

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 20 日現在

機関番号：33910

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K04246

研究課題名（和文）低ペクレ数場を利用した火炎合成基盤の創成

研究課題名（英文）Foundation of flame synthesis platform based on low Peclet number field

研究代表者

平沢 太郎（Hirasawa, Taro）

中部大学・工学部・教授

研究者番号：30350987

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：通常のバーナで形成される火炎に比べ対流の影響が小さく、分子拡散や熱拡散の効果が大きい低ペクレ数場の火炎合成は、微小拡散火炎群中に反応物粒子を酸化剤気流に乗せて供給することによって実現される。本研究では、粒子の加熱時間と加熱温度、加熱雰囲気の変化するメカニズムとその制御方法について、実験および数値解析により検討を加えた。その成果の一例では、高温で長時間加熱し、熔融や反応を促進するには、酸化剤の酸素濃度を増加させ、酸化剤流量を低減し、燃料流量を増加させ、発熱量や火炎温度の高い燃料を用いることなどで可能となることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

予混合火炎を用いた従来の火炎合成では、加熱温度と加熱時間、加熱雰囲気を独立して制御することは困難で、制御範囲も狭いなどの大きな制約がある。微小拡散火炎群中に反応物粒子を酸化剤気流に乗せて供給する本研究の低ペクレ数場の火炎合成では、その制約から解かれ、高温短時間、高温長時間、低温長時間の加熱など制御と、その制御範囲を広げて酸化・還元反応や、融解をより進展させることが可能となり、火炎合成による材料合成の発展性を見いだすことができた。また学術的には、低ペクレ数場において、移流と拡散の効果が火炎面の形成にどのように現れるかについて明らかにし、低ペクレ数燃焼反応場の理解の進展に寄与した。

研究成果の概要（英文）：Flame synthesis in a low Peclet number field, in which the effect of convection is more minor and the effect of molecular and thermal diffusion is more significant than in flames established by ordinary burners, is achieved by supplying an oxidizer flow with reactant particles to clustered diffusion microflames. In this study, the mechanism of the change in the heating time, the heating temperature, and the heating atmosphere of the particles and its control method were investigated experimentally and numerically. The results show that higher temperatures and longer heating times, as well as further progress of melting and reaction, can be achieved by increasing the oxygen concentration in the oxidizer, reducing the oxidizer flow rate, increasing the fuel flow rate, and using fuel with a higher heating value and flame temperature.

研究分野：燃焼工学

キーワード：粒子の加熱時間の制御方法 粒子の加熱温度の制御方法 粒子の加熱雰囲気の制御方法 移流と拡散の効果

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

火炎内に金属・無機材料微粒子を導入することで材料合成を行う「火炎合成」は、短時間(ミリ秒オーダー)で高温(1000°C以上)に加熱することが可能で、乾燥、熱分解、熔融、蒸発、固相反応、焼成等々、様々なプロセスを1ステップでできるという利点がある。その一方で、従来の火炎合成で一般的な予混合火炎を用いた火炎合成では、加熱温度と加熱時間、加熱雰囲気を独立して制御することは困難で、制御範囲も狭いなどの大きな制約がある。その制約により、火炎合成の発展性、材料合成の可能性が十分に見いだされていない。このような状況を打開するため、低ペクレ数場を利用した火炎合成を創成する研究提案に至った。

## 2. 研究の目的

マイクロバーナにより形成される微小拡散火炎では、通常のバーナで形成される火炎に比べ対流の影響が小さく、分子拡散や熱拡散の効果が大きい。このような反応場を無次元数を用いて「低ペクレ数場」と定義することができる。低ペクレ数場の火炎合成は、微小拡散火炎群中に反応物を酸化剤気流に乗せて供給することによって実現される。この方法により、本提案研究では、低ペクレ数場の燃焼反応場の理解を深めながら、「低ペクレ数場がもたらす火炎合成」という新たな材料合成手法の基盤を創成することを目的とする。具体的には、燃料や酸化剤の種類や噴出流量により、反応物の加熱温度と加熱時間、加熱雰囲気が変化するメカニズムについて検討を加え、その制御方法を提案する。加えて、本提案手法によって合成した材料の評価より、低ペクレ数場の火炎合成の効果の一例を示す。

