

氏 名	かわ ち しん じ 川 地 伸 治
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3666 号
学位授与の日付	平 成 14 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	A study on the bubble removal process in high-temperature glass melting (高温ガラス溶解における気泡除去プロセスに関する研究)

論文調査委員 (主 査) 教 授 横 尾 俊 信 教 授 小 久 保 正 教 授 川 崎 昌 博

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、ガラス溶解窯に求められる性能として現在最も重要なことは高い気泡品位のガラスの製造であることを考慮してガラス融体中の気泡の清澄メカニズムの解明を目的とし、気泡の清澄現象解明に不可欠な1400~1600℃における高温物性(気体の溶解度、拡散係数、表面張力)を測定し、ガラス窯内部の熱流動挙動、ガス拡散挙動、気泡清澄挙動を予測する体系的な解析システムとして構築した研究成果をまとめたものであり、序論、本論、結論からなり、本論は5章から構成される。

序論では、まず、ガラスの工業的生産には、百年以上も前に発明されたタンク窯と呼ばれる化学反応槽が現在も使用され、このようなガラス溶解窯は1400-1600℃の高温で運転され、かつガラス融体は反応性に富んでいるために、溶解過程で起こっていることを正確に理解することが困難で、その設計や運転に関しては熟練した技術者の経験と勘に頼らざるを得ないというのが現状であるが、今や科学的な解明が不可欠であるという研究の動機について述べている。次に、ガラスを溶解するときに発生する不良項目のなかで、製品中に含まれる気泡に関するものが最も多く、テレビ(TV)パネルガラスや自動車用窓ガラスでは5-15%が泡不良として廃棄されているといわれているが、今後液晶やプラズマディスプレイなどのディスプレイ用ガラスにはさらに高い気泡品位のガラスが要求されることから、問題点が気泡の清澄メカニズムの解明にあることを述べている。最後に、近年のコンピュータ性能の向上やソフトウェアの研究によって、現実の現象をコンピュータの中に仮想的に再現できる可能性が見えてきたので、気泡の清澄プロセスを模擬するシミュレーションの研究を行う旨を述べている。

第1章では、TVパネルガラス中における気泡の成長・収縮などの挙動を明らかにするためには、ガラスの溶解温度域におけるガラス融体とガス(酸素、窒素、炭酸ガス)に関する物性値(ガス溶解度、ガス拡散係数、表面張力)が必要であるので、それらの物性を測定する装置を開発して測定を行なった。得られた測定値について、溶解度と拡散係数を物理的なメカニズムによるものと化学的なメカニズムによるものに分けて考え、4種類のメカニズムと3種類のガスにより構成されるマトリックスの各項目について逐一物理化学的視点から検討したところ、測定値と理論による推定値がかなりよく一致することを明らかにしている。

第2章では、ガラス原料がガラス化反応を起こすとき、多量の気泡を発生し、その後ガラス融体から消失したり、ガラス製品中に出現したりする現象の要因には、①タンク窯の設計、②清澄剤を含むガラスおよびバッチの組成、③タンク窯の運転条件があると考えられるが、バッチの下で発生した気泡が、どの程度製品に出現する可能性があるかを定量的に評価するために、上述の気泡生成に影響する要因を考慮したガラス窯における気泡の成長・収縮挙動を数学モデルとして記述することを本章の目的とした。これらの数学モデルでは、①ガラス窯中のガラス融体の対流や温度分布を得るために、連続の式、運動方程式、エネルギー式を連立して解く熱流動解析、②清澄剤から発生する清澄ガス、バッチブランケットとガラス融体境界面におけるガス濃度、燃焼空間とガラス融体の境界面におけるガス濃度を境界条件として濃度に関する移流拡散方程式を解くガス濃度解析、③バッチのガラス化反応によって発生したガラス融体中の気泡が浮上によってガラス表面に到達して

