研 究

粒子間付着力を考慮した個別要素法による粒子挙動の解析(第一報)
—二次元モデルによる解析—

津守不二夫, 早川敬一郎

京都大学大学院工学研究科マイクロエンジニアリング専攻, 〒 606-8501 京都市左京区吉田本町.

Simulation of Powder Behavior Based on Discrete Model Taking Account of Adhesion Force
between Particles (First Report) –Two-dimensional Simulations–

Fujio Tsumori and Keiichiro Hayakawa

Department of Micro Engineering, Faculty of Engineering, Kyoto University, Yoshida-Honmachi, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501.

Received February 28, 2006

SYNOPSIS

An attempt is made to a new compaction model, which may agree well with experimental result when the particles are very adhesive. Adhesion force by liquid bridge between particles is incorporated in the present simulation. The simulation of two particles' collision is first performed, and then movements of free falling 1000 particles are calculated. When two particles collide with one another, they stick together. When 1000 particles fall by the gravity, they form clusters. Then, simulations of compaction of 1000 particles are carried out by the present model and the conventional model in which adhesion force of liquid bridge is not considered. In the early stage of these simulations, particles stick together continuously in present model while particles move apart from each other after a brief moment of collision in conventional model. It causes higher compressive stress and less homogeneous distribution in the present model. Furthermore, simulations of unloading in these two models are compared. In the present model, compact body keeps the shape after unloading while particles part each other in the conventional model. Thus, the effect of adhesion of particles is found very clearly in these simulations.

KEY WORDS

DEM, Powder compaction, Fine powder, Particles' interaction

1 結 言

粉末成形法において、成形後の密度分布や成形体の精度は製品の機能に大きな影響を及ぼす。これらの問題には成形中の粉末粒子の挙動が大きく影響していると考えられるが、その詳細については未だに明らかになっていない。しかし、実際の圧縮工程において加圧中に粉末の挙動の観察を行うことは非常に困難であるため、この過程を明らかにするためには解析的アプローチが有望である。圧縮成形時の粉末の挙動を解析する方法としては、粉末が圧縮性を持つ連続体であると考えた連続体力学による方法と、個々の粉末粒子の運動を追跡する方法がある。連続体力学による解析は主として有限要素法によって行われ、成形体の密度分布や焼結時における成形体の形状変化などの予測に使われている¹⁾。一方、個々の粉末粒子の運動を追跡する方法として粒子個別要素法がある²⁾。この方法は、個々の粒子に関する運動方程式を解くことによって集合体全体としての粉末の挙動を解析する手法である。

この方法による圧縮過程の解析として、島らは二次元円粒子および三次元球状粒子モデルを用いて圧縮中の成形圧と密度比の関係に関するシミュレーションを行い、銅粉を用いた実験結果と比較して定性的に実験値と一致する結果を得ている³⁾。島らはさらに、粒子の塑性変形による形状変化を考慮した球状モデルも提案している⁴⁾。また、北原らは二次元異形粒子モデルおよび三次元非球形モデルを提案して磁場中成形における粉末の挙動を解析し、磁場中成形における力学的現象を明らかにしている⁵⁾。粒子個別要素法によるこれらの研究は、主に金属粉末などの粒径が数十から数百 μm 程度の粉末を対象としており、個々の粒子が接触するときにはバネとダッシュポットを介して力が伝達されるとして計算が行われている。ところが、粒子が接触すると粒子間に反発力が発生する一方で、液架橋付着力、ファンデルワールス力、静電気力などの付着力も作用する。粒径が数 μm 程度の微小なセラミックス粉末においてはこれらの粒子間付着力が反発力と

比較して非常に大きいため、衝突時に反発力が支配的になる従来のモデルでは上手く解析を行うことが出来ない。そこで、これらの付着力の影響を考慮して粒子の挙動を解析することが必要となる。一般に粒径が数 μm 程度の場合、粒子間付着力としては液架橋付着力の影響が最も大きい。液架橋現象に関しては、遠藤らによって粒子間隙の大きさや液架橋付着力の大きさの詳細な研究がなされている⁶⁻¹⁰⁾。本研究では、セラミックス微小粉末のような、表面層の影響による相互作用が非常に強い粉末を対象として、液架橋付着力を考慮した新しい解析モデルを提案し、微小粒子に特有の凝集現象等を考察する。そして、提案したモデルと従来モデルによって粉末の充填、圧縮、除荷の一連の過程の解析を行い、粉末の圧縮成形に与える粒子の表面付着力の効果の影響について考察する。

