

博士学位論文審査要旨

2008年2月12日

論文題目：粒子-流体混相シミュレーションによる微粒子材料プロセッシングに関する研究

学位申請者：西浦 泰介

審査委員：

主査： 工学研究科 教授 日高重助
副査： 工学研究科 教授 水島二郎
副査： 工学研究科 教授 土屋活美

要 旨：

微粒子の特徴を利用した新機能性材料の創製は非常に盛んで、それとともに微粒子の配列・構造化などの新しい微粒子プロセッシング技術の開発が求められている。微粒子プロセッシングでは、微粒子群の大きな付着・凝集性のために液相中に分散して扱うことが多く、このとき微粒子は流体との相互作用により大変複雑な挙動を示す。その粒子挙動を任意に制御し、微粒子材料の新機能発現に最適な粒子構造を形成するには、シミュレーションによる粒子-流体混相現象の正確な理解に基づく高度で、精密なプロセス設計が必要である。そこで本論文では、粒子-流体間相互作用が重要な影響を与える微粒子現象に対する新しい粉体シミュレーション法を開発し、それによる微粒子プロセッシングの操作設計法を提案している。

本論文は11章から成り、第1章は序論で、本研究の意義と目的を述べている。

第2章では地球シミュレータを用いた粒子群干渉沈降現象の大規模直接数値シミュレーションに成功し、粒子群干渉沈降現象に対する微視的情報を得ることを可能にした。

第3章では粒子径分布を有する粒子群中の任意粒子の沈降速度を推算する単一粒子干渉沈降速度式を初めて導出した。理論的考察から粒子濃度と粒子径分布を考慮した干渉沈降速度に関する基礎式を導き、基礎式に含まれる未知の微視的物理量をシミュレーション結果から得て、非球形粒子群中の任意粒子の干渉沈降速度の推算を可能にした。

第4章では直接数値計算法をせん断流体中の粒子-流体挙動に適用し、粒子分散構造とけん濁液粘度との関係を明らかにし、けん濁液の粘度にもとづく粒子群分散状態の評価法を提案している。

第5章では粒子に関するDEM (Distinct Element Method) と乱流に関するLES (Large Eddy Simulation) を連成した湿式媒体攪拌型ミル内のビーズ-流体挙動シミュレーション法を開発した。これによりミル内のビーズ挙動が凝集粒子の分散に及ぼす影響を明らかにし、微粒子の分散法としてその重要性を増しているビーズミルの操作設計に有用な知見を与えている。

第6章ではけん濁液乾燥挙動の直接数値シミュレーション法を提案した。液体の蒸発にともなう微粒子の自己組織化挙動、あるいは粒子群の移流集積現象に対する詳しい微視的検討を可能に

し、目的とする粒子構造形成のための粒子挙動の制御に対する有用な基礎的知見を得ている。

第7章では局所平均化モデルを用いてDEMと気-液界面を正確に表現するCIP (Constrained Interpolation Profile method) 法を連成して微粒子けん濁液の大規模乾燥挙動シミュレーション法を提案した。シミュレーションで得られる乾燥粒子層の粒子構造と粒子群分散状態や乾燥速度などとの関係は乾燥実験における結果と良く一致しており、本シミュレーションにより微粒子けん濁液の乾燥挙動に対する信頼性の高い微視的情報を得ることを可能にした。

第8章では、7章で開発したシミュレーション法を用いてけん濁液の乾燥により得られる微粒子膜の粒子構造形成挙動に対するけん濁液特性と粒子特性、乾燥速度の影響を明らかにし、密な粒子構造を有する粒子膜の形成条件を明らかにしている。

第9章と10章では微粒子けん濁液滴の乾燥シミュレーションを行い、噴霧乾燥顆粒の粒子構造形成挙動を検討している。中実顆粒、中空顆粒と陥没顆粒が形成されるメカニズムを明らかにし、中実顆粒を得るための操作条件を明らかにしている。つづく第10章では結合剤を添加したけん濁液滴の乾燥シミュレーションを行い、顆粒形成過程における液面の移動速度と安定な外殻粒子層の形成速度のバランスおよび液滴内圧の変動により顆粒内粒子構造および顆粒の形態が決定されることを明らかにした。

