

令和 3 年 6 月 3 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21934

研究課題名（和文）高効率な微粒子製造を可能にする連鎖的な液滴分裂

研究課題名（英文）Successive fragmentation of droplets for efficient particle production

研究代表者

井上 智博（Inoue, Chihiro）

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：70466788

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,400,000 円

研究成果の概要（和文）：金属微粒子を効率よく製造するために、液体金属が連鎖的に分裂する条件を特定することで、革新的な微粒子製造技術への適用性を評価することを目的に研究を実施した。まず、高速度カメラを用いて、飛散しながら分裂する金属微粒子の挙動と、定量的な温度を明らかにした。次に、金属微粒子を採取し、電子顕微鏡を用いて微視的視点からも詳しく調査した。その結果、金属微粒子径や内部の気泡径を取得することに成功した。さらに、高速度可視化と理論解析を組み合わせることで、連鎖分裂には微粒子内部の拡散現象と内部の気泡発生が重要であり、微粒子製造には高温状態での継続的な凝縮相反応が必要であることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

積層造形や粉末冶金に用いられる金属微粒子は、従来、高速の気体や水噴霧を熔融金属に衝突させて微粒化、冷却して製造する。このとき、個々の金属微粒子は1回しか分裂しないため、エネルギー効率が低い。この課題を解決するために、本研究では、液滴が繰り返し分裂する連鎖分裂現象を応用することを着想した。実験と理論解析を実施し、液体金属が連鎖的に分裂する条件を特定し、革新的な微粒子製造技術への適用性を評価した。

研究成果の概要（英文）：For the efficient production of fine metal particles, we conducted research with the aim of evaluating the applicability to innovative particle production technology by identifying the conditions under which liquid metals successively fragment. First, using a high-speed camera, we clarified the behavior of metal particles that split while scattering and the quantitative temperature. Then, metal fine particles were collected and investigated in detail from a microscopic viewpoint using an electron microscope. As a result, we succeeded in obtaining the diameter of metal particles and the diameter of bubbles inside. Furthermore, by combining high-speed visualization and theoretical analysis, diffusion phenomenon inside the particles and generation of bubbles inside were found being important for chain splitting, and continuous condensed phase reaction at high temperature was necessary for fine particle production.

研究分野：航空宇宙熱流体

キーワード：液体金属 微粒子 液滴 分裂 表面張力 分子拡散 高速度可視化 温度計測

1. 研究開始当初の背景

昨今、金属 3D プリントや高品位な焼結技術の産業利用が活発化する中で、材料となる金属粉末を効率的に製造する技術が強く求められている。従来は、固体金属を溶融した液体金属に対して、高速の不活性ガス気流または水噴霧を吹き付けて、微粒化した金属液滴を冷却・固化することにより、金属微粒子を製造してきた。このガス/水アトマイズ法において、個々の金属液滴は、わずか 1 回しか分裂を経験しない (図 1(a))。そのため、投入エネルギーのわずか 1% しか微粒化に寄与しないという流体力学上、不可避な制約が存在しており、微粒子製造の効率は極めて悪いという問題がある。この問題を克服できれば、将来的にニーズが高まる高品位な金属粉末を、格段に高効率に製造できる可能性を有する。

