

称号及び氏名	博士（工学）菅 裕之
学位授与の日付	平成 30 年 3 月 31 日
論文名	Numerical Analysis of Particle-Particle Adhesion by Dynamic Liquid Bridge (動的な液架橋による粒子付着現象の数値解析)
論文審査委員	主査 綿野 哲 副査 岩田 政司 副査 安田 昌弘

## 論文要旨

粉体を攪拌や流動化させながら結合液を噴霧して、粒子同士を液架橋により凝集させる造粒操作は、幅広い分野で用いられている重要な粉体プロセスである。造粒で形成される凝集体は、これを元に製造される最終製品の品質や機能を大きく左右するため、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が重要である。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解明することは、造粒現象を深く理解し、造粒技術の新しい指針を開拓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。従って、従来の理論やモデルでは取り扱うことができない動的な液架橋による粒子付着現象の解明が強く望まれている。また、液架橋の変形を伴い

ながら粒子同士が衝突・付着する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。この場合、数値シミュレーションによるアプローチが有効である。

本研究では以上の背景のもと、動的な液架橋による粒子付着現象の直接数値シミュレーションモデルを構築し、粒子付着を決定する種々の支配因子が付着メカニズムに及ぼす影響を解明することを目的とする。本論文はその研究成果をまとめたものであり、以下に示す6章から成り立つ。

第I章では、本研究の背景および本研究と関連の深い既往の研究について概観し、本論文の目的および構成を示した。

第II章では、動的な液架橋による粒子付着現象の直接数値シミュレーションモデルの構築および妥当性の検証を行った。液架橋による付着現象を考える場合、固液気3相流れの数値シミュレーションが必要となる。そこで、気液2相流れはCIP (Constrained Interpolation Profile) 法を適用した数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics: CFD) を用いて解き、粒子の運動挙動は液架橋の変形に伴って経時的に変化する動的液架橋力を考慮した運動方程式を解くことにより求めた。構築したシミュレーションモデルの妥当性を検証するため、まず球形粒子表面での液滴の濡れ挙動の計算を種々の接触角に対して行い、液体の濡れを適切に計算できることを確認した。次に、固定された2つの粒子間に形成した液架橋から粒子が受ける静的液架橋力を計算し、理論値との比較を通して静的液架橋力を適切に計算できることを確認した。最後に、2つの粒子間に形成した液架橋の伸長・破断挙動を計算し、実験結果との比較を通して構築したシミュレーションモデルの妥当性を確認した。以上の検討によって妥当性を確認した後、構築したシミュレーションモデルを用いて、液滴を介して2粒子が衝突する際の粒子付着現象を解析した。具体的には、液滴が表面に付着した粒子同士を様々な速度で衝突させた。そして、粒子に作用する動的液架橋力および濡れ反発係数 (液架橋破断時の2粒子の相対速度と衝突前の2粒子の相対速度の比) を解析した。この結果から、粒子同士の付着・分離の境界速度である臨界衝突速度を決定した。この臨界衝突速度を液架橋の形状変化を考慮していない既存の理論的モデルから推測される値と比較した。その結果、両者には大きな差が生じ、既存のモデルでは動的な液架橋による付着現象は表現できないことを示した。

第III章では、第II章で構築した直接数値シミュレーションモデルを用いて、液滴を介して2粒子が衝突する際の粒子付着現象に粒子表面の濡れ性が及ぼす影響を解析した。特に、濡れ性の指標である接触角が臨界衝突速度に及ぼす影響を検討した。その結果、接触角の増加に伴って臨界衝突速度は増加し、ある接触角で極大値を示した後、減少した。すなわち、臨界衝突速度は接触角に対して非線形性を示すことが明らかとなった。これを理解するために、粒子同士の接近・分離過程における粒子運動の減衰エネルギーを解析した。減衰エネルギーは、粒子に作用した液架橋力を粒子の移動距離で積分することにより求めた。結果より、接触角の増加に伴って、2粒子の接近過程における減衰エネルギーは単調に増加したが、分離過程における減衰エネルギーは接触角に対して非線形性を示した。この分離過程の減

衰エネルギーの傾向は、分離過程の液架橋最大伸長距離の傾向と一致した。また、この液架橋最大伸長距離は接触角に応じた液架橋形状によって決まることを明らかにした。以上のことから、粒子に作用する液架橋力および接触角に応じた液架橋形状が、粒子表面の濡れ性に対する臨界衝突速度の非線形性に寄与することを示した。

