

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2021-107311
(P2021-107311A)

(43) 公開日 令和3年7月29日(2021.7.29)

(51) Int. Cl.	F 1	テーマコード (参考)
CO 1 B 32/154 (2017.01)	CO 1 B 32/154	4 G 0 3 5
BO 1 F 3/02 (2006.01)	BO 1 F 3/02	4 G 1 4 6
BO 1 F 5/00 (2006.01)	BO 1 F 5/00	D

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2019-239943 (P2019-239943)	(71) 出願人	000002004 昭和電工株式会社 東京都港区芝大門1丁目13番9号
(22) 出願日	令和1年12月27日 (2019. 12. 27)	(74) 代理人	100107766 弁理士 伊東 忠重
		(74) 代理人	100070150 弁理士 伊東 忠彦
		(72) 発明者	末國 啓輔 東京都港区芝大門1丁目13番9号 昭和電工株式会社内
		(72) 発明者	飯野 匡 東京都港区芝大門1丁目13番9号 昭和電工株式会社内
		Fターム(参考)	4G035 AB02 AC01 4G146 AA08 BC02 CA09 CB40 DA03 DA41 DA42 DA46

(54) 【発明の名称】 排ガスの冷却装置、フラーレンの製造装置及びフラーレンの製造方法

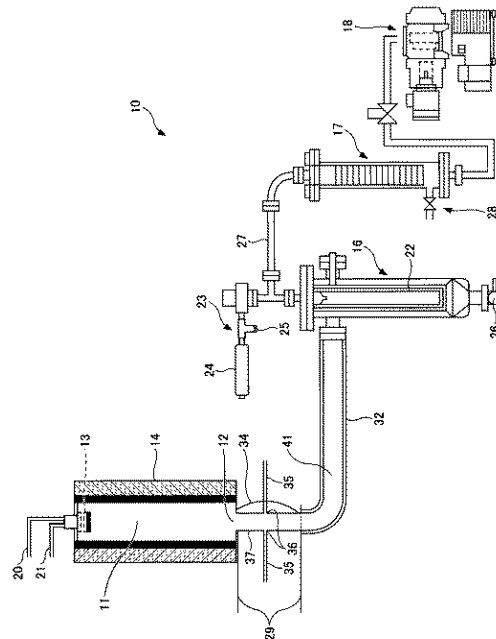
(57) 【要約】

【課題】 フラーレンの収率を向上させることができる、排ガスの冷却装置及びフラーレンの製造方法を提供する。

【解決手段】

燃焼法によるフラーレンの生成に用いられる反応炉 11 から排出される排ガスを冷却する、冷却装置 31 であって、前記冷却装置 31 は、冷却装置本体 34 と、不活性ガスを流入させる不活性ガス流入手段と、を備え、前記冷却装置本体 34 は、排ガス流入口 32 と、排ガス流出口 33 と、及び前記排ガス流入口 32 及び前記排ガス流出口 33 の間に備えられた側壁 37 と、を備え、前記側壁 37 には不活性ガス流入口 36 が設けられており、前記不活性ガス流入手段は、前記反応炉 11 から排出される排ガスの流れの中心に向かって、前記不活性ガス流入口 36 から、不活性ガスを流す、冷却装置 31。

【選択図】 図 1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

燃焼法によるフラレンの生成に用いられる反応炉から排出される排ガスを冷却する、冷却装置であって、前記冷却装置は、

冷却装置本体と、

不活性ガスを流入させる不活性ガス流入手段と、

を備え、

前記冷却装置本体は、

排ガス流入口と、

排ガス流出口と、及び

前記排ガス流入口及び前記排ガス流出口の間に備えられた側壁と、

を備え、

前記側壁には不活性ガス流入口が設けられており、

前記不活性ガス流入手段は、前記反応炉から排出される排ガスの流れの中心に向かって、前記不活性ガス流入口から、不活性ガスを流す、冷却装置。

【請求項 2】

前記不活性ガス流入手段は、前記不活性ガス流入口に接続された不活性ガス流入管を備える、請求項 1 に記載の冷却装置。

【請求項 3】

前記不活性ガス流入口が、前記側壁に二ヶ所以上設けられている、請求項 1 又は 2 に記載の冷却装置。

【請求項 4】

前記二ヶ所以上の不活性ガス流入口が、前記排ガスの流れる方向に対して垂直である同一平面上に設けられている、請求項 3 に記載の冷却装置。

【請求項 5】

前記排ガスの流れる方向において、前記不活性ガスを流す方向と前記排ガスの流れる方向とのなす角の角度は $40 \sim 110^\circ$ である請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の冷却装置。

【請求項 6】

前記不活性ガス流入口とは異なり、前記側壁に設けられている第 2 の不活性ガス流入口から、前記排ガスの流れの中心に向かう方向とは異なる方向に第 2 の不活性ガスを流す、第 2 の不活性ガス流入手段をさらに備える、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の冷却装置。

【請求項 7】

前記第 2 の不活性ガス流入手段は、前記第 2 の不活性ガス流入口に接続された第 2 の不活性ガス流入管を備える、請求項 6 に記載の冷却装置。

【請求項 8】

前記排ガスの流れる方向において、前記第 2 の不活性ガスを流す方向と前記排ガスの流れる方向とのなす角の角度が、 $40 \sim 110^\circ$ である、請求項 6 又は 7 に記載の冷却装置。

【請求項 9】

前記不活性ガスが冷却されている、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載の冷却装置。

【請求項 10】

請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の冷却装置を備える、フラレンの製造装置。

【請求項 11】

燃焼法によるフラレンの製造方法であって、

反応炉から排出される排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流す工程を含む、フラレンの製造方法。

