

学 位 論 文 題 名

粒子形状による粉体特性の評価に関する研究

学位論文内容の要旨

新素材開発の高度化に伴い、その製造プロセスの基礎となる粉体処理に関連する技術は、微細化、機能化、複合化等、精密化の傾向を増し、特に粒子の微細化はますます加速され、ミクロンオーダーからナノオーダーの粒子設計が次世代の粉体技術のキーテクノロジーになることが示唆されている。そのために製造現場においては粉体の特性評価や処理技術の高度化がますます重要になるものと思われる。一方、北海道は豊かな自然に育まれた農林水畜産等の豊富な資源を基盤に産業が構成されており、それらを原料とした様々な製品が製造され、それらの多くは粉粒体として取り扱われている。

各種新素材の原料となる粉体は極めて多数の粒子の集合体であり、その様々な特性は一次原料粒子の形態と深く関係していることは周知のところである。粒子形態には「大きさ」と「形状」という二つの概念が含まれる。材料特性に及ぼす粒子の「大きさ」については、その評価法（粒度測定）の確立と合わせてこれまで広く検討がなされてきた。一方、粒子の「形状」については、工業的に利用されているサイズ（多くはミクロンオーダー）での同一材質における各種粒子形状の調整が困難なために、それらの関係を十分検討するには至っていない。そのため、「形状の評価」において、流動性・充填性には球状、保磁性には針状、反射・屈折には扁平状が有効であると云ったマクロな形状との定性的な相関にとどまっている。しかしながら、より一層の材料の高機能化を図るためには、粒子の形状制御に基づく粉体操作が不可欠となっており、そのためには粒子形状と粉体の力学特性を明らかにすることが必要となる。

本論文は4部構成から成る。第1章はマクロからミクロな様々な粒子形状を定量的に評価するために、フーリエ記述子を用いる新たな形状評価法を提案した。第2章は粉碎機、表面改質機等を用いてミクロンオーダーでの各種素材の粒子形状調整を試み、その形状調整過程の機構について考察した。第3章は粒子形状と粉体層の力学特性について検討を行い、材料特性への橋渡しをした。第4章は粒子形状調整の適用例として、ハードディスクや磁気ディスク等各種電子機器の高機能化に不可欠な精密研磨に用いられている多結晶ダイヤモンド遊離砥粒の高機能化について検討を行うと共に、その工業化についても検討した。

第1章は粒子形状と粉体の力学的特性および精密研磨に用いられる遊離砥粒の研磨機構との関連を定量的に考察する目的から投影粒子像の輪郭曲線のフーリエ級数を利用する形状指数の算出方法を検討した。フーリエ級数を用いる一般的な方法は、粒子輪郭点の動径を回転角に対しフーリエ変換する極座標法であるが、凹状粒子の場合、同一動径に対し複数の輪郭点を持つことがあるという欠点があった。そこで、投影粒子像輪郭の周長 L を N 等分に分割

した周上の各点の x, y 座標 ($P_{dx}(n), P_{dy}(n)$; $n = 1, 2, \dots, N-1$) それぞれについて基点 ($P_{dx}(0), P_{dy}(0)$) から輪郭に沿った長さに対するフーリエ展開を行う方法を用いた (座標値関数)。このフーリエ係数の第 1 項目のみを用いたフーリエ級数で示される楕円の短長軸比を粒子のマクロ形状指数と結びつけて定義した。さらにミクロな粒子形状を評価するためにこれらのフーリエ係数をもとに、形状因子として①非対称性；第 2 主要係数以降の高次係数のうち x 関数の軸対称、 y 関数の点対称を崩す度合い、②多角性；多角形の角数に対応する第 2 主要係数の周波数に 1 を加えた値、③尖り度；研磨性に関する粒子形状特性として粒子の持つ角の大きさや尖り具合を抽出するために輪郭座標の局所勾配値をフーリエ級数展開する新たな方法を導入した。

第 2 章は粉碎機 (振動ディスクミル) および表面改質機 (ハイブリダイザー) のいずれも粒子形状の調整が可能であり、振動ディスクミルによるオリビンサンドの粒子形状調整では仕込量が多い場合および処理時間を長く取ることにより球状に近い高い形状指数を得ることができ、形状指数の増加は表面破碎に大きく依存していることが分かった。ハイブリダイザーは操作条件の選定により段階的な形状の調整が可能であり、特に金属粒子について形状調整機構を応力-歪みの関係に基づき解析した。粒子の形状は粒子径には依存せず、ローター周速および処理時間の増大と共に球形化が進行し、仕込量の効果は変形の生じ易い素材において発現することが推測された。すなわち、粒子は衝撃力によって徐々に変形し、変形の限界に到達する形状調整モデルを提案し、ステンレス粉による実験結果と提案したモデルとがよい一致を示した。

第 3 章は粒子形状と粉体の力学特性の関係においては、異形粒子から球形化が進むにつれて粒子間の咬み合い効果が減少し、内部摩擦係数が低下し、剪断付着強度の減少、圧縮度および安息角も減少し、流動性の向上が認められた。粒子形状と充填特性においては、緻密で均一な成型層を作製するには通常の総括空隙率の減少のみでは水平圧と垂直圧の比が増大し、深さ方向で不均一な成型層を形成するが、粒子を球形化することによりその比とべき数を減少させ、層の均一化に大いに有効であることが分かった。以上のことから粒子形状の粉体特性への効果は、定量的な評価を基に静的特性から動的特性になるに従い小さくなると考えられる。

第 4 章は新たに導入したマクロ形状 (短長軸比)、多角性、非対称性、尖り度の形状指標値により研磨速度に対する実験式が得られ、粒子形状による研磨速度への効果が推定可能となり、多角性、非対称性、マクロ形状、尖り度の順に研磨速度に対する寄与率が高く、非対称性が小さく、他の形状指標値が大きいほど研磨速度が高くなることがわかった。その結果、従来の研磨砥粒の性能を大幅に改善することができ、多結晶ダイヤモンド砥粒の世界シェアの半分を生産するに至っている。

以上、著者は従来の微粉碎機や表面改質機を用いることにより、ミクロンオーダーでの粒子形状調整を可能にし、定量的な粒子形状の粉体力学特性に及ぼす影響を明らかにすると共にその応用として精密研磨に用いられるダイヤモンド砥粒に適用し、その機能を飛躍的に向上させ、工業化を図ることができた。これらの知見を基に粉体処理技術としての形状調整が多くの分野に適用されることにより、次世代の材料開発あるいはプロセスの改善に大きく貢献できることが期待される。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 篠 原 邦 夫
副 査 教 授 井 口 学
副 査 教 授 荒 井 正 彦
副 査 教 授 増 田 隆 夫
副 査 教 授 小 石 眞 純 (東京理科大学総合研究所)

学 位 論 文 題 名

粒子形状による粉体特性の評価に関する研究

近年、微粒子系材料の高機能化,高付加価値化に関する研究が盛んに行われている。しかし、その多くは機能発現に関する原理的探求と結果としての材料特性評価を目的としており、粒子の操作および物性面からの微視的で系統的なアプローチは未開拓の分野で、今後の発展が待たれている状況にある。

本研究では、このような現状にある微粒子素材の開発のため、機械的手段を用いて粒子を調製し、粒子形状の記述とその応用および粒子集合体特性との関係について微粒子工学的に研究し、これまでの巨視的取り扱いでは得られない工学的にも実用的にも有益な微粒子素材特性を得ていることは、十分に評価に値する。