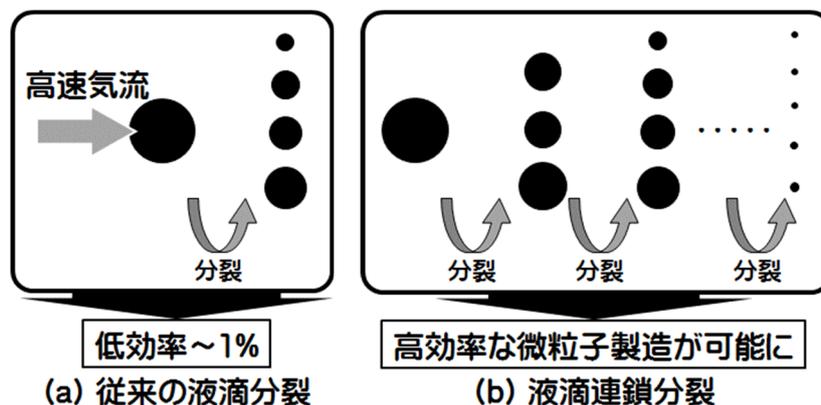


図 1 従来の分裂と連鎖分裂の違い

2. 研究の目的

応募者は、液体金属が約 10 回も自発的に分裂を繰り返す、流体力学的に新しい分裂形態である『液滴連鎖分裂』(図 1 (b)・図 2) が起こることに着目した。連鎖分裂を起こす液滴の内部では、継続的に発生したガスが気泡として成長し、液滴が弾けるように分裂を繰り返す。金属微粒子の製造技術に、この『連鎖分裂』を適用することが出来れば、従来の微粒子製造法に比べて、約 10 倍以上も効率的に微粒子を製造できる。しかし現状では、連鎖分裂を引き起こす条件が特定されていないのはもちろん、そもそも連鎖分裂が起こる根本的な機構すら明らかになっておらず、微粒子製造技術に応用するには至っていない。

そこで本研究では、『液体金属が連鎖的に分裂する条件を特定することで、革新的な微粒子製造技術への適用性を評価すること』を目的に、実験と理論の両面から研究を実施する。

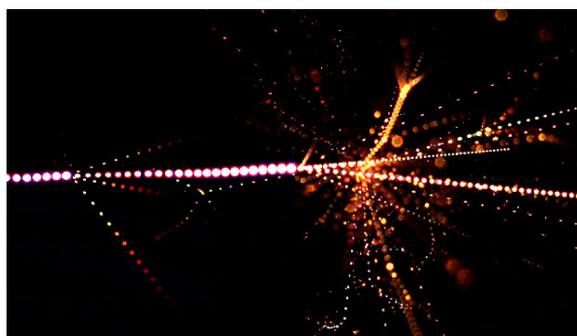


図 2 左から右に飛散する金属液滴の連鎖分裂

3. 研究の方法

上記目的を達成するために、液体金属の連鎖分裂現象に着目し、複合的な観点から分析を行う。実施場所は、応募者所属の九州大学である。以下に、研究の方法を示す。

(1) 可視化と温度計測

はじめに、連鎖分裂が起きることが確認された鉄(炭素鋼)を試料金属として、液体金属を作成する。具体的には、固体金属から液体金属への相変化、そして連鎖分裂現象という一連の過程を安定的に観察する工夫として、グラインダを用いて鉄を研磨加熱する。応募者が保有する高速度カメラ (Photron Fastcam SA-X2) を用いて、飛散した金属液滴挙動を詳しく観察することで、

連鎖的な分裂過程の詳細を明らかにする(図3)。あわせて、非接触温度計測法の一つである『二色温度法』を適用して、連鎖分裂現象が起きるときの液滴温度を詳細に計測する

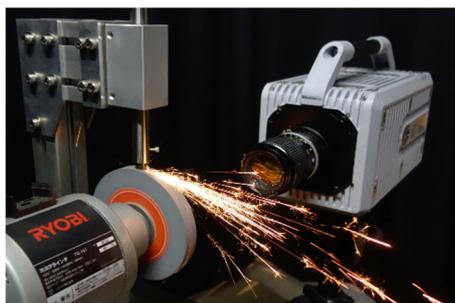


図3 高速度カメラを用いた可視化計測

(2) 電子顕微鏡観察

金属液滴の連鎖分裂を引き起こす、液滴内部のガス発生機構を明らかにする。具体的に、九州大学保有のX線分析装置付き走査型電子顕微鏡(図4 SU3500)を用いて、化学的な分析を実施し、金属微粒子径と気泡痕の径を可視化計測する。



(a) SU3500



(b) 金属粒子と気泡痕

図4 電子顕微鏡を用いたX線分析と微視観察

(3) 理論解析

高速度カメラで得られた、時々刻々の金属微粒子位置に対して、球形微粒子の運動方程式を最小二乗法でフィッティングすることで、粒子径とともに連鎖分裂開始するまでの時間を計測する。その結果、スケールと時定数の議論が可能になることで、連鎖分裂を律速する現象を理論的側面からも検討する。