【発明の詳細な説明】

10

20

30

40

50

【技術分野】**【0001】**

本発明は、フラーレンの生成に用いられる反応炉から排出される排ガスの冷却装置、当該冷却装置を備えるフラーレンの製造装置及びフラーレンの製造方法に関する。

【背景技術】**【0002】**

フラーレンを安価に効率よく大量に製造する方法として、炭素化合物を反応炉内で不完全燃焼させることによりフラーレンを製造する燃焼法が知られている（例えば、特許文献1参照）。この燃焼法により生成したフラーレンは、主に煤状物質に含まれる。この煤状物質は、反応炉から排ガスと共に排出されて、フラーレン回収装置で回収される。

10

【先行技術文献】**【特許文献】****【0003】**

【特許文献1】特開2005-170695号公報

【発明の概要】**【発明が解決しようとする課題】****【0004】**

しかしながら、特許文献1に記載されたフラーレンの製造装置を用いて、燃焼法でフラーレンを製造すると、得られるフラーレンの収率は高くない。その原因の一つは、フラーレン回収装置に到達した時点のフラーレン含有煤状物質を含む排ガスの温度が高く、フラーレン回収装置でフラーレンが分解又は昇華してしまうことだと考えられる。

20

【0005】

本発明はかかる事情に鑑みてなされたもので、フラーレンの収率を向上させることができる、排ガスの冷却装置（以下、「冷却装置」ともいう）、当該冷却装置を備えたフラーレンの製造装置及びフラーレンの製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】**【0006】**

本発明の発明者らは、上記課題を解決する、排ガスの冷却装置、当該冷却装置を備えたフラーレンの製造装置及びフラーレンの製造方法を見出した。具体的には以下のとおりである。

30

(1) 燃焼法によるフラーレンの生成に用いられる反応炉から排出される排ガスを冷却する、冷却装置であって、前記冷却装置は、冷却装置本体と、不活性ガスを流入させる不活性ガス流入手段と、を備え、前記冷却装置本体は、排ガス流入口と、排ガス流出口と、及び前記排ガス流入口及び前記排ガス流出口の間に備えられた側壁と、を備え、前記側壁には不活性ガス流入口が設けられており、前記不活性ガス流入手段は、前記反応炉から排出される排ガスの流れの中心に向かって、前記不活性ガス流入口から、不活性ガスを流す、冷却装置。

(2) 前記不活性ガス流入手段は、前記不活性ガス流入口に接続された不活性ガス流入管を備える、(1)に記載の冷却装置。

(3) 前記不活性ガス流入口が、前記側壁に二ヶ所以上設けられている、(1)又は(2)に記載の冷却装置。

40

(4) 前記二ヶ所以上の不活性ガス流入口が、前記排ガスの流れる方向に対して垂直である同一平面上に設けられている、(3)に記載の冷却装置。

(5) 前記排ガスの流れる方向において、前記不活性ガスを流す方向と前記排ガスの流れる方向とのなす角の角度は40°～110°である(1)～(4)のいずれか一項に記載の冷却装置。

(6) 前記不活性ガス流入口とは異なり、前記側壁に設けられている第2の不活性ガス流入口から、前記排ガスの流れの中心に向かう方向とは異なる方向に第2の不活性ガスを流す、第2の不活性ガス流入手段をさらに備える、(1)～(5)のいずれか一項に記載の冷却装置。

50

(7) 前記第2の不活性ガス流入手段は、前記第2の不活性ガス流入口に接続された第2の不活性ガス流入管を備える、(6)に記載の冷却装置。

(8) 前記排ガスの流れる方向において、前記第2の不活性ガスを流す方向と前記排ガスの流れる方向とのなす角の角度が、 $40 \sim 110^\circ$ である、(6)又は(7)に記載の冷却装置。

(9) 前記不活性ガスが冷却されている、(1)～(8)のいずれか一項に記載の冷却装置。

(10) (1)～(9)のいずれか一項に記載の冷却装置を備える、フラーレンの製造装置。

(11) 燃焼法によるフラーレンの製造方法であって、反応炉から排出される排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流す工程を含む、フラーレンの製造方法。

【発明の効果】

【0007】

本発明によれば、フラーレンの収率を向上させることができる、排ガスの冷却装置、当該冷却装置を備えたフラーレンの製造装置及びフラーレンの製造方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0008】

【図1】本実施形態のフラーレンの製造装置10の一例を示す図である。

【図2】本実施形態の冷却装置31の一例を示す図である。

【図3】本実施形態の一実施形態である、不活性ガス流入口36から流入させる不活性ガスの流れ方向を示す断面図である。

【図4】本実施形態の一実施形態である、不活性ガス流入口36の配置、及び不活性ガス流入口36から流入させる不活性ガスの流れ方向の一例を示す断面図である。

【図5】本実施形態の一実施形態である、第2の不活性ガス流入口38から流入させる不活性ガスの流れ方向を示す断面図である。

【図6】本発明の実施例で用いた不活性ガス流入口の配置を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0009】

以下、本発明を実施するための形態について、図面を参照して説明する。なお、以下の説明で用いる図面は、特徴をわかりやすくするために、便宜上、特徴となる部分を拡大して示している場合があり、各構成要素の寸法比率等が同一であるとは限らない。

【0010】

図1に、本実施形態に関する、燃焼法によるフラーレンの製造装置の一例を示す。

【0011】

本実施形態に関するフラーレンの製造装置10は、図1に示すように、燃焼法によるフラーレンの生成に用いられる反応炉11と、フラーレン反応炉11内からフラーレンを含む高温のガスを通過させる冷却装置31及び配管41と、排ガスが流入して排ガス中からフラーレンを含有する煤状物質を捕集するフラーレン回収装置16と、フラーレン回収装置16から流出する、フラーレンを含有する煤状物質が取り除かれたガスを冷却するガス冷却器17と、ガス冷却器17によって降温されたガスを吸引する真空ポンプからなる減圧装置18と、を備える。冷却装置31は、フラーレン反応炉11の下部のガス排出部12に接続される。

