

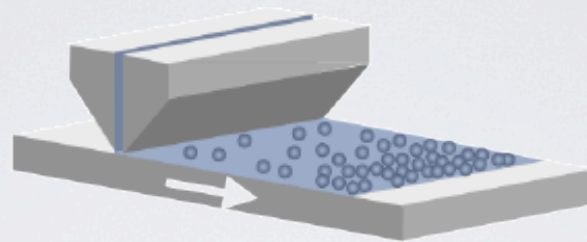
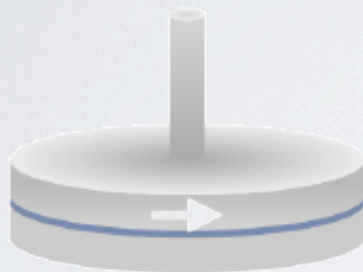
単純剪断場における ナノ粒子凝集体の 解砕メカニズムの検討

小池修・辰巳怜・山口由岐夫

東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻

ものづくりと微粒子分散液

研磨
CMP



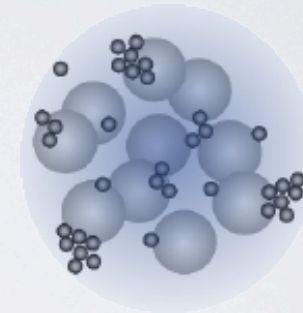
塗布

外場誘起の流れ
乾燥誘起の流れ

混練

B204穂坂ら

微粒子分散
(解砕)



