

数値シミュレーションを用いた酸素燃焼火炎内での粉体挙動の予測

Investigation of Particle Behavior in the Oxy-Fuel Combustion Flame Using Numerical Simulation

山本康之* 萩原義之* 北村祐一郎**
YAMAMOTO Yasuyuki HAGIHARA Yoshiyuki KITAMURA Yuuichiro

当社は、酸素燃焼火炎中でセラミックス粉を球状化するシステム「CERAMELT™」を開発し、半導体封止材として使われる球状シリカの生産設備として使われている。昨今、球状化システムは、粒径の異なる多種多様な材料への対応が求められており、開発スピード向上のために効率的なアプローチが必要になってきている。そこで、筆者らは数値シミュレーションを使って酸素火炎内での粉体挙動を予測する技術を確立した。まず粒径の異なる二種類のシリカ粉(15 μm , 5 μm)について解析を行い、粒子の運動量に起因する分散性の違いが小粒径に対する加熱性能に影響を及ぼす可能性を見出した。そこで、分散性の向上を目的として粉体の噴出速度を上げた条件について解析を実施し、加熱性能を大幅に改善できる予測結果が得られたことから、バーナ設計にフィードバックし、実験にて確認したところ、処理性能向上を達成することができた。

We have the system, "CERAMELT™" which produces spherical ceramics particle in the oxy-fuel combustion flame. CERAMELT is installed for a manufacturing equipment of spherical silica particle used as semiconductor encapsulating material. Today, due to we apply the system to various materials, we come to need effective approach in development. The numerical simulation were carried out about the different silica particle diameter which were 15 μm and 5 μm . As a result, we found out the different of dispersibility in flame cause to decrease the capability on small particle. So, we carried out the next condition which was high particle injection velocity due to improve the particle dispersibility in flame and obtained the result of boosting the heating capability from numerical simulation. Therefore the test was carried out with an improved burner, and it was experimentally confirmed that a heating capability was increased.

1. はじめに

当社は、半導体封止材用球状シリカフィラーの製造技術としてセラミックス球状化システム「CERAMELT™」を開発した¹⁻³⁾。本システムは、酸素火炎中にセラミックス粉を投入・加熱溶解し、その表面張力により粒子を球状化する技術である。昨今、半導体の高性能化、高密度化の急速な進展に伴い、半導体封止材として使用されている材料に対して要望される製品も多種多様になり、仕様基準も厳しくなっている。さらに、ガラスビーズのような低融点のものから

* 開発・エンジニアリング本部山梨研究所ガスアップセンター

** 開発・エンジニアリング本部ガスエンジニアリング統括部シミュレーションセンター

酸化アルミニウム(Al_2O_3)などの高融点材料まで、本システムの適用の範囲は広がっている。当社においては、それらのニーズを的確に把握し、システムにフィードバックすることによって市場において技術的に高い評価を得ており、今後、さらなる市場の拡大と顧客の満足度を高めていくためにもシステムの性能向上は必要不可欠である。

本システムでは、材料の物性、粒径に応じて燃焼場の温度・速度・ガス組成といった火炎特性に加えて、火炎中における粉体の流動・分散を最適化する必要がある。システム開発は、これら要因を支配するバーナ開発と炉体開発を密接にリンクさせて実施する必要があり、従来実施していた手法(インプット→アウト

プット試験)では、開発スピードや開発精度の観点から改善を必要とする状況にある。そこで今後、各種材料に対してシステムの最適化を実施していく上でも新たなアプローチが必要であり、その一つとして数値シミュレーションを用いて酸素火炎中における粉体の流動および温度挙動を予測する技術を確立することとした。

2. セラミックス球状化システムの概要

Fig. 1にセラミックス球状化システムのプロセスフローを示す。本システムは、原料供給装置、球状化炉、製品回収設備で構成される。原料供給装置から定量供給された原料粉体は気流搬送により球状化用酸素燃焼バーナに供給され、高温火炎中に吹き込まれる。球状化炉内において原料粉体は高温火炎中で熔融され、材料自身の表面張力で球状化される。製品粉体は、サイクロンおよびバグフィルタで回収される。