## 3. 研究の方法

本研究では、図1示すノズル構成をもつバーナにより、融合した微小拡散火炎を形成し、中央の酸化剤ノズルから、反応物の粒子を酸化剤気流に乗せて噴出させ、微小拡散火炎群中に導入する。各ガス流量はマスフローコントローラによって制御される。中心軸上の速度分布は、粒子画像流速測定法(PIV)により測定し、ガス濃度分布は、サンプリングプローブにより中心軸上のガスを採取し、マイクロガスクロマトグラフにより分析を行った。ガス濃度分布や温度分布に関しては、OpenFOAM V2012に、化学反応、浮力を考慮した密度ベースの燃焼用ソルバーであるrhoReactingBuoyantFoamを適用した数値解析によっても検討を加えた。

火炎合成後の粒子については、走査型電子顕微鏡(SEM)やX線回折法(XRD)を用いて分析評価を行った。

## 4. 研究成果

本研究では、微小拡散火炎群中に反応物粒子を酸化剤気流に乗せて供給する低ペクレ数場の火炎合成において、粒子の(1)加熱時間と(2)加熱温度、(3)加熱雰囲気が変化するメカニズムとその制御方法について、実験および数値解析により検討を加えた。その検討より得られた知見を各項目別に以下に総括する。

### (1) 粒子の加熱時間の増減について

① (酸化剤流量の効果) 中央のノズルから噴出する酸化剤流量を下げることで、高温領域の滞留時間(加熱時間)を延ばすことができることが明らかとなった。図2に酸化剤(空気)の速度分布を計測し、その結果より、各高さに到達するまでにかかる経過時間を算出した結果を示す。経過時間は高さにより異なるが、最高温度付近となる高さ6mmに到達するまでの時間は、空気流量を70 cm<sup>3</sup>/minから45 cm<sup>3</sup>/minに低下させたことで、倍増することがわかる。

② (燃料流量の効果) 周囲のノズルから噴出する燃料流量を増加させることで、高温領域が拡大され、その結果加熱時間が延長されることが明らかとなった。図3に、数値解析により得られた、空気流量および燃料流量を変化させた際の中心軸上の温度分布等の結果を示す。同じ空気流

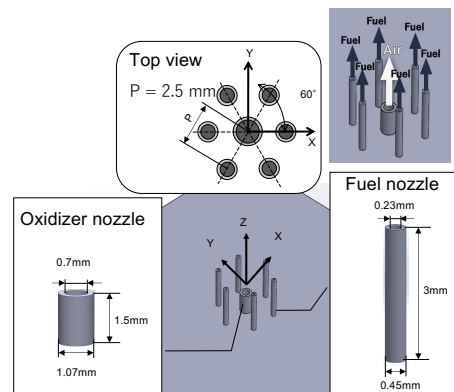


図1 微小拡散火炎群を形成するバーナのノズル構成

量において、燃料流量の増加により、高温領域が拡大されていること、すなわち加熱時間が延びることがわかる。また、図 4(b) (c) に示されるように、燃料流量の多い(c)の方が合成された球状の粒子の大きさが大きいことがわかる。これは燃料流量の増加により、融解した粒子の凝集が進んだことを示しており、加熱時間が延長された効果を示している。

