



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                   |
|---------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | 微小重力場における拡散火炎中に生成されるスス粒子塊の挙動                                                      |
| Author(s)           | 伊東, 弘行                                                                            |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                             |
| Degree Name         | 博士(工学)                                                                            |
| Dissertation Number | 甲第3621号                                                                           |
| Issue Date          | 1995-03-24                                                                        |
| DOI                 | <a href="https://doi.org/10.11501/3082623">https://doi.org/10.11501/3082623</a>   |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/32650">https://hdl.handle.net/2115/32650</a> |
| Type                | doctoral thesis                                                                   |
| File Information    | 3621.pdf                                                                          |



微小重力場における  
拡散火炎中に生成される  
スス粒子塊の挙動

伊東 弘行



# 目 次

|                                          |    |
|------------------------------------------|----|
| 第1章 序論.....                              | 1  |
| 1.1 微小重力環境の利用.....                       | 2  |
| 1.2 微小重力場における燃焼現象.....                   | 6  |
| 1.3 本研究の目的および概要.....                     | 8  |
| 第2章 ススの生成機構に関する研究の動向<br>および微小重力実験手法..... | 17 |
| 2.1 ススの生成機構.....                         | 18 |
| 2.1.1 スス生成機構概説.....                      | 18 |
| 2.1.2 気相析出型スス生成の中間体.....                 | 19 |
| 2.1.3 ススの構造.....                         | 22 |
| 2.2 微小重力実験手法.....                        | 23 |
| 2.2.1 自由落下施設.....                        | 23 |
| 2.2.2 落下カプセルおよび実験装置搭載用ラック.....           | 26 |
| 2.2.3 装置インターフェイス.....                    | 29 |
| 第3章 微小重力場における拡散火炎中スス粒子塊生成.....           | 33 |
| 3.1 概要.....                              | 34 |
| 3.2 微小重力場における噴流拡散火炎のスス生成.....            | 34 |
| 3.2.1 供試燃料の選択.....                       | 34 |
| 3.2.2 実験装置.....                          | 36 |
| 3.2.3 ブタン噴流拡散火炎中に生成されるスス粒子塊.....         | 42 |
| 3.3 スス粒子塊の捕集.....                        | 45 |
| 3.3.1 粒子捕集装置.....                        | 45 |
| 3.3.2 電子顕微鏡観察結果.....                     | 47 |
| 3.4 スス粒子塊生成におよぼす点火条件の影響.....             | 52 |

|                                  |    |
|----------------------------------|----|
| 3.5 生成スス粒子塊の経時変化.....            | 54 |
| 3.5.1 生成スス粒子塊の移動速度.....          | 54 |
| 3.5.2 生成スス粒子塊の凝集.....            | 54 |
| 3.5.3 生成スス粒子塊の酸化.....            | 58 |
| 3.6 スス粒子塊生成への燃料の種類の影響.....       | 62 |
| 3.6.1 使用実験装置.....                | 62 |
| 3.6.2 燃料の種類の影響.....              | 63 |
| 3.7 まとめ.....                     | 68 |
| <br>第4章 スス粒子塊生成への気体流速の影響.....    | 70 |
| 4.1 概要.....                      | 71 |
| 4.2 火炎周囲残留対流のスス粒子塊生成への影響.....    | 71 |
| 4.3 バーナ内径のスス粒子塊生成への影響.....       | 73 |
| 4.3.1 使用バーナ.....                 | 73 |
| 4.3.2 平均燃料流速のスス粒子塊生成への影響.....    | 74 |
| 4.4 局所噴流のスス粒子塊生成への影響.....        | 76 |
| 4.4.1 噴流発生装置.....                | 76 |
| 4.4.2 局所噴流のスス粒子塊生成への影響.....      | 77 |
| 4.5 火炎周りの気体流速.....               | 78 |
| 4.5.1 流速測定.....                  | 78 |
| 4.5.2 火炎周りの気体流速.....             | 80 |
| 4.6 生成開始点に及ぼす燃料流速の影響.....        | 81 |
| 4.7 燃料供給形態の違いによるスス粒子塊生成への影響..... | 84 |
| 4.7.1 セラミックファイバ挿入バーナ.....        | 84 |
| 4.7.2 燃料供給形態の影響.....             | 85 |
| 4.8 まとめ.....                     | 88 |
| <br>第5章 スス粒子塊生成領域.....           | 90 |

|                                  |     |
|----------------------------------|-----|
| 5.1 概要.....                      | 91  |
| 5.2 円管バーナにおけるスス粒子塊生成領域.....      | 91  |
| 5.3 スス粒子塊生成への雰囲気酸素濃度の影響.....     | 93  |
| 5.4 スス粒子塊生成領域周辺の温度分布.....        | 97  |
| 5.4.1 温度測定装置.....                | 97  |
| 5.4.2 微小重力火炎の温度の時間変化.....        | 99  |
| 5.4.3 スス粒子塊生成領域周辺の温度分布.....      | 105 |
| 5.5 まとめ.....                     | 110 |
| <br>第6章 スス粒子塊生成条件に関する検討.....     | 112 |
| 6.1 概要.....                      | 113 |
| 6.2 計算モデル.....                   | 113 |
| 6.3 火炎近傍の化学種濃度分布.....            | 117 |
| 6.4 スス粒子塊生成条件.....               | 119 |
| 6.5 まとめ.....                     | 127 |
| <br>第7章 スス粒子塊生成の制御.....          | 130 |
| 7.1 概要.....                      | 131 |
| 7.2 スス粒子塊生成への磁場の影響.....          | 131 |
| 7.2.1 磁場の化学種への影響.....            | 131 |
| 7.2.2 磁場燃焼実験装置.....              | 134 |
| 7.2.3 スス粒子塊生成への磁場の効果.....        | 138 |
| 7.3 回転噴流によるスス粒子塊生成の制御.....       | 141 |
| 7.3.1 軸回転バーナ.....                | 141 |
| 7.3.2 燃料噴流の回転によるスス粒子塊生成への影響..... | 143 |
| 7.4 まとめ.....                     | 150 |
| <br>第8章 結論.....                  | 152 |

|           |     |
|-----------|-----|
| 参考文献..... | 161 |
|-----------|-----|

|         |     |
|---------|-----|
| 謝辭..... | 166 |
|---------|-----|

# 第 1 章

## 序 論

## 1.1 微小重力環境の利用

1957年10月、世界初の人工衛星スプートニク1号(旧ソ連)が地球を周回し、人類の宇宙環境の利用という扉が開かれた。その後、1961年の有人宇宙飛行、1969年の人類月着陸、さらには米国のスペースシャトル打ち上げにより宇宙開発は急速に進展してきた。これまで通信衛星、気象衛星、放送衛星などの各種衛星が数多く打ち上げられ地球を周回しており、宇宙開発の商業化が進められている。現在では衛星を利用した放送やカーナビゲーションシステムなどがかなり普及しており、宇宙開発の民間レベルへの寄与も増大してきた。

人工衛星は地上からの距離を大きくとるために周回軌道あるいは静止軌道を利用するものであり、広い意味の”宇宙環境の利用”である。狭い意味の宇宙環境の利用という観点で宇宙を捉えると、無重力環境、高真空環境、極低温環境[1]の利用が挙げられる。また宇宙空間の強い放射線の利用についても研究されている[2]が、高真空環境および極低温環境とともに、これらの利用については地上でもそのような環境を比較的容易にある程度実現可能であり、宇宙環境である必然性は小さい。これに対し無重力環境は、地上では現在のところ10秒以上の期間を得ることが困難であり、地上と比較すると宇宙環境のなかで最も特徴的な環境であるといえる。このように無重力環境で代表される宇宙環境では、地上の環境では得られないような現象の生じることが期待され、その利用が注目を集めている。

地上では、全ての物体に $9.80665 \text{ m/s}^2$ (1G 国際協定標準値)の重力加速度が加わっており[3]、この重力加速度に比例した重力を受けている。地球の周りを回るスペースシャトルや衛星などでは、同時に重力を打ち消すような遠心力が働くため、見かけ上重力が働かないような状態にな

る。しかし実際に重力が”無”になるのではなく、わずかに重力加速度は存在するため、厳密に言えば”微小重力 Microgravity:  $\mu G$ ”状態である。本研究では以後、”微小重力”という表現を用い、これに対して1Gである地上の環境を”通常重力”と呼ぶ。

微小重力環境下では、以下のように特徴的な物理現象が現れる。

#### (1) 熱対流の減少

地上では液体あるいは気体の内部に温度差があると密度差による熱対流が生じるが、微小重力環境下ではこの対流が生じない。このため熱や物質の輸送現象が通常重力環境下とは大きく異なる。合金などの凝固過程における結晶成長が影響を受け偏析を抑えられるほか、流体や燃焼現象の解明に有用であると期待されている。

#### (2) 沈降、浮力の減少

比重差がなくなるため、地上では混合が困難である比重の異なる物質の均一な混合が可能である。多成分物質の均質混合が可能であり、地上では製造が困難である複合材料、そして地上よりも良質な複合材料を製造することが可能である。また電気泳動などによる物質の分離、精製において、わずかな電荷の差を利用できる。

#### (3) 自重による変形、静圧の減少

通常重力環境下で見られるような物体の自重による内部応力や変形が生じない。また流体内の静圧が生じないため、欠陥や歪みのない完全な結晶成長が可能である。

#### (4) 物体の浮遊

固体あるいは液体物質を空間に浮遊させることが可能である。容器と接触させることなくそれらを加熱、溶融、あるいは反応させることが可能であるため、不純物の混入や容器との間の熱応力が生じない。これにより超高純度物質のほか、真球に近い球状物質などを製造することが可能である。

微小重力環境を得る手段として、現在様々な手段が用いられている。図1. 1に、微小重力実験手段を示す。旧ソ連の「ミール」や現在国際協力のもとに計画が進められている「フリーダム」などの宇宙ステーションでは数年から数十年と、半永久的な微小重力環境が得られる。フリーフライヤやスペースシャトルでは数日間から数カ月間にわたる実験が可能である。1992年9月にFMPT (First Material Processing Test)に参加した

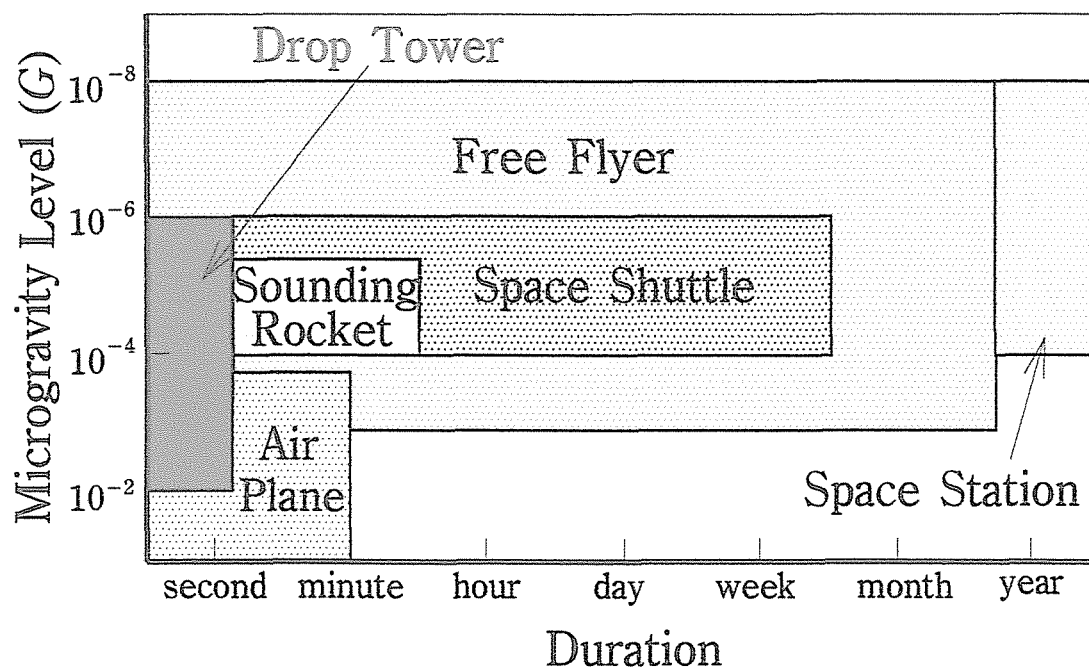


図1. 1 微小重力実験手段[4]



日本人初の宇宙飛行士の毛利衛氏が搭乗したエンデバー号、IML-2 (International Microgravity Laboratory-2)に参加した日本人女性初の宇宙飛行士の向井千秋氏が搭乗したコロンビア号スペースラブではそれぞれ約8日、15日間宇宙で実験を行っている。これらの手段では、長期間の微小重力環境が得られ、有人で実験を行うことが可能などの利点があるが、実験計画の発案から実験実施までの時間が非常に長い、実験機会が非常に少ない、コストが非常に高いなどの問題点もある。

スペースシャトルやフリーフライヤに比べて短い微小重力環境期間では、小型ロケットや航空機による弾道飛行、高空へ上昇した気球からの自由落下、そして地上の落下塔などによる自由落下による手段がある。小型ロケットでは数分の微小重力期間が得られるが、打ち上げおよび再突入時に過大な加速度を受ける。航空機では10～20秒の微小重力期間を数～数十回、機体の急上昇および急降下により得る。微小重力の質があまり良くないが、研究者が搭乗して直接、実験の操作を行える利点がある。

地上の落下塔では数秒の微小重力期間が得られる。落下塔の最大の利点は比較的实验機会を頻繁に得られ、かつ実験費用が安価であることである。スペースシャトルや小型ロケットでは実験機会が多くとれず、また高価である。航空機実験は比較的实验の柔軟性を持ち、かつ実験費用も安価であるが、微小重力の質に問題を抱えている。落下塔を用いた実験では、微小重力期間は短いが良好な微小重力の質および実験の柔軟性を有し、比較的安価で、かつ実験機会を多く得られるという点において優れている。本研究では、このように比較的容易に質の良い微小重力実験を実行できる落下塔を微小重力環境を得る手段として使用した。

現在まで行われている微小重力環境を利用した研究は材料生成、生物学、燃焼を含む熱流体物理の分野など多岐にわたっており、その動向が注目を集めている。

## 1.2 微小重力環境下の燃焼現象

上述したように、微小重力環境下では物理現象が通常重力環境下でのものと大きく異なるが、燃焼現象もまた通常重力環境下のものと異なることが報告されている[5]–[7]。

燃焼現象は多量の発熱をともなう自己継続的な発熱化学反応である。反応によって生じる熱エネルギーは燃焼反応部付近の比較的狭い領域の気体温度を上昇させる。通常重力環境下では、燃焼反応部付近の気体温度は火炎温度を最大として火炎から遠ざかると低下し、例えば炭化水素燃料( $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_3\text{H}_8$ ,  $\text{C}_4\text{H}_{10}$ 等)の火炎では周囲温度が常温の時にはおよそ2000℃もの温度差が火炎と周囲温度との間に生じる[8]。このため温度差に起因する自然対流が火炎付近に発生する。拡散火炎においては火炎の性質が火炎付近の可燃性気体あるいは酸化剤の濃度分布に依存し、またこれらの化学種濃度分布は火炎付近の流れ場に依存する[9]。従って通常重力環境下では自然対流が燃焼現象、とくに拡散燃焼に大きく影響する。一方、微小重力環境下では火炎付近の温度差による自然対流が生じないため、化学種および熱の輸送が通常重力環境下とは異なり、またその結果燃焼現象そのものが大きく異なることが予想される。

微小重力環境、とくに落下塔などの短時間の微小重力環境を利用した実験として、燃焼実験は実に適しているといえる。その理由の一つには燃焼反応、燃焼速度が一般に極めて速く(通常の炭化水素-空気の層流最大燃焼速度は0.3~0.5 m/s)[10]、燃料の種類や燃焼器にもよるが、反応の完了までに要する時間が短いということが挙げられる。このため非常に短時間の微小重力環境においても実験が可能である。もう一つの理由は、通常重力環境下の燃焼現象が自然対流の影響により複雑化されており、同環境下では現象の解明が困難であることである。微小重力環境を利用することにより、現象を複雑化している自然対流を排除し、燃焼機構の解明を容易にするとともに、通常重力環境下では重力の影響によ

り抑制されている現象を顕在化できる可能性もある。このような観点から、微小重力環境下の燃焼現象について、次に述べるように現在まで多くの研究が行われている。

微小重力環境下での燃焼現象についての研究は、熊谷らにより先鞭をつけられた。熊谷らはn-heptane、エタノールの単一液滴について燃焼実験を行い、微小重力環境下ではほぼ球形の火炎が形成されるのを確認した[11]。その後継続して研究を行い、微小重力環境下での液滴の蒸発定数を示し[12]-[14]、自然対流の効果を明らかにした[15]。単一液滴および液滴列の燃焼の研究は噴霧燃焼現象の解明に直接応用できるため、その着火および燃焼現象について、現在まで多くの研究が行われている[16]-[20]。

可燃性固体の燃焼についても多くの研究が行われている。Kimzeyらは、パラフィンやナイロンなどの可燃性固体の燃焼について研究を行い、微小重力環境下における燃焼温度の低下、反応帯でのラジカルの増加を示唆した[21]。Andracchioらは、セルロースアセテートの燃焼について実験を行い、試料厚さが厚い場合に重力の影響が大きくなることを報告した[22]。Salvaらは、PMMAの棒と管について垂直下方燃え広がり速度を調べ、細い棒および薄肉管では微小重力環境下の方が通常重力環境下よりも燃え広がり速度の大きいことを示した[23]。これらの他、Olsonらのセルロースの燃焼[24]およびベルクロ(マジックテープの一種)の燃焼[25]、Spucklerらの炭素棒の燃焼に関する研究[26]などが報告されている。

微小重力環境下での気体燃料の燃焼に関する研究も多く行われている。Cochranは、メタンの層流噴流拡散火炎について実験を行い、微小重力環境下の火炎が定常火炎、遷移火炎、および消炎の三種類に分類されることを示した[27]。Cochranらは水素、エチレン、プロピレンについて燃焼実験を行い、燃料流速と火炎長の関係を示している[28][29]。また

気体燃料に関するEdelmanら[30]をはじめ多くの研究が報告されている[31][32]。

微小重力環境下では固体微粒子群を静止浮遊させることが可能であることを利用した固体微粒子群の燃焼についての研究も行われており、火炎伝播速度、燃焼速度に関して報告されている[33][34]。

### 1.3 本研究の目的および概要

前節において、微小重力環境という自然対流の生じない特殊な環境を利用した様々な燃焼実験が行われていることを示した。これらの研究では、燃焼特性としては基本的な、火炎形状や燃え広がり速度に着目したものが多。

燃焼現象を扱う場合に、火炎の性質を把握することは極めて重要である。しかし同時に燃焼の結果排出される燃焼生成物についても配慮しなければならない。近年、燃焼の結果排出される一酸化炭素、未燃炭化水素、 $SO_x$ （イオウ酸化物）、 $NO_x$ （窒素酸化物）、そしてススを含む微粒子などの環境汚染物質[35]が問題となっている。これら燃焼生成物の生成機構および生成条件を明らかにすることは極めて重要である。

上述のように、微小重力環境下では自然対流が生じないため火炎付近の流速および化学種濃度が通常重力環境下とは異なることが予想される。それにともない、燃焼生成物の生成について通常重力環境下ではとられなかった効果が顕在化する可能性を有している。微小重力環境下で燃焼生成物生成についての実験を行い、自然対流のじょう乱を受けない状態での燃焼生成物排出特性などの知見を得ることにより、燃焼生成物の生成機構解明に役立つと考えられる。しかし微小重力環境下の燃焼現象に関する研究の中で、燃焼生成物についての研究はこれまで極めて少なく、Kuら[36]、Faethら[37]による気体燃料の燃焼におけるスス、津

江ら[38]による液滴燃焼におけるススに関する研究が見られるだけである。そのような背景として、微小重力実験を行う環境がこれまで整っていなかったということが挙げられる。微小重力環境を得る手段のうちスペースシャトル、フリーフライヤ、小型ロケット(サウンディングロケット)などは、上述したように実験費用や実験機会、実験の柔軟性に問題がある。また従来使用している落下塔では、得られる微小重力期間が5秒程度と短く、燃焼現象そのものは短時間で完了するがサンプリングや計測に時間を要することから、十分な微小重力期間とはいえなかった。また装置搭載容量が小さく、サンプリングなどに必要な機器を搭載することが困難である上に、落下後の制動の衝撃が大きいため精密な機器を搭載することも困難であった。

1991年に(株)地下無重力実験センター(Japan Microgravity Center: JAMIC)の大型落下施設が北海道上砂川町に建設された。この落下施設では得られる微小重力期間が約10秒と、従来の落下塔に比べ長い微小重力期間を得ることが可能である。実験装置搭載容量も従来に比べると十分にあり、制動の衝撃も10 G以下と小さい。

本研究では、この高い頻度で実験を行うことが可能であり比較的長い微小重力期間を得ることができる落下施設の特長を活かし、従来の研究ではあまり扱われていない微小重力環境下で生成される燃焼生成物のなかで、拡散火炎の典型的な燃焼生成物であるススの挙動を取りあげた。

本研究では、対象燃料として発煙傾向の低い気体燃料のうちブタンを用い、微小重力環境下で単一円管バーナに形成した拡散火炎の挙動を観察した。その結果、図1. 2に示すように微小重力環境下のブタン噴流拡散火炎に、視認できるほど大きな輝く粒子のようなものが観察された。これは通常重力環境下では見られない現象であり、従来の微小重力環境を利用した燃焼研究においても報告された例のないものである。



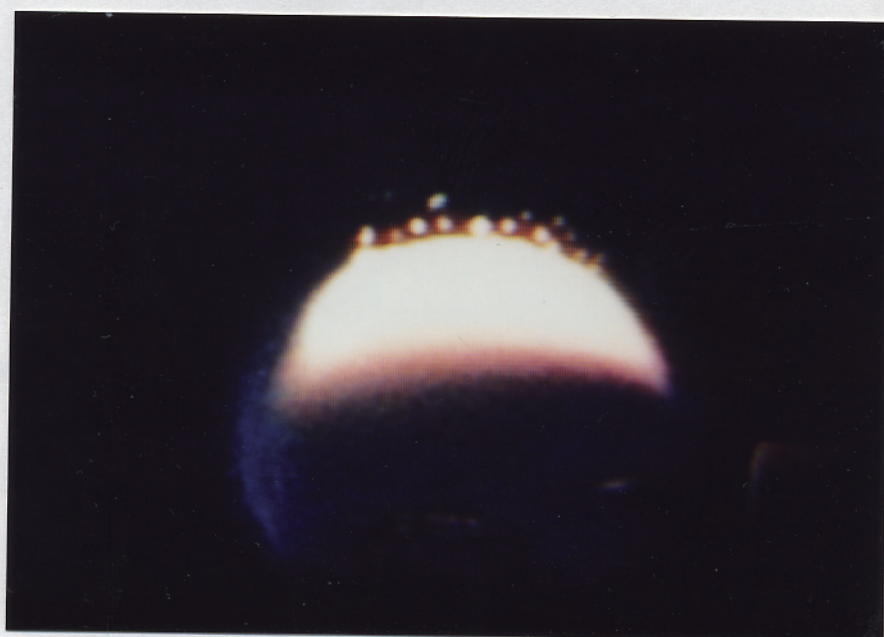


図1. 2 微小重力環境下のブタン噴流拡散火炎に見られる粒子

本研究の第一の目的は、この微小重力環境下の拡散火炎に特徴的に見られる輝く粒子が何であるのかを確認し、その挙動を明らかにすることである。本研究では、この輝く粒子が火炎の輝炎後流部に見られること、そしてスス粒子の発光である輝炎と同様に輝いていることなどから、火炎中で生成されたスス粒子が微小重力環境という特殊な環境で凝集し、巨大化したものであると予想された。このため、微小重力環境下の噴流拡散火炎に生成している粒子を捕集し、電子顕微鏡観察を行った。その結果、この輝く粒子はスス粒子が凝集したものであることが判明した。本研究では、この微小重力環境下で特徴的に生成される巨大化したスス凝集粒子をスス粒子塊と呼んだ。Kuら[36]により、プロパン、エチレンを用いた乱流噴流拡散火炎においてスス粒子の凝集の傾向が指摘されているが、図1. 2に見られるように視認できるほど巨大化することは報告されていない。

スス粒子の凝集に関しては、スス基本粒子を形成する際の粒子径が小さい場合の凝集についてはかなり理論が確立されている[39][40]。しかし、基本粒子の凝集過程については、粒子が電荷により凝集するのかどうか、あるいはスス凝集体の凝集形状が何により決定されるのかなど未だ不明な点が多い。本研究で扱うスス粒子塊では、凝集径が大きいいため巨視的に凝集の様子を観察できる可能性を有しており、そのためスス粒子凝集過程についての知見を深めるには有効である。

本研究の第二の目的は、微小重力環境下においてスス粒子塊を生成する火炎の性質を捉え、スス粒子塊の生成する条件を明らかにし、スス粒子塊生成の支配因子を明らかにすることである。本研究で観察されたスス粒子塊生成現象は、これまでに報告されていない新しい現象であるため、スス凝集に関する知見を深める意味においてもその生成機構を解明する必要がある。

通常重力環境下のスス粒子凝集では、スス粒子の凝集径は滞留時間に依存することが知られている[39]。すなわち流速の影響を受ける。しかし通常重力環境下の火炎においては自然対流をとまなう火炎の性質上、長い滞留時間を得ることが困難であるため、気体燃料の火炎に生成されるスス粒子がどの程度の凝集径にまで達し得るものなのかは知られていない。

本研究では、まず通常重力環境下で同一条件(バーナ径、燃料流量、雰囲気酸素濃度)の火炎においてスス粒子塊生成が見られないこと、そして通常重力環境下のスス粒子凝集が滞留時間に大きく依存するという結果から、火炎周りの気体の流れ、すなわち滞留時間がスス粒子塊生成に大きく影響していると考え、この効果について調べた。そしてスス粒子塊生成には、通常重力環境下のスス粒子生成と同様に滞留時間が大きく影響することが確認された。また同時に、スス粒子塊生成領域付近の温度、化学種濃度分布が影響していることが示唆された。

スス粒子塊生成の生成条件を確認するためには、まず微小重力環境下においてスス粒子塊が生成されている領域を明確にする必要がある。そこで本研究では火炎を二つの角度から捉え、円管バーナに形成した火炎のスス粒子塊生成領域が火炎上部に均一に分布しているのではなく火炎周囲にリング状に分布していることを明らかにした。

通常重力環境下の火炎におけるスス粒子生成では、酸素濃度が増加すると生成スス量が増加することがWeyら[41]、Vandsburgerら[42]により報告されている。また通常重力環境下の拡散火炎に生成されるスス粒子生成は温度の影響を受け、スス量およびスス生成速度は高温において大きくなる[43]。これらの結果からもスス生成において温度や化学種濃度分布が大きく影響していると考えられる。

本研究ではスス粒子塊生成への温度の影響を調べるため、微小重力環



境下の火炎周りの温度測定を行った。

化学種濃度の測定にはサンプリング、レーザを用いた吸収法、ラマン散乱法、CARS法およびLIF法などがある。しかし、サンプリングでは実験運行時間が比較的長くサンプルガスの回収に時間がかかるという問題がある。一方レーザでは実験装置搭載寸法の制約から装置の搭載および十分な光路長の確保が現在広く使用されている装置では容易ではなく、いずれも現段階では困難である。このため、本研究では簡易シミュレーションを行い、火炎周りの化学種濃度分布の予測を行った。

本研究の第三の目的は、微小重力環境下でスス粒子塊の生成を制御し火炎構造の変化によるスス粒子凝集の変化を捉え、本研究で得られたスス粒子塊生成機構について確認するとともに、微小重力火炎に関する研究への応用の指針を探ることである。

本研究では、このため二つの手段を用いた。一つには、火炎周りに勾配磁場環境を与え、火炎への酸素供給を大きくすることにより、スス粒子の酸化を促進しスス粒子塊生成を抑制するものである。そして二つめには、スス粒子塊を生成している火炎においてバーナをバーナ軸周りに回転させ、燃料流に周方向の分速度を与えることにより、火炎内側で生成するスス粒子を酸化領域を通過させずに火炎内に取り込み、スス粒子塊を多く生成させるものである。

以下に本研究論文の章構成に関し概説する。

第2章においては、これまでに行われているスス生成機構に関する研究の動向およびススについての基本的な情報のまとめ、および本研究で使用した微小重力実験施設の概要を示した。

第3章においては、本研究ではじめて発見された微小重力環境下で生

成される粒子を捕集し、電子顕微鏡観察を行った結果、火炎に見られた輝く粒子は拡散火炎中で生成されたスス粒子が凝集し、巨大化したものであることを確認した。本研究ではこの微小重力環境下で巨大に凝集した粒子をスス粒子塊と呼ぶが、スス粒子塊の凝集径は通常重力環境下で生成されるスス粒子凝集体の200～500倍にも達することが明らかとなった。このスス粒子塊生成は、点火時の重力条件によらず微小重力環境下の拡散火炎に観察されたことから、微小重力環境で自然対流による物体力の消失により観察される現象であることを明らかにした。

また、スス粒子塊生成の現象観察を行い、視認できるほど巨大化したスス粒子塊が火炎中で合体あるいは分裂し、スス粒子塊数は粒子の合体が進むバーナ下流へ行くにしたがい急激に減少することが確認された。またアルゴンイオンレーザ光源による火炎のシュリーレン撮影を行った。その結果、火炎通過後のスス粒子塊はその輝きを失い観察されなくなるが、スス粒子塊は酸化により消失するのではなく、温度低下にともなう輝度の低下により観察されなくなった火炎下流部においても存続して飛行することを確認した。

さらに燃料の種類の影響を調べるため、紙、ろうそく、エチレン、およびメタンについて微小重力燃焼実験を行い、メタン以外の燃料についてスス粒子塊が生成されることを明らかにした。

第4章においては、スス粒子塊の生成条件を探る第一段階として火炎周りの流速の影響について調べ、検討を行った。火炎周りの気体流速が大きい場合にはスス粒子塊が生成されないことが明らかになった。平均燃料流速の影響についても実験を行い、平均燃料流速が大きい場合および極めて小さい場合にはスス粒子塊が生成されないことを確認した。スス粒子塊を生成する火炎では、平均燃料流速が大きくなると、スス粒子塊が生成される位置がバーナリムより離れ、平均燃料流速がスス粒子塊生成位置に影響することを明らかにするとともに、スス粒子塊生成が温

度や化学種濃度により影響されることを示唆した。

第5章においては、微小重力環境下の円管バーナに形成される拡散火炎のスス粒子塊生成領域を確認し、スス粒子塊の生成条件を探る第二段階として、雰囲気酸素濃度の影響について調べた。雰囲気酸素濃度が高い場合(30、40、50%)にはスス粒子塊生成が10秒の微小重力期間継続するが、低い酸素濃度(21%)では継続しないことが明らかになった。

さらにスス粒子塊生成条件を探る第三段階として火炎周りの温度を調べた。スス粒子塊を生成する火炎の火炎温度は、通常重力環境下における同条件の火炎の温度よりもかなり低い、通常重力環境下においてスス粒子生成核の生成する温度とほぼ同じ温度であり、スス粒子が生成される条件にあることが明らかになった。これに対し通常重力環境下の火炎では火炎温度が高いためスス粒子生成が行われるが、火炎温度が高いことにより酸化が進むためと考えられた。

第6章においては、簡易シミュレーション計算により火炎周りの化学種濃度分布を予測した後に、スス粒子塊生成条件に関する検討を行った。スス粒子塊生成開始点付近では酸素の供給が多く、燃焼反応も多く生じているが、スス粒子塊が下流へ移動して凝集する過程では酸素濃度の低い領域へ移動することになるため、酸化されにくい条件であることがわかった。

微小重力環境下におけるスス粒子塊生成過程は次のように考えられた。スス粒子塊生成開始点付近では、火炎温度がススを生成するに十分な温度および反応に必要な酸素を有している。生成したスス粒子が凝集する領域は酸素濃度が低く、また火炎温度が通常重力環境下のものに比べ低いため、通常重力環境下の火炎よりも酸化が進行しにくい。火炎周りの流速が通常重力環境下の火炎に比べ小さく滞留時間が長いため凝集が進行し、巨大なスス粒子塊生成に至る。

さらに、燃料流速の小さい火炎において、火炎内で火炎内側へスス粒子塊の移動軌跡が曲がることが確認された。スス粒子塊が流れの方向に逆らって火炎内側へ移動することから、スス粒子には火炎内側へ向かう力が作用しており、この効果がスス粒子塊の生成に関して大きな要素となっていると考えられた。

第7章においては、微小重力環境下のスス粒子塊生成を制御する手段として勾配磁場および回転噴流を用い、それぞれスス粒子塊生成の制御に効果のあることを確認した。

第8章は、本論文における結論である。

## 第 2 章

ススの生成機構に関する  
研究の動向および微小重力実験手法

## 2.1 ススの生成機構

### 2.1.1 スス生成機構概説

燃焼過程で生成されるススは、(a)残炭形ススと(b)気相析出型ススに大別される[44]。残炭型ススは、重質油や石炭の燃焼時に、残留重質分やチャーが未燃のまま排出されるもので、スス粒径は数百 $\mu\text{m}$ の大きさのものも存在し、気相析出型ススよりも大きい。

気相析出型ススの生成経路は図2.1のように考えられている。

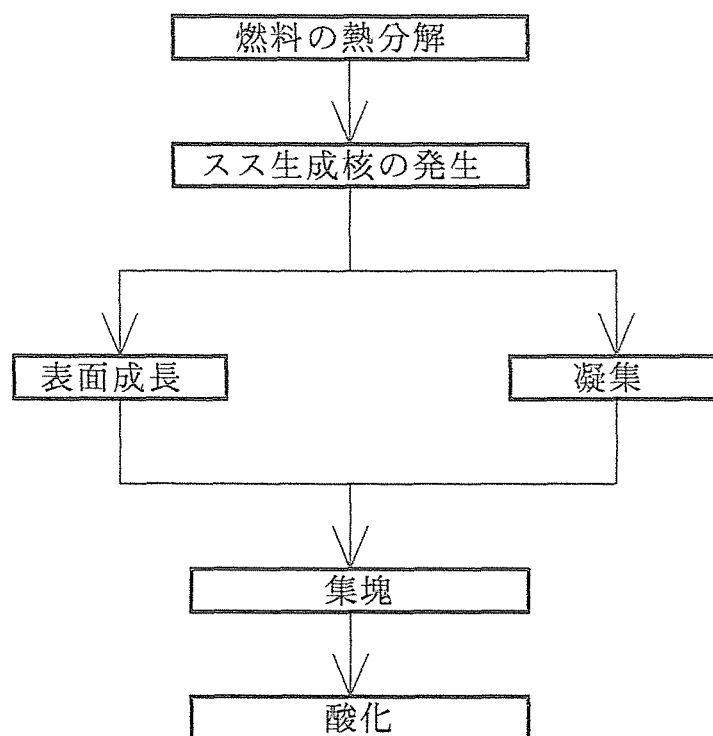


図2.1 気相析出型ススの生成経路

図2. 1に示したススの生成経路は、現在最も確からしいと考えられているスス生成の主要経路である。

スス生成の核となる最初の凝縮物は燃料の酸化物あるいは熱分解物から生じる。それらは多くの不飽和炭化水素を含有している(とくにアセチレン、 $C_{2n}H_2$ 、多環芳香族炭化水素)。凝縮の後、大量の水素原子を含んだ凝縮物は高温場で脱水素し、物理的、化学的に気相炭化水素を吸着し、最初のススが発生する。この粒子の直径はとても小さく、 $20\text{Å}$ 以下である。この粒子の生成される領域は初期反応領域という狭い領域である。拡散火炎では、燃料の種類によらず、スス生成核は約 $1400\text{K}$ で発生する[45]。発生した粒子表面へ気相化学種の吸着および化学的再結合により表面成長が進行する。成長した粒子は衝突、合体により凝集し、さらに集塊する。同時に酸化も生じ、気相へ戻るものもある。表面成長ではスス量( $\phi$ )は増加するがスス粒子数( $N$ )は変化しない。逆に凝集や集塊では、スス量( $\phi$ )は変化しないが、スス粒子数( $N$ )は増加する。粒子直径( $d$ )の増大は、表面成長および凝集、集塊が同時に生じた結果である。スス量( $\phi$ )、スス粒子数( $N$ )および粒子直径( $d$ )の間には  $\phi = \pi/6 \cdot N \cdot d^3$  の関係がある。生成された粒子は $O_2$ や $OH$ などの酸化化学種により酸化され、 $CO$ や $CO_2$ のような気相生成物となる。燃焼器から排出されるススは、これら生成と酸化のバランスの結果であり、このようなスス生成は数ミリ秒という非常に短い時間内に生じる。

## 2. 1. 2 気相析出型スス生成の中間体

気相析出型ススの生成核発生機構については、現在多くの説がある。以下に主なものを挙げる。

### (1)アセチレン中間体説

- (2)多環芳香族(PAHあるいはPCAH)中間体説
- (3)炭化水素イオン中間体説
- (4)液滴生成核説
- (5)フラーレン関与説
- (6)均一核生成機構説

以下に各々の詳細について述べる。

#### (1) アセチレン中間体説

これはアセチレン炎がススを生成しやすいこと、燃料の熱分解物にアセチレンが存在することなどから、提唱されている。しかし、Cullisら[46]の研究によりアセチレンがスス核発生の主要な中間体とは考えにくいこと、石田ら[47]のメタン予混合火炎へのアセチレン吹き込み実験からアセチレンがスス粒子成長に関与しないことなどが明らかになり、現在のところ、この説には問題の多いことがわかってきた。

#### (2) 多環芳香族中間体説

ベンゼン環を有するPAH(Polycyclic Aromatic Hydrocarbon 多環芳香族炭化水素)が重合してススを形成するというものである。通常の火炎中に他種類、多量のPAHがスス生成直前の位置に存在すること、ススが少量の水素を含んだグラファイト構造をとっており、PAHから生成すると考えて矛盾がなさそうであることが根拠となっている。Frenklachら[48]の PAHモデルが提案されており、スス生成過程のかなりの部分を少なくとも定性的に説明できると評価されている。また定方[49]のフェナントレン吹き込み実験からスス粒子成長にPAHが関与することが明らかとなっている。D'alessioら[50]の予混合火炎に関する研究より、PAHの多くはスス生成の副産物として得られるとの結論が得られ、この説によってあらゆる火炎中でのスス生成を矛盾なく説明するまでには至ってい



ないが、通常の火炎では、PAHがスス生成において重要な中間体であるという考え方が受け入れられてきているようである。

### (3) 炭化水素イオン中間体説

Howard[51]によって提案されており、炭化水素火炎中に存在する $C_3H_3^+$ 、 $CHO^+$ などの陽イオンがスス生成の中間体であるというものである。炭化水素イオンの検出が容易でなく、実験的、定量的にこの説の検証が行われなければならない。

### (4) 液滴生成核説

Jinnoら[52]によって提案されているもので、熱力学平衡の検討から沸点を超える高温においても炭化水素凝縮液滴が存在し得ることを示し、気相中の炭化水素イオンあるいは分子が凝縮液滴化し、重合反応により大きくなったものがスス生成核になるという説である。

### (5) フラーレン関与説

Smalleyら[53]のフラーレン(炭素だけでできた球殻状の巨大分子(クラスタ))がスス生成に何らかの関連を持っているという提案によるもので、Gerhardtら[54]により、火炎中に $C_{60}^+$ などのフラーレンイオンが存在することが明らかにされている。しかし、フラーレンのすす生成に対する直接的な関与に関しては反論もあり[55]、また $C_{60}$ や $C_{70}$ などの安定なフラーレンがスス生成、成長の中間体である可能性を否定した見解もある[56]。

### (6) 均一核生成機構説

池上[57]は、スス生成に温度依存性があるとし、高温域では炭素クラスタを経由してスス生成が行われ、比較的低温域では多環芳香族(PAH)が中間体となり、中間の温度域ではポリアセチレン類などを経由すると

いうものである。

以上のように、スス生成核の発生には多くの説があるが、定説はなく、またわずか数ミリ秒の短い時間にÅオーダの分子レベルから大きな粒子にまでススが成長する機構についても未だに明らかになっていないのが現状である。

### 2. 1. 3 ススの構造

ススは外観が黒く、ほとんどが炭素から構成されているが、黒鉛とは大きく異なり、大量の水素(10mol%程度)を含有している。ススの基本単位粒子はほぼ球状であり、その直径は多くの場合200~300Åである。これは約100万個の炭素原子に相当する。Palmerら[58]によると、炉、ピストンエンジン、ガスタービンそして予混合火炎などのいろいろな燃焼過程における単位スス粒子径に大きな違いはなく、その平均直径は200~400Å程度である。スス粒子径は粒径分布を持つが、その分布は非常に狭いもので、平均粒子径だけを考慮すればよい。

スス基本単位粒子の内部は、黒鉛のような平行層がランダムに配置された構造であるが、層の間隔は黒鉛のものよりも少し広い。粒子表面近くでは炭素層が表面に沿うように曲がっている。粒子内部では数個の核を取り囲むように多少秩序だって格子構造が見られるが、それらの間の構造はランダムであり、多くの欠落部分あるいは格子欠陥が存在する。スス基本単位粒子の密度は2g/cm<sup>3</sup>以下である。

スス基本単位粒子は単一球形粒子あるいは鎖状凝集体(直鎖、2列鎖、ジグザグ鎖など[59])として存在している。

これらの観察は成長しきった粒子について行われたものであり、火炎中で生成途中にある粒子はより多くの水素原子を含有し、またより反応

性に富む性質を持つと考えられるので、かなり異なった状態である可能性は否定できない。

## 2.2 微小重力実験手法

### 2.2.1 自由落下施設

現在、各国で多くの落下施設が利用されている。主なものを表2. 1に示す。本研究では、これらの落下施設のなかでも現在世界最長の10秒という微小重力期間を得ることが可能である北海道上砂川町に建設された(株)地下無重力実験センター(Japan Microgravity Center: JAMIC)所有の500m落下施設[60]を使用した。本落下施設の概略を図2. 2に、基本仕様を表2. 2に示す。

表2. 1 現在使用されている主な落下施設[61]

|      | 施設名                |      | 落下距離 m |
|------|--------------------|------|--------|
| 日本   | 地下無重力実験センター(JAMIC) |      | 490    |
|      | 日本製鋼所室蘭研究所         |      | 50     |
|      | 三菱重工 田代            |      | 38     |
|      | 宇宙科学研究所 相模原        |      | 30     |
|      | 日本無重量総合研究所 (MGLAB) |      | 100    |
| USA  | NASA               | LeRC | 145    |
|      |                    | MSFC | 100    |
| ドイツ  | ZARM(Bremen大学)     |      | 110    |
| フランス | ケルノーブル原子力研究所       |      | 47     |