Fig. 2に球状化用酸素燃焼バーナ(以下、球状化バーナと記す)の構造を示す。本バーナは、気体燃料を純酸素で燃焼させるタイプである。原料粉体は酸素により搬送され、バーナの中心から分散ノズルを通して外向きに噴出される。その外側から燃料ガスが供給され、さらに、外側から1次酸素と2次酸素が供給される。1次酸素は、バーナ燃焼室内で旋回流を形成するように噴出され、2次酸素はバーナ中心軸で焦点を結ぶように噴出される。バーナ燃焼室内において燃料ガスと酸素は急速に混合・燃焼する。

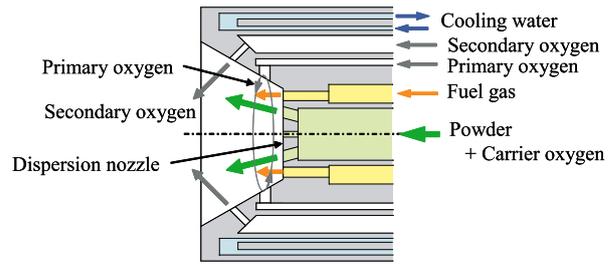


Fig. 2 Nozzle structure of oxy-fuel burner.

3. 解析領域

解析対象は、シリカ処理量180kg/h規模の球状化炉とした。Fig. 3に解析領域を示す。本解析は、バーナおよび炉体の形状を忠実に考慮して三次元で行った。解析領域は、炉体の対称性から90°の領域とした。解析格子の数は、約100万個である。

4. 基礎方程式

4.1 乱流モデル

本解析では、三次元定常非圧縮性流れとした。質量および運動量の輸送式を以下に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho U_j) = 0 \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho U_j U_i) = -\frac{\partial}{\partial x_j}\left(P + \frac{2}{3}k\right) + \frac{\partial}{\partial x_j}\left[(\mu + \mu_t)\left(\frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i}\right)\right] + F_j \tag{2}$$

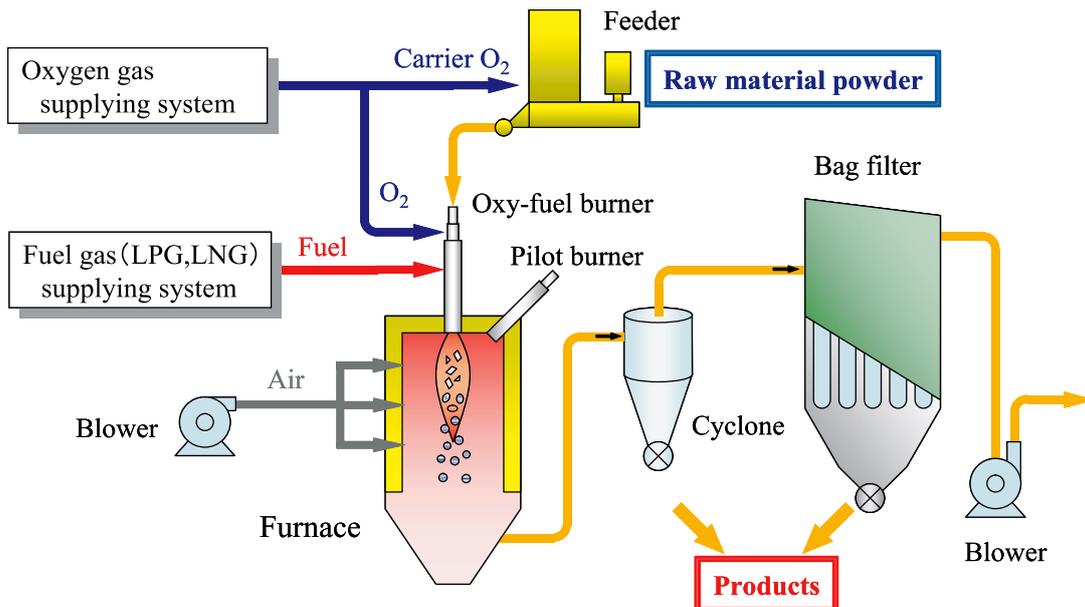


Fig. 1 Manufacturing system of the spherical inorganic oxide particle.