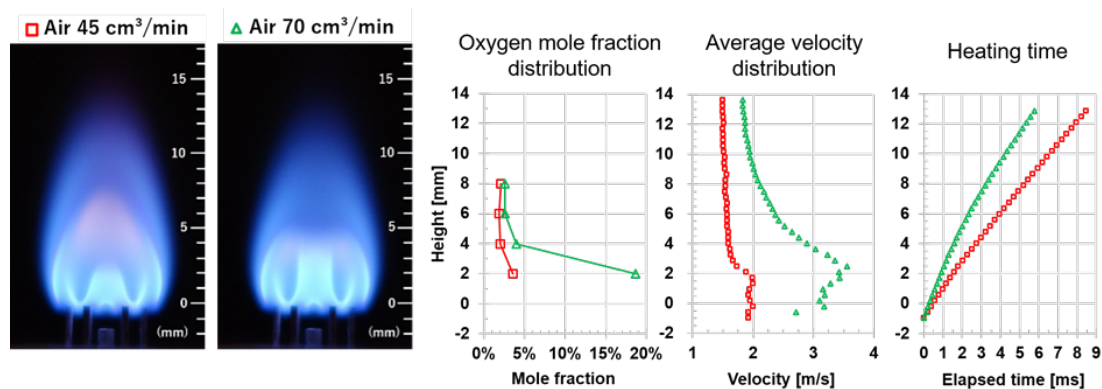


図 2 空気流量増減の効果 (メタン: 75 cm<sup>3</sup>/min)

