

懸濁液の粘性係数推算—多分散系への展開をめざして

Estimate viscosity of suspensions — for Polydisperse Particle System

○ 向 永治郎, デンカ株式会社, 東京都町田市旭町 3 丁目 5 - 1, E-mail: ejiro-mukai@denka.co.jp:
Eijiro MUKAI, Denka Co., Ltd, 3-5-1 Asahi-Machi Machida City Tokyo Japan

In epoxy resin sealing material for semiconductor, spherical silica is often used. For the large-scale integration of a semiconductor, polydisperse particle system is used to provide high filling rate for high thermal conductivity without increase in viscosity. The purpose of this study is estimate viscosity of suspensions with polydisperse particles. A fixed Cartesian grid and “Body-force type Immersed Boundary Method (IBM)” is used for the fluid-flow calculation. As a result of the present study, it was found that viscosity of suspensions with 2 particle diameter dispersion have a nonlinearity for shear rate.

1. 緒言

LSI パッケージの封止材において、絶縁性と熱伝導性が求められる。これらの特性を満足させる材料の 1 つとして、球状のシリカとエポキシ樹脂による複合材が用いられることが多い。昨今のチップの高集積化から求められる熱伝導性は向上しており、その要求を満足するため、セラミックスフィラーは高充填化している。高充填の複合材においては粘性係数の増大が生じるため、粘性係数の増大を抑えことを目的に、多種粒子径を調合して使用する。このような複雑な複合材の粘性係数を予測することは、粘性係数の増大を抑制しながら高密度充填を可能とするセラミックス粒子の調合を求めると非常に重要な技術である。

従来、この分野で検討されているのは、ほとんど 1 粒子径の複合材である。また、樹脂はニュートン流体、粘性係数一定の場合であり、エポキシ樹脂のようにせん断速度に対して粘性係数が大きく変化する場合についての検討は見当たらない。

そこで、本研究の目的は、複数粒子径混合の影響、粘性係数のせん断速度依存性の影響などを考慮して、複合材の粘性係数を推算できるシステムを構築し、それをを用いて、より高機能な複雑複合材の開発を推進することにある。

本報では、解析手法について説明し、単一粒子径・ニュートン流体の結果を既報と比較する。また、2 種類の粒子径を混合した場合の粘性挙動について検討した結果、ニュートン流体でも複合材としてはせん断速度により粘性係数が変化する可能性を見出したので、その一部について報告する。

2. 解析手法

基本的な考え方は梶島ら¹⁾の体積力型埋め込み境界法から出発しているが、圧力の影響、せん断速度依存性粘性係数の影響など不明確であるので、粒子と流体の相互作用については陽に取り入れることを試みた。また、これらの機能を OpenFoam を改造することにより構築した。

基礎式

流体は非圧縮性流体と仮定し、粒子と流体の間の相互作用を考慮する。

まず、体積平均速度 $u = \alpha u_p + (1 - \alpha) u_f$ を定義する。 u_p は粒子速度、 u_f は流体流速、 α は粒子体積分率である。

連続の式 (1)、ナビアーストークスの式 (2) を示す。

$$\nabla \cdot u = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \cdot \nabla(u) = -\nabla P + \nabla \cdot (\nu \nabla u) - f + g \quad (2)$$

ここで、 P は圧力、 ν は動粘性係数、 f は流体が粒子から受ける力、 g は重力加速度である。 f については詳細に後述する。

粒子の運動は lagrangian 法で追跡し、ニュートンの第二法則

に従う。支配方程式は以下の通りである。並進運動は式(3)、回転運動は式(4)である。

$$m_p \frac{du_p}{dt} = F_p + G_p \quad (3)$$

$$I_p \frac{d\omega_p}{dt} = M_p + N_p \quad (4)$$

m_p は粒子質量、 F_p は流体から受ける力であり f を粒子表面でベクトル積分した値の逆ベクトル、 G_p は重力および、粒子間、粒子壁間衝突による力である。 I_p は慣性モーメント、 ω_p は角速度ベクトル、 M_p は流体から受けるモーメント、 N_p は粒子間、粒子壁間衝突によるモーメントである。

