

## 論文の内容の要旨

論文題目 ラグランジュ的手法による固液混相流の数値解析手法の開発と  
その湿式粉砕プロセスへの応用

氏 名 山田 祥徳

粉砕プロセスは、電子材料や機能性材料の開発において欠かすことができない。製品開発に際し、粉体粒子の粒径のコントロールは製品性能に直結する問題であり、これまでに様々な粉体粉砕装置が開発された。粉体粉砕には、大きく分けて乾式粉砕と湿式粉砕がある。粉体粒子は粉砕されると、粒子間に引力が働き凝集する。乾式粉砕ではミクロンスケールからナノスケールへと粒子を粉砕する際にこの凝集現象が障害となり、個々の粒子が細かくなっても凝集体の粒子径をナノスケールへと解砕することは困難であった。他方、湿式粉砕では粉体粒子そのものの粉砕と合わせて凝集体の解砕を行うことができるため、ナノ粒子生成に効果的な手法となっている。湿式粉砕機の中でも湿式ビーズミルは、その粉砕能力の高さとエネルギー効率の良さで注目されている。ビーズミルは粉砕媒体のビーズを粉砕室の内部で高速に攪拌することで、ビーズに運動エネルギーを与える。ビーズに粒子を捕捉させ、摩擦や衝突などによって粉体粒子を微粒子化する。ビーズミルの性能は、粉砕室や攪拌翼の設計、粉体粒子スラリーの供給量や攪拌速度などの運転条件、ビーズの材質や粒径などによって大きく左右される。装置の内部機構の不透明性も相まって、粉砕性能の向上やスケールアップの検討などにおいて多数の実験が必要とされていた。実験コストの削減や内部機構の解明のために、数値解析による検討が有用であると期待される。

ビーズミルの数値解析では、粉体粒子やビーズといった固体粒子と、粉体粒子を分散させる液体とが混合した固液混相流を取り扱う。粉体の数値解析では、離散要素法 (Discrete Element Method, 以下、DEM と記す) が広く用いられている。DEM は、個々の粉体粒子の挙動をニュートンの第二法則に従って逐次計算し追跡する手法である。そのため、付着力、流体力学的相互作用力をはじめとして様々な相互作用力を導入することができる。また、解像度の観点から精緻な解析を行うことができる。流体の数値解析では、主として格子法が使われているが、最近になって、粒子法と呼ばれる流体粒子を用いた数値解析が使用されるようになってきた。粒子法は、メッシュフリー法であるため、自由液面および攪拌翼のモデル化が格子法に比べて容易である。従って、湿式粉砕プロセスの数値解析には、DEM と粒子法を連成した手法を応用することが最良であると考えられる。他方、既存のDEM と粒子法を単に組み合わせるだけでは、湿式粉砕プロセスの数値解析において精度の良い結果が得られないと予想される。そこで、既存のDEM と粒子法が抱える問題点を整理する。

ひとつ目の問題は、スラリーに含まれる固体粒子の形状が粉体の流れに及ぼす影響である。従来のDEM においては、計算負荷の低減の観点から球形粒子が用いられていた。粉砕時においては、しばしば非球形粒子を取り扱う必要がある。過去の研究において、計算負

荷の増大を回避しながら複雑形状の効果を定性的に DEM に導入する回転抵抗モデルが開発されたが、これは非球形度の考慮や衝突時のエネルギー減衰などを適切に評価できなかった。ふたつ目の問題は、自由液面および移動する内部構造物が含まれるような体系において、効率的に計算を実行できるような手法が開発されていないことである。流体の数値解析では、メッシュを用いる Euler 的手法と粒子を用いる Lagrange 的手法に大別される。Euler 的手法では、有限体積法や有限要素法といった手法による高精度な解析が行われている。一方で、液体に特有の自由表面問題や複雑形状の移動境界の取り扱いにおいて困難が多かった。Lagrange 的手法のひとつに MPS 法がある。既存の MPS 法では、大規模な体系を効率よく数値解析を実行できなかった。3番目の問題として、湿式粉砕プロセスのような莫大数の固体粒子を含む固液混相流体体系において効率よく数値解析を実行する手法が開発されていなかったことがあげられる。既存の Lagrange 的手法の固液混相流解析は、半陰的手法の MPS 法が採用されており、計算効率が低かった。当然ながら、Lagrange 的手法により、これまでにビーズミルの数値解析が実行されたことはない。粉体と液体を連成させた固液混相流解析においても当然ながら同様の課題があり、粉体粒子スラリーの供給やビーズミル内部挙動などの湿式粉砕プロセスへの数値解析の適用は困難であった。

