筒、ひずみゲージは共和電業社製 KFGS を用い、材料試験機 (インストロン社製 68TM-30) に設置して圧縮試験を行った (Fig. 1 (a))。まず、ひずみゲージの値から側方向応力 ( $\sigma_r$ ) を換算するために、静水圧測定

株式会社豊田中央研究所  
(〒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

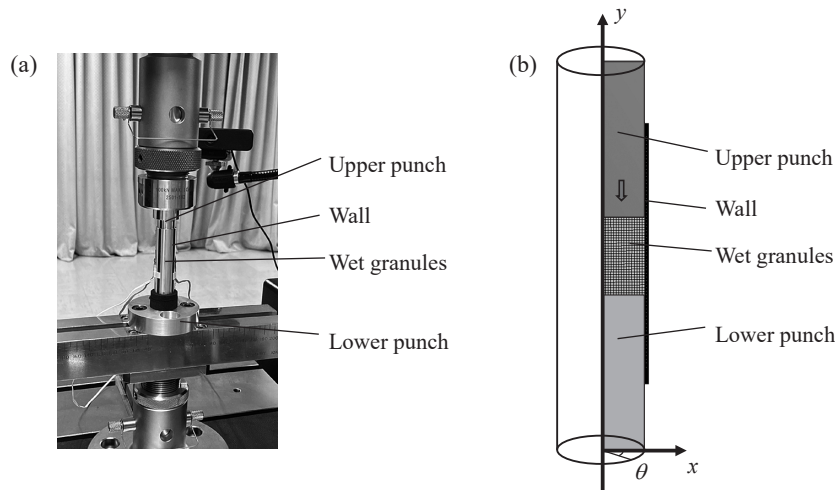


Fig. 1 (a) Image and (b) FEM model of compression test

による応力の校正を行った。その後、湿潤粉体を圧縮し、セル壁面に貼付したひずみゲージから  $\sigma_R$  を求めた。また、同時に材料試験機でセル上部に加わる垂直応力 ( $\sigma_T$ ) も測定した。圧縮は目的の密度に達するまで行い、その後、上部パンチを上昇させることにより抜重した。

### 2.3 粉体層せん断試験

湿潤粉体のせん断試験を粉体層せん断試験機（ナノシーズ社製 NS-S500）を用いて行った。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。湿潤粉体の密度が 1.6  $\text{g/cm}^3$  になるように初期荷重を印加し、破壊包絡線 PYL (Powder Yield Locus) を求めた。また、セル直径とせん断速度は同じ条件で、初期荷重を印加しないで求める限界状態線 CSL (Critical State Line) と、壁面摩擦試験により求める壁面摩擦係数  $\mu$  も測定した。壁面摩擦測定は、湿潤粉体層とアルミ壁面間のせん断力を測定することにより求めた。

### 2.4 FEM シミュレーション

FEM シミュレーションは、Ansys 社製 Ansys Mechanical R19.2 を用いて行った。Fig. 1 (b) にシミュレーションで用いたモデルを示す。計算には軸対称 2 次元解析を用い、セル壁面の要素サイズは 0.1 mm、湿潤粉体の要素サイズは 0.5 mm とし、セル上部とセル下部は剛体とした。また、境界条件に関しては、セル下部を固定し、Fig. 1 (b) 中の左境界 (y 軸) を境として軸対称とする、軸対称の円筒座標系で計算を行った。軸対称モデルの全要素数は 4058 であった。

上記の条件で、セル上部をセル下部側へ変位させることにより圧縮試験を模擬した。圧縮は密度 1.0  $\text{g/cm}^3$  から始め、密度が 1.6  $\text{g/cm}^3$  になるまで圧縮を行った後、セル上部を上昇させて抜重した。また、その際のセル壁面に加わる応力 ( $\sigma_R$ ) とセル上部に加わる応力 ( $\sigma_T$ ) を求めた。 $\sigma_R$  は粉体部中央のメッシュの壁面側へ加わる力の総和 ( $F_R$ ) を、そのメッシュと壁面との接触面積 ( $A_R$ ) で割ることで算出した ( $\sigma_R = F_R/A_R$ )。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 mDPC モデル化のためのパラメータ算出

