

整理番号	2021-J-056	報告者氏名	石原 真吾
------	------------	-------	-------

研究課題名

湿潤粉体の固気液微細構造制御による粉体成形技術の高度化

<代表研究者> 機関名：東北大学 職名：助教 氏名：石原真吾

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

湿潤状態での粉体の挙動や機械的特性を把握および予測することは、自然界や産業界において重要である、固気液三相からなる湿潤粉体成形体の弾性率は、構造不均一性が要因となり予測が困難とされてきた。本研究では、位相的データ解析を導入することで構造の均一性を数値化し、粉体の充填構造と弾性率の関係を明らかにすることで弾性率の予測式を提案した。

飽和度（水分量）と成形体の弾性率の関係を把握するため、粒子径の異なる二種のアルミナ粉体を原料として鋳込成形により成形体を作製し、一軸圧縮試験を行った。飽和度が増加すると弾性率は減少した。二種のアルミナ粉体を混合した場合、最も成形体密度が大きくなったのは混合比率 0.7 のときであったが、湿潤状態での弾性率は成形体密度の大小とは単純に相関しなかった。成形体の充填構造を評価するため、パーシステントホモロジーを用いて構造均一性の指標(index H)を算出した。算出した構造均一性および表面張力、比表面積、空隙率の四つの因子を考慮し、弾性率の予測式を提案した。予測式による計算値は実験値と良好に一致し、湿潤成形体の弾性率の理論的な予測を可能にした。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

<原著論文>

1. **Shingo Ishihara**, George Franks, Junya Kano, Effect of particle packing structure on the elastic modulus of wet powder compacts analyzed by persistent homology, *Advanced Powder Technology*, **34**, 103874 (2023)

<口頭発表>

招待講演

1. **石原真吾**、粒子法による固液二相系の破壊解析、第7回機能性粉体プロセス研究会、2022年1月
2. **石原真吾**、粉体プロセスの高度化に向けたシミュレーションや位相的データ解析の活用、先進セラミックス第124委員会第168回講演会、2022年6月
3. **石原真吾**、位相的データ解析の粉体工学への応用、体工学会・機械的単位操作に関する産学連携研究会、2022年10月

一般講演

1. **石原真吾**、George Franks、加納純也、位相的データ解析による固液充填構造の評価と成形強度の関係、粉体工学会2022年度春期研究発表会、2022年5月
2. **Shingo Ishihara**, George Franks, Junya Kano, Effect of packing structure on the relationship between saturation and elastic modulus by persistent homology, ICCI2022, Nov. 2022
3. **Shingo Ishihara**, Persistent homology analysis for strength of wet powder compacts, Tohoku-Melbourne Joint Workshop in Materials Science, Nov. 2022
4. **石原真吾**、George Franks、加納純也、位相的データ解析と数値シミュレーションによる湿潤粉体成形体弾性率の予測、粉体工学会2022年度秋期研究発表会、2022年12月
5. **石原真吾**、データ科学、計算科学を活用した成形体強度理論の構築、国際粉体工業展東京2022 アカデミックコーナー、2022年12月 （日本粉体工業技術協会奨励賞 研究奨励賞 受賞）

<ポスター発表>

なし

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

研究の目的

粉体成形は密着不十分な粉体を所望する形状と構造を持ち密着した物体に転換することであり、成形体の構造、欠陥や凝集度を制御する技術は粉体材料の省資源化かつ機能向上の観点から重要である。例えば内部に多数の気孔を有する多孔質構造であれば、比表面積の増大、軽量化、触媒反応速度の向上などの点で有効であり、材料の種類、構造の違いにより多様な特性を持たせることが期待されている。環境材料としての利用を考えると、大気汚染の要因として注目されているPM_{2.5}を捕集するためのセラミックフィルターは多孔質セラミックスの代表的な例であり、比表面積が大きいこと、またフィルターが目詰まり無く微粒子を捕集するための微構造が重要である。粉体成形体を作製する手法は様々あるが、鑄込み成形（スリップキャストリング）法は複雑形状を成形でき、成形コストが安価な優れた成形方法である。この手法では型に流し込んだスラリーの水分を石膏等の型に吸水させるため、成形時間が長くなりやすいこと、型壁からの距離に応じて成形体内部の水分量に分布ができるという課題がある。成形後の湿潤な状態では、固体粒子だけでなく水分も共存する複雑な内部構造を有しており、この内部構造が後工程である乾燥や焼結工程へ大きな影響を及ぼすことから十分に理解し自在に制御する技術が求められている。本研究では、湿潤粉体成形体の内部構造を理解し、成形体強度との関係を明らかにすることを目的とする。コンピュータシミュレーションを用いて液体を含んだ粉体成形体の微構造およびその破壊挙動を解析し、粉体成形技術の高度化を目指す。