消失するか、気泡に含まれるガスが融体に吸収されて消失するという2つのメカニズムを想定した気泡清澄解析を逐次計算する構成になっていることを示している。

第3章では、実際に運転されているTVガラス溶解窯のデータを用い、前述したシミュレータによって一連の解析を行い、解析結果が実際の製造現場で観察・経験された事象をよく反映しているかどうかの検証を行った。その結果、溶解窯から実際に採取した気泡に含まれているガス成分、TVガラス製品に含まれる気泡中のガス成分、製品中の気泡直径と気泡成分との相関関係などが、シミュレータによる解析から予測される結果と非常によく一致したことを述べている。

第4章では、清澄剤から発生するガスを温度の関数として測定するための測定装置、具体的には、ヘリウム気流中でバッチを徐々に加熱し、発生したガスをガスクロマトグラフで分析する装置を作製し、測定結果を濃度の移流拡散方程式に利用できるよう数学モデルを開発した。数学モデルは、化合物の一般的な反応速度式で表され、頻度因子、活性化エネルギー、反応次数という3つのパラメータで特徴づけられる。得られた反応式は、清澄剤の反応挙動を記述するだけでなく、酸素の化学的溶解度や化学的拡散係数を推定するためにも有用であることを述べている。

第5章では、TVパネルガラスを溶解する新しい窯で、操業開始後、気泡の品質があまり良くない状態がある期間続いた後、操炉条件を大幅に変更することによって泡品位が劇的に改善されたという経験に対して、本研究で開発した気泡清澄性能解析システムを適用し、気泡不良の原因を追跡している。気泡不良のトラブル原因として、投入口付近の温度が過剰に高温であったため、清澄剤の分解反応が短時間のうちに終了し、ガラス融体中の酸素濃度が低下したため、バッチの下で発生した気泡が十分に清澄させられなかったため、多くの気泡がフィーダー入口まで到達したものと推定されている。

最後の章では、結論として本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、ガラス溶解窯の設計、清澄剤を含むバッチおよびガラス組成および操炉条件の最適化に資することを目的とし、ガラス窯の性能として現在最も重要と考えられている気泡品位を予測する気泡清澄性能解析システムおよびその基礎となる1400~1600°Cにおける高温物性（気体の溶解度、拡散係数、表面張力）についての研究成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 気泡の清澄挙動を推定する上で重要な高温におけるガス溶解度、ガス拡散係数、表面張力を測定する独自の装置を作製し、これまでほとんど報告されていないテレビ（TV）パネルガラスについてこれらの高温物性を明らかにした。酸素、窒素、炭酸ガスの各ガスについて溶解度、拡散係数を物理的および化学的現象に分類し、物理化学的に導いた溶解および拡散モデルによって検討を加え、多くの物性においてモデルから予測される値と実測値が一致することを明らかにした。この物理化学的方法論は、TVガラス以外のガラスのガス溶解度、ガス拡散係数を予測することができる普遍性を有することを明らかにした。
2. 熱流動解析モデル、ガス濃度解析モデル、気泡挙動解析モデルを連立して、ガラス窯の気泡清澄性能を評価する一連の気泡清澄解析システムを構築した。ガス濃度解析モデルに必要な清澄剤の熱分解反応の定式化を行い、ガラス融体中のガス濃度解析モデルに組込む具体的方法を明らかにした。
3. 上述の気泡清澄解析システムに実際のTVガラス溶解窯のデータを代入して計算を行い、解析によって得られた結果が現場の溶解技術者の持つ知見といくつかの点でよく一致することを見出した。
4. ガラスバッチの熱分解反応測定装置を開発・測定し、清澄剤の分解反応を特徴づける3つのパラメータの値（頻度因子、活性化エネルギー、反応次数）を決定する方法論を示した。
5. 実際に経験した気泡のトラブルの原因を一連の解析によって追跡し、ガラス窯の温度分布、清澄剤の挙動、ガラス融体中の酸素濃度分布、清澄機能の働きとガラス品位の関係を具体的な事例で論じた。

本論文は、1400~1600°Cという高温におけるガラス溶解過程において発生する気泡の清澄メカニズムを解明するシミュレーションの開発に関して貴重な基礎的知見を提供したものであり、学術上、実際に寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成14年2月27日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。