DPC モデルのパラメータを、前報[11]と同じ方法で算出した[11,12]。まず、圧縮セルを用いて湿潤粉体の圧縮試験を行い、垂直応力  $\sigma_T$  と側方向応力  $\sigma_R$  を計測した。その後、Eqs. (1), (2) より、応力の第 1 不変量  $I_1$  と偏差応力の第 2 不変量  $\sqrt{J_2}$  を求めた。

$$I_1 = \sigma_T + 2\sigma_R \quad (1)$$

$$\sqrt{J_2} = \frac{1}{\sqrt{3}} |\sigma_T - \sigma_R| \quad (2)$$

Fig. 2 に湿潤粉体を各密度まで圧縮した時の  $I_1$  と  $\sqrt{J_2}$  の関係を示す。Fig. 2 (a) より、密度 1.4  $\text{g/cm}^3$  までの圧縮では  $I_1$  が減少 (圧縮側に増加) しても  $\sqrt{J_2}$  が増加しておらず、測定に十分な応力が得られていないことがわかる。一方で、Fig. 2 (d) と (e) より、密度 1.7 と 1.8  $\text{g/cm}^3$  までの圧縮では  $I_1$  と  $\sqrt{J_2}$  が交差しており解析可能なデータを得ることができなかった。これは、高压では水がセル隙間から滲み出すことで、その表面張力や潤滑の影響が大きくなるためと考えられる。実際に黒鉛と水の真密度より、おおよその飽和密度を見積もると 1.7  $\text{g/cm}^3$  となった。そのため、本研究では 1.4, 1.7, 1.8  $\text{g/cm}^3$  までの圧縮試験のデータは用いず、1.6  $\text{g/cm}^3$  までの圧縮試験についてパラメータ算出とその FEM シミュレーションを行った (Fig. 2 (c))。また、1.5  $\text{g/cm}^3$  までの圧縮試験結果 (Fig. 2 (b)) もパラメータ算出にのみ用いた。

次に、粉体層せん断試験で求めた PYL より 1.6  $\text{g/cm}^3$  での単軸崩壊応力  $f$  を、CSL より 1.6  $\text{g/cm}^3$  でのせん断応力  $\tau$  と垂直応力  $\sigma$  を得た。そして、圧縮試験とせん断試験より求めた  $\sigma_T$ ,  $\sigma_R$ ,  $f$ ,  $\tau$ ,  $\sigma$  より、Eqs. (1)~(6) を用いて 1.6  $\text{g/cm}^3$  の時の 3 点の  $I_1$  と  $\sqrt{J_2}$  を算出し、DPC モデル[5,11]によるフィッティングを行った。