第 IV 章では、第 II 章で構築した直接数値シミュレーションモデルを用いて、液滴を介して 2 粒子が衝突する際の粒子付着現象に液滴径が及ぼす影響を解析した。特に、総液滴体積が一定の元で、液滴径が臨界衝突速度に及ぼす影響を検討した。すなわち、液滴径に応じて液滴個数が変化する。そのため、粒子間には複数の液架橋が形成され、それらの液架橋は 2 粒子の接近・分離中に合一した。臨界衝突速度を解析した結果、液滴径の減少に伴って臨界衝突速度は増加した。実際の流動層造粒における粒子成長の初期段階に着目すると、シミュレーション結果は実験結果の傾向と一致した。これを理解するために、第 III 章と同様に、粒子運動の減衰エネルギーを解析した。2 粒子の接近過程では、液滴径の減少に伴って減衰エネルギーは増加した。これは、液滴径の減少に伴って液架橋内の圧力が増加し、その結果、毛管圧力が減衰力として大きく寄与するためであることを示した。一方、2 粒子の分離過程では、液滴径の減少に伴って減衰エネルギーも減少した。この減衰エネルギーの傾向は、分離過程の液架橋最大伸長距離の傾向と一致した。また、液架橋最大伸長距離は、2 粒子の衝突時における液架橋の形状が等方性を有するのか、あるいは環形となるのかによって決まることを示した。以上のことから、総液滴体積が一定の元で、液滴径が粒子付着現象に及ぼす影響を考える場合、毛管圧力の大きさおよび粒子衝突時の液架橋形状が重要な因子となることを明らかにした。

第 V 章では、第 II 章で構築した直接数値シミュレーションモデルを用いて、液滴を介して 2 粒子が衝突する際の粒子付着現象に衝突角度が及ぼす影響を解析した。本章では、既存の静的液架橋力モデルを用いた場合の結果との比較を通して、粒子の並進および回転運動に衝突角度が及ぼす影響を解析した。その結果、特に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・回転運動ともに直接数値シミュレーション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。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、液架橋の動きに伴って粒子が回転する。一方、既存の静的液架橋力モデルでは、液架橋は常に 2 粒子の重心を結ぶ線に沿って形成されるものとして扱われるため、液架橋は粒子表面を滑ることになる。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。

第 VI 章では、本論文の各章において得られた成果を結論としてまとめた。

## 審査結果の要旨

本研究は、動的な液架橋による粒子付着現象の直接数値シミュレーションモデルを構築し、粒子付着を決定する種々の支配因子が付着メカニズムに及ぼす影響を解明することを目的とした研究であり、以下の成果を得ている。

- (1) 液架橋による付着現象を解析するため、固液気3相流れの数値シミュレーションを提案した。気液2相流れはCIP (Constrained Interpolation Profile) 法を適用した数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics: CFD) を用いて解き、粒子の運動挙動は液架橋の変形に伴って経時的に変化する動的液架橋力を考慮した運動方程式を解くことにより求めた。数値計算結果を実験結果と対比することで構築したシミュレーションモデルの妥当性を検証するとともに、液滴を介して2粒子が衝突する際の粒子付着現象を解析した。その結果、既存のモデルでは解析不可能な動的な液架橋による付着現象を解析できることを示した。
- (2) 液滴を介して2粒子が衝突する際の粒子付着現象に粒子表面の濡れ性が及ぼす影響を解析した。特に、濡れ性の指標である接触角が臨界衝突速度に及ぼす影響を検討した。その結果、接触角の増加に伴って臨界衝突速度は増加し、ある接触角で極大値を示した後、減少した。すなわち、臨界衝突速度は接触角に対して非線形性を示すことを明らかにした。
- (3) 2粒子の付着現象に液滴径が及ぼす影響を解析した。特に、総液滴体積が一定の条件下で、液滴径が臨界衝突速度に及ぼす影響を検討した。その結果、液滴径が粒子付着現象に及ぼす影響を考える場合、毛管圧力の大きさおよび粒子衝突時の液架橋形状が重要な因子となることを示唆した。
- (4) 2粒子が衝突する際の粒子付着現象に衝突角度が及ぼす影響を解析した。ここでは、既存の静的液架橋力モデルを用いた場合の結果との比較を通して、粒子の並進および回転運動に衝突角度が及ぼす影響を解析した。その結果、特に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・回転運動ともに直接数値シミュレーション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が判明した。

以上の諸成果は、動的な液架橋による粒子付着現象の解明に関する重要な知見を与えており、粉体を取り扱う分野のみならず広範な分野における学術・産業上の発展に大きく貢献するものである。また、申請者が今後自立して研究活動を行う上で必要とされる能力と学識が備わっていることを証したものである。