研究の結果および考察

実験用の試料には住友化学製の高純度アルミナ、AKP-15 (D₅₀: 0.8 μ m)、AKP-50 (D₅₀: 0.2 μ m)を用いた。粒子径の異なるアルミナ粉体を混合比率を変えて混合し（AKP-15の体積分率: V_r 0, 0.3, 0.5, 0.7, 1.0）、5つのスラリーを作製し原料とした。原料スラリーから石膏ボードおよび石膏型を用いた鑄込成形により ϕ 10mm \times 20mmの円柱形の成形体を作製した。鑄込成形後、湿度調整用容器に一定時間静置して飽和度（＝成形体中の水分体積/成形体の空隙体積）を調整した。飽和度調整後の成形体を0.1 mm/minの圧縮速度で一軸圧縮し、成形体の応力-ひずみ曲線を取得した。図1に成形体の圧縮試験の様子を、図2に乾燥状態および湿潤状態における応力-ひずみ曲線の一例を示す。図3に、各混合比率における成形体の弾性率と飽和度の関係の実験結果を示す。図中の黒いプロットが実験値で、線形近似した直線を黒破線で示した。いずれの混合比率においても、飽和度が増加すると弾性率が低下することがわかる。線形近似した直線の切片および傾きを図4に、各混合比率における成形体密度の測定値（それぞれ27~44個の平均値）を示す。湿潤成形体の弾性率の切片および傾きは、混合比率0.3のときに大きく減少し、混合比率を増加させると増加するが、混合比率1.0で再度減少した。成形体密度は混合比率0.7で最も高くなっていることがわかる。一般に乾燥状態での成形体の弾性率は成形体密度と相関することが知られているが、湿潤状態での弾性率は成形体密度と相関しない結果を得た。

