

研究種目：若手研究（B）
研究期間：2006～2008
課題番号：18760127
研究課題名（和文）同軸噴流管による水素火炎を利用した高触媒活性サブミクロンTiO ₂ 微粒子の製造
研究課題名（英文）Formation of the submicron TiO ₂ particles with high catalytic activity using hydrogen flame through the coaxial tube
研究代表者
田之上 健一郎 (TANOUE KEN-ICHIRO)
山口大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号：70293892

研究成果の概要：

高速カメラを併用したレーザースペックル法による温度計測システムを開発し、予混合火炎まわりの拡散火炎の振動現象（フリッカリング現象について）について調べた。そのメカニズムは、①火炎と周囲ガスの密度差および速度差による Kelvin-Helmholtz の不安定による渦の発生、②渦周辺における燃焼反応の促進、③気体の膨張および加速、④渦の流下、といったプロセスを繰り返していることが示唆された。さらに、拡散炎のみの場合は、高温領域の燃焼完了時間増加することにより周期が長くなることがわかった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,300,000	0	1,300,000
2007年度	900,000	0	900,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	2,800,000	180,000	2,980,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：火炎温度分布，レーザースペックル法，反応流，微粒子生成

1. 研究開始当初の背景

酸化チタン (TiO₂) 微粒子は、高絶縁性、高屈折率、また硬い物質として知られており、一部電気抵抗剤や光学デバイスの一つとして応用¹⁾されている。また、酸化チタン微粒子は、化学的にも安定な構造を有しており、

環境汚染物質の浄化などに、光触媒能をもつ物質として、一部で利用されている。光触媒能は生成された微粒子の直径に依存することが知られており、大気中の汚染物質除去や、河川の浄化などを光触媒粒子をもちいて行うためには、粒径のそろった TiO₂ を大量に製

造出来るシステムの開発が重要である。その一つの手法として、化学火炎法が上げられる。火炎中での微粒子生成においては、反応原料の滞留時間、つまり、高温雰囲気をどれくらいの速さで通過したかによって粒子径分布が決定されることが報告されている。そのため、高温雰囲気の温度分布の定量化が重要である。

2. 研究の目的

本研究では、微粒子生成のための火炎温度計測法を確立することを目的とし、以下のことを行った。

- 1) レーザースペックル法の装置を作成し、これに、高速度カメラを追加することで火炎温度の非定常挙動を計測するシステムを開発した。
- 2) 予混合火炎まわりで生じるフリッカリング現象について、温度分布を用いて検討した。
- 3) 拡散火炎中でのフリッカリング現象をしらべ、予混合火炎の場合との比較を行った。

3. 研究の方法

図1に実験装置を示した。光源としてアルゴンイオンレーザー（波長457nm-514nm）を用い、すりガラスを介してレーザー光を散乱させ、スペックルパターンを生成させた。そのスペックルパターンを平凸レンズ（直径

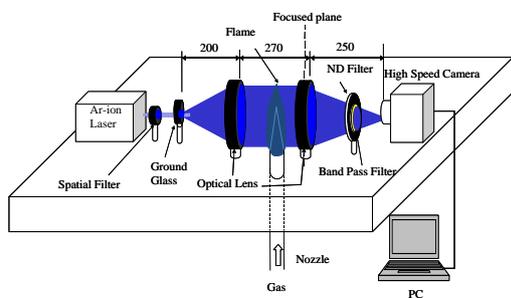


図1 レーザースペックル法を用いた温度測定装置の概略図

60mm, 焦点距離200mm)によりコリメートし、テストセクションを通過させた。その通過したスペックルパターンを平凸レンズ(直径60mm, 焦点距離200mm)により集光させ、そのスペックルパターンを高速度カメラ(1024×1024pixels, 500fps)で撮影した。また、すりガラスの前にスペーシャルフィルタを設置し、レーザー光のノイズを抑えた。さらに、高速カメラの前にバンドパスフィルタを設置し、輝炎の影響を極力抑えた。図2にスペックルパターンの撮影例を示す。a)は室温におけるスペックルパターン、b)は火炎を通過したスペックルパターンである。この両者の画像でスペックルパターンの変位量をPIV法によって測定した。c)は変位量分布を示す。この移動距離から屈折角 α (rad)を算出した。Fermatの原理を用いて屈折角 α と屈折率 $n(r)$ の関係は、

$$\frac{n(r)}{n_0} = 1 - \frac{1}{\pi} \int_r^\infty \frac{\alpha(y)}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad (1)$$