これらの計算を進めるに際し、まず、(1)、(2)について、simple 系のアルゴリズムを用いて計算する。その後、流体の流速、粒子の表面流速から粒子一流体の相互作用を計算する。つまり、梶島らの方法とは異なり、運動方程式計算と圧力ポアソン式計算との中間の流体流速を用いて、粒子一流体の相互作用を計算しない。

従って、粘性力、運動量差、圧力全てについて検討する必要がある。そこで、以下の式(5)について考える。

$$f = fv + f_m + f_{pr} \quad (5)$$

ここで、粘性力 f_v については、Fig.1 に示すように、粒子に接触するセルの流体体積と接触面積から壁面からの距離を求め、接触面での接線方向相対速度差をその距離で除し求めた。運動量差 f_m は流体流速の意味が異なるが式は梶島らと同じとした。 f_{pr} については、粒子表面平均圧力との差を用いた。また、粒子間、粒子壁間の衝突については跳ね返り係数を 0.9 一定とした。ただし、本報告の計算結果においては、粒子間の衝突は生じていない。

3. 過去の検討結果との比較

まず、田中ら²⁾の行ったアルミ球の水中落下実験(Fig.2)結果、梶島らの方法による計算結果と比較した結果を Fig.3, Fig.4 に示す。ここで、田中らは数種角度を変化させ検討しているが、ここでは垂直壁の場合のみについて検討した。また、空間分割は 3 方向粒子直径 32 等分である。Fig.4 から、落下速度については、田中らの計算結果と良く一致している。実験結果と当初違いが生じているのは田中らの考察同様に水の表面を滑り壁にしていることによるものと思われる。Fig.3 から、軌跡については田中らの計算結果と実験結果との中間になった。最初の落下速度が実験結果と異なるので本手法の方が精度が良いとは言えないが、壁から離れる時の圧力の影響があるとも考えられる。そこで、 f から圧力の影響を無くし、別途浮力を加えた計算を行った。軌跡の結果を fig.3 に落下速度を Fig.4 に示す。粒子が壁から離れるのが遅いのが分かった時点で計算を中止した。壁から離れる時、圧力が作用していることが分かる。田中らの計算よりも遅くなっていることから、田中らの計算においても圧力の影響は入っているが、本手

法よりも少し小さい可能性がある。落下速度についてはあまり影響は無い。

次に、原田ら³⁾が懸濁液の輸送係数について、多重極展開による理論解析を行った結果と比較した。計算モデルは Fig.5 に示す通り、平行平板壁を上下において平行一定速度で逆方向に運動させ、せん断場とした。また、その中に均等にせん断の生じる方向に 16 個、壁運動方向に 2 個の粒子を配置した。境界条件は上下壁平行一定速度、上流下流は周期境界、図の垂直面は滑り壁とした。空間分割は角速度ベクトルと垂直 2 方向には 32 分割、平行方向には 16 分割とした。ここで、粒子密度は 2,200kg/m³、流体は密度 1,000kg/m³、粘性係数 1Pa・s としている。結果を Fig.6 に示す。原田らの結果については最も精度の高い次数の結果を用いた。Fig.6 から、本手法による結果は原田らの結果よりも多少小さくなっている。

4. 2 粒子径分散検討結果

現状、製造しているシリカは粒子径 50 μm, 5 μm, 0.5 μm の 3 種類を混合しているが、その中の 5 μm, 0.5 μm を想定し、総体積分率 56.8%, 5 μm と 0.5 μm の体積分率比 3:1 とした。計算モデルを fig.7 に示す。境界条件は fig.5 と同じであるが、せん断速度を変化させその影響について調べた。5 μm 粒子を 4 個、0.5 μm を 1,792 個均等に配置している。空間分割は、小さい粒子を角速度ベクトルと垂直 2 方向には概略 16 分割、平行方向には概略 4 分割とした。ここで、粒子密度は 2,200kg/m³、流体は密度 1,000kg/m³、粘性係数 0.004 Pa・s としている。

計算結果を、横軸にせん断速度、縦軸に粘性係数比として Fig.8 に示す。ニュートン流体であっても、多分散系では粘性係数がせん断速度依存性を表す可能性のあることが分かった。

5. 結言

固液 2 相流体の解析手法において、陽に粒子流体間相互作用を考慮した手法を構築した。過去の検討結果と比較検討した結果、ある程度の精度の有ることが分かった。その手法を用い、2 粒子径分散の場合には、ニュートン流体であっても、粘性係数がせん断速度に依存する可能性があることを示した。3 粒子径分散に適応可能なモデル、および、非ニュートン流体であるエポキシ樹脂の粘性係数について検討を継続しており、より現実に近い検討が可能なモデルの構築を目指す。

謝辞

OpenFoam のコーディングに関しては、(株)ソフトフローの呉氏に多大なご協力を頂いた。ここに、厚く謝辞を表す。

参考文献

- (1)Kajishima et al., "Turbulence Structure of Particle-Laden Flow in a Vertical Plane Channel Due to Vortex Shedding," *JSME Int. J. Ser. B*, 44-(4), 526-535 (2001)
- (2)植村, 田中, 辻, "壁面近傍における粒子運動の DEM-IBM 解析," 日本流体力学学会年會講演會論文集, 281(2012)
- (3)齊藤, 原田, "波数空間における多重極展開に基づいた多分散粒子系の流体力学的輸送係数に関する理論解析," 日本流体力学学会年會講演會論文集, 058(2014)