【0012】

反応炉11は円筒状であり、例えば、ジルコニア、モリブデン、タンタル、白金、チタン、窒化チタン、アルミナ等の耐熱材料で構成され、その外側の一部又は全部には、例えばアルミナ質の耐火煉瓦やアルミナ質の不定形耐火材等の断熱材14がライニングされている。

【0013】

反応炉11の上方には、燃料ガスと酸素含有ガスを供給するバーナー13が設けられて

10

20

30

40

50

いる。バーナー 13 は、燃料ガスを供給する燃料ガス供給配管 20 と、燃料ガス中の原料炭化水素ガスの燃焼に必要な酸素含有ガスを供給する酸素含有ガス供給配管 21 が接続されている。さらにバーナー 13 は、供給された燃料ガス及び酸素含有ガスから混合ガスを作製する混合室と、得られた混合ガスを所定の圧力（例えば、50～200 トール、好ましくは、100～150 トール）で保持する蓄圧室と、混合ガスが吐出する複数の吐出口が設けられた吐出部を備える。吐出部としては、種々の形態のものを用いることができるが、良好なガス流を得るためには、口径が小さい吐出口が多数集合した形態のものが好ましく、例えば、口径が 0.1～5 mm の吐出口を多数設ける場合には、吐出口の開口面積の合計は、吐出口が分布している吐出部の横断面積に対して、10～95%、好ましくは 50～95% である。なお、バーナー 13 は混合室を設けず、燃料ガスと酸素含有ガスをそれぞれ独立にフラールン反応炉 11 内に導入してもよい。

10

【0014】

反応炉 11 で、バーナー 13 を用いて、燃料ガスを酸素含有ガスの下で燃焼させることにより、フラールンの生成と共に、煤状物質、一酸化炭素ガス、水蒸気等が発生する。生成したフラールンは主に煤状物質中に含有されている。排ガスには、フラールンを含む煤状物質が存在し、排ガスは、反応炉 11 の排出部 12 から排出されて冷却装置 31 を通過する。反応炉から排出されるフラールン含有煤状物質を含有する排ガスの温度は、通常 1300～1900 である。

【0015】

燃料ガスとしては、例えば、ガス状又はガス化させたトルエン、ベンゼン、キシレン、ナフタレン、メチルナフタレン、アントラセン、フェナントレン等の炭素数 6～15 の芳香族炭化水素、クレオソート油、カルボン酸油等の石炭系炭化水素、アセチレン系不飽和炭化水素、エチレン系炭化水素、ペンタン、ヘキサン等の脂肪族飽和炭化水素等があげられ、これらのうち二種以上が併用されてもよい。これらの中でも、芳香族炭化水素が好ましい。

20

【0016】

なお、燃料ガスは、必要に応じて、窒素ガス、アルゴンガス等の不活性ガスで希釈されていてもよい。

【0017】

酸素含有ガスとしては、例えば、酸素ガス、空気等があげられる。なお、酸素ガスは、窒素ガス、アルゴンガス等の不活性ガスで希釈されていてもよい。

30

【0018】

図 2 に示すように、冷却装置 31 は、冷却装置本体 34 と不活性ガスを流入させる不活性ガス流入手段により構成され、冷却装置本体 34 は排ガス流入口 32 と、排ガス流出口 33 と、前記排ガス流入口 32 及び前記排ガス流出口 33 を形成する側壁 37 とを備える。反応炉 11 の下部の排出部 12 は、冷却装置 31 の排ガス流入口 32 と接続している。冷却装置 34 の排ガス流出口 33 は、配管 41 と接続している。冷却装置本体 34 は、円筒状が好ましく、ステンレス鋼等の耐熱鋼で構成されている。不活性ガス流入口 36 は、側壁 37 に設けられている。不活性ガス流入手段は、不活性ガス流入口 36 に接続される不活性ガス流入管 35 を備える。

40

【0019】

不活性ガス流入手段は、不活性ガスを、不活性ガス流入管 35 を介して、不活性ガス流入口 36 から冷却装置本体 34 内に流入させる。

【0020】

「不活性ガスを流入させる」とは、不活性ガスを不活性ガス流入口 36 から冷却装置 31 内に移動させることをいい、不活性ガスを不活性ガス流入口 36 から冷却装置 31 内に流出させるともいい、不活性ガスを冷却装置 31 内に流すともいう。

【0021】

不活性ガス流入手段のうち、第 1 の不活性ガス流入手段は、不活性ガス流入口 36 から排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流す。このような不活性ガス流入口 36

50

を、本明細書中では「第1の不活性ガス流入口36」という場合がある。また、「不活性ガス流入口36」とは、不活性ガス流入口36から排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流す不活性ガス流入口をいう。

【0022】

「排ガスの流れ」とは、反応炉11から排出され、冷却装置本体34及び配管41を通り、フラーレン回収装置16に向かう排ガスの流れをいう。すなわち、冷却装置31では、例えば、図3(b)に示す中心軸Bに沿った流れとなる。このように、「排ガスの流れ」は冷却装置本体34の中心軸Bと一致するため、以下、排ガスの流れのことを「冷却装置本体34の中心軸B」ともいう。「排ガスの流れの中心に向かう方向」とは、排ガスの流れ(冷却装置本体34の)の中心軸Bに向かう方向である。