2 解析モデル

本研究では、粒子個別要素法によって二次元解析を行う。粒子間に作用する力としては液架橋付着力 F_L 、粘性抵抗抗力 F_V 、弾性反発力 F_R 、クーロン摩擦力 F_F 、重力 F_G の 5 種類の力を考慮した。

微小セラミックス粒子は大気中の水分を粒子表面に吸着し、粒子表面には液体の吸着層が存在する。複数の粒子が互いに接触する際や粒子が壁に接触する際には、液体の表面張力の影響で液架橋付着力が発生する。本研究では、粒径が $1\mu\text{m}$ 程度の粒子の液架橋付着力を次に示す二つの近似式で表した⁸⁾。

$$F_L = 10^{-5-\ln H} \times \pi r \sigma \quad (1)$$

$$F_L = \left(4.0 - \frac{2r_1}{r_2}\right) \times \pi r \sigma \quad (2)$$

ただし、 H は粒子の表面間の距離、 σ は表面張力である。 r は、壁と粒子の接触においては粒子半径であり、二粒子の接触においては二粒子の平均半径である。

r_1 、 r_2 は粒子半径であり、壁との接触の際は $r_2 = \infty$ と考える。解析においては、これらの内の小さい方の値を液架橋付着力 F_L として採用し、計算を行った。これらの式によって求められる、粒径 $2\mu\text{m}$ の二粒子の表面間の距離と液架橋付着力の強さの関係を、Fig.1 に示す。なお、本研究では、液架橋付着力は粒子の中心間を結ぶ直線に沿って互いに引き付けあう方向に働くものとした。

粒子間に液架橋が存在する場合、粒子表面の液層の影響で粘性抵抗抗力が発生すると考えられる。本研究では、粒子表面の液層の影響による粘性抵抗抗力の他に、粒子の衝突の際に熱エネルギーや音エネルギー等の形で失われて行くエネルギーなどを包括的に考慮して、粘性抵抗抗力 F_V の大きさは粒子の大きさおよび粒子間の相対速度に比例するものとし、粘性係数 c を用いて次式に従って計算した。粘性抵抗抗力の大きさは次式で表される。

$$F_V = rcv \quad (3)$$

ただし、 v は粒子の相対速度である。粘性抵抗抗力は互いの相対運動を妨げる向きに働くものとした。

弾性反発力 F_R については、粒子が接触した際に働く反発力を、次式で表される Hertz の反発力に従って計算した。

$$F_R = \frac{\pi E(r_1 + r_2)}{32(1 - \nu^2)D^2 r_1 r_2} (r_1 + r_2 + D)(r_1 + r_2 - D)(r_1 - r_2 + D)(-r_1 + r_2 + D)h \quad (4)$$

ただし、 E は粒子のヤング率、 ν は粒子のポアソン比、 D は粒子の中心間距離である。 h は粒子の z 方向の奥行きであり、本研究では $1\mu\text{m}$ として計算を行った。反発力は粒子の中心間を結ぶ直線に沿って互いに反発しあう方向に働くものとした。

クーロン摩擦力 F_F については、粒子間に作用するクーロン摩擦力を次式に従って計算した。

$$F_F = \mu N \quad (5)$$

ただし、 N は粒子間の垂直応力、 μ は摩擦係数である。クーロン摩擦力は粒子の接線方向に働く。

重力 F_G については、次式に従って計算した。

$$F_G = mg \quad (6)$$

粒子の形状は 2 次元の円盤状とし、運動方程式においては、粒子の回転運動は考慮せず、並進運動のみを考慮した。

3 解析条件、結果および考察

解析に用いる粉末はアルミナ粒子とした。粒径分布は正規分布とし、直径の平均が $2\mu\text{m}$ 、分散が 0.3 となるような乱数を発生させることにより粒径を決定した。解析にあたって、 x - y 直交座標を設定し、 y 軸負方向に重力がかかるものとし、 x 軸と直行する左右の側面には周期境界条件を適用した。解析条件として、アルミナの真密度、ヤング率、ポアソン比、水の

Fig.1 Adhesion force by liquid bridge between particles.