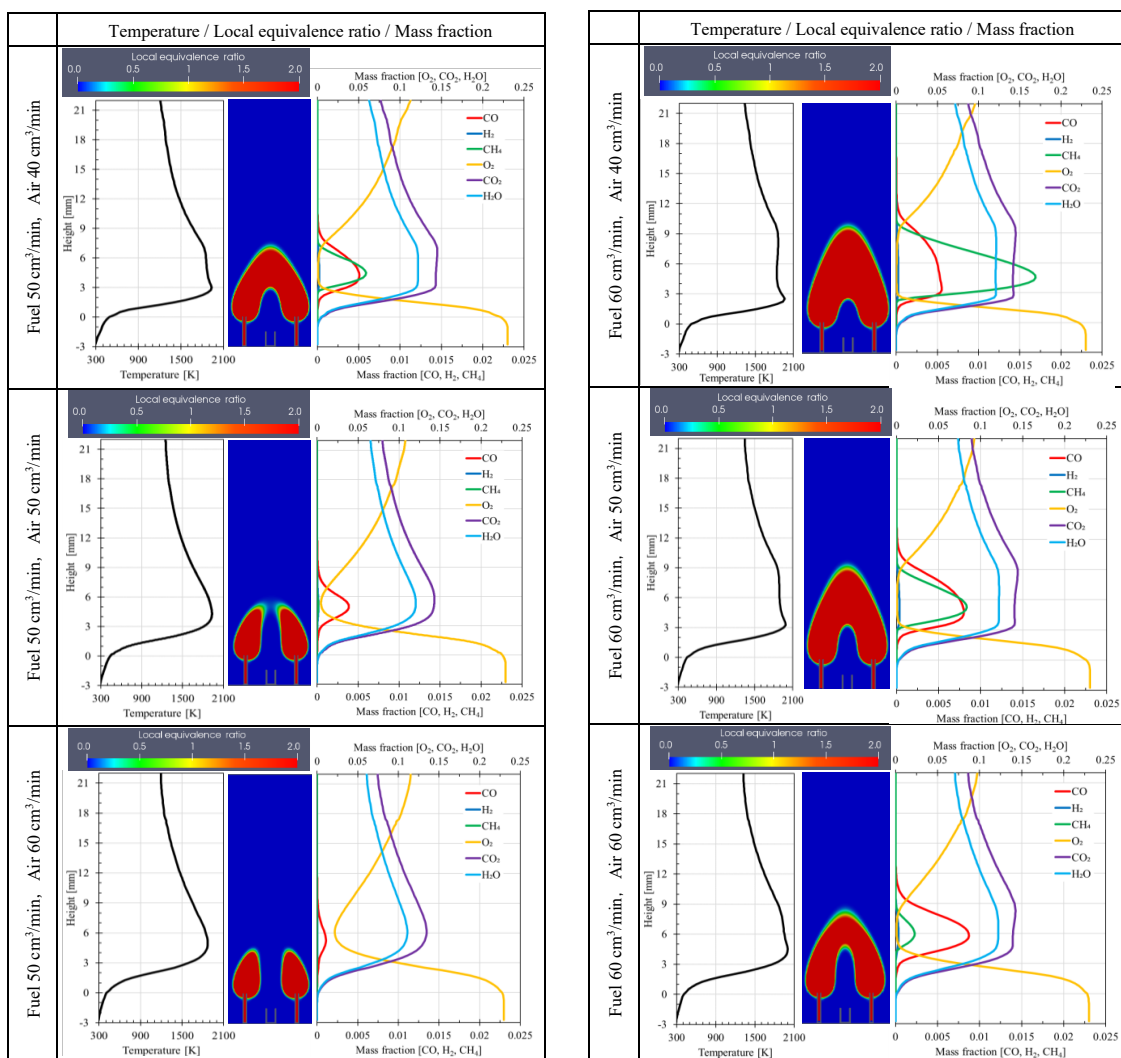


図 3 空気流量および燃料 (メタン) 流量の増減の効果 (数値解析結果)

(2) 粒子の加熱温度の変化について

①メタンからジメチルエーテル(DME)に変更するなど、発熱量や火炎温度の高い燃料への変更によって、粒子の加熱温度を上昇させられることが明らかとなった。図 4(a) にメタン燃料を用い

た低次酸化チタンの火炎合成の結果、図 4(c)に DME 燃料を用いた結果を示す。DME では粒子が加熱により融解して球状になっているが、メタンでは球状になっておらず、融解した様子が見られない。断熱火炎温度が高く、単位体積当たりの発熱量の多い燃料の方が、粒子をより高温に加熱できたことがわかる。

②中心軸上の最高温度は、燃料流量の増加により上昇させられることが明らかとなった。図 3 に示すように燃料流量 50 cm<sup>3</sup>/min(左側)と 60 cm<sup>3</sup>/min(右側)を比べてみると、いずれの空気流量においても、燃料流量が多い方が、最高温度が上昇していることがわかる。

③粒子の加熱温度は、酸化剤噴流中の酸素濃度の増加によって上昇させられることが明らかとなった。図 5 に窒化タンタル粒子を導入して火炎合成した結果の SEM 画像を示す。図 5(2)より、酸化剤に空気を用いた火炎合成では、窒化タンタルの酸化や融解がほとんど生じていないことがわかる。図 5(3)より、酸素濃度を増加させたことで、酸化剤流量を減少させ加熱時間を延ばした効果と相まって、酸化反応が進み、融解温度(2145K(Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>))に達して融解が進んだことを示している。

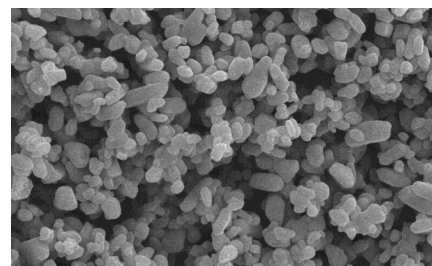
### (3) 粒子の加熱雰囲気の変化について

①外側の融合した拡散火炎面の内側に逆拡散火炎となる火炎面が形成される。図 3 に示された数値解析結果からもわかるように、この内側の火炎面先端が閉じているとき、内側の火炎面先端から外側の拡散火炎面の間は、CO 濃度、H<sub>2</sub> 濃度が高くまた温度も高温となることが明らかとなった。このため、高温の還元雰囲気により酸化チタンなどの酸化粒子の還元が可能であり、加熱温度がより高温となる DME の方がメタンよりも還元が進むこともわかった。

