



Title	火炎中におけるフラレン・PAH・すすの生成機構に関する研究
Author(s)	武原, 弘明
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/45837">https://hdl.handle.net/11094/45837</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	武原弘明
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第19479号
学位授与年月日	平成17年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科機械物理工学専攻
学位論文名	火炎中におけるフラレーン・PAH・すすの生成機構に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 香月 正司 (副査) 教授 森 教安 基礎工学研究科教授 平田 雄志 助教授 芝原 正彦

### 論文内容の要旨

新しいナノテク素材として注目されているフラレーンの効率的な生産の実現および燃焼過程における大気汚染物質の低減を目的として、実験および数値シミュレーションの両面から火炎中におけるフラレーン・PAH・すすの生成機構の解明を行った。

以下に、本論文で得られた結果を章別に示す。

第1章は緒論であり、フラレーン合成方法や生成メカニズムに関する従来の研究について概説し、本研究の目的と位置付けを明確にした。

第2章では、芳香族炭化水素を燃料とする低圧の予混合火炎を用いた実験を行い、燃焼条件がフラレーンの生成に与える影響について調べ、当量比が小さい場合は、すす状物質の収率は低い、すす状物質中に含まれるフラレーンの割合は高いという事実を確認した。

第3章では、これまでにほとんど報告のない、拡散火炎におけるフラレーンの生成に関する実験を行った。バーナーには、周囲と中央に別々の火炎を形成できる Vitiated Coflow Burner を使い、中央にすす生成火炎を形成した際の周囲温度・残存酸素量等の雰囲気条件を変更し、これらの燃焼条件が、フラレーンや PAH の生成に与える影響を詳細に調べた。その結果、燃焼器内圧力に関しては、低圧ほどフラレーン割合が多いこと、周囲流当量比に関しては、フラレーン割合が最大となる最適値が存在すること、全般的に炉内温度が高いほどフラレーン割合が高いことなどの事実を確認した。

第4章では、火炎中におけるフラレーン・PAH・すすの生成モデル作成に関し、これまでに報告されていない新たな PAH 化学種の熱力学的物性を量子化学計算により算出した。

第5章では、火炎中におけるフラレーン生成のための重要な反応の一つと考えられている分子内再配置反応について、量子化学計算を用いて詳細に解析し、個々の反応の反応速度定数を算出した。

第6章では、第4章で算出した熱力学的物性値を用いて、火炎中におけるフラレーンとすすの化学平衡計算を行い、化学平衡的に高温ではフラレーンが、低温ではすすが生成しやすいことを確認した。

第7章では、第4章および第5章で議論した反応を考慮した新たな火炎中でのフラレーン・PAH・すすの生成モデルを提案した。また、このモデルを用いて、反応動力学解析を実施し、2章で得られた実験事実は、主に炉内温度分

布が原因であることを確認した。

第8章はまとめであり、本研究で得られた知見を総括した。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、新素材として注目を浴びている球殻状炭素分子フラーレンの工業的生成プロセスとして期待される火炎中のフラーレン生成機構に関するもので、これまで未解明な部分を多く残している火炎中の多環芳香族炭化水素類を經由する生成機構を、実験と数値シミュレーション両面から研究したものであり、全8章より成っている。

第1章は緒論であり、フラーレン合成方法や生成機構に関する従来の研究について概説し、本論文の目的と位置付けを明確にしている。

第2章では、予混合火炎を用いた実験を行い、燃焼条件がフラーレンの生成に与える影響について調べ、当量比が小さい場合、すす状物質の収率は低いが、すす状物質中に含まれるフラーレンの割合は高いことを確認している。

第3章では、拡散火炎におけるフラーレンの生成に関する実験を行い、燃焼条件がフラーレンや PAH の生成に与える影響を詳細に調べ、燃焼器内圧力が低いほどフラーレン割合が多いこと、周囲流当量比に関しては、フラーレン割合が最大となる最適値が存在すること、炉内温度が高いほどすす状物質中のフラーレン割合が高いことを見出している。

第4および5章では、火炎中のフラーレン・PAH・すすの生成モデル作成に関し、量子化学計算により、これまでに報告されていない PAH 化学種の熱力学的物性、ならびに個々の反応の反応速度定数を算出している。

第6章では、算出した熱力学的物性値を用いて化学平衡計算を行い、高温ではフラーレンが、低温ではすすが生成しやすいことを確認している。

第7章では、第4および5章の結果を考慮した新たな火炎中でのフラーレン・PAH・すすの生成モデルを提案している。また、このモデルを用いて、動的素反応解析を実施し、2章で得られた実験事実は、主に燃焼温度分布が原因であることを確認している。

第8章はまとめであり、本研究で得られた知見を総括している。

以上のように、本論文は火炎中におけるフラーレン・PAH・すすの生成機構に関する重要な知見を与えており、新素材として期待されるフラーレンの製造プロセス設計のための指針を与えるものとして、工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。