

2021年 8月 6日

豊橋技術科学大学長 殿

応用化学・生命工学専攻  
 学位審査委員会  
 委員長 齊戸 美弘



## 論文審査及び最終試験の結果報告

このことについて、博士学位論文審査を実施し、下記の結果を得ましたので報告いたします。

学位申請者	佐場 雅俊		学籍番号	第 179402 号
申請学位	博士 (工学)	専攻名	大学院工学研究科博士後期課程 応用化学・生命工学専攻	
博士学位 論文名	高温気相中における酸化アルミニウム生成反応モデルの研究 (A study on the reaction model for the formation of aluminum oxide in the high-temperature gas-phase)			
論文審査の 期間	2021年 4月 8日 ~ 2021年 8月 6日			
公開審査会 の日	2021年8月5日	最終試験の 実施日	2021年8月5日	
論文審査の 結果*	合格		最終試験の 結果*	合格
審査委員会(学位規程第6条)				
学位申請者にかかる博士学位論文について、論文審査、公開審査会及び最終試験を行い、別紙論文内容の要旨及び審査結果の要旨のとおり確認したので、学位審査委員会に報告します。				
委員長	水嶋 生智			
委員	高島 和則		小口 達夫	

\*論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。

## 論文内容の要旨

アルミニウム粉末の燃焼は、高純度かつ微小な酸化アルミニウム粒子を合成するプロセスに用いられる。このプロセスにおける最適な反応条件を見いだす手段として、詳細化学反応モデルを用いた燃焼反応シミュレーションの利用が期待される。本研究では、起こりうる素反応を網羅的に検討し、それらの反応を量子化学計算によって検証することで、アルミニウム気相燃焼についての詳細反応モデルを構築した。酸素、水、もしくは二酸化炭素を酸化剤として想定し、アルミニウム気相燃焼における 39 の化学種からなる 321 の素反応について量子化学計算を行った。得られた結果に対し反応速度理論を適用することで、各反応経路の任意温度・任意圧力における反応速度定数を算出した。実験値の存在する一部の反応については反応速度定数を比較し、量子化学計算の計算精度の範囲内でよく一致していることを確認した。

また、構築した詳細化学反応モデルを用いて反応シミュレーションを行い、その挙動を検証した。様々な反応条件における反応経路、反応生成物組成、酸化アルミニウム生成時間等を検討した結果、反応系内に酸素が十分存在する場合にはどのような反応温度であっても、また、反応系内に酸素が全く存在しない場合でも反応温度が 1400 K 以上であれば、現実的な挙動を示すことを確認した。同様に流体シミュレーションに用いることで、流体シミュレーション中での反応挙動や計算時間、計算安定性についても検証し、その実用性を確認した。

本研究の結果、アルミニウム気相燃焼反応についての高精度かつ実用的な詳細化学反応モデルを構築することができた。

## 審査結果の要旨

本研究は、アルミニウム元素の工業的応用製品である酸化アルミニウム微粒子の製造工程において最も重要な鍵となる、高温気相中におけるアルミニウムの酸化化学反応過程の解明を目指したものである。その主要なアイデアは、実験的には非常に困難である気相反応素過程の特定およびその反応速度の定量的な評価について、高精度量子化学計算というツールを最大限活用し、物理化学と化学反応速度理論の一般則に基づいた第一原理からの理論計算により行うものである。このような手法は既に炭化水素燃料の燃焼化学、気相—表面の反応化学等で広く用いられているが、アルミニウムの燃焼に関して幅広く検討し評価を行った例はこれまでになく、本研究において初めて網羅的に検討されたものとして、本研究の主要な成果と認められる。

学位論文は 8 章から構成され、第 1 章～第 3 章までは緒論・原理・研究方法、第 4 章～第 6 章では  $Al/O_2$ 、 $Al/CO_2$ 、 $Al/H_2O$  のそれぞれの反応系について研究・議論され、さらに第 7 章ではその応用として流体シミュレーションによる検証が行われ、第 8 章で総括が行われている。その検討内容は単に酸素との反応のみならず、実際の製造工程で副生成物として存在する水や二酸化炭素といった準酸化剤にも及び、総合的な反応機構の構築を行っている点は特に高く評価できる。

理論計算による結果は何らかの方法で実際の現象と比較し、その定量性や精度の評価が為されるべきであるが、本研究が対象とする反応系は蒸発や流動といった現象を同時に解く必要があり、現状では対応する実験的情報がないため、その評価は行われていない。しかし、算出された反応素過程の一部の速度定数については実験的情報との比較が行われ、一定の精度で再現されていることが確認されている。よって、将来的には改めての検証・改善が必要であるものの、本研究において可能な検証は為されたものとみることができ、成果物としての反応モデルについては定性的な機能は充分であり、定量性についても一定程度の精度が担保されているものと認められる。学術面においても、アルミニウムの気相酸化過程に関する詳細かつまとまったデータは他に類を見ず、アルミニウムを用いた推進剤の燃焼反応メカニズムなど他の分野においても応用が可能なものと考えられ、燃焼化学分野への貢献度は非常に高いと判断される。

総じて本研究は、当初の目的である実用面のみならず、一般学術的にも優れた成果と言え、学位を授与するに十分な成果を上げたものと判断される。