

博士学位論文審査要旨

2011年2月13日

論文題目：粉体シミュレーションによる微小金型への顆粒充填プロセスの精密設計に関する研究

学位申請者：赤司雅俊

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 土屋活美

副査：工学研究科 教授 白川善幸

要旨

機能性セラミックスや粉末冶金材料など、高機能焼結材料の創製が非常に盛んである。焼結材料は、一般に顆粒状の粉体を金型に充填し、圧縮成形を行った後に焼結して生産されるが、圧縮成形体内における粒子構造の不均一が焼結材料の幾何学的特性や機能特性に大きな影響を与える。とくに最近では、焼結材料を用いるデバイスの小型化が急速に進み、圧縮成形用微小金型キャビティへ顆粒を高速で、均一に充填することが焼結材料プロセスにおける新しい課題の一つになっている。

本論文は、微小金型キャビティへの顆粒の均一充填における主要な問題である偏析現象に関する基礎的検討と粉体シミュレーションによる充填操作の設計について述べたものである。

論文は8章から成り、序論では本研究の背景と目的を述べている。つづく第2章では偏析現象に対する粒子径分布の影響を実験的に明らかにしている。偏析は粉体粒子が運動するとき、同じ運動能を持つ粒子が集合し、粒子特性に応じて粒子が分離する現象である。混合粒子群の粒子径比による特異な偏析現象を見出すとともに偏析現象の評価法を提案し、偏析を抑制するために求められる粒子径分布の広さを明らかにしている。

第3章では実験的追及が困難であるために、これまで全く検討されていない偏析現象に対する粒子形状の影響を粒子法シミュレーションにより明らかにしている。まず、球形要素を用いる粒子法シミュレーションにおいて粒子転がり摩擦係数を用いて粒子形状の影響を考慮する方法を提案した。つづいて、粉体シミュレーションにより偏析に対する粒子形状の影響を検討し、粒子形状が不規則になるにつれて偏析が抑制されることを示している。

第4章では微小金型充填における基礎的知見を得ることを目的に充填特性と粒子特性、操作条件の関係を実験的に調べている。とくに、充填速度の違いによる粒子充填挙動の違いを詳しく観察し、充填速度が金型内の充填率や粒子径分布に大きな影響を与えることを明らか

にしている。

第 5 章では、固化させた粒子充填体から多くの薄片を作り、切断面上の切断粒子径分布から実際の充填粒子径分布を推算する方法を見出し、それを利用する粒子充填体粒子構造の均一性評価法を提案した。

第 6 章では、球形要素により不規則形状粒子充填層内の空隙率分布を表現することができる粒子充填挙動シミュレーション法を提案している。球形要素の接触距離を粒子形状の不規則さに応じて変化させる粒子構造表現法を用いており、実験により本方法の信頼性を確認している。

第 7 章では顆粒充填プロセスの大規模粒子法シミュレーションを構築し、実際のスケールにおける充填プロセスの最適操作条件の探索を行っている。金型充填時の偏析に対する金型寸法、給粉器移動速度ならびに粒子径分布などの影響を検討し、金型内偏析の発生機構を明らかにするとともに、均一充填を行うための設計指針を明らかにした。第 8 章では本論文の成果をまとめている。

以上のように、本論文は微小空間への粒子充填における偏析現象の基礎的検討を行い、粉体シミュレーションによる均一充填操作の設計法を明らかにしたものであり、学術的にも工業的にも大変有用な知見を与えている。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

2011年2月13日

論文題目：粉体シミュレーションによる微小金型への顆粒充填プロセスの精密設計に関する研究

学位申請者：赤司雅俊

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 土屋活美
副査：工学研究科 教授 白川善幸

要旨：

本論文提出者は2008年3月本学大学院工学研究科数理環境科学専攻修士課程を修了後、ただちに工業化学専攻博士課程後期課程に進学し、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。また、本論文の内容は、ISIJ International、Advanced Powder Technology や粉体工学会誌に掲載されており、すでに十分な評価を得ている。

2011年1月29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： 粉体シミュレーションによる微小金型への顆粒充填プロセスの精密設計に関する研究