となる。 n_0 は室温での空気の屈折率である。また、理想気体条件下ではガスの屈折率 $n(r)$ はGladstone-Daleの方程式より次式のように表される。

$$n(r) = 1 + K\rho = 1 + K \frac{MP}{R_0T} \quad (2)$$

ここで、 $K(\text{m}^3/\text{kg})$ はGladstone-Dale定数であ

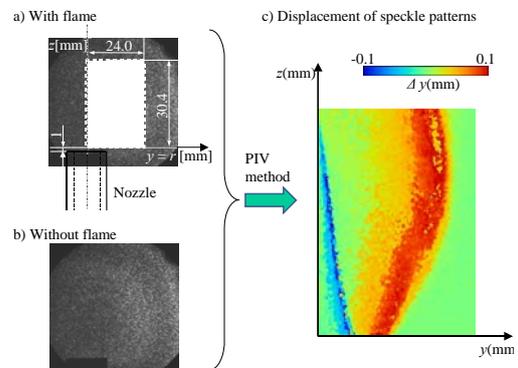


図2 スペックルパターンの撮影例(a,b)およびスペックル移動距離(c)

る. 式(1),(2)より, 位置 r における温度分布は次式となる.

$$\frac{T(r)}{T_0} = \left[\left(\frac{n(r)}{n_0} - 1 \right) \left(\frac{R_0 T_0}{MKP_0} + 1 \right) + 1 \right]^{-1} \quad (3)$$

ここで, T_0 : 室温(K), P_0 : 標準大気圧(Pa), M : 分子量(kg/mol), R_0 : 一般ガス定数(J/mol・K)である. なお, 火炎は, メタンガスと空気の予混合火炎またはメタンガスのみの拡散火炎とした. 実験は, ガスの供給流量および供給管の直径を変化させ, 火炎のフリッカリングがどのように変化するかを調べた. また, スペックルパターンの撮影時間は1秒間とした. 別途, 高速カメラを用いて, 火炎を撮影し, 火炎高さを決定した.

4. 研究成果

① 火炎の振動周期

図3に Q_{CH_4} (メタン流量) = 1.2 l/min, Q_{Air} (空気流量) = 12.0 l/min, d (供給管直径) = 12mm のときの結果を示す. a)は, 左側が火炎の写真であり, 青白い予混合火炎を覆うように拡散炎が形成されている様子がわかる. 右側は温度分布である. この時刻では, 火炎の基部付近の拡散炎中に高温領域が形成されていることがわかる. 火炎温度の振幅の様子を調べたものが図3b, cである. 図3bは, 拡散火炎の縁がどのように振動しているかを示したものである. これをみると, 下流にいくほど激しく振動していることがわかる. また, 予混合火炎周りの拡散火炎は, どの高さ位置でも同じ周期を持ち, 連動して動いていることがわかった. 図cは, 図a中の point ① (管直径の2倍の半敬位置), ② (管直径の1.5倍の半敬位置) における火炎温度の経時変化を示す. これより, どちらの位置に置いても周期的に振動していることがわかった. ただし, ポイント②では, 高温領域の通