表面張力および密度、さらに、気温、相対湿度、摩擦係数、粘性係数およびタイムステップをTable 1に示す。

3.1 二粒子の付着

このモデルにおいて、2個の粒子が接触して付着する際の粒子の挙動の解析を行う。初期条件として、直径 $2\mu\text{m}$ の2個の粒子を空間に配置し、それぞれの粒子にもう一方の粒子の中心方向へ初速度 0.01 m/s を与えた。このときの、互いの粒子の表面間の距離と力の大きさの関係をFig.2に示す。これらのグラフによると、粒子の表面間の距離が 0.2 nm 程度から近づくにつれて、徐々に液架橋付着力が増加し、粒子の速度の上昇に伴って粘性抵抗力も増大した。互いの粒子が接触するとHertzの反発力が働いた。互いの粒子の食い込み量が増えると反発力が強くなり、定常状態においてはHertzの反発力と液架橋付着力が釣り合った。その際の反発力および付着力の大きさは 460 nN であった。近年AFM（原子間力顕微鏡）を利用して粒子間の付着力を測定する実験が多数行われており¹¹⁻¹⁴⁾、数 μm 程度の大きさの粒子間に働く粒子間付着力の大きさは数百 nN 程度であることが報告されている¹¹⁾。このことから、本研究によって求められた液架橋付着力の大きさは妥当であると考えられる。

Table 1 Analysis conditions.

True density [Mg/m^3]	3.98
Young's modulus [GPa]	350
Poisson's ratio	0.24
Temperature [K]	298
Relative humidity	0.5
Surface tension of water [N/m]	0.073
Density of water [Mg/m^3]	1.00
Friction coefficient	0.3
Viscosity coefficient [$\text{Pa}\cdot\text{s}$]	1.0
Time step [s]	1.0×1.0^{-12}

Fig.2 Relationship between forces and the gap between particles.

3.2 粉末の自由落下充填

Fig.3に示すような幅 $75\mu\text{m}$ 、高さ $300\mu\text{m}$ のセルにおいて、1000粒子の自由落下による充填の解析を行った。解析対象とするセル内の y 軸方向の高さ $50\mu\text{m}$ 以上の場所に粒子をランダムに配置し、初期配置とした。また、粒子の初期速度は、 x 軸方向には $-0.01 \sim 0.01\text{ m/s}$ の範囲でランダムな値を、 y 軸方向には $-0.01 \sim 0\text{ m/s}$ の範囲でランダムな値を設定した。解析結果のスナップショットをFig.3に示す。粒子は付着力によって凝集しながら底面へ落下し充填された。さらに、左右の側面に周期境界条件を適用せずに同じ解析を行った場合には、粒子が凝集塊を形成しながら側壁に付着する結果が得られた。一般に微小粒径のセラミックス粉末は粒子同士が接触すると凝集塊を形成し容易には分離しない。また、これらの粒子において付着力は自重による重力と比較して非常に大きいため、容器の壁などに接触すると付着して静止する。Fig.3の様子は実際に観察される凝集構造と類似しておりこれらの現象を上手く再現している。

3.3 圧縮成形

充填の解析の最終段階から、上パンチを動かすことによって粉末の圧縮解析を行った。液架橋付着力を考慮しない従来のモデルおよび付着力を考慮したモデルの二通りの方法で解析を行った。いずれの場合においても、粒子数は1000個、最高加圧力は 0.5 MPa とした。付着力を考慮したモデルによる解析結果のスナップショットをFig.4に示し、それぞれのモデルにおける解析中の圧力と密度の関係をFig.5に示す。付着力を考慮したモデルにおいては従来のモデルと比較して圧縮初期の段階において相対密度が低いことが分かる。これらの解析において成形体の相対密度が55%の状態において、セルの領域を幅 $15\mu\text{m}$ 、高さ $15\mu\text{m}$ の35個の正形状の区分に分け、それぞれの区分の中に存在する粒子数から密度むら进行评估した。ただし、上パンチを含む区分については除外している。各区分に存在する粒子の個数の分布をFig.6に示す。分布曲線は、従来のモデルにおいては30個から40個程度の粒子が存在する区分においてピークが現れているのに対し、付着力を考

Fig.3 Snapshots of filling simulation.