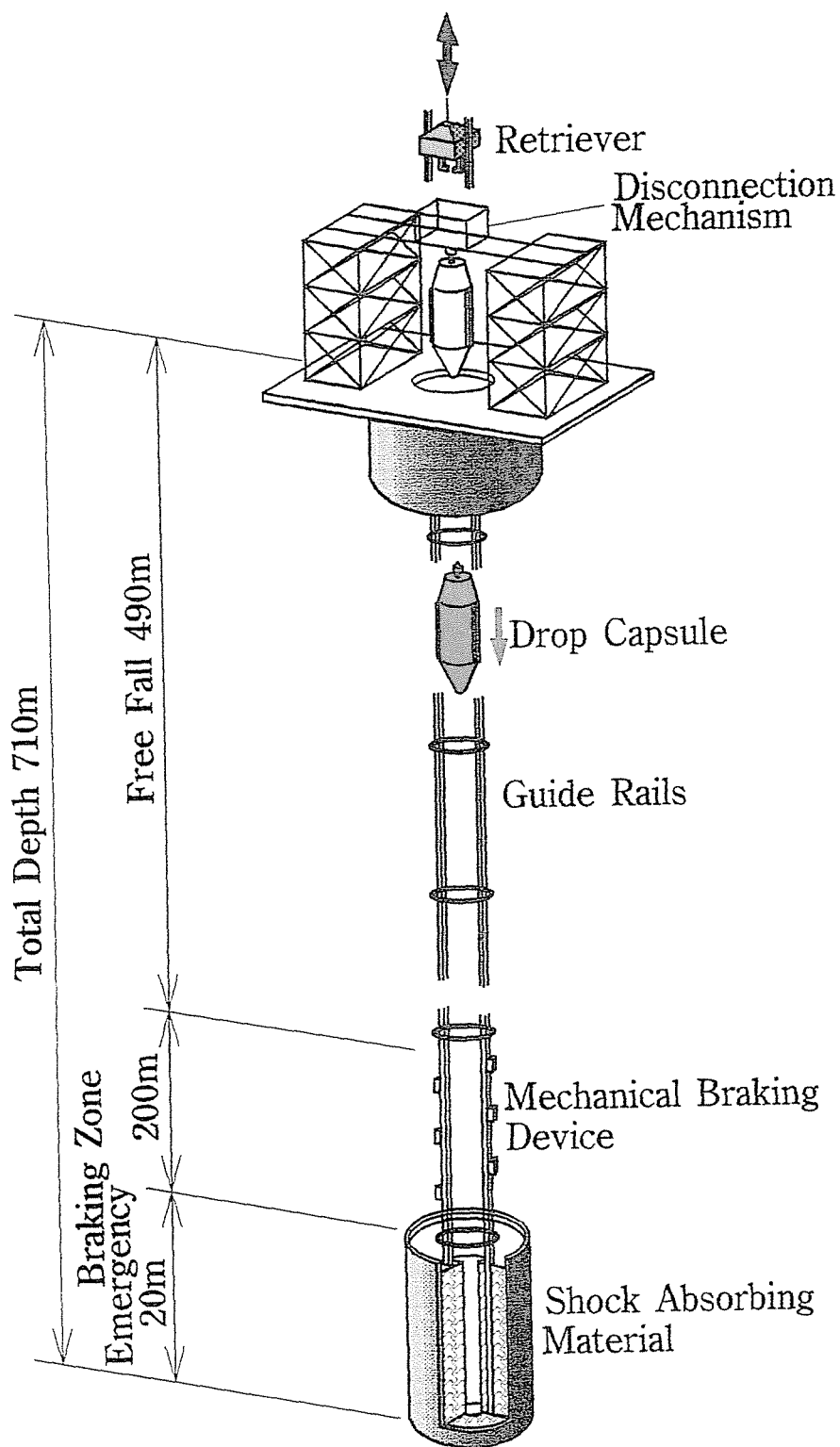


図2. 2 JAMIC 500m落下施設概略

本落下施設の落下坑の全長は710mであり、(1)自由落下部(490m)、(2)制動部(200m)および(3)非常制動部(20m)からなる。

#### (1) 自由落下部

落下カプセルが落下坑内に設置されたガイドレールに沿って、磁気ガイド機構によりレールには非接触で自由落下する。カプセルの切り放しは、油圧機構により静かに切り放す。

#### (2) 制動部

落下カプセルによる空気の圧縮を利用したエアダンピング機構により、カプセルを減速し、さらに機械的にカプセルの制動フィンを把持するメカニカルブレーキによりカプセルを完全に停止する。

表2. 2 JAMIC 500m落下施設基本仕様

|                          |    |                      |
|--------------------------|----|----------------------|
| 微小重力レベル                  |    | 10 <sup>-4</sup> G以下 |
| 微小重力期間                   |    | 約10秒                 |
| 制動時減速重力                  |    | 10G以下                |
| 実験部<br>(装置搭載ラック内部)<br>環境 | 気圧 | 1atm                 |
|                          | 温度 | 20～45℃               |
|                          | 磁場 | 4ガウス以下               |
| ペイロード最大容積                |    | φ1.3m(d)×1.4m(h)     |
| ペイロード最大重量                |    | 1000kg               |
| 落下坑内環境                   |    | 大気中                  |
| 落下カプセル構造                 |    | 二重カプセル構造             |
| 空気抵抗補償方式                 |    | ガススラスト方式             |
| 制動方式                     |    | エアブレーキとメカニカルブレーキの併用  |

### (3) 非常制動部

メカニカルブレーキが万一作動しない場合、落下カプセルをクッション材を充填したピットに突入させることにより、カプセルの非常制動を行う。

## 2.2.2 落下カプセルおよび実験装置搭載用ラック

落下カプセルは外カプセルと内カプセルの二重構造になっており、内カプセルに実験装置が組み込まれる。内カプセルと外カプセルの間は真空に引かれ、また落下中、内カプセルは外カプセルから切り放され外カプセル内に浮いた状態になる。このため内カプセルへのガススラストによる振動などの外乱が遮断される。外カプセルは落下抗の大気中を落下するため空気抵抗を受け減速するが、後尾部のガススラストより空気を噴出し下向きに加速することにより空気抵抗を打ち消し、内カプセルと外カプセルの間のクリアランスを一定に保つ。この結果、実験装置を搭載した内カプセルは、外カプセルから完全に独立した状態で自由落下する。

落下カプセルは、データ記録装置、電源、磁気ガイド、スラスト制御装置等を組み込んだバスモジュール、内カプセルを収納するペイロードモジュール、ガススラストを装備したスラストモジュールの、独立した3個のモジュールより構成されている。落下カプセルの概略を図2. 3に、外観を図2. 4に示す。落下カプセルはアルミニウム合金製で、直径1.8m、全長7.85m、重量約5000kgの弾丸形状である。

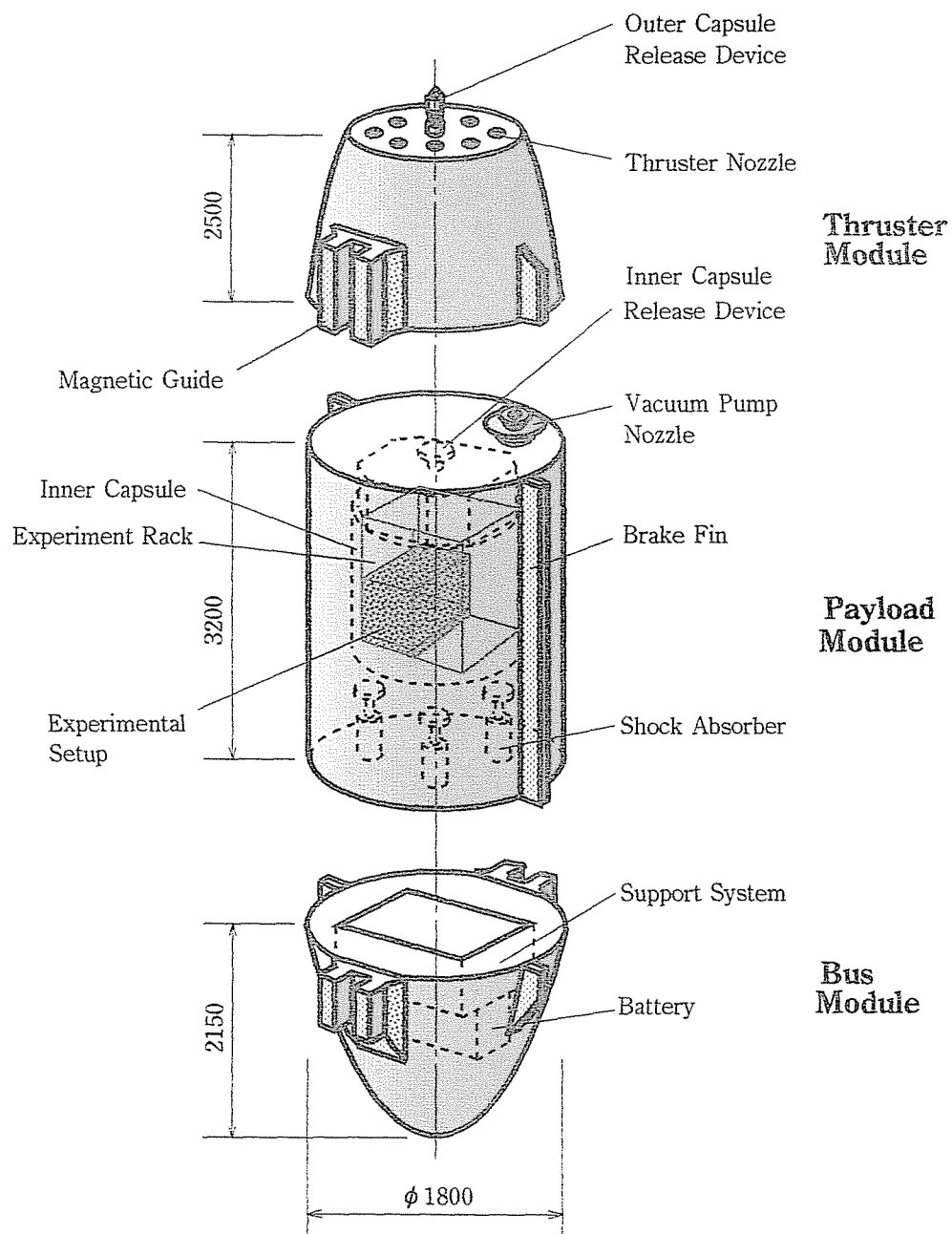


図2. 3 落下カプセル概略



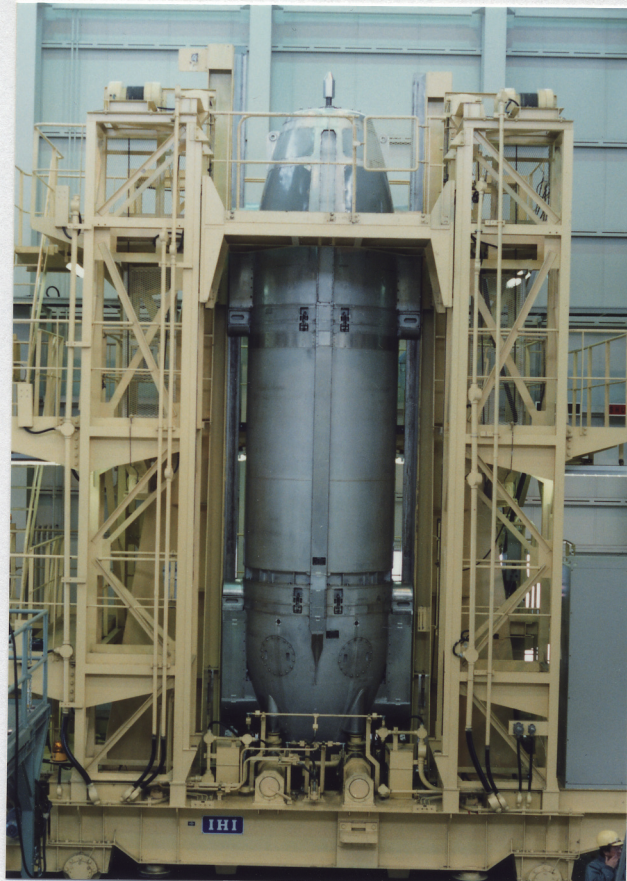


図2. 4 落下カプセル外観

本落下システムでは、実験装置は実験装置搭載用ラックに固定され、実験装置搭載用ラックが内カプセルに収納、固定される。実験装置搭載用ラックはアルミニウムおよびステンレス鋼を用いた溶接構造で、総重量約100kgである。図2. 5に、実験装置搭載用ラック(実験装置搭載後)の外観を示す。

本落下システムでは、ラック容積を有効に活用、また他の実験装置との混載が可能であるように、5種類の装置外形寸法を選択できるようになっている。本研究では、実験機会を多く得るという観点から他の装置との混載に有利な最小単位であるタイプ(横置き1/4ラックと呼ばれる)を採用した。この実験装置容積は870(W)×425(L)×443mm(H)、実験装置重量は200kg以下である。この寸法および重量範囲を基準として実験装置を製作した。



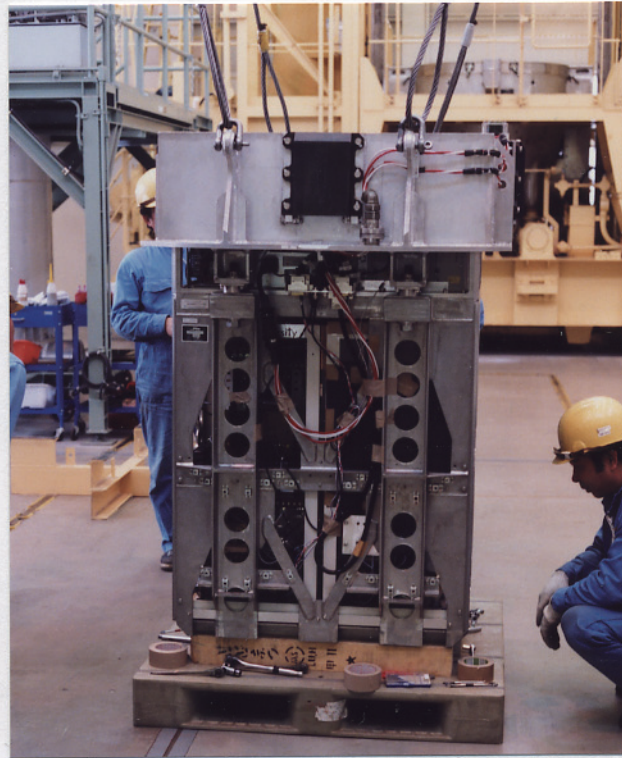


図2. 5 実験装置搭載用ラック(実験装置搭載後)

### 2. 2. 3 装置インターフェイス

本落下システムでは、実験装置と落下カプセル間に、(1) 電源、(2) 実験装置をカプセル外部から制御するためのコマンド、(3) 映像の通信、そして(4) データ記録というインターフェイスを有している。

#### (1) 電源インターフェイス

実験装置が利用できる電源について、表2. 3に示す。カプセル外部電源は、カプセル落下約7min前まで供給される。従って、電源をカプセル搭載電源へ切り替える時に瞬断が生じる。表2. 3に示した電力値(最大電流、連続使用時間)は、カプセルに搭載した装置全体で使用可能な値

であるため、他の装置との混載が生じた場合には、使用電力の調整が必要である。

本研究では、インターフェイス電源のうちAC100V、10Aおよび2Aを用いた。

表2.3 JAMIC 落下施設の供給電源

| 種類(電圧)  | 最大電流、連続使用時間 |            | 付加条件                |
|---------|-------------|------------|---------------------|
|         | カプセル外部電源    | 搭載バッテリー    |                     |
| DC 28V  | 50A         | 40A, 10min | 電源切り替え時<br>100msの瞬断 |
| DC 28V  | 20A         |            |                     |
| DC 28V  |             | 20A, 10min | 無瞬断                 |
| AC 100V | 10A         |            | 正弦波                 |
| AC 100V |             | 2A, 10min  | 2ヶ、矩形波              |

## (2) コマンドインターフェイス

本落下システムでは、実験装置を落下カプセルに収納した後は、カプセル外部からの信号(コマンド)のみにより実験装置の制御を行わなければならない。カプセル外部からのコマンドには、アナログコマンドとデジタルコマンドの2種類がある。

### ・アナログコマンド(4点)

出力形式 :  $\pm 10V$

負荷電流 : 20mA以下

データ形式 : 純2進 符号ビット+11データビット

接続形式 : 50ピンDsubコネクタメス型/ソケット型(カプセル側)



・デジタルコマンド(12点：ケーブル4点、光伝送8点)

出力形式 : 接点出力(接触抵抗 100mΩ以下)

出力方法 : パルスおよびオルタネート(保持)

接続形式 : 25ピンDsubコネクタメス型/ソケット型(カプセル側)

本研究では取り扱いの容易さ、装置制御を実験装置に搭載したリレーで行ったことなどから、デジタルコマンドのみを使用した。

表2. 4に、本研究で使用した1/4ラック相当の実験装置が使用できるデジタルコマンドの送信ピン番号およびコマンド使用条件を示す。

表2. 4 デジタルコマンドピン番号と使用条件

| Pin No.        | コマンド使用条件                           |
|----------------|------------------------------------|
| 14-15          | ケーブル接続時および光通信コマンドが使用可能。            |
| 16-17          | ケーブル接続時のケーブルコマンドのみ使用可能             |
| 18-19<br>20-21 | 光通信コマンド。落下ボタンのトリガ信号により1shot,1sの信号。 |
| 22-23          | ケーブル接続時および光通信コマンドが使用可能。            |
| 24-25          | カプセル搭載装置全体で1つの信号のみ使用可能。            |

1/4ラック使用の際に他の装置と混載で上述したようなコマンド数を上回る場合、あるいは22-23、24-25ピンコマンドを用いる場合には、他の装置とのコマンド選択の調整をしなければならない。

### (3) 映像の通信

本落下システムでは、実験装置に搭載したビデオカメラからの映像信号をカプセル内でレーザ信号へ変換後カプセル頭部から発信し、地底局

を介して地上のコントロールルームへ伝送される。これにより、コントロールルームにて実験の様子をリアルタイムで観察することが可能である。ビデオ信号は、カプセルへの搭載実験装置全体で2ch伝送することが可能である。他の装置と混載する場合には、どの映像信号を優先するかを調整しなければならない。

実験装置に画面分割装置((株)東芝、4画面マルチユニット JK-S44C)を搭載することが可能であれば、搭載すると混載の際に有効である。画面分割装置の外形は430(W)×375(D)×44mm(H)である。本研究では、混載の可能な場合に、モニタリングに使用した。

#### (4) データ記録

本落下システムでは、実験装置から送られるアナログデータ、デジタルデータ、および映像データを落下カプセルバスモジュールに搭載したデータ収集装置で記録することが可能である。

##### ・アナログデータ(64点)

|      |   |              |      |
|------|---|--------------|------|
| 入力形式 | : | a) $\pm 10V$ | 4点×4 |
|      |   | b) 0-5V      | 6点×4 |
|      |   | c) 0-20mA    | 6点×4 |

総合精度 : 0.2% FS

データ形式 : 純2進 符号ビット+11データビット または  
純2進 12データビット

サンプリングタイム: 0.025s/0.05s/0.1s/0.5s(選択可能)

本研究では熱電対による温度測定においてアナログデータ記録(0-5V)を使用した。また、実験の映像をバスモジュールの2chの映像データにバックアップとして記録した。

## 第 3 章

### 微小重力場における 拡散火炎中スス粒子塊生成

### 3.1 概要

本研究では、微小重力環境下の拡散火炎におけるスス生成の様子を調べるため、内径6mmの円管バーナにブタン噴流拡散火炎を形成し、観察を行った。その結果、微小重力環境下の拡散火炎にこれまでに報告されていない視認可能なほど巨大な輝く粒子が生成されていることが観察された。

本章では、この特徴的な粒子の捕集を行い電子顕微鏡にて観察を行うとともに、この粒子生成が点火条件により引き起こされる現象ではないことを確認するため、点火時の重力の影響を調べた。また粒子の移動の様子を観察し、粒子数密度の変化や火炎通過後の存続について検討を行った。さらに粒子生成の燃料の種類による影響を調べるため、ろうそく、紙、エチレンおよびメタンの火炎について微小重力環境下で燃焼実験を行った。

### 3.2 微小重力場における噴流拡散火炎のスス生成

#### 3.2.1 供試燃料の選択

各種燃料の燃焼によりススが生成されるが、液体あるいは固体燃料が燃焼する過程においてこれらの燃料の多くは熱分解および蒸発過程を経て燃焼が進行するため、気相燃焼により生成されるススの挙動を扱うことは非常に基礎的であり、しかも重要なことである。気体燃料では、固定炭素分や未燃液滴などの気相析出形スス以外の微粒子が混入することがないため、同燃料は気相析出形ススについての知見を得るには適している。

気体燃料のスス粒子生成に関する研究は、アセチレン、エチレン、ブ

ロパン、メタンなど多種にわたるが、本研究では発煙傾向の大きな燃料では重力環境の変化によるスス凝集の差が大きいと予想されたこと、また発煙傾向の小さな燃料ではスス生成量が少なく観察が困難であることなどを考慮し、適当な発煙傾向を有するブタンを供試燃料として用いた。さらにブタンはガスの入手および取り扱いが容易であるという利点がある。表3. 1に、本研究で使⽤したブタン燃料の平均組成を示す。また、表3. 2にn-C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>の燃焼特性値を示す。

表3. 1 ブタン燃料平均組成

| 成分                               | 体積分率(%) |
|----------------------------------|---------|
| n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> | 65.0    |
| i-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> | 33.3    |
| C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>    | 1.0     |
| その他                              | 0.7     |

表3. 2 n-C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>の燃焼特性値

|                              |    |        |
|------------------------------|----|--------|
| 高発熱量(kcal/kg)                |    | 10910  |
| 可燃限界<br>(%)                  | 下限 | 1.9    |
|                              | 上限 | 8.5    |
| 着火温度(°C)                     |    | 431    |
| 燃焼速度(cm/s)                   |    | 41.7   |
| 理論燃焼温度(°C)                   |    | 1982   |
| 空気との拡散係数(cm <sup>2</sup> /s) |    | 0.0954 |

### 3. 2. 2 実験装置

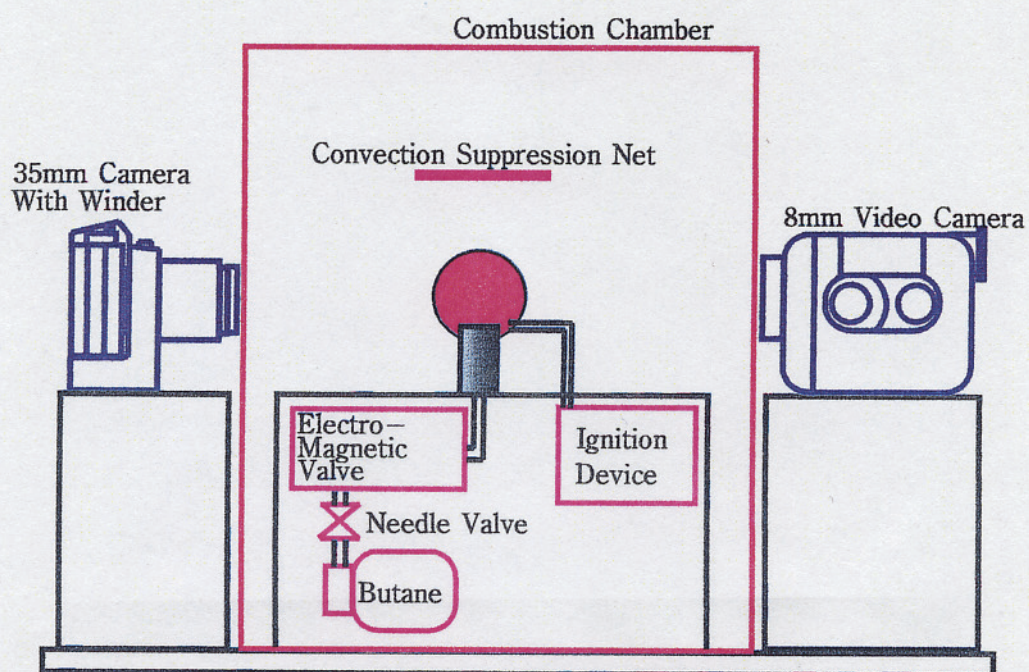
図3. 1に、本研究で使用した噴流拡散燃焼装置の概略および概観を示す。装置外形寸法は、2. 3節で述べたJAMIC落下施設の落下カプセル内部ラックへの搭載寸法の制限より、870(W)×425(D)×443mm(H)以下である。内部カプセルに搭載する装置は、燃焼室、画像撮影記録部および制御部からなる。

燃焼室はアクリル樹脂板およびアルミニウム合金板で製作した内部寸法349(W)×374(D)×389mm(H)の密閉容器であり、燃焼室内の初期酸素濃度を大気圧条件で任意に変えることが可能である。酸素濃度は21～50%の間で実験を行った。燃焼室は耐圧構造ではなく、酸素を燃焼室に吸入する際に燃焼室内部圧力を変えられないため、酸素吸入と同時に燃焼室内空気を放出する必要がある。このため酸素吸入量を計算により特定できない。本研究では、酸素吸入専用プラグを用い、レギュレータ(ヤマト産業株式会社: YR-70)の2次側圧力を一定にして、酸素吸入時間と燃焼室内酸素濃度との関係を検量し、これより酸素濃度を決定した。酸素濃度検量には磁気力式酸素ガス分析計((株)ベスト測器製、BMG-100)を用いた。

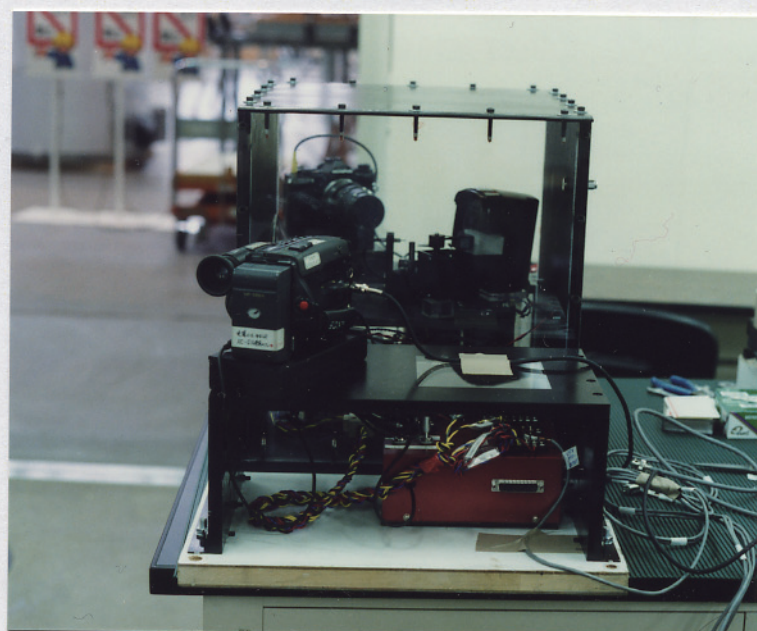
本研究で行った実験範囲では最大燃料流量が1.2mL/sであり、また点火から消火までの燃焼時間は約20s(図3. 5参照)である。燃焼室容積は50Lであり、この流量範囲では酸素の平均濃度の変化は最大0.75%以下である。

燃焼室内には、図3. 2に示すように円管バーナが上向きに設置されている。使用したバーナの寸法は、内径6mm、外径8mmである。バーナの概観写真を図3. 3に示す。バーナ寸法の決定すなわち燃焼量の決定にあたっては、燃料流速を低く抑えるためある程度大きな径が必要であること、また大きすぎると火炎の不均一性が大きくなること、そして単位時間当





(a) 装置概略



(b) 装置概観

図3. 1 噴流拡散燃焼装置



たりの燃焼量を燃焼室サイズからあまり大きくとれないことを考慮した。ブタンは小型ポンペよりニードルバルブ、電磁バルブを介してバーナへ供給される。点火は電気火花により行った。火炎近くに点火用電極が存在する場合に火炎への点火用電極の影響が現れるため、点火後、点火用電極を火炎近くより退避させるようにしている。

通常重力環境下で点火を行うと微小重力環境に移行した後も通常重力環境下で生じた自然対流が残留する可能性がある。この残留対流を抑制するため、バーナ下流65mmに、80×80mmのステンレス製金網(25メッシュ、線径0.2mm)を設置した。自然対流の流速が定常に至るまでの時間 $\tau$ は、代表長さを $L$ 、動粘性係数を $\nu$ とすると次のように表される[62]。

$$\tau = L^2 / \nu \quad (3. 1)$$

$\nu$ が一定であると仮定すると、本研究で用いた装置寸法においては、残留対流が停止するまでに要する時間が、残留対流抑制網を設置した場合には設置しない場合の約1/8に減少する。

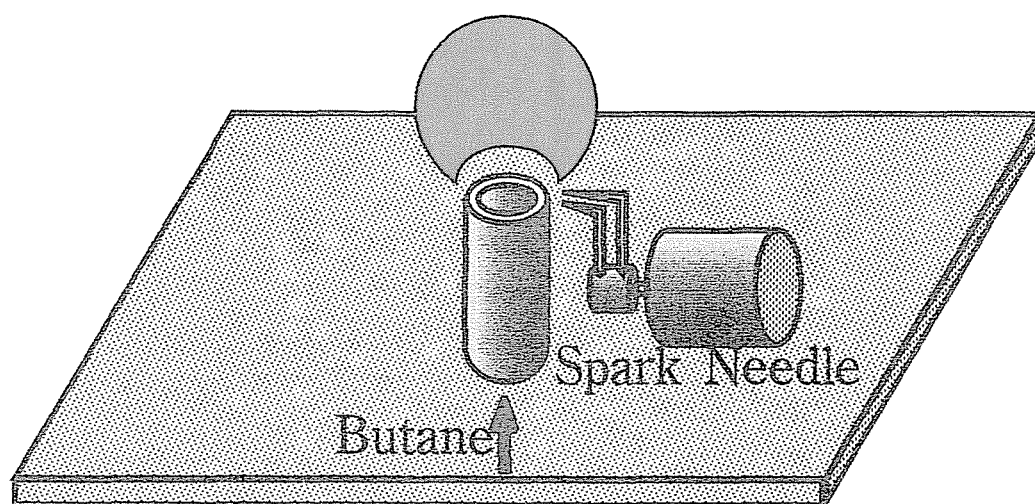


図3. 2 円管バーナ周辺概略



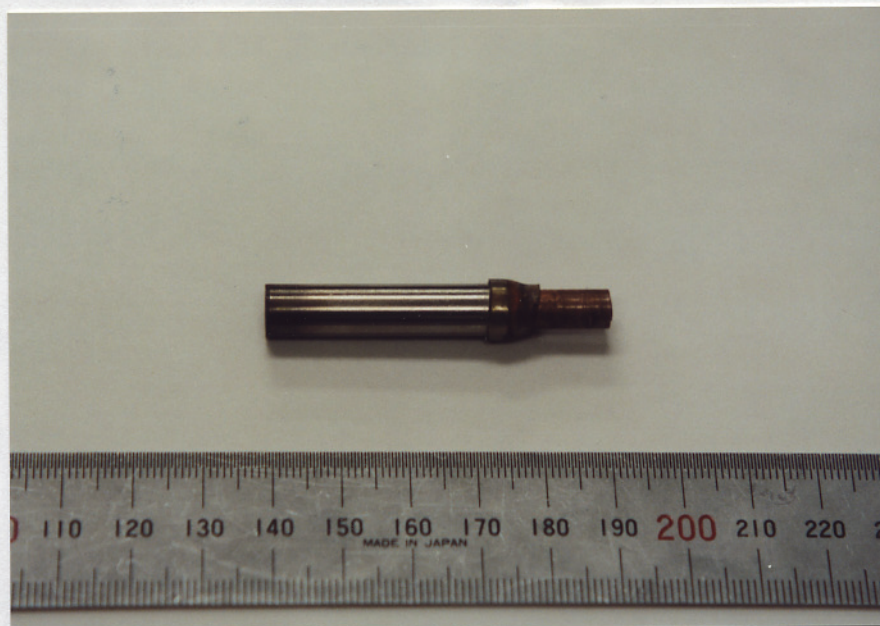


図3. 3 内径6mm円管バーナ概観

本研究では、燃焼挙動の観察および記録に8mmビデオカメラ(SONY, CCD-TR705 およびCCD-TR900: Hi-8方式)、ワインダ(OLYMPUS, WINDER2: 2.5コマ/s)を装備した35mmカメラ(OLYMPUS, OM-4Ti およびOM-2)を用いた。ビデオカメラで連続映像、35mmカメラによりさらに良質な写真の撮影を行った。ビデオカメラには焦点距離調整のためクローズアップレンズを装着し、撮影条件は手動フォーカス、シャッタースピード1/1000s、自動絞りである。火炎撮影のための焦点合わせは装置を落下内部カプセルに搭載する前に行い、ビデオカメラのオートオフ回路が作動した状態で搭載する。35mmカメラには焦点距離調整のためクローズアップレンズを装着した。焦点合わせはカプセル搭載前に行う。フィルム感度はASA400のものを用了。

前述のように、本研究ではJAMICの落下施設を用いたので、本研究で用いた実験装置は落下カプセルに搭載後カプセル落下終了まで装置のすべての制御をカプセル外部よりの制御信号操作で行わなければならない。本研究で用いた実験装置は、すべて外部よりの信号および装置内部のタ



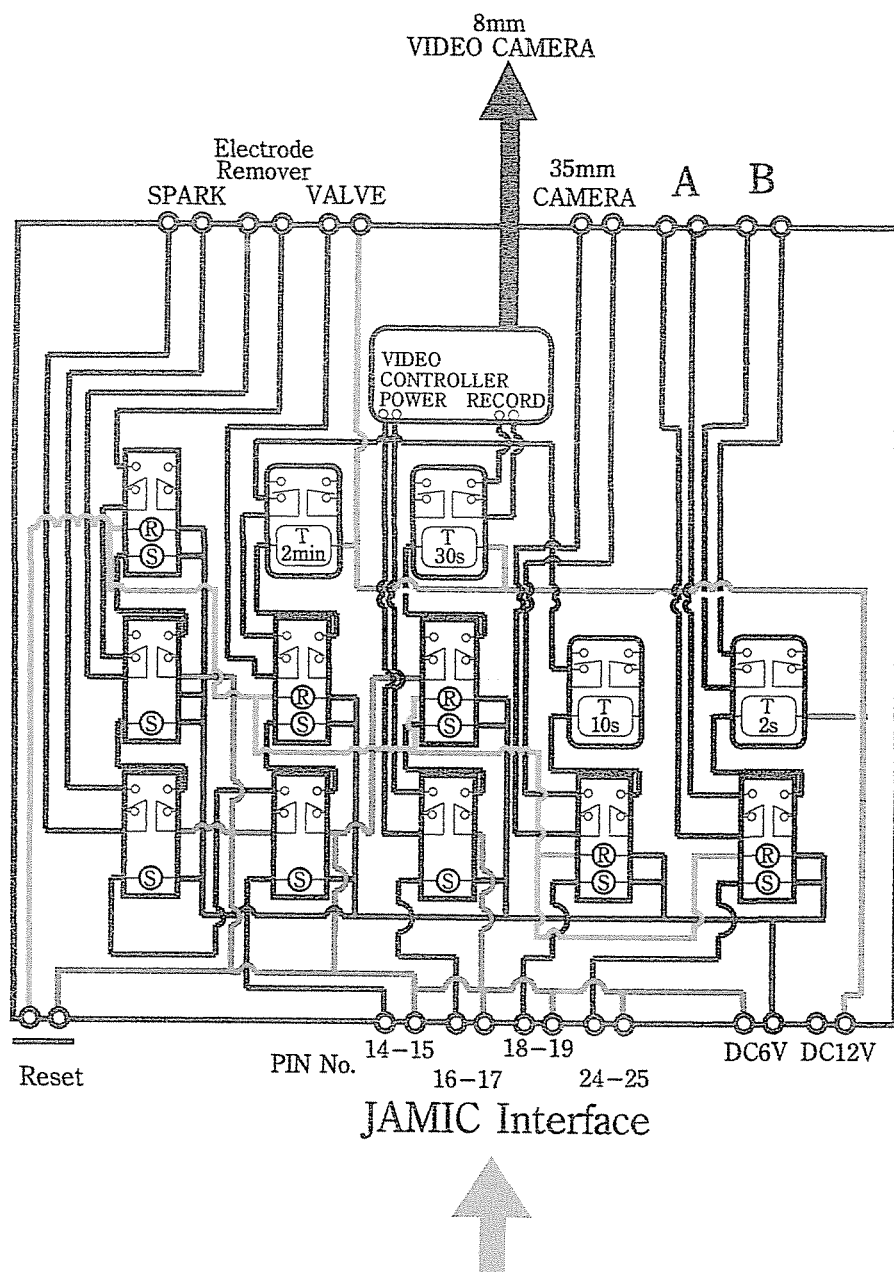


図3. 4 装置インターフェイス部入出力回路

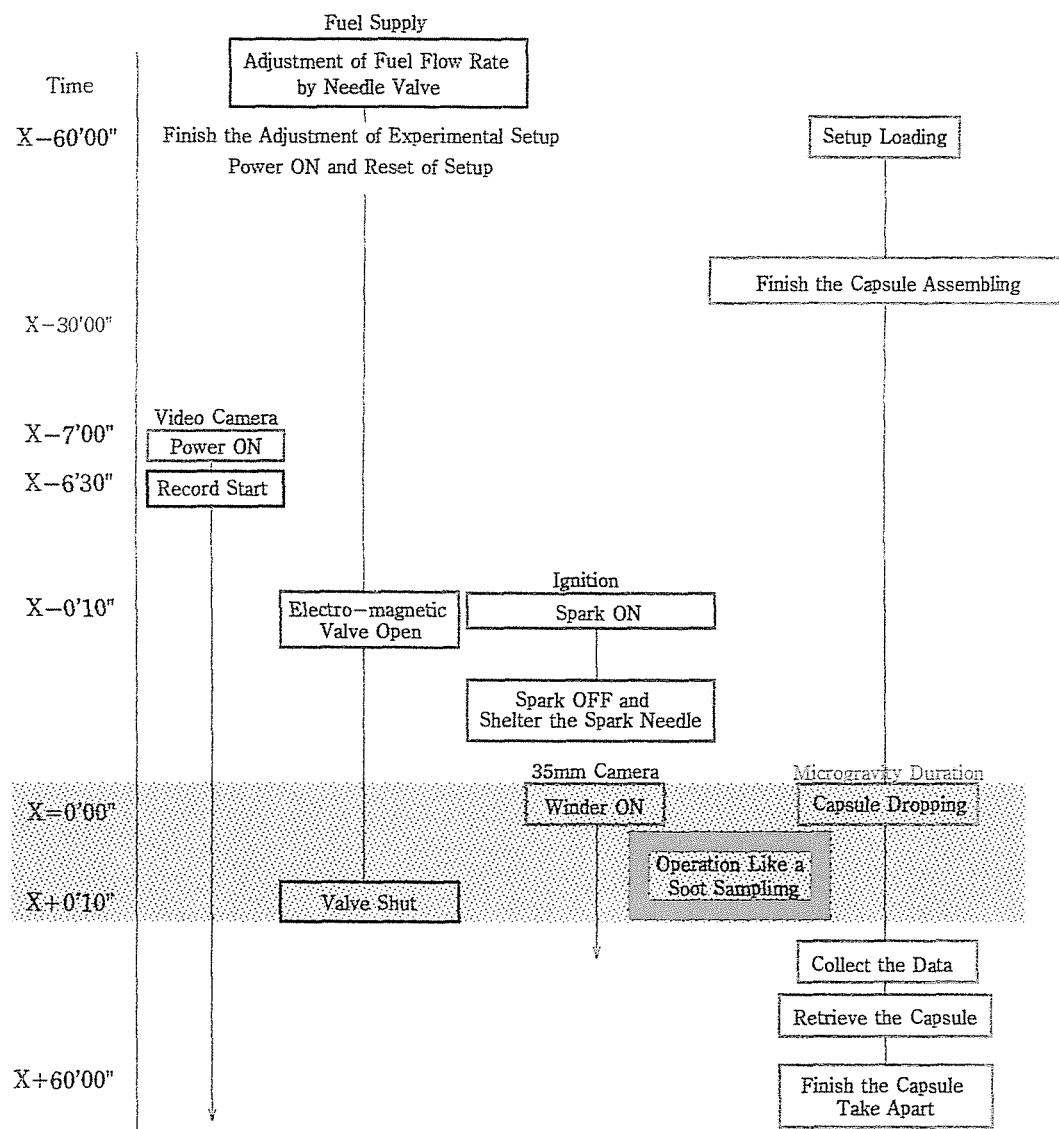


図3. 5 実験のタイムシーケンス

イマ信号により制御される。

図3. 4に、本研究で用いた装置のインターフェイス入出力回路図を示す。カプセル外部からのデジタルコマンド(ON/OFF信号)をインターフェイス部へ入力し、このインターフェイス部から各装置へ制御信号が出力される。本研究で行った実験のタイムシーケンスを図3. 5に示す。燃焼室密封後約30minで装置を落下内部ラックに搭載、約1hで落下カプセルに搭載を終了する。落下カプセルへ搭載後30minが落下時間となる。アンビリカルケーブルによるコマンド送信が切れる落下7min前(X-7'00")にビデオカメラを作動させ、30s後(X-6'30")に録画を開始する。燃料供給から着火までのタイムラグを見込みX-0'10"に電磁バルブを開き、点火装置を作動する。点火装置作動後約5sで着火、着火後点火針を退避し、火炎がほぼ定常状態に達してからカプセルを落下する(X=0'00")。燃料流量は装置搭載時にあらかじめ調整しておく。落下信号と同時に35mmカメラおよび電磁バルブを閉じるタイマを作動する。落下終了後(X+0'10")電磁バルブを閉じる。

### 3. 2. 3 ブタン噴流拡散火炎中に生成されるスス粒子塊

通常重力場において内径6mmの円管バーナに形成した燃料流量0.6mL/s (管内平均燃料流速 $V_f = 0.021 \text{ m/s}$ ,  $Re = 42$ )のブタン噴流拡散火炎写真を図3. 6に示す。バーナ上に形成した拡散火炎を横方向より観察している。

本研究では、拡散火炎に生成されるスス粒子の挙動を観察するため、高酸素濃度においてスス生成量が多くなるという結果[41]を踏まえ、酸素富化雰囲気中で実験を行っている。図3. 6 (a)、(b)に示した火炎は、それぞれ酸素濃度21%、50%のものである。酸素濃度50%の火炎は21%の火炎よりも火炎長が短くなっているが、どちらの火炎においても火炎中で



生成されるスス粒子は輝炎として観察されるのみであり、一般には粒子の直径が小さいため粒子として視認することは不可能である。

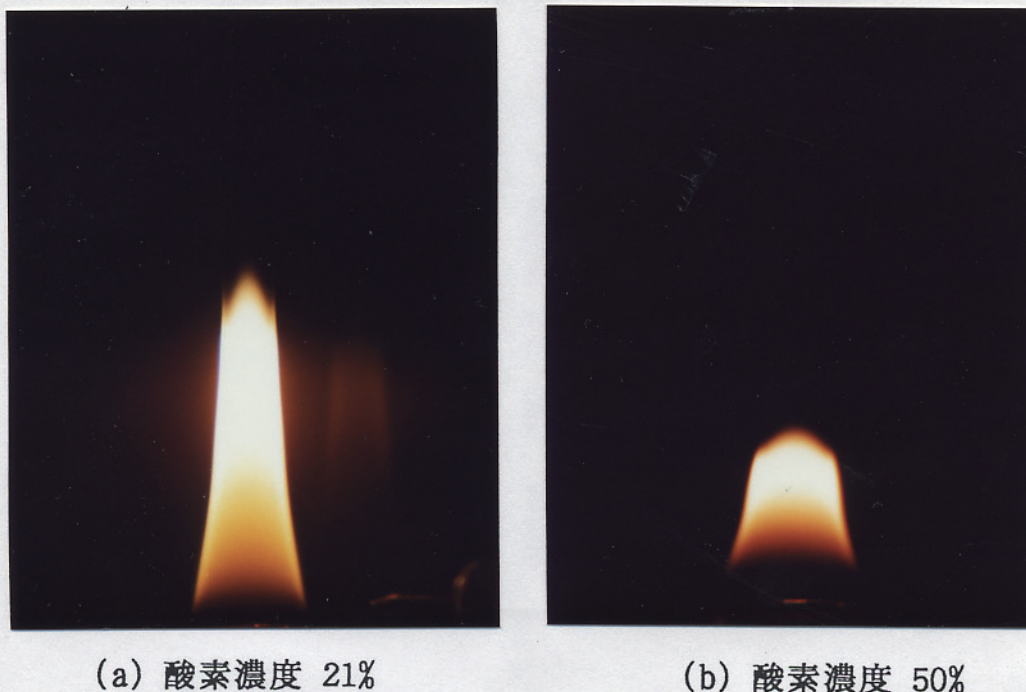
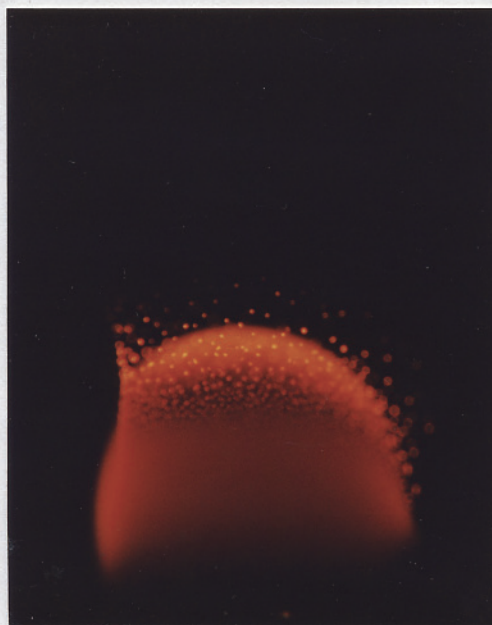


図3. 6 通常重力場におけるボタン噴流拡散火炎  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s)

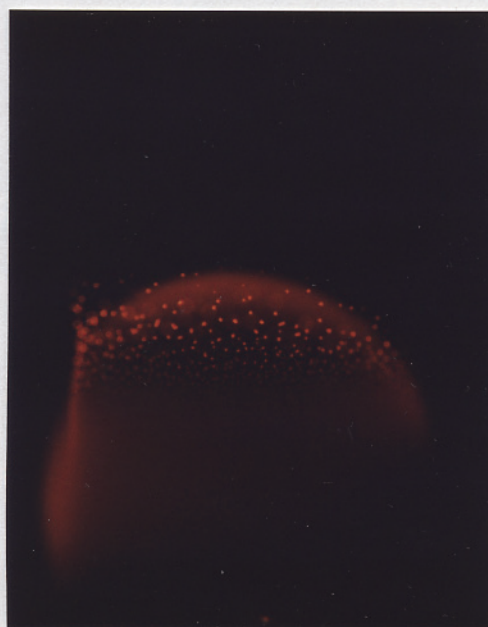
図3. 7に、微小重力場における図3. 6 (b)と同条件の火炎写真を示す。図3. 6と同様、火炎を横方向より観察している。図3. 6 (b)と図3. 7の写真は同じ倍率で示している。通常重力場において、図3.6(b)のように紡錘形であった火炎は、微小重力場に移行すると直ちに火炎長は短くなり、半球形に近い火炎となる。その後火炎は半球形を保ったまま徐々に広がり、図3.7(b)のような、通常重力場の火炎と比べてかなり大きな体積をもつ火炎となる。また微小重力環境に移行してから約0.3s経過後より、図3.7に見られるような目視で明らかに確認できる粒状の物質が火炎先端付近に現れてくる。微小重力期間の継続により、火炎体積の膨張とともに火炎輝度の低下が見られるが、この粒状物質の生成は微小重力環境の間、継続する。ボタンなどの低級飽和炭化水素噴流拡散火炎にお



いて、このように視認できるほど巨大な粒子が生成するという現象は、これまで報告されていない。



(a) 微小重力移行1.7s後



(b) 8.1s

図3. 7 微小重力場におけるブタン噴流拡散火炎  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、酸素濃度50%)



### 3.3 スス粒子塊の捕集

前節で示した微小重力場の噴流拡散火炎に見られる粒子は、火炎の輝炎後流部に生成していること、そしてスス粒子の発光である輝炎と同様に輝いていることなどから、火炎中で生成されたスス粒子が、微小重力場という自然対流のない特殊な環境で凝集し、巨大化したものであることが予想される。本研究では、微小重力場の噴流拡散火炎に生成される粒子を捕集し、走査型電子顕微鏡および透過型電子顕微鏡で観察を行った。

#### 3.3.1 粒子捕集装置

スス粒子の計測法として、ミー散乱法、透過光減衰法、回折法、ホログラフィ法などの、レーザを用いた光学的測定法が知られている[63][64]。しかし本研究では、カプセル内部ラック搭載寸法の制約から、これらの装置を搭載することが困難であること、また凝集体寸法を確認することのほかに、対象とする粒子の構造を確認するために粒子の捕集、観察を行った。

スス粒子の捕集法には吸引法[47]や熱集じん法[65]などがある。吸引法では粒子の凝集が吸引途中で進行する可能性があり、また金属線を用いる熱集じん法では大きな粒子が捕らえられた後に脱落するなどの欠点がある(落下カプセル制動時の減速)。このため、本研究では金属線よりも脱落の危険が少なく、しかも火炎の広い面積にわたりサンプリングできるようにするため、透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)に使用されるTEMグリッドに付着させる熱集じん法の一つである方法を用い、図3. 8に示すような粒子捕集プローブを作成した。

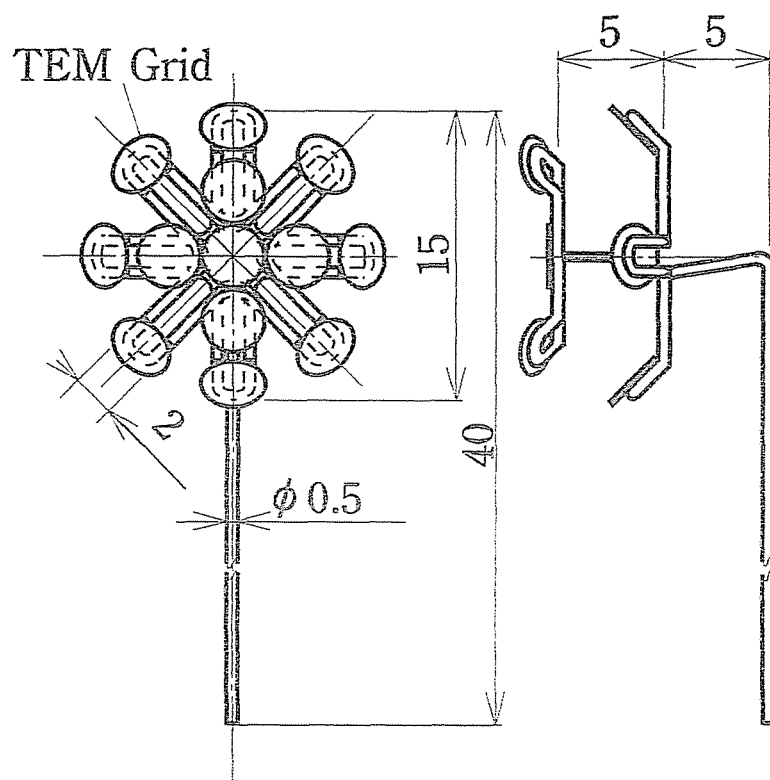


図3. 8 粒子捕集プローブ

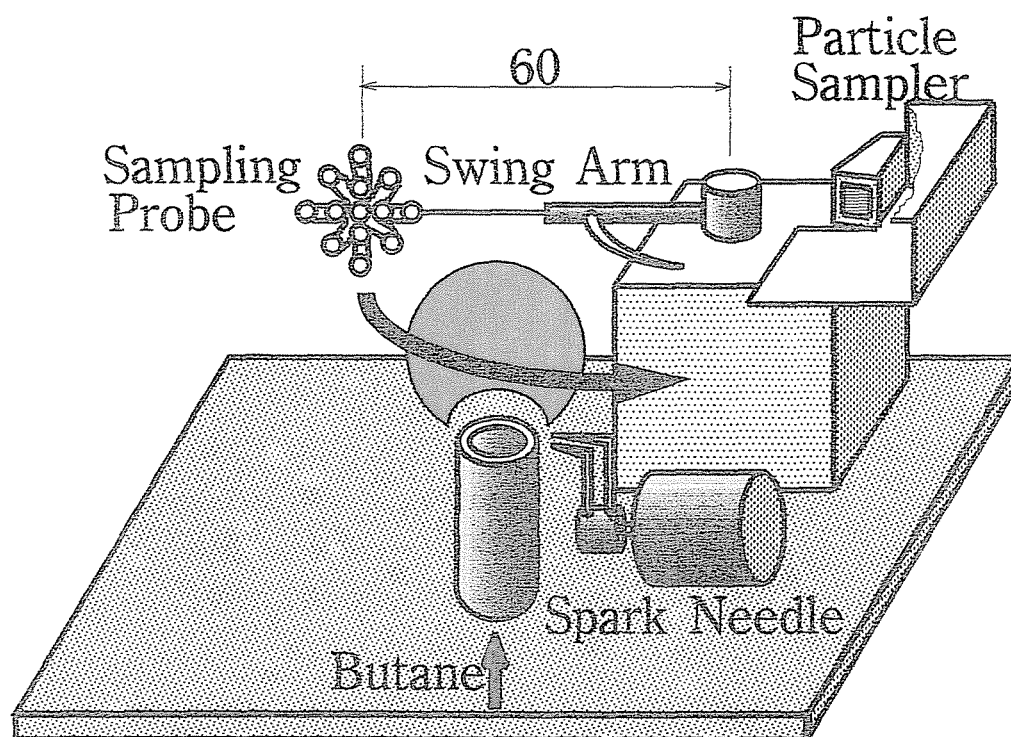


図3. 9 火炎中粒子の捕集

図3. 8のように直径0.5mmの針金を成形したプローブに円形の計13枚のTEMグリッド(日新EM株式会社販売、コロジオン膜貼付・カーボン蒸着・銅150メッシュほか)を、軟接着性のりで付着させた。この粒子捕集プローブを図3. 9に示すような捕集装置に取り付け、拡散火炎上部の粒子生成領域を掃引することにより、粒子を捕集する。捕集プローブの掃引速度は約0.8m/sである。微小重力場における火炎幅17mm(酸素濃度50%、バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s)の場合の、捕集プローブの火炎中滞在時間は約20msであり、これはDe Vonら[65]のサンプリング時間に近い値である。粒子捕集後、捕集アームに設置した減速槍が油粘土を充填した減速槽に突入することにより、なめらかに減速し、停止する。

この捕集プローブは火炎寸法と比較して大きく、掃引する事により火炎を大きく乱すことが予想されたが、本研究では貴重な落下実験機会を活かし確実に捕集を行うため、図3. 8に示すような寸法に決定した。

### 3. 3. 2 電子顕微鏡観察結果

本研究では、捕集された粒子を電子顕微鏡にて観察した。使用した電子顕微鏡の型式および分解能を表3. 3に示す。

表3. 3 使用電子顕微鏡

|          | 型式             | 分解能   | 使用フィルム             |
|----------|----------------|-------|--------------------|
| 走査型(SEM) | HITACHI S-430  | 60 Å  | Fuji NEOPAN SS 120 |
| 透過型(TEM) | HITACHI H-700H | 2.8 Å | Fuji FG8.2×11.8cm  |

図3. 10に、通常重力場において捕集されたスス粒子の電子顕微鏡(TEM)写真を示す。バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/s(図3. 6(b)と同条件)の火炎より捕集した。捕集位置はバーナ先端より上方5~20mmである。

火炎中に存在するスス粒子のほとんどは、このような直径約0.03~0.05 $\mu\text{m}$ の小さな粒子が数個から数十個凝集したものである。この結果は一般に知られているスス粒径[66][67]と同様である。

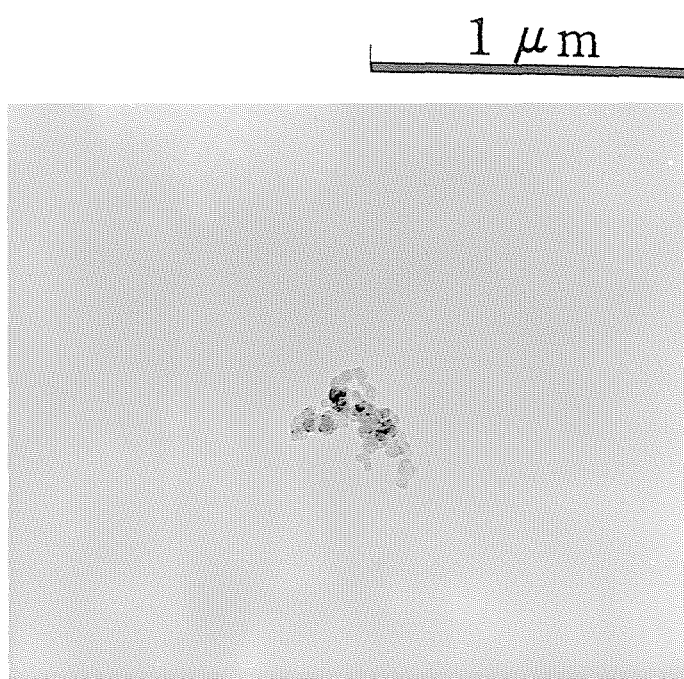
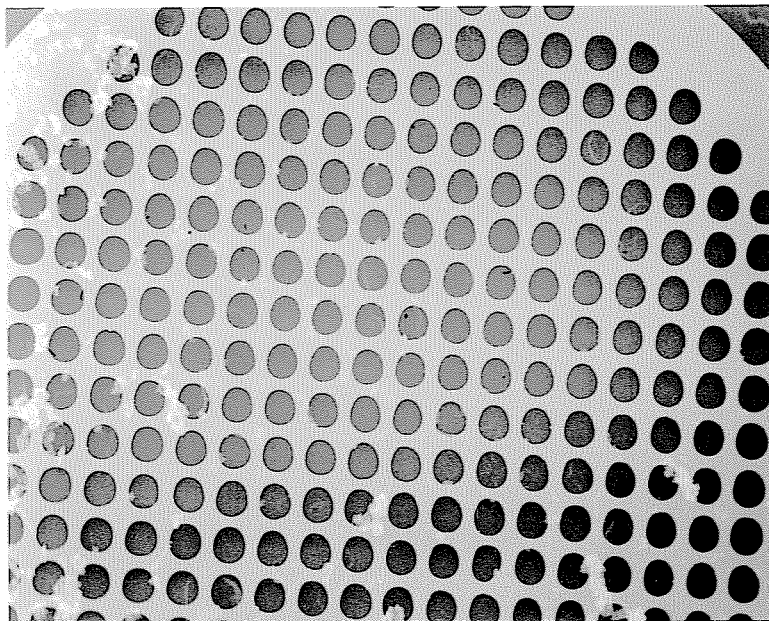


図3. 10 通常重力場におけるスス粒子のTEM写真の例  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%、  
捕集位置:バーナ先端より5~20mmをカバーしている)

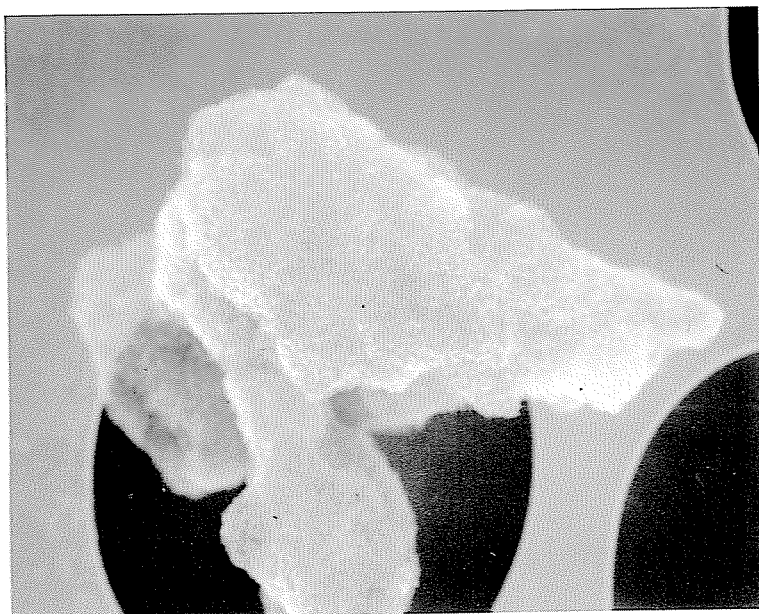
微小重力場において、同様の火炎から捕集された粒子の電子顕微鏡写真を図3. 11および図3. 12に示す。微小重力場において捕集された粒子の径はかなり大きいため、全体像を走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)で(図3. 11)、微細構造をTEMで(図3. 12)観察した。

500  $\mu\text{m}$



(a)

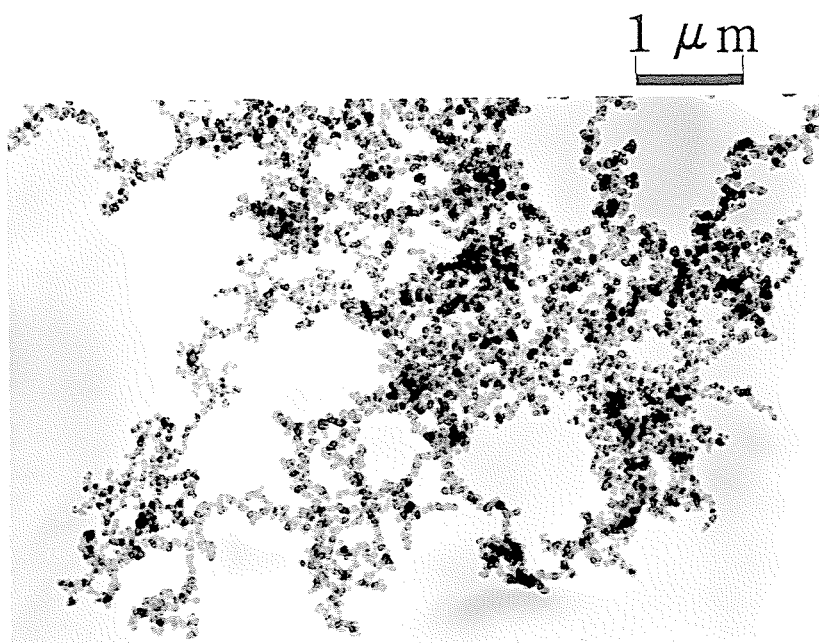
50  $\mu\text{m}$



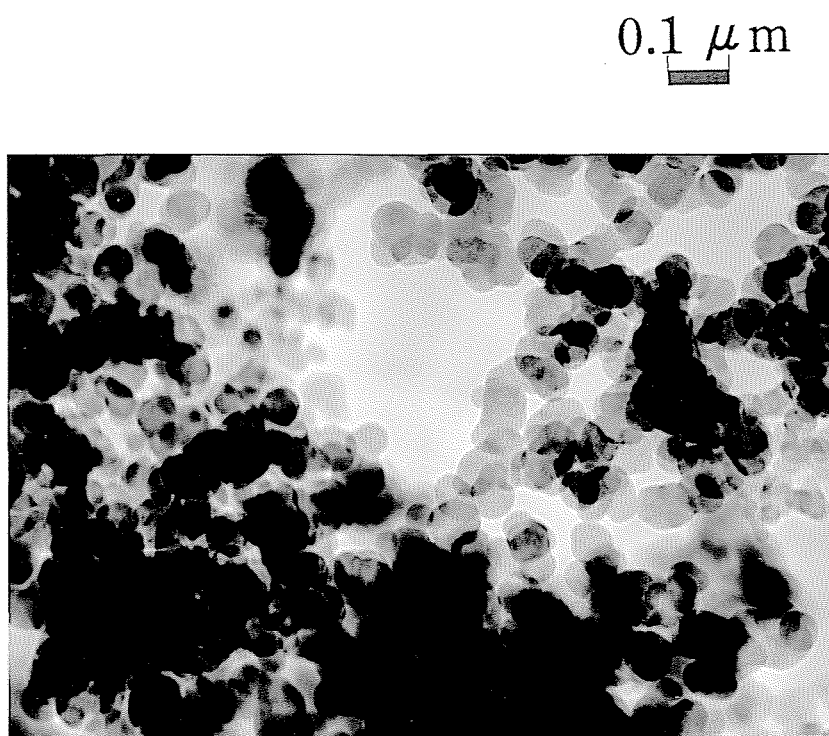
(b)

図3. 11 微小重力場における生成粒子のSEM写真  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%、  
捕集位置:バーナ先端より5~20mmをカバーしている)





(a)



(b)

図3. 12 微小重力場における生成粒子のTEM写真  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%、  
捕集位置:バーナ先端より5~20mmをカバーしている)

Dobbinsら[68]は、本研究で用いたような熱集じん法において捕集スス粒子のプロープ上での重なりを防ぐため、捕集された粒子の占める面積がプロープ表面積の10%以下である必要があることを指摘している。図3. 11 (a)より、TEMグリッド上に捕集された粒子のグリッド表面積に占める割合は10%以下となっており、捕集された粒子がグリッド上で重なって凝集したものでないことがわかる。

微小重力環境下では、図3. 11のように極めて大きな凝集体が存在しており、その凝集体の径は0.1mmにも達している。これは通常重力環境下の火炎に見られるスス凝集体の200～500倍程度にもなる。この凝集体の一部分を拡大してその微細な構造を観察すると、図3. 12のように通常重力場と同様に小さな粒子が無数に凝集したものであることがわかる。凝集体を構成している基本粒子の直径は約 $0.07\mu\text{m}$ と通常重力環境下のものよりもやや大きめである。この顕微鏡観察より、微小重力環境下の拡散火炎において観察された輝く粒子はスス粒子が凝集し、巨大な凝集体となったものであることがわかる。このことは、ススの凝集が火炎中で急速に進行することを示すものである。微小重力環境下の拡散火炎において、これほど巨大なスス粒子凝集体を形成するまでに凝集が進行するという報告は、これまでになされていない。本研究では、このような通常重力場では見られないほど火炎中で凝集し、巨大化したスス粒子凝集体をスス粒子塊と呼ぶことにする。

微小重力環境下の拡散火炎においてスス粒子が凝集し巨大なスス粒子塊にまで成長することから、通常重力環境下の拡散火炎において排出されるスス凝集体の径は、スス粒子凝集が限界となる径に達して停止するという条件により決定されるのではなく、火炎条件などにより凝集がどの程度まで進行し得るか、また酸化されずに残るかによることがわかる。

### 3.4 スス粒子塊生成におよぼす点火条件の影響

3.2.3項で、微小重力場のボタン噴流拡散火炎におけるスス粒子塊生成について示したが、この場合の点火条件は、通常重力環境において点火し、十分に火炎が安定した後、微小重力環境へ移行したものである。

Edelmanら[30]は、着火が通常重力環境で行われ、その後落下カプセルが切り放され微小重力環境へ移行した場合には、通常重力環境で生じていた熱対流が急になくなることにより、高温の燃焼生成ガスが火炎付近に滞留し、スス生成が盛んになることを指摘している。

本研究では、通常重力環境下での点火のほかに、微小重力環境下での点火を行い、スス粒子塊生成がカプセル切り放し時の遷移現象によるものであるのかどうかの確認を行った。図3.13に、図3.7と同条件(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/s)で、微小重力環境において点火を行った場合の火炎写真を示す。図3.13より、微小重力環境下において点火を行った場合も、通常重力環境下で点火を行った場合と同様にスス粒子塊が生成されることが観察され、このスス粒子塊生成が1Gから $\mu$ Gへ移行する場合の遷移現象ではないことが確認された。また1Gから $\mu$ Gへ移行する際にスス粒子塊がとくに多く生成されるという現象は観察されなかったことから、1Gから $\mu$ Gへ移行する際に燃焼ガスが滞留することによりスス生成が盛んになるというEdelmanらの指摘は疑問に思える。



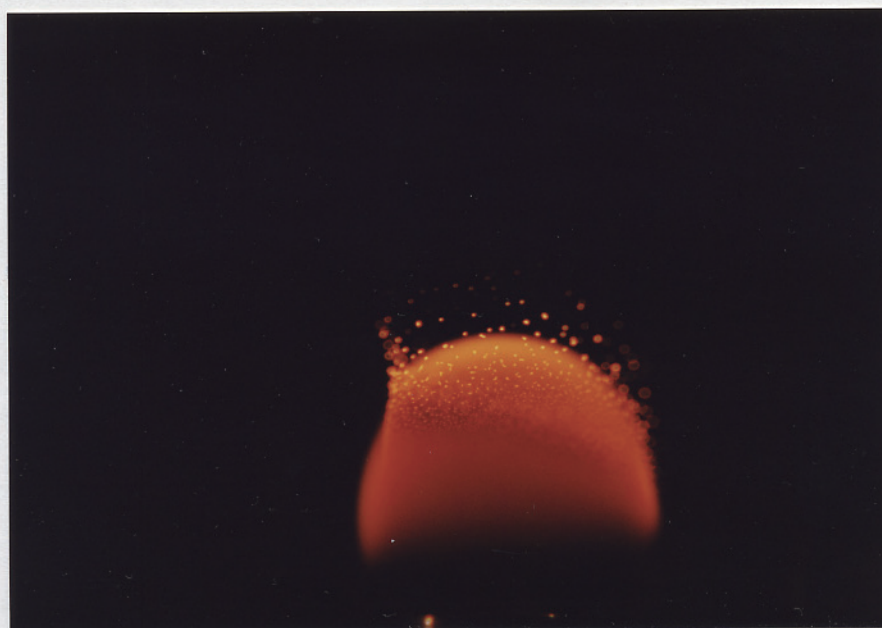


図3. 13 微小重力場において点火を行ったブタン噴流拡散火炎  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、酸素濃度50%)

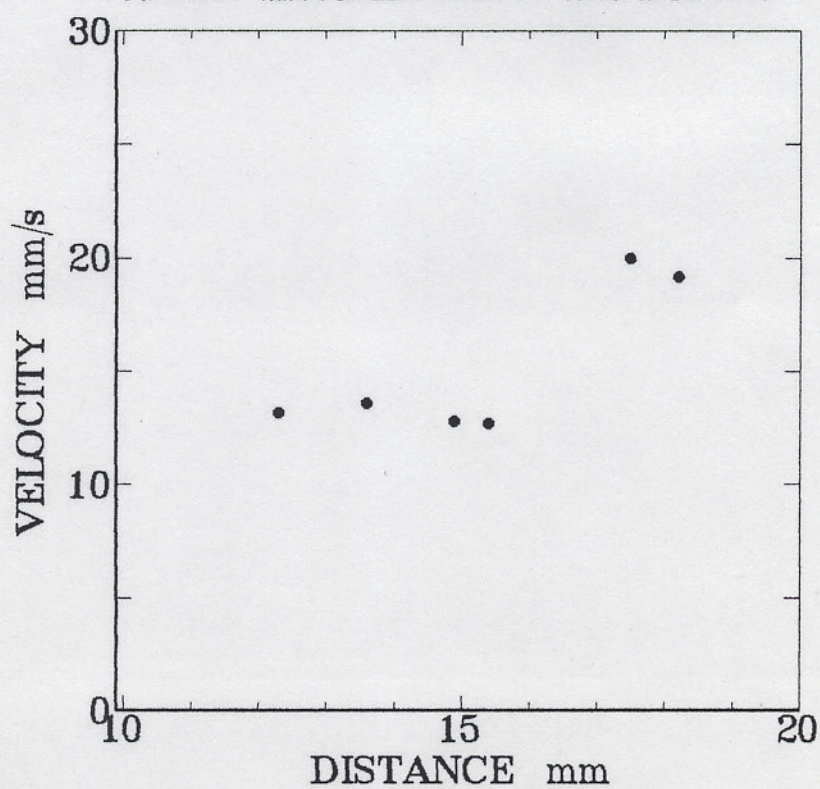


図3. 14 スス粒子塊の移動速度  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流速0.6mL/s)

### 3.5 生成スス粒子塊の経時変化

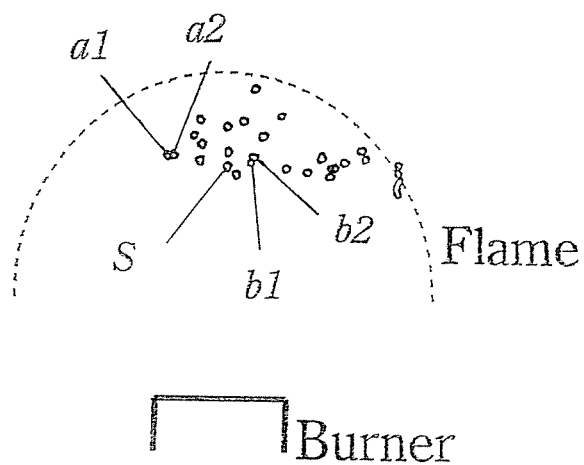
#### 3.5.1 生成スス粒子塊の移動速度

本研究では、微小重力場において拡散火炎に観察されたスス粒子塊の移動速度を、得られたビデオ映像より測定した。図3. 14に、雰囲気酸素濃度50%、バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/sの火炎に生成されるスス粒子塊のバーナ下流方向への移動速度を示す。図の横軸にバーナリムからの距離、縦軸に速度をとってある。図より、スス粒子塊の移動速度は火炎中では13mm/s程度で、火炎を通過するバーナリムからの距離が15mm程度の位置でわずかに減速した後、火炎から離脱すると加速することがわかる。

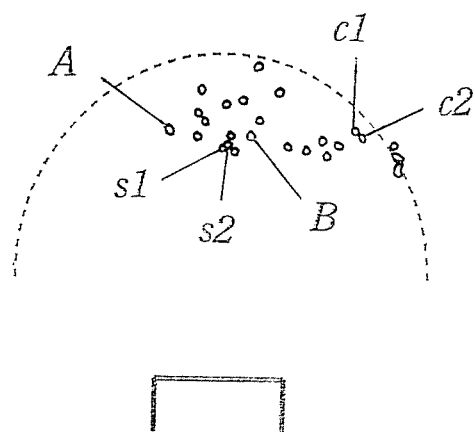
#### 3.5.2 生成スス粒子塊の凝集

前節で、ビデオ映像よりスス粒子塊の移動速度を測定し示したが、この際スス粒子の凝集体であるスス粒子塊同士がさらに合体あるいは分裂する様子が観察された。図3. 15に、スス粒子同士の合体、分裂の様子を示す。図は観察されたスス粒子塊をトレースしたものであり、合体あるいは分裂している粒子には記号を付している。 $a1$  粒子+ $a2$  粒子 $\rightarrow A$  粒子というようにスス粒子塊が合体しているのがわかる。また、 $b1+b2 \rightarrow B$ ,  $c1+c2 \rightarrow C$ についても同様に合体が観察される。S粒子は一度  $s1$  粒子と  $s2$  粒子に分裂した後再び合体し、 $S'$  粒子となり、さらに  $s3$  粒子と合体し  $S''$  粒子となっている。このように火炎中では生成したスス粒子塊が合体しており、なかには分裂するものや複数回合体するものも見られる。このようにスス粒子が凝集して形成された巨大な凝集体がさらに凝集する様子をビデオカメラにより容易に観察出来ることから、

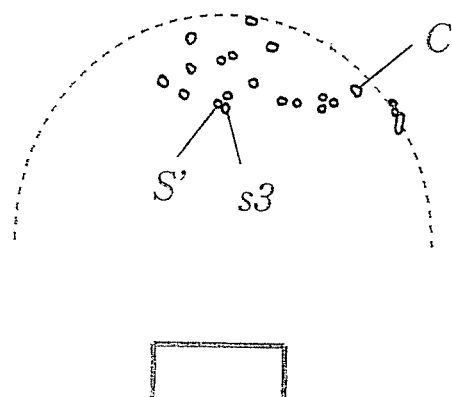




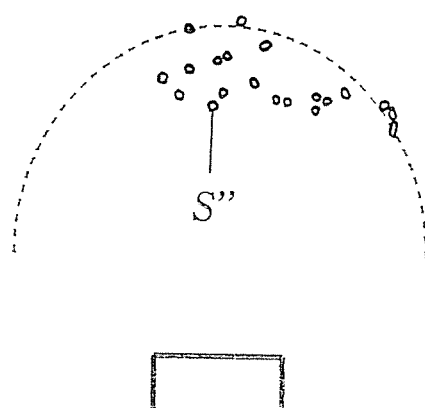
(a) 時刻  $t_s$



(b)  $t+0.13s$



(c)  $t+0.26s$



(d)  $t+0.39s$

図3.15 スス粒子塊の凝集と分裂  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度30%、燃料流量0.6mL/s)

スス粒子の凝集過程に関与している凝集力などを明らかにする上で、微小重力環境にてスス粒子塊生成の様子を観察することは有用であると考えられる。またスス粒子塊のように巨大に成長したスス凝集体がさらに凝集する能力を有していることがわかる。

スス粒子塊が凝集しさらに巨大化していく過程では、スス粒子塊の数が減少していくと考えられる。図3. 16に、スス粒子塊の2次元粒子数の変化を示す。図の横軸にバーナリムからの高さ、縦軸に2次元粒子数(個/mm<sup>2</sup>)をとっている。図より、バーナ下流へ行くほど、すなわち粒子の合体が進むほど粒子数は急激に減少していることがわかる。これは通常重力環境下におけるスス生成の挙動と同様である。

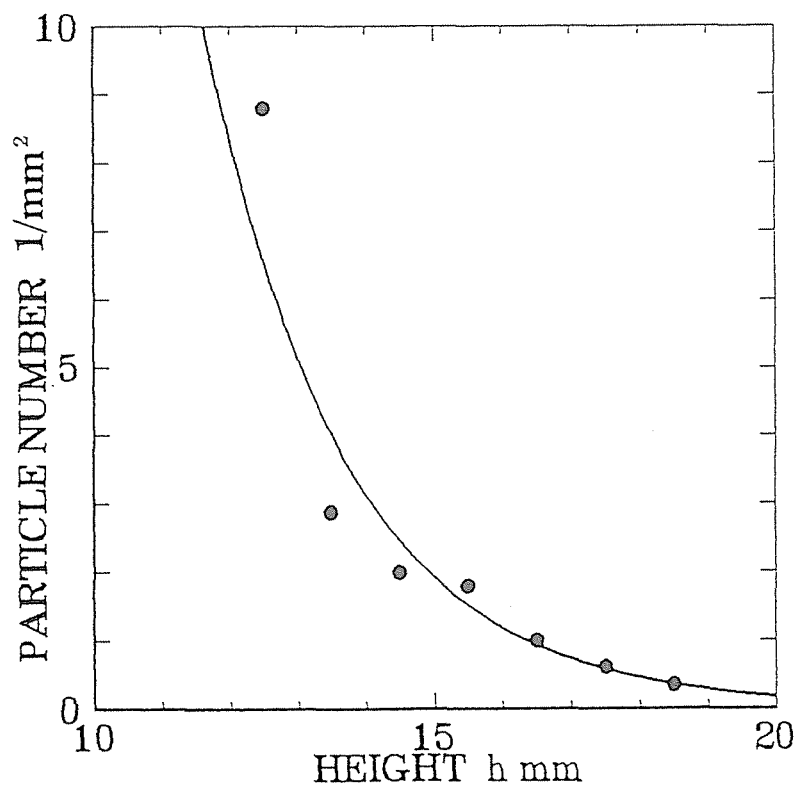


図3. 16 スス粒子塊の2次元粒子数変化  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/s)

分子などの粒子が空間にある密度で分布しているとき、ある粒子が他の粒子と一度衝突を起こしてから再び衝突を起こすまでに移動する距離を平均自由行程という。平均自由行程は粒子の衝突の生じやすさを表す。粒子を直径 $d$ の剛体球と考え、単位体積あたりに $N$ 個の粒子がある場合に、平均自由行程： $L$ は、 $L=1/(\pi \times d^2 \times N)$ で表される[35]。

スス粒子塊を生成している火炎の場合に単位体積あたりの粒子数は、5画面の同一位置、同一面積(スス粒子塊同士の合体が見られる位置)の粒子数の平均から $2.3\text{個}/\text{mm}^3$ と得られる。平均自由行程と同様の考え方でスス粒子塊の合体の場合を考え、スス粒子塊を直径 $0.1\text{mm}$ の球と考えると、この場合に平均自由行程は約 $14\text{mm}$ となる。ただし後述のようにスス粒子塊生成領域の厚さは $0.5\text{mm}$ 程度であるので、検査体積を求める際の奥行きは $0.5\text{mm}$ とした。円管バーナ拡散火炎に生成したスス粒子塊は局所的には同一流速の流れにのっているので、それら粒子の相対速度はなく静止空間とみなしてよい。これらのスス粒子塊が、生成してから流れ去るまでのわずか $0.5$ 秒程度の間に粒子塊同士の衝突、合体を生じているのが観察される。中には2回以上の衝突、合体を生じる粒子も観察される。平均自由行程が $14\text{mm}$ の粒子がこれだけの頻度で衝突、合体を生じるためには、単純に見積もって約 $28\text{mm}/\text{s}$ の速度でスス粒子塊が流れの方向とは無関係に移動しなければならない。このことより、粒子同士に何らかの引き合う力が介在していると考えられる。静電力がスス生成に影響するといわれ[69][70]、またスス粒子の凝集力にはvan der Waals力と同時に静電力の効果が重要であるという指摘もある[51]が、このことについては今後解明されるべき問題の一つであろう。

### 3. 5. 3 生成スス粒子塊の酸化

微小重力環境下の拡散火炎において生成されたスス粒子塊は、通常重力環境下の拡散火炎において生成されたスス粒子が発光しているのと同様に火炎中において発光し、目視で観察することが可能となっている。

火炎から離れた位置では、火炎からの熱を受けることが出来なくなり、粒子は発光せず観察されなくなるが、観察されなくなった位置においてスス粒子塊が完全に酸化され、固体微粒子として存在していないとはいえない。本研究では、火炎上方の目視でスス粒子塊が観察されない位置においてスス粒子塊が完全に酸化されずに存在しているかどうかを確認するため、レーザによるシュリーレン撮影を行った。

シュリーレン装置の概略を図3. 17に示す。レーザは①アルゴンイオンレーザを使用し、②エキスパンジョンレンズ、③④光路変更装置、⑤ミラー、⑥シュリーレンレンズ(両凸レンズ)を通したレーザビーム光をスス粒子塊生成火炎へ照射し、⑦火炎を通過したレーザ光を⑧シュリーレンレンズ(両凸レンズ)、⑨ミラー、⑩ナイフエッジを通して⑪スクリーンへ結像する。スクリーンの映像を⑫ビデオカメラにより観察した。レーザ出口からナイフエッジまでの光路長は1380mmである。

表3. 4に、使用したレーザおよびレンズ等の型式を示す。表3. 4に示したシュリーレン装置にてスクリーン上に得られるシュリーレン映像を8mmビデオカメラにて撮影した。

図3. 18に、バーナ内径6mm、燃料流量1.0mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎の(a)直接画像および(b)シュリーレン画像を示す。火炎直接画像より、火炎はスス粒子塊を生成していることがわかるが、スス粒子塊が目視で確認されるのはバーナリム上方約30mmまでである。シュリーレン画像は画像が粗く、スス粒子塊がどの高さまで存在しているのか明らかではないので、ビデオボード(㈱日本ポートコンピュータ カラービデオデジタイズ入

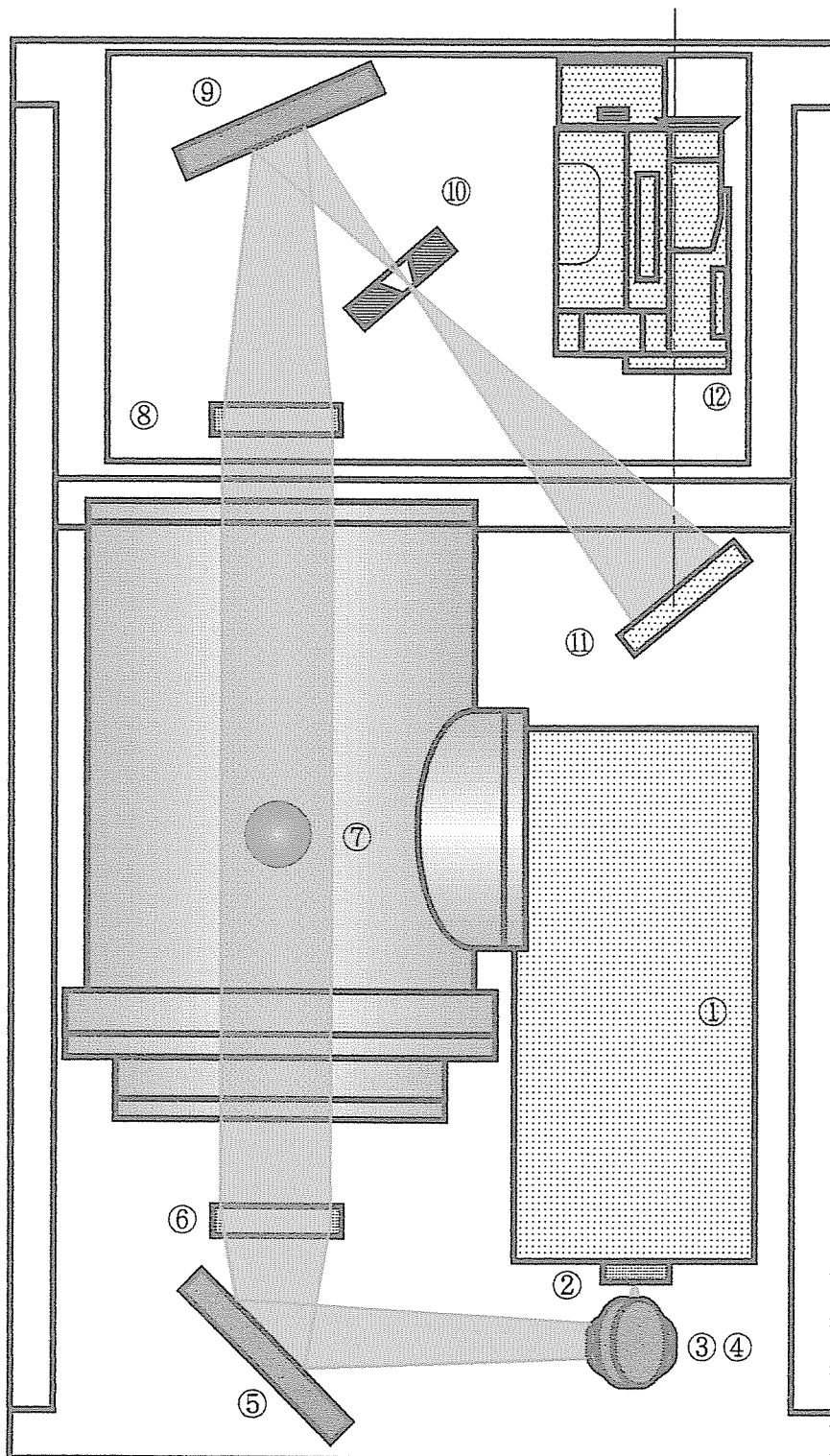


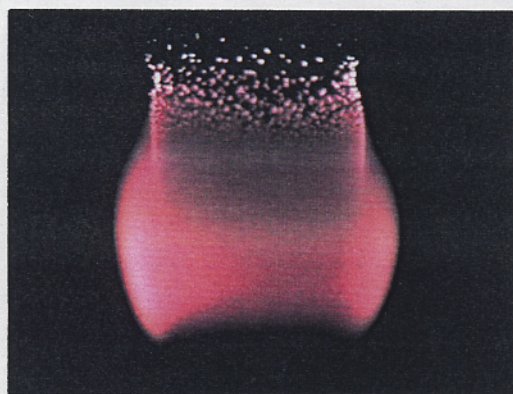
図3. 17 シュリーレン装置概略



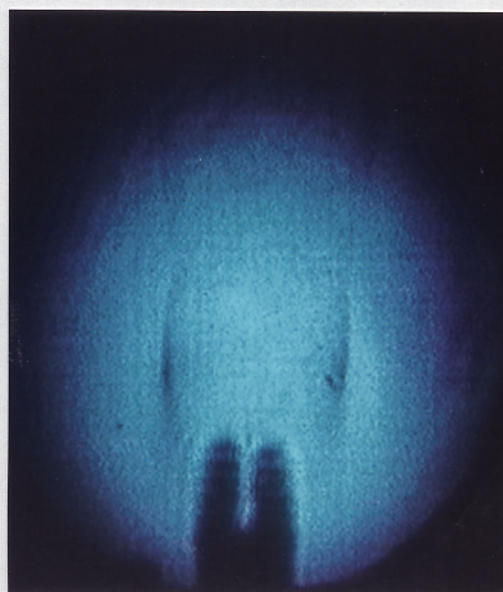
表3. 4 使用シュリーレン装置型式

|              | 型式                     | 仕様および備考                               |
|--------------|------------------------|---------------------------------------|
| アルゴンイオンレーザ*  | 2011-40ML<br>(株)オーテックス | 出力 可変 40mW MAX<br>波長 マルチ514.5・488.0nm |
| エキシマソシオンレンズ* | S-2B-10(*)             | f=10mm                                |
| 光路変更ミラー      | MAC-15-4, MAC-40-4(*)  | 面精度 $\lambda/4$                       |
| ミラー          | MAC-100-4(*)           | 面精度 $\lambda/4$                       |
| シュリーレンレンズ*   | SPBK54-500(*)          | f=500mm                               |
| シュリーレンレンズ*   | SPBK54-400(*)          | f=400mm                               |
| ミラー          | MAC-54-4(*)            | 面精度 $\lambda/4$                       |
| ナイフエッジ*      | C-56(*)                | スリット幅 0-5mm, 0.01mmMin                |