そこで本研究では、前述の課題を解決することを目的とし、

1.DEM 回転抵抗モデルの改良による非球形粉体の大規模解析手法の開発

2.Explicit-Moving Particle Simulation (E-MPS)法による三次元自由液面流れの大規模数値解析手法の開発

3.DEM/E-MPS 法連成解析によるスラリー供給配管での自由液面を伴う固液混相流の大規模解析手法の開発

4.DEM/E-MPS 法連成解析によるビーズミル内の数値解析

の4つのテーマに取り組み、Lagrange 的手法によりビーズミルにおける湿式粉砕プロセスの数値解析手法を新たに開発した。以下にそれぞれの研究の概要を記す。

1.DEM 回転抵抗モデルの改良

これまでに著者らは、計算負荷の増大を回避しながら複雑形状の効果を定性的に DEM に導入する回転抵抗モデルを開発した。しかし、従来の回転抵抗モデルでは非球形度の考慮や衝突時のエネルギー減衰などを適切に評価できなかった。本研究では、粒子画像から非球形度を測定し、それを回転抵抗モデルに導入する手法を開発した。また、非球形粒子の衝突時のエネルギー減衰を適切に評価することのできる接触力のモデル化手法を開発した。粉体層の崩壊の数値解析および実験を行い、安息角の比較を本手法の妥当性を検証した。回転抵抗モデルの有無によって数値解析に有意な差が現れ、また、非球形粒子による実験と数値解析の結果がよく一致した。

2.Explicit-MPS 法による三次元自由液面流れの数値解析

自由液面を伴う流れ解析においては、空間を格子に分割して液面を明示的に取り扱う Euler 的手法と、液体を粒子に分割してその挙動を追従する Lagrange 的手法がある。前者では、自由液面の大変形や飛沫を取り扱うことが困難で適用範囲に制限があった。後者では MPS 法が開発され、液滴衝突や水蒸気爆発などの自由表面を含む複雑な解析に実績がある。

MPS 法では、非圧縮性を厳密に取り扱うために圧力の計算において圧力ポアソン方程式を陰的に解くが、大規模解析では計算コストの殆どを圧力ポアソン方程式の陰的求解が占め、高いスケーラビリティを確保することは困難である。また、固定壁境界として仮想的な固定粒子が用いられてきたが、境界表現のために多くのデータ量や計算コストが必要となり、大規模化に対する課題となっていた。前者に対しては、微小な圧縮を許容して圧力を陽的に求める E-MPS 法が、また後者に対しては距離関数を用いた境界表現手法が開発され、それぞれ大規模化に一定の成果を挙げている。これまでの研究では、距離関数による境界表現を行った E-MPS 法は開発されておらず、一層の大規模化が行われていなかった。

そこで本研究では、距離関数による固定壁境界を用いた E-MPS 法を開発した。静水問題および自由表面流れのベンチマーク問題である水柱崩壊について数値解析を行い、本手法の妥当性を検証した。また、SI-MPS 法と E-MPS 法で水柱崩壊解析を行い、計算時間の比較によって E-MPS 法が大規模解析に適した手法であることを示した。

### 3. ラグランジュ的手法による円管内の固液混相流の数値解析

これまでの研究で、自由表面を伴う固液混相流解析手法として、DEM-MPS 法による解析が開発された。この手法は粉体粉碎装置の一つである湿式ボールミルに適用され、実験との比較により定量的に妥当性が示された。しかし、液相の解析に半陰解法を用いているため、解析体系が小規模なものに限定され、これまで 2 次元体系での解析のみが行われていた。

本研究では、自由表面を伴う大規模固液混相流解析を実現するために、液相に大規模解析に適している E-MPS 法を用いた DEM/E-MPS 法を開発した。配管内固液混相流の 3 次元解析を通して、本手法が十分に大規模解析を行うことができる手法であることを示した。

### 4. ラグランジュ的手法によるビーズミル内の固液混相流の数値解析

湿式ビーズミルでは、複雑な形状をした移動境界問題を取り扱う必要がある。これまでの研究では、液相において移動境界問題を取り扱うために、メッシュを用いる Euler 的手法に対して、アダプティブメッシュ法やスライディングメッシュ法、埋め込み境界法などが開発されたが、計算コストや適用対象の制限、解析精度にそれぞれ課題が残されていた。そこで本研究では、液相の解析にメッシュを用いない E-MPS 法を用い、固相の DEM との連成解析を行うことで、複雑な移動境界を有する湿式ビーズミルの DEM/E-MPS 法連成解析を行った。PIV による速度分布測定を用いた実験との比較により、本手法の妥当性およ

び有効性を確認した。

以上の一連の4つの研究により、ビーズミルによる粉体粉砕プロセス全体の数値解析が可能となった。これらの研究により、これまで困難であったビーズミルの内部機構の解明や設計、運転条件の検討などが容易になり、湿式粉砕プロセスの性能向上やコストの低減が期待される。