本論文は、緒論で研究の産業的、工学的背景と位置付けについて述べ、総括で各章の成果を整理しており、他 4 章の本論から成る。それぞれの成果と評価を以下に述べる。

第一章では、粒子の形状を定量的に評価するため、粒子投影像の輪郭曲線について、輪郭点座標を x 軸と y 軸の両方に対してそれぞれフーリエ級数展開を行い、その両者を組み合わせて再生可能な粒子輪郭情報としてフーリエ級数で代表させることができた。これは、従来の極座標法による凹み粒子への適用不可を可能にするものであり、マクロ形状因子として第一項目のフーリエ係数での楕円近似により短長軸比が説明できた。さらに、このフーリエ係数をもとに、粒子の形状指標として、よりミクロな非対称性,多角性,尖り度などが初めて定量的に表現できるようになったことは、大きな進歩である。

第二章では、粉砕機および粒子表面改質機を用いて、粒子形状の調整を行っている。その結果、従来粒度調整のみの用途とされていた振動ディスク型の粉砕機でも、粒子の粉砕の際の操作条件を選択することにより、同一粒度で形状の異なる粒子が調製できることを見出した。すなわち、表面破砕の効果を利用するため、粒子の仕込み量を上げ、処理時間を長くすることで、より球形な粒子を調製できることが分かった。

また、高速気流中回転衝撃法により、種々の物質について、操作条件を選定して粒子形状が調整できる可能性を示した。特に、展延性の大きな金属粒子をモデルに、形状の変化過程を応力 - ひずみ関係に基づき解析し、粒子凸部での衝撃応力の増大による粒子の変形が支配的に作用して球状化の進行することが解析的に初めて分かった。その結果、これまで異形粒子群からの選別に頼っていた同一形状粒子の調整を、高速気流中衝撃法によって処理時間、回転速度および仕込み量を増大することにより段階的に定量的に球状粒子を調製できることになったのは、次章で示すように、粒子物性のみならず粉体特性の制御に繋がり、粉体操作の自由度と精密さを高める可能性を示唆しており、工学的価値がある。

第三章では、粒子形状による粒子集合体の特性がどのように変化するかを測定し、形状調整の効果を微粒子系素材特性の制御に関連付けるための系統的な検討を行っている。まず、粒子が球形化するにつれ粒子間の機械的噛合い効果が低減するために、内部摩擦係数が減少し、それに伴いせん断強度の低下と安息角の減少が起り、流動性の増大することが分かった。その結果、粒子層の成型過程では、球形粒子ほど水平圧力と垂直圧の比が減少し、上部からの成型圧力が下部へ応力伝播しやすくなるため、充填率の底部方向への減少が低減され、マクロにはより均一充填な成型体が得られる。そのため、粒子形状調整により成型材料特性の向上が可能になり実用的価値もある。

第四章では、粒子形状解析に基づく各種形状指標が、実際に研磨特性にどのように関係するかを初めて定量的に検討した。第一章で粒子輪郭点の座標をフーリエ解析して定義した形状指標を用いると、まず工業的に重要な研磨速度に及ぼす効果は、多角性、非対称性、短長軸比、尖り度の順に高いことが分かり、かつ非対称性が低く他の指標が大きいほど研磨速度が高くなることが分かった。また、研磨面の粗度との関係については、面の凹凸を触針法で検出した波形をフーリエ解析することにより、各種の指標を定義できるが、中でも波形の余弦項のフーリエ係数の主要値が平均粗度に対応し、スペクトルのより高い強度が面の非対称性を示しており、これは、粒子形状指標の中でも多角性に大きく依存していることを初めて見出している。このような研磨特性に対する粒子形状解析に基づくアプローチは、これまでに無く、多結晶ダイヤモンド砥粒への適用によって従来の研磨性能を大きく高めることができ、世界的シェアの拡大に大きく貢献した。

これを要するに、著者は、粒子の形状に関する微視的、定量的な解析に基づき、微粒子調製方法による粒子物性および粉体特性の調節を可能にし、その応用分野への適用についての系統的で有用な新知見を得たものであり、化学工学および微粒子工学の進展に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。