氏名： 赤司 雅俊

要旨：

粒子群集合体である粉体は固体にはない流動性を持ち、材料の混合、分離や輸送を連続的に行うことが可能であるため、化学、医薬、鉄鋼や食品などあらゆる分野で流体と同様に大型の粉体を扱う生産プロセスが作り上げられ、効率的な材料創成に大きな役割を果たしてきた。粉体を利用した材料としてセラミックコンデンサや圧電素子など多様なエネルギー変換機能を有した機能性材料が開発され、エレクトロニクス産業の目覚ましい発展により、豊かで快適な生活が可能となった。しかし、現代社会は更なる生活品質の向上を追求しつづけており、今まで以上の性能を有する焼結材料に対する要求が強まっている。そのような背景の中、製品の高機能化、多機能化など製品の機能性が重要視され、特に機能性セラミックスや粉末冶金材料などといった焼結材料が益々注目されてきている。

これらの材料は主に顆粒状に調整した粉体を金型に充填し、圧縮成形操作を経て焼結することで、生産されている。これら焼結材料は、多くの化学組成が多層構造をなしており、この材料の組織構造が焼結材料の特性に強く影響する。焼結材料が目的の高機能を発現し、製造プロセスにおける材料形状や寸法のバラツキの発生を避けるためには、焼結する圧縮成形体内の粒子構造あるいは粒子充填密度が均一で、化学組成の偏析が無いことが非常に重要である。したがって、均一な成形体を生産するためには、成形体を作製する金型へ顆粒を均一に充填することが強く求められるが、焼結材料が著しく小型化したためにこれまでの材料プロセスでは問題にならなかった程度の僅かな充填構造の不均一性や粒度偏析が大きな問題となり、連続的に高品質な製品を生産する上で解決すべき重要な課題となっている。

これまでに、粉体プロセス中の偏析現象に関して古くからその発生機構ならびにその防止法が実験的に検討されてきた。しかし、その多くは粒子を着色するなどして全体の挙動を観察する手法によるアプローチ方法であったため、流動粒子群の表面部分しか観察することができず、内部の状況は未解明であった。そのため、流動中における流動層内部の粒子流動挙動の観察が困難といったことから粒子層内における偏析現象の発生状況などの詳細な検討には至っていない。さら

には、焼結材料の小型化に伴い、使用する粉体試料も微粒子化し、充填金型の小型化によって、金型壁面による壁効果の影響が顕著になり、今まで以上に偏析現象に対する精密な制御が求められている。そのため、精密な生産プロセスの設計を行うためには、これまでの実験的手法による検討だけでは不十分であり、数理モデルにもとづくシミュレーションによって粉体现象への微視的観察ならびに定量的な解析が必要となる。

これらの観点から本論文では、実験的アプローチでは検討できない多くのパラメータや計測困難な粒子群の流動状態を追跡可能な離散要素法シミュレーションを用いて偏析現象に対する理解を深め、定量的な解析にもとづく顆粒充填プロセスの精密設計法を提案する。

本論文は第1章の序論に始まり、第2章、第3章において粒子充填時における粒度偏析、形状偏析に関する基礎的検討を行った。続いて、第4章から第7章では、得られた基礎的知見をもとに、微小金型充填プロセスにおける粒子偏析メカニズムの解明ならびに偏析現象に及ぼす各種操作条件の影響を検討した。第8章において、本論文の内容をまとめた。

まず、第2章で偏析現象に対する粒子径の影響を検討するため、2成分系および多成分系における粒子群充填実験を行った。堆積粉体層表面上を流動する粒子群はパーコレーション機構により偏析するため、流動粉体層内の大粒子により形成される空隙をふるい目とし、細かい粒子がそのふるい目でふるいわけられることにより偏析が発生していると考えられる。そこで、Miwaによって提案されたふるいの式を用いて偏析の評価を行い、充填時の偏析状態に及ぼす粒子径比や粒子径分布、粒子の混合割合の影響を調べ、充填時における偏析状態を定量的に検討した。粒子径比が大きくなるにつれて偏析が激しくなると予想されるが、実際にはある粒子径比よりも大きくなると、小粒子群が大粒子群の隙間に侵入しやすくなり、偏析が解消される興味深い知見が得られた。また、2成分粒子群の偏析状態に対する大小粒子群の粒子径比と混合割合の影響に関する実験結果から、パーコレーション機構により発生する粒度偏析状態はふるいわけ現象のアナロジーにより評価が可能であることを示した。

粒子は様々な形状を有するため、形状の違いによって粒子群の流動特性は大きく変化する。したがって粉体流動時における偏析には粒子形状による流動性の違いが影響するものと考えられる。そこで、第3章では転がり摩擦に着目し、離散要素法シミュレーションでの粉体流動時における粒子形状の効果を表現する方法を提案した。まず、球形要素により不規則形状粒子の挙動を表現するために、正多角形粒子を媒介として、任意形状の粒子と同じ挙動をする等価な球形粒子要素の転がり摩擦特性を規定する方法を提案し、この転がり摩擦特性を用いて粒子の流動挙動に対する粒子形状の影響を考慮した。つづいて計算する粒子の形状指数を変化させ、粒子群の流動