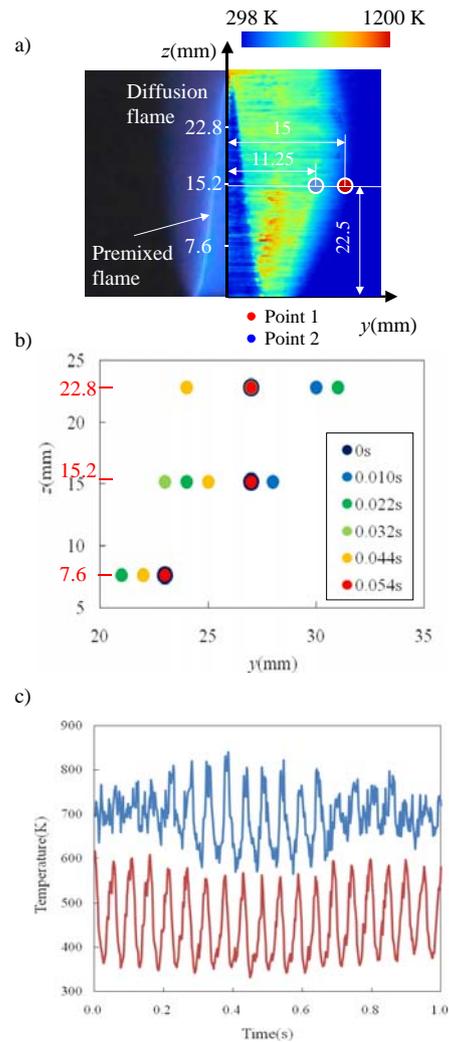


図3 $Q_{CH_4} = 1.2$ l/min, $Q_{Air} = 12.0$ l/min, $d = 12$ mm における a)可視化結果および温度分布測定結果, b)火炎の振幅の様子, c) 火炎温度の時間変化

過に伴う温度の振幅の変化が検出されている. 本研究では, ポイント①における温度変化から振動周期を求めた.

なお, 図3aにおいて予混合火炎面温度 (約 2000K) については, 検出できなかった. 一般に, 予混合火炎面の厚さは, 数 10 μ m から約 200 μ m とされている. 今回のスペックル画像の解像度は, 50 μ m/pixel であった. 今後, 予混合火炎面の温度計測について, 高解像度の画像を用いて行う予定である. 本報告では, 予混合火炎周りのフリッカリング現象

が生じるときの温度分布の変化について検討することにした。

図4に、燃料リチャードソン数 Ri に対するストローハル数 St の変化を示した。それぞれ、次式で表される。

$$Ri_f = \frac{\sqrt{2g'h}}{u_f} \quad (3)$$

$$St = \frac{fd}{u_f} \quad (4)$$

ここで、 $g' = (\rho_a - \rho_g) / \rho_a g$, $h = (h_H + h_L) / 2$ である。また、 ρ_a : 300K における周囲空気の密度 (kg/m^3), ρ_g : 理論断熱火炎温度におけるメタンの密度 (kg/m^3), h_H : 火炎高さの最高値 (m), h_L : 火炎高さの最低値 (m), u_f : 混合ガスの断面平均流速 (m/s), d : 供給管直径 (m), f : 火炎の振動数 (Hz) である。

図より、管直径を変化させても、燃料等量比を変化させても1本の相関線上にあることがわかった。このことは、加藤らが示した拡散火炎の場合の結果と定性的に一致することがわかった。

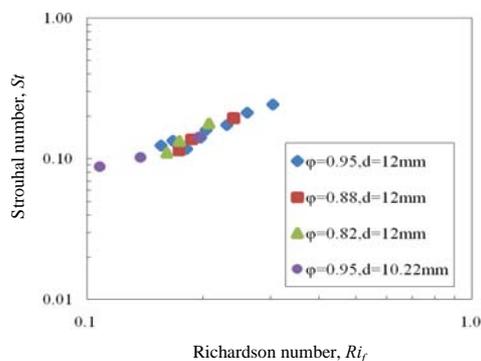


図4 振動予混合火炎に対する燃料リチャードソン数とストローハル数との相関

② 火炎の温度分布の時系列変化

図5に Q_{CH_4} (メタン流量) = 1.2 l/min, Q_{Air} = 12.0 l/min, $d=12\text{mm}$ のときの温度分布の時系列データを示す。0s と 0.05s ではその形