4. 研究成果

(1) 金属微粒子温度と熱収支

二色温度法を用いて、質量割合1%の炭素を含む炭素鋼をグラインダで研磨し、連鎖分裂を含む温度の履歴を計測した結果を、図5に示す。金属微粒子の温度は、表面の酸化反応によって次第に上昇し、融点を上回って液滴になることを確認できる。金属液滴内部に気泡が発生し、破裂することで、小規模な破裂を繰り返した後で、大規模に破裂し、連鎖分裂に至る。気泡破裂ごとに温度が大きく変動することから、気泡発生によって液滴内部の温度が低下する可能性が示唆される。あわせて、熱収支の解析を行ったところ、炭素鋼の場合、発熱量の6割が周囲空気への熱伝達によって、残り4割が輻射によって放熱されて、熱平衡に達することが明らかになった。

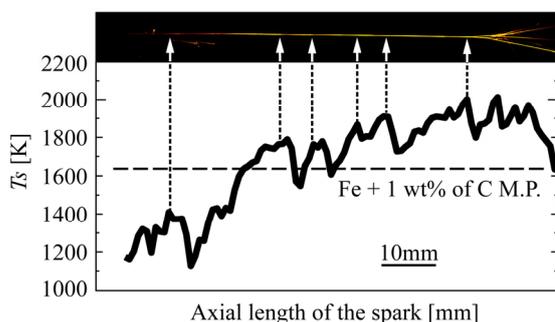


図5 炭素鋼粒子の温度履歴

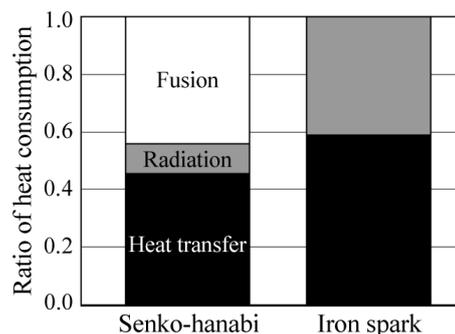


図6 火花の熱収支

<引用文献>

①Chihiro INOUE, Taiki WATANABE, and Yuzo INOKUCHI, Heat Balance of Senko-hanabi and Iron Spark, Science and Technology of Energetic Materials, 80(4), 2019, 136-141

(2) 連鎖分裂の機構検討

図 7 に、炭素鋼微粒子の自発光画像を、高速度カメラで撮影した結果を示す。得られた時々刻々の位置に対して、運動方程式を最小二乗法でフィッティングすることで粒径を算出する新たな手法を開発した。得られた代表的な粒径は $R=20\ \mu\text{m}$ であり、SEM 画像の結果と良好に一致した。同時に取得した、研磨位置から連鎖分裂開始位置 (図 7 の Bursting point) までの時間 τ と R の関係を、図 8 に示す。あわせて示した線香花火の場合と比べると、金属液滴径は約 1 桁小さいのに対して、破裂に至る時間は同程度 (10ms) であることが分かった。この結果を、線香花火の場合は熱拡散律速を仮定して、金属液滴の場合は分子拡散律速であることを仮定して、整理すると、図 9 に示す通り、両者はフーリエ数 = 1 に従うことが明らかになった。この結果から、金属液滴の連鎖分裂の律速過程は、液滴内部の酸素の分子拡散が律速過程である可能性が示唆された。ただし、その妥当性については、今後の更なる検討が必要である。



図 7 高速度カメラで撮影した飛散する金属液滴の位置 (0.5ms おきにプロット)