$$I_1 = f \quad (3)$$

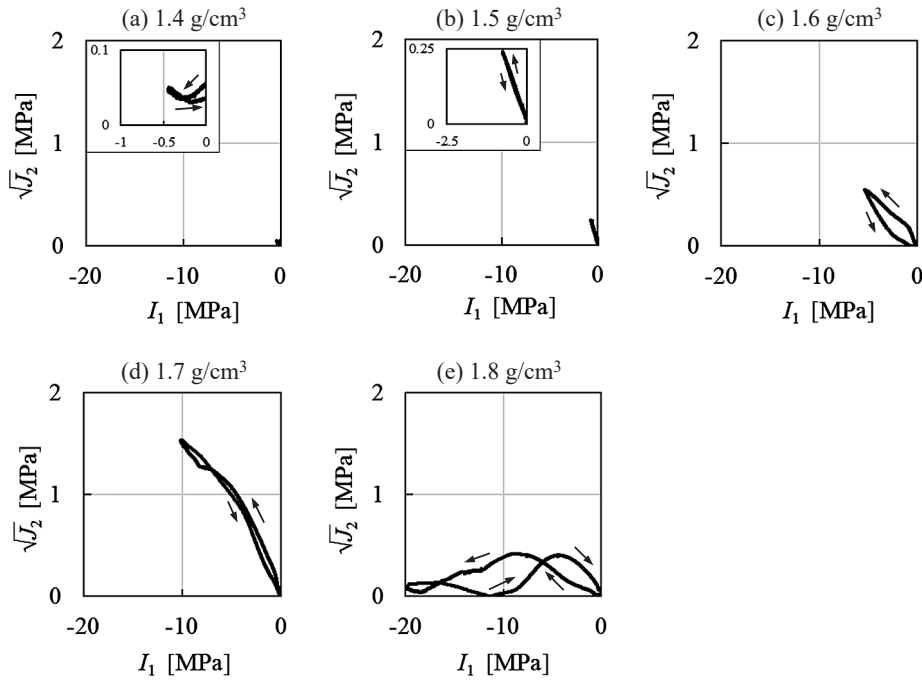


Fig. 2 Compression test data ( $\sqrt{J_2}$  vs.  $I_1$ ) of wet granules with compression up to (a) 1.4, (b) 1.5, (c) 1.6, (d) 1.7, (e) 1.8 g/cm<sup>3</sup>. The inset in panels (a) and (b) shows an enlarged plot of the high  $I_1$  region

$$\sqrt{J_2} = \frac{f}{\sqrt{3}} \quad (4)$$

$$I_1 = \sigma \quad (5)$$

$$\sqrt{J_2} = \tau \quad (6)$$

Fig. 3 (a) にフィッティングの結果を示す。このフィッティングにより、DPC モデルのパラメータである圧密キャップパラメータ  $R_c$ 、膨張キャップパラメータ  $R_v$ 、粘着降伏パラメータ  $\sigma_0$ 、せん断崩落面線形係数  $\alpha$  を求めた。一方、塑性体積ひずみ  $\varepsilon_{PV}$  と  $I_1$  の関係を再現するような圧密降伏曲面の降伏応力  $X_0$ 、塑性体積ひずみの制限値  $W_1$ 、硬化パラメータ  $D_1$  も、以下の Eq. (7) を用いて求めた (Fig. 3 (b))。

$$\varepsilon_{PV} = W_1 \{ \exp(D_1(I_1 - X_0)) - 1 \} \quad (7)$$

また、壁面摩擦測定の結果から湿潤粉体とセル壁面との摩擦係数  $\mu$  も求めた。Table 1 に、上記の方法で求めた湿潤粉体のパラメータを示す。

最後に、湿潤粉体のヤング率  $E$  とポアソン比  $\nu$  も前報 [11] と同様に、垂直応力抜重時の  $I_1 - \sqrt{J_2}$  の傾き  $k_1$  (Fig. 3 (c)) と垂直応力抜重時の  $\sigma_T - \varepsilon_{LN}$  の傾き  $k_2$  (Fig. 3 (d)) から、以下の Eqs. (8)~(11) を用いて算出した。