以上のように本論文は、流体が関与する微粒子の挙動の予測と精密な制御を目的として新しい流体-粒子群混相挙動のシミュレーション法を開発し、粒子-流体混相現象に対する微視的知見と正確な理解をもとに微粒子材料生産システムで重要性を増している微粒子分散プロセスおよび乾燥プロセスの操作設計に対して有用な知見を得ることを可能にしたものである。よって、本論文は、博士(工学)(同志社大学)の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。

総合試験結果の要旨

2008年2月12日

論文題目：粒子-流体混相シミュレーションによる微粒子材料プロセッシングに関する研究

学位申請者：西浦泰介

審査委員：

主査：工学研究科 教授 日高重助

副査：工学研究科 教授 水島二郎

副査：工学研究科 教授 土屋活美

要旨：

本論文提出者は2005年3月本学大学院工学研究科工業化学専攻博士課程前期課程を修了後、ただちに後期課程に進学し、現在同課程に在学中である。

各年度において優れた研究成果を挙げ、英語の語学試験に合格し、ドイツ語についても十分な能力を有すると判定されている。本論文の内容は、化学工学論文集あるいは各種国際会議のProceedingsに掲載あるいは掲載が決定しており、すでに十分な評価を得ている。

2008年1月12日午前10時から提出論文に関する学術講演会（博士論文公聴会）が開かれ、種々の質疑討論が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに講演会終了後、審査委員により論文に関係する諸問題について口頭試問を実施した結果、本人の十分な学力を確認することができた。

よって、本論文提出者の専門分野に関する学力ならびに語学力は十分であると認められ、総合試験の結果は合格であると判定した。

博士學位論文要旨

論文題目： 粒子 - 流体混相シミュレーションによる微粒子材料プロセッシングに関する研究

氏名： 西浦 泰介

要旨：

微粒子の配列による構造色の発現あるいはフォトニック材料や各種エネルギー変換材料などにみるように微粒子の特徴を利用した新機能性材料の創製が非常に盛んになり、それにもなつて微粒子の配列・構造化などの新しい微粒子プロセッシング技術の開発が求められている。

微粒子材料のプロセッシングでは、付着・凝集性の強い微粒子群を液相中に分散して取り扱うことが多く、微粒子は流体との相互作用により複雑な挙動を示す。その粒子挙動を任意に制御し、微粒子材料の新機能発現に最適な粒子構造を形成するためには、シミュレーションを利用した粒子-流体现象の正確な理解に基づく高度で、精密なプロセス設計が必要である。しかし固体粒子と液相、気相の3相が関与する混相現象に関する詳しい知見を与え、プロセス設計に有用な情報を提供するシミュレーション法はまだ見当たらず、混相現象の解析目的に応じて粒子-流体間相互作用を考慮した新しい粉体シミュレーション法の確立が強く望まれている。

そこで本論文では、粒子-流体間相互作用が重要な影響を与える微粒子の現象に対する新しい粉体シミュレーション法を提案し、それにより微粒子プロセッシングの設計情報を得ることを試みた。

本論文は第1章の序論に始まり、第2章から第3章で粒子群干渉沈降現象を取り上げて流体中における粉体现象の基本を理解し、第4章から第10章では微粒子材料プロセスの設計に必須となる微粒子けん濁液の粒子分散操作ならびに乾燥操作にともなう粒子-流体挙動についての微視的知見と正確な理解を得る。最後に第11章で本論文を総括する。

はじめに、多粒子群と流体が相互作用する基本的な現象の理解を得るために第2章では地球シミュレータを利用して干渉沈降現象の大規模直接数値シミュレーションを行った。本方法は粒子-流体間相互作用力を厳密に扱うとともに、大規模化したことで実験結果を非常に良く再現した。均一粒径粒子群の場合、粒子濃度の増加につれて粒子沈降体積に起因する置換流体の上昇速度ならびに粒子に作用する流体力が増加するために多粒子群の沈降速度は減少した。二成分粒径粒子群の場合は、大粒子の割合が増加するにつれて流体速度および流体力が増加して二成分の場合もそれぞれの粒子の沈降速度は減少する。また層流域での干渉沈降現象において、粒子速度に与える粒子間衝突力の影響は流体力に比べて非常に小さく、干渉沈降現象に対する粒子間衝突の影響は無視できることが示された。