10

【0023】

本実施形態における排ガスの流れの中心に向かう方向を、図3(a)及び図3(b)を用いて説明する。図3(a)は、不活性ガス流入口36の中心Aを通り、中心軸Bに対して垂直である断面図であり、図3(b)は、不活性ガス流入口36の中心Aと中心軸Bを通る断面図である。排ガスの流れの中心に向かう方向とは、具体的には、図3(a)に示すように、冷却装置本体34の中心軸Bに対して、不活性ガス流入口36の中心Aを通る垂直断面Cにおいて、不活性ガス流れの中心の流れる方向ADの断面Cへの投影AD₁と、不活性ガス流入口36の中心Aから断面Cの中心E(冷却装置本体34の中心軸Bと垂直断面Cとの交点)に向かう方向AEとのなす角 θ_1 の角度が $0^\circ \sim \pm 20^\circ$ である場合をいう。

20

【0024】

不活性ガス流入口36から排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流すと、排ガスの流れの中心の排ガスを効率よく冷却することができる。

【0025】

不活性ガス流入口36から不活性ガスを流す方向としては、排ガスの流れる方向において、不活性ガスを流す方向と排ガスの流れる方向とのなす角の角度が $40^\circ \sim 110^\circ$ の角度にすることが好ましい。この場合の「排ガスの流れる方向」とは、冷却設備31及び配管41の中の実際のガスの流れではなく、反応炉11から排出され、冷却装置31の冷却装置本体34及び配管41を通り、フラーレン回収装置16に向かって、流れる方向を指す。すなわち、冷却装置31では、中心軸Bに沿った方向となる。本実施形態において、具体的には、図3(b)に示すように、不活性ガス流入口36の中心Aと冷却装置本体34の中心軸Bを通る断面F(冷却装置本体34の中心軸Bに対して水平方向の断面)において、不活性ガスの流れの中心の流れる方向ADの断面Fへの投影AD₂と、冷却装置本体34の中心軸Bとのなす角 θ_2 は、 $40^\circ \sim 110^\circ$ であることが好ましい。 θ_2 がこの角度範囲内であれば、不活性ガスが燃料ガスの流れを乱す影響が少なくなるため、燃料ガスの燃焼火炎を安定させることができる。さらに、冷却装置31における排ガスの滞留時間が長くなり、その結果、排ガスの冷却効果が高まる。

30

【0026】

なお、不活性ガス流入口36は、冷却装置本体34の側壁37に、二ヶ所以上備えられていることが好ましい。二ヶ所以上の不活性ガス流入口36が、排ガスの流れる方向に対して垂直である同一断面(例えば断面C)上に設けられていることがより好ましく、二ヶ所以上の不活性ガス流入口36が同一断面の円周上に均等に配置されていることがさらに好ましい。

40

【0027】

図4で示すように、不活性ガス流入口36a~dは、側壁37上の断面Cの円周に等間隔で配置されていていてもよい。不活性ガスが矢印($\theta_1 = 0^\circ$ 、 $\theta_2 = 90^\circ$)に沿って、排ガスの流れの中心に向かう方向に流されると、排ガスに対称の流れが発生し、それにより、排ガス全体が均一に効率よく冷却される。対称の流れが発生すると、冷却効果が高まることに加えて、排ガスに含まれる煤状物質が冷却装置31の内壁に付着することを防止することができる。これにより、より多くの煤状物質をフラーレン回収装置に送出す

50

ることができる。

【0028】

第1の不活性ガス流入手段は、さらに不活性ガス流入口36に接続された第1の不活性ガス流入管35を備える。不活性ガス流入管35としては、例えばステンレス鋼製の配管があげられる。通常、不活性ガス流入口36から冷却装置本体34に不活性ガスを流す方向は、不活性ガス流入口36を起点とする、第1の不活性ガス流入管35の冷却装置本体34への延長方向になる。

【0029】

冷却装置31にはさらに、上記の第1の不活性ガス流入手段とは別に、排ガスの流れの中心に向かう方向とは異なる方向に、第2の不活性ガスを流す第2の不活性ガス流入手段が設けられていてもよい。その場合、第2の不活性ガスは、例えば、第2の不活性ガス流入口38から、流入されてよい。第2の不活性ガス流入口38は、冷却装置本体34の側壁37の上記の不活性ガス流入口36とは異なる位置に設けられてもよい。なお、第2の不活性ガス流入手段は、上記第1の不活性ガス流入手段とは異なってもよい。また、本発明の実施態様である不活性ガス流入手段は、3又はそれ以上あってもよい。

10

【0030】

本実施形態において、排ガスの流れの中心に向かう方向とは異なる方向とは、図5(a)に示すように、第2の不活性ガス流入口38の中心Gが位置する冷却装置本体34の中心軸Bに対して垂直である断面Hにおいて、不活性ガスの流れの中心が流れる方向GKの断面Hへの投影GK₁と、第2の不活性ガス流入口38の中心Gから断面Hの中心L(冷却装置本体34の中心軸Bと断面Hとの交点)に向かう方向GLとのなす角 θ_3 の角度が、 $20^\circ \sim 90^\circ$ ($-20^\circ \sim -90^\circ$)である場合をいう。

20

【0031】

また、排ガスの流れる方向において、第2の不活性ガスを流す方向と前記排ガスの流れる方向とのなす角は $40^\circ \sim 110^\circ$ であることが好ましい。具体的に、図5(b)に示すように、第2の不活性ガス流入口38の中心Gと冷却装置31の冷却装置本体34の中心軸Bを通る断面Mにおいて、不活性ガスの流れの中心が流れる方向GKの断面Mへの投影GK₂と、冷却装置本体34の中心軸Bとのなす角 θ_4 の角度は $40^\circ \sim 110^\circ$ であることが好ましい。 θ_4 がこの角度の範囲内であれば、燃料ガスの燃焼火炎を安定させることができるのに加えて、排ガス冷却装置31での滞留時間が長くなり、その結果、排ガスの冷却効果が高まる。