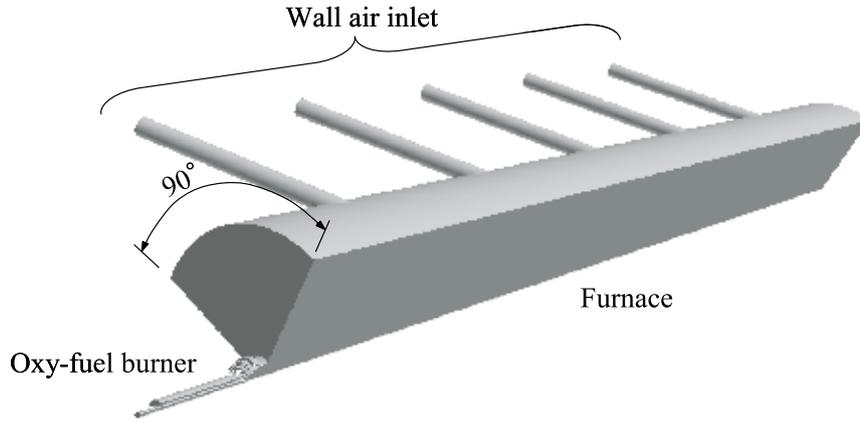


Fig.3 Computational domain.

F は、粒子の運動による体積力である。

乱流モデルには、標準 $k-\varepsilon$ 二方程式モデル⁴⁻⁶⁾ を使用した。乱流エネルギー k と乱流エネルギー消散率 ε の輸送式を以下に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j k) = P_k - \rho \varepsilon + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \varepsilon) = (C_{1\varepsilon} P_k - C_{2\varepsilon} \rho \varepsilon) \frac{\varepsilon}{k} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] \quad (4)$$

ここで、 $C_{1\varepsilon}$ 、 $C_{2\varepsilon}$ 、 σ_k 、 σ_ε はモデル定数である。 μ_t 、 P_k は次式で表される。

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (5)$$

$$P_k = \mu_t \left(\frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial U_i}{\partial x_j} \quad (6)$$

ここで、 C_μ はモデル定数である。

全エネルギーの輸送式を以下に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j H) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{k_t}{c_p} \frac{\partial H}{\partial x_j} \right) + S_r + S_p \quad (7)$$

本解析では、燃焼モデルとして PDF モデルを使用するため、熱伝導率には乱流熱伝導率のみを使用する。右辺第二項 S_r は放射に起因する生成項である。第三項 S_p は粒子との熱の授受に起因する生成項である。

4.2 燃焼モデル

酸素燃焼火炎においては、化学反応が十分に速く、燃焼は流体の混合問題に簡略化されると考えられるため、燃焼モデルとして、PDF (Probability Density Function) モデル⁷⁾ を採用した。今回の解析では、燃料、酸素、空気の三つのガスを扱うため、二混合分率の PDF モデルを用いた。PDF 形状として β 関数を仮定した。あらかじめ 21 種類の化学種を考慮して、燃料および二次流 (空気) の混合分率とその分散から、化学種質量分率、混合ガス密度および温度を求めるルツ

クアップテーブルを作成した。

燃料流側の時間平均混合分率 \bar{f}_{fuel} とその分散 $\overline{f_{fuel}^2}$ の輸送式を以下に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \bar{f}_{fuel}) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_t} \frac{\partial \bar{f}_{fuel}}{\partial x_j} \right) \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \overline{f_{fuel}^2}) \\ = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_t} \frac{\partial \overline{f_{fuel}^2}}{\partial x_j} \right) + C_g \mu_t \left(\frac{\partial \bar{f}_{fuel}}{\partial x_j} \right)^2 - C_d \rho \frac{\varepsilon}{k} \overline{f_{fuel}^2} \end{aligned} \quad (9)$$

