

■原著論文/ORIGINAL PAPER■

すすの熱泳動挙動の予測手法に関する研究

Estimation Method of Thermophoretic Behavior of Soot

鈴木 佐夜香^{1*}・桑名 一徳²・土橋 律¹SUZUKI, Sayaka^{1*}, KUWANA, Kazunori², and DOBASHI, Ritsu¹¹ 東京大学大学院工学系研究科 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1
The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo, Tokyo 113-8656, Japan² 山形大学大学院理工学研究科 〒992-8510 山形県米沢市城南 4-3-16
Yamagata University, 4-3-16 Jyonan, Yonezawa, Yamagata 992-8510, Japan

2009年7月24日受付; 2009年8月24日受理/Received 24 July, 2009; Accepted 24 August, 2009

Abstract : Soot is a very small particle formed near a combustion field, where a very steep temperature gradient exists. It is important for appropriate control of combustion devices to understand the behavior of soot particles in combustion fields. In this study, the behavior of each soot particle under temperature gradient is observed in order to reveal the thermophoretic behavior of soot particle. The relationship between the morphological character and the measured thermophoretic velocities of soot particles was examined quantitatively. Then, the method to estimate the behavior of soot particle induced by thermophoresis was examined. The dimensionless density, the ratio of the bulk density to the true density, was suggested as one of the morphological character of soot particle. It was found that the relationship between the thermophoretic coefficient, K_{th} , and the dimensionless density is a first-order negative correlation especially when the size of primary particle is less than 50nm. It was found that the thermophoretic velocity becomes slower as the dimensionless density becomes greater, that is, the aggregated particles are of a closed structure. The thermophoretic coefficient approached an asymptotic value, $K_{th} = 0.53$, which is almost same as the value for the particles in free molecule regime, as the dimensionless density becomes smaller. These results enable to estimate the thermophoretic velocity from the dimensionless density of the aggregated particles. This will be useful for the appropriate estimation and control of soot particle near a combustion field and the development of combustion devices.

Key Words : Thermophoresis, Thermophoretic velocity, Particle morphology, Soot, Aggregate

1. 緒言

温度勾配のある場に微小な粒子が存在する場合、粒子は低温側に向かう力を受け移動する。この現象を熱泳動(thermophoresis)という。この現象は、粒子のサイズが非常に小さい時など粒子に対して周囲の気体が連続気体とみなせなくなる場合(希薄気体の状態)に生じる。粒子が高温側の気体から受ける運動量が低温側の気体から受ける運動量よりも大きくなり、力が働く。この力を熱泳動力といい、熱泳動により移動する粒子の終端速度を熱泳動速度という。温度勾配のある場で微小な粒子を扱う際には、粒子に働く熱泳動効果は無視できなくなる。熱泳動の効果は、以下にあげるさまざまな場面で現実に見られる。

- ・すすなどの微粒子を含む燃焼ガスにガスと比較して温度の低いタービン翼や熱交換器側面が接しているとき、微粒子はそのタービン翼や壁面に向かって移動するため、すすの堆積が促進され装置の効率低下を招く[1,2].
- ・CVD装置では、高温の気相から基板への堆積速度を増大させる効果が確認されている[3].
- ・火炎中ですす粒子をサンプリングする方法として、火炎中に挿入した低温物体に、熱泳動により堆積させて収集する方法が用いられている[4].
- ・すすは、大きな温度勾配が存在する燃焼場近傍で生成されるため、火炎でのすすの生成過程には、熱泳動が影響する[5-11].

上述の例にもあるように特にすすは、その一次粒子のサイズが非常に小さく、大きな温度勾配のある燃焼場近傍で生成されるため、すすの発生、成長においては熱泳動効果

* Corresponding author. E-mail: ssuzuki@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp

が大きな影響をもつ。これまでの研究[4-11]でも温度勾配のある場でのすす粒子の移動では熱泳動の大きさが無視できないほど大きいことが指摘されている。産業現場においても、すす粒子の発生は燃焼器等の機器において問題となっている。熱泳動現象によってすす粒子の機器への堆積が促進される現象が起り、これは機器の動作効率の低下に直接結びつくことから、すす粒子の熱泳動挙動を把握し適切に対応する必要があると考えられる。

熱泳動現象は、粒子と周囲の気体の様々な要因によって変化し、その解明のためには、各々の要因の影響を明らかにすることが必要である。球形粒子に関してはその粒子のサイズが粒子の熱泳動挙動を決める特性値となることが知られており、サイズの影響は Knudsen 数, Kn と呼ばれる無次元数によって整理できることが研究されている[12-18]。Knudsen 数とは気体の平均自由行程 λ と粒子の代表径 R の比, λ/R で定義され、気体の希薄の程度を表している。Knudsen 数が 0.01 より小さい領域は連続領域と呼ばれ、この領域では圧力が定義できるため熱泳動力はほとんど発生しない。0.01 から 1 までの領域は遷移領域、1 から 10 までの領域はすべり流れ領域と呼ばれており、実験的あるいは理論的に様々な解析がなされている[12,13]。Knudsen 数が 10 より大きくなると自由分子流れ領域と呼ばれ熱泳動の影響が最も大きくなる。この領域での熱泳動の効果は Waldmann により理論的に定式化されており、その結果は実験的にもよく合うことが知られている[14]。すす粒子に関しては、微小な一次粒子が凝集した凝集体であり、一次粒子サイズ (数十 nm) は自由分子流れ領域に相当し、凝集体の全体サイズ (μm オーダー) はほぼ遷移領域に相当する。そのため、すす粒子の特性サイズをどのように定義すべきか決めることが難しく、すす粒子の熱泳動挙動の正確な予測が困難になっている。これまでも熱泳動現象によるすす粒子の堆積に関する研究はおこなわれてきたが、これらの研究では個々のすす粒子の挙動や個々のすす粒子が受ける熱泳動効果についての測定はおこなわれておらず、低温壁面に堆積していくすす粒子の堆積量を計測したものがほとんどである[19-21]。堆積量のデータは、すすの堆積の影響を直接示す量としては有用であるが、堆積は、粒子の形態や流れ場、温度分布などにより総合的に決まってくる現象であり、結果として決まってくる堆積量のみを測定しても、個々の要因の影響を明確にしなければ、他の条件における堆積量の予測に応用するのは困難である。任意の条件でのすす粒子の堆積に関する的確に評価するためには、個々の粒子に働く熱泳動の効果と各条件への依存性について系統的に計測し、得られたデータを利用してすす粒子の堆積を評価する手法を構築することが重要になってくると考えられる。