30

【0032】

第2の不活性ガス流入手段はさらに第2の不活性ガス流入口38に接続された第2の不活性ガス流入管を備えることができる。第2の不活性ガス流入管としては、例えばステンレス鋼製の配管が例としてあげられるが、これに限定されない。この場合、第2の不活性ガス流入管の冷却装置本体34の内部への延長方向が、第2の不活性ガス流入口38から不活性ガスを流す方向であってもよい。

【0033】

第2の不活性ガス流入口38は冷却装置本体34の側壁37に、二ヶ所以上に設けられていることが好ましい。また、第2の不活性ガス流入口38の中心Gが位置する排ガスの流れる方向に対して垂直である断面Hと、不活性ガス流入口36の中心Aが位置する排ガスの流れる方向に対して垂直である断面Cとは同一断面であってもよく、異なる断面であってもよい。このように、排ガスの流れの中心に向かう方向とは異なる方向に、第2の不活性ガスが流されると、排ガスの流れの中心だけではなく、排ガスの外周部も効率よく冷却され、冷却装置31の排ガス冷却効果が高まる。

40

【0034】

第1、第2、又はそれ以上の不活性ガスの流入手段による、不活性ガス流入口36や第2の不活性ガス流入口38等から、不活性ガスを冷却装置31内に流入させる方法としては、例えば不活性ガスが充填されたガスボンベにより不活性ガスを供給する方法があげられるが、これに限定されない。流入する不活性ガスの流量は排ガス流量の0.5~1.0倍

50

が好ましい。流入する不活性ガスの流量が排ガス流量の0.5倍以上であれば、冷却効果が得られる。流入する不活性ガスの流量が排ガス流量の10倍以下であれば、減圧装置18の真空ポンプに大きな負荷をかけずに冷却をすることができる。

【0035】

不活性ガスとしては、排ガスと反応しないガスであれば、第1、第2、又はそれ以上の不活性ガスの流入手段によらず、特に限定されない。例えば、窒素ガス、アルゴンガス、二酸化炭素ガス等があげられる。不活性ガスの温度は、200以下であることが好ましく、室温であれば、より好ましい。また、不活性ガスは、室温より低い温度に冷却されていてもよい。この場合は、排ガスの冷却効果がより高まる。

【0036】

本発明の一実施形態に関する冷却装置31によれば、反応炉11から排出される1300～1900のフラレン含有煤状物質を含有する排ガスを300～1000まで冷却することができる。

【0037】

冷却装置31の下部は配管41と接続する。配管41は、例えば、ステンレス鋼管を用いることができる。冷却装置31を通過した排ガスをさらに冷却するため、配管41の全部又は少なくとも一部に冷却手段を設けることが好ましい。冷却手段としては、例えば、配管41の外側に水冷ジャケット42を設けることができる。また、配管41を通過する排ガスの流速は、反応炉11内から落下した付着物が配管41内に堆積しないようにするために、通常、15～200m/秒であり、35～70m/秒であることが好ましい。冷却装置31及び配管41を通過した排ガスは、250以下まで冷却される。

【0038】

配管41の下流側端部は、図1に示した通り、フラレン回収装置16の上部周壁に接線方向に接続されている。フラレン回収装置16は、排ガス中のフラレンを含む煤状物質とガスを分離する高温耐熱フィルター22を備える。高温耐熱フィルター22は、排ガス中の未反応の燃料ガス、一酸化炭素、水蒸気等のガスを通過させて、フラレンを含む煤状物質を回収する。

【0039】

高温耐熱フィルター22は、通常集塵機等に使用されるバッグフィルター構造で構成される。高温耐熱フィルター22の耐熱温度は、200～600が好ましい。高温耐熱フィルター22に用いられる物質としては、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、アラミド繊維、PPS（ポリフェニレンスルフィド）等の樹脂があげられる。また、高温耐熱フィルター22は汎用されているものを用いることができ、市販品としては、例えば、焼結金属フィルター（日本ポール製）、焼結金属フィルター（富士フィルター製）等があげられる。

【0040】

本実施形態では、反応炉11から排出される排ガスは、フラレン回収装置16に至るまでに、400以下、好ましくは250以下まで冷却されるため、高温耐熱フィルター22の劣化を防ぎ、耐用時間を長くすることができる。これにより、フラレンをより安定して製造することが出来る。

【0041】

図1ではフラレン回収装置16の上部に、付着したフラレンを含む煤状物質を落下させる逆洗浄機構23が設けられている。逆洗浄機構23は、高圧の不活性ガス（例えば、窒素ガス、アルゴンガス）等を貯留するタンク24と、電磁弁25と、排出弁26を有する。電磁弁25を定期的に短時間開けることにより、高温耐熱フィルター22内に不活性ガスを入れ、高温耐熱フィルター22に付着したフラレンを含む煤状物質を落下させ、排出弁26を開けて、フラレンを含む煤状物質を外部に排出する。このように、フラレンを含む煤状物質は、非酸化性雰囲気中で保持されている。

【0042】

フラレン回収装置16は、配管27を介して、ガス冷却器17と接続されている。ガ

10

20

30

40

50

ス冷却器 17 は、通常の熱交換器と同一又は類似した構造であり、ガス冷却器 17 内のガスの温度を低下させて真空ポンプ 18 に流入することにより、ガスを減容すると共に、真空ポンプ 18 の負荷を低減させる。また、ガス冷却器 17 は、ガス中の未反応の燃料ガス、水蒸気を液化させ、ガス冷却器 17 の下部のドレーン 28 から排出させる。

【0043】

本発明において、冷却装置 31 を用いて、燃焼法によるフラーレンの製造方法が供される。具体的に、反応炉 11 から排出される排ガスの流れの中心に向かう方向に不活性ガスを流す工程を含む、フラーレンの製造方法が供される。