これら多くの微視的知見を利用して、第3章では粒子径分布を有する粒子群中の任意粒子の沈降速度を推算する単一粒子干渉沈降速度式を導出した。まず、干渉沈降現象に関する理

論的考察を行い、粒子濃度と粒子径分布を考慮した干渉沈降速度の基礎式を提示した。つづいてシミュレーションから得た知見を活用し基礎式に未知量として含まれる流体抵抗力と流体速度を粒子濃度と粒子径分布の関数で与えた。この提案式を用いて、粒子径分布を有する球形および非球形粒子群中の任意粒子の沈降速度を推算したところ実験結果と良く一致し、干渉沈降速度式の高い信頼性が示され高濃度多成分系の粒子挙動が予測可能となった。

つづいて、3章までで得た粒子-流体现象に対する詳しい知見をもとに、微粒子材料プロセスの最適設計を目指して、微粒子の分散および乾燥における微粒子けん濁液の挙動を詳しく検討した。まず、乾燥プロセスで形成される粒子構造に大きな影響を与える微粒子分散状態の精密な制御を可能にするには、分散状態を正確に評価する方法が必要となる。

そこで、第4章では第2章で提案した直接数値計算法をせん断流体中の粒子-流体挙動に適用し、粒子分散構造とけん濁液粘度との関係を明らかにした。粒子濃度が増加するにつれて粘度は高くなり、特に高濃度領域では粒子間摩擦係数が高いほど粒子間接触点数が増加するため、見かけの固体濃度が高くなり粘度の上昇が顕著になることを明らかにした。さらに、粒子濃度や摩擦係数、分散状態が異なる種々のけん濁液について見かけの固体濃度と粘度が比例関係にあることを示した。これにより、けん濁液の粘度から液中の粒子分散構造と密接に関係する見かけの固体濃度を推算できるために分散状態の精密な評価が可能になった。

つづいて所望の粒子分散状態を得るためには、凝集粒子群の分散操作ならびにその装置設計を最適化する必要がある。

そこで第5章では局所平均化モデルを用いてDEMとLESの連成による湿式媒体攪拌型ミル内のビーズ-流体挙動シミュレーション法を提案し、ミル内に生じるエネルギーが凝集粒子の分散に及ぼす影響を検討した。流体せん断エネルギーはビーズ間衝突・摩擦エネルギーと同程度の大きさを持ち、攪拌速度とビーズ充填率の増加にともない凝集粒子の分散に効果的に働いた。ビーズ径が小さくなるとビーズ間衝突と摩擦エネルギーは減少するが、接触面積が増えるために凝集粒子をよく分散させる。また、流体せん断エネルギーは増加し、分散効果が高くなる。乱流場におけるビーズ挙動をシミュレートする本方法は、これまで未解明であった分散メカニズムに対して詳細な知見を与える。

微粒子けん濁液の乾燥により目的の粒子構造を形成させるに最適な粒子分散状態を決定するためには、乾燥プロセスにおける粒子構造形成挙動と粒子分散状態の関係を詳しく検討する必要がある。

そこで第6章では、まず微粒子けん濁液の乾燥挙動を正確に理解するために、粒子-流体間ならびに粒子表面-液表面間の相互作用を厳密に扱ったけん濁液乾燥挙動の直接数値シミュレーション法を提案した。本方法により液体の蒸発にともなう微粒子の自己組織化挙動と粒子間隙に生じる液体の毛管上昇流を再現し、その挙動に及ぼす毛管力と流体力の影響について詳細な情報を得た。さらに本方法は個々の粒子に働く流体力を厳密に計算しているため、粒子の移流集積現象に対しても詳しい検討を可能にし、粒子個々の挙動を制御するための有用な知見を与える。