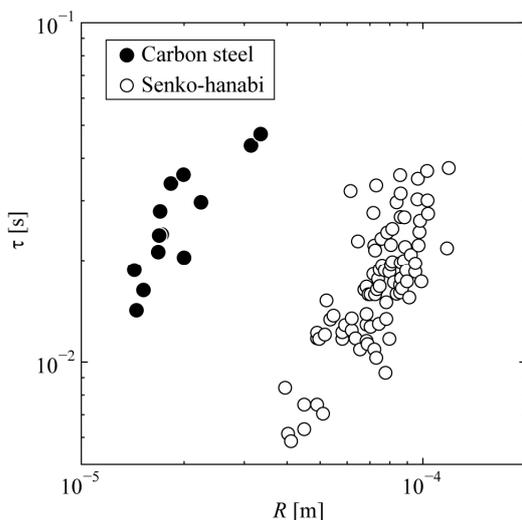


図 8 金属液滴径と破裂までの時間

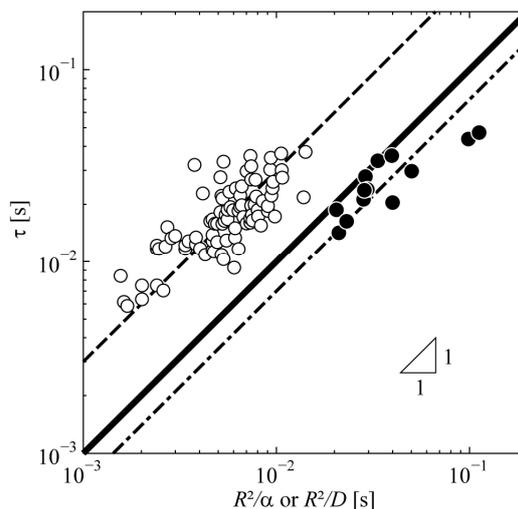


図 9 律速過程の検討

<引用文献>

②Kimura TARO and Chihiro INOUE, Analysis on unsteady thermal behavior of ground iron sparks, Science and Technology of Energetic Materials, 82(2), 2021, 50-54

③木村 太郎, 井上 智博, 炭素鋼火花の分岐機構に関する考察, 第 29 回微粒化シンポジウム, 2020

(4) 連鎖分裂発生に必要な条件

炭素鋼液滴が破裂に至る過程の概略を、図 10 に模式的に示す。まず、液滴表面から拡散してきた酸素と鉄が反応し、酸化鉄の層が次第に厚く形成される。鉄の酸化反応は、酸素の分子拡散よりはるかに速いから、酸化層の厚さは酸素の分子拡散のみで決まり、分子拡散係数を D 、研磨されてからの時刻を t として、 $\delta \sim (D \cdot t)^{0.5}$ で与えられる。続いて、酸化鉄が炭素に出会うと、例えば式(1)に従って還元されると同時に、一酸化炭素を発生して液滴が膨張し、やがて破裂に至る。傍証として、炭素を含まない純鉄火花は、内部で発泡せず、分岐も見られない。



この還元反応は吸熱過程であるから、継続的に内部で気泡発生するためには、液滴が加熱状態でなければならない。従って、連鎖分裂発生には、金属液滴を高温に保つことが必要であると考えられる。本研究で使用した炭素鋼では、表面の鉄の酸化反応によって自己加熱が実現されていた。連鎖分裂を利用した微粒製造には、内部の気泡発生プロセスの解明が重要であり、それは金属種ごとに異なると考えられることから、他の金属種における連鎖分裂機構の解明と発生条件の