【0044】

以下の実施例及び比較例により、本実施形態の効果をより明らかなものとする。なお、本実施形態は、実施例に限定されるものではなく、その要旨を変更しない範囲で適宜変更して実施することができる。

【実施例】

【0045】

実施例 1 ~ 15 では、図 1 のフラーレンの製造装置 10 を用いて、フラーレンを生成した。比較例 1 ~ 3 では、図 1 の冷却装置 31 を有しないフラーレンの製造装置（すなわち、ガス排出部 12 が配管 41 と直接に接続する）を用いて、フラーレンを生成した。回収した煤状物質中のフラーレンの含有率を測定して、フラーレンの収率を算出した。

【0046】

実施例及び比較例で用いた反応炉 11 はジルコニア製で、長さは 1500 mm、内径は 74 mm、炉内圧力は 5.33 kPa であった。反応炉内のバーナー 13 の吐出部は、外径が 58 mm の円板状の多孔質のセラミック焼結体で構成されており、このセラミック焼結体には直径 1 ~ 2 mm ほどの孔が吐出口して約 450 ~ 750 個形成されている。

【0047】

実施例及び比較例ともに燃料ガスとしてガス状にしたトルエンを用い、酸素含有ガスとして純酸素を用い、両者の混合ガスを作製して、130 でバーナー 13 に供給した。冷却用の不活性ガスとして 25 の窒素ガスを用い、窒素ガスポンベにより供給した。窒素ガスの流量をマスフローメーターでコントロールすることで調整した。

【0048】

冷却装置本体 34 はステンレス鋼製の円筒で、長さは 150 mm、内径は 74 mm である。冷却装置 31 の側壁 37 には、ステンレス鋼製の内径は 3 mm、長さは 150 mm の不活性ガス流入管 35 が備わっている。不活性ガス流入管の内径は 6 mm であった。

【0049】

実施 1 ~ 15 の不活性ガス流入管は、図 6 で示すように、以下のパターン A ~ C で設置された。

【0050】

パターン A : 図 6 (a) に示すように、a - 1 ~ a - 4 の四ヶ所に等間隔で不活性ガス流入管 36 を設置した。四ヶ所の不活性ガス流入管の中心は、冷却装置本体 34 の中心軸 B に対して垂直である同一断面に位置していた。前記断面と、冷却装置 31 の排ガス流入管 32 との垂直距離は 30 mm であった。

【0051】

パターン B : 図 6 (b) に示すように、図 6 (a) の a - 1 ~ a - 4 に加えて、さらに b - 1 ~ b - 4 の四ヶ所に不活性ガス流入管を設置した。b - 1 ~ b - 4 の四ヶ所の位置は、図 6 (b) に示すように、 $r_1 : r_2 = 1 : 2$ となるように設置した。a - 1 ~ a - 4 と b - 1 ~ b - 4 の計八ヶ所の不活性ガス流入管の中心は、冷却装置 31 の冷却装置本体 34 の中心軸に対して垂直である同一断面上に位置していた。この断面から、冷却装置 31 の排ガス流入管 32 への垂直距離は、30 mm であった。

【0052】

パターン C : 冷却装置の上下段に、不活性ガス流入管が設置された（図 6 (c) と図 6 (d) ）。具体的には、図 6 (c) は冷却装置 31 の上段部を示し、二十四ヶ所の不活性

10

20

30

40

50

ガス流入口が設置された。具体的には、等間隔の c - 1 ~ c - 4 と、c - 1 ~ c - 4 の各々左側に一ヶ所ずつ、右側に四ヶ所ずつの合計六ヶ所の不活性ガス流入口の群を四方向に設置した。なお、c - 1 近傍の 5 ヶ所の不活性ガス流入口は、反時計回り順に隣接させ、できるだけ隙間なく配置させ、c - 2 ~ c - 4 の各々近傍の 5 ヶ所の不活性ガス流入口も同様に配置させた。これらの不活性ガス流入口の中心は、冷却装置本体 3 4 の中心軸に対する垂直である同一断面上に位置していた。前記断面と、冷却装置 3 1 の排ガス流入口 3 2 との垂直距離は 3 0 mm であった。

【 0 0 5 3 】

図 6 (d) は冷却装置 3 1 の下段部を示し、d - 1 ~ d - 4 の四ヶ所に不活性ガス流入口が設置された。具体的には、d - 1 ~ d - 4 の四ヶ所の不活性ガス流入口の中心が冷却装置本体 3 4 の中心軸 B に対して垂直である同一断面上に設置された。

10

【 0 0 5 4 】

上段と下段の間隔（活性ガス流入口の中心が位置する冷却装置本体 3 4 の中心軸に対する垂直である断面の垂直距離）は 2 5 mm であった。

【 0 0 5 5 】

実施例 1 ~ 1 5 の不活性ガス流入口の設置パターン、及び a - 1 ~ a - 4、b - 1 ~ b - 4、c - 1 ~ c - 4、d - 1 ~ d - 4 の不活性ガス流入口から不活性ガスを流入させる方向を表 1 に示す。

【 0 0 5 6 】

実施例 1 ~ 5 の各実施例では、a - 1 ~ a - 4 の四ヶ所の各不活性ガス流入口から同量の窒素ガスを流入させた。実施例 6 ~ 1 1 の各実施例では、a - 1 ~ a - 4 と b - 1 ~ b - 4 の八ヶ所の各不活性ガス流入口から同量の窒素ガスを流入させた。実施例 1 2 ~ 1 5 の各実施例では、上段部（二十四ヶ所の不活性ガス流入口 c - 1 ~ c - 4 の近傍の不活性ガス流入口群）と下段部（d - 1 ~ d - 4 の四ヶ所の不活性ガス流入口）の不活性ガス流入口から流入させる窒素ガスの総流量の比が 3 : 1 になるように調整した。上段部二十四ヶ所の各不活性ガス流入口から同量の窒素ガスを流入させ、下段部の d - 1 ~ d - 4 の四ヶ所の各不活性ガス流入口から同量の窒素ガスを流入させた。