Fig.4 Snapshots of compaction simulation.

Fig.5 Relationships between compressive stress and relative density.

Fig.6 Number of particles per a segment during compaction.

慮したモデルにおいては幅広く分布している様子が伺える。それぞれの区分に存在する粒子の平均値は37個であったが、このときの分散値は、従来モデルにおいて40.6であったのに対し、付着力を考慮したモデルにおいては72.2であった。このことから、付着力を考慮することによって従来モデルと比較して密度むらが大きくなることが分かる。

Fig.7 Changes in coordination number.

(a)

(b)

Fig.8 Changes of coordination numbers' distribution. (a) Present model, (b) Conventional model.

それぞれのモデルにおける全粒子の配位数の平均値の時間変化をFig.7に、それぞれのモデルにおける時間の経過に伴う粒子の配位数の分布の推移をFig.8に示す。Fig.7によると、付着力を考慮したモデルでは従来モデルと比較して圧縮初期が

ら中期の段階において粒子の配位数が大きい。液架橋付着力を考慮する本研究のモデルでは、粒子は一度接触すると、互いに液架橋付着力を及ぼし合い、付着力と反発力が釣り合う位置で互いの位置関係を保つが、液架橋付着力を考慮しない従来モデルにおいては、粒子は衝突後互いに反発力を及ぼし合って互いに遠ざかるようとするため、付着力を考慮したモデルにおいて圧縮初期段階に粒子の配位数が大きくなると考えられる。圧縮過程が進行して相対密度が大きくなってくると、従来モデルにおいても変位による拘束条件によって強制的に粒子が相互に接触させられるため、充分密になるまで解析を行うとそれぞれのモデルにおける配位数は等しくなる。Fig.8において、付着力を考慮したモデルにおいては配位数分布のピークが荷重付加後0.0msにおける2から9.0ms後における4に至るまで徐々に変化するのに対し、従来モデルにおいては荷重付加後0.0ms後から5.0ms後まで2のままである。このことから、付着力を考慮したモデルにおいては、圧縮初期段階から粒子の凝集塊が成長し、粒子間の相互作用の影響が大きくなると考えられる。圧縮を行う場合の圧力の大きさは、粒子間に働く摩擦力の影響によって大きく変化する。粒子の配位数が大きければ、圧縮に伴って粒子間に働く摩擦力が大きくなる。このことがFig.5において比較的相対密度が小さいときに付着力を考慮したモデルにおける圧力が従来モデルと比較して大きくなる原因であると考えられる。密度むらに関しても同様のことが言える。密度が高い空間の近くに密度が低い空間が存在する場合、従来モデルであれば密度の高い空間に存在する粒子は密度が低い空間へと拡散するが、付着力を考慮する場合、密度の高い空間に存在する粒子は周辺にある多数の粒子から付着力を受けており、それらとの位置関係を維持しようとするため、密度の低い空間へと拡散しない。そのため、付着力を考慮する付着力を考慮したモデルにおいては、従来モデルと比較して密度むらが大きくなる。このことがFig.6において、付着力を考慮した場合に従来モデルと比較して分散値が大きくなった原因であると考えられる。

3.4 除荷

3.3節の液架橋付着力を考慮したモデルにおいて荷重0.5MPaまで圧縮した状態から、上パンチを取り除いて除荷した際の粉末の挙動を解析した。解析は、液架橋付着力を考慮したモデルと、液架橋付着力を考慮しない従来モデルにおいて行った。

付着力を考慮したモデルにおいては、粒子に大きな動きは観察されず、成形体の形状を維持することができた。また、型による拘束条件を解いたところ、成形体はその形状を維持し続けた。一方、従来モデルにおいては成形体内部で粒子は激しく動き回り、成形体全体としても除荷後2.0msにおいてy軸方向の高さが1.3%増加した。粒子間付着力が働かないため、初期状態において接触していた粒子同士が反発して体積が膨張したのと考えられる。型による拘束条件を解くと、粒子は離散した。圧縮後の成形体はその形状を維持する上では、液架橋付着力を考慮することが必要であると考えられる。

4 ま と め

本研究では、充填、圧縮、除荷といった一連の過程における微小粒径セラミックス粉末の挙動を把握するため、個別要素解析を行った。粒子間に形成される液架橋に注目し、液架橋付着力を考慮に入れた個別要素解析のモデルを提案した。このモデルにおいて、粉末の充填を解析したところ、粒子は互いに付着して凝集塊となり、底面に充填された。これは一般的に微小粒径のセラミックス粒子を扱う際に起こる現象であり、本研究で提案するモデルによって実際の現象を上手く再現できた。圧縮成形および除荷の過程においては、本研究で提案したモデルの他に、液架橋付着力を考慮に入れない従来モデルにおいても解析を行った。本研究におけるモデルにおいては、液架橋付着力の影響によって、比較的低密度の状態においても粒子の配位数が大きくなった。そのため、従来モデルと比較して粒子間に作用する摩擦力の影響を大きく受け、成形体の密度が低く、密度むらが大きくなった。除荷の解析においては、従来モデルでは圧力を除荷すると同時に粒子は互いに離散しようとするため成形体の形状を保つことが出来なかったが、本研究のモデルによると除荷後も粒子は付着力によって付着しあい、成形体の形状を保つことが出来た。これらの結果から、粒子間や粒子と壁の間に働く付着力が粒子の挙動に大きな影響を及ぼしていることが考えられ、モデルの有効性が示された。

謝 辞

本研究の遂行に当たって、京都大学大学院工学研究科マイクロエンジニアリング専攻の故島進教授より多大な御指導をいただきました。ここに深く感謝の意を表します。

文 献

- 1) S.Shima, H.Kotera and Y.Yamamoto: "Finite Element Simulation of Compacting Process of Multi-stepped Part", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, 47(2000)1312-1317.
- 2) P.A.Cundall and O.D.L.Strack: "A discrete numerical model for granular assemblies", Geotechnique, 29(1979)47-65.
- 3) S.Shima, H.Kotera and Y.Ujie: "A study of constitutive behaviour of powder assembly by particulate modeling", Material Science Research International, vol.1.1 (1995)163-168.
- 4) H.Kotera, S.Shima and Y.Ujie: "A Study of Constitutive Behavior of Powders by 3-D Particulate Modeling", Advanced Technology of Plasticity, (1996)1003-1006.
- 5) H.Kitahara, H.kotera and S.Shima: "3-D simulation of magnetic particles' behaviour during compaction in a magnetic field", Powder Technology, 109(2000)234-240.
- 6) Y.Kousaka, Y.Endo and Y.Nishie: "Theoretical Analysis of Liquid Bridge Formation between Two Particles -Bridge Formation by ideal pure water-", Kagaku Kogaku Ronbunshu, 18(1992)942-949.

- 7) Y.Endo, Y.Kousaka and Y.Nishie: "Liquid Bridge Formation between Two Particles -Bridge formation by water containing soluble impurity-", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **18**(1992)950-955.
- 8) Y.Endo, Y.Kousaka and Y.Nishie: "Analysis of Adhesion Force Arising from a Liquid Bridge Formed between Two Particles", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **19**(1993)55-61.
- 9) Y.Endo, Y.Kousaka and Y.Nishie: "Evaluation and Control of Equilibrium Moisture Contents in Powdery Materials", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **19**(1993)411-417.
- 10) Y.Endo, Y.Kousaka and Y.Nishie: "Analysis of Liquid Bridge Formation and Adhesion Force between Two Particles of Different Sizes", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **19**(1993)1136-1142.
- 11) M.Gotzinger and W.Peukert: "Dispersive forces of particle-surface interactions: direct AFM measurements and modeling", *Powder Technology*, **130**(2003)102-109.
- 12) R.Jones, H.M.Pollock, D.Geldart and A.Verlinden: "Inter-particle forces in cohesive powders studied by AFM: effects of relative humidity, particle size and wall adhesion", *Powder Technology*, **132**(2003)196-210.
- 13) A.M.Freitas and M.M.Sharma: "Detachment of Particles from Surfaces: An AFM Study", *Journal of Colloid and Interface Science*, **233**(2001)73-82.
- 14) K.Cooper, A.Gupta and S.Beaudoin: "Substrate Morphology and Particle Adhesion in Reacting Systems", *Journal of Colloid and Interface Science*, **228**(2000)213-219.