

(東北大院)○(学)渡部諒・(東北大)小野公德・

(東北大院)(正)庄子正和・(正)松下洋介・(正)青木秀之\*・(正)三浦隆利・

(ブリヂストン)山田浩・(旭カーボン)(法)福田興照・(旭カーボン)(法)山口東吾

【緒言】カーボンブラックは工業的に生産されるすすのことであり、主に複合材料の添加材として用いられている。カーボンブラックは炭素微粒子の凝集体であり、その凝集体形状は複合材料の特性を決定する重要な因子の一つである。現在、カーボンブラックの代表的製法であるファーネス法では、炉内温度によって凝集体形状を制御する手法が存在するが、未だ経験的手法に頼っているのが現状である。

本研究では粒子の焼結を考慮した凝集体形成モデルを用いたシミュレーションを行い、凝集体形状解析結果を基に粒子の焼結および融合過程がカーボンブラックの凝集体形状に及ぼす影響について検討を行った。

【数値解析】凝集体形成モデル 本研究では林ら[1]の凝集体形成モデルを基に、カーボンブラック生成炉内におけるカーボンブラック一次粒子のブラウン運動および凝集体形成過程をモデル化した。Table 1 に解析条件を示す。温度条件には実炉内の温度履歴を用いた。また、本解析では炭素の質量流量を一定にしているため、一次粒子径に対して解析領域を変化させた。

一次粒子焼結モデル 本研究では、宍戸ら[2]の焼結モデルを基に、カーボンブラック一次粒子の焼結および融合過程をモデル化した。本モデルにおいて、焼結進行速度は粒子間の接着部に形成されるネック長の増加速度として表現され、以下の式で表される。

$$\frac{dx_n}{dt} = \frac{3\sigma d_p}{8\mu x_n}$$

なお、本解析ではカーボンブラック一次粒子が一辺 1.3 nm の立方体状の黒鉛結晶子から構成されると仮定し、粒子の粘度および表面エネルギーを推算した。

【凝集体形状解析】得られた凝集体の投影図を用いて、異方性、複雑性および包絡率の3つの形状パラメータを算出し、宍戸ら[2]の基準を基に凝集体形状を球状、

Table 1 Calculation conditions

|                                     |                                     | Case A | Case B | Case C |
|-------------------------------------|-------------------------------------|--------|--------|--------|
| Initial particle number             | [-]                                 |        | 500    |        |
| Average temperature                 | [K]                                 | 1662   | 1725   | 1771   |
| Primary particle diameter           | [nm]                                | 25     | 20     | 18     |
| Mean thermal velocity of a particle | [m/s]                               | 1.99   | 2.84   | 3.37   |
| Calculation domain                  | [10 <sup>-16</sup> m <sup>3</sup> ] | 14.0   | 7.42   | 5.55   |
| Aggregation time                    | [ms]                                |        | 10.0   |        |

楕円状、棒状および枝発達型の4種に分類した。また、本研究において球状および楕円状の凝集体は、棒状および枝発達型と比較して単純な形状である。なお、球状には一度も凝集しなかった粒子を含む。

【結果と考察】Fig. 1 に各条件で得られた凝集体形状の分類結果を示す。Case B において、枝発達型の凝集体の存在割合が最も大きく、球状および楕円状の凝集体の存在割合が最も小さくなった。また、Table 2 に各条件で得られた形状パラメータの平均値を示す。Case B において、複雑性および包絡率の値が最も大きくなった。以上より、Case B において凝集体形状が最も複雑になることが示唆された。

本解析条件では、一次粒子を構成する黒鉛結晶子サイズを一定であるとしたため、炉内温度が高い場合ほど粒子の粘度が低くなり、焼結進行速度が増加することにより凝集体形状の単純化が促進される。一方、炉内温度が高い場合ほど、粒子の平均熱速度および粒子数密度が大きくなり、粒子の凝集速度が増加するために凝集体形状の複雑化が促進される。したがって、Case B では Case A と比較して凝集速度が大きく、Case C と比較して焼結進行速度が小さいために凝集体形状が最も複雑になったと考えられる。

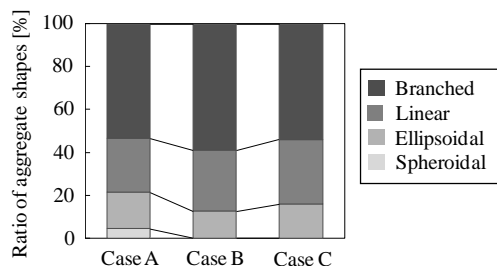


Fig. 1 Results of aggregate shape classification for case A, B and C

Table 2 Average of the shape parameter values for case A, B and C

|               |     | Case A | Case B | Case C |
|---------------|-----|--------|--------|--------|
| Anisotropy    | [-] | 1.51   | 1.58   | 1.56   |
| Complexity    | [-] | 5.24   | 6.03   | 4.75   |
| Covered ratio | [-] | 1.50   | 1.59   | 1.49   |

【参考文献】 [1] Hayashi *et al.*, *Combust. Flame*, **117**, pp. 851-860 (1999)

[2] 宍戸ら, 化学工学論文集, **33**(4), pp. 306-314 (2007)

【Nomenclature】  $d_p$ : primary particle diameter [m],  $t$ : time [s],  $x_n$ : neck radius [m],  $\mu$ : viscosity [Pa·s],  $\sigma$ : surface energy [J/m<sup>2</sup>] \* E-mail: aoki@tranpo.che.tohoku.ac.jp