状が、ほぼ一致していることから、周期的に振動していることが分かる。このように、火炎が振動する原因として、既燃ガスは高温で密度が低いため、浮力により加速される。加速された既燃ガスの流れと周囲空気の速度が異なるため、Kelvin-Helmholtz の不安定により渦が形成される。ノズル出口付近に形成された渦により酸素が供給され、燃焼反応が促進される。燃焼反応が促進されたことにより、温度が上がり、気体が膨張する。渦は、自然対流により下流に運ばれ、それとともに、膨張部も移動する。このように、気体の膨張、膨張部の移動を繰り返すため、振動が起こると考えられる。

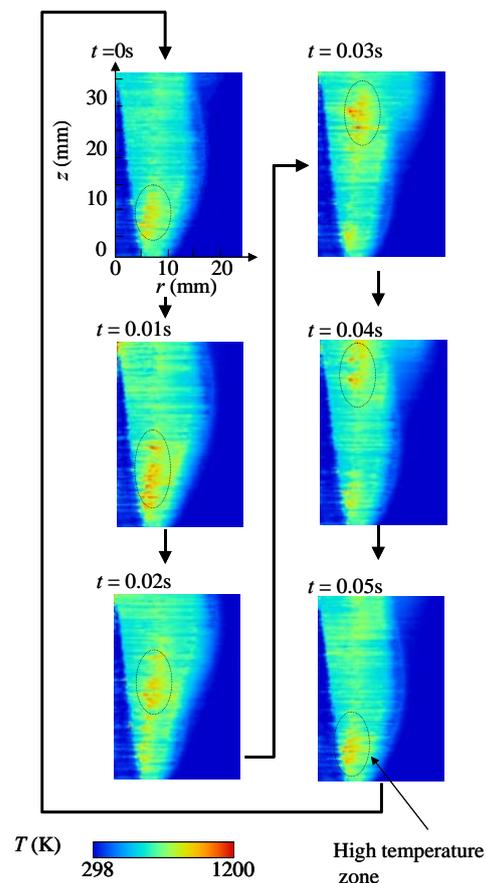


図5 予混合火炎温度分布の時系列データ ($Q_{CH_4} = 1.2 \text{ l/min}$, $Q_{Air} = 12.0 \text{ l/min}$, $d=12\text{mm}$)

次に、火炎の種類が変化した場合の温度分布の変化について調べた。図6に Q_{CH_4} (メタン流量) = 1.2 l/min ($u=0.76$ m/s), $d=12$ mm のときの拡散火炎温度分布の時系列データを示す。この場合、予混合火炎と異なり、火炎面に該当する高温領域が z 方向に広い範囲で形成されている。詳しく見ると、この高温領域でも最大温度となる位置が時々刻々変化している。そのため、予混合火炎まわりの拡散炎と同様に、周囲空気との混合により燃焼が促進されたものと考えられる。このときの火炎面の縁の部位 (ポイント①, 直径の2倍における半径位置) における温度の時間変化を図7に示した。なお、図中には、総ガス流速が同程度 ($u=0.80$ m/s) の予混合火炎の結果も示してある。これをみると、拡散炎の方が高温となっている。これは、拡散火炎の場合は、ポイント①付近までまだ十分な濃度のメタンが存在するのに対し、予混合火炎まわりの拡散炎の場合は、予混合炎で燃焼することが出来なかった低濃度のメタンの燃焼が生じるためである。また、周期は、拡散炎の方が長くなる。これは、高温領域におけるメタン濃度が拡散炎の方が高くなるため、それによって燃焼反応が完了するまでに時間が掛かるためと考えられる。

③今後の展望

本実験で計測した火炎の振動現象はフリッカリングと呼ばれ、フォトダイオードや可視化写真から検討された例はあるが、本実験の用に温度分布を用いた検討例は見あたらない。特に微粒子生成の場合、条件によっては、フリッカリングが生じている場合も考えられ、時空間的に火炎温度が変化し、そのことによって粒子径分布が変動することが予想される。また、このレーザースペックル法は、熱電対法と異なり、粒子生成空間を乱すこと