大まかに2つの過程で凝集分散：

① **C**hemical (physicochemical) process

→ 溶質吸着など表面状態の改質に起因

W120辰巳ら

② **M**echanical process

→ 流体場に起因 : W301 小池ら

背景①

微粒子分散液（固液混相）

→非ニュートンの流れ

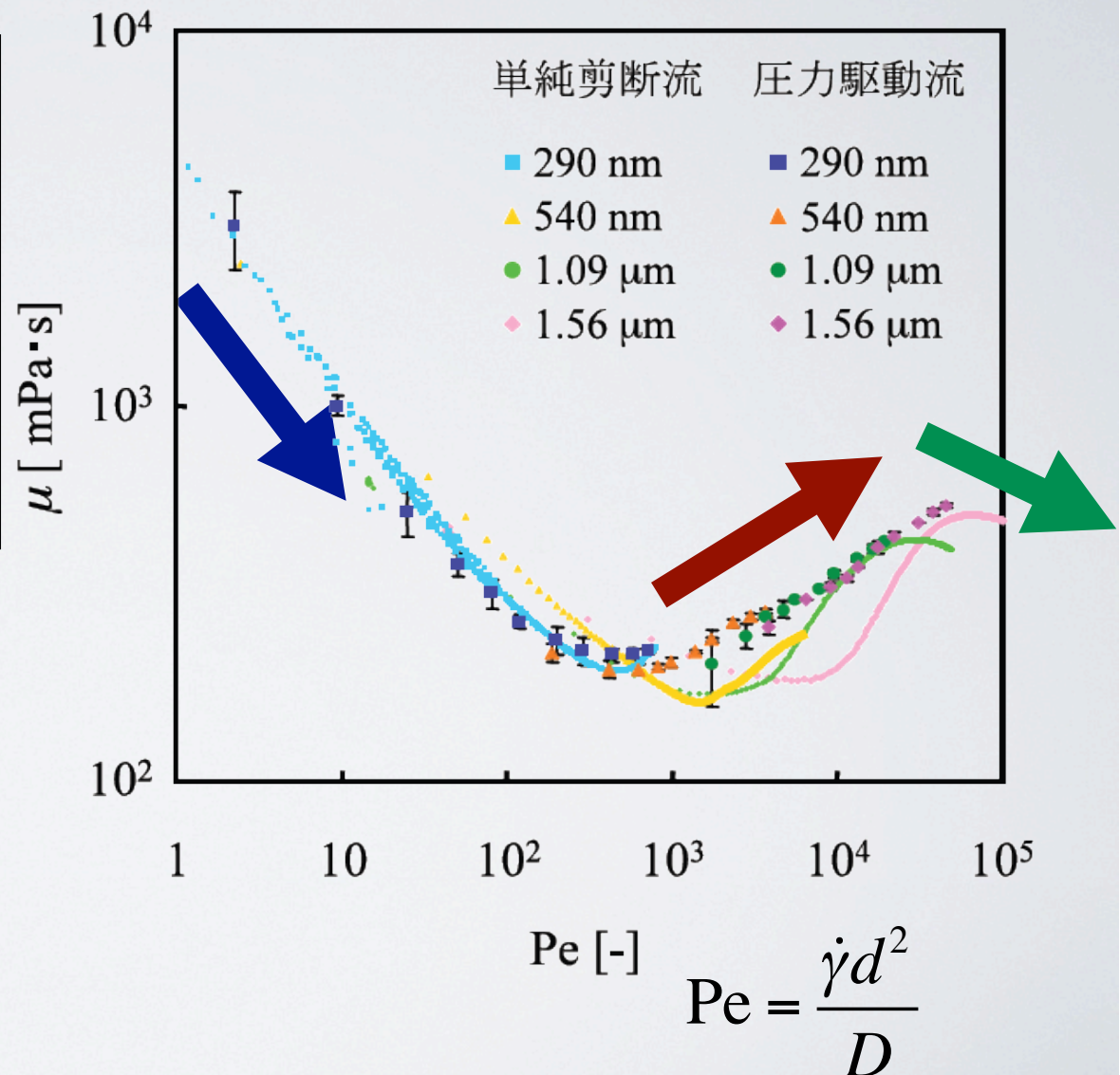
Shear-thinning

Shear-thickening

Shear-thinning

濃厚系を高速に取り扱う
際の効率や品質に影響

山口研, 真野涼平, 2008年度修論



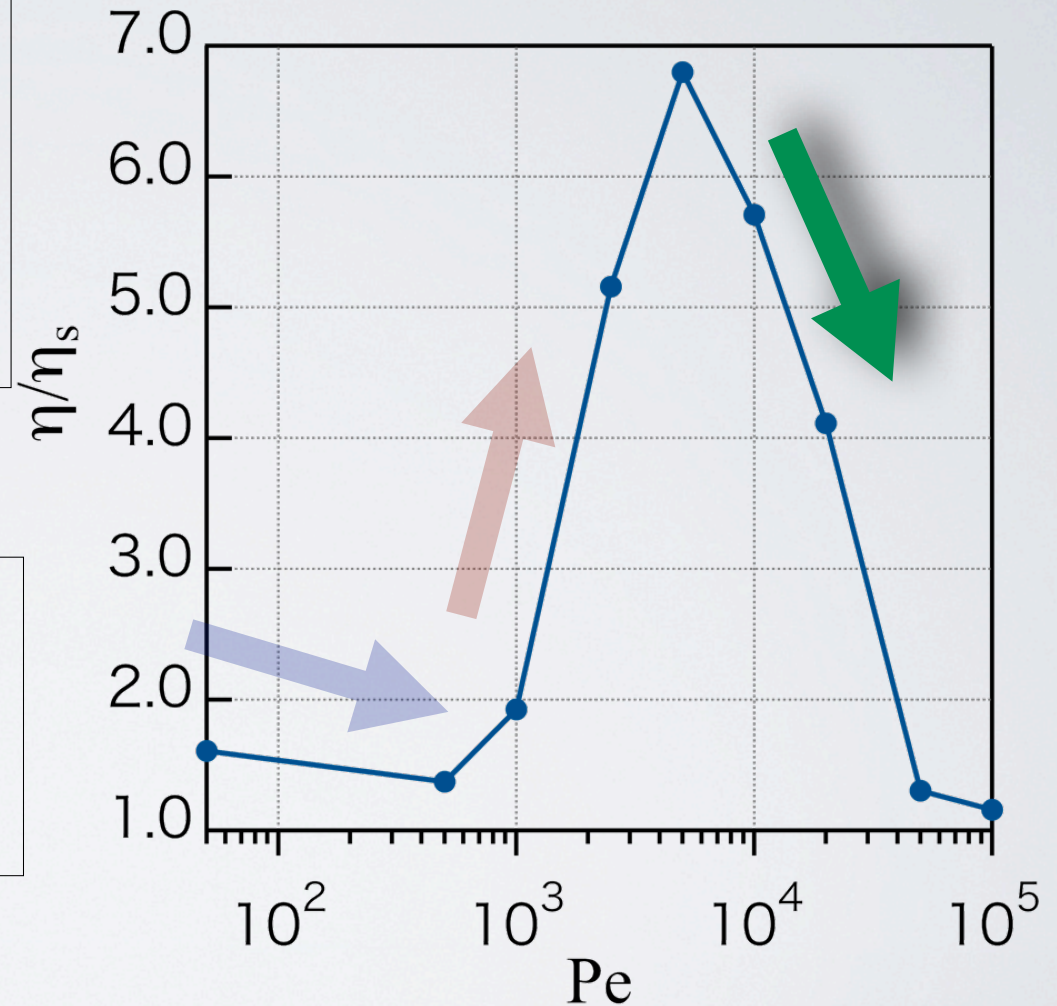
背景②

目指していること

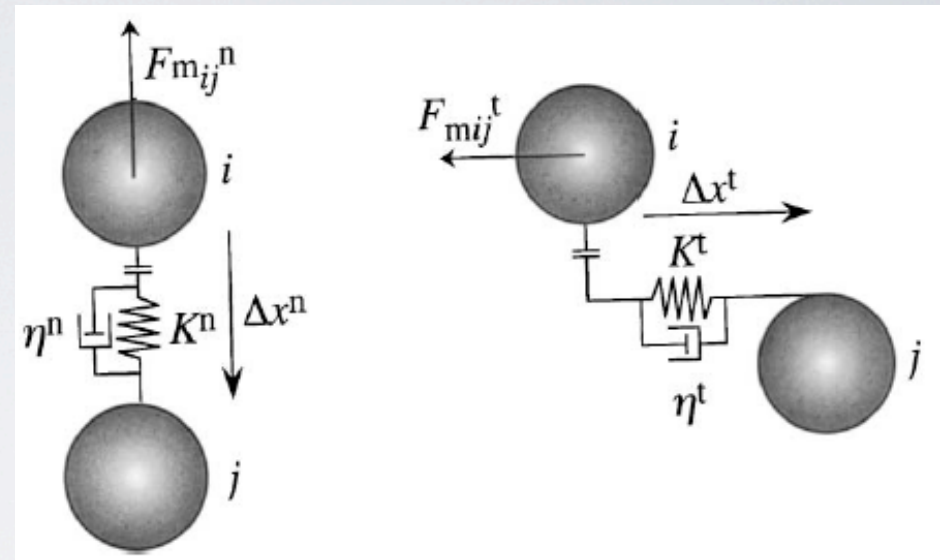
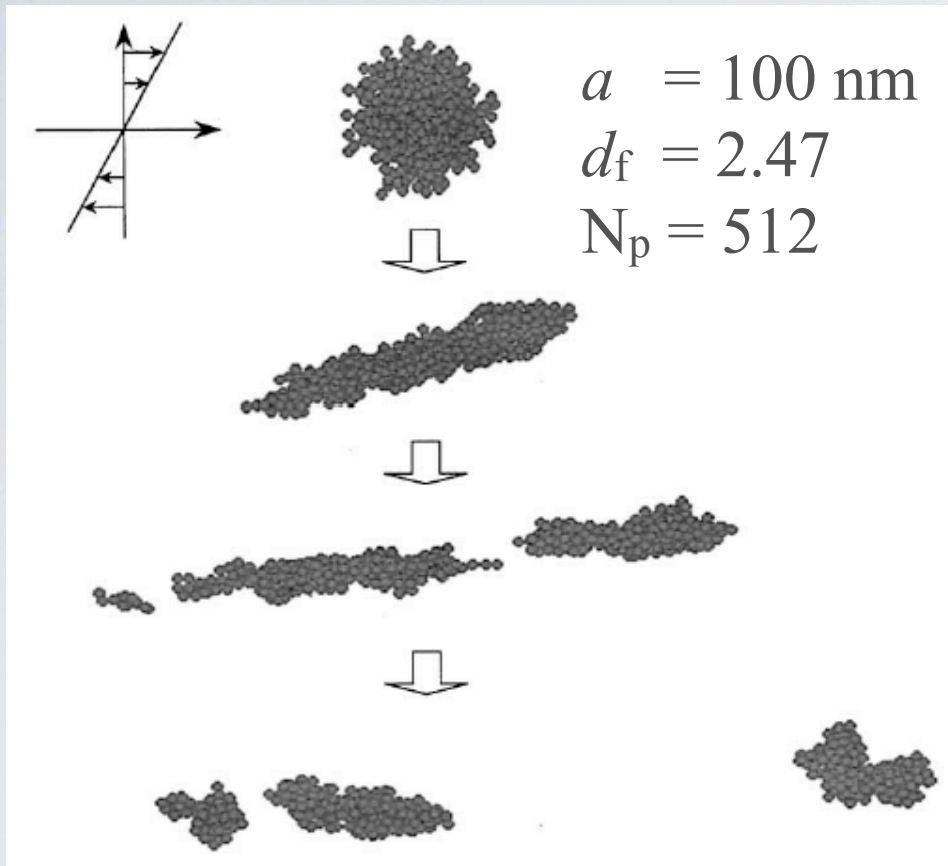
3 領域に注目して,
粘度挙動の機構の解明
粘度制御因子の提案

粒子系の構造形成過程を
直接観察できる
シミュレーションが必要

山口研, 小池ら, 理論計算での挙動



背景③



流体：Stokes動力学法

粒子：DEM, van der Waals 力
摩擦則なし

解砕効率：

せん断流れ < 伸張流れ

K. Higashinani et al.,
Chem. Eng. Sci. 56 (2001) 2927

目的

摩擦が解砕モードに影響を与えることが分かっている。

摩擦を考慮することで、凝集体解砕メカニズムを検討する

手段と条件

- SNAP-Fで固液連成直接数値シミュレーション
- 単一の初期凝集体と溶媒にせん断場を印加する

流体の運動方程式

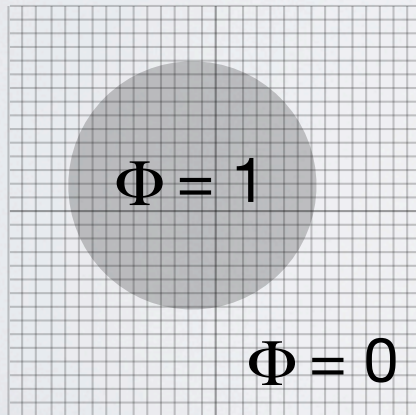
Immersed boundary法 + DEM

質量保存 (非圧縮) $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$

揺動力

運動方程式

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} = -\nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{v} + \frac{1}{\rho_f} \nabla \cdot \mathbf{S} + \Phi \alpha$$



流体加速度 $\alpha = \frac{\mathbf{v}_p - \mathbf{v}}{\Delta t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} - \nu \nabla^2 \mathbf{v} - \frac{1}{\rho_f} \nabla \cdot \mathbf{S}$

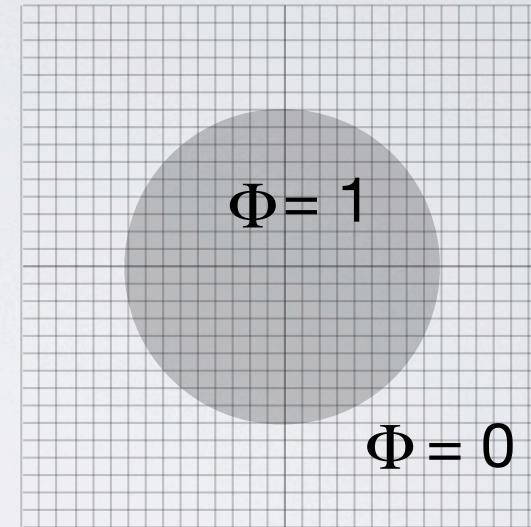
粒子運動と連成させる役割を持つ

粒子内部 $\frac{\mathbf{v}^{n+1} - \mathbf{v}^n}{\Delta t} = \frac{\mathbf{v}_p - \mathbf{v}^n}{\Delta t}$

流体力と流体トルク

粒子体積率

$$\phi_p(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \left\{ \tanh \left(\frac{a - |\mathbf{x} - \mathbf{r}_p|}{\xi} \right) + 1 \right\}$$



流体力と流体トルク

$$\mathbf{F}^h = - \int_V \rho_f \phi_p(\mathbf{x}) \alpha(\mathbf{x}) dV$$

$$\mathbf{T}^h = - \int_V \left\{ \mathbf{r}_p(\mathbf{x}) \times \rho_f \phi_p(\mathbf{x}) \alpha(\mathbf{x}) \right\} dV$$

この定式化：
濃厚系で有利

粒子の運動方程式



$$m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \mathbf{F}^{\text{co}} + \mathbf{F}^{\text{D}} + \mathbf{F}^{\text{h}}$$

DLVO 力



$$I \frac{d\omega}{dt} = \mathbf{T}^{\text{co}} + \mathbf{T}^{\text{h}}$$

$$\mathbf{F}^{\text{h}} = - \int_V \rho_{\text{f}} \phi_{\text{p}}(\mathbf{x}) \alpha(\mathbf{x}) dV$$

$$\mathbf{T}^{\text{h}} = - \int_V \{ \mathbf{r}_{\text{p}}(\mathbf{x}) \times \rho_{\text{f}} \phi_{\text{p}}(\mathbf{x}) \alpha(\mathbf{x}) \} dV$$

接触力 + Coulomb 摩擦則

$$\mathbf{F}_{\text{t}}^{\text{co}} = \min(\mathbf{F}_{\text{t}}^{\text{co}}, \mu \mathbf{F}_{\text{n}}^{\text{co}})$$

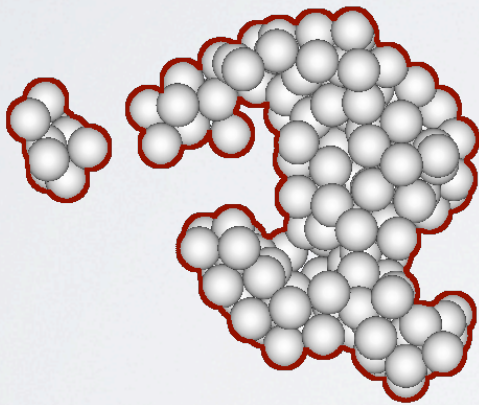
噛み合い／すべり：

粒子並進と回転の
結合度の強さ

構造評価指標 NBA

Nondimensional Boundary Area

NBAの幾何学的意味



$$\text{NBA} = \frac{\text{凝集体の表面積}}{\text{粒子の表面積の和}}$$

実際は離散量で定義

$$\text{NBA} = \frac{1}{N} \left[\frac{1}{12} \sum_{c=0}^{12} (12 - c)n(c) \right]$$