(\*)：(株)中央精機



(a) 直接画像



(b) シュリーレン画像

図3. 18 スス粒子塊のシュリーレン観察  
(バーナ内径6mm、燃料流量1.0mL/s、雰囲気酸素濃度50%)



出力ポート：NBC-PB9805)よりパーソナルコンピュータへ取り込み画像処理を施した。図3. 19に、画像処理を行ったシュリーレン画像を示す。画像処理は連続した2フィールドのスス粒子塊生成火炎画像の和を、同じく連続した2フィールドのスス粒子塊を生成していない場合の画像の和から減じ、さらに火炎下流方向へ直線的な強調処理を行った。背景からスス粒子塊を生成している火炎画像を減じたため、処理前の画像とは明暗が逆転しており、スス粒子塊は明るい点として見られることになる。図3.19より、シュリーレン画像では、スス粒子塊はバーナリムからの高さが40mm以上の位置まで見られることがわかる。これは直接映像において目視で輝くスス粒子塊が確認される高さよりも高い。この結果から、生成しているスス粒子塊は火炎から離れると温度が低下することにより輝きを失い視認できなくなるのであり、スス粒子塊が酸化により完全に消滅しているのではないことが確認された。



図3. 19 スス粒子塊の酸化(処理画像)



### 3.6 スス粒子塊生成への燃料の種類の影響

本研究では、ブタン噴流拡散火炎のほかに、微小重力環境下のろうそく、紙の燃焼火炎、エチレン、メタンの噴流拡散火炎を観察し、スス粒子塊生成が異種燃料において観察されるかどうかの確認を行った。

#### 3.6.1 使用実験装置

##### (1) ろうそく燃焼実験装置

ろうそくの実験には、(株)日本製鋼所室蘭研究所所有の50m級落下施設を用いた。得られる微小重力期間は約2.8sである。本装置では実験装置調整終了から落下までにかかる時間が約2分と比較的短いため、ろうそくに点火後、カプセルを吊り上げ、落下実験を行った。燃焼室内部寸法は120(W)×280(D)×260mm(H)であり、直径17mmの換気口を一つ設置しており、落下カプセル内部のガス交換は自由に行われる。使用したろうそくは外径約11mm、芯径約1mmである。

##### (2) 紙の燃焼実験装置

燃焼室寸法は300(W)×260(D)×264mm(H)であり、燃焼室内部初期酸素濃度を任意に設定する事が可能である。使用した紙の諸元を表3.5に示す。この紙を20(W)×180mm(L)に切断した試料を用いた。本装置では試料を3つ(平行、試料間距離60mm)同時に燃焼させることが可能であり、本実験では紙および綿糸を同時に燃焼させている。点火はニクロム線加熱により、微小重力環境下において点火を行った。

表3. 5 紙((株)コクヨ製、上質方眼紙ホ-19)の諸元

|                       | 規格値         | 平均値   |
|-----------------------|-------------|-------|
| 坪量(g/m <sup>2</sup> ) | 70.0-74.0   | 72.3  |
| 厚さ(mm)                | 0.091±0.005 | 0.093 |
| 白色度(%)                | 78.0-87.0   | 82.0  |
| 水分(未調%)               | ————        | 5.8   |

(温度20℃、湿度60%、サンプル10ヶ)

### (3) エチレン噴流拡散火炎

装置は3. 2. 2項で述べたものと同様であるが、燃料ボンベが異なる(ジーエルサイエンス株式会社, 定量用標準ガス: エチレン99.5%, 充填圧力8kg/cm<sup>2</sup>G)。

### (4) メタン噴流拡散火炎

装置は3. 2. 2項で述べたものと同様であるが、燃料は純CH<sub>4</sub>を2Lの天然ゴム製のガス袋に0.01MPaで充填し供給した。この際圧力降下による燃料流量の減少が問題となるが、本研究で用いた流量(0.6mL/s)では、20sの燃料供給で約0.9%の圧力降下であり、問題とはならない。ガス袋は装置の構造上、燃焼室内に配置しなければならなかったことから、安全のためφ165×225mmの鋼板製円筒で覆った。

## 3. 6. 2 燃料の種類の影響

図3. 20に、(a)通常重力環境下および(b)微小重力環境下のろうそく

は、試料を包み込むような火炎の内部に、数多くの輝くスス粒子塊が生成しているのが確認される。この粒子は通常重力環境下において確認されず微小重力環境下においてのみ確認される。微小重力環境下の火炎において輝く粒子が紙の上ではない位置にも観察されることから、これらの粒子が燃焼する紙片ではなく、気相析出した粒子であることがわかる。

図3. 22に、(a)通常重力環境下および(b)微小重力環境下におけるエチレン噴流拡散火炎を示す。バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度21%である。図3. 22より、微小重力環境下のエチレンの火炎においても火炎先端部に、火炎上方へ流れるようにスス粒子塊生成が観察されることがわかる。一般にオレフィン系燃料であるエチレンはパラフィン系燃料であるブタンよりも発煙傾向が高く[71]、微小重力環境で生成されるスス粒子塊についてもこの傾向は同様であると考えられる。

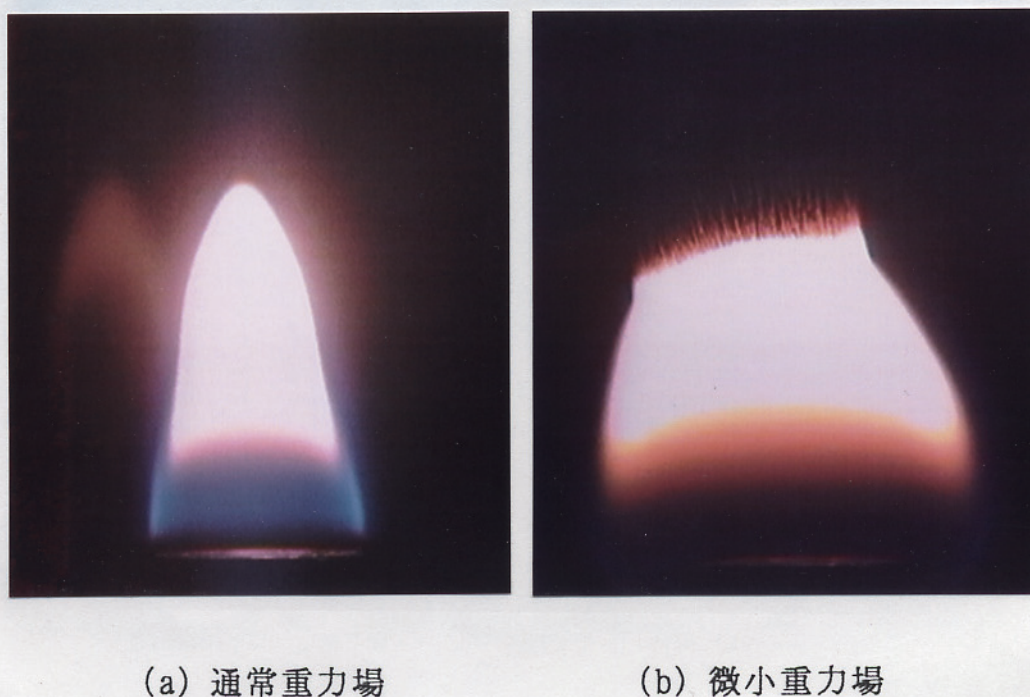
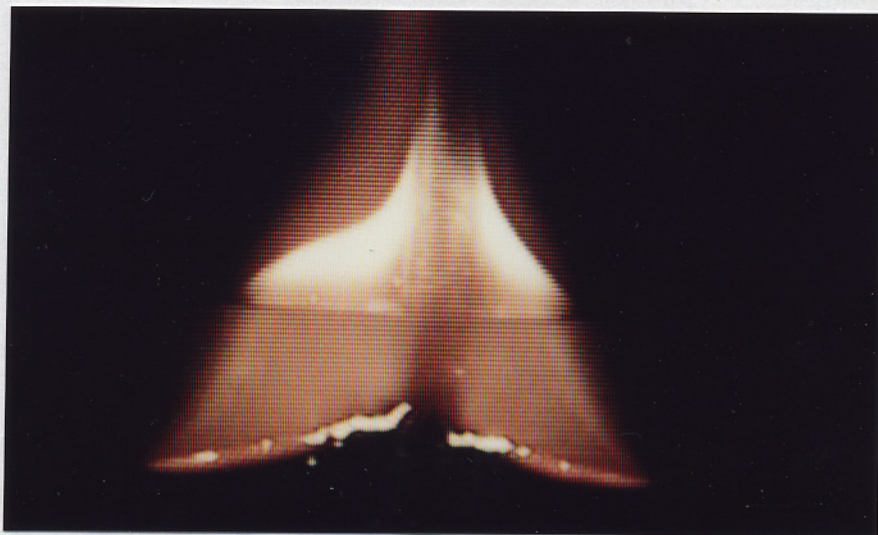
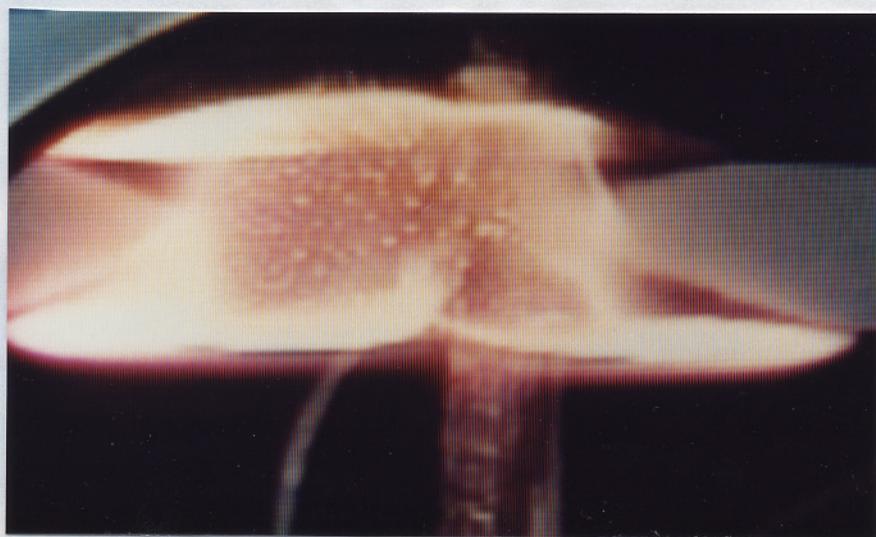


図3. 22  $C_2H_4$  火炎  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度21%、燃料流量0.6mL/s)





(a) 通常重力場



(b) 微小重力場

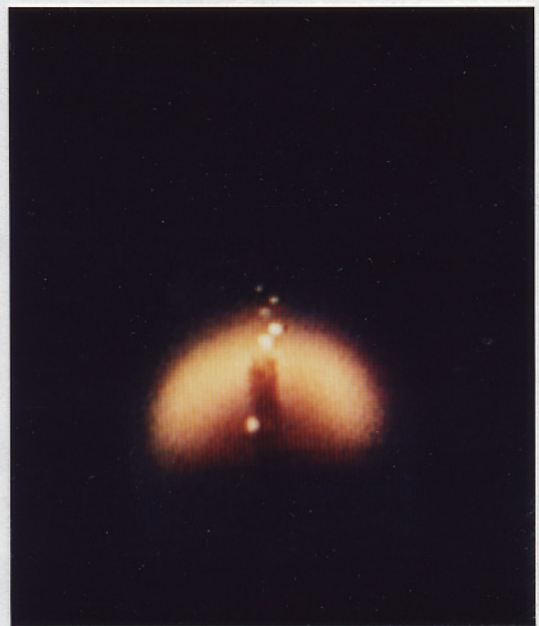
図3. 21 紙の火炎(雰囲気酸素濃度40%)



の火炎写真を示す。雰囲気酸素濃度は21%である。図3. 20より、ろうそく火炎においても、火炎に輝く粒子が観察され、スス粒子塊が生成していることがわかる。ろうそく火炎は燃料流が運動量を持たず蒸発、拡散により火炎へ供給される。つまり燃料流速を持たない場合のバーナ火炎と同様であると考えられるが、燃料の蒸発量が火炎温度に依存するため、バーナ拡散火炎よりも現象は複雑である。



(a) 通常重力場



(b) 微小重力場

図3. 20 ろうそくの火炎(雰囲気酸素濃度21%)

図3. 21に、(a)通常重力環境下および(b)微小重力環境下の紙の燃焼火炎を示す。雰囲気酸素濃度は40%である。(a)は現象が高速であるためシャッタースピードを1/10000sに設定している。火炎中に輝く粒子は確認されない。時折、輝く粒子状のものが上方へ流れるのが確認されるが、これは燃焼している紙の下端から赤熱した固定炭素および灰分が自然対流により上方へ流されているものである。一方、(b)微小重力環境下で



図3. 23に、(a)通常重力環境下および(b)微小重力環境下におけるメタン噴流拡散火炎を示す。バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度21%である。図3. 23より、微小重力環境下のメタン火炎においては、スス粒子塊生成が見られないことがわかる。一般に、分子量の小さい燃料ではスス生成が生じにくいことが知られており[40]、またメタンやブタンなどのパラフィン系炭化水素( $C_nH_{2n+2}$ )ではnの減少により発煙傾向が低下することが知られている[71]。これにより分子量の小さな $CH_4$ ではスス粒子の凝集体であるスス粒子塊の生成も確認されないと考えられる。



(a) 通常重力場



(b) 微小重力場

図3. 23  $CH_4$ 火炎  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度21%、燃料流量0.6mL/s)

### 3.7 まとめ

微小重力環境下のボタン噴流拡散火炎中に、通常重力環境下では見られない特徴的な輝く粒子の生成が観察された。微小重力環境下の火炎において粒子の捕集および顕微鏡観察を行った結果、この粒子は拡散火炎中で生成されたスス粒子が凝集し、巨大化したものであることがわかった。本研究ではこの凝集粒子をスス粒子塊と呼ぶが、このスス粒子塊の凝集径は約0.1mmにも達し、この凝集径は通常重力環境下で生成されるスス粒子凝集体の200～500倍にも達する。微小重力場において生成されるスス粒子が凝集する傾向にあることがKuら[36]により指摘されているが、本研究に見られるように視認出来るほど巨大化することは報告されておらず、新しく発見された現象である。

通常重力環境下で点火を行い微小重力環境下へ移行する際にはスス生成が盛んになると指摘されているが、スス粒子塊生成は、通常重力環境下で点火した場合のみならず、微小重力環境下で点火した場合にも観察された。これよりスス粒子塊生成は通常重力環境下で形成された拡散火炎が通常重力環境から微小重力環境へ移行することにより生じる遷移現象ではなく、微小重力環境で重力による物体力がなくなることにより観察される現象であることが確認された。

生成したスス粒子塊の挙動を観察した結果、次のようなことが明らかになった。視認出来るほど巨大化したスス粒子塊は、さらに火炎中で合体、あるいは分裂することが観察された。またスス粒子塊の粒子数は、バーナ下流へ行くにしたがい、すなわち凝集が進むにしたがい急激に減少することが確認された。また、シュリーレン観察より、火炎領域を通過して目視で確認できなくなったスス粒子塊は酸化により消滅するのではなく、温度低下により輝きを失うのであり、視認できなくなった後も

存続して飛行していることが確認された。

スス粒子塊生成への燃料の種類による影響について調べた結果、スス粒子塊は微小重力環境下におけるボタン以外の燃料(ろうそく、紙)の燃焼においても生成されることがわかった。また本研究で行った雰囲気酸素濃度が21%の場合に、ボタン以外の気体炭化水素燃料であるエチレンの火炎には生成されるが、メタンの火炎には生成されないことがわかった。これはメタンの発煙傾向が低いことに起因すると考えられ、微小重力環境下のスス粒子塊生成においても相対発煙傾向は通常重力環境下と同様であることがわかった。



## 第 4 章

スス粒子塊生成への気体流速の影響

#### 4.1 概要

前章で述べたように、微小重力環境下においては、通常重力環境下の拡散火炎には観察されない特徴的なスス粒子塊が生成される。微小重力場では、通常重力場とは異なり浮力に起因する熱対流が生じないため、火炎からの高温燃焼生成物を含め火炎近くの気体の流速が通常重力場におけるものとは異なると考えられ、さらにこの流速の違いがスス粒子塊の生成に影響していることが予想される。

本章では、微小重力場におけるスス粒子塊生成に対する火炎近傍の流れの影響を調べるため、火炎周りの残留対流の影響、バーナ内径の影響、局所的な流れの影響、そして燃料流速の影響について検討した。

#### 4.2 火炎周囲残留対流のスス粒子塊生成への影響

本研究では、3.2節で述べたように通常重力場において点火を行った場合に、通常重力場において生じた自然対流が微小重力場へ移行した後も残留するのを防ぐため、バーナ下流にステンレス製金網(80×80mm、25メッシュ、線径0.2mm)を設置した。

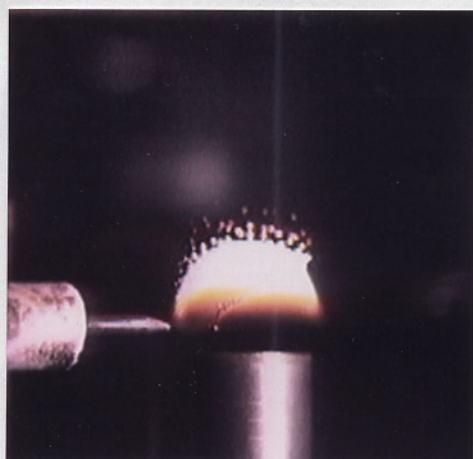
微小重力場において点火を行った場合には、この残留対流抑制網を設置せずに実験を行ったが、通常重力場において点火後微小重力場へ移行した火炎と同様にスス粒子塊の生成が観察された(3.4節)。これより上述したような火炎においては、残留対流の有無に関わらず火炎周囲に残留対流のような気体の流れが存在しない場合には、スス粒子塊は生成されることがわかる。つまり、バーナ下流の金網は直接スス粒子塊の生成には関与していない。

バーナ下流に残留対流抑制網を設置せずに通常重力場において点火を行い、その後微小重力場へ移行した場合、自然対流が火炎近くに残留し

火炎近くの流速は残留対流抑制網を設置しない場合に比べ大きくなることが予想される。

図4. 1に、火炎周囲の残留対流のスス粒子塊生成への影響について示す。火炎の条件は、バーナ内径6mm、燃料流量0.3mL/s、雰囲気酸素濃度40%、通常重力場点火である。(a)が残留対流抑制網を設置した場合、(b)が設置しない場合である。図4. 1より、残留対流抑制網を設置した場合にはスス粒子塊が観察されるが、設置しない場合にはスス粒子塊が生成されることがわかる。この結果より、残留対流のような火炎周囲のわずかな流れによってもスス粒子塊生成が影響を受けることがわかる。また、同時に本研究で使用した残留対流抑制網が残留対流を抑えるのに有効であることが示された。

通常重力環境から微小重力環境へ移行する際の残留対流の減衰について、亀井ら[72]が実験を行っている。亀井らは300°Cの基板周りのHeガスの自然対流が微小重力環境へ移行後2~3秒で停止することを確認しているが、火炎温度は300°Cよりも高く、また微小重力環境下の燃焼現象はスス粒子塊生成のように小さな流れに大きく影響されるため、実験に際しては細心の注意が必要である。



(a) 対流抑制網設置



(b) 抑制網なし

図4. 1 火炎周囲残留対流のスス粒子塊生成への影響  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.3mL/s、酸素濃度40%、通常重力場点火)



### 4.3 バーナ内径のスス粒子塊生成への影響

前節において、火炎周囲の気体流速がスス粒子塊生成に大きく影響していることを示唆したが、スス粒子塊生成が火炎あるいは火炎近傍の気体の流速に影響されるのであれば、燃料噴流の流速も影響することが予想される。本節では微小重力環境下の拡散火炎に観察されるスス粒子塊生成への燃料流速の影響について述べる。

単位時間あたりの反応化学種量、発熱量などを同じ条件にするため、供給燃料流量を一定とし、バーナ内径を変化させて供給平均燃料流速を変化させた。

#### 4.3.1 使用バーナ

本研究では、バーナ内径を変化させて平均燃料流速を変化させ、スス粒子塊生成への平均燃料流速の影響を調べるため、内径6mm(外径8mm)円管バーナのほかに、内径2mm(外径4mm)、内径1mm(外径2mm)の円管バーナを用いた。図4.2に、バーナ外観を示す。

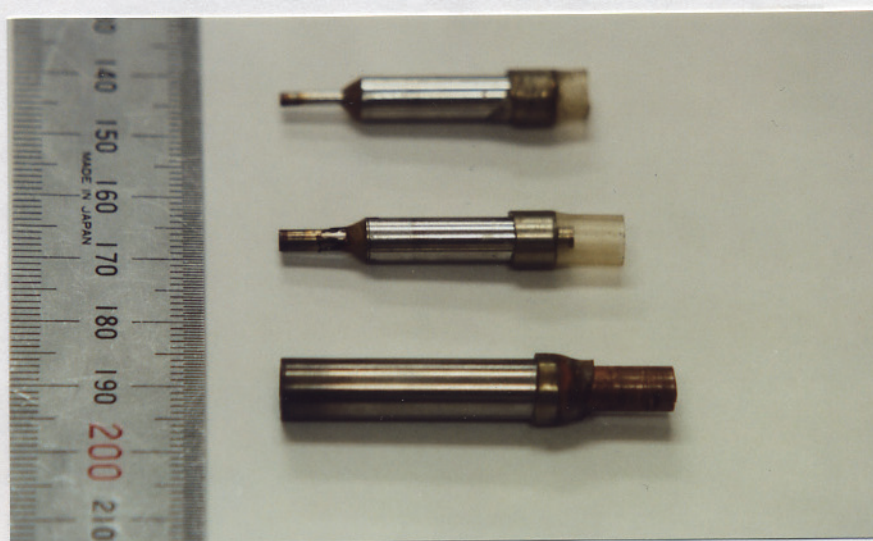


図4.2 バーナ外観

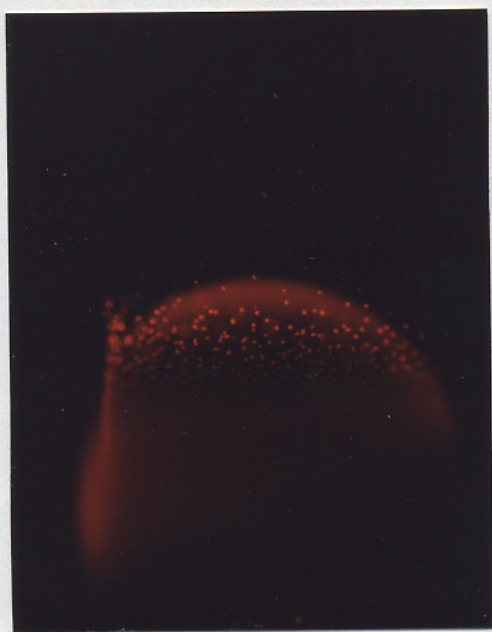


#### 4.3.2 平均燃料流速のスス粒子塊生成への影響

本研究では、燃料流量を0.6mL/s一定とし、円管内平均燃料流速を0.021~0.76m/s ( $Re=42.1\sim253.0$ )に変化させ、スス粒子塊生成に対する燃料流速の影響を観察した。図4. 3に、観察結果を示す。平均燃料流速の小さい火炎( $V=0.021\text{m/s}$ ,  $0.19\text{m/s}$ )においては、火炎上方にスス粒子塊生成が観察されるが、燃料流速の大きい火炎( $V=0.76\text{m/s}$ )においてはスス粒子塊生成が見られないことがわかる。これより、燃料流速がある値より大きいこともスス粒子塊の生成しない条件となることがわかる。

通常重力環境下の火炎では、火炎中滞留時間は火炎長に大きく依存し、バーナ内径には大きく依存しないが、微小重力環境下の火炎では、火炎長一定の場合にはバーナ内径に大きく依存する[37]。図4. 3に示した火炎の火炎長はそれぞれ18mm(内径6mm)、15mm(内径2mm、1mm)と大きな差はなく、滞留時間はバーナ内径の大きい方が大きいことから、内径6mmの火炎で最も大きくなる。通常重力環境下の火炎においては、滞留時間の増加とともにスス質量および粒子径が増大する[40]が、微小重力環境下の火炎においても同様に、滞留時間がスス粒子塊生成に影響しており、滞留時間が大きくなるとスス粒子の凝集も進行すると考えられる。

燃料流速が0.021m/sの火炎と0.19m/sの火炎において、生成部単位面積当たりの視認されるスス粒子塊の粒子数を比較すると、(a)4.5個/mm<sup>2</sup>、(b)27.3個/mm<sup>2</sup>で、燃料流速の大きい方が多いことがわかる。燃料流速が大きい場合にスス粒子の凝集の結果であるスス粒子塊が生成されないことをあわせて考えると、燃料流速が大きい場合には火炎滞留時間も短く生成スス粒子の凝集が進まないため、スス粒子塊の粒子数が増えると思われる。



(a)  $V=0.021\text{m/s}$   
( $Db=6\text{mm}$ ,  $Re=42.1$ )



(b)  $V=0.19\text{m/s}$   
( $Db=2\text{mm}$ ,  $Re=126.5$ )



(c)  $V=0.76\text{m/s}$   
( $Db=1\text{mm}$ ,  $Re=253.0$ )

図4.3 スス粒子塊生成への燃料流速の影響

## 4. 4 局所噴流のスス粒子塊生成への影響

### 4. 4. 1 噴流発生装置

火炎周囲の気体および燃料流速が大きい場合には、微小重力場でのスス粒子塊が生成されないことが示された。本研究では、この火炎周囲の気体流速の影響をより顕在化するため、微小重力場においてスス粒子塊を生成している火炎の一部に噴流により強制流を与え、その流れによる影響を調べた。

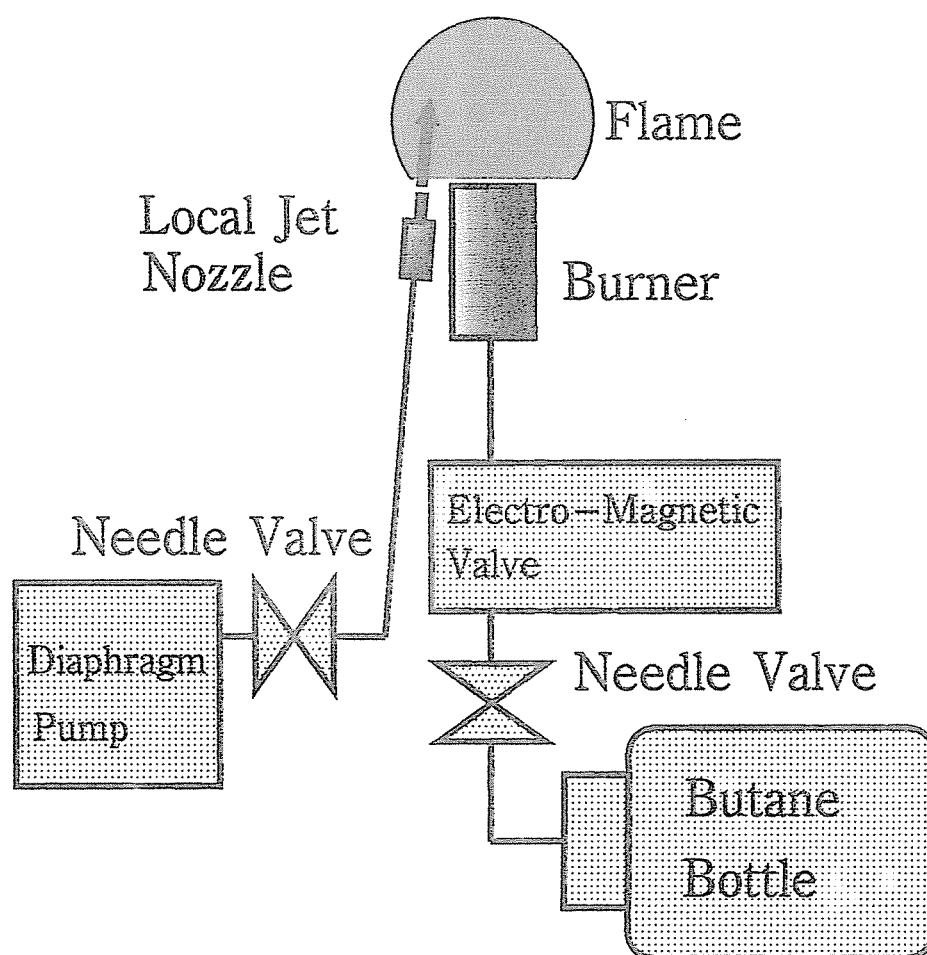


図4. 4 局所噴流発生装置概略



図4. 4に、局所噴流発生装置の概略を示す。燃焼室内の気体をダイヤフラムポンプ((有)アデックス、101シングルエアポンプ)で吸入し、ニードルバルブを介してバーナ近くに設置したノズルより供給する。このため、供給される気体は燃焼室内の初期酸素濃度に等しい。局所噴流ノズル内径は0.5mmである。

#### 4. 4. 2 局所噴流のスス粒子塊生成への影響

図4. 5に、微小重力場においてスス粒子塊を生成している火炎(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)に、局所噴流を与えた場合の火炎を示す。与えた局所噴流流速は0.75m/s、酸素濃度は燃焼室内酸素濃度と同じ50%である。図4. 5のバーナの左側に局所噴流ノズ



図4. 5 局所噴流のスス粒子塊生成への影響



ルを、図のように設置した。火炎は図3. 7のものと同一条件であるが、局所噴流の影響で図の左側に引き寄せられている。これは局所自由噴流による周囲流体の同伴作用によると考えられる。しかしスス粒子塊生成の様子に着目すると、噴流を与えていない火炎右側ではスス粒子塊生成が観察されるが、噴流を与えた火炎左側では観察されない。これより火炎周囲の気体の流速がスス粒子塊生成に大きく影響していることがわかる。

#### 4. 5 火炎周りの気体流速

##### 4. 5. 1 流速測定

通常重力環境下では見られないほど巨大なスス凝集体が微小重力環境下では観察されたが、この凝集の過程には火炎周りの気体流速が大きく影響していると考えられ、このことはまた実験の結果より確認された。本研究では、通常重力環境下の拡散火炎と微小重力環境下の火炎において、火炎周りの気体流速がどの程度異なるのかを調べるため、火炎近くの気体流速を測定した。

流速の測定には酸化マグネシウム(酸化マグネシウム $MgO$ 、粒径 $0.3\mu m$ 、純度99.9%、重質粉末)をトレーサとして用い、Fristromら[73]の手法と同様に、バーナより供給した。図4. 6に使用したトレーサ供給装置を示す。バーナ下方に $MgO$ を包んだ金網を配置し、内部のブラシを回転(31.3 rpm)させることにより燃料流中に $MgO$ を供給する。また、バーナ台部分にも $MgO$ をのせ、微小重力環境下で粉末を浮遊させることにより火炎外側の流速測定を試みたが粉末の浮遊が不十分でデータが得られなかった。しかしカプセル制動時の衝撃により粉末の一部が浮遊したため、通常重力火炎の外側の流速が測定できた。

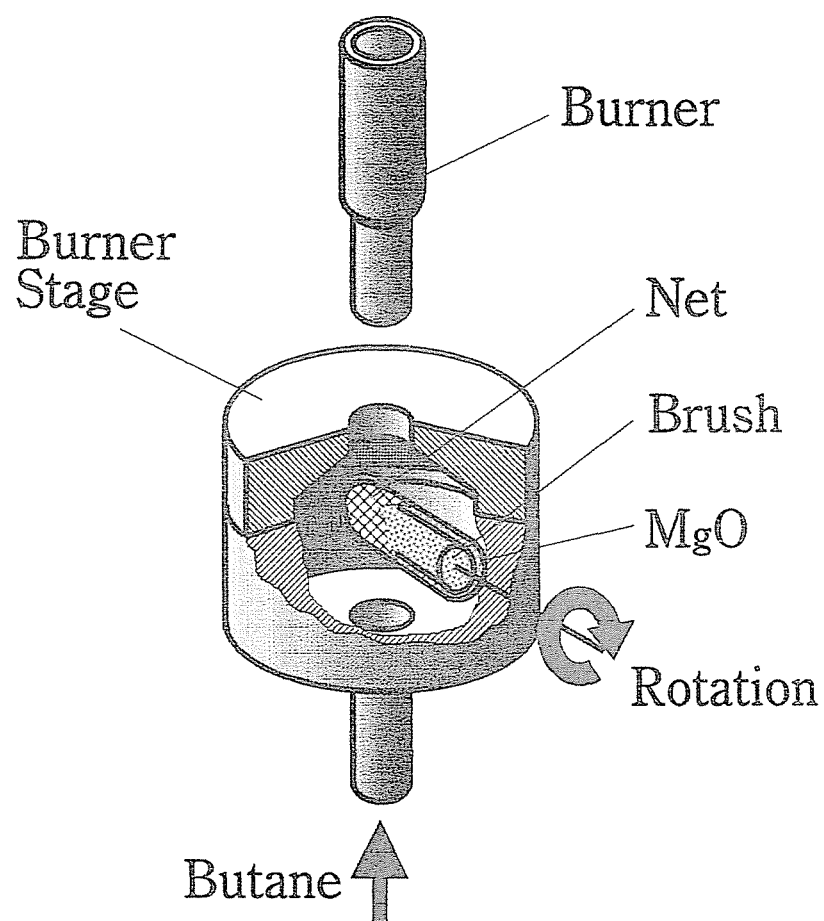


図4. 6 トレーサ供給装置概略

トレーサを発光させる照明としてクセノンショートアークランプ(UXL-150D、点灯装置XB-15101AA-A、倭ウシオ電機製)を使用し、スリットを用いてシート光にて照射した。撮影は35mmカメラおよび8mmビデオカメラにて行い、粒子がシャッター開放時間内に流れる距離より流速を測定した。

#### 4.5.2 火炎周りの気体流速

図4. 7に、通常重力および微小重力環境下における火炎周りの流速を示す。火炎はバーナ内径6mm、燃料流量1.2mL/s、雰囲気酸素濃度50%である。

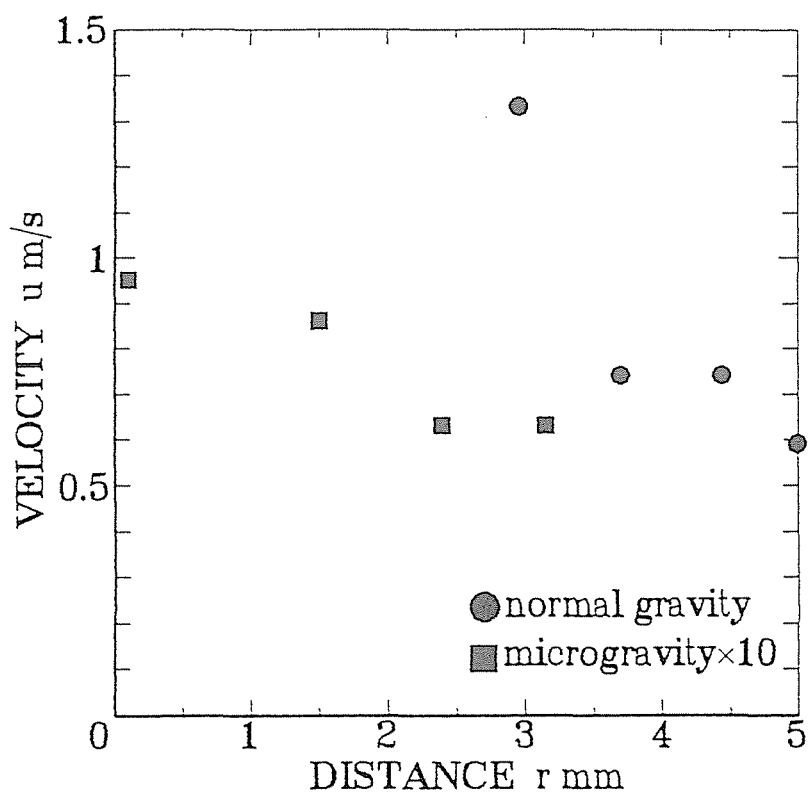


図4. 7 火炎周りの気体流速  
(バーナ内径6mm、燃料流量1.2mL/s、  
雰囲気酸素濃度50%、バーナリムよりの高さ6.5mm)

図の横軸にバーナ中心からの距離、縦軸に流速を示しているが、微小重力環境下の流速は10倍の倍率で示している。図より、明らかに通常重力環境下の火炎の方が火炎周りの流速が大きく、それらの流速の大きさは十倍以上異なることがわかる。

#### 4.6 生成開始点に及ぼす燃料流速の影響

本研究では、4.3節のように燃料流量一定で円管バーナ内径により燃料流速を変化させた場合のほかに、バーナ内径一定で燃料流速を変化させた場合のスス粒子塊生成への影響についても観察を行った。

図4.8 (a)に、スス粒子塊生成開始点の概略を示す。スス粒子塊生成の始まりが見られる高さを $H$ 、半径を $R$ とした。開始点はバーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、微小重力環境移行約10秒後の位置を示している。

図4.8 (b)より、平均燃料流速が大きくなると、スス粒子塊生成開始点はバーナリムよりの距離(高さおよび半径)が大きい位置になることがわかる。これは平均燃料流速が大きくなると、スス粒子塊生成に適した流速の現れる位置がバーナリムよりの距離が大きい位置へ移動することが一因になっていると考えられる。

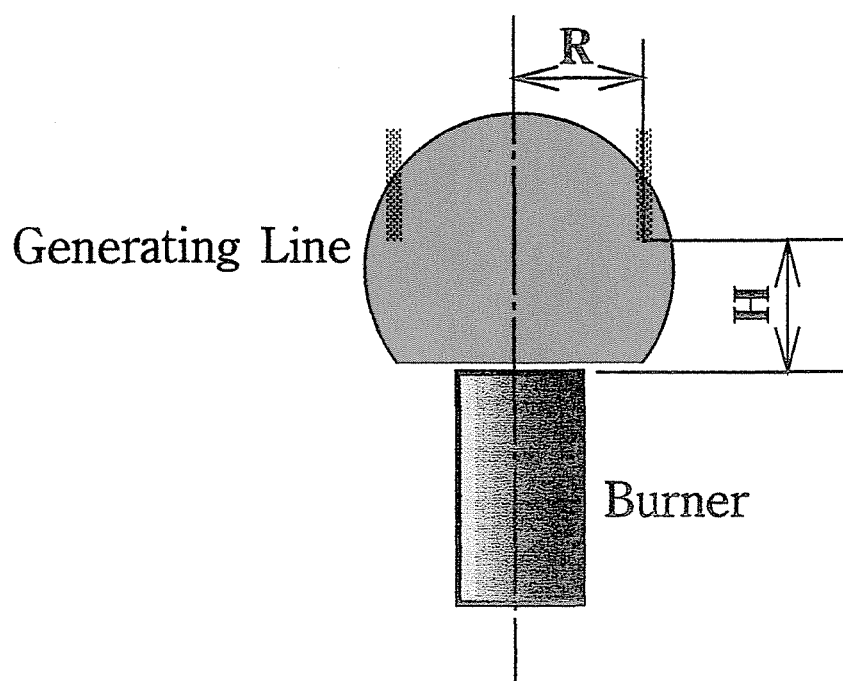
本研究で用いた通常の円管バーナにおいて生成されたスス粒子塊は、火炎上部から火炎下流方向へ移動するが、燃料流速が非常に小さい場合( $Q_f=0.15\text{mL/s}$ ,  $V_f=0.0053\text{m/s}$ )には、異なる挙動が観察された。この場合のスス粒子塊生成の様子を図4.9(a)に、概略を(b)に示す。バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%である。

図4.9に示した火炎では、生成したスス粒子塊が火炎下流部へ流されずにバーナリム付近で環流する様子が観察される。

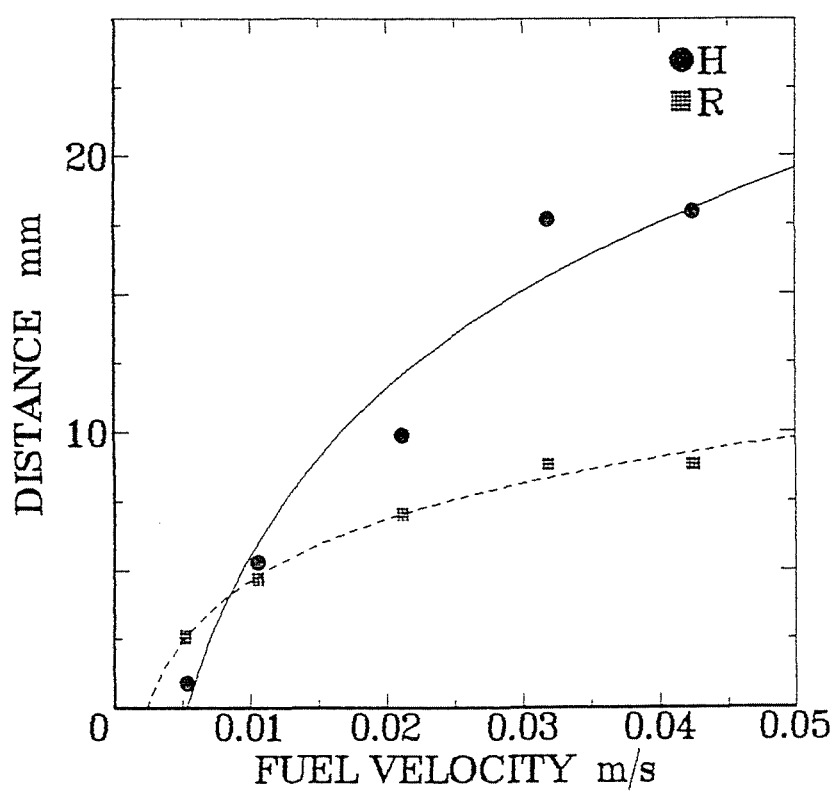
微細な固体微粒子が温度勾配が急な気体中に浮遊しているとき、微粒子は温度勾配に沿った方向に力を受け、これによりドリフト速度が誘起される。これは微粒子のサーモフレイシス(熱泳動)効果と呼ばれる[74]。

Hiranoら[75]は、約 $20\mu\text{m}$ の酸化マグネシウム粒子が、温度勾配が $16\text{K/mm}$ において $0.22\text{mm/s}$ 、 $45\text{K/mm}$ において $0.67\text{mm/s}$ の速度で低温壁の方向へ移動するという結論を得ている。スス粒子塊は、図4.9に見られるよう





(a) スス粒子塊生成開始点

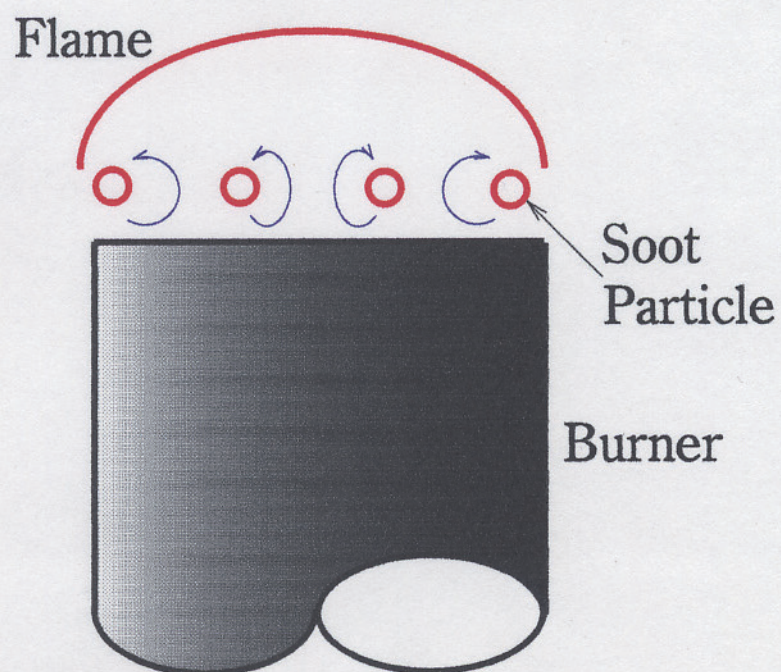


(b) 燃料流速とスス粒子塊生成開始点

図4.8 燃料流速のスス粒子生成開始点への影響



(a) スス粒子塊生成の様子



(b) スス粒子塊の環流概略

図4.9 燃料流速が小さい場合のスス粒子塊生成  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.15mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