なく、温度計測が可能である。今後は、火炎中で微粒子を生成し、そのサイズの分布と温度分布との相関を調べていく予定である。

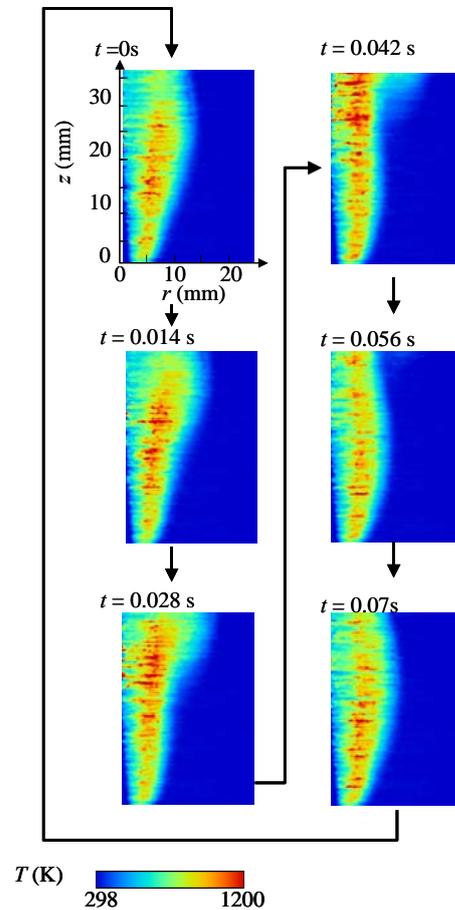


図6 拡散火炎温度分布の時系列データ ($Q_{CH_4}=0.4$ l/min, $d=3.35$ mm)

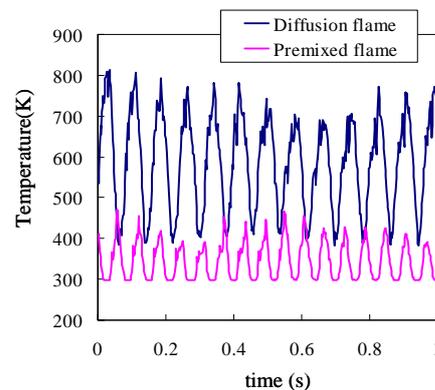


図7 火炎温度の時間変化 (拡散火炎: $Q_{CH_4}=0.4$ l/min, $d=3.35$ mm, 予混合火炎: $Q_{CH_4}=1.2$ l/min, $Q_{Air}=12.0$ l/min, $d=12$ mm)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① K. Tanoue, Y. Ogura, M. Takayanagi and T. Nishimura, Measurement of Temperature Distribution for the Flickering Phenomenon around the Premixed Flame by using Laser Speckle Method, J. Visual., 印刷中, 査読有り

[学会発表] (計 4 件)

- ① 織田 将史, 小倉 佑斗, 田之上 健一郎, 西村 龍夫, 高速レーザースペックル法による振動する火炎の温度分布測定, 機械学会中国四国学生会第 40 回学生員卒業研究発表講演会, 2010 年 3 月 5 日, 広島
- ② K. Tanoue, M. Takayanagi, Y. Ogura, T. Nishimura, Measurement of Temperature Distribution Over 2000°C in Premixed Flame by Using Laser Speckle Method, AIChE Annual Meeting 2009, 2009 年 11 月 9 日, Nashville
- ③ 小倉佑斗, 田之上健一郎, 高柳 誠, 西村龍夫, 振動予混合火炎の温度分布測定に関する研究, 熱工学コンファレンス 2009, 2009 年 11 月 8 日, 宇部
- ④ 高柳 誠, 田之上健一郎, 西村龍夫, 小倉佑斗, レーザースペックル法を用いた TiO₂ 微粒子の燃焼反応器における温度計測, 熱工学コンファレンス 2007, 2007 年 11 月 24 日, 京都

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://energy.mech.yamaguchi-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田之上健一郎 (TANOUE KEN-ICHIRO)

山口大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号 : 70293892

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし