

令和 6 年 4 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18771

研究課題名（和文）高速温度計測とInfi-TOFの複合分析による金属液滴連鎖分裂の凝縮相反応流解析

研究課題名（英文）Analysis of condensed phase reaction in successive fragmentation of metal droplets by high-speed temperature measurement and Infi-TOF

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） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：従来の流体力学の知見では、個々の液滴は1回しか分裂しない。対して近年、高温の金属液滴の内部で凝縮相反応に駆動されて発泡し、液滴が連鎖的に分裂を繰り返す、連鎖分裂現象が発見された。しかし現状、なぜ連鎖分裂が発生するのか、という根本的な疑問が未解明であった。そこで本研究では、二色温度法を適用した高速温度計測と、発生ガス種のその場分析を同期した複合分析法を用いて、金属液滴の連鎖分裂機構を探究した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

通常、液体や固体に外力を加えると分裂するが、その回数は1回程度に限られる。対して、炭素鋼やチタンなどの金属液滴は、繰り返し分裂することが知られているものの、その流体力学的機構は未解明であった。本研究は、物理的・科学的実験を通して、金属液滴の連鎖分裂が、雰囲気からの物質拡散によって律速されることを実験と理論から明らかにした。連鎖分裂は、高効率に微小液滴および粉末を製造できることから、近年需要が高まっている金属微粒子製造技術への応用が期待され、本研究によって、その原理的な成立性を実証した。

研究成果の概要（英文）：According to conventional knowledge of fluid engineering, each droplet splits only once. In contrast, a successive fragmentation phenomenon has recently been discovered in which a condensed phase reaction inside a melt droplet produces an internal inflating bubble, causing the droplet to break up to ten times. However, the fundamental question of why the successive cascade occurs remains unanswered. In this study, the mechanism of metal droplets was investigated using a combined analysis method that synchronizes high-speed temperature measurement using the two-color temperature method and in-situ analysis of the gas species generated.

研究分野：流体力学・熱工学

キーワード：金属液滴 液滴 連鎖分裂 熱物質拡散 表面張力 高速度可視化 数値モデル 凝縮相

1 . 研究開始当初の背景

近年、医療や輸送機器、発電分野における高付加価値部品の製造に、金属積層造形が活用される。こうした次世代ものづくり技術を支える金属粉末の市場規模は、2030 年までの今後 10 年間で約 50 倍に急成長すると見込まれる。しかし、現状の金属粉末製造方法はエネルギー効率が著しく低い。そこで、粉末製造プロセスに着目した流体力学的な知見を新たに獲得することで、高効率な金属粉末製造技術を実現することが期待されている。

現在、金属粉末は、溶融した液体金属に高速の窒素気流を吹き付けて分裂(微粒化)させ、冷却・固化する『ガスアトマイズ法』を用いて製造することが多い。従来の流体力学の知見では、液体の分裂は分裂後の液滴が安定化するように現象が進行するため、個々の液滴はわずか 1 回しか分裂を経験しない。その結果、投入エネルギーに対する表面エネルギーの増加率として定義される微粒化の効率は 1%にも満たない。

対して近年、線香花火の火花が何度も枝分かれする事実から、高温の溶融塩からなる非金属液滴が、自発的に最大 10 回の分裂を繰り返す『連鎖分裂』という新現象の存在が研究代表者らによって発見・報告された(Inoue, C., Phys. Rev. Lett, 2017)。連鎖分裂を起こす液滴の内部では、継続的に気泡が発生・膨張し、液滴が破裂的な分裂を繰り返す結果、従来の液体分裂と比較して 1 桁以上もエネルギー変換効率が高いという優れた特徴を有する。

これまでの代表者らの研究により、表面酸化反応によって液滴が加熱されるプロセス、すなわち液滴の熱拡散が連鎖分裂現象の律速過程であることが示された。その後、炭素鋼やマグネシウム、チタン合金の金属火花分岐の正体が、金属液滴の連鎖分裂であることが明らかになってきた。ところが、液体金属の熱拡散率は、非金属液滴より 100 倍も大きいことから、極めて速い金属液滴内部の熱拡散は、金属液滴の連鎖分裂の律速になり得ず、「未知の機構に律速された新・連鎖分裂現象の存在」が予想される。

2 . 研究の目的

そこで本研究は、流体力学の歴史上、新しい分裂形態である連鎖分裂現象において、特に金属液滴の連鎖分裂がなぜ起こるのか？という根本的な問いに答えることに挑戦する。

本研究の目的は、『金属液滴の連鎖分裂機構を物理的・化学的な実験から解明し、現象を記述する数理モデルを開発すること』である。具体的に、以下の一連のカスケードを段階的に明らかにする。

金属液滴の表面から、物質拡散によって雰囲気中の酸素が内部に貫入し、

金属液滴内部で酸素が介在した凝縮相反応(例えば炭素による酸化鉄の還元反応による一酸化炭素発生)によって気泡が発生・膨張し、

金属液滴を破裂させ、表面張力によって液滴が分裂する、

そして、これらの過程を、スケールを小さくしながら自己相似的に繰り返す。

以上のステップを接続することで、最終的に、既往の流体力学で知られていなかった、『物質拡散に律速された新しい連鎖分裂現象』の存在を明らかにする。

3 . 研究の方法

目的を達成するための実験的なアプローチとして、詳細な可視化事例が乏しい金属液滴の連鎖分裂過程の全体像を、時間・空間的に解像して可視化計測する。安全かつ安定的に金属液滴を生成する工夫として、供試金属(炭素鋼・ニッケル合金・チタン合金)を、グラインダーで研磨する(図 1)。約 10m/s で飛行する金属液滴の直径は約 10 μm で、分裂に要する特性時間は約 0.1ms である。この微細・高速現象を可視化するために、高速度カメラ(Photron SA-X2)を用いて、一連の非定常現象を拡大撮影する。さらに、二色温度法を適用することで、液滴の温度変化まで含めて定量化する。そして、機構の直接的解明に向けて、ToF(Time of Flight)による MS(質量分析)を適用することで、液滴破裂時に発生するガス種の検知を試みる。最終的に、現象を詳細に理解するために理論的な数理モデルを開発する。

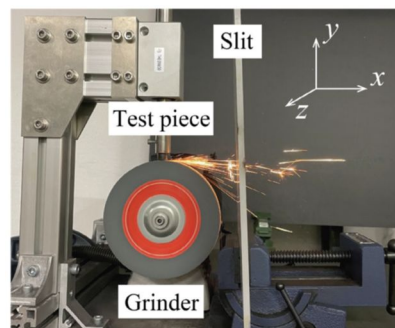


図 1 金属液滴発生装置
(Kimura and Inoue, 2022)

4. 研究成果

(1) 金属液滴の高速度撮影

鮮明な可視化画像から、連鎖分裂の世代ごとの金属液滴径と分裂に要する時間を定量的に計測し、統計量を取得する新しい解析手法を開発した。具体的に、飛行する火花液滴の直径は $10\ \mu\text{m}$ であり、飛行距離は 0.1m 以上に達することから、液滴径と分裂までの時間を同時に計測することは難しい。そこで、火花の自発光画像を高速度カメラで取得し(図2)、そこに、球の運動方程式から求めた軌跡の解析解を最小二乗法でフィッティングすることで、液滴の直径を計測し、それを基に液滴温度を理論的に計算することに成功した。

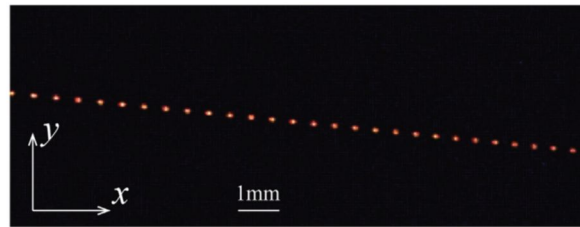


図2 火花(金属液滴)の軌跡の可視化。
(Kimura and Inoue, 2022)

(2) 金属液滴の温度計測

金属液滴の温度は、飛行しながら上昇し、液滴表面と内部の性状に大きく影響する。そこで、高速度カメラを用いて、非定常的に変化する温度を非定常的に計測した。具体的に、放射率フリーの温度計測法である二色温度法を適用し、高速度カメラで取得した自発光画像の各ピクセル輝度比(R/G)から、金属液滴の温度を求めた。図3の計測結果を見ると、グラインダーで加熱された金属液滴(炭素含有率0.3%の炭素鋼)は、自身の表面酸化反応によって融解し、融点以上の温度でしばらく飛行する。そして、破裂時に温度低下する。最終的に、融点以下の温度に低下すると固化し、以降の分裂は起きないことが明らかになった。

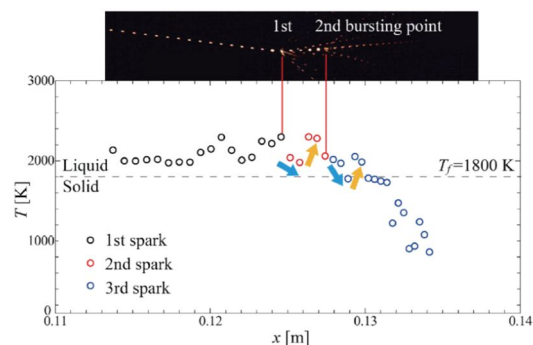


図3 火花液滴の非定常温度計測結果。
(Kimura and Inoue, 2022)

(3) 連鎖分裂の数理モデル構築と検証

半径 r の炭素鋼液滴の界面を通して、雰囲気中の酸素が物質拡散によって浸透する特性時間は、物質拡散係数 D を用いて、 r^2/D で与えられる。実験で得られた、火花の破裂に要する時間 t_{burst} は、 r^2/D とよく一致することが明らかになった(図4)。すなわち、物質拡散のフーリエ数が1に達した時間で、金属液滴が破裂する。2回目以降の破裂に要する時間は、すでに液滴内部に酸素が浸透しており、フーリエ数はおよそ0.1に小さくなる。このことは、金属液滴が破裂するまでの時間が、液滴内部の物質拡散に律速されることを示唆しており、液滴連鎖分裂の本質的な機構が明らかになった。この発見に基づき、火花の破裂までの時間や到達距離を、数理モデルによって記述することに成功した。

あわせて実施したSEM-EDX分析により、液滴断面に酸化物が形成されており、この結果からも、物質拡散律速説の妥当性が示された。

(4) 発生ガス種のその場計測

グラインダーから飛散した火花を漏斗で受け止め、液滴の表面および破裂時に発生したガス種を、 ToF によって、その場計測した(図5)。 CO_2 の発生を検出したものの、液滴の破裂時に発生したガスかどうかを分離することが困難であり、液滴破裂を駆動するガス種の直接的な検出は、今後の課題であることが明確となった。

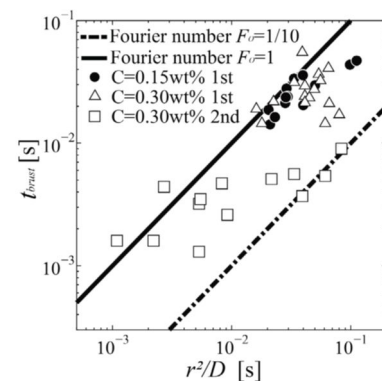


図4 液滴寿命と物質拡散の関係。
(Kimura and Inoue, 2022)



図5 ガスサンプリング実験

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 9件）

1. 著者名 Taro Kimura, Chihiro Inoue	4. 巻 83
2. 論文標題 Analysis on bursting mechanism of carbon steel sparks	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Energetic Materials	6. 最初と最後の頁 95-101
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.34571/stem.83.3_95	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 Hikita Wataru, Hirayama Shodai, Inoue Chihiro, Wang Zhenying, Nakaseko Makoto, Takashita Takuya	4. 巻 409
2. 論文標題 Fragmentation and solidification of fusible alloy melt by water spray	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Powder Technology	6. 最初と最後の頁 117778 ~ 117778
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.powtec.2022.117778	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 -

〔学会発表〕 計28件（うち招待講演 2件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 Yuuki SAKAMOTO, Zhenying WANG and Chihiro INOUE
2. 発表標題 Bursting titanium particles controlled by molecular diffusion
3. 学会等名 18th International Symposium on Fireworks（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Chihiro INOUE
2. 発表標題 Diffusion Controlled Spark Ramification Cascade
3. 学会等名 IUTAM Symposium on Dynamics and Interface Phenomena of Bubbles and Droplets at Multiple Scales（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 松下貢, 早川美徳, 井上智博, 川島禎子	4. 発行年 2023年
2. 出版社 窮理舎	5. 総ページ数 192
3. 書名 寺田寅彦「線香花火」「金米糖」を読む	

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 噴霧分離器	発明者 高和潤弥, 伊藤光紀, 井上智博, 吉田博愛	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、第7401239号	取得年 2023年	国内・外国の別 国内

〔その他〕

九州大学推進工学分野井上研究室Webページ https://aero.apl-kyushu.page 九州大学研究者情報 https://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K006967
--

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
研究分担者	王 振英 (Wang Zhenying) (20896633)	九州大学・工学研究院・助教 (17102)	

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			
------	--------------------------	--	--	--