二次流側の時間平均混合分率 \bar{f}_{sec} とその分散 $\overline{f_{sec}^2}$ の輸送式を以下に示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \bar{f}_{sec}) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_t} \frac{\partial \bar{f}_{sec}}{\partial x_j} \right) \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \overline{f_{sec}^2}) \\ = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\mu_t}{\sigma_t} \frac{\partial \overline{f_{sec}^2}}{\partial x_j} \right) + C_g \mu_t \left(\frac{\partial \bar{f}_{sec}}{\partial x_j} \right)^2 - C_d \rho \frac{\varepsilon}{k} \overline{f_{sec}^2} \end{aligned} \quad (11)$$

ここで、 C_g 、 C_d はモデル定数である。

4.3 放射伝熱モデル

炉内のガス体、粒子、および炉壁間の放射伝熱は、Discrete Ordinate (DO) モデル⁸⁾ を用いた。本モデルにおいて粒子の放射・吸収を考慮した場合の放射熱伝達方程式を以下に示す。

$$\begin{aligned} \nabla \cdot [I(\vec{r}, \vec{s}) \vec{s}] + (a + a_p + \sigma_p) I(\vec{r}, \vec{s}) \\ = an^2 \frac{\sigma T^4}{\pi} + E_p + \frac{Q_p}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\vec{r}, \vec{s}') \Phi(\vec{s}, \vec{s}') d\Omega \end{aligned} \quad (12)$$

a_p 、 σ_p 、 E_p は、粒子の等価吸収係数、等価粒子散乱係数、等価放射エネルギーである。

粒子および炉壁は灰色体と仮定し、粒子の吸収率を 0.3、炉壁面の吸収率を 0.4 とした。ガス体については WSGGM (Weighted Sum of Gray Gases Model)⁹⁾ を用い、放射伝熱において主要なガス体である H_2O と CO_2 のみ考慮した¹⁰⁾。

4.4 粒子輸送モデル

固気二相流の解析には Euler-Lagrangian 手法を採用した。粒子の運動方程式を以下に示す。

$$\frac{du_{p,i}}{dt} = \frac{18\mu}{\rho_p D_p^2} \frac{C_D Re_p}{24} (u_i - u_{p,i}) \quad (13)$$

本解析では、粒子を球形として抵抗係数 C_D は Morsi と Alexander のモデルを使って求めた。

粒子に関する熱伝達式を以下に示す。

$$m_p c \frac{dT_p}{dt} = hA_p (T_\infty - T_p) + \varepsilon_p A_p \sigma (\theta_R^4 - T_p^4) \quad (14)$$

熱伝達率 h は、Ranz-Marshall の相関式を用いた。

5. 球状化炉内における粉体挙動 (粒径の影響)

5.1 計算条件

本解析は、球状化炉の代表的な運転条件について行った。バーナ構造は、当社の標準的な球状化バーナ (以下、A バーナと記す) とした。Table 1 に計算条件を示す。表中の酸素供給量は、粉体搬送用酸素、1次酸素、2次酸素の合計量であり、プロパン供給量に対して酸素比が1になる条件である。炉壁空気供給量は、炉壁に5段に設置された空気吹き込み管から炉内へ供給される空気の合計量である。

本解析では、対象として $15\mu\text{m}$ と $5\mu\text{m}$ のシリカ粉体について解析を行い、粒径の違いによる粉体の流動・温度挙動を検討した。

Table 1 Computational condition.

C ₃ H ₈ flow rate	(m ³ (normal)/h)	30
O ₂ flow rate	(m ³ (normal)/h)	150
Air flow rate	(m ³ (normal)/h)	1420
Powder feed rate	(kg/h)	180
Powder Diameter	(μm)	5, 15
Density	(kg/m ³)	2210
Specific heat	(J/(kg·K))	1320

5.2 計算結果および考察

Fig. 4 に、粒径 $15\mu\text{m}$ の粒子を供した場合の球状化炉内における典型的な粒子10個の軌跡を示す。なお、軌跡の色は粒子温度である。また、Fig. 5 に炉内温度および粒子濃度のコンターを示す。粒子は、バーナから火炎中に分散するように投入され、火炎からの対流・放射伝熱によってシリカの融点 (1723°C) 以上に加熱される。火炎の後流では、炉壁空気よって発生する旋回流により旋回しながら炉内に広げられ、下流へ運ばれる。その過程で粒子は冷却され、炉壁近傍を流れる粒子の温度は 1000°C 以下になる。

次に、粒径の影響について検討した。Fig. 6 に、粒径 $5\mu\text{m}$ の粒子を流した場合の炉内温度および粒子濃度のコンター図を示す。Fig. 5 に示す粒径 $15\mu\text{m}$ のコンター図と比較すると、粒径 $5\mu\text{m}$ では、中心軸付近の粒子濃度が高く、後流まで粒子濃度の高い領域が伸びることが分かる。粒径 $5\mu\text{m}$ の粒子では、中心軸付

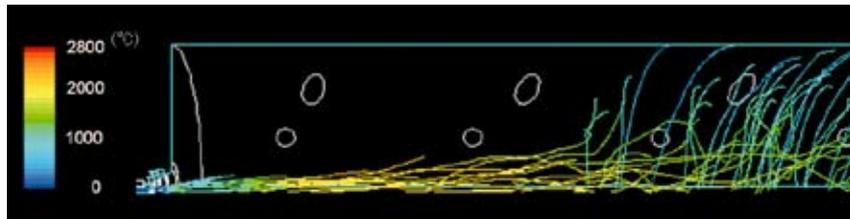


Fig. 4 Particle trajectories. (A-burner, Particle diameter = $15\mu\text{m}$)

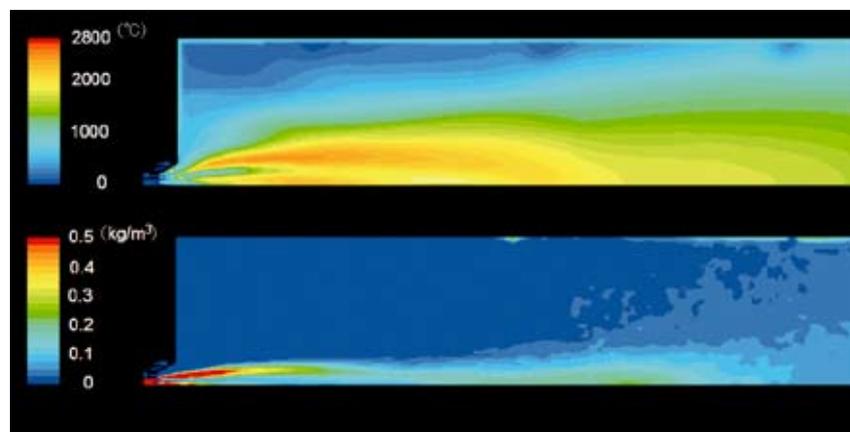


Fig. 5 Contour of gas temperature and particle concentration. (A-burner, Particle diameter = $15\mu\text{m}$)

近に粒子が集中して流れるため、中心軸付近のガス温度が低下して、粒子の加熱に影響を及ぼす可能性が示唆される。

当社の球状化バーナは、Fig. 2に示すように粒子はノズル燃焼室の底部の粉体ノズルから外向きに広がるように噴出され、その周りから2次酸素がバーナ中心軸に焦点を結ぶように噴出される。そのため、粒子の流れが2次酸素流によって抑え込まれやすい。15 μm 粒子では、粒子の運動量が大きいため、2次酸素流を貫通して分散するのに対し、5 μm 粒子は、運動量が小さいため、2次酸素流に抑え込まれやすい。計算結果から、5 μm 粒子では2次酸素によって抑え込まれた結果、中心軸付近に集中しているものと推測した。

そこで、次項では、粒子の噴出速度を上げることによって粒子流の運動量を大きくし、粒子の加熱性能への影響を数値解析により検討した。

6. 微粉粒子の処理性能の改善

本計算では、粉体ノズルの孔径を小さくすることによって粒子の噴出速度を2倍にした(以下Bバーナと記す)。計算は、前記 Table1の条件で行った。

Fig. 7に炉内温度のコンターを示す。Fig. 6に示したAバーナの温度コンターと比較して、Bバーナでは中心軸付近の温度が高くなっていることがわかる。この要因として、粒子の噴出速度を2倍にしたことに

よって粒子の分散が改善されたこと、および、粒子搬送用の酸素と燃料の混合が促進され、中心軸付近で急速に燃焼が進むようになったことによるものと考えられる。また、Bバーナでは、Aバーナに比較して高温領域が伸びており、粒子が高温雰囲気さらされる時間が長くなることが分かる。

Fig. 8に、粒子温度がシリカの融点(1723 $^{\circ}\text{C}$)以上に保持される時間毎の粒子割合を示す。Aバーナの保持時間が0.01~0.07sであるのに対し、Bバーナでは、0.01~0.17sと大幅に保持時間が長くなっており、5 μm 粒子の球状化処理において、粒子の噴出速度を速くすることによって処理性能を向上させることができるものと予測された。

本計算結果をもとに粒子の噴出速度を速くしたBバーナを製作し、球状化装置にて平均粒径5 μm の粒子を用いて試験を行い、処理能力が20%向上することを確認した。

7. まとめ

セラミックス球状化炉に対して三次元数値シミュレーションを適用し、酸素燃焼火炎中における粉体の流動および熱履歴を予測する技術を確立した。

球状化システムにおいて粒径の異なる二つのシリカ粉(15 μm , 5 μm)について解析を行い、粒子の運動量に起因する分散性の違いが、小粒径に対する加熱性

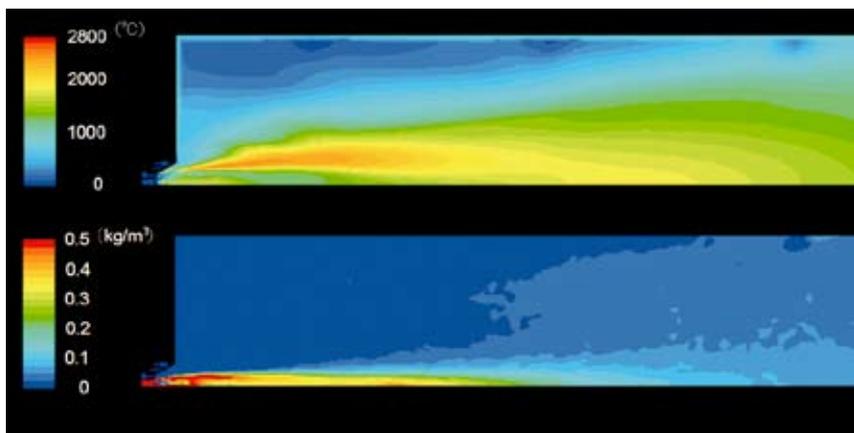


Fig. 6 Contour of gas temperature and particle concentration. (A-burner, Particle diameter =5 μm)

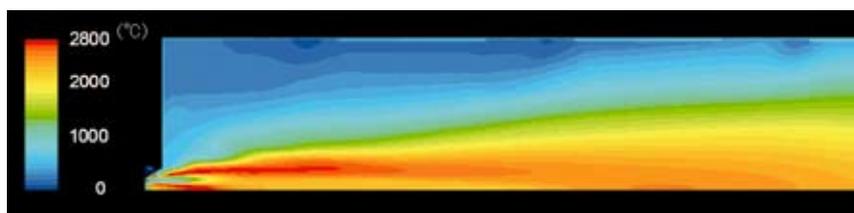


Fig. 7 Contour of gas temperature. (B-burner, Particle diameter=5 μm)