$$K = \frac{k_2}{1 - 2\sqrt{3}k_1} \quad (8)$$

$$G = \frac{3\sqrt{3}k_1k_2}{-2 + 4\sqrt{3}k_1} \quad (9)$$

$$E = \frac{9KG}{3K + G} \quad (10)$$

$$\nu = \frac{3K - 2G}{2(3K + G)} \quad (11)$$

ここで、本研究で用いた mDPC モデルでは、密度  $d$  によりパラメータの値を変化させることができる。そこで、通常の DPC モデルでは  $d = 1.6$  g/cm<sup>3</sup> で求めた  $E$  と  $\nu$  を用いたが、mDPC モデルについては密度  $d$  によって  $E$  と  $\nu$  を変化させた。まず、上記の方法で  $d = 1.5$  と  $1.6$  g/cm<sup>3</sup> の両方で  $E$  と  $\nu$  を求め、さらに線形外挿することで  $d = 1.4$  g/cm<sup>3</sup> の時の  $E$  と  $\nu$  も求めた。一方で、 $d \leq 1.3$  g/cm<sup>3</sup> では線形外挿から算出すると  $E$  も  $\nu$  も負の値となるため、計算可能なできるだけ小さな値 ( $E: 3.0$  MPa,  $\nu: 0.01$ ) を用いた。mDPC モデルでの計算に用いた各密度での  $E$  と  $\nu$  の値を Table 1 に、 $E$  と  $\nu$  の密度依存性のグラフを Fig. 4 に示す。実際は、 $E$  と  $\nu$  は連続的に変化すると考えられ、近似式を作成して変化させるのが妥当である。しかし、 $d \leq 1.4$  g/cm<sup>3</sup> では応力が足りず、 $E$  と  $\nu$  を求めることが困難であったことと計算コストの問題から、今回は  $E$  と  $\nu$  を不連続に変化させた。

### 3.2 DPC モデルと mDPC モデルの比較

DPC モデルと mDPC モデルを用いて湿潤粉体圧縮試験の FEM シミュレーションを行った。DPC モデルではすべての密度において、 $d = 1.6$  g/cm<sup>3</sup> の時の  $E$  と  $\nu$  を用いた。Fig. 5 に各方法で計算した湿潤粉体の  $\sigma_T$  と  $\sigma_R$  の密度依存性の実験値と計算値の比較を示す。Fig. 5 より、DPC モデル (Fig. 5 中の点線) では低密度領域 ( $d < 1.5$  g/cm<sup>3</sup>) で実験値と計算値が一致していない。これは、前報 [11] と同じ結果であり、DPC モデルのパラメータ取得を  $d = 1.6$  g/cm<sup>3</sup> でしか行っていないことが原因と考えられる。一方で、mDPC モデル (Fig. 5 中の破線) では

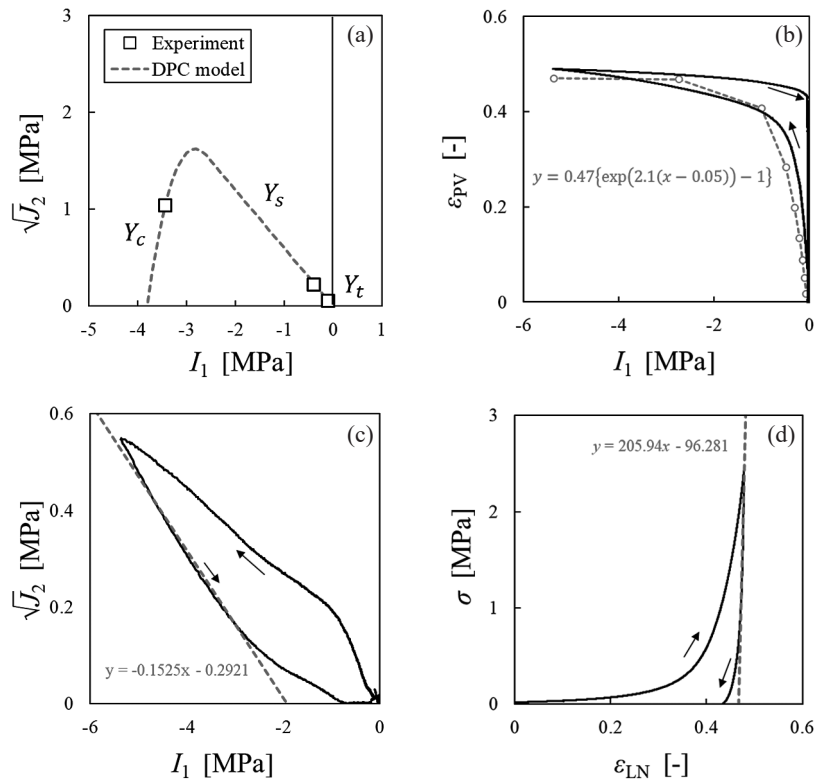


Fig. 3 Fitting results (dashed line) of (a) stress values obtained from compression and shear tests, (b) loading  $\varepsilon_{PV}$ - $I_1$  curve, (c) unloading  $\sqrt{J_2}$ - $I_1$  curve and (d) unloading stress-strain curve

Table 1 DPC parameters of the wet granules determined by model fitting of compression and shear tests data

Density [g/cm <sup>3</sup> ]	$E$ [MPa]	$\nu$ [-]	$\mu$ [-]	$R_c$ [-]	$R_t$ [-]	$X_0$ [MPa]	$\sigma_0$ [MPa]	$\alpha$ [-]	$W_1$ [-]	$D_1$ [-]
1.0	3.0	0.01								
1.3	3.0	0.01								
1.4	16.893	0.013	0.14	0.8	0.01	-0.05	0.0012	0.6	0.47	2.1
1.5	79.187	0.169								
1.6	141.48	0.325								

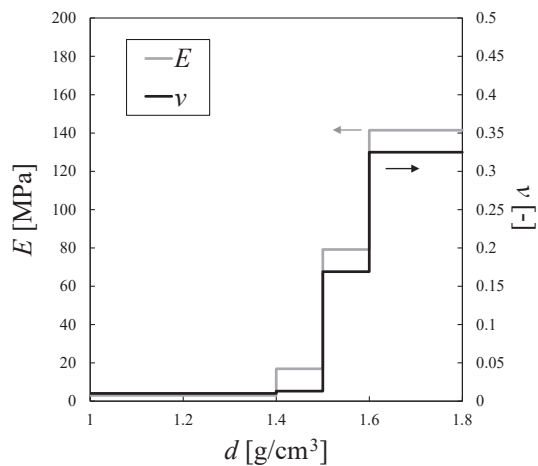


Fig. 4 Density dependence of Young's modulus and Poisson's ratio used for FEM simulation

DPC モデルよりも低密度領域での実験値と計算値の乖離が小さくなっていった。ただし、mDPC モデルの計算では実験では見られない応力の急激な上昇が確認できる (Fig. 5 の  $d = 1.5 \text{ g/cm}^3$  付近)。これは、 $E$  と  $\nu$  を不連続に変化させたことが原因と考えられる。近似式などを用いてパラメータを連続的に変化させることができれば、応力の急激な上昇は見られなくなると考えられる。

Fig. 6 に DPC モデルと mDPC モデルで計算した、 $d = 1.6 \text{ g/cm}^3$  まで圧縮後、抜重した時の湿潤粉体層の密度分布を示す。Fig. 6 (a) より、DPC モデルではセル底部中心 (Fig. 6 (a) のシミュレーション結果の左下) で密度が高くなっているが、既報[8,9,13]においては中心部でのこのような密度の増加は確認できていない。一方で、mDPC モデルを用いた計算結果 (Fig. 6 (b)) においてはそのような密度上昇は確認されておらず、また応力の値も DPC モデルよりも実験値に近いことからより実験を正確に表していると考えられる。ただし、mDPC モデルの結果に見

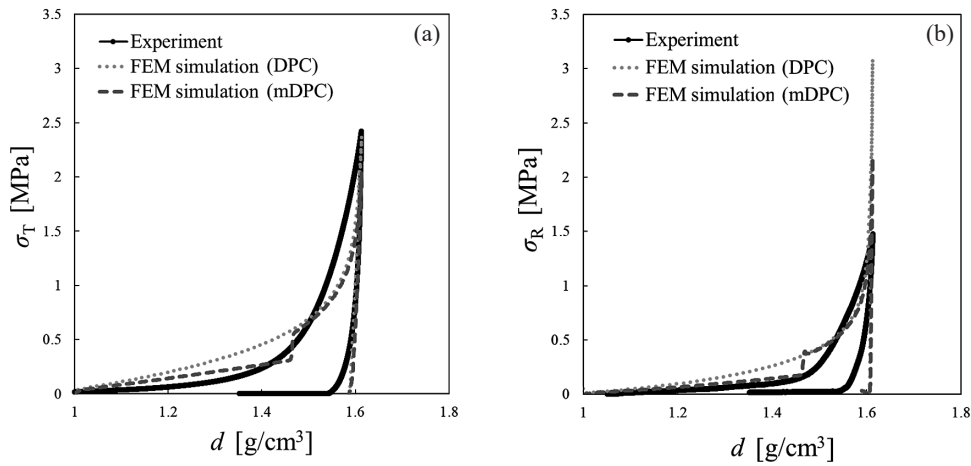


Fig. 5 (a)  $\sigma_r$  and (b)  $\sigma_R$  obtained from the compression test (solid line) and the FEM simulation using the DPC model (dotted line) and the mDPC model (dashed line)

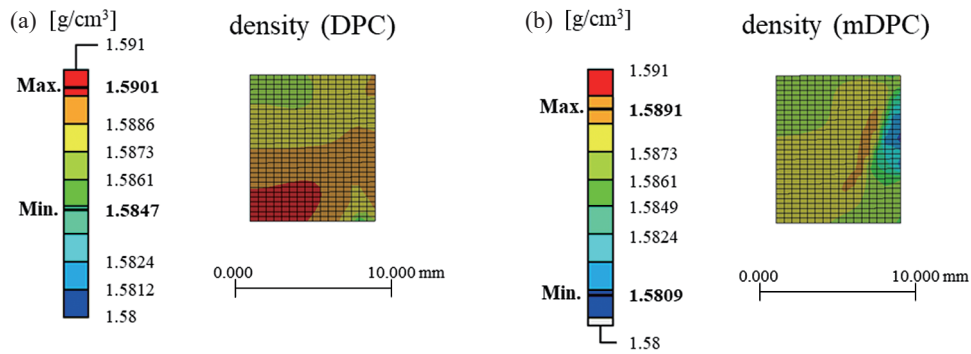


Fig. 6 Distribution of the density as estimated by the FEM simulation using (a) the DPC and (b) the mDPC model

られるような壁面での密度の低下 (Fig. 6 (b) のシミュレーション結果の右中央) も既報では確認できていない。今後、実際の密度分布との比較などで、妥当性を検証していく必要がある。

#### 4. 結 言

粉体の密度に依存してパラメータを変更することができる mDPC モデルを用いて、FEM シミュレーションで湿潤粉体の圧縮試験の再現性向上を試みた。まず、粉体圧縮試験と粉体層せん断試験の結果より、応力の第 1 不変量と偏差応力の第 2 不変量を求め、得られた結果を DPC モデルでフィッティングすることで、シミュレーションに必要なパラメータを取得した。DPC モデルでは  $1.6 \text{ g/cm}^3$  で求めたパラメータのみを用いたが、mDPC モ

デルではヤング率とポアソン比を  $1.5, 1.6 \text{ g/cm}^3$  で求めた値をそれぞれ用い、さらに  $1.0 \sim 1.4 \text{ g/cm}^3$  についてもそこから予測した値を使用した。得られたパラメータで FEM シミュレーションを行った結果、mDPC モデルでは DPC モデルよりも低密度での応力の実験値と計算値の乖離が小さくなることがわかった。

湿潤粉体の圧縮挙動の計算について、mDPC モデルにおいてヤング率とポアソン比を変化させるだけでも計算値と実験値の一致がよくなることを確認できた。今後、低圧側のパラメータを正確に求めることができ、具体的なモデルや近似式を用いてパラメータを連続的に変化させることができれば、実験値と計算値の乖離はさらに改善すると考えられる。

#### Nomenclature

$A_R$ : contact area between wet granules and wall at the vertical center	$[mm^2]$	$I_1$ : the first invariants of stress	$[MPa]$
$D_1$ : hardness parameter	$[MPa^{-1}]$	$J_2$ : the second invariants of deviatoric stress	$[MPa]$
$E$ : Young's modulus	$[MPa]$	$K$ : bulk modulus	$[MPa]$
$f$ : unconfined yield stress	$[MPa]$	$k_1$ : slope of unloading $\sqrt{J_2}$ - $I_1$ curve	$[-]$
$F_R$ : sum of wall forces at the vertical center	$[N]$	$k_2$ : slope of unloading stress-strain curve	$[MPa]$
$G$ : shear modulus	$[MPa]$	$R_c$ : cap parameter of the cap segment	$[-]$
		$R_t$ : cap parameter of the transition segment	$[-]$

$W_1$	: limit of the volumetric inelastic strain	[-]	$\nu$	: Poisson's ratio	[-]
$X_0$	: hydrostatic pressure yield surface	[MPa]	$\sigma$	: normal stress	[MPa]
$\alpha$	: friction coefficient between powders	[-]	$\sigma_0$	: cohesion	[MPa]
$\varepsilon_{PV}$	: volumetric inelastic strain	[-]	$\sigma_R$	: radial stress at the wall surface of the cell	[MPa]
$\varepsilon_{LN}$	: logarithmic strain	[-]	$\sigma_T$	: vertical stress	[MPa]
$\mu$	: friction coefficient between powder and wall	[-]	$\tau$	: shear stress	[MPa]

### References

- [1] A. Ito, H. Onishi, K. Yamamoto, Y. Machida, Evaluation of binders in the preparation of medicinal carbon tablets by wet granule compression, *Chem. Pharm. Bull.* 58 (2010) 359–362.
- [2] M. Fujita, S. Himi, M. Iwata, Stabilization study on a wet-granule tableting method for a compression-sensitive benzodiazepine receptor agonist, *Yakugaku Zasshi* 126 (2006) 315–319.
- [3] Japanese Patent No. JP2018-6277491B, 2018-1-26.
- [4] Japanese Patent No. JP2018-6284020B, 2018-2-9.
- [5] D. C. Drucker, W. Prager, Soil mechanics and plastic analysis or limit design, *Q. Appl. Math.* 10 (1952) 157–165.
- [6] A. R. Muliadi, J. D. Litstera, 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] K. Mizuta, Y. Taniguchi, Finite element analysis of iron powder compaction for prediction of clack occurrence using Drucker-Prager Cap model, *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall.* 66 (2019) 405–412.
- [8] C.-Y. Wu, O. M. Ruddy, A. C. Bentham, B. C. Hancock, S. M. Best, J. A. Elliott, Modelling the mechanical behaviour of pharmaceutical powders during compaction, *Powder Technol.* 152 (2005) 107–117.
- [9] L. H. Han, J. A. Elliott, A. C. Bentham, A. Mills, G. E. Amidon, B. C. Hancock, A modified Drucker-Prager Cap model for die compaction simulation of pharmaceutical powders, *Int. J. Solids Struct.* 45 (2008) 3088–3106.
- [10] T. Kusano, M. Tani, H. Nakamura, Modeling of differential speed rolling of powder, *J. Soc. Powder Technol., Japan* 58 (2021) 540–545.
- [11] T. Kusano, M. Tani, H. Nakamura, Finite element method simulation of wet granule compression, *J. Soc. Powder Technol., Japan* 61 (2024) 9–16.
- [12] ANSYS Inc., Theory Reference for the Mechanical APDL and Mechanical Applications; ANSYS Inc.: Canonsburg, PA, USA (2009).
- [13] S. Ohsaki, K. Kushida, Y. Matsuda, H. Nakamura, S. Watano, Numerical study for tableting process in consideration of compression speed, *Int. J. Pharm.* 575 (2020) 118936.