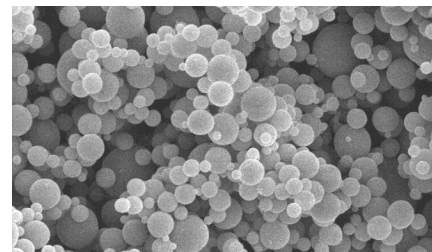
②中央のノズルからの噴出される酸化剤気流中の酸素濃度の増加は、粒子が通過する酸素存在領域の最大酸素濃度を増加させるが、中心軸方向への広がりには少ない。図 6 に示された酸素濃度分布の測定結果より、酸化剤中の酸素濃度の増加は、最大酸素濃度を増加させていることがわかる。図 6 の火炎面写真より、酸素存在領域は、半径方向に顕著に広がるものの、中心軸方向への広がりには少ないことがわかる。

③中央のノズルからの噴出される酸化剤流量の増加は、火炎内を通過する際の酸素濃度の低下を抑制することが明らかとなった。図 2 より、酸化剤流量が多い方が、中心軸上の低い位置において、酸素濃度の低下が抑制されていることがわかる。

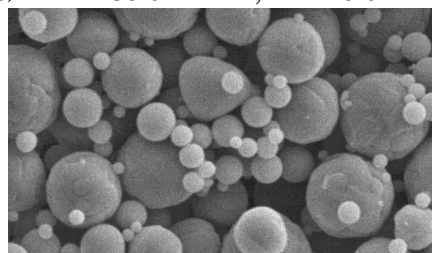
④酸化剤気流中の酸素濃度の増加により酸化がより進むことが明らかとなった。前述のように、図 5(3)より、酸素濃度を増加させ、酸化剤流量を減少させると、酸化反応が進むことがわかる。



(a) メタン: 55 cm<sup>3</sup>/min, Air 45 cm<sup>3</sup>/min



(b) DME: 35 cm<sup>3</sup>/min, Air: 45 cm<sup>3</sup>/min



(c) DME: 55 cm<sup>3</sup>/min, Air 45 cm<sup>3</sup>/min

図 4 低次酸化チタンの火炎合成における燃料種と燃料流量の効果

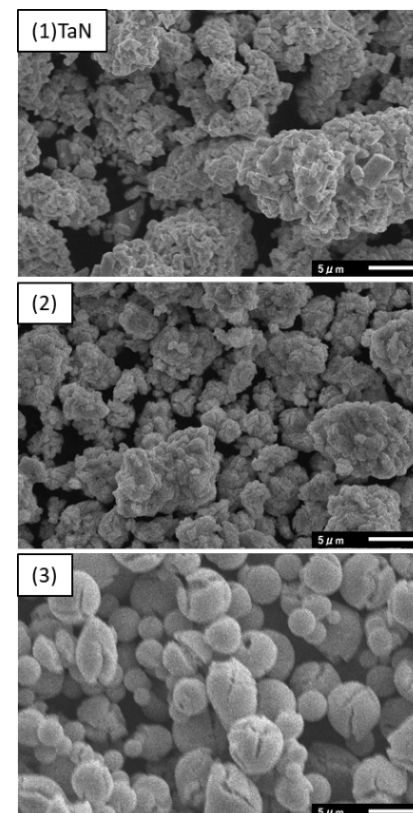


図 5 (1)窒化タンタル粒子, (2)酸化剤: 空気 60cm<sup>3</sup>/min, (3)酸化剤:40%酸素・窒素混合気:45 cm<sup>3</sup>/min, メタン:75cm<sup>3</sup>/min にて合成後の粒子

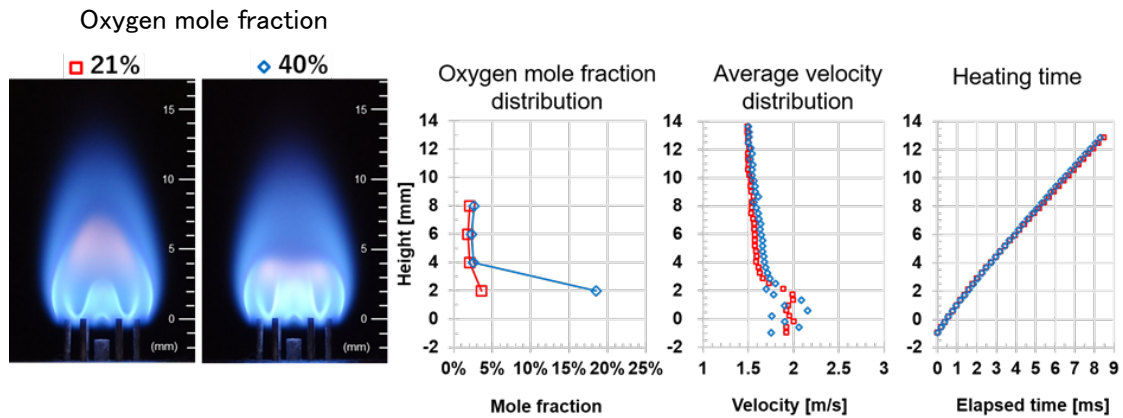


図 6 酸化剤流中の酸素濃度増減の効果 (メタン : 75 cm<sup>3</sup>/min, 酸化剤 : 45 cm<sup>3</sup>/min)

#### (4) インパクトと今後の展望

本研究成果で得られた粒子の加熱制御方法に基づき、中心軸に沿って導入された材料粒子をより高温に加熱する方法が明らかとなった。この粒子加熱の高温化は、酸化チタンなどの高融点の材料を溶融させることができ、球状の粒子を形成することができることわかった。その後、高融点の材料を気流中で溶融させることは、粒子を球状化させることのみならず、融解した粒子を壁面に衝突させることにより、立体的に積層できることが発見された。本研究で得られた粒子の加熱制御方法により、金属・無機材料の積層造形という新しい造形法に関する研究プロジェクトの提案につながった。このような金属・無機材料の積層方法は、国内外において他に類を見ないものであり、火炎による合成と共に、任意の形状に積層し造形する技術の創成を展望するものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 平沢 太郎	4. 巻 63
2. 論文標題 火炎噴霧合成における融合した微小拡散火炎の適用	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本燃焼学会誌	6. 最初と最後の頁 210～218
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.20619/jcombsj.63.205_210	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 -

1. 著者名 平沢 太郎	4. 巻 36
2. 論文標題 微小拡散火炎群による低ペクレ数火炎合成反応場の特性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 エアロゾル研究	6. 最初と最後の頁 176～182
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11203/jar.36.176	査読の有無 有
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6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 秦陸人, 平沢太郎
2. 発表標題 数値解析を用いた融合した 6 つのメタン微小拡散火炎の火炎構造の検討
3. 学会等名 第60回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 水谷亮太, 平沢太郎
2. 発表標題 融合した 6 つのメタン微小拡散火炎中に噴出させた酸化剤流条件がガス組成に与える効果
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水谷亮太, 平沢太郎
2. 発表標題 融合した6つのメタン微小拡散火炎中に噴出させる酸化剤流条件が粒子の加熱時間に与える効果
3. 学会等名 第59回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水谷 亮太, 平沢 太郎
2. 発表標題 融合した6つのメタン微小拡散火炎の火炎形状および火炎合成に対する酸化剤噴流の効果
3. 学会等名 第58回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuta Uchida, Harumi Kondo, Taro Hirasawa, Yojiro Ishino, Zhaojin Diao, Michael Winter, Kozo Saito
2. 発表標題 Three-Dimensional Measurement on Thermal Structure of Six Clustered Methane-Air Diffusion Microflames
3. 学会等名 The 2nd Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 内田裕太, 平沢太郎, 加藤圭一
2. 発表標題 微小拡散火炎群による火炎合成に及ぼす燃料種の影響 -DMEおよびメタン-
3. 学会等名 第57回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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		
米国	University of Kentucky		