



Title	火炎中におけるフラーレン・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">大阪大学の博士論文について</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ー・レン・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ー・レ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ー・レン・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、フラー・レ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は、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・レンの割合は高いという事実を確認した。

第 3 章では、これまでにはほとんど報告のない、拡散火炎におけるフラー・レ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 を用い、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、フラー・レンや 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、全般的に炉内温度が高いほどフラー・レ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ー・レン・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ー・レ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ー・レ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ー・レンが、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ー・レン・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ーゲ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ーゲ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経由する生成機構を、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、フラーーゲ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、燃焼条件がフラーーゲ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ーゲ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ーゲンの生成に関する実験を行い、燃焼条件がフラーーゲンや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ーゲン割合が多いこと、周囲流当量比に関しては、フラーーゲ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ーゲン割合が高いことを見出している。

第4および5章では、火炎中のフラーーゲン・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、高温ではフラーーゲンが、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ーゲン・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ーゲン・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ーゲ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。