20

【 0 0 5 7 】

実施例 1 2 ~ 1 5 において、上段 c - 1 ~ c - 4 の四ヶ所の不活性ガス流入口から流入させる不活性ガスを流す方向は、表 1 の通りであった。c - 1 の不活性ガス流入口の左側に隣接する一ヶ所及び右側に隣接する四ヶ所の不活性ガス流入口から流入させる不活性ガスの流す方向はいずれも c - 1 と平行になるようにした。c - 2 ~ c - 4 についても c - 1 と同様に、各々に隣接する不活性ガス流入口から平行に流入させた。

30

【 0 0 5 8 】

【表 1】

	不活性ガス流 入口 設置パターン	不活性ガスを流す方向							
		a-1~a-4		b-1~b-4		c-1~c-4		d-1~d-4	
		$\theta 1$	$\theta 2$	$\theta 3$	$\theta 4$	$\theta 1$	$\theta 2$	$\theta 1$	$\theta 2$
実施例1	A	0°	90°	—	—	—	—	—	—
実施例2	A	0°	90°	—	—	—	—	—	—
実施例3	A	20°	90°	—	—	—	—	—	—
実施例4	A	0°	110°	—	—	—	—	—	—
実施例5	A	10°	70°	—	—	—	—	—	—
実施例6	B	0°	90°	42°	90°	—	—	—	—
実施例7	B	0°	90°	42°	90°	—	—	—	—
実施例8	B	10°	90°	42°	90°	—	—	—	—
実施例9	B	10°	90°	42°	90°	—	—	—	—
実施例10	B	0°	100°	42°	90°	—	—	—	—
実施例11	B	0°	100°	42°	100°	—	—	—	—
実施例12	C	—	—	—	—	0°	90°	0°	90°
実施例13	C	—	—	—	—	10°	90°	20°	90°
実施例14	C	—	—	—	—	10°	90°	0°	90°
実施例15	C	—	—	—	—	0°	90°	0°	100°

配管 4 1 は、ステンレス鋼製のパイプであり、内径は 8 0 m m、長さは 5 0 0 0 m m であった。配管の外側には水冷ジャケットを設け、この水冷ジャケットに室温の水を流して配管を水冷した。水の流量は 2 . 4 m³ / 時間であった。

30

【 0 0 5 9 】

排ガス温度を、排出部 1 2 にて測定した。

【 0 0 6 0 】

実施例 1 ~ 1 1 では、冷却装置 3 1 を通過した排ガス温度（以下、「冷却後排ガス温度 1」ともいう）を、不活性ガス流入口の中心位置からフラーレン回収装置 1 6 の方向に向かって 5 0 m m の位置で測定した。実施例 1 2 ~ 1 5 では、冷却後排ガス温度 1 を、下段の不活性ガス流入口の中心位置からフラーレン回収装置 1 6 の方向に向かって 5 0 m m の位置で測定した。比較例 1 ~ 3 では、冷却後排ガス温度 1 の測定は、行わなかった。

【 0 0 6 1 】

フラーレン回収装置に到着する時点の排ガス温度（以下「冷却後排ガス温度 2」ともいう）を、フラーレン回収装置 1 6 と配管 4 1 の接続部にて測定した。

40

【 0 0 6 2 】

表 2 に、排ガス温度、燃料ガス流量、酸素ガス流量、窒素ガス総流量を示す。

【 0 0 6 3 】

〔フラーレン収率の算出〕

フラーレン回収装置 1 6 で回収した煤状物質に含まれるフラーレン（FLN）の含有率の測定は、J I S Z 8 9 8 1 に準拠して、以下のように行った。それぞれの実施例及び比較例で回収した煤状物質 0 . 0 5 g に対して、1 5 g の 1, 2, 3, 5 テトラメチルベンゼン（TMB）を添加し、1 5 分間超音波処理を行った。得られた懸濁液を孔径 0 . 5 μ m メンブランフィルターで濾過した。得られた抽出液を高速液体クロマトグラフィー（

50

H P L C) で分析し、煤状物質に含まれるフラレン (C 6 0、C 7 0) を定量した。得られた煤状物質に対するフラレン量 (質量 %) であるフラレン含有率 () を算出した。あらかじめ既知濃度のフラレンの T M B 溶液を用いて検量線を作成し、フラレンの定量に用いた。フラレンの定量に用いた H P L C の測定条件は以下のとおりであった。

装置：Infinity 1260 (Agilent 製)

試料液の注入量： 5 μ L

溶離液の流量 47 体積比 (vol %) トルエン / メタノール 1 mL / 分

カラム：YMC - Pack ODS - AM 100 * 4.6 mm I D S - 3 μ m , 12 nm

測定温度： 40

ディテクタ：UV 325 nm (J I S)