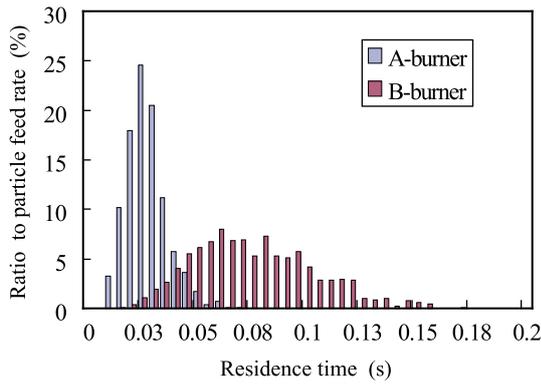


Fig. 8 A ratio of a particle heated than 1723 degrees C. (Particle diameter : 5 μm)

能に影響を及ぼす可能性を見出した。さらに、分散性向上を目的としてノズル条件について検討・解析した結果、加熱性能向上が可能であることが示され、設計にフィードバックして実験を行った。その結果、小粒径の粉体に対して処理能力が20%向上することを確認した。

球状化バーナの設計において数値シミュレーションの有効性が確認でき、今後、各種材料への対応が求められる中で、本シミュレーション技術を開発ツールとして有効に活用していく予定である。

参考文献

- 1) 三宅新一, 木野村暢一, 鈴木喬, 諏訪俊雄. 無機マテリアル. 4 (267), 139-147 (1997).
- 2) 矢嶋尊, 村上伸吾, 三宅新一. 日本酸素技報. (17), 43-53 (1998).
- 3) 三宅新一, 木野村暢一, 鈴木喬, 諏訪俊雄. 無機マテリアル. 5 (274), 225-230 (1998).
- 4) 棚橋隆彦. CFD: 数値流体力学. 東京, アイピーシー, 1993, 691-692.
- 5) Ralphy, G. D.; Chui, E. H. *J. Heat Transf.* 112, 415-423 (1990).
- 6) Chui, E. H.; Ralphy, G. D. *Numer. Heat Transf. Part B.* 23, 269-288 (1993).
- 7) Sivathanu, Y. R.; Faeth, G. M. *Combust. Flame.* 82, 211-230 (1990).

- 8) Launder, B. E. *Int. J. Heat Mass Transf.* 15 (1), 301-306 (1972).
- 9) Smith, T. F.; Shen, Z. F.; Friedman J. N. *J. Trans. ASME J. Heat Transf.* 104, 602-608 (1982).
- 10) Coppalle, A.; Vervish, P. *Combust. Flame.* 49, 101-108 (1983).

主な使用記号

A_p	粒子の表面積	m^2
C_D	粒子の抗力係数	—
c	比熱	$J/(kg \cdot K)$
D_p	粒子径	m
F	体積力	$kg/(m^2 \cdot s^2)$
\bar{f}_{fuel}	燃料の時間平均混合分率	—
$\overline{f_{fuel}^2}$	燃料混合分率分散	—
\bar{f}_{sec}	二次流の時間平均混合分率	—
$\overline{f_{sec}^2}$	二次流混合分率分散	—
H	エンタルピー	J/kg
I	放射強度	$W/(m^2 \cdot sr)$
k	乱流エネルギー	m^2/s^2
k_t	熱伝導率	$W/(m \cdot K)$
m_p	粒子質量	kg
h	熱伝達率	$W/(m^2 \cdot K)$
P	時間平均圧力	Pa
Pr_t	乱流プラントル数	—
Re_p	レイノルズ数	—
T	温度	K
T_p	粒子温度	K
T_∞	周囲温度	K
t	時間	s
U	時間平均速度	m/s
u_p	粒子速度	m/s
ρ	ガス密度	kg/m^3
ρ_p	粒子密度	kg/m^3
ε	乱流エネルギー消散率	m^2/s^3
μ	粘性係数	$Pa \cdot s$
μ_t	乱流粘性係数	$Pa \cdot s$
σ	ステファン - ボルツマン定数	$W/(m^2 \cdot K^4)$
Ω	立体角	sr
ε_p	粒子の放射率	—
θ_R	放射温度	K