に火炎近くで生成される。火炎付近における温度勾配は大きく(5. 4. 3項で述べる)、生成された固体微粒子であるスス粒子塊はサーモフレイシス効果により、低温側である未燃燃料側へ移動すると考えられる。この効果は、火炎付近の温度勾配が同じであれば燃料流速によらず同じであると考えられる。しかし燃料流速が小さい場合には、スス粒子塊を火炎下流へ押し流す運動量も小さいため、サーモフレイシス効果が相対的に顕在化し、生成スス粒子塊が低温燃料側へ移動すると思われる。低温燃料側へスス粒子塊が移動すると、温度勾配が小さくなること、また凝集径が大きくなることにより燃料流の抗力が大きくなることにより、スス粒子塊は火炎方向へ押し戻されバーナリム付近において環流する結果になると考えられる。バーナリムが低温であることもこのサーモフレイシス効果を助長すると思われ、また生成粒子がバーナリム付近で環流することが粒子の凝集を助長すると考えられる。

生成スス粒子塊がバーナリム付近で環流する一要因として、バーナリム部の流体的環流領域によるものが考えられる。しかしこの影響は燃料流速が小さい場合には小さくなると考えられることから、バーナリム部の流体的環流は、燃料流速が小さい場合に見られるバーナリム付近での生成粒子の環流の説明には適当ではないと思われる。

## 4. 7 燃料供給形態の違いによるスス粒子塊生成への影響

### 4. 7. 1 セラミックファイバ挿入バーナ

これまで示した通常の円管バーナでは、円管内燃料流がポアズイユ流れとなり、自由噴流もバーナ中心で最大流速を示す流速分布となる。本研究では内径18mm(外径20mm)の円管バーナの先端に厚さ15mm、空隙率54.8%のセラミックファイバマットを挿入したバーナを使用して、なる



べく平坦な流速分布を形成し、実験を行った。図4. 10に、本研究で使  
用したセラミックファイバ挿入バーナの外観を示す。



図4. 10 セラミックファイバマット挿入バーナ  
(燃料噴出口径18mm、セラミックファイバ厚さ15mm、空隙率54.8%)

#### 4. 7. 2 燃料供給形態の影響

円管バーナにおいて生成されるスス粒子塊は図4. 3 (a)に示したよう  
に火炎上部側面から耳のように飛び出して生成しているように観察され  
る。また平均燃料流速が大きい場合には生成されない。図4.11に、燃料  
供給形態を変えた場合のスス粒子塊生成の様子を示す。

平均燃料流速はそれぞれ(a) 0.0014m/s、(b) 0.0022m/s、(c) 0.0035  
m/sであり、図4. 9に示した低流速の火炎( $V_f=0.0053\text{m/s}$ )よりも小さい。  
(a)の火炎ではスス粒子塊生成が観察されず、燃料流速が極めて小さい  
場合にもスス粒子塊が生成されないことがわかる。通常重力環境下の火  
炎においても、燃料流量(流速)の小さい火炎では火炎が高温となり酸化

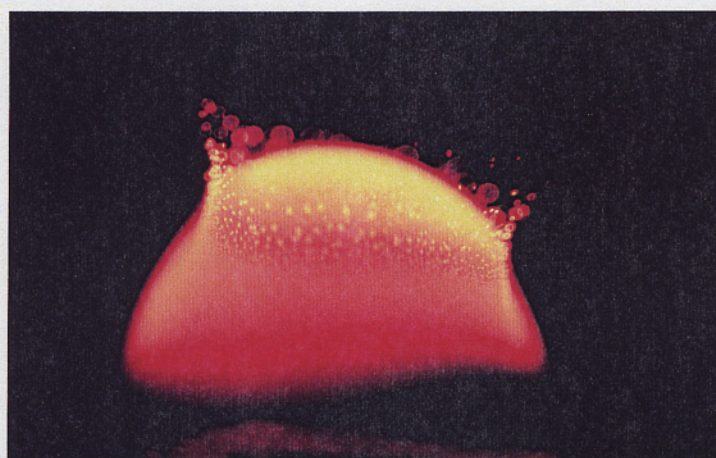




(a)  $Q_f=0.35\text{mL/s}$  ( $V_f=0.0014\text{m/s}$ )



(b)  $0.55\text{mL/s}$  ( $V_f=0.0022\text{m/s}$ )



(c)  $0.90\text{mL/s}$  ( $V_f=0.0035\text{m/s}$ )

図4. 11 燃料供給形態によるスス粒子塊生成への影響  
(18mm i.d.セラミックファイバ挿入、雰囲気酸素濃度50%)



過程がすぐに始まるため、ススの酸化が速いことが知られている[76]。これと同様に微小重力環境下でも酸化のため生成スス粒子の凝集が進行せずスス粒子塊生成には至らないと考えられる。

以上のように、自由噴流拡散火炎においては燃料流速が大きい場合、あるいは極めて燃料流速が小さい場合にはスス粒子塊生成には至らない。

燃料流量が(b)0.55mL/sの場合には、スス粒子塊が観察されるが、円管バーナに見られるように火炎上部側面から耳のように飛び出して生成されるのではなく、火炎上部全体に生成しているのが観察される。これはセラミックファイバを挿入したことによりバーナ中心部とバーナリム部の燃料流速の違いが小さくなり、バーナ全体の燃料供給に大きな偏りがなくなった結果、スス粒子塊が火炎上部全体に生成されると考えられる。

燃料流量が(c)0.90mL/sの場合には、(b)の場合と異なり、スス粒子塊は円管バーナの場合に見られるように火炎上部側面より耳のように飛び出して生成されているのが観察される。バーナの位置による燃料流速の偏りが大きくないと考えられることから、これには燃料流速の違いによるのではなく、火炎温度や化学種濃度分布などの流速以外のパラメータが影響していると考えられる。燃料流量(流速)が小さい場合に酸化によりスス粒子塊生成が観察されないこととあわせて考えると、スス粒子塊生成はスス粒子が凝集する領域の気体流速だけではなく、同領域の温度や化学種濃度分布などにより影響されるものと推測される。

## 4.8 まとめ

スス粒子の凝集体であるスス粒子塊は微小重力環境下の拡散火炎に特徴的に生成される。微小重力環境下では通常重力環境下とは異なり重力に起因する自然対流が生じないため、火炎周囲の気体流速が異なる。この火炎周囲、スス粒子凝集領域の気体流速、そして生成したスス粒子の凝集領域での滞留時間の違いがスス粒子塊生成に大きく影響していることが予想された。

本章では、火炎周囲、スス粒子凝集領域の気体流速のスス粒子塊生成への影響を調べるため、通常重力場で点火を行った場合に微小重力環境へ移行した後も残留する残留対流の影響、スス粒子を生成している火炎のスス粒子凝集領域へ局所噴流を与えた影響について実験を行った。この結果、火炎周囲の気体流速が大きい場合にはスス粒子塊が生成されないことが確認された。

次に、火炎周囲の気体流速のほかに燃料流速の影響を調べた。この結果、燃料流速が大きい場合にはスス粒子塊が生成されないことがわかった。また、燃料流速が極めて小さい場合にもスス粒子塊が生成されないことから、スス粒子塊は燃料流速が大きい場合および極めて小さい場合に生成されないことが明らかになった。

スス粒子塊生成位置に着目すると、スス粒子塊を生成する範囲内で燃料流速が大きくなるとスス粒子塊生成開始点が下流および半径方向へ移動することがわかった。また燃料流速分布を平坦にした場合のスス粒子塊生成の様子が燃料流速の影響を受け、燃料流速の大きい場合に火炎側面部と火炎上部に生成の違いが観察されることから、スス粒子塊生成には流速だけではなく、スス粒子塊生成領域の温度や化学種濃度分布などが影響することが示唆された。

円管バーナに形成した燃料流速の小さい火炎において、生成したスス粒子塊がバーナリム付近で環流するのが観察された。これは火炎付近の温度勾配中でサーモフレイシス効果により低温燃料側へ固体微粒子であるスス粒子塊が移動することによると考えられ、微小重力環境下ではサーモフレイシス効果が顕在化することが示唆された。



## 第 5 章

### スス粒子塊生成領域

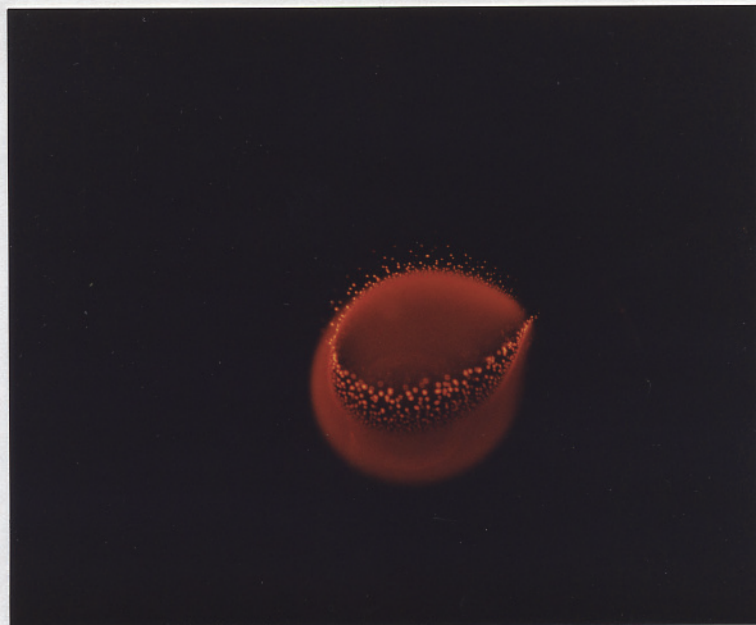
## 5.1 概要

微小重力環境下の拡散火炎中において、通常重力環境下では観察されない巨大なスス粒子塊が観察される。このスス粒子塊生成には、粒子が生成する領域の気体流速(滞留時間)が大きく影響していると考えられ、前章において火炎付近の気体流速の影響が確認された。また同時に、気体流速のほかに火炎周りの温度や化学種濃度分布の影響の可能性について示唆された。

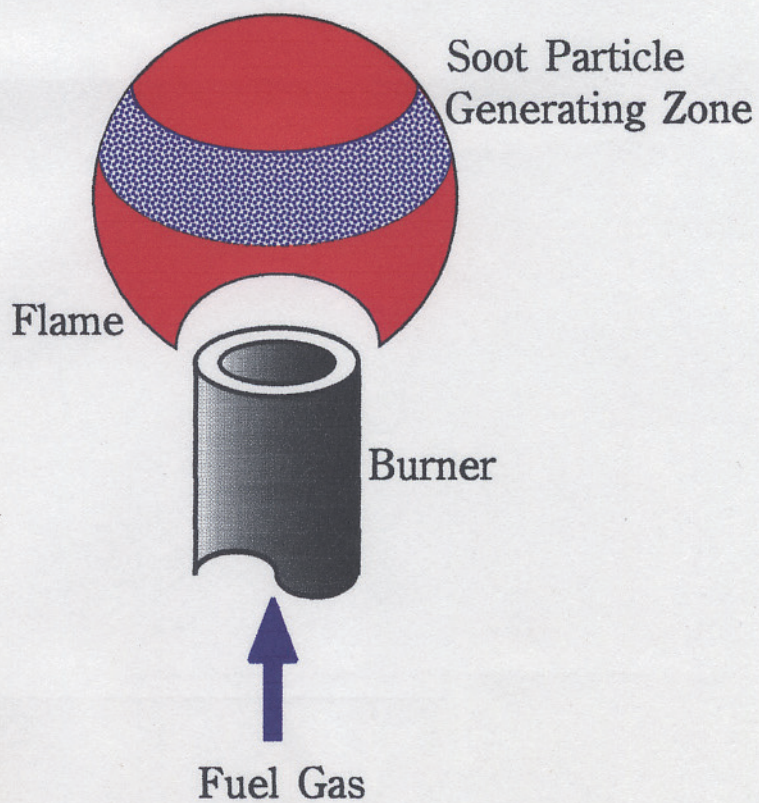
本章では、円管バーナ拡散火炎におけるスス粒子塊生成領域をより正確に把握するため、これまで行ってきたスス粒子塊生成領域の火炎側面方向からの観察に加えて、火炎上方からの観察を試みた。次にスス粒子塊生成への雰囲気酸素濃度の影響について調べ、最後に火炎付近の温度分布を測定し、スス粒子塊生成への温度の影響について考察を行った。

## 5.2 円管バーナにおけるスス粒子塊生成領域

微小重力環境下の円管バーナに形成した拡散火炎において生成するスス粒子塊は、火炎側方からの観察により、火炎上方側面より耳のように飛び出して生成するのが見られる。本研究では、円管バーナにおいてスス粒子塊が生成している領域を確実に把握するため、火炎上方からスス粒子塊生成火炎の観察を行った。火炎上方に直接ビデオカメラあるいは35mmカメラを設置するのが望ましいが、実験ラックの大きさの制約および落下カプセル制動時の衝撃、熱的悪影響が懸念されたことなどから、実現性に難があった。このため、火炎上方バーナリムから約140mmの位置に観察用鏡を設置し、観察用鏡を介した映像をビデオカメラあるいは35mmカメラで観察し、記録した。火炎上方観察を行う場合は観察の妨げとなる残留対流抑制網を取り外す必要があるため、同網を取り外し微小



(a) 上方撮影によるスス粒子塊生成領域



(b) スス粒子塊生成領域概念図

図5.1 円管バーナ拡散火炎のスス粒子塊生成領域  
(バーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/s)

重力環境下で点火を行った。図5. 1に、円管バーナに形成した拡散火炎のスス粒子塊生成を上方より観察した様子、および概念図を示す。火炎の形成条件はバーナ内径6mm、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/sである。

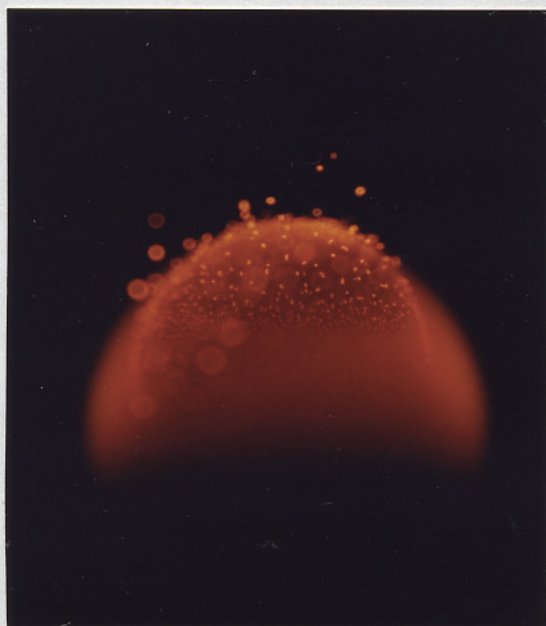
図5. 1より、この条件の火炎においては、スス粒子塊生成領域は火炎上方に均一に分布しているのではなく、火炎周囲にリング状に分布していることがわかる。火炎側方観察の結果とあわせると、この火炎においては、スス粒子塊は火炎周囲の厚さ0.5mm程度の薄いリング状の領域で生成されていることがわかる。バーナから噴出される燃料自由噴流の流速分布はバーナ軸上で最大値を示しバーナ中心軸より離れた位置では小さくなる。スス粒子塊の生成されている領域はバーナ中心軸から離れた位置であり、比較的気体流速の小さい領域であると考えられ、気体流速の低い領域においてスス粒子塊が生成されることを示していると考えられる。また燃料供給量がバーナ中心軸付近と中心軸から離れた位置で異なるため、燃料、酸素、燃焼生成物などの化学種濃度分布も異なることが予想され、この化学種濃度分布の違いがスス粒子塊生成に影響を与えている可能性がある。

### 5.3 スス粒子塊生成への雰囲気酸素濃度の影響

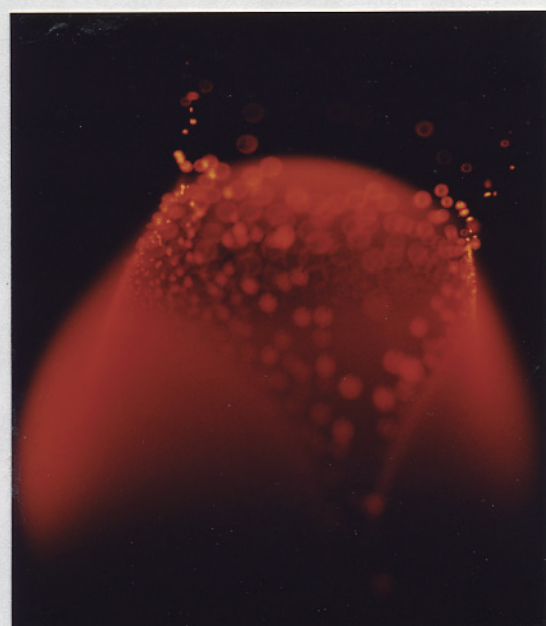
上述したように、スス粒子塊生成にはスス粒子生成領域、火炎周りの気体流速のほかに、化学種濃度分布などが影響すると考えられる。本節では、スス粒子塊生成への酸素濃度の影響について述べる。本研究で用いた燃焼室は密閉容器となっており、内部の初期雰囲気酸素濃度を変えられるようになっている。

内径6mm、燃料流量0.6mL/sの場合のボタン噴流拡散火炎において雰囲気酸素濃度30、40、50%の場合のスス粒子塊生成の様子を図5. 2に示す。

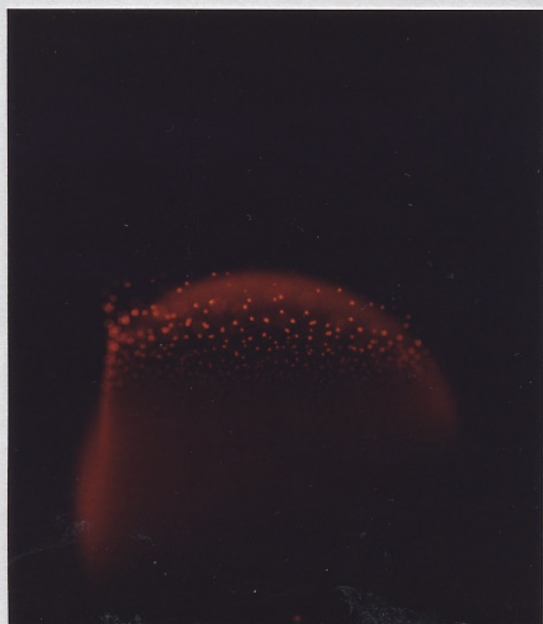




(a) 尿素気酸素濃度30%



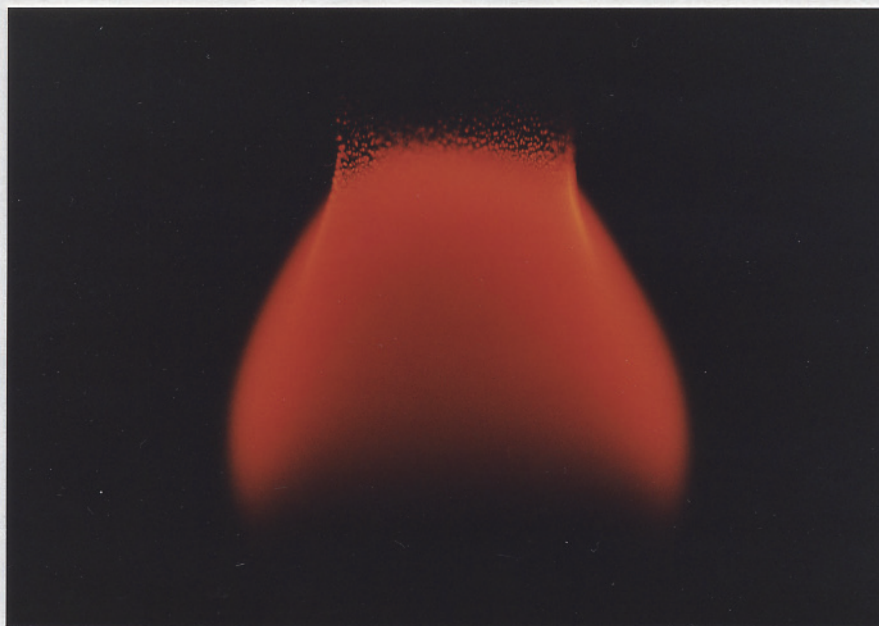
(b) 40%



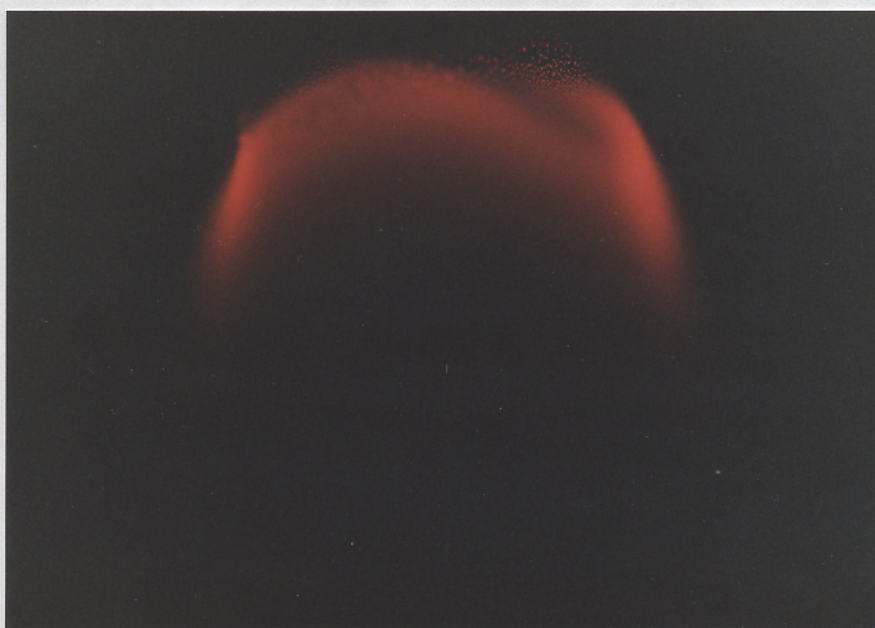
(c) 50%

図5. 2 尿素気酸素濃度が高い場合のスス粒子塊生成  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s)





(a) 微小重力環境移行後0.5s



(b) 1.3s

図5.3 雰囲気酸素濃度が低い場合(21%)のスス粒子塊生成  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s)

スス粒子塊生成は雰囲気酸素濃度が高い場合には、30、40、50%のいずれの場合にも観察される。これらのスス粒子塊生成は微小重力環境の間継続する。

雰囲気酸素濃度が低い場合(21%)のスス粒子塊生成の様子を図5. 3に示す。バーナ内径6mm、燃料流量は0.6mL/sである。雰囲気酸素濃度が低い場合には、通常重力環境から微小重力環境へ移行した直後に開いた火炎先端部に目視で観察できるスス粒子塊が生成しているのがわかる。しかし、微小重力環境の継続とともに約1.7秒後にスス粒子塊生成が見られなくなり、さらに輝度の低下した火炎は約7秒後に消炎するのが観察される。

通常重力環境下の拡散火炎におけるスス生成において、燃料に少量の酸素を加えると生成スス量が増大することがWeyら[41]によって報告されている。この通常重力環境下の結果と同様にスス粒子塊生成においても酸素濃度がある程度高いことが必要であるという結果が得られたことから、火炎近くの反応化学種濃度分布がスス粒子塊生成に影響しているといえる。Weyらは拡散火炎の燃料に加える酸素量の変化による最大粒子凝集径への影響はなく一定値になると報告している。しかし、スス量の増大は粒子の衝突回数の増加、そして凝集径の増大を引き起こすと考えられることから、この通常重力場における最大凝集径は滞留時間が短いなどの酸素濃度以外の条件により決定されたものと思われる。

酸素濃度が高すぎない場合にはスス量が増加するが、高すぎる場合には逆に減少する。すなわち、例えば燃料希薄の予混合火炎などで酸化のためスス量が減少する[77]ように、酸化の影響が大きく現れるため、これら酸素濃度増加による生成量の増加および酸化の進行の割合を考慮する必要があるだろう。

## 5. 4 スス粒子塊生成領域周辺の温度分布

微小重力環境下の拡散火炎において観察されるスス粒子塊の生成は火炎近傍の流速やスス粒子生成領域の酸素濃度の影響を受けることが明らかとなった。通常重力環境下の拡散火炎におけるスス粒子生成は火炎温度の影響を受けることがよく知られている[45][78][79]。そこで微小重力環境下の火炎において火炎周りの温度を知ることは、温度分布とスス粒子塊生成の関係を調べる上で重要である。

本研究では、熱電対を用いてスス粒子塊生成領域周辺の温度測定を行った。

### 5. 4. 1 温度測定装置

火炎のような高温の測定方法には、熱電対、光高温計、輻射温度計のほか、レーザを利用するレイリー散乱法、ラマン法、LIF法などがある[64]。本研究では実験を遠隔操作で行うこと、スス生成を伴うためレーザ計測が困難であること、および装置搭載寸法の制約から、火炎温度の測定に広く用いられている熱電対を使用した。熱電対は直径0.1mmのPt/Pt-13%Rhを使用した。本研究で扱った火炎はレイノルズ数が250以下と小さく、温度変動が大きいと考えられるので直径0.1mmの熱電対を用いた。火炎温度を2000K程度と見積もった場合のこの熱電対の時定数は0.2s程度であり[10]、時間的追従性は十分である。また貴重な実験機会を有効に利用するため、火炎の高温あるいは衝撃により熱電対が容易に切断されない程度の径として熱電対を選定した。

図5. 4に、本研究で使用した温度測定装置の概略を示す。熱電対は絶縁のためセラミックチューブに通し、DCプリアンプ(U350, UNIPULSE 増幅率30~2000)へ接続される。熱電対で生じた熱起電力はDCプリアンプにて200倍に増幅され、JAMIC支援装置のアナログデータ記録装置に記



録される。測温接点が支持部からの冷却の影響を受けないよう熱電対素線径の100倍以上の突出長さを持たせた。熱電対の測温接点部は触媒作用による温度測定時の誤差を防止するため、 $\text{SiO}_2$ によってコーティングした。また測定値に対して輻射補正を行った[71][80]–[82]。測定点はバーナ半径方向に5mm間隔で6点設置し、測定高さ:hを5mmずつ移動し、測定を行った。

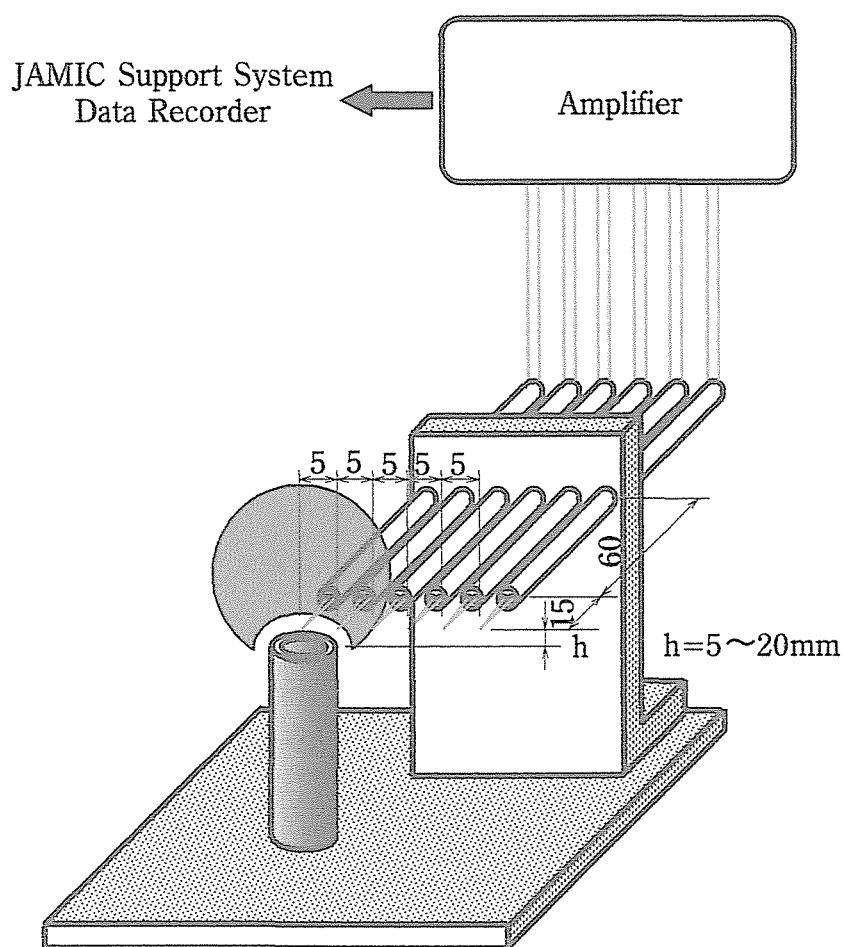


図5. 4 温度測定装置概略

#### 5. 4. 2 微小重力火炎の温度の時間変化

まず微小重力環境下でスス粒子塊を生成する典型的な火炎であるバーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎について述べる。図5. 5に、微小重力環境下(微小重力環境移行約10秒後)における同火炎形状の概略を示す。微小重力環境下の火炎は火炎長が約18mm、火炎半径が約10.5mmで、図に示した位置においてスス粒子塊生成が観察される。

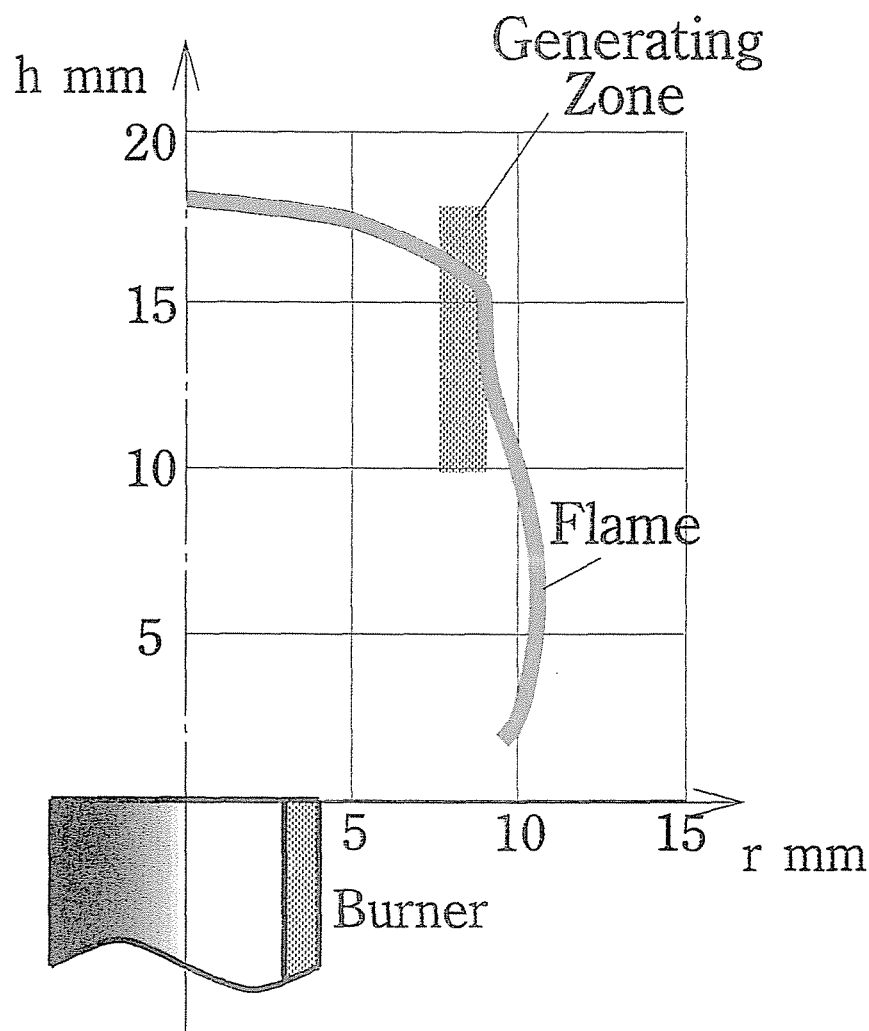
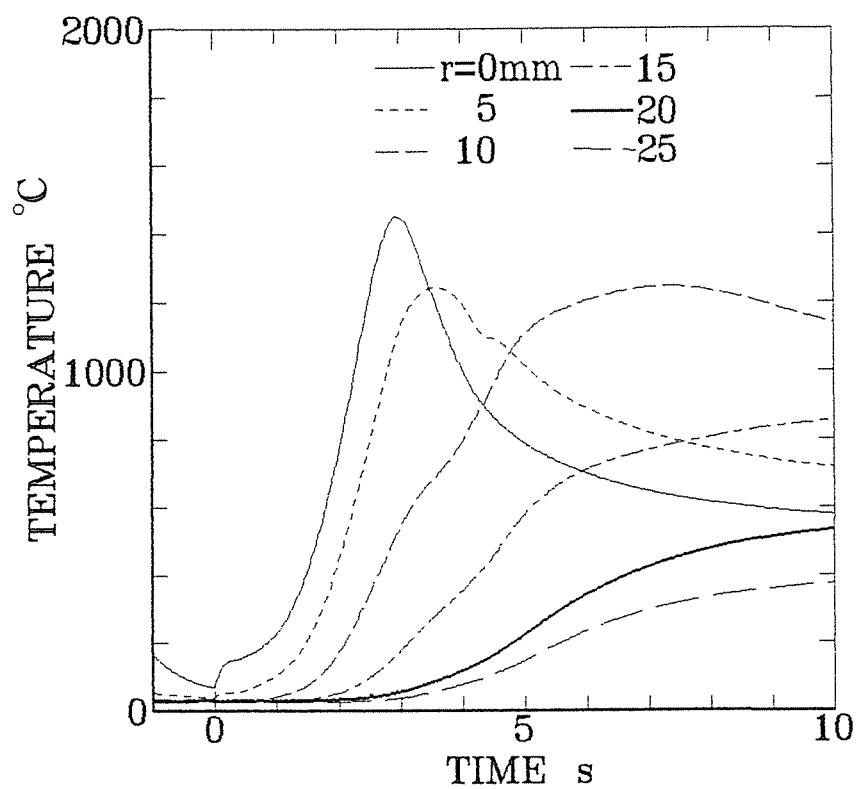
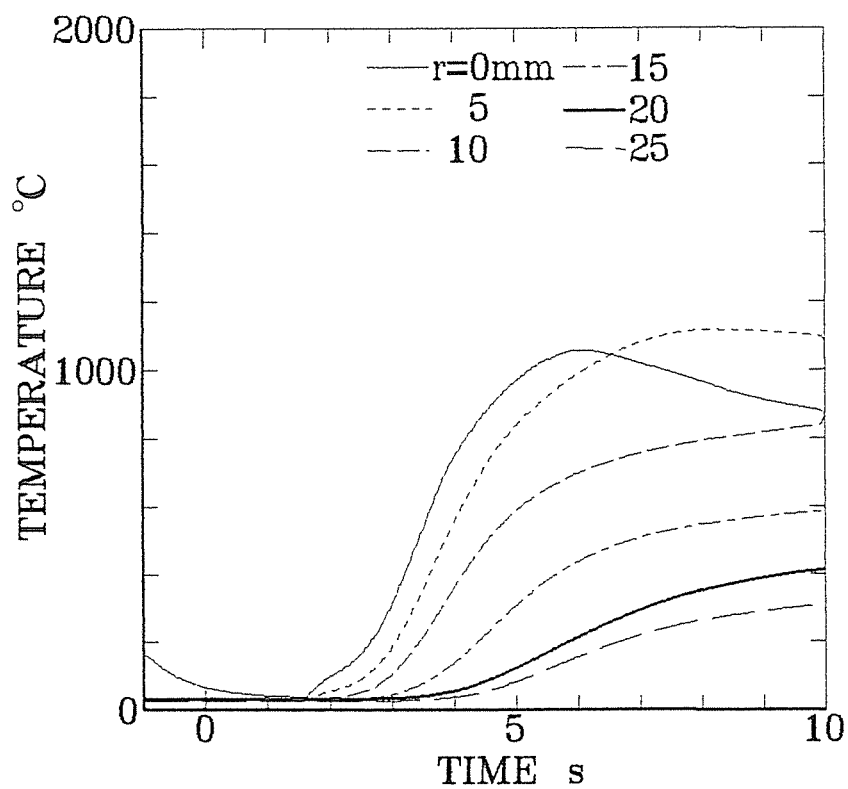


図5. 5 スス粒子塊生成火炎概略  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)



(a)  $h=10\text{mm}$



(b)  $h=15\text{mm}$

図5.6 火炎周りの気体温度の時間変化  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

図5. 6 (a)、(b)に、バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎の火炎周りの気体温度の時間変化を示す。(a)がバーナリムからの高さ $h=10\text{mm}$ 、(b)が $h=15\text{mm}$ での測定点における温度変化である。それぞれバーナ中心軸よりの距離 $r=0、5、10、15、20、25\text{mm}$ の6点について測定を行っている。

図5. 6 (a)では、微小重力環境下で着火している。着火後 $r=0\text{mm}$ の位置で速やかに約 $1500^{\circ}\text{C}$ 程度まで上昇し、その後急激に火炎温度が低下している。これは着火後の火炎通過によるもので、測定点通過時の火炎最高温度が約 $1500^{\circ}\text{C}$ であると考えられる。 $r=10\text{mm}$ の位置では、一度上昇した温度が徐々に低下しているのがわかる。微小重力環境継続約10s後において火炎は測定点にあることから、これは微小重力環境の継続により火炎が膨張するとともに火炎温度が低下していることを示している。

図5. 6 (b)に示す $h=15\text{mm}$ では、微小重力環境の間に火炎通過を迎えるのは、図5.5より $r=0\text{mm}$ および $5\text{mm}$ である。このため、 $r=0\text{mm}$ 、 $5\text{mm}$ では一度温度上昇した後に温度低下が見られるのに対し、他の $r$ においては火炎および燃焼生成ガスの接近により時間の経過とともに徐々に火炎温度が上昇している。 $r=0\text{mm}$ 、 $5\text{mm}$ 、つまり火炎上部では火炎通過を経験しているにもかかわらず、そのピーク値は $1100^{\circ}\text{C}$ 程度であり、火炎上部の火炎温度が低いことがわかる。

次にバーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度21%の場合について示す。図5. 7に同火炎の概略を、図5. 8に温度の時間変化を示す。火炎は微小重力環境の継続とともに膨張し定常とはならないため、微小重力環境へ移行1.3s後の火炎について概略を示した。このときにスス粒子塊は火炎先端に見られる。 $h=10\text{mm}$ における気体温度の時間変化を示した。

この火炎では微小重力環境への移行とともに火炎が膨張し、 $r=10\text{mm}$ 以上の測定点で温度上昇が見られる。しかし微小重力環境継続約5.5sで局



所的な消炎が始まり、6s程度で火炎が揺らぎ、その後7s程度で消炎している。火炎温度は全体に低いことがわかる。

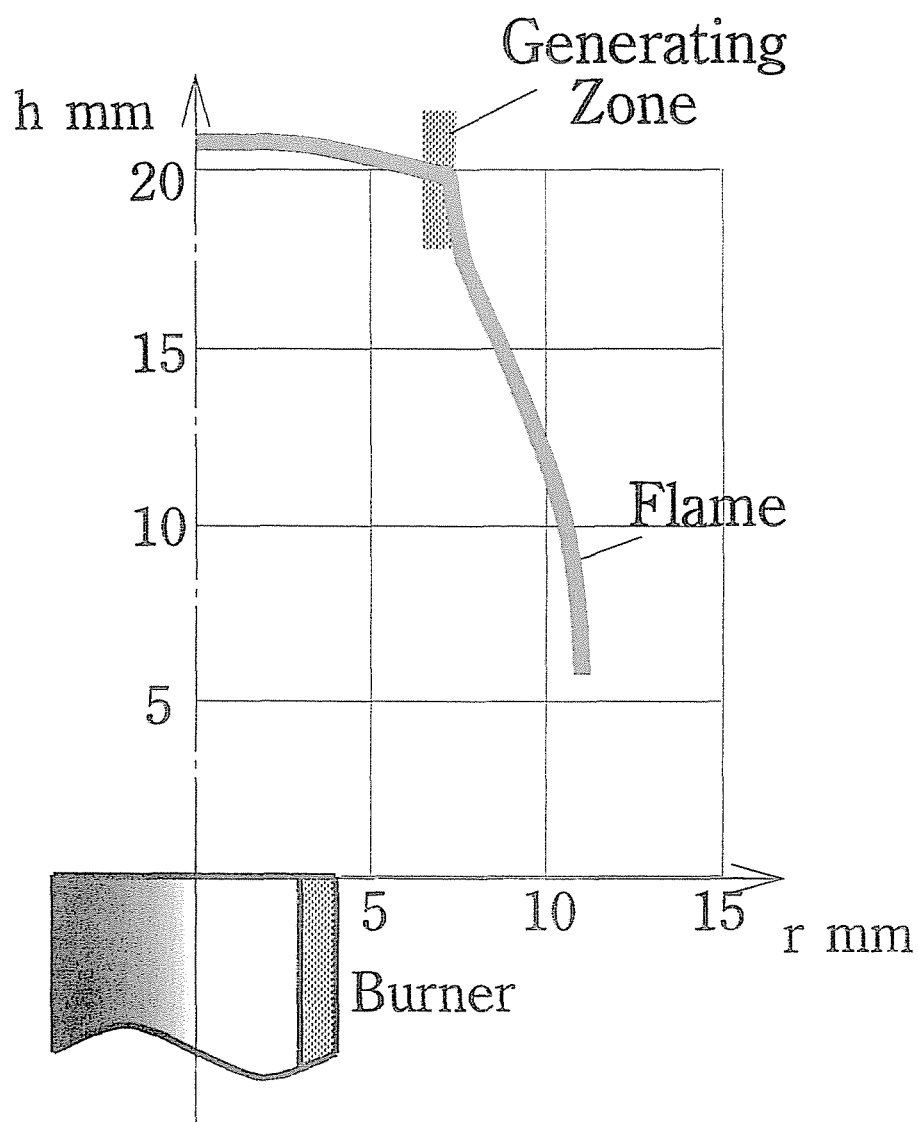


図5.7 微小重力火炎概略  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度21%)

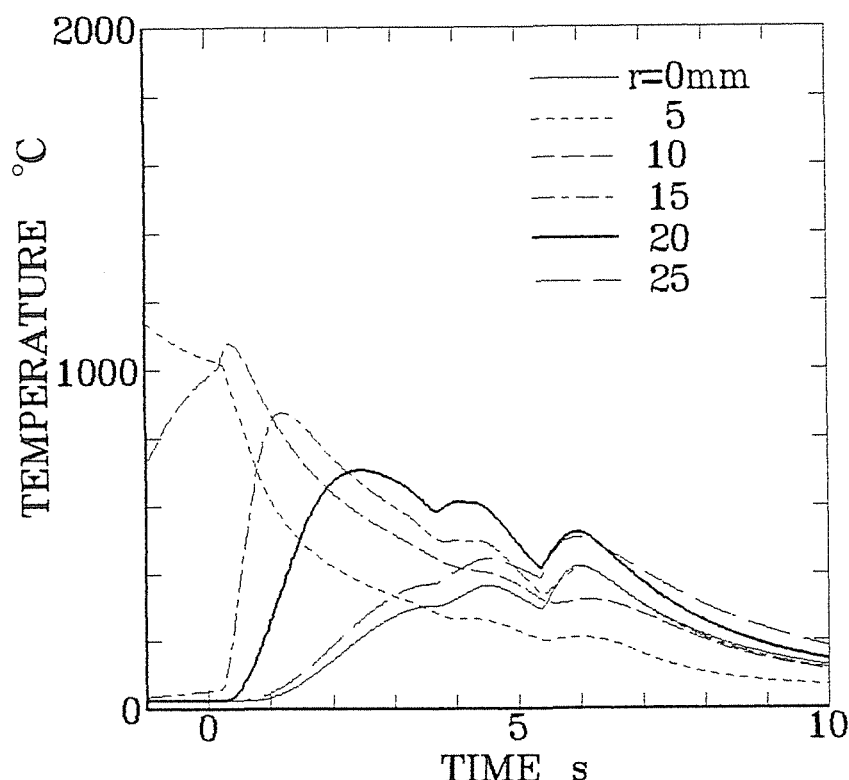


図5. 8 火炎周りの気体温度の時間変化  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度21%、h=10mm)