得られた F L N 含有率からフラレン (F L N) 収率を以下のように算出して、結果を表 2 に示す。

F L N 収率 (%) = (煤状物質回収量 (g) / 燃料消費量 (g)) \times F L N 含有率 (%)
【 0 0 6 4 】

【表 2】

	排ガス温度	燃料ガス量	酸素ガス量	窒素ガス 総量	冷却後排ガス温 度1	冷却後 排ガス温度2	FLN収率
	($^{\circ}$ C)	Nm ³ /時間	Nm ³ /時間	Nm ³ /時間	($^{\circ}$ C)	($^{\circ}$ C)	
実施例1	1498	2.49	7.7	1.24	934	234	0.72
実施例2	1515	2.49	7.7	5.53	433	91	0.89
実施例3	1489	2.49	7.7	5.53	445	94	0.90
実施例4	1494	2.49	7.7	5.53	410	90	0.89
実施例5	1491	2.49	7.7	5.53	457	98	0.87
実施例6	1505	2.49	7.7	1.24	960	221	0.61
実施例7	1489	2.49	7.7	5.53	462	87	0.92
実施例8	1510	2.49	7.7	5.53	470	90	0.91
実施例9	1401	1.12	3.5	1.53	932	212	0.61
実施例10	1387	1.12	3.5	6.79	429	98	0.85
実施例11	1379	1.12	3.5	6.79	440	104	0.83
実施例12	1677	2.8	8.7	18.6	398	82	0.91
実施例13	1685	2.8	8.7	18.6	405	84	0.91
実施例14	1689	2.8	8.7	11.4	587	110	0.87
実施例15	1701	2.8	8.7	6.7	874	143	0.65
比較例1	1500	2.49	7.7	0	—	632	0.27
比較例2	1380	1.12	3.5	0	—	521	0.34
比較例3	1700	2.8	8.7	0	—	723	0.16

表 2 は、実施例 1 ~ 15 並びに比較例 1 ~ 3 の冷却後排ガス温度 1、冷却後排ガス温度 2 及び F L N の収率を各々示したものである。

【 0 0 6 5 】

表 2 によれば、冷却装置 3 1 を用いて、不活性ガスを流すことで、フラーレン回収装置到達時の排ガス温度（冷却後排ガス温度 2 ）を 2 5 0 以下まで冷却することが確認された。

【 0 0 6 6 】

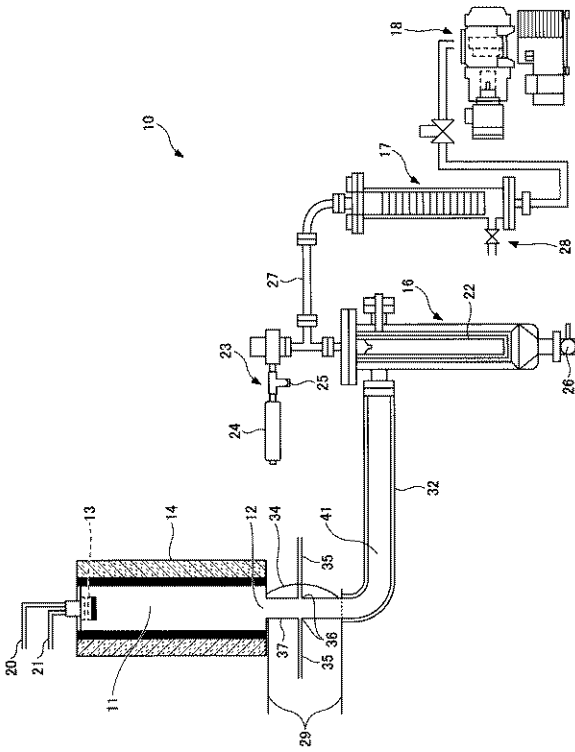
フラーレン収率は、比較例と比較すると、有意に向上していることが示された。

【 符号の説明 】

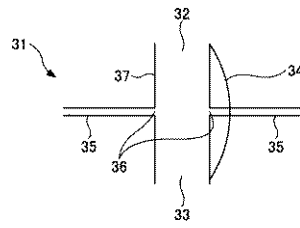
【 0 0 6 7 】

1 0	フラーレンの製造装置	
1 1	反応炉	10
1 2	排出部	
1 6	フラーレン回収装置	
3 1	冷却装置	
3 2	排ガス流入口	
3 3	排ガス流出口	
3 4	冷却装置本体	
3 5	不活性ガス流入管	
3 6	不活性ガス流入口	
3 7	側壁	
3 8	第 2 の不活性ガス流入口	20
4 1	配管	
4 2	水冷ジャケット	
a - 1 ~ a - 4	不活性ガス流入口配置位置	
b - 1 ~ b - 4	不活性ガス流入口配置位置	
c - 1 ~ c - 4	不活性ガス流入口配置位置	
d - 1 ~ d - 4	不活性ガス流入口配置位置	

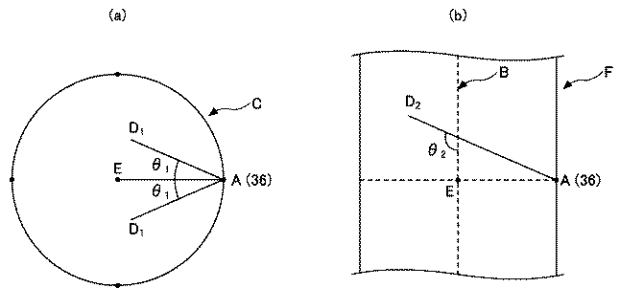
【図1】



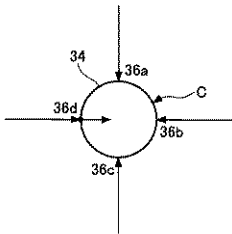
【図2】



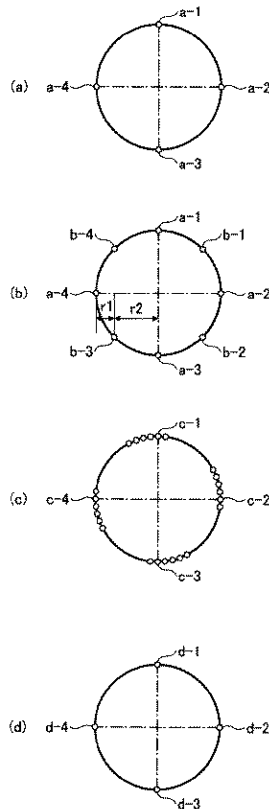
【図3】



【図4】



【図6】



【図5】