性の違いから発生する偏析現象に対して計算を行い、粒子充填時における偏析現象に対する粒子形状の検討した。粒子形状の違いによる流動性の違いによって充填時における偏析現象の程度が変化したが、パーコレーション機構によりもとづく偏析現象には、粒子径差の影響が非常に強いことがわかった。

以上の偏析現象に対する基礎的検討から得られた知見をもとに、以降の章では壁効果の影響が非常に強い微小キャビティー空間への均一充填方法への検討を行った。これまで、均一充填に及ぼす充填装置条件の影響として給粉器の寸法や幾何学的形状、成形用金型の形状および寸法、操作条件として供給方法、供給割合、給粉器の速度および加速度、粒子特性として粒子サイズ、粒子形状、粒子径分布、粒子密度、粒子の流動性などが多くの研究者によって検討されているが、多くのパラメータが同時に影響するために金型内部の充填率分布や偏析状態に対する詳細な検討には至っていない。そこで、第4章では金型充填プロセスにおける各種操作条件の基礎的知見を得ることを目的とした。ガラスビーズ、WC-Co 顆粒および三酸化タングステン顆粒を様々な金型へ充填させ、金型内における充填率の変化や粒子径分布の状態などを測定した。充填速度の違いによる粒子の充填挙動への影響や金型内堆積位置の違いによる偏析状態の比較を行い、金型充填に対する操作パラメータの影響を検討した。

粒子充填層内の充填構造を詳細に解析するためには充填層内部の粒子構造を定量的に評価する方法が必要であるが、X線CTやMRIなどの非破壊の観察法では細かな粒子の充填構造を詳細に観察することができる画像分解能には至っておらず様々な充填容器や試料に対して適応できていないため、観察可能な条件に限度がある。そこで、充填された粒子サイズの分布を詳細に測定する方法を確立するために、第5章において粉体層の切断面上から測定した粒子径分布を用いて、実際の粒子径を推算する手法を提案した。離散要素法シミュレーションを用いて得られた充填構造の断面から断面直径の出現確率を用いて実際の粒子径を推算した結果を評価し、実際に推算する上でのパラメータに対する影響を調査し、測定条件が測定精度に及ぼす影響を明らかにした。

微小金型キャビティー内においては壁効果の影響や充填される粒子数が非常に少なくなるために非球形粒子と球形粒子とはでは金型内での充填状態が大きく異なる。したがって、微小金型キャビティー内における顆粒粒子群充填状態を推算するためには、複雑な形状を有した実際の粉体粒子の接触状態を考慮することが非常に重要である。第6章において充填層内の空隙率に及ぼす粒子形状の影響を考慮するため粒子の接触距離を粒子の形状に応じて変化させることによって表現する手法を提案した。円盤形状粒子および不定形粒子群の充填層に対してX線CTを用い

て推算したかさ密度分布と本手法を用いた計算結果とを比較することにより、本手法の妥当性の検証を行い、有用性を確認した。

第7章において粒子形状の影響を考慮した離散要素法シミュレーションにより実スケールにおける充填プロセスの最適設計を行った。第6章において提案した形状表現法を用いて三酸化タングステン顆粒の粒子形状を考慮した金型充填シミュレーションの構築を行い、第5章において提案した粒子径分布推算法を用いて三酸化タングステン顆粒充填層各断面における偏析状態を比較することによって本シミュレーションの妥当性を検証した。金型充填時における偏析に対する金型寸法の影響、給粉器移動速度の影響、粒子径分布の影響を検討し、金型内の充填挙動ならびに偏析状態の比較を行うことによって、金型内偏析の発生機構を明らかにし、均質充填を行うための設計指針に対して検討した。

以上のように、本論文では微小金型への顆粒充填プロセスに関する均質充填を可能とする設計方法の確立を目的として実験のよび離散要素法シミュレーションにより偏析現象の定量的評価および粒子充填時における偏析現象の発生機構を明らかにした。得られた知見にもとづき、微小金型充填プロセスにおける粒子偏析メカニズムの解明ならびに偏析現象に及ぼす各種操作条件の影響を検討し、微小金型への顆粒充填プロセスに関する金型充填操作設計に対する有用な知見を与える。