バーナ内径1mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の微小重力下の火炎ではスス粒子塊生成が観察されなかった。この火炎では燃料噴流の流速が大きく、スス粒子塊生成領域の流速も大きくなるため、スス粒子塊生成に至らないと考えられたが、このスス粒子塊を生成しない火炎の温度分布を調べた。

図5. 9に火炎概略、図5. 10に火炎周りのh=5mmにおける気体温度の時間変化を示す。火炎体積が小さいが各測定点における温度はスス粒子塊を生成する図5. 5の火炎と比べると非常に高い。この火炎は燃料噴流の流速が大きく燃料流の運動量が大きいため、微小重力環境下の自然対流の生じない場合にも酸化剤のエントレインメントと燃焼生成ガスの掃気が良好に行われ、通常重力環境下の拡散火炎に近い性質になるためと考えられる。微小重力環境移行後約4sでほぼ気体温度は定常値に達しており、火炎の膨張が停止しているのがわかる。

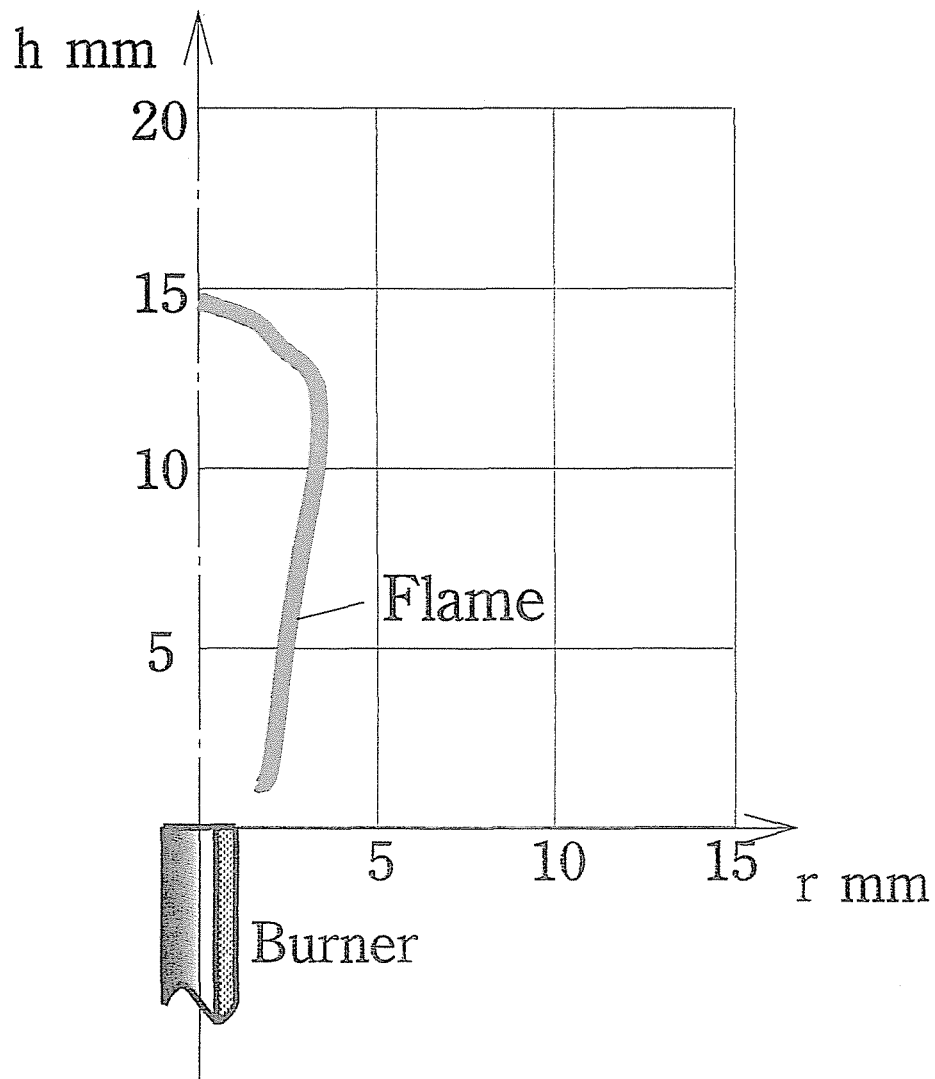


図5.9 微小重力火炎概略  
(バーナ内径1mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

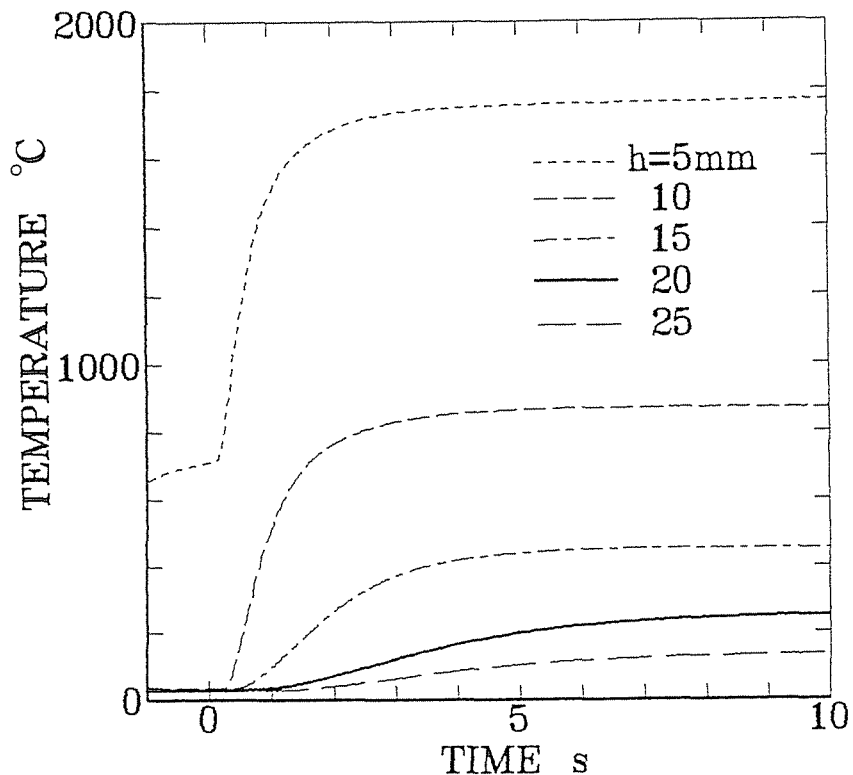


図5. 10 火炎周りの気体温度の時間変化  
(バーナ内径1mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%、h=5mm)

#### 5. 4. 3 スス粒子塊生成領域周辺の温度分布

スス粒子塊を生成する火炎の、スス粒子塊生成領域の温度分布を調べた。スス粒子塊を生成する火炎として典型的な火炎であるバーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎周りの気体温度分布を図5. 11に示す。微小重力環境移行約10s後の温度分布を示した。同火炎においてスス粒子塊生成が見られる領域は図5. 5に示したように、 $r=8\sim 9\text{mm}$ 程度、 $h=10\sim 15\text{mm}$ 程度に分布している。気体温度分布では $h=5\text{mm}$ における温度分布と $h=10\text{mm}$ における温度分布がほぼ等しくなっており、火炎側面部近くでは高さ方向に大きな温度の変化のないことがわかる。微小重力環境下の最高温度は約 $1200^{\circ}\text{C}$ であることがわかる。スス粒子塊



が生成されている領域の温度は1100°C程度である。通常重力環境下の拡散火炎では、燃料の種類によらずスス核生成は1400K程度(1130°C程度)で生じる[45]。微小重力環境下の拡散火炎においてもスス粒子核生成の温度は同程度であると考えられ、実際に同程度の温度領域においてスス粒子塊生成が見られる。

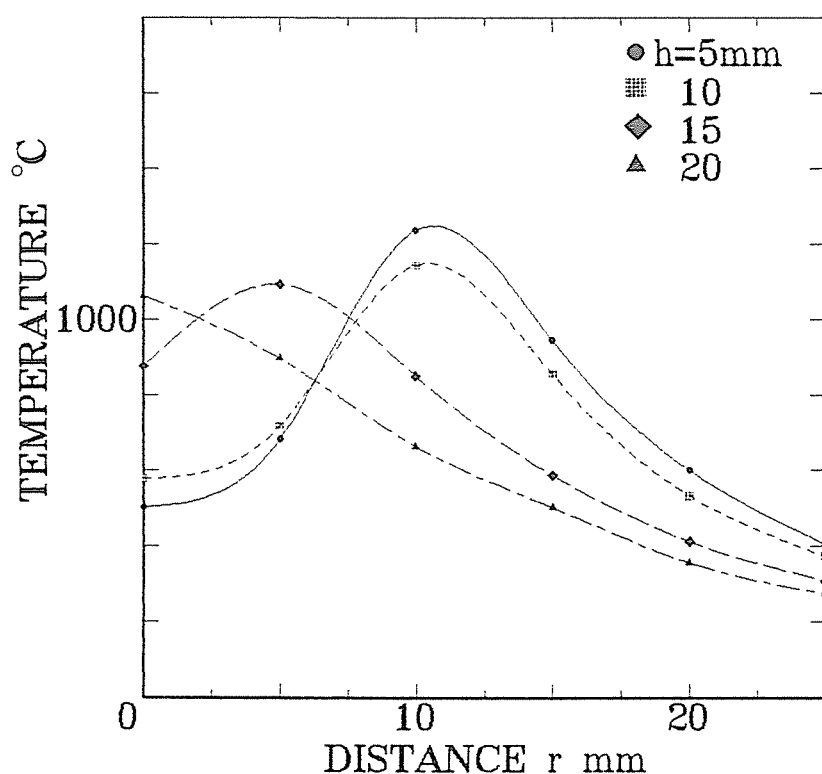


図5. 11 火炎周りの気体温度分布  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

図5. 12に同条件の火炎の通常重力環境下における火炎概略を、図5. 13に火炎周りの気体温度分布を示す。

通常重力環境下の火炎では火炎の温度が微小重力環境下の火炎に比べて非常に高く、1900°C近くにまで達しているのがわかる。また火炎の影響範囲は狭く、バーナ中心より10mm程度にとどまっている。一方、微小

重力環境下の火炎では火炎半径が大きくその分布は広がっている。これは通常重力環境下では高温の気体が自然対流により上方へ運ばれることによると考えられる。通常重力環境下の火炎では火炎温度が高く、また自然対流の効果により十分に酸素も供給されるため、スス生成の条件

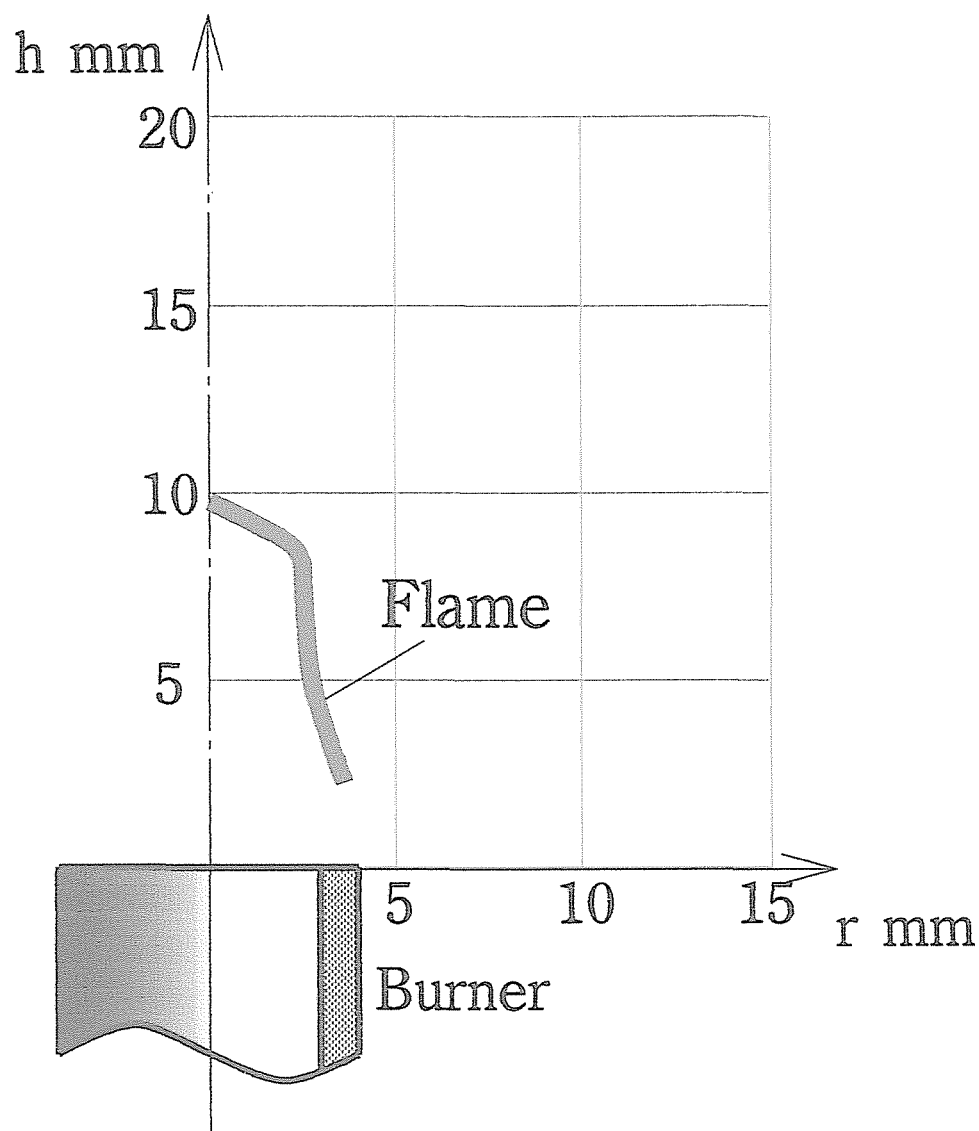


図5. 12 通常重力環境下の火炎概略  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

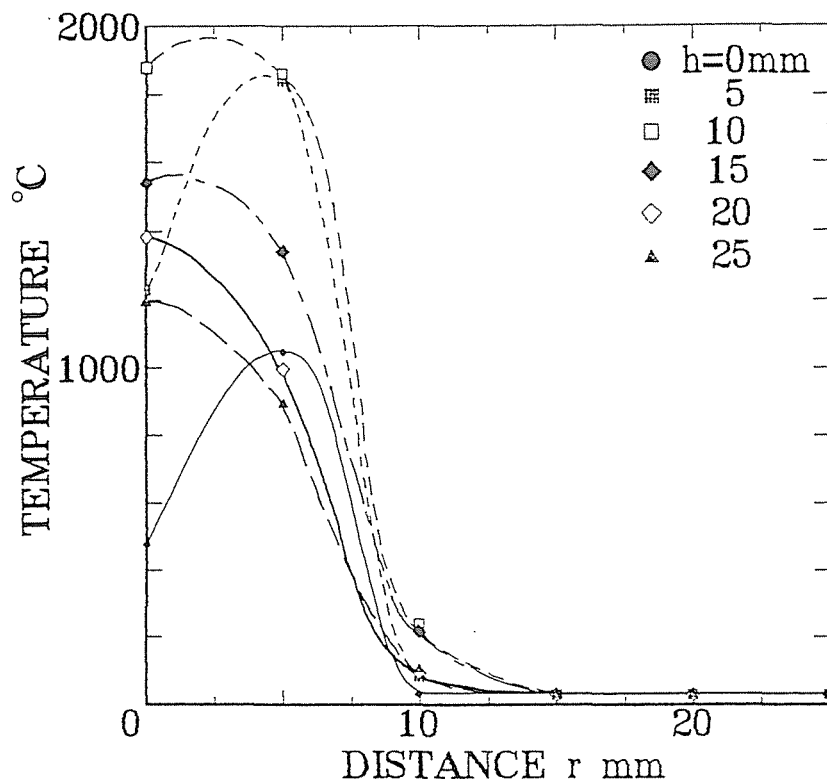


図5. 13 通常重力火炎周りの気体温度分布  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

はそろっていると思われる。実際に火炎はかなり高輝度であり、スス粒子は生成しているが、微小重力環境下の火炎のようにスス粒子塊は生成されない。スス粒子は高温場において酸化速度が速く、スス粒子の酸化率は直接的に局所温度に影響される[76]。このことから、通常重力環境下の火炎では火炎温度が非常に高いため酸化が進行し、凝集を阻害していると考えられる。逆に、微小重力環境下のスス粒子塊を生成する火炎では、火炎温度が低いためスス粒子が酸化されにくいといえる。

温度勾配について見ると、スス粒子塊生成領域に近い $h=10\text{mm}$ では火炎近くの $r=5\text{mm}$ と $r=10\text{mm}$ の間に約 $100\text{K/mm}$ もの温度勾配のあることがわかる。4.6節に、温度勾配のある場において $20\mu\text{m}$ の酸化マグネシウムの微粒子

がサーモフレイシス効果により低温側へ移動する効果について述べた。Hiranoらによると45K/mmの温度勾配で0.67mm/sもの速度で微粒子が移動することが報告されている[75]が、本研究のスス粒子塊生成領域付近では約2倍もの温度勾配が確認される。h=10mmにおいて火炎外側方向、つまりr=10mmとr=15mmでの温度勾配は60K/mmであり、火炎内側方向よりも温度勾配は緩い。r=10mmを中心に火炎内側方向と外側方向の温度勾配を単純に差し引いても火炎内側方向の方が40K/mm程度大きく、Hiranoらの結果と併せて考えると生成したスス粒子塊が火炎内側方向へ移動する力が作用すると考えられる。サーモフレイシス効果は、微粒子周りの流速が小さいときに顕著に現れると考えられ、4.6節で述べたように燃料流量の小さい場合に特に顕在化すると考えられる。

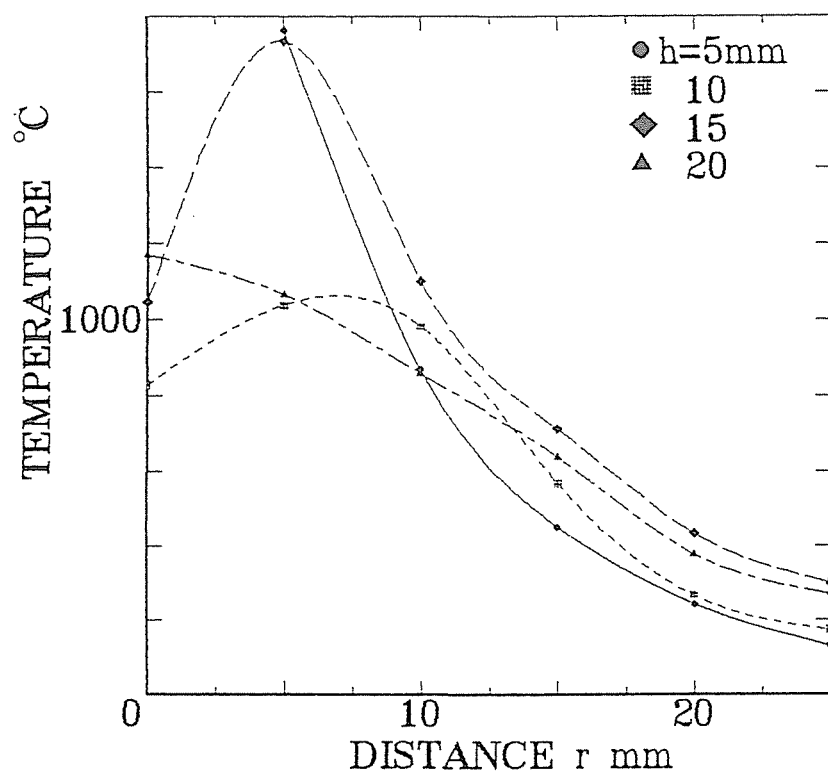


図5. 14 火炎周りの気体温度分布  
(バーナ内径1mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)



微小重力環境下でスス粒子塊を生成しない火炎(バーナ内径1mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)の火炎周りの気体温度分布を図5. 14に示す。この火炎ではスス粒子塊を生成する火炎に比べ、火炎近くの温度が非常に高いことがわかる。そのピーク値は1800°Cにも達しており、通常重力環境の火炎と同様、スス粒子生成には十分な温度が得られている。火炎は通常重力環境下におけるものと同様に輝度が高く、スス生成は行われていることがわかる。この火炎においてスス粒子塊生成が観察されないのは、通常重力環境下の火炎と同様に火炎近くの温度が高いことにより生成スス粒子の酸化が進行するためと思われる。

## 5.5 まとめ

本章では、微小重力環境下でスス粒子塊を生成する典型的な火炎である、バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎を火炎上方から観察し、同火炎におけるスス粒子塊生成領域の観察を行った。その結果、スス粒子塊は火炎上部に均一に生成するのではなく、火炎周囲の薄いリング状の領域に生成することが明らかとなった。

スス粒子塊生成の化学種濃度分布との関与について調べる一つの方法として、スス粒子塊生成への初期雰囲気酸素濃度の影響を調べた。その結果、雰囲気酸素濃度が高い場合(30%~50%)にはスス粒子塊生成が微小重力期間継続されるが、酸素濃度が低い場合(21%)には微小重力環境へ移行直後においてのみスス粒子塊生成が観察され、10sの微小重力期間継続しないことが明らかとなった。雰囲気酸素濃度が低い場合の火炎は微小重力期間中に消炎に至る。これは微小重力環境の継続により火炎への酸化剤の供給が減少した結果であると考えられた。

スス粒子塊生成と温度との関与を調べるため、火炎周囲の温度分布測定を行った。その結果、微小重力環境の継続とともに徐々に火炎温度が低下することがわかった。スス粒子塊を生成する火炎(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)の微小重力環境継続10s後の火炎温度は約1200℃で、スス粒子塊生成領域の温度はその温度よりもやや低い温度であり、約1100℃であった。このスス粒子塊生成領域の温度は、通常重力環境下における拡散火炎のスス粒子核生成温度と同様の温度である。微小重力環境下でスス粒子塊を生成しない燃料流速の大きな火炎および通常重力環境下の火炎では、火炎温度が非常に高くスス粒子生成を十分に行いえる条件であるにもかかわらず生成しないのは、火炎温度が高いことによるスス粒子の酸化が進むためと考えられた。

スス粒子塊生成火炎の火炎近傍の温度勾配は火炎内側へ約100K/mm、火炎外側へ60K/mmであるため、サーモフレイシス効果を生ずるには十分な温度勾配であることがわかり、スス粒子塊がこの影響を受ける可能性のあることが示唆された。

## 第 6 章

### スス粒子塊生成条件に関する検討

## 6.1 概要

微小重力環境下の拡散火炎中には生成したスス粒子が凝集し、巨大化したスス粒子塊が生成される。このスス粒子塊生成には気体流速(滞留時間)が大きく影響し、温度、酸素濃度が関与していることを示した。しかし、化学種濃度については雰囲気酸素濃度の影響を示したのみにとどまっており、酸素濃度を含めその他の化学種濃度分布を示すには至っていない。

本章では、スス粒子塊生成領域付近の流速および化学種濃度分布の傾向を調べるため、簡易シミュレーションを行った。前章においてスス粒子塊が熱的には酸化されにくい状態で生成されることを示したが、酸素濃度分布についても調べる必要があることから、とくにスス粒子が凝集しながら下流へ移動する際に、スス粒子塊の通過する雰囲気酸素濃度の変化の傾向を捉えることを試みた。

またスス粒子塊生成についてこれまで得られた知見をもとに、微小重力環境下の噴流拡散火炎に生成されるスス粒子塊の生成メカニズムについて提案した。

## 6.2 計算モデル

燃焼のシミュレーションには、その反応において詳細な素反応群および多数の化学種を考慮したものが望ましいが、素反応速度定数や高温の気体、とくに活性基の物性値などがよく知られていないこと、そして計算時間が非常に長く必要になることなどから、一般には簡略化した反応機構を用いた解析が行われる。また本研究では、スス粒子塊の移動経路に沿った酸素濃度の変化の傾向を捉えることを目的とし、化学種濃度分布の正確な数値を調べることを目的としていないことから、他の研究者



により行われたシミュレーション手法[83][84]に基づき、簡易シミュレーションを行う。用いたモデルは水谷[83]の手法に従い行うが、水谷は同軸流拡散火炎についての計算において実験結果との良い一致をみており、本研究の目的である化学種濃度分布の定性的な傾向を捉えるには十分である。

本研究で計算に使用した座標を図6. 1に示す。円柱座標  $x-r$  をとり、それぞれの方向の速度成分を  $u$ 、 $v$  とする。図のように、静止空気中に内径  $d_B$  の円管バーナから燃料流量  $Q_i$  で供給される燃料が円管内で十分に発達した層流の速度分布[85]

$$u_0 = \frac{32Q_i}{\pi d_B^4} \left( \frac{d_B^2}{4} - r^2 \right) \quad (6. 1)$$

で噴出される状態を考える。モデルは二次元定常であるが、一般的に推奨されている接近法[86]を用い、定常になるまで計算を繰り返す。

基礎方程式を導出するにあたり、次のような仮定をおく。

- (1) 混合気は理想気体の状態方程式に従う。
- (2) 境界層近似が成立する。
- (3) 燃焼反応は



なる一段反応であり、Arrheniusの反応速度則が当てはまる。

- (4) Soret効果(温度勾配にともなう濃度移動)、圧力拡散、平均分子量

の勾配による拡散は無視する。拡散は層流拡散である。

- (5) 気体の物性値は空気( $O_2=21\%$ )の物性値で代表し、密度以外の物性値は温度に依存せず一定とした。

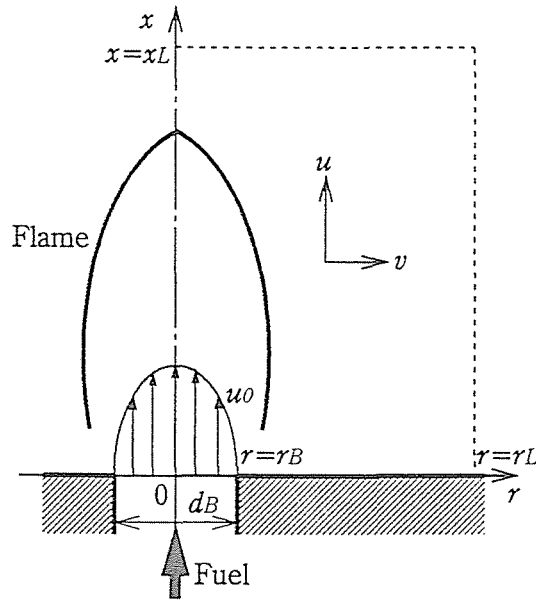


図6. 1 計算モデル座標

以上の仮定のもとで、以下の方程式を解く[85]。

質量保存式

$$\frac{\partial}{\partial x}(\rho ur) + \frac{\partial}{\partial r}(\rho vr) = 0 \quad (6. 3)$$

運動量保存式

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho u \frac{\partial u}{\partial x} + \rho v \frac{\partial u}{\partial r} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \mu r \frac{\partial u}{\partial r} \right) - \frac{dp}{dx} - \rho g \quad (6. 4)$$

## 化学種保存式

$$\rho \frac{\partial m_j}{\partial t} + \rho u \frac{\partial m_j}{\partial x} + \rho v \frac{\partial m_j}{\partial r} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\rho D_j r \frac{\partial m_j}{\partial r}) + R_j \quad (6.5)$$

ただし、 $\rho$ は気体の密度、 $\mu$ は粘性係数、 $p$ は静圧、 $g$ は重力加速度、 $m_j$ 、 $D_j$ 、 $R_j$ は $j$ 化学種の質量分率、拡散係数、化学反応による生成率である。 $m_{fu}$ は燃料、 $m_{ox}$ は酸素、 $m_{ni}$ は窒素、 $m_{pr}$ は生成物を表す。

通常、これらの式のほかにエネルギー保存式を解く必要があるが、本研究では化学種濃度分布を調べるという目的および演算時間の短縮のため、エネルギー保存式を解かずに温度分布として第5章で示した実測値を多項式で近似し、座標の関数で与える手法をとった[84]。これにより反応気体からの放射熱損失が見積もられないため、実際の熱発生率を表さず低い温度を与えることになる。

燃焼生成物は炭酸ガスと水蒸気からなるが、簡単のため一成分とみなし、燃料、酸素、窒素、生成物の4成分について(6.5)式を解いた。

微小重力環境下の火炎を対象としたので $g=0$ とした。

(6.4)式右辺の圧力項は水谷[83]の手法にならいバーナ周囲に摩擦のない燃焼管を考え、断面内で圧力一定とした場合の質量流量保存式から

$$\frac{dp}{dx} = (\bar{u})^2 \frac{d\bar{\rho}}{dx} \quad (6.6)$$

を得る。ここで $\bar{u}$ 、 $\bar{\rho}$ はそれぞれ任意断面における平均流速および平均密度である。

(6.5)式の燃料の生成率 $R_{fu}$ は、

$$R_{fu} = -Fp^2 m_{fu} m_{ox} \exp(-E/RT) \quad (6.7)$$

で与えられる。ただし、 $F$ は頻度因子、 $E$ は活性化エネルギー、 $R$ は一般ガス定数、 $T$ は絶対温度である。

境界条件は、下壁ですべりが無いとして、

$$x=0, r>r_B: u=0, v=0 \quad (6.8)$$

となり、バーナ中心軸上では場が対称であることから次のようになる。

$$r=0: v=0, \frac{\partial u}{\partial r}=0, \frac{\partial m_j}{\partial r}=0 \quad (6.9)$$

また  $r=r_L$  において周囲雰囲気ガス質量分率であるとして、

$$r=r_L: m_j = (m_j)_{in} \quad (6.10)$$

とした。ここで  $(m_j)_{in}$  は初期雰囲気ガス質量分率である。

本研究では、微小重力環境下のスス粒子塊を生成する火炎の半径が10 mm程度であることから計算領域を2倍程度とし、計算時間の短縮のため  $r_L=20\text{mm}$  とした。

数値計算にあたり時間  $t$  および  $x$  に関しては前進差分、 $r$  に関しては(6.4)式の対流項を風上差分[87]、他の項を中心差分により有限差分化した。

### 6.3 火炎近傍の化学種濃度分布

計算の結果得られた化学種質量分率分布を図6.2に示す。計算におい



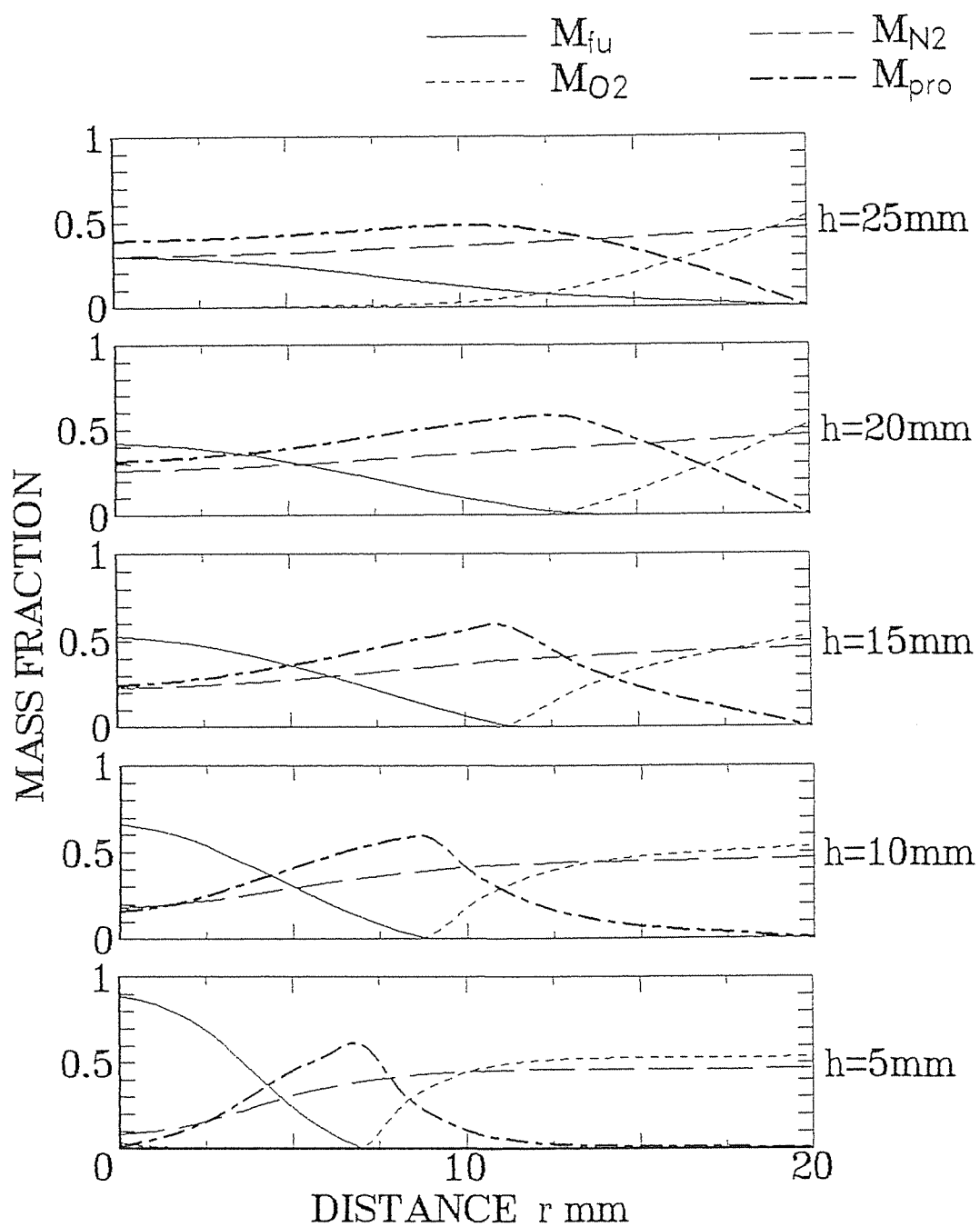


図6. 2 火炎付近の化学種質量分率分布  
 (バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

ては燃焼生成物をまとめて一つの成分と考えたため、燃焼生成物(二酸化炭素および水蒸気)の質量分率は一つの化学種として示してある。バーナリムからの高さ $h=5、10、15、20、25\text{mm}$ について示した。

図より、バーナリムからの高さが大きくなると燃料が徐々に半径方向に広がり、それとともに火炎近くの酸素の質量分率が低下しているのがわかる。バーナリムからの高さが高い位置では各半径位置における燃焼生成物の質量分率が高くなっており、上流で生成された燃焼生成物が徐々に下流へ運ばれ、その割合を大きくしているのがわかる。また $h=20、25\text{mm}$ においても燃料が存在するが、これはおもに発生熱量の見積もりに関して低く見積もったためである。スス粒子塊生成領域( $h=10\text{mm}\sim 15\text{mm}$ 、 $r=8\sim 9\text{mm}$ )に着目すると、スス粒子塊生成開始点付近では酸素の供給が見られ燃焼反応が多く生じているが、下流へスス粒子塊が移動する場合には、酸素がほとんど供給されなくなることがわかる。計算結果の精度は十分とは言えないが、少なくとも定性的には火炎の傾向を示していると考えられるので、火炎上流部のスス粒子塊生成点付近(あるいはさらに上流部)で生成されたスス粒子は下流へ移動するとともに酸素濃度の低い雰囲気中へ突入していくといえるであろう。このことから、火炎上流部で生成されたスス粒子が下流へ移動する際に凝集するが、凝集領域はスス粒子を酸化しにくい低酸素濃度領域であるため、スス粒子の酸化が進行しにくいといえる。

#### 6.4 スス粒子塊生成条件

以上の結果から、本研究で得られたスス粒子塊生成火炎(バーナ内径 $6\text{mm}$ 、燃料流量 $0.6\text{mL/s}$ 、雰囲気酸素濃度 $50\%$ )のスス粒子塊を生成する過程は、次のようになると考えられる。

### (1) 火炎周囲

- ・ スス粒子塊生成開始点(あるいはさらに上流部)付近では、スス核生成を生じるに十分なだけの高温(1400K程度)であり、この領域への酸素の供給量も多いため、多量にススが生成される。

- ・ 生成したススは下流へ移動する際に凝集するが、下流では酸素の供給量が小さいため酸化が進行しにくい。また通常重力環境下の火炎や高流速の微小重力火炎に比べ火炎温度が低いため、酸化が進行しにくい。さらに、流速が小さく火炎内滞留時間が長いため凝集に費やす時間も長く、粒子の衝突回数が増し、巨大な粒子にまで凝集が進行する。

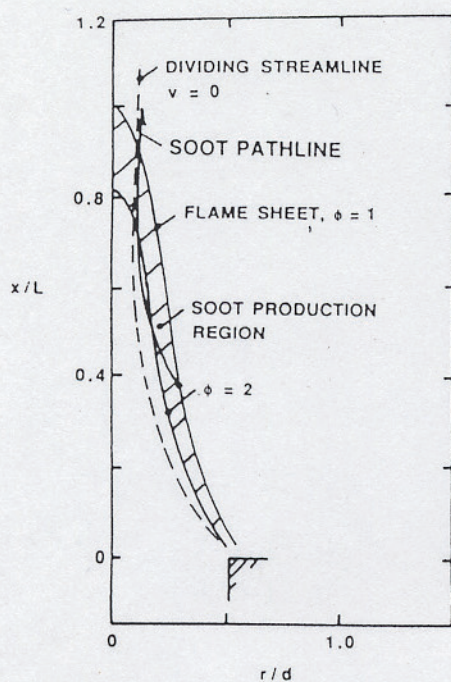
### (2) 火炎上部

火炎上部では酸素の供給量が小さく、また火炎内側の温度が低い( $h=15\text{mm}$ において1150K程度)ため、熱分解反応が少なくスス生成量が少ない。さらに、滞留時間が短いため、凝集の程度が火炎周囲と比較して小さい。

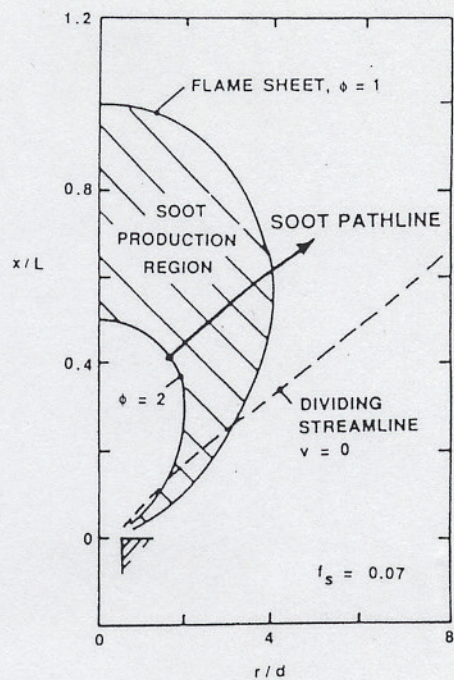
以上のようなことから、本研究で観察されたスス粒子塊を生成する火炎では火炎周囲にある生成条件が整っており、スス粒子塊生成に至ったものと考えられる。

Faethら[37]は、微小重力環境下の拡散火炎におけるスス生成域および生成ススの移動軌跡を予想している。図6. 3に、Faethらの予想図の抜粋を示す。(a)が実測値を基にした通常重力火炎、(b)が微小重力火炎の予想図である。

図6. 3では、生成したススの移動軌跡が半径方向へバーナ中心軸より遠ざかる向きに移動するとされているが、図6. 4に示すように実際のスス粒子塊を生成する火炎では、生成されたスス粒子凝集体は火炎中では逆にバーナ中心軸の方へやや近づきながら下流へ移動するのが観察され



(a) 通常重力火炎



(b) 微小重力火炎

図6. 3 Faethらによるスス生成領域およびスス移動軌跡(抜粋[37])

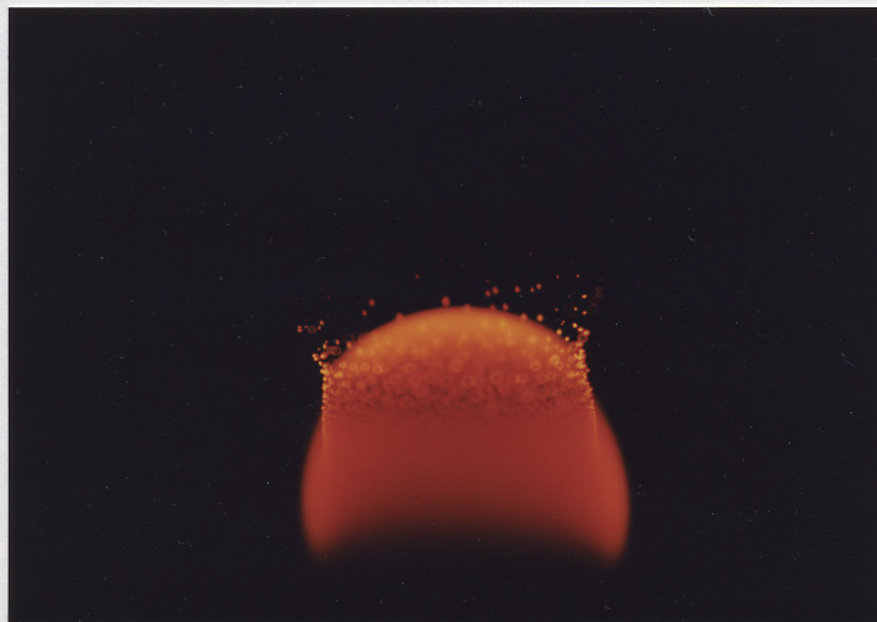


図6. 4 スス粒子塊の移動軌跡  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)



た。この火炎は本研究で典型的なスス粒子塊を生成する火炎として取りあげたものと同様であるが、写真撮影時の絞りの調整および焦点を合わせる位置(スス粒子塊移動軌跡に合わせてある)が異なるため、図3.7の写真とは様相が異なるように見える。しかし、同じ火炎である。

Faethらは、微小重力環境下の生成スス粒子の移動にはサーモフレーション効果は小さいとして考慮していない。火炎のやや内側で生成されたスス粒子がこの効果を受けるとすれば、生成粒子はFaethらの予想した図6. 3 (b)に示すような軌跡よりも火炎内部の方へ向かって移動することになる。このような効果が作用すると考えると、スス粒子塊が火炎内部へ向かう分速度を持ち、火炎に沿って移動する現象が説明される。通常重力環境下の火炎においてもサーモフレーション効果により、生成され

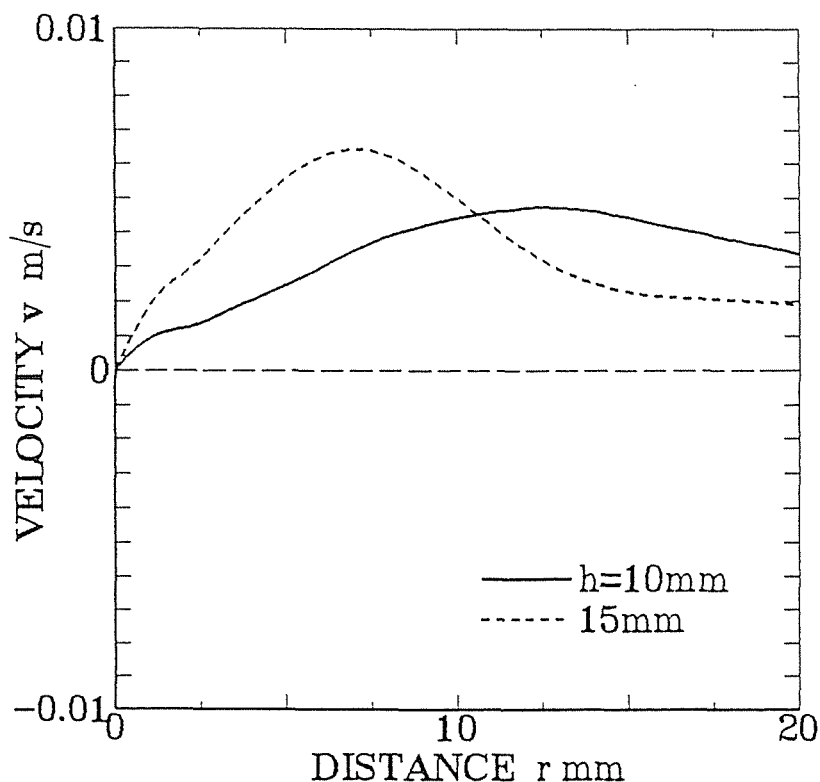


図6. 5 半径方向速度分布 (計算結果)  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%、  
 $h=10$ 、15mm)