$n(c)$: 配位数 c の粒子数

N : 全粒子数

➡ NBA = 1 : 完全分散
NBA = 0 : 最密充填

計算条件

凝集体

$$D_a \text{ [-]} : 4d$$

$$d_f \text{ [-]} : 2.89$$

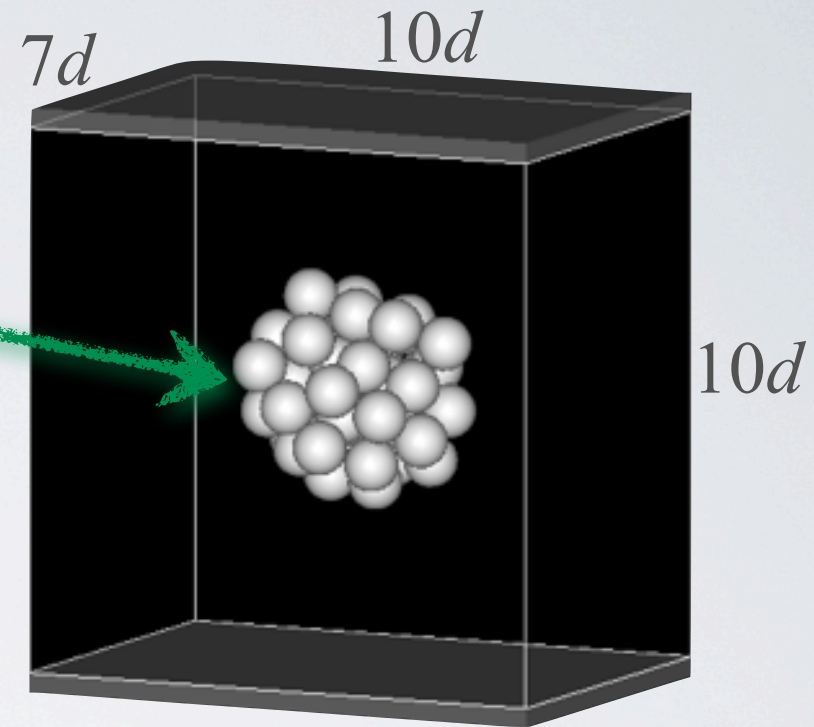
粒子

$$d \text{ [nm]} : 50$$

$$N_p \text{ [-]} : 40$$

$$\zeta \text{ [mV]} : 0$$

$$\mu \text{ [-]} : 0.0, 1.0$$

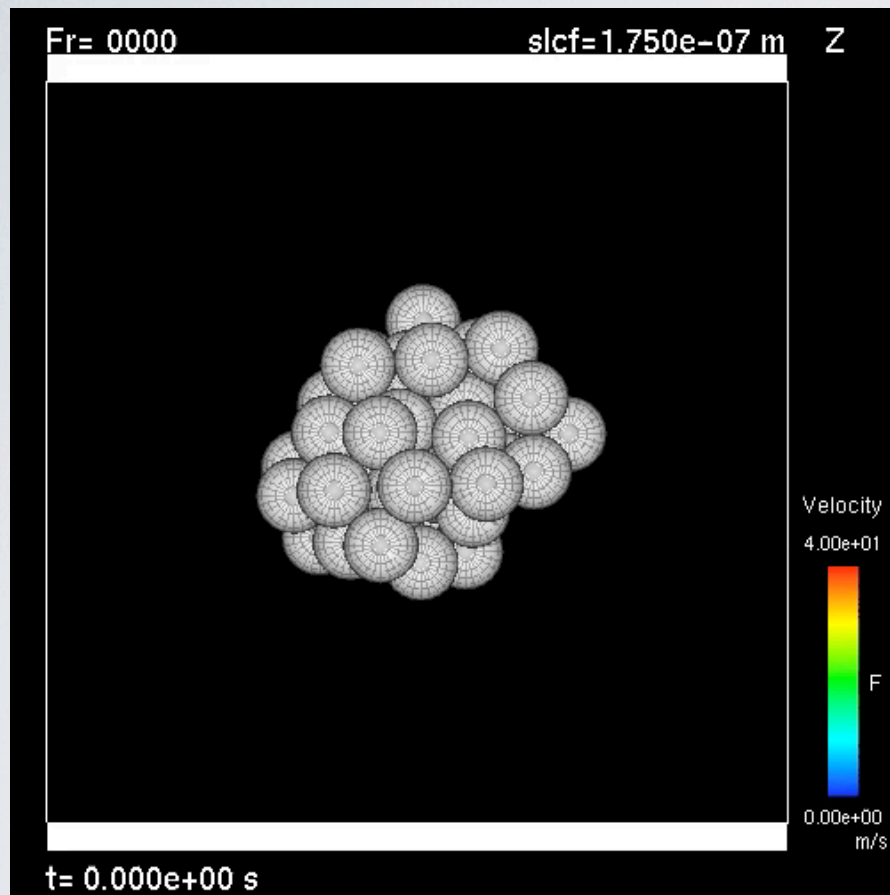


外場

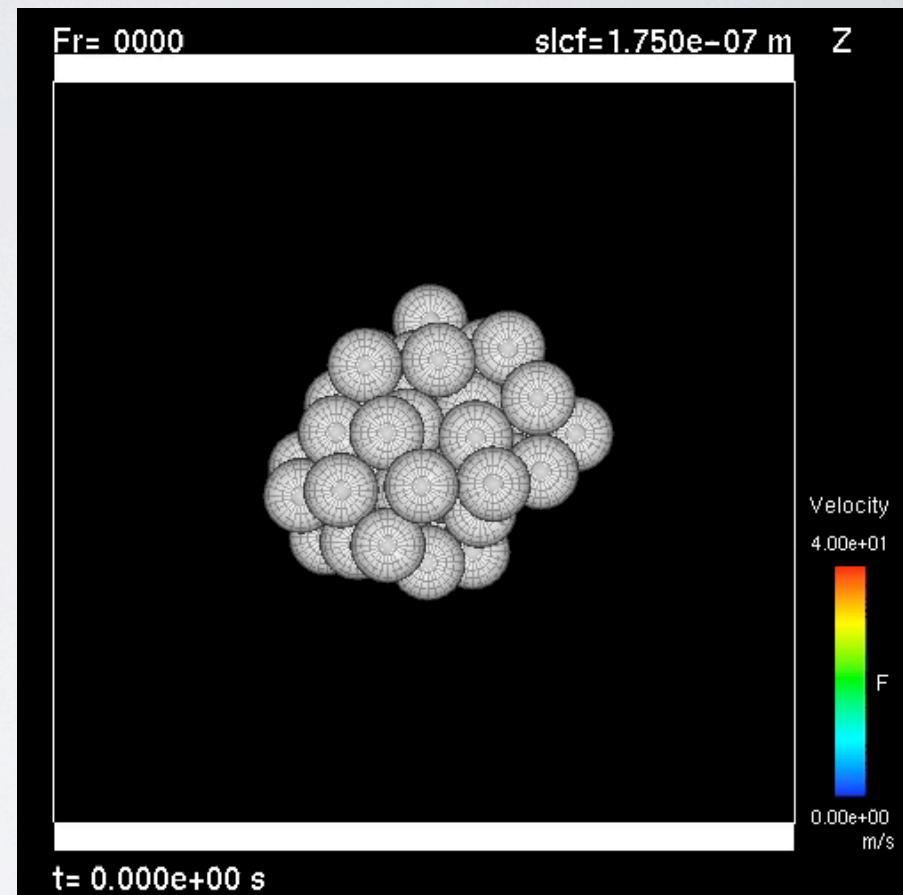
$$\text{せん断率 [s}^{-1}\text{]} : 1.6 \times 10^8$$