つづいて高粒子濃度のけん濁液を乾燥させて得られる多層粒子構造の精密な制御を可能にするために、第7章では局所平均化モデルを用いてDEMとCIP法を連成し多数の粒子を扱

うことが可能な微粒子けん濁液の乾燥挙動シミュレーション法を提案した。シミュレーションにより得た乾燥粒子層の表面構造は粒子分散状態が良好で、乾燥速度が低いほど緻密になり乾燥実験における傾向と良く一致し、微粒子けん濁液の乾燥挙動に対して信頼性の高い微視的な情報を得ることが可能になった。この方法を用いて次章からは高粒子濃度けん濁液の乾燥メカニズムを詳細に検討した。

まず第 8 章で微粒子膜の粒子構造形成挙動に対するけん濁液特性と粒子特性、乾燥速度の影響を調べた。粒子分散状態に影響する粒子間の静電相互作用については、デバイ長さが小さい場合に粒子間接触の開始時期が遅くなり、また電位が高い場合に粒子間接触力の増加率が減少するため、いずれも粒子の再配列が十分に行われ、高い粒子充填率が得られた。さらに、乾燥速度が低い場合にも十分な再配列が行われ粒子充填率が増加する。一方で、乾燥速度を極端に高くすると静電斥力が急激に増加し、基板面上で規則構造が早く完成して粒子層全体が高密度になった。また、液体の表面張力が大きいほど、また粒子の濡れ性が高いほど、粒子層内部に液面が侵入する時、粒子に縦毛管力が大きく作用して粒子が高密度で充填された。以上より、粒子の再配列速度と乾燥速度のバランスならびに縦毛管力の大きさが粒子膜の構造を決定することが分った。

つづいて第 9 章と 10 章では微粒子けん濁液滴の乾燥シミュレーションを行い、噴霧乾燥顆粒の粒子構造形成挙動を検討した。中実顆粒は粒子分散状態が悪い場合に生じ、その原因は、液滴表面で凝集体構造を維持したまま乾燥が進むために粒子群が密に詰まり難く、外殻の形成が遅れるためであることを示した。一方、中空顆粒は良分散状態あるいは乾燥速度が高い場合に生じた。分散状態が良くなると液面で粒子が緻密に充填され、また乾燥速度が高いと液面近傍での粒子間衝突力が增大するため、いずれも粒子移動が抑制されて乾燥初期に外殻を形成した。その後、外殻層から剥がれた液面が内部の粒子を移動させて空洞を作り中空顆粒を形成することが確認された。陥没顆粒は液滴表面に乾燥速度の分布が有る場合もしくは粒子の濡れ性が非常に良い場合に生じた。乾燥速度の偏りは液滴内に圧力勾配と液体流れを生じ、この流れに乗って粒子が移動し、乾燥速度の遅い液面に陥没構造が形成される。濡れ性が非常に良い粒子は液滴内圧の顕著な低下を引き起こし、液面が局所的に収縮し陥没する。さらに、第 10 章では結合剤を添加したけん濁液滴の乾燥シミュレーションを行った。結合剤添加量が増加するにつれて液滴表面で結合剤濃度の偏析が大きく生じ、これにともない液体粘度が増加して粒子移動が阻害され、外殻が早期に形成されるために中空顆粒を形成する。結合剤添加量が極めて多い場合には、同様の理由によりさらに早く外殻ができ外殻層の厚みは一層薄くなるため、局所的に強度の弱い部分が表面張力に耐えられなくなり陥没顆粒が得られた。以上より、液面の移動速度と安定な外殻粒子層の形成速度、それら二つの速度バランスおよび液滴内圧の変動が顆粒構造を決定することが分った。

以上のように本論文では、流体が関与する微粒子の挙動の予測と精密な制御を可能にすることを目的として新しい流体-固体粒子群挙動のシミュレーション法を確立した。本方法は粒子-流体现象に対する微視的知見と正確な理解を与え、微粒子材料の生産システムで重要性を増している微粒子分散プロセスおよび乾燥プロセスの設計に対して有用な情報を与える。