特定は、今後の課題として残されている。

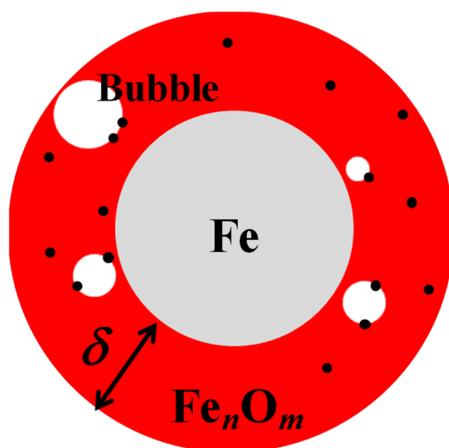


図10 金属液滴破裂プロセス

<引用文献>

④木村 太郎, 井上 智博, 金属火花の二色温度計測と電子顕微鏡観察による分裂機構の検討, 火薬学会春季発表会, 2021

以上得られた成果は、2世紀の謎として残されている、金属液滴の破裂現象の理解を進めた点において、新たな学術的知見を蓄積した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Chihiro INOUE, Ryo NISHIYAMA, Yasuhiro FUJISAKI, Toshiaki KITAGAWA	4. 巻 81
2. 論文標題 Senko-Hanabi under Various Ambient Conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science and Technology of Energetic Materials	6. 最初と最後の頁 121-127
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.34571/stem.81.5_121	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Taro KIMURA and Chihiro INOUE	4. 巻 82
2. 論文標題 Analysis on unsteady thermal behavior of ground iron sparks	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science and Technology of Energetic Materials	6. 最初と最後の頁 50-54
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.34571/stem.82.2_50	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Chihiro Inoue, Yuki Oishi, Yu Daimon, Go Fujii and Kaname Kawatsu	4. 巻 掲載確定
2. 論文標題 Direct Formulation of Bipropellant Thruster Performance for Quantitative Cold-Flow Diagnostic	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Propulsion and Power	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Chihiro Inoue, Hiroaki Yoshida, Junya Kouwa, Yuki Iwaki, Mitsunori Itoh	4. 巻 137
2. 論文標題 Measurement and modeling of planar airblast spray flux distributions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103580
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103580	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Chihiro Inoue and Ikkan Maeda	4. 巻 33
2. 論文標題 On the droplet entrainment from gas-sheared liquid film	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physics of Fluids	6. 最初と最後の頁 11705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0038399	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Chihiro INOUE, Taiki WATANABE, and Yuzo INOKUCHI	4. 巻 80
2. 論文標題 Heat Balance Characteristics of Senko-hanabi and Iron Sparks	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Science and Technology of Energetic Materials	6. 最初と最後の頁 136-141
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yuto TERAUCHI, Chihiro INOUE, Yu DAIMON and Go FUJII	4. 巻 63
2. 論文標題 Proposal of Specific Impulse Prediction Method for Bipropellant Thruster	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Trans. Japan Soc. Aero. Space Sci.	6. 最初と最後の頁 189-194
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2322/tjsass.63.189	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 井上智博	4. 巻 25
2. 論文標題 熱放射が魅せる線香花火の儂い色味	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本鉄鋼協会会報誌	6. 最初と最後の頁 196-199
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 木村 太郎, 井上 智博
2. 発表標題 金属火花の二色温度計測と電子顕微鏡観察による分裂機構の検討
3. 学会等名 火薬学会春季発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺 結起乃, 塩田 謙人, 伊里 友一郎, 井上 智博, 三宅 淳巳
2. 発表標題 速度論解析を用いた線香火花の液滴分裂機構
3. 学会等名 火薬学会春季発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Chihiro Inoue, Yuki Oishi, Yuto Terauchi, Yu Daimon, Go Fujii and Kaname Kawatsu
2. 発表標題 Direct Formulation and Quantitative Water-Flow Diagnostic for Bi-Propellant Thruster Performance
3. 学会等名 AIAA Propulsion Energy Forum (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村 太郎, 井上 智博
2. 発表標題 高速赤外線カメラと軌跡計算を援用した純鉄火花の非定常温度解析
3. 学会等名 火薬学会秋季発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺 結起乃, 伊里 友一朗, 井上 智博, 三宅 淳巳
2. 発表標題 熱分析による線香花火の気泡生成反応解析
3. 学会等名 火薬学会秋季発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村 太郎, 井上 智博
2. 発表標題 炭素鋼火花の分岐機構に関する考察
3. 学会等名 第29回微粒化シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村 太郎, 井上 智博
2. 発表標題 軌跡計算による炭素鋼火花の分裂機構の検討
3. 学会等名 火薬学会春季発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡辺 結起乃, 伊里 友一朗, 井上 智博, 三宅 淳巳
2. 発表標題 線香花火の火球表面における気泡破裂頻度解析
3. 学会等名 火薬学会春季発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井上 智博
2. 発表標題 凝縮相反応が駆動する新しい混相熱流動：液滴連鎖分裂
3. 学会等名 北九州化学工学懇話会 (KACE) 第68回講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Chihiro INOUE, Taiki WATANABE, and Yuzo INOKUCHI
2. 発表標題 Fragile Coloration Mechanism of Traditional Japanese Sparkler, Senko-Hanabi
3. 学会等名 17th International Symposium on Fireworks (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井上 智博, 渡辺 大貴, 猪口 雄三
2. 発表標題 線香花火と金属火花の温度
3. 学会等名 火薬学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井上 智博
2. 発表標題 線香花火と金属火花の二色温度計測に基づく熱収支
3. 学会等名 高速度イメージングとフォトニクスに関する総合シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木村 太郎, 井上 智博
2. 発表標題 金属火花の二色温度計測と電子顕微鏡観察による分裂機構の検討
3. 学会等名 火薬学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺 結起乃, 塩田 謙人, 伊里 友一朗, 井上 智博, 三宅 淳巳
2. 発表標題 速度論解析を用いた線香花火の液滴分裂機構
3. 学会等名 火薬学会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

九州大学大学院航空宇宙工学部門推進工学研究室 https://aero.apl-kyushu.page/

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
フランス	Aix-Marseille University			