たスス粒子が低温の燃料側へ移動する効果のあることが言われている[40]が、微小重力環境下では周囲気体の流速が小さいことから、この効果がより顕著に現れると考えられる。

図6. 5に $h=10\text{mm}$ および $15\text{mm}$ における半径方向速度 $v$ の分布を示すが、これらの位置における半径方向流れはバーナ中心軸より遠ざかる向きへ流れており、いずれにせよ生成したスス粒子塊は半径方向については気体の流れと逆行していることがわかる。Faethらの示したスス粒子移動軌跡と本研究で得られたスス粒子塊移動軌跡の概略を図6. 6に示す。

本研究で観察された比較的燃料流速の小さな火炎におけるスス粒子塊の移動軌跡は、図6. 6 (b)のように火炎中ではバーナ中心軸の方へ近づく向きへ移動し、火炎から出ると逆にバーナ中心軸から遠ざかる向きへ移動する。しかも火炎中のスス粒子塊の移動は半径方向には周囲気体の流れとは逆向きに移動する。これはあたかもFaethらの示した軌跡に沿って移動する粒子に火炎周囲から図に示したような力 $F$ が作用しているようである。これはサーモフレイシス効果の影響であると考えられ、通常重力環境下では顕著に見られないが小さい流れ場である微小重力環境下において顕在化するものと思われる。火炎中に生成したスス粒子は流れの抵抗による力とサーモフレイシス効果による力を受け、結果としてそれらの合力の方向へ移動することになる。

いずれにせよスス粒子塊の移動軌跡が流れの方向に逆らって火炎内側へ移動する現象は、生成したスス粒子が火炎側の酸化領域から遠ざかるように作用するため、スス粒子が酸化されずに凝集するのを助長していると言えるであろう。そしてこの効果が微小重力火炎において、通常重力環境下では観察されない巨大なスス粒子塊にまでススの凝集を進行させる大きな要素になっていると考えられる。

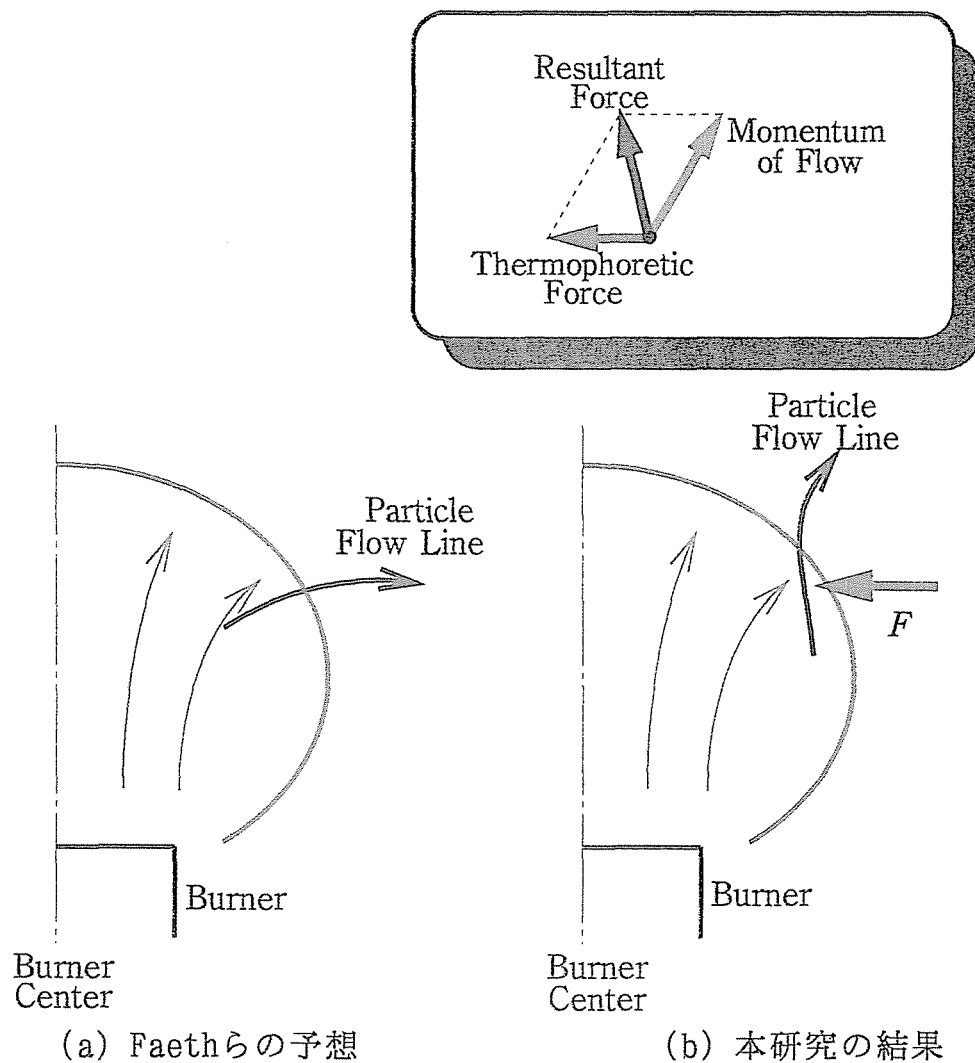


図6. 6 スス粒子塊軌跡の概略

このサーモフレイシス効果によるスス粒子塊凝集への関与について、図6. 7に概念的に示す。

スス粒子はスス粒子凝集領域の上流で生成され、下流方向へ移動するが、初生スス粒子が移動していく過程で下流において新たに生成されたスス粒子と合体し、凝集する。火炎近くで新たに生成されたスス粒子はサーモフレイシス効果により火炎から遠ざかり、上流から移動してきた

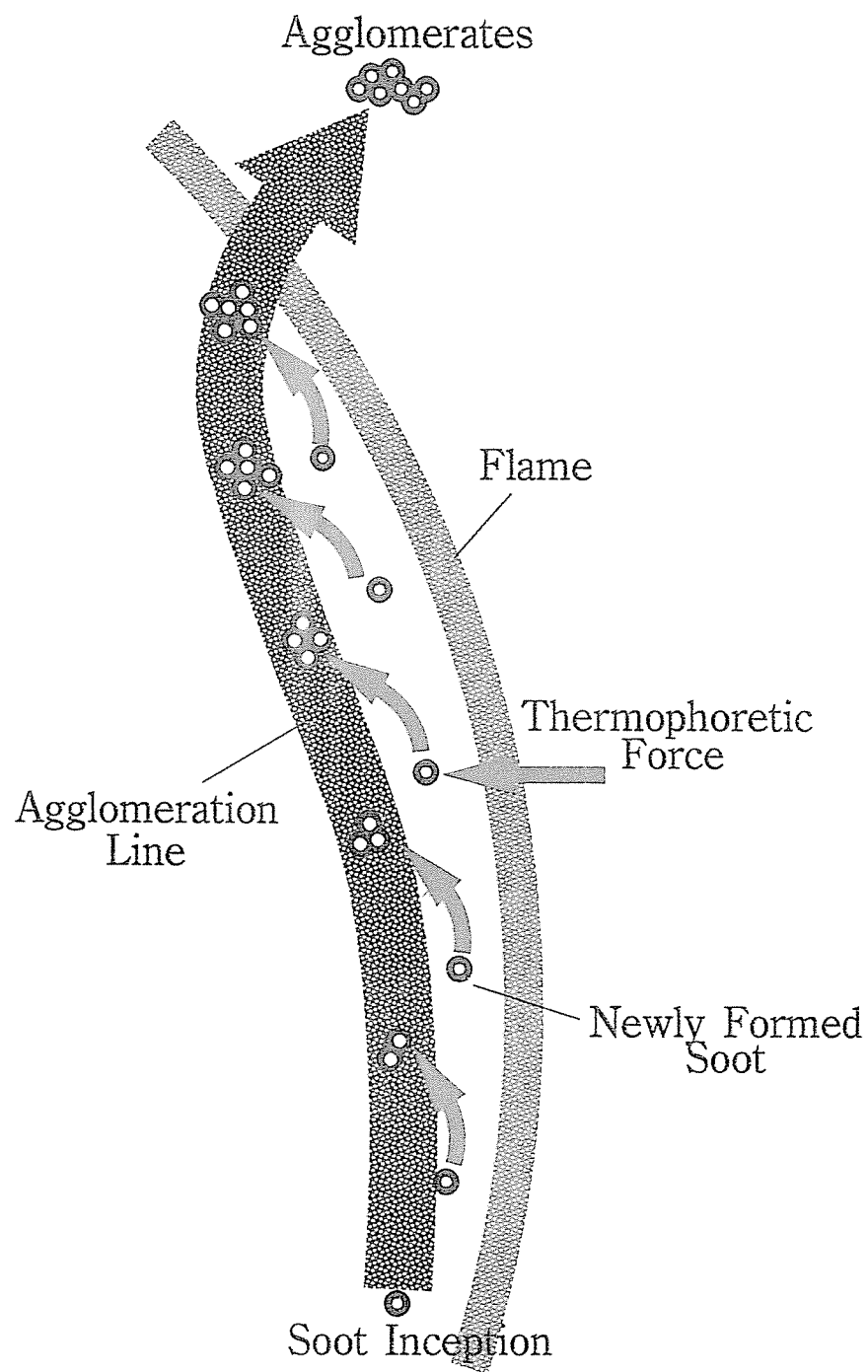


図6.7 スス粒子凝集線



スス粒子と出会う。上流から移動してきたスス粒子もサーモフレイシス効果を受けるが、温度勾配の減少、また凝集径の増大に伴う燃料流の抵抗の増大により、燃料流にのり下流へ移動する。このようにしてスス粒子が出会うスス粒子凝集線が形成され、スス粒子塊生成火炎に観察されたような火炎周囲のリング状凝集領域が形成される。スス粒子凝集線がリング状に分布することから、正確にはスス粒子凝集線ではなくスス粒子凝集面といえる。スス粒子凝集面で形成されたスス粒子凝集体は、さらに他の凝集体とスス粒子凝集面内で凝集し巨大なスス粒子塊にまで成長すると考えられる。従って、スス粒子塊生成にはこのスス粒子凝集面における流速が小さく滞留時間が長いことが重要な条件になる。スス粒子凝集面は火炎内側に位置するため生成粒子の酸化が進行しにくく、凝集に有利に作用するという効果も持っている。

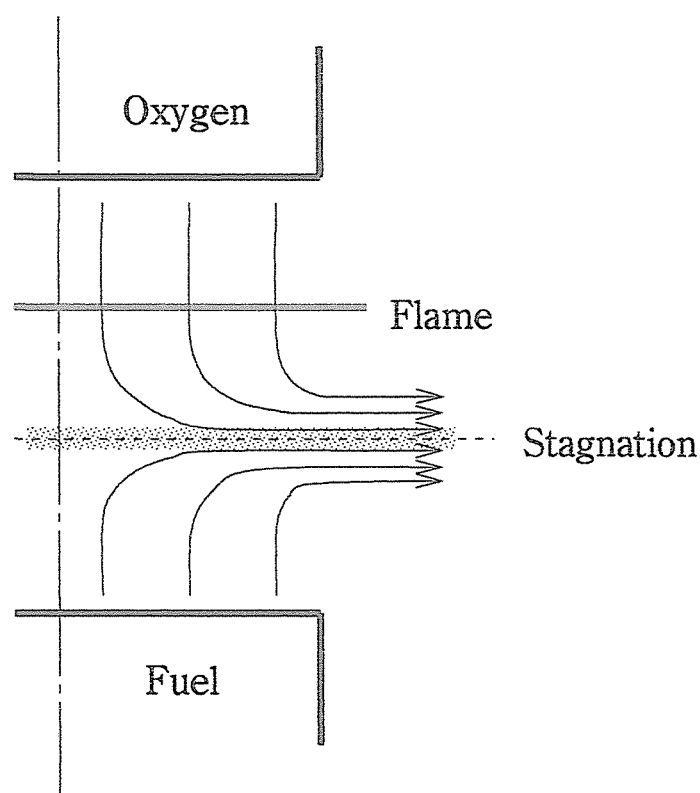


図6. 8 対向噴流拡散火炎

通常重力環境下でススの滞留時間を大きくするため、対向噴流拡散火炎が用いられる[88][89]。Zhangら[89]の用いた対向噴流拡散火炎の概略を図6. 8に示す。

Zhangらはこの火炎を用いて約400msという長い滞留時間を得ているが、本研究に見られたように巨大なスス凝集体については報告されていない。彼らの実験および対向噴流拡散火炎において長い滞留時間が得られるのは火炎からよどみ点までの間であり、本研究で得られたスス粒子凝集線に相当する領域はよどみ点近くの図に赤色で示した領域である。本研究で得られた上述の結果から、スス粒子塊生成にはこの領域の流速(滞留時間)が影響するのであり、基本スス粒子の成長に関する火炎からよどみ点までの滞留時間とは異なる。この領域の流速について言及した研究は見られないが、Tsujiらの撮影した粒子軌跡写真[88]においては、この領域において流れが曲がるごく一部を除いてはほぼ空気主流流速あるいはそれ以上に半径の増大とともに加速しており、巨大なスス粒子凝集体を形成するのに適した領域が小さいことがわかる。このため通常重力環境下ではスス粒子塊の成長を正確に観測することが困難である。

## 6. 5 まとめ

本章では、微小重力環境下でスス粒子塊を生成する火炎の流速分布および化学種濃度分布を調べるため、実測された温度分布をもとに簡易シミュレーションを行い、スス粒子塊生成条件について検討を行った。スス粒子塊生成火炎の化学種濃度分布については、比較的火炎上流部のスス粒子塊生成開始点(あるいはさらに上流部)では、酸素の供給が多く燃焼反応も多く生じているが、スス粒子塊が下流へ移動する際には酸素濃度が低い領域へ移動することになるため、スス粒子塊が凝集する際に酸化されにくい状態であることがわかった。しかし本研究で行った計算

は粘性係数、拡散係数の温度依存性を考慮しておらず、また熱放射の見積もりを行っていないなど、数々の問題点を有しているため、さらに厳密な解析を行う必要がある。

スス粒子塊生成への流速の影響、温度の影響、そして化学種濃度の影響を総合すると、微小重力環境下のスス粒子塊生成火炎においてスス粒子塊生成が火炎周囲のリング状の領域で生成されるのは、次のような条件によると考えられた。

火炎周囲スス粒子塊生成開始点付近では火炎温度がススを生成するに十分な温度および反応に必要な酸素を有している。生成したスス粒子は下流へ行くとともに凝集が進行するが、この際にスス粒子は上流よりも酸素濃度の低い領域を通過するため酸化が進行しにくい。また火炎温度が通常重力環境下の火炎や流速の大きな火炎に比べ低いため酸化が進行しにくい。さらに、流速が通常重力環境下の火炎に比べ小さく火炎内滞留時間が長いため凝集が進行し、巨大なスス粒子塊生成に至る。一方、火炎上部では酸素の供給量が小さく、温度も低いためスス生成量そのものが少ない上に、火炎周囲よりも滞留時間が短いため、凝集の程度が火炎周囲よりも小さい。

スス粒子塊の移動軌跡は、燃料流速の小さい火炎では、火炎内でやや火炎内向きに曲がることを確認された。すなわち、スス粒子塊は流れに逆らってバーナ中心軸に近づく向きへ移動することが明らかになった。このことより微小重力環境下の噴流拡散火炎におけるスス粒子塊生成に重要な役割を果たす次のような機構を提案した。

火炎やや内側で生成されるスス粒子は下流へ移動するが、粒子はこの際に温度勾配に起因するサーモフレイシス効果を受け、火炎から遠ざかる向き、すなわち火炎内向きへ移動する。そして上流から移動してきたスス粒子と出会い、合体する。上流から移動してきたスス粒子もサーモフレイシス効果を受けるが、温度勾配が火炎ごく近傍よりも小さいため、

また粒子凝集径の増大により燃料流の抵抗も増大するため、燃料流により流され下流へ移動する。このようにしてスス粒子が出会う火炎周囲のリング状スス粒子凝集面が形成され、生成したスス粒子は凝集面へ集まることになる。さらに凝集面内においても合体することにより巨大なスス粒子塊へと成長する。この場合にスス粒子凝集面は火炎内部に形成されるため、生成したスス粒子は酸化領域から遠ざかり、酸化が進行しにくい。

以上のように、微小重力環境下において顕在化するサーモフレイシス効果は、生成スス粒子をスス粒子凝集面に集める作用があり、スス粒子塊生成にはこのスス粒子凝集面の流速(滞留時間)が大きく影響すると考えられる。



## 第 7 章

### スス粒子塊生成の制御

## 7.1 概要

本章では、微小重力環境下の噴流拡散火炎の火炎構造を操作してスス粒子塊生成挙動の変化を観察し、スス粒子塊生成の制御を試みた。

まず火炎外部の構造を変化させる手段として、勾配磁場環境を用いた。勾配磁場は空気、とくに酸素の移動に影響を及ぼすことが知られている[90]ことから、火炎外部からの酸素供給を操作することが可能である。つぎに、火炎内部の構造を変化させる手段として、燃料噴流に回転力を与えた。これは火炎近傍の気体に半径方向の遠心力を与えることになる。これら火炎外部および内部構造を変化させてスス粒子塊生成を制御するとともに、スス粒子塊生成条件を再確認する。

## 7.2 スス粒子塊生成への磁場の影響

火炎に対する磁場の影響については古くから知られていたことであるが、最近になって空気が磁場の影響を受け、燃焼現象にも影響を与えることが報告されている[90]。

本研究では、微小重力環境下の拡散火炎のスス粒子塊生成を、火炎外部構造を変化させて制御する一手段として、磁場環境を用いた。

### 7.2.1 磁場の化学種への影響

磁場の化学種への影響には次のようなことが知られている[91]–[93]。物質が示す磁氣的挙動には強磁性、常磁性、反磁性などがある。普通、強い磁性というのは強磁性および常磁性を指す。これらはどちらも原子、あるいは分子が磁気モーメントをもつこと、換言すれば原子(分子)それ

ぞれが小さい磁石であることに由来しているが、原子の性質ではなく集合体(固体、液体、気体)としての性質を表す。強磁性の物質では、物質を形成している原子間に互いの磁気モーメントを平行にしようとする相互作用が働くため、物質全体として大きな磁気モーメントを持つ。一方、常磁性物質では、磁気モーメントを持った原子間に特別な相互作用を持たず、個々の原子の磁気モーメントの方向はバラバラである。この状態では、巨視的には磁気モーメントは現れないが、磁場の中に置かれると個々の原子の磁気モーメントはいくらか磁場の方向を向きやすくなるため、物質全体として磁気モーメントが現れてくる。外部磁場の力と逆向きに磁化を生じる、つまり磁場から逃れるような挙動を示す場合を反磁性という。

両端に点磁化 $+m$ と $-m$ を距離 $\Delta l$ だけ隔てて有する磁気双極子は、 $M=m\Delta l$ なる磁気モーメントを持つ。磁気双極子は一様な磁場からは偶力のみを受け、重心を動かすような力を受けないが、不均一な磁場からは並進力も受ける。磁気双極子が不均一な磁場に平行に置かれているとき、 $-m$ の点磁化を有する点における磁場強度を $H$ とすると、 $\Delta l$ だけ離れた位置における磁場強度は、 $\Delta l$ が小さいとして $H+(dH/dl)\Delta l$ となる。これより、双極子の受ける力は、長さ方向に

$$F=m\left[H+\frac{dH}{dl}\Delta l\right]-mH=m\Delta l\left[\frac{dH}{dl}\right] \quad (7.1)$$

となる。さらに双極子の方向が磁場に平行でない一般的な場合には、磁場強度 $H$ の磁場のなかに置かれた磁気モーメント $M$ を有する磁気双極子が受ける力 $F$ は次のようになる。

$$F=M\frac{dH}{dl}=M_x\frac{\partial H}{\partial x}+M_y\frac{\partial H}{\partial y}+M_z\frac{\partial H}{\partial z} \quad (7.2)$$

磁場勾配が一方向(z方向)にのみ存在する場合には、 $M=\chi H$  ( $\chi$ : 磁化率)なる関係を用いて、

$$F=\chi H\frac{dH}{dz} \quad (7.3)$$

と表される。したがって、磁化率 $\chi_0$ の雰囲気ガス中にある磁化率 $\chi$ の物質(気体)が受ける力は、

$$F=(\chi-\chi_0)H\frac{dH}{dz} \quad (7.4)$$

と表すことができる。

燃焼過程に大きく影響をおよぼす酸素は、常温常圧下で常磁性を示す唯一の等核二原子分子であり[92]、その磁化率は $\chi=1.54\times 10^{-7}$  emu(電磁単位系)[90]である。窒素、および本研究で燃料として用いたブタンは反磁性を示し、それぞれの磁化率は $-0.0613\times 10^{-7}$  emu[94]、 $-0.0256\times 10^{-7}$  emu[95]で酸素に比べ約300倍も小さいため、窒素-酸素雰囲気中では酸素についてのみ考慮すればよい。火炎反応帯で形成されるOHラジカル、CHラジカルなどの中間生成物は反磁性を示すといわれている。

したがって、磁化率の異なる(温度によっても磁化率は変化する)気体



が勾配磁場中に置かれた場合、勾配磁場および気体の有する磁化率の差に比例した力が気体に働く。その力は磁化率の大きな酸素において顕著に現れることになる。

## 7. 2. 2 磁場燃焼実験装置

実験に使用した磁石を搭載した装置は、燃料供給系統および着火装置等はブタンの装置と同様であるが、使用した永久磁石が現象観察の妨げとなり、2方向観察が困難であることから、8mmビデオカメラおよび35mmカメラの観察映像はビームスプリッタ(憐光洋製 1257)により分配した。本研究で勾配磁場実験用に用いた実験装置のバーナ周辺を概略を図7. 1に示す。

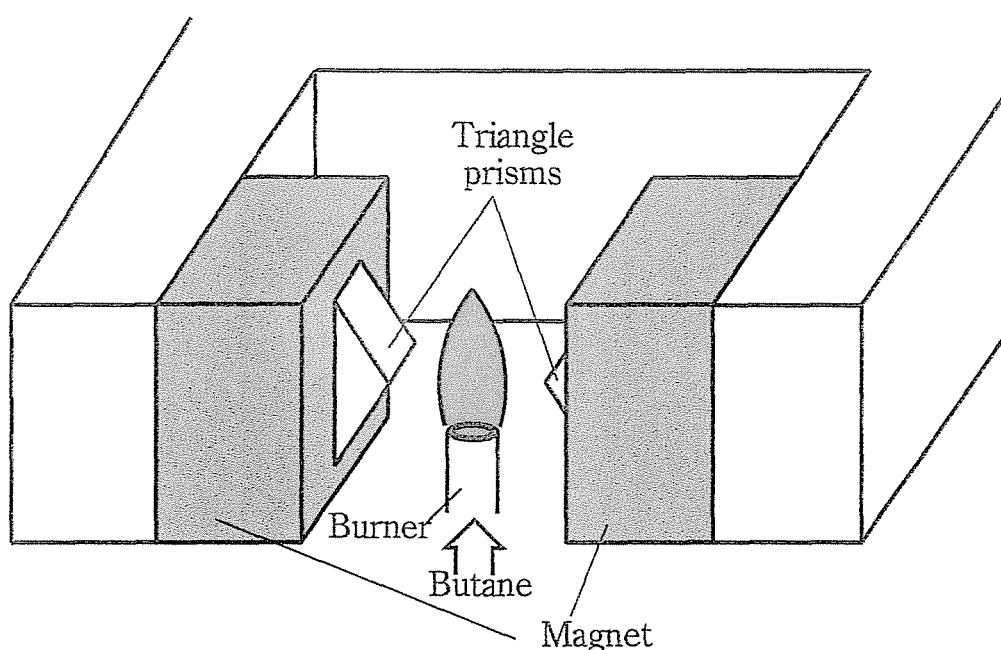


図7. 1 勾配磁場実験装置バーナ周辺概略

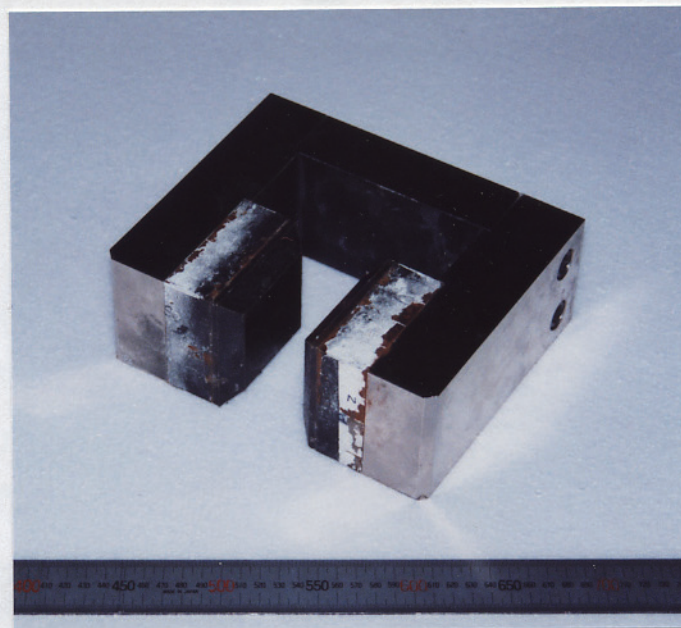


図7. 2 磁石外観

図のように、拡散火炎を形成するバーナの両側に永久磁石(倅住特通商製)を配置した。バーナ両側に磁石を配置するのみでは均一な磁場が火炎周りに形成されるだけである。本研究では勾配磁場を得るために両磁石面に鋼製の三角柱(二等辺三角形の底角 $30^\circ$ 、厚さ10mm)を設置することにより、勾配磁場を形成した。三角柱の頂点の高さをバーナリム高さ以下にすることにより、火炎周りの磁場強度はバーナリムからの高さが高くなるにつれて小さくなる。本研究ではこのような勾配磁場を負の勾配磁場と呼ぶことにする。

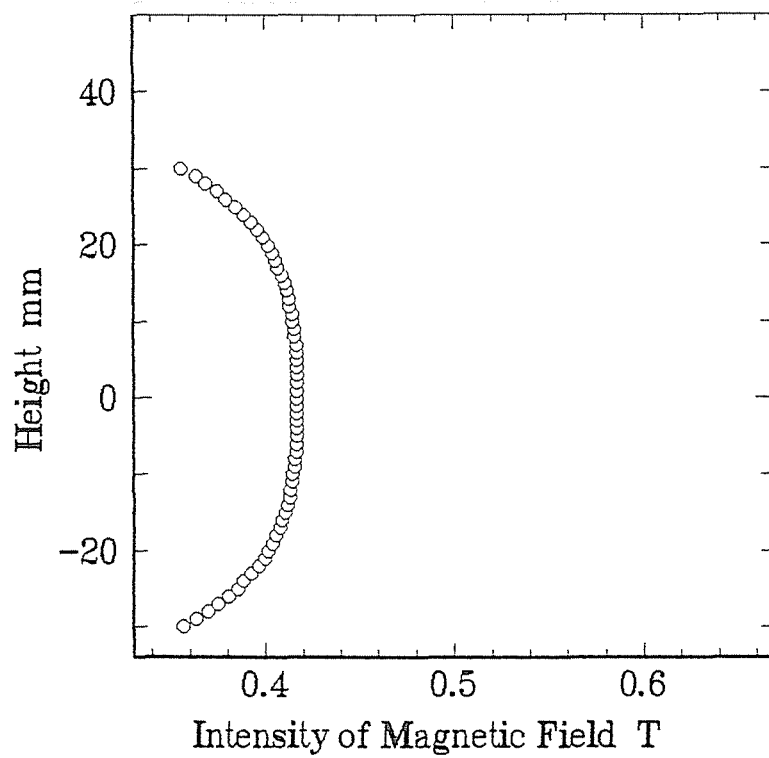
図7. 2に本研究で用いた永久磁石の外観を、表7. 1に主要寸法を示す。また、図7. 3に同磁石の磁場強度分布を、(a)均一磁場の場合、(b)負の勾配磁場の場合について示す。磁場強度分布の測定には磁力計(F.W.BELL製 MODEL4048)を使用した。



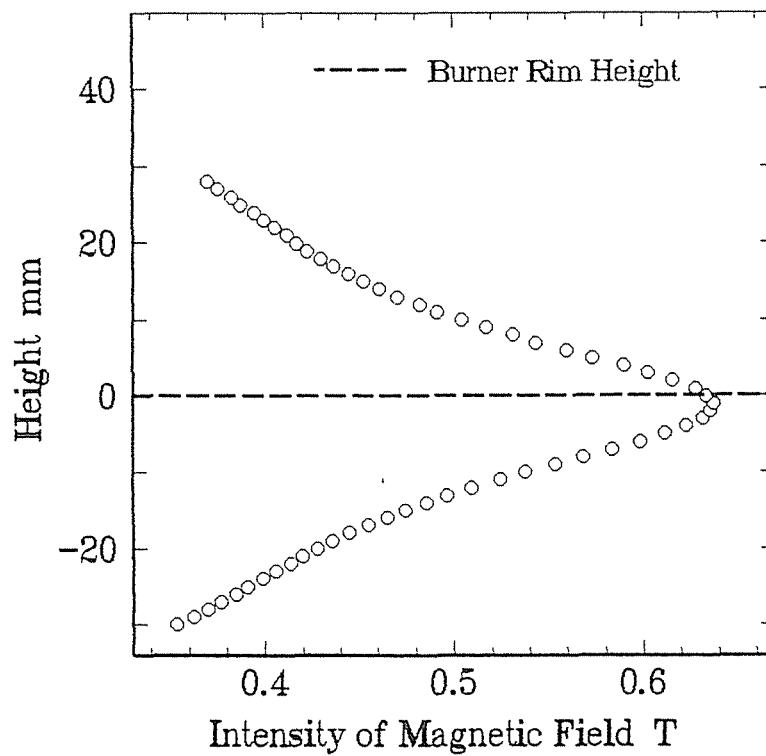
図7. 3では縦軸に磁極面中央から高さ方向への距離、横軸に磁場強度をとっている。(a)三角柱鋼片を設置しない場合には磁極面中央部付近に約20mm程度の均一磁場が得られ、その最高磁場強度はおよそ0.42Tで、磁場勾配はほとんどないと言える。(b)負の勾配磁場では、三角柱鋼片の頂点にバーナリム高さを合わせたが、磁場強度はバーナリムからの距離にほぼ比例して最高磁場強度0.64Tから減少し、(a)と比較すると大きな負の勾配磁場が実現されているのがわかる。

表7. 1 磁石主要寸法

|             |    |            |
|-------------|----|------------|
| 最大寸法(W×L×H) | mm | 210×170×80 |
| 磁極面積(L×H)   | mm | 60×60      |
| 磁極間距離       | mm | 40         |
| 重量          | kg | 14         |



(a) 三角柱鋼片を設置しない場合



(b) 負の勾配磁場(三角柱鋼片設置)

図7. 3 磁場強度分布



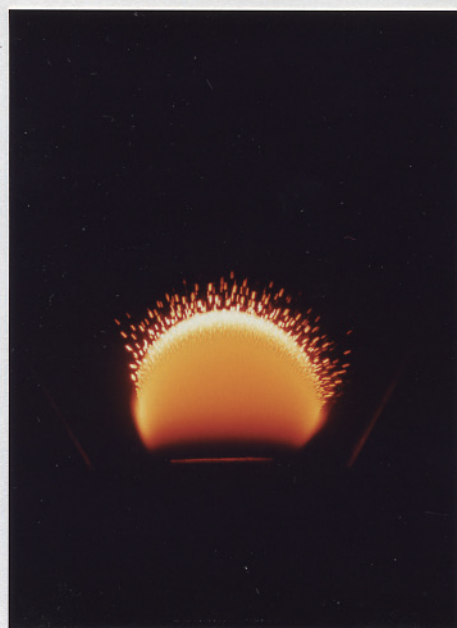
### 7.2.3 スス粒子塊生成への磁場の効果

本研究で使用した実験装置では、負の勾配磁場を形成するためにバーナ近くに設置した三角柱鋼片がスス粒子塊生成に影響を及ぼす可能性が考えられた。この火炎近くに存在する物体と勾配磁場のスス粒子塊生成への影響を明確に区別することを目的として、使用した磁石と同様の形状に加工したアクリル樹脂製模型に三角柱鋼片を設置し、磁場のない場合の実験を行い、スス粒子塊生成への影響を観察した。図7.4に、磁場のない模型を火炎近くに設置した場合の火炎を示す。

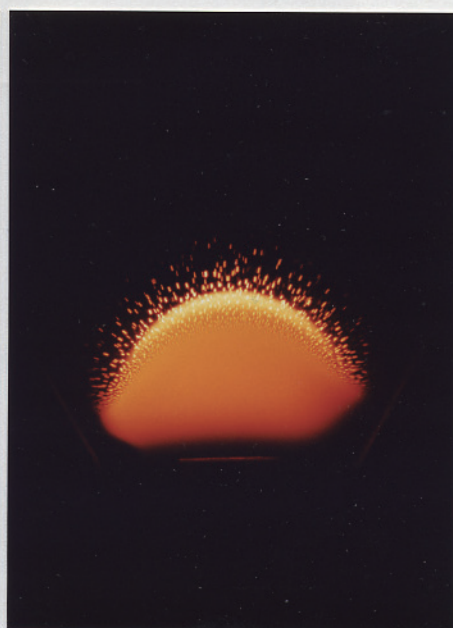
図7.4では、微小重力環境移行後すぐに火炎上方にスス粒子塊が生成する様子が観察される。この火炎では微小重力環境の継続とともに火炎輝度は徐々に低下するが、スス粒子塊の生成は継続している。微小重力環境の継続とともに火炎輝度が大きく低下するのは、火炎周囲に物体が存在しない場合の火炎には観察されないことから、火炎周囲に設置した物体の影響であり、物体により酸素の拡散が阻害されることおよび物体に燃焼熱を奪われることによる火炎温度の低下のためと考えられる。この結果から、周囲幾何形状の違いは火炎に影響を与えるが、スス粒子塊は生成されていることからスス粒子塊生成現象には大きな影響を与えてはいないといえる。

磁化率の異なる気体の混合物である空気中に磁場勾配が存在する場合には、酸素には磁極へ引き寄せられる力が作用し、酸素が移動する。本研究で用いた実験装置ではバーナリム上方および下方に磁場勾配を配置したため、周囲酸素はバーナリム付近へ集まるように移動すると考えらる。

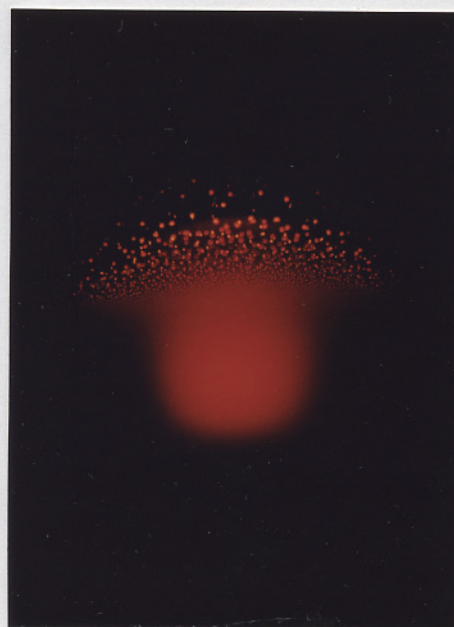
図7.5に、スス粒子塊生成火炎へ負の勾配磁場を与えた場合の火炎の様子を示す。これはバーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%の火炎であり、本研究において微小重力環境下でスス粒子塊を生成



(a)  $\mu$ G移行後0.45s



(b) 1.16s



(c) 3.99s



(d) 9.29s

図7. 4 磁石模型を設置した場合のスス粒子塊生成火炎  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)





図7. 5 勾配磁場のある微小重力火炎  
(バーナ内径6mm、燃料流量0.6mL/s、雰囲気酸素濃度50%)

する典型的な火炎として扱っているものである。

図7. 5に示すように、微小重力環境下でスス粒子塊を生成する火炎に負の勾配磁場を与えた場合には、火炎からのスス粒子塊生成は観察されないことがわかる。また図7. 4および図3. 7に示したスス粒子塊を生成する火炎と比較すると、火炎輝度が高く火炎体積が小さくなっており、通常重力環境下で見られる火炎(図3. 6)に似た火炎となっている。この火炎は微小重力環境継続中、定常状態で燃焼するのが観察された。通常重力環境下の火炎では火炎周りに生じる自然対流によって酸素の供給が促進されているように、負の勾配磁場中にある微小重力火炎では磁気対流により火炎への酸素の供給が促進されており、その結果通常重力環境下の火炎と似た様相を呈すると考えられる。

微小重力環境下における火炎の輝度の低下は、微小重力火炎の温度低下を表すことを第5章に示したが、勾配磁場中の火炎は輝度が高いため、火炎温度が高いものと考えられる。負の勾配磁場中の火炎にはバーナ下方からおよび火炎上方から酸素が供給されるので、火炎周囲の酸素供給量は増大する。すなわち磁気対流が燃焼を支えている。そしてこの対流によりスス粒子塊生成条件が満たされなくなると考えられる。

以上のように、スス粒子塊生成火炎に勾配磁場を与え酸素供給を促進することにより、スス粒子塊生成を抑制することが可能である。

### 7.3 回転噴流によるスス粒子塊生成の制御

前節では勾配磁場を用いることにより火炎外部構造を変化させスス粒子塊生成を制御したが、本節では火炎の内部構造を変化させる一手段として燃料噴流に回転力を与え、スス粒子塊生成挙動を観察した。

#### 7.3.1 軸回転バーナ

本研究で使用した燃料噴流に回転を与えるバーナの概略を図7.6に、外観を図7.7に示す。

燃料噴流に回転を与える手段としてはスワローなどによる方法もある[96]が、本研究では回転を与えない場合との比較のため、燃料流路面積、形状などを変更しないという観点から図に示したようなバーナを使用した。

図に示したバーナと一体となっているプーリを輪ゴムにより回転させることによりバーナを回転させる。バーナ底部には潤滑および燃料の漏



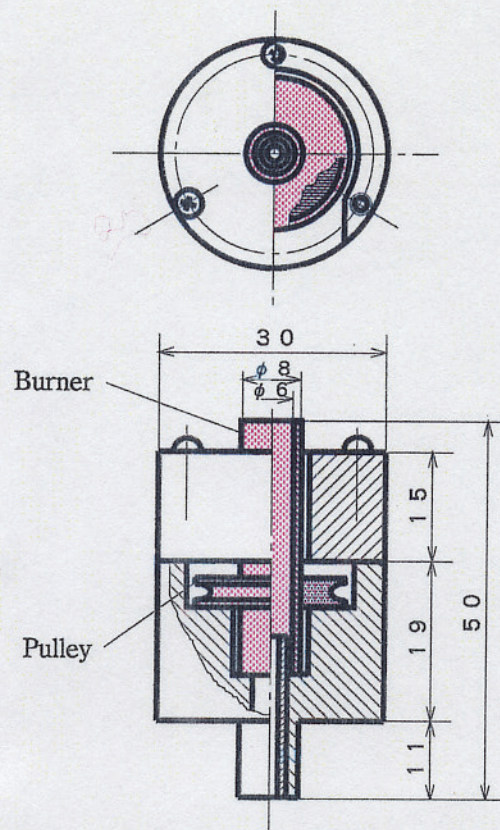


図7. 6 軸回転バーナ概略

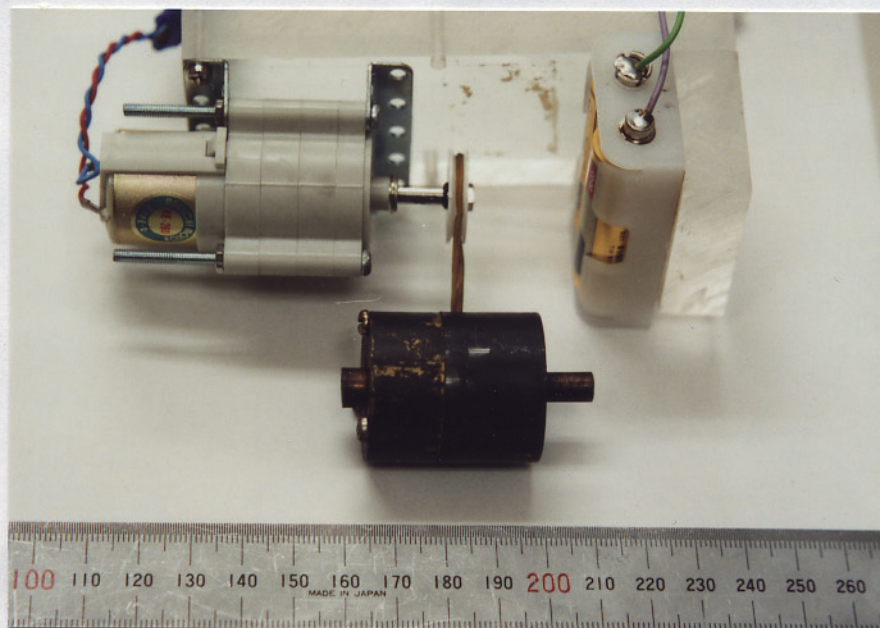


図7. 7 軸回転バーナ外観

洩を防ぐためグリスを充填した。バーナの回転数調整は外部に設置した歯車により行い、本研究では105、131、525rpmの3通りについて実験を行った。バーナ内径は、本研究でスス粒子塊を生成する典型的な火炎として挙げているものと同様の6mmとし、雰囲気酸素濃度50%、燃料流量0.6mL/sにて実験を行った。

### 7.3.2 燃料噴流の回転によるスス粒子塊生成への影響

本研究では前節に示した軸回転バーナにより、燃料噴流に回転を与えた。燃料噴流に回転を与えると、燃料は遠心力により回転を与えない場合よりも半径方向へ燃料が拡がると考えられる。そこでまず微小重力環境下の火炎の火炎幅と火炎長の比を測定し、同バーナにおける火炎形状に与える回転の影響について調べた。図7.8に、微小重力環境下の拡散火炎形状へのバーナ回転数の影響について示す。図の横軸にバーナ回転数、縦軸に火炎幅 $b$ と火炎長 $l$ の比 $b/l$ をとっている。

図7.8より、 $b/l$ はバーナ回転数にほぼ比例して大きくなり、火炎に燃料噴流の回転の影響が現れていることがわかる。

次にスス粒子塊生成について述べる。図7.9にバーナ回転数105rpmの場合のスス粒子塊生成の様子を示す。(a)が火炎を側方より観察したもの、(b)が上方より観察したものである。図より、火炎にスス粒子塊は生成されているが、その生成の様子はバーナを回転しない場合(図3.7および図5.1)とは大きく異なることがわかる。明らかに次のような違いが見られる。まず火炎から離脱するスス粒子塊の量が非常に少なくなること、またスス粒子塊生成領域がリング状には分布せず火炎全体にスス粒子塊が観察されることである。この火炎のスス粒子塊の移動軌跡を図7.10に示す。図は、粒子の位置を時間経過とともに示したものであるが、生成したスス粒子塊は火炎上を滑るように下方へ移動しているこ