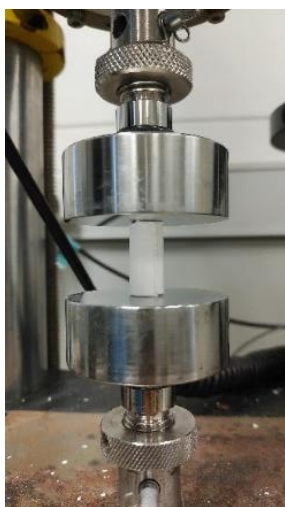


図1 成形体の圧縮試験の様子

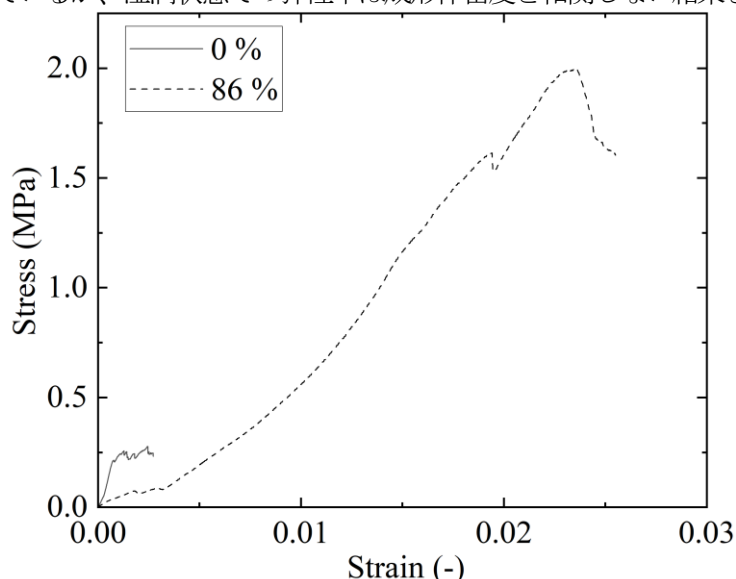


図2 乾燥状態および湿潤状態における成形体の応力-ひずみ曲線の一例

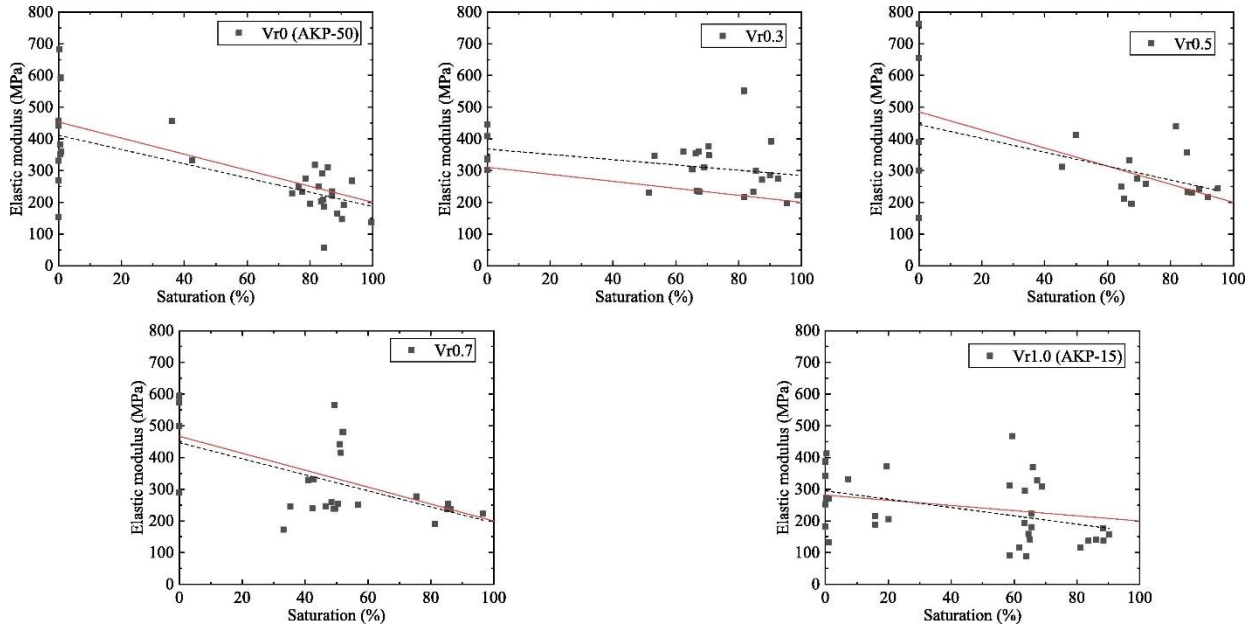


図3 各混合比率における弾性率と飽和度の関係 (黒線：実験値、赤線：計算値)

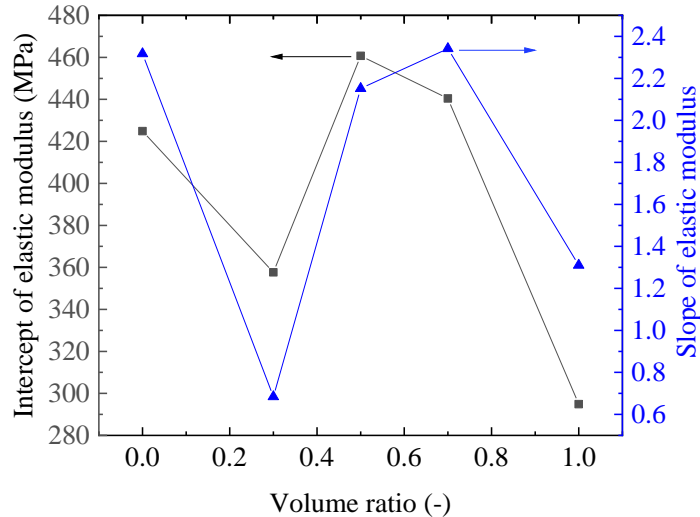


図4 各混合比率における弾性率と弾性率の関係における切片と傾き

粒子径の異なるアルミナ粉体で作製した成形体は、その充填構造が異なると考えられる。位相的データ解析の手法の一つであるパーシステントホモロジーを用いて、各成形体の充填構造を評価した。離散要素法 (Discrete Element Method: DEM) を用いて、0.2, 0.8mm の二粒子を混合比率を変えて充填した充填構造を作製し、その構造を評価することとした。図5に作製した充填構造を示す。パーシステントホモロジーでは、対象とするデータ点 (ここでは粒子充填構造の粒子座標) の幾何学的な特徴を抽出することができる。構造の均一性を定量化することができ、ここでは均一性の指標である $index H$ に着目した。 $index H$ の値が高い場合、その充填構造は均一性が高いことを表し、反対にその値が低い場合、その充填構造は不均一であることを表す。各混合比率における充填構造の $index H$ の値を図6に示す。混合比率0.3において $index H$ が最小となることがわかった。