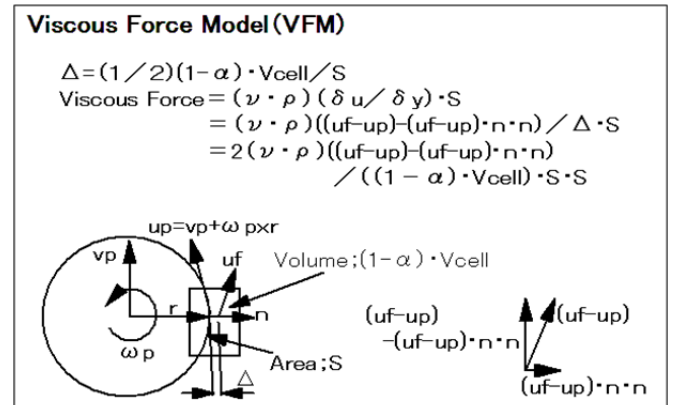


Fig.1 Viscous Force Model

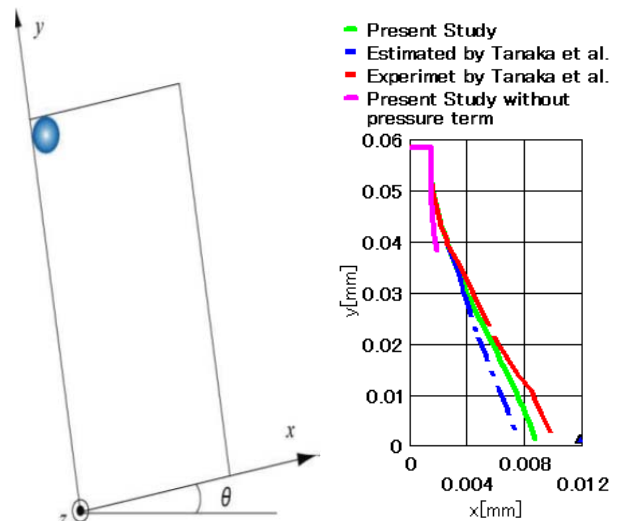


Fig.2 The experiment situation Fig.3 Comparison of particle trajectory

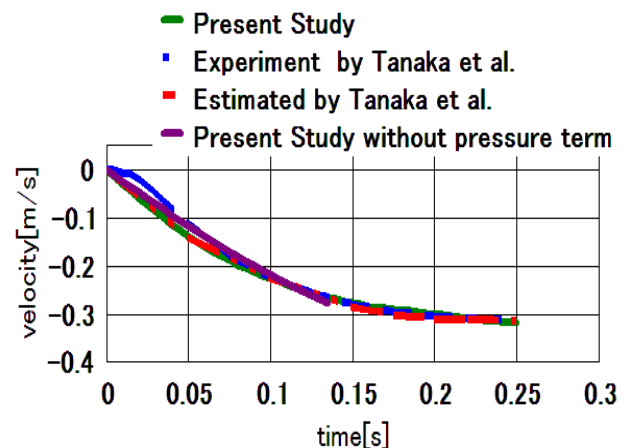


Fig.4 Comparison of particle velocity

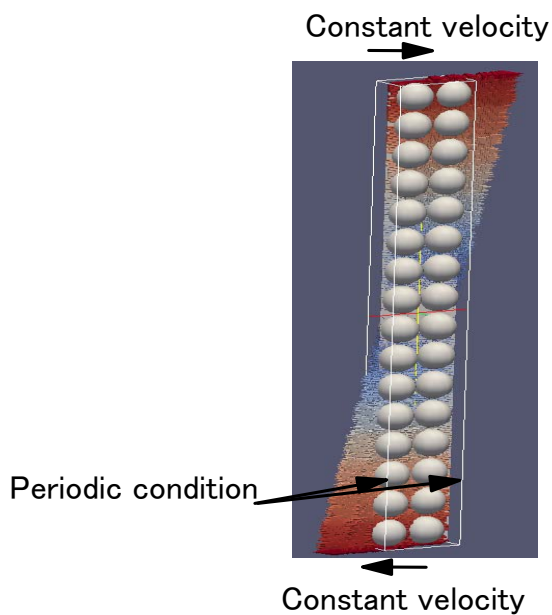


Fig.5 Monodisperse model

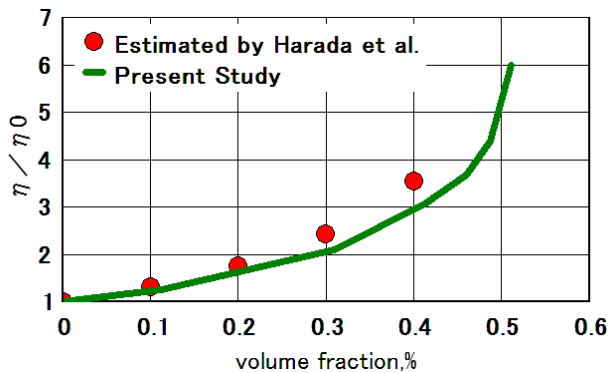


Fig.6 Viscosity of monodisperse suspensions

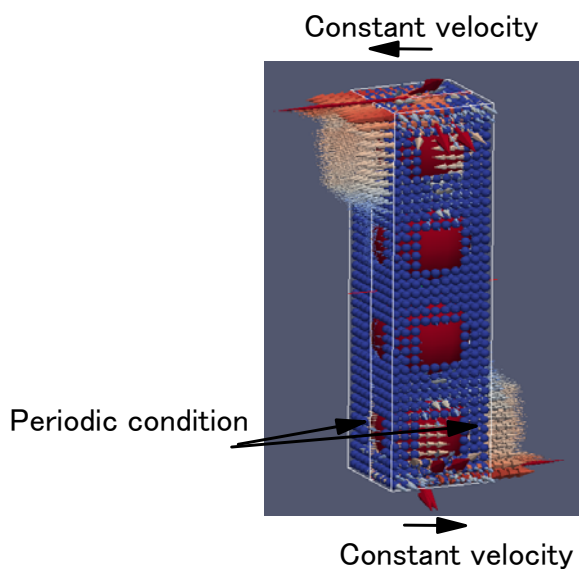


Fig.7 2 particle diameter dispersion model

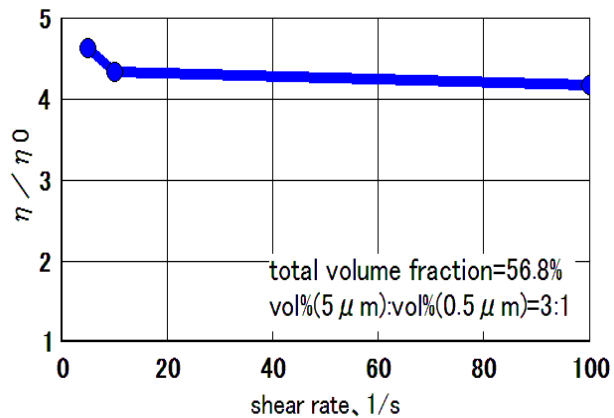


Fig.8 Viscosity for 2 particle diameter dispersion