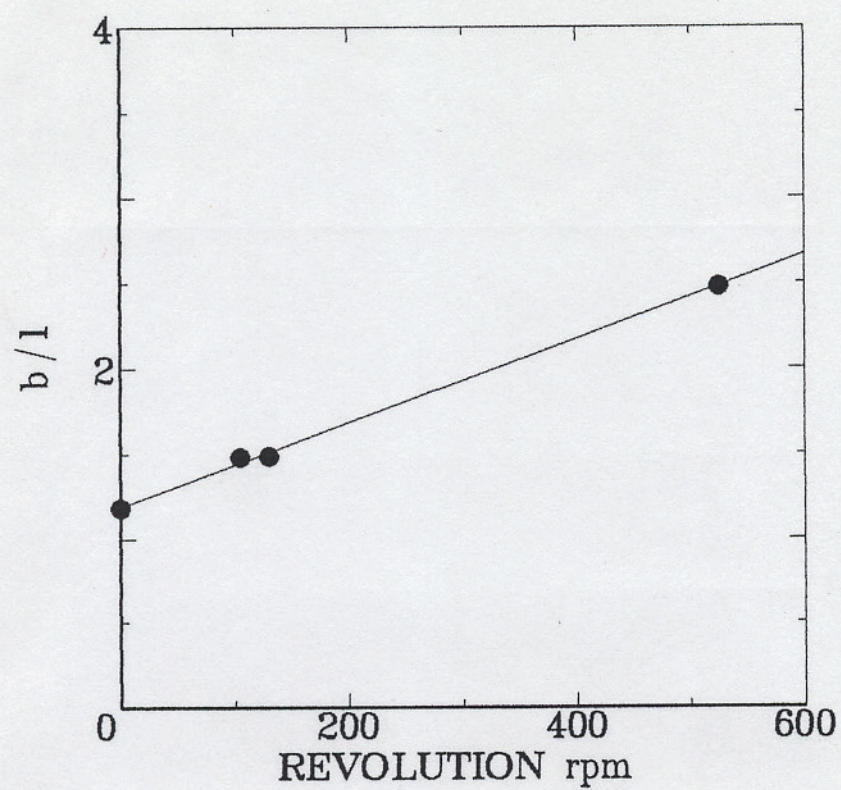
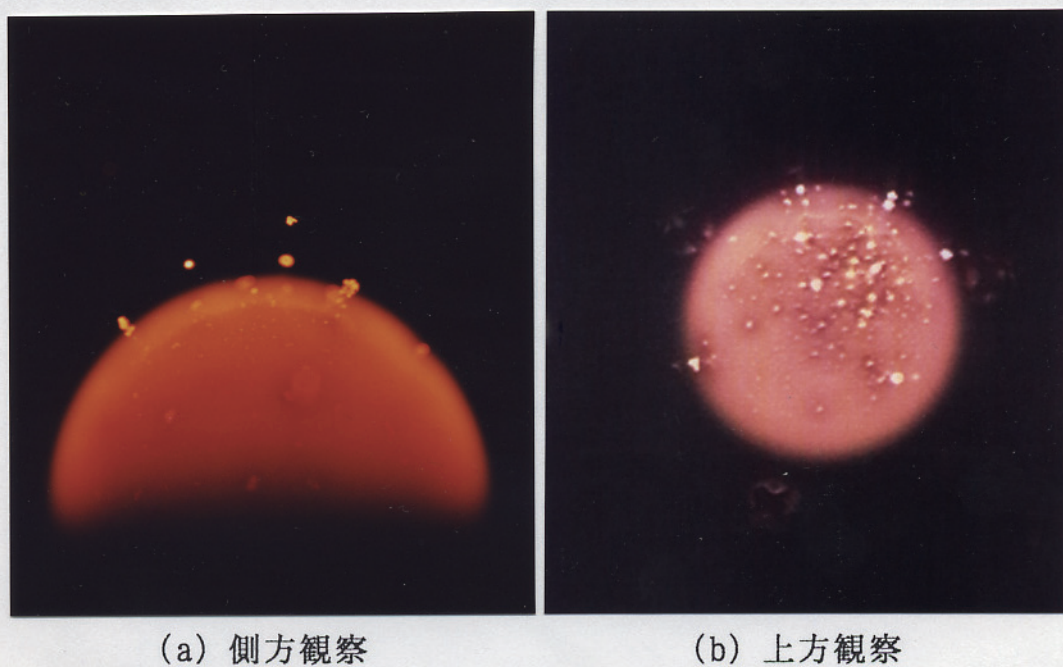


図7. 8 バーナ回転数と火炎形状の関係



(a) 側方観察

(b) 上方観察

図7. 9 軸回転バーナのスス粒子塊生成(回転数105rpm)

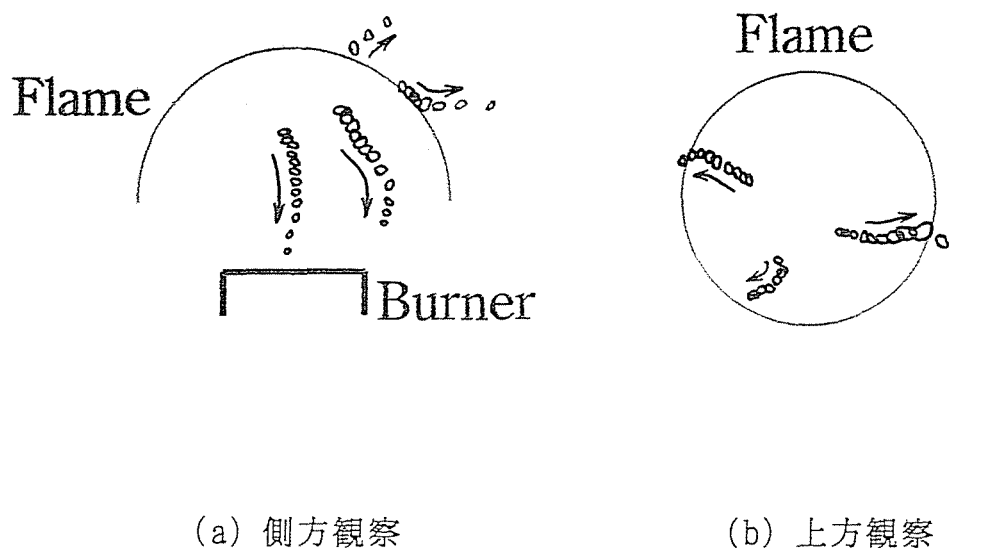


図7. 10 軸回転バーナのスス粒子塊移動軌跡(回転数105rpm)

とがわかる。

バーナの回転数が131rpmの場合のスス粒子塊生成の様子を図7. 11に示す。この火炎では火炎表面やや内側にスス粒子塊が生成され、生成領域層を成しているのが観察される。また火炎外へ離脱するスス粒子塊の数は少ない。スス粒子塊の存在領域がバーナ回転数105rpmの場合よりも内側に観察されることから、バーナ回転数を大きくすることによりスス粒子塊は火炎内側へ引き寄せられているといえる。軸回転バーナに形成した火炎では、落下実験終了および装置回収後、バーナ出口付近に生成したスス粒子塊が多数付着しているのが観察された。図7. 12に、バーナ回転数131rpmの場合にバーナ出口付近に付着したスス粒子塊を示す。視認できるかなり大きなスス粒子塊が多数、付着していることがわかる。



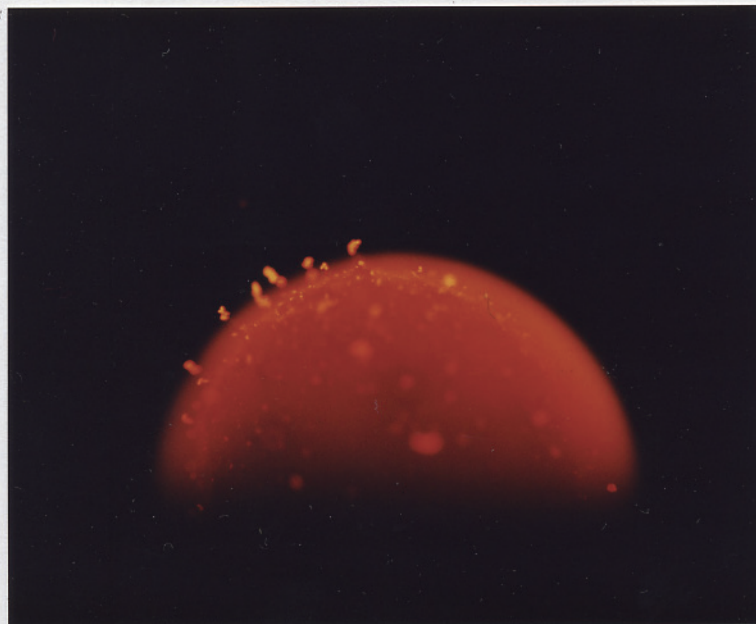


図7. 11 軸回転バーナのスス粒子塊生成(131rpm)

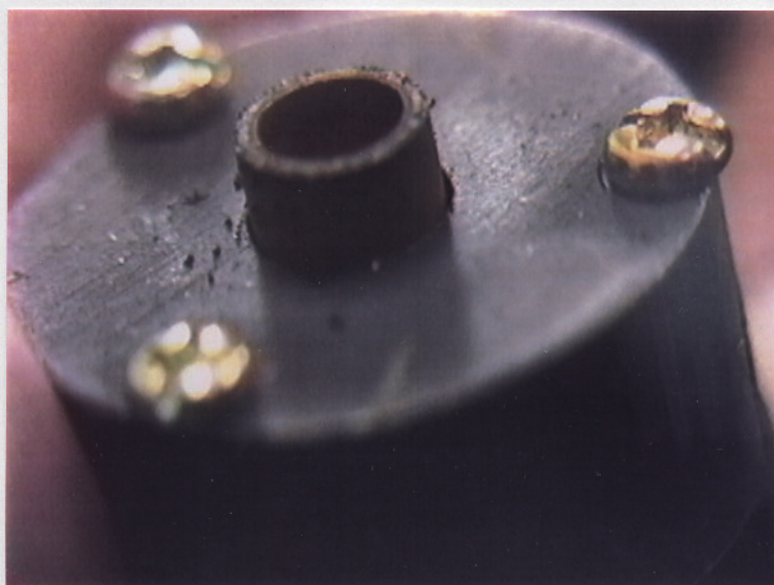


図7. 12 軸回転バーナ出口に付着したスス粒子塊

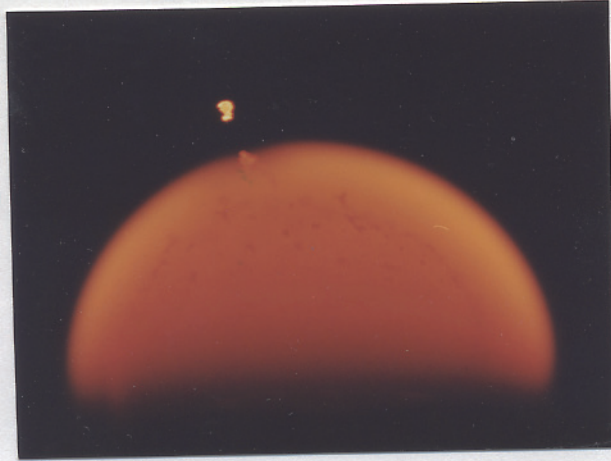
さらにバーナ回転数を大きくした場合(525rpm)のスス粒子塊生成の様子を図7. 13に示す。この火炎では、生成されたスス粒子塊が徐々に火炎内部へ移動していく様子が観察される。また火炎表面にはスス粒子塊がまったく観察されなくなり、さらには火炎内部で集合したスス粒子塊が中心がくぼんだすり鉢状の形状を呈して回転するのが観察される。この火炎中に集合して回転するスス粒子塊の概略を図7. 14に示す。これより、スス粒子塊は軸回転バーナの回転数が大きくなると火炎内部に集合し、さらに回転数を大きくすると独特な形状を成して内部で回転することがわかる。

燃料噴流に回転力を与えると、燃料は遠心力を受け半径方向へ離散するが、このときに周囲の気体よりも軽い気体は浮力の作用により内側中心軸方向へ移動する[97]。すなわち遠心分離と同様に、人工的な半径方向の重力を発生させたことになるが、これにより高温の燃焼ガスが燃料側へ移動する。またバーナ中心軸上では燃料噴流の回転にともない負圧になる[83]ため火炎近傍の気体を引き寄せると考えられる。これらの効果により、燃料噴流の回転にともないスス粒子塊が火炎やや内側から火炎中へ引き込まれ、さらには火炎中ですり鉢状の形状を呈して回転すると考えられるが、それらの支配因子の寄与の割合については、本研究において明らかにするまでには至っていない。

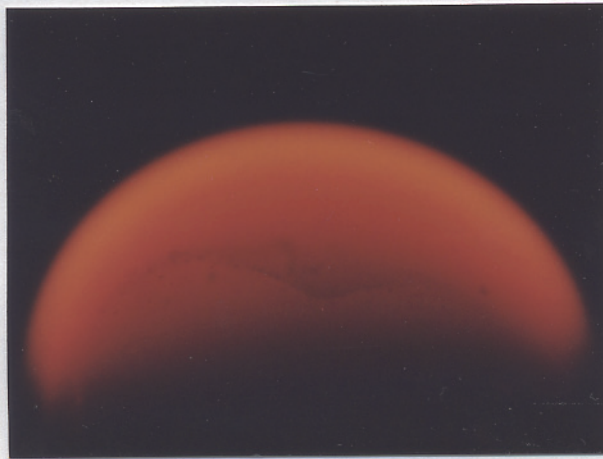
多くの場合、ススは環境汚染物質として扱われるが、工業的にはタイヤ、印刷インキ、乾電池などに広く利用されており、価値ある製造物という面も合わせ持つ[98]。それゆえに、多くのスス量を必要とする場合も生じる。

本研究では、落下時間および落下機会の制約から多くのスス収集量が得られなかったため、スス粒子塊の性状分析は困難であった。微小重力環境下では、気相反応により生成されるSiC微粒子の粒径が通常重力環

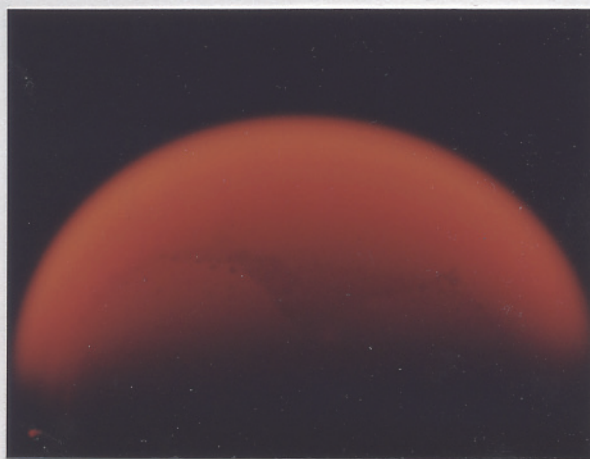




(a) 着火後2.1s



(b) 4.5s



(c) 5.7s

図7. 13 軸回転バーナのスス粒子塊生成(525rpm)

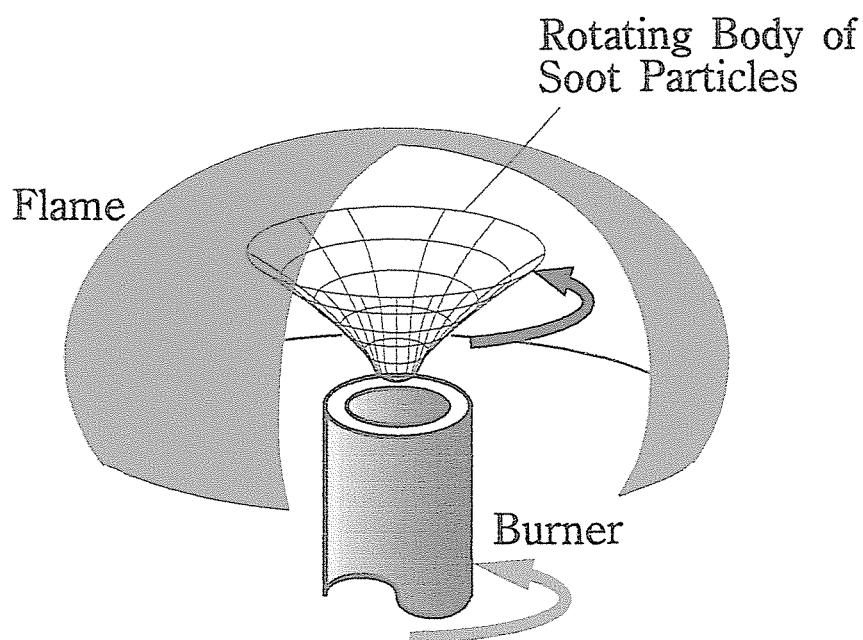


図7. 14 スス粒子塊集合回転体概略

境下のものと比べて大きくなる[99]など、微粒子の生成、成長に重力が関与している例もあり、本研究で発見されたスス粒子塊も通常重力環境下のススとは性状が異なる可能性がある。今後、スス粒子塊の性状を調べるため、あるいは微小重力環境を利用したススに関する研究を行う上で、スス粒子塊をサンプルとして必要になることが予想される。そのような場合に本節で述べたような方法を用い、火炎内部に集合させたスス粒子塊を吸引[69]あるいは電場を利用した捕獲[71]などにより収集することが可能であり、多くのスス粒子塊のサンプルを得ることが可能であると考えられる。

軸回転バーナを用いて火炎内部にスス粒子塊を集合させることが可能であることを示したが、バーナ回転数が大きい場合にはもうひとつ重要



な効果がある。それは火炎やや内側のスス粒子生成領域で生成したスス粒子が火炎を通過することなく火炎内部に集合するということである。これにより生成されたスス粒子は酸化領域を通過せずに集合すると考えられる。この酸化領域を経験していないスス粒子の性状を調べることで、”若い”ススの性状を知ることができ、スス粒子生成の中間体についての知見を得ることができる可能性を示唆している。

以上のように、スス粒子塊収集の一手段として、また酸化領域を通過させずに長い滞留時間を実現したスス粒子を創り出す一手段として、微小重力環境下の拡散火炎の燃料流に回転力を与えることは有効であろう。しかし、本研究では同火炎の流れのメカニズムなどを解明するには至っておらず、今後検討すべき点である。

#### 7.4 まとめ

本章では、微小重力環境下においてスス粒子塊を生成する噴流拡散火炎の火炎外部および内部構造を操作してスス粒子塊生成挙動の変化を観察し、スス粒子塊生成の制御を試みた。

まず火炎外部の構造を変化させる手段として、勾配磁場環境を用いた。勾配磁場により空気、とくに酸素の移動が影響を受けることが知られていることから、これにより火炎外部からの酸素供給量を操作することになる。

スス粒子塊を生成する火炎に負の勾配磁場を与えると、火炎からのスス粒子塊生成は観察されなくなり、火炎に勾配磁場を与えると磁気対流によりスス粒子塊が抑制されることが明らかになった。このときの火炎は輝度が高く、また火炎体積が小さくなり、通常重力環境下の火炎に似ており、微小重力環境継続中、定常な燃焼が行われる。

次に、円管バーナ中心軸周りに回転するバーナを製作し、火炎の内部構造を変化させる一手段として燃料噴流に回転力を与え、スス粒子塊生成挙動への影響を観察した。

スス粒子塊を生成している火炎の燃料噴流に回転を与えると、バーナ回転数に比例して火炎形状が横長に広がることがわかった。また、この場合にスス粒子塊生成領域は火炎周囲にリング状に分布するのではなく、火炎全体にスス粒子塊が観察されるようになる。生成したスス粒子塊は火炎上を滑るように火炎下方へ移動し、バーナリム付近まで降下することがわかった。バーナ回転数が大きくなると、スス粒子塊は火炎やや内側に層を形成するのが観察されるようになり、さらに回転数が大きくなると、スス粒子塊は完全に火炎内部に移動し火炎内部で中心がくぼんだすり鉢状の形状を呈して回転することがわかった。

この燃料噴流に回転力を与える制御法は、今後の微小重力環境下のスス生成に関する研究において、スス粒子収集という観点から有効であると考えられたが、本研究では同火炎の流れのメカニズムなどを解明するには至っておらず、課題を残している。

バーナ回転数が大きい場合に見られたように、火炎やや内側で生成され火炎の酸化領域を経験することなく火炎中央へ集合したスス粒子塊の性状は、酸化領域を経験したものとは異なることが予想され、このスス粒子塊を捕獲しその性状を調べることはスス生成過程の知見を得るという観点から、非常に興味深い。このスス粒子塊の捕集法を用いたスス粒子塊についての研究の今後が期待される。

## 第 8 章

## 結 論

本研究は、微小重力環境下の噴流拡散火炎に生成される巨大なスス粒子の凝集体であるスス粒子塊を確認し、その生成に関する条件を明らかにしたものである。微小重力環境を利用して実験を行ったものであるが、はじめて発見された現象を扱ったことは勿論、これまでほとんど行われていない燃焼生成物についてとりあげたところに特徴がある。微小重力環境下で燃焼現象を観察することには重要な意義がある。通常重力環境下で観察される燃焼現象は自然対流の影響を大きく受け、現象が複雑化されており、同環境下では現象の解明が困難である。これに対し、微小重力環境下では現象を複雑にしている自然対流の影響を排除し、燃焼機構の解明を容易にできるとともに、通常重力環境下では重力の影響により現れなかった現象を顕在化できる可能性を有している。このようなことから、燃焼生成物の生成にも重力の影響が介在していると考えられ、重力の影響を受けない場での燃焼生成物の生成について知見を得ることは極めて重要である。

通常重力環境下におけるスス生成についてこれまで非常に多くの研究が行われている。しかし未だ不明な点も多く、更なる研究を必要とするのが現状である。通常重力環境下におけるスス生成に関する実験においては、火炎構造が自然対流に大きく支配されるため、スス生成も自然対流に大きく影響される。これに対し、微小重力環境を利用した実験では、火炎構造を通常重力環境下に比べ操作することが容易であるため、スス生成現象を新たな側面から捉えることが可能となる。

本研究では、10秒の微小重力期間を得ることが可能な落下施設の建設を機に、これまで実現が困難であった燃焼生成物についてとりあげ、実験を行ったものである。そして微小重力環境下の拡散火炎においてこれまでに報告されていない特徴的な多数の輝く粒子生成が見られた。これは微小重力環境下で巨大に凝集したスス粒子であると予想されたことから、この粒子を捕獲し、確認を試みた。そしてそれらの粒子が、本研究



においてスス粒子塊と呼ぶ巨大なスス粒子凝集体であることを確認した。この微小重力環境下で観察されるスス粒子塊の生成条件を確認することは、スス粒子凝集への重力の影響を確認することになることから、スス粒子塊生成条件の検討を行った。本研究では、まず火炎周りの気体流速の影響を調べた。次にスス粒子塊が生成する領域を確認し、雰囲気酸素濃度の影響を調べ、さらにスス粒子塊を生成する火炎周りの温度分布、化学種濃度分布の傾向を調べた。そしてこれらの結果からスス粒子塊生成に関する条件について検討した。

本研究において得られた成果は以下のようにまとめることができる。

まず、第3章においては、微小重力環境下におけるボタン噴流拡散火炎において、視認できるほどの巨大な粒子が生成されることがはじめて見いだされたことから、微小重力環境下でこの粒子を捕集し、顕微鏡観察を行った。この結果、これは拡散火炎内で生成されたスス粒子が凝集し巨大化したスス粒子凝集体であることを実証した。また、その規模は最大数百 $\mu\text{m}$ まで達し、通常重力環境下で得られるスス粒子凝集体の200～500倍程度であることが明らかになった。このスス粒子塊生成は点火時の重力条件に依存しないことから、この現象は微小重力環境下で重力による物体力がなくなることにより観察される現象であることが確認された。

また、スス粒子塊生成挙動を捉えるため、スス粒子塊生成の経時観察を行った。これより、巨大なスス粒子塊が火炎内で合体するもの、あるいは稀に分裂するものが観察され、通常重力環境下では見られないほど凝集により成長した凝集体がさらに凝集する能力を有していることを確認した。スス粒子塊は火炎付近において輝く粒子として観察される。しかし火炎付近から下流へ流れた粒子が消滅しているのか、あるいは存続しているのかは火炎の直接観察からは確認できない。このため、レーザ

を光源に用いたシュリーレン撮影を行い、確認を行った。その結果、スス粒子塊は火炎から出た後、完全に酸化されず排出していることを明らかにした。

本研究では供試燃料としてブタンを使用した。他の燃料にも観察されるかどうかを確認するため、スス粒子塊生成への燃料の種類の影響を調べた。その結果、スス粒子塊生成は他の炭化水素燃料の燃焼にも見られるが、メタン(酸素濃度21%)には見られないことがわかった。これはメタンの発煙傾向が低いことによると考えられた。

このように、微小重力環境下の噴流拡散火炎には通常重力環境下では見られないほど巨大に凝集したスス粒子塊が生成されることを示したが、このスス粒子塊の凝集条件を確認することは、スス粒子凝集への重力の影響を確認することにつながる。本研究では、スス粒子塊生成条件を検討する上で、まず火炎周りの気体流速が大きく影響していると考え、スス粒子塊生成への気体流速の影響の確認を試みた。

第4章においては、まず通常重力環境下において点火を行った場合に微小重力環境へ移行した後も残留する残留対流、そして火炎周りの局所噴流のスス粒子塊生成への影響を調べた。この結果、火炎周囲の気体流速が大きい場合にはスス粒子塊は生成されないことがわかった。同時に、本研究で使用した残留対流を抑制する金網の効果が実証され、とくに短時間微小重力燃焼実験においては残留対流が火炎(スス生成)に影響を及ぼすことがわかった。次に、燃料流速の影響を調べたが、スス粒子塊は燃料流速が大きい場合および極めて小さい場合に生成されないことが明らかになった。燃料供給を平坦なものにするためセラミックファイバマットを挿入したバーナを用いた実験より、スス粒子塊は燃料供給量により生成する位置が異なることがわかった。この結果より、スス粒子塊生成には火炎周りの流速のみならず、温度や化学種濃度分布がその支配因子になっていると考えられた。

第5章においては、これらの影響を検討する前に、まず円管バーナにおいてスス粒子塊を生成している領域の位置を確認するため二方向から火炎観察を行った。円管バーナに形成した火炎のスス粒子塊生成領域は火炎周囲にリング状に分布し、火炎上部には存在しないことが明らかになった。次に、熱電対を用いて火炎周りの温度分布を調べ、スス粒子塊生成と温度の関係について検討を行った。その結果スス粒子塊を生成する火炎の火炎温度は約1200°Cであり、火炎やや内側のスス粒子塊生成領域の温度は1100°C程度と見積もられた。微小重力環境下で燃料流速が大きくスス粒子塊を生成しない火炎および通常重力環境下の火炎の火炎温度はスス粒子塊を生成する火炎に比べ非常に高く、本研究で扱った火炎では、高温の火炎ではスス粒子塊が生成されないことがわかった。これは高温においてススの酸化が増大することにより、生成したスス粒子が酸化されることによると考えられた。

温度勾配に着目すると、火炎近傍ではサーモフレイシス効果を引き起こすのに十分なだけの温度勾配が存在することがわかった。

スス粒子塊生成への化学種濃度分布の関与について調べる一つとして、スス粒子塊生成への雰囲気酸素濃度の影響を調べた。その結果、雰囲気酸素濃度が高い場合にはスス粒子塊生成が10秒の微小重力期間継続するが、低い場合には微小重力環境へ移行直後においてのみスス粒子塊が生成されることから、スス粒子塊には酸素濃度が影響していることがわかった。

以上のように、スス粒子塊生成は気体流速、雰囲気酸素濃度、それともなう温度などが影響することが明らかになったが、スス粒子塊移動の際の酸素濃度変化の傾向を簡易シミュレーションより予測し、これらを総括してスス粒子塊生成に関する条件を検討した。

第6章においては、スス粒子塊生成火炎についての化学種濃度分布の

計算結果より、スス粒子塊生成開始点付近に比べスス粒子塊生成領域では酸素の供給が小さく、酸化されにくい雰囲気であることが予想された。

スス粒子塊が生成される領域の性質から生成条件をまとめると次のようになる。

- ・スス粒子塊生成開始点(あるいはさらに上流)付近では酸素の供給および火炎温度がスス生成に十分な条件である。
- ・生成したスス粒子が下流へ移動するとともに凝集する領域は、火炎温度が通常重力環境の火炎に比べ低いため酸化率が低く、また酸素濃度が低いため酸化が進行しにくい。
- ・凝集領域の流速が小さく、通常重力環境下の火炎と比較して火炎内滞留時間が長いため、巨大なスス粒子塊にまで凝集が進行する。

以上のようなスス粒子塊生成に関する条件、およびサーモフレイシス効果に関する検討から、次のようなスス粒子塊生成メカニズムが矛盾なく説明できる。

火炎近傍のスス粒子塊生成領域では気体の半径方向の流れが火炎外側へ向いているにもかかわらずスス粒子塊は火炎内側へ向かいながら下流へ移動することが観察された。火炎近傍の温度勾配がサーモフレイシス効果を引き起こすのに十分なだけあることから、これはサーモフレイシス効果により生成した粒子が火炎内部へ追いやられることによると考えられた。生成したスス粒子は火炎近傍のサーモフレイシス効果により火炎内側へ移動し、上流から移動してくるスス粒子と出会い凝集するリング状のスス粒子凝集面を火炎内部に形成する。こうして生成したスス粒子は次々とスス粒子凝集面へ集合することになるが、スス粒子凝集面は火炎内部に位置するため温度、および酸素濃度の条件から酸化が進行しにくい。またスス粒子凝集面の流速が小さいため滞留時間が長く、凝集が進行するため、巨大なスス粒子塊生成にまで至る。



以上のようなスス粒子塊生成に関する条件、およびメカニズムをふまえ、火炎外部および内部構造を操作することにより、スス粒子塊生成の制御を試みた。

第7章においては、まず微小重力環境下でスス粒子塊を生成する火炎の外部構造を勾配磁場を与え火炎外部からの酸素供給量を操作することにより変化させた。この結果、輝度が高く火炎体積が小さい火炎となり、スス粒子塊生成は観察されなくなることがわかった。このことより火炎に勾配磁場を与えると、磁気対流によりスス粒子塊生成が抑制されることが明らかになった。

次に、火炎の内部構造を変化させるため、バーナ中心軸周りに回転するバーナを製作し、燃料噴流に回転力を与えてスス粒子塊生成挙動を観察した。その結果、火炎はバーナ回転数の増大とともに横長に広がり、スス粒子塊生成領域は火炎周囲にリング状に分布するのではなく、火炎全体に生成されるようになることがわかった。バーナ回転数が大きくなると、スス粒子塊は火炎内部に引き込まれ、火炎内部で中心がくぼんだすり鉢状の形状を呈して回転することが観察された。この手法を用いることによりスス粒子塊の収集および酸化領域を通過しないススの捕集が可能であることが予想された。

以上要約したように、本論文は微小重力環境下で特徴的に見られるスス粒子塊生成現象をはじめて捉え、その凝集過程を明らかにすることによりスス粒子凝集への重力の影響を明らかにしようとしたものである。ここで得られた知見はスス粒子凝集の基礎特性を示すとともに、通常重力環境下で排出される燃焼生成物に重力の影響が介在していることを示した。このことは通常重力環境下で得られるスス粒子凝集径、数密度などの値に大きな対流の影響を取り除いた状態での議論が必要であることを示唆している。さらには重力の影響が介在しない基礎データを得るこ

とにより、スス生成および成長の正確な理解、スス粒子生成の予測および抑制、さらには工業的な利用など、その波及効果は極めて広く、大きい。

一方、本論文ではスス粒子塊性状の調査をスス粒子塊捕集量が多く得られなかったことから行っておらず、基本スス粒子生成に対する知見は得られていない。これは本研究で行った軸回転バーナのような捕集方法を用い、さらに実験回数を多くすることにより解決されると思われる。また火炎中スス粒子の凝集速度および凝集力の把握には至らなかった。粒子の凝集速度は落下実験装置に搭載可能な小型高性能の光学機器の開発を待たなければならず、凝集力の測定には微小重力環境下でさらに基礎的な実験を行い、データを得る必要がある。

本研究で行った計算は簡易的なものであり、実際の現象に即しているとは必ずしも言い難いため、詳細なシミュレーションによる現象の数値的議論が必要である。

また本論文では基本スス粒子生成への重力の影響については明らかにされていないが、この影響を調べることは重要であり、微小重力環境下の火炎中スス粒子径、スス質量分率などの計測および計測装置の開発が今後望まれる。

本研究では、スス粒子塊生成にサーモフレイシス効果が重要な役割を果たすスス粒子塊生成メカニズムを提案した。しかし、実際にどの程度の力が作用してスス粒子塊生成にどの程度の割合で寄与しているのかを示すには至っていない。このため、このサーモフレイシス効果によるスス粒子凝集面形成モデルの実証についても今後調べられなければならない。

これらの課題が解決されるならば、微小重力環境を用いたスス生成に関する研究により、スス生成についての基本特性が得られ、スス排出特性予測およびその制御法の確立、そして複雑な燃焼機構の解明への寄与が期待される。

終わりに、微小重力環境を利用した燃焼研究は、通常重力環境下では自然対流が介在し、複雑であるが故に困難である燃焼現象の解明に大きく寄与するものであり、最近になって多くの研究が行われるようになってきたが、燃焼の分野全体から見るとまだ十分とはいえない。とくに燃焼生成物に関する研究は極めて少なく、解明されなければならない問題はまだまだ残っているのが現状である。今後、微小重力環境を利用した燃焼現象、とくに燃焼生成物を対象とした研究の大きな進展を期待するとともに、本研究で得られた成果がスス生成機構解明の糸口を切り開いたものと確信する。

## 参考文献

- [1] 栗木, 宇宙環境の利用, 丸善株式会社, (1988), 1.
- [2] 小林ら, 第8回宇宙利用シンポジウム講演前刷集, (1991), 128.
- [3] 谷口・堀込, 最新機械工学シリーズ16 計測工学第2版, 森北出版, (1991), 143.
- [4] 科学技術庁研究開発局 宇宙企画課, 図説宇宙開発新時代, (1989), 82.
- [5] NASA Technical Memorandum 101424, (1989).
- [6] ESA SP-1113, (1989).
- [7] F. A. Williams, Microgravity sci. Tech. III, (1990).
- [8] 新岡, テクノライフ選書, 燃える ろうそくからロケットの燃焼まで, オーム社, (1994), 40.
- [9] 平野, 燃焼学-燃焼現象とその制御-, 海文堂出版, (1991), 72.
- [10] 架谷・木村, 燃焼の基礎と応用, 共立出版, (1988), 54, 243.
- [11] S. Kumagai et al., 6th Symp. (Int.) Combust., (1956), 726.
- [12] S. Kumagai et al., 7th Symp. (Int.) Combust., (1959), 523.
- [13] S. Kumagai et al., 13th Symp. (Int.) Combust., (1970), 779.
- [14] S. Kumagai et al., 15th Symp. (Int.) Combust., (1974), 401.
- [15] S. Kumagai et al., 19th Symp. (Int.) Combust., (1982), 1021.
- [16] S. Okajima et al., Archivum Combustionis, Vol.6 No.1(1986), 51.
- [17] B. Knight et al., Combust. Flame, 38(1980), 111.
- [18] M. Mikami et al., Proc. of the Int. Symp. on Aerospace and Fluid Science, (1993), 290.
- [19] H. Kobayashi et al., Proc. of the Int. Symp. on Aerospace and Fluid Science, (1993), 298.



- [20] M. Tanabe et al., Proc. of Int. Workshop on Short-Term Experiments under Strongly Reduced Gravity Conditions, (1994), 129.
- [21] J. H. Kimzey et al., NASA TR R-246, (1966).
- [22] C. R. Andracchio et al., NASA TM X-3055, (1974).
- [23] J. J. Salva et al., Microgravity Sci. Tech. N/3, (1991).
- [24] S. L. Olson et al., 22nd Symp. (Int.) Combust., (1988), 1213.
- [25] S. L. Olson et al., NASA TM-88970, (1987).
- [26] C. M. Spuckler et al., NASA TM-79303, (1979).
- [27] T. H. Cochran, NASA TN D-6523, (1973).
- [28] T. H. Cochran et al., 13th Symp. (Int.) Combust., (1970), 821.
- [29] T. H. Cochran et al., NASA TN D-7165, (1973).
- [30] R. B. Edelman et al., AIAA 26th Aerospace Sciences Meeting AIAA-88-0645, (1988), 1.
- [31] U. Bonne, Combust. Flame, 16(1971), 147.
- [32] 加藤ら, 日本マイクログラビティ応用学会誌 Vol.10, 4(1993), 334.
- [33] 坂本ら, 日本機械学会第72期全国大会講演論文集(V), (1994), 383.
- [34] 新岡ら, 日本機械学会第72期全国大会講演論文集(V), (1994), 380.
- [35] R. A. Strehlow, Combustion Fundamentals, McGraw-Hill, (1985), 18, 469.
- [36] J. C. Ku et al., Proc. 2nd Int. Microgravity Combustion Workshop, (1992), 1.
- [37] G. M. Faeth, Combust. Flame, 96(1994), 97.

- [38] 津江ら, 日本機械学会第72期全国大会講演論文集(V), (1994), 359.
- [39] G. Prado et al., NATO Conference Ser. N(1981), 145, Plenum Press.
- [40] B. S. Haynes et al., Prog. Energy Combust. Sci., 7(1981), 229.
- [41] C. Wey et al., 20th Symp. (Int.) Combust., (1984), 1017.
- [42] U. Vandsburger et al., Combust. Sci. Tech., 39(1984), 263.
- [43] Ö. L. Gülder, Combust. Flame, 88(1992), 74.
- [44] 大竹・藤原, 燃焼工学, コロナ社, (1988), 186.
- [45] I. Glassman, 22nd Symp. (Int.) Combust., (1988), 295.
- [46] C. F. Cullis et al., 11th Symp. (Int.) Combust., (1967), 391.
- [47] 石田ら, 第29回燃焼シンポジウム, (1991), 535.
- [48] M. Frenklach, Combust. Sci. Tech., 50, 79.
- [49] 定方, 文部省科研費重点領域研究 燃焼機構の解明と制御に関する基礎研究 研究成果論文集, (1992), 241.
- [50] A. Dalessio et al., 15th Symp. (Int.) Combust., (1975), 1427.
- [51] J. B. Howard, 12th Symp. (Int.) Combust., (1969), 877.
- [52] H. Jinno et al., 16th Symp. (Int.) Combust., (1977), 709.
- [53] R. E. Smalley et al., Nature, 318(1985), 162.
- [54] P. H. Gerhardt et al., 22nd Symp. (Int.) Combust., (1988), 395.
- [55] M. Frenklach et al., J. Phys. Chem., 92(1988), 561.
- [56] 幸田, 燃焼研究, 94(1993), 1.
- [57] 池上, 文部省科研費重点領域研究 燃焼機構の解明と制御に関する基礎研究 研究成果論文集, (1992), 225.

- [58] H. B. Palmer, Chemistry and Physics of Carbon, 1, 265.
- [59] M. P. Mengüç et al., Heat Transfer in Fire and Combustion Systems, ASME HTD-Vol.199(1992), 9.
- [60] K. Ito et al., Proc. 18th Int. Symp. Space Tech. Sci., (1992), 2295.
- [61] 伊藤, 宇宙環境利用国際シンポジウム前刷集, (1992), 25.
- [62] G. I. Taylor, Philosophical Magazine, 46(1923), 671.
- [63] T. T. Charamopoulos et al., Combust. Flame, 87(1991), 89.
- [64] レーザ計測ハンドブック編集委員会編, レーザ計測ハンドブック, 丸善, (1993), 267.
- [65] D. Von et al., Proc. 2nd Int. Microgravity. Combust. Workshop, (1992), 105.
- [66] 河野ら, 第26回燃焼シンポジウム前刷集, (1988), 176.
- [67] 西田ら, 日本船舶機関学会誌, 18巻5号, (1983), 401.
- [68] R. A. Dobbins et al., Langmuir, 3(1987), 254.
- [69] 水谷ら, 日本機械学会論文集 (B編) 49巻443号, (1983), 153.
- [70] P. H. Gerhardt et al., Combust. Flame, 81(1990), 289.
- [71] 金原, 気体の燃焼物理, 裳華房, (1985), 65, 255.
- [72] 亀井ら, 第8回宇宙利用シンポジウム, (1991), 396.
- [73] R. M. Fristrom et al., Flame Structure, McGraw-Hill, 118.
- [74] 竹野ら, 文部省科研費重点領域研究 燃焼機構の解明と制御に関する基礎研究 研究成果論文集, (1992), 57.
- [75] T. Hirano et al., 東京大学工学部 未発表資料
- [76] R. J. Santoro et al., Combust. Sci. Tech., 53(1987), 89.
- [77] K. G. Neoh et al., 20th Symp. (Int.) Combust., (1984), 951.
- [78] R. J. Santoro et al., 20th Symp. (Int.) Combust., (1984), 997.
- [79] J. H. Kent et al., 20th Symp. (Int.) Combust., (1984), 1007.

- [80] 谷口ら，日本ガスタービン学会誌，Vol.7 No.27(1979),33.
- [81] W. E. Kaskan, 6th Symp.(Int.) Combust., (1957), 134.
- [82] 伝熱工学資料 第2版，日本機械学会，(1969)，46.
- [83] 豊倉・亀本，流体力学，実教出版，(1987)，80.
- [84] P. J. ローチェ著・高橋亮一他訳，コンピュータによる流体力学  
＜上＞，企画センター，(1978)，158.
- [85] 水谷，燃焼工学，森北出版，(1982)，98，112.
- [86] 日本機械学会編，熱と流れのコンピュータアナリシス，コロナ社
- [87] 高橋，コンピュータによる流体力学＜演習＞，企画センター，(1988)，  
53.
- [88] H. Tsuji et al., 13th Symp. (Int.) Combust., (1971), 723.
- [89] C. Zhang et al., HTD-Vol.199, Heat Transfer in Fire and  
Combustion Systems, ASME (1992), 27.
- [90] N. Wakayama, Combust. Flame, 93(1993), 207.
- [91] 小谷，現代化学，(1994)，45.
- [92] 日本科学会編，第4版 実験科学講座9 電気，磁気，丸善，(1991)
- [93] 多田，新稿物理学概説 下巻，学術図書出版社，(1990),50.
- [94] 久保ら，理化学事典 第4版，岩波書店，(1992)，788.
- [95] 管野，分子科学講座9巻 磁性と分子，共立出版
- [96] 小林ら，燃焼工学-基礎と応用-，理工学社，(1988)，203.
- [97] 小川，渦(うず)学，山海堂，173.
- [98] J. Donnetら著・高橋ら訳，カーボンブラック，(1978)，18.
- [99] 奥谷ら，第1回短時間無重力利用に関する講演会講演集，(1992)，  
5.



## 謝 辞

本論文は、著者が北海道大学大学院工学研究科博士課程に在学中、機械工学科燃焼工学講座において行った研究をとりまとめたものである。この間、多くの方々から暖かい御指導、御協力をいただき、まずここに感謝の意を表する。

とくに伊藤献一教授からは、研究の遂行にあたり、終始懇切なる御教示、御指導をいただき、ここに衷心より感謝の意を表する。また、藤田修助教授からも研究の御指導をいただき、感謝の意を表する次第である。

また、本論文の審査にあたり、副査として機械工学科の工藤一彦教授、宮本登教授、物質工学専攻の石井邦宜教授、エネルギー先端工学研究センター炭素系資源転換反応分野の真田雄三教授より有益なる御指導、御討論を賜り、ここに深く感謝する次第である。そして審査委員として機械工学科の木谷勝教授、岸田路也教授、鍵和田忠夫教授、村山正教授、ならびに機械工学第二学科の野口徹教授より貴重なご指摘、御助言を賜った。また学部生の時より授業等を通じ、多くの御指導をいただいた機械工学科・機械工学第二学科の諸先生にも心から感謝の意を表する。

本研究は新エネルギー産業技術総合開発機構(NEDO)および(財)宇宙環境利用推進センター(JSUP)の推進する国家プロジェクトの一環として行われたものであり、研究機会を与えて下さった関係機関ならびに御担当各位に深く感謝申し上げます。また、地下無重力実験センター(JAMIC)の後藤員雄氏ほかの諸氏には微小重力実験遂行にあたり多大なる御協力をいただき、感謝する次第である。また、電子顕微鏡観察を行うにあたり、北海道大学工学部超高压電子顕微鏡室の望月進技官、菅原健治技官、物質工学専攻の大貫惣明教授、北海道工業大学機械工学科の藤原康博教授

には多大なる御協力、御助言をいただき、感謝の意を表する。

なお、燃焼工学講座の森川多津子助手、田住正弘助手、山根清隆技官には本研究を進めるにあたり数多くの御助言、御協力をいただき、感謝の意を表する。さらに本研究に御協力いただいた小野田昭博氏(現東芝)、家田義也氏(現ウィスコンシン大学)、黒田幸生氏(北海道大学大学院)、そして水野勉氏(北海道大学大学院)、竹内篤史氏(北海道大学)並びに研究室を共にした小口誠氏(現日本自動車研究所)、松本晃一氏(現(株)新日本製鐵)、田中啓一氏(現大阪ガス)、大塚洋氏(現石川島播磨重工業)、広岡久人氏(現トヨタ自動車)をはじめとする燃焼工学講座の諸氏に感謝したい。

最後に、燃焼工学講座の卒業生であり、著者の微小重力実験開始時に研究を共にさせていただいた先輩である樋本清一氏(現(株)富士電機)に、そして著者の研究活動を暖かく見守ってくれた両親に対し心よりの感謝を捧げる。