$$\rightarrow \text{Pe} = 4.6 \times 10^4$$

計算結果

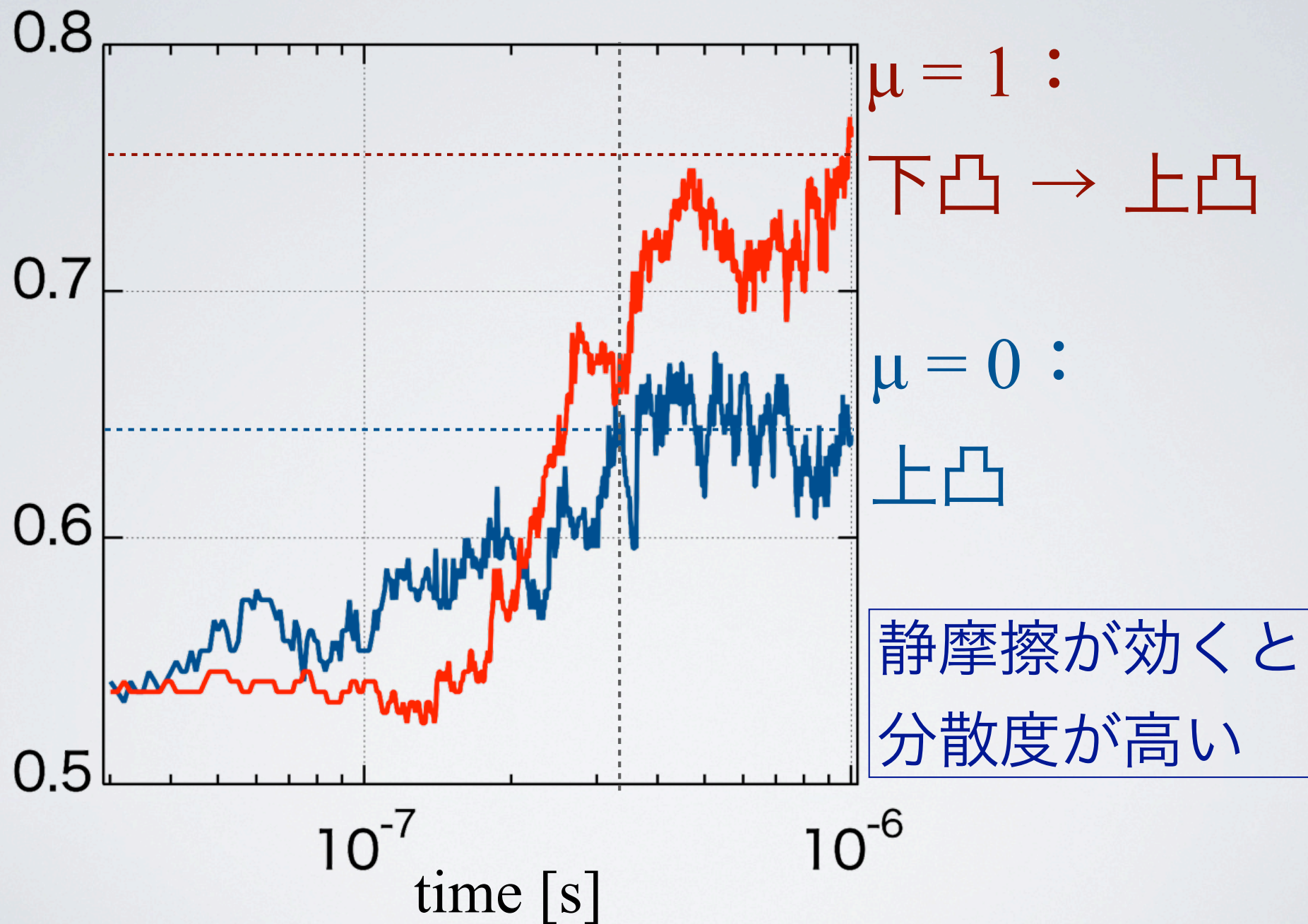


$$\mu=0$$

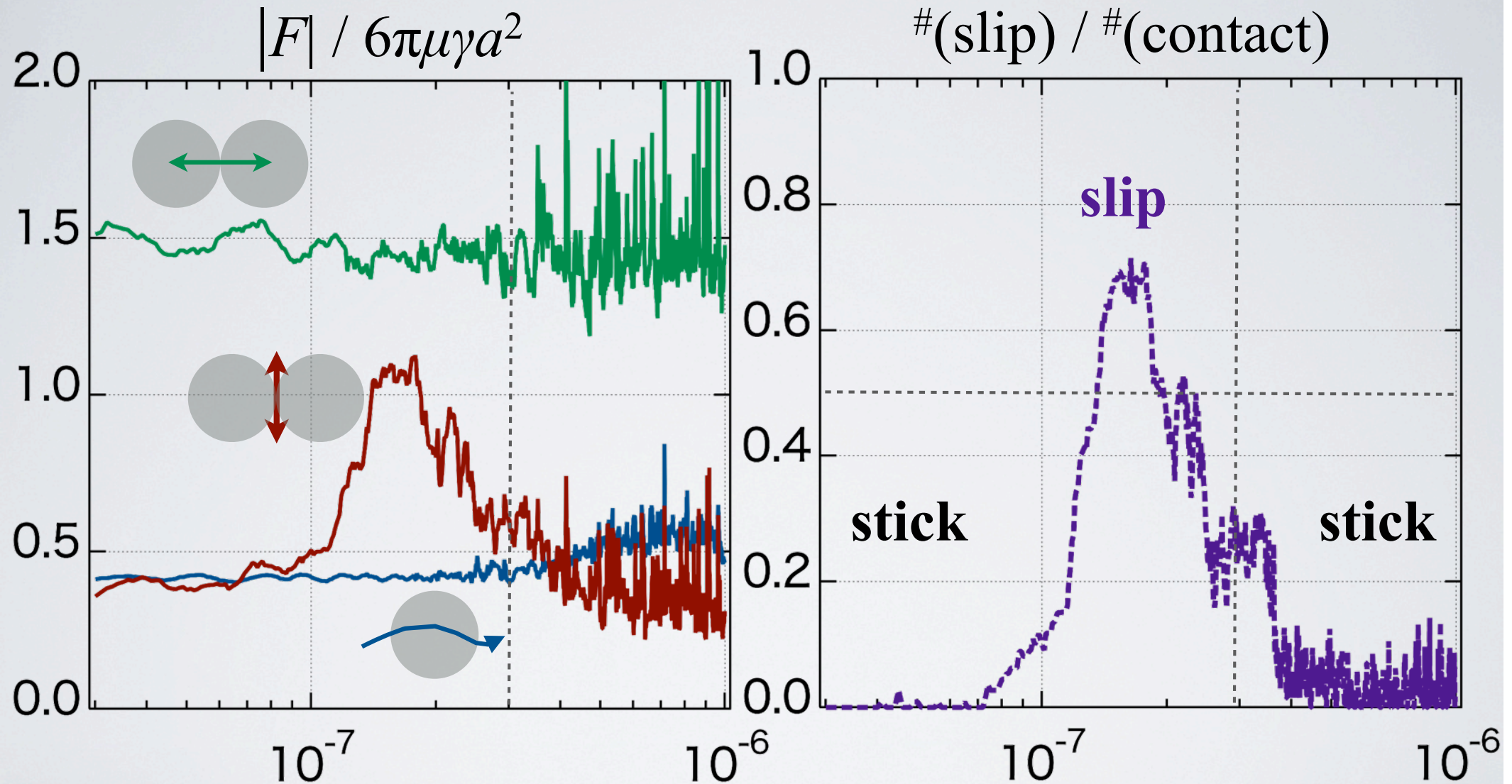


$$\mu=1$$

NBA - 分散度 -



粒子平均力とすべり点 $\mu = 1$



歪み蓄積 → すべり → 解砕

まとめ

- 凝集体の解砕をSNAP-Fで直接シミュレーションした
- アナロジーを導入せず,
構築モデルそのものに立脚し解砕メカニズムを考察した
- 摩擦則による解散メカニズムを提案可能にした