低 $index H$ の充填構造では、固体粒子間の空隙サイズのばらつきが大きく、大きな空隙と小さな空隙が混在していることが考えられる。そのような充填構造では、低飽和度において水分の偏積が顕著に生じると考えられる。飽和状態から乾燥により飽和度が減少していく過程を考えると、大きな空隙の水分から先に乾燥して消失し、小さな空隙に水分が集まるように偏積が進行すると考えられる。固体粒子間に少量の水分が存在する場合 (ペンデュラー状態)、粒子間には液架橋力が働き、固体粒子の移動を妨げる吸着の作用を示す。一方で、局所的には小さな空隙が水分で満たされた状態 (ファニキュラー状態) となると、液架橋による吸着効果が失われるため、粒子の移動を妨げる効果が少ないと考えられる。すなわち、充填構造の均一性と湿潤状態での弾性率には相関関係が存在し、均一性が高いほど液架橋力の効果が強く弾性率が大きくなることが予想される。

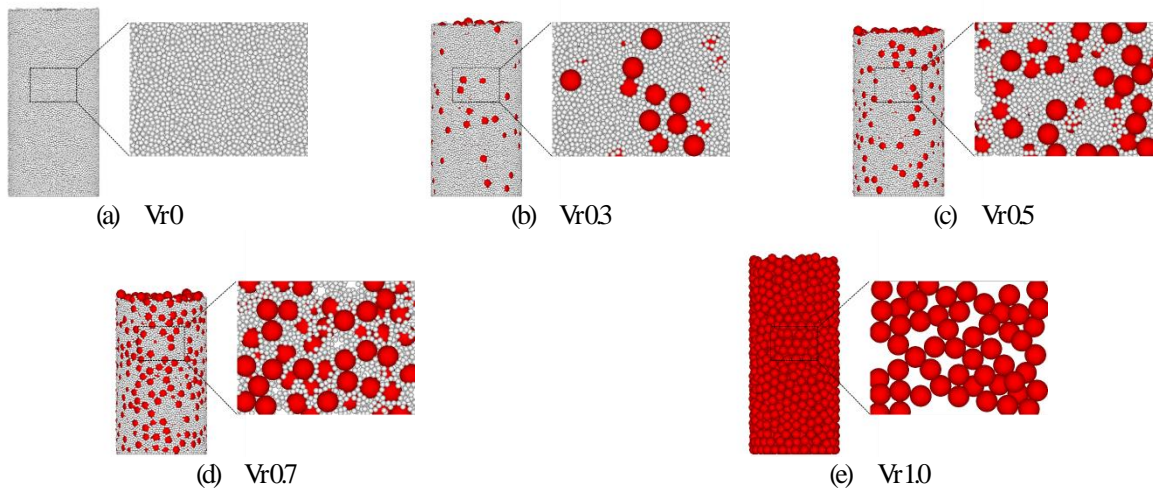


図5 DEMにより作製した各混合比率の粒子充填構造

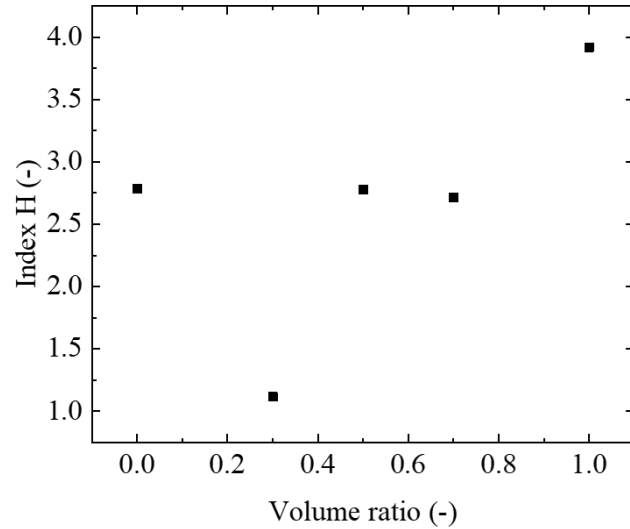


図6 各混合比率における粒子充填構造の均一性 (index H)

湿潤成形体の弾性率に支配的な影響を及ぼす因子として、充填構造の均一性 H 、表面張力 γ 、比表面積 (比表面積相当径 d_s)、空隙率 e の四つを考慮し、飽和度と弾性率の関係の予測式を(1)式で提案した。

$$E = E_s + (1 - S) \frac{\gamma}{e d_s} H \quad (1)$$

ここで、 E は弾性率、 E_s は飽和時の弾性率、 S は飽和度である。(1)式による弾性率の計算値を図 3 の赤線で示す。実験結果と計算値は良好に一致し、湿潤成形体の弾性率が予測可能であることが示された。