そこで本研究では、制御された場の中で、特性の明らかなすす粒子 (カーボンブラック) の熱泳動による挙動を個々の粒子について計測した。凝集体であるすす粒子の形態と熱泳動速度との関係を定量的に評価し、その結果を用いて

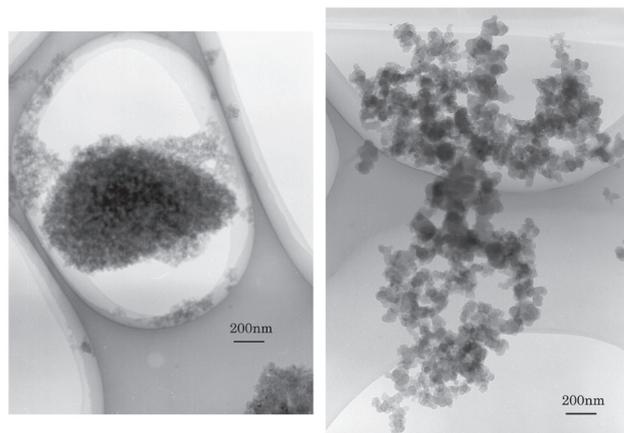


Fig.1 TEM Pictures of Samples (Left: #900, Right: MA600)

熱泳動によるすす粒子の挙動を定量的に予測する方法を提案した。

2. 実験装置および実験方法

本研究ではすす粒子の熱泳動挙動の予測を可能とするため、すす粒子の性質と熱泳動挙動の実験により定量的に明らかにした。すす粒子の熱泳動に関与する性質は、幾何学的構造で代表できると考えられるので、凝集体の幾何学的構造を系統的に変化させて熱泳動速度を測定することにより、熱泳動現象に及ぼす影響を定量的に検討した。

2.1. 試料

試料粒子の性質のばらつきを抑え、再現性の良いデータを収集するために、燃焼場で発生するすす粒子そのものではなく、工業的に一定品質で製造されているカーボンブラック 20 種を試料として用いた。これらの粒子は一次粒子径と凝集の構造が違うものを採用し、熱泳動速度との関連を系統的に検討することとした。Figure 1 に試料の電子顕微鏡による拡大写真を示す。試料は、数十 nm の微小な一次粒子が凝集した構造をしており、凝集体全体のサイズ (この論文では凝集体サイズと呼ぶ) は数十 μm 程度となっている。また、実際に使用したサンプルの一次粒子はほぼ球状であり、その粒径はほぼ一定 (ばらつきは数パーセント以下) であることが確認された。各試料の幾何学的構造を表す特性値を Table 1 に示す。

表中のかさ密度は、一定体積の容器に充填して測定したバルクの密度であり、凝集体であるすす粒子の全体的な凝集の程度を示すものと考えらる。今回の試料では、かさ密度は真密度に対して 1/10 程度であり、比較的隙間の多い凝集体構造をしていることがわかる。またグラファイトの結晶構造を持つ炭素は通常真密度が 1.8 程度であることが知られているが、今回の試料では真密度は一定ではなく多少の変化がある。そのため、真密度の影響を排除するためにかさ密度を真密度で割った無次元密度を凝集の程度を示す

Table 1 Characteristic properties of samples

No.	Size of primary particle (nm)	Bulk density (g/cc)	True density (g/cc)	Dimensionless density (Bulk density/True density)
#30	30	0.13	1.81	0.072
#33	30	0.16	1.81	0.088
#40	24	0.14	1.79	0.078
#44	24	0.18	1.81	0.10
#45	24	0.19	1.81	0.10
#970	16	0.15	1.77	0.085
#900	16	0.20	1.69	0.12
MA600	20	0.11	1.79	0.061
285	26	0.13	1.81	0.072
235	78	0.26	1.87	0.14
215	80	0.28	1.87	0.15
#7550F	21	0.17	1.81	0.094
#7350F	28	0.10	1.80	0.056
#7100F	42	0.10	1.84	0.054
#10	75	0.13	1.82	0.072
#20	50	0.11	1.82	0.061
#260	40	0.13	1.81	0.072
samal	80	0.22	1.80	0.12
SB305	18	0.28	1.85	0.15
605	25	0.06	1.73	0.035

代表値として用いることにした。燃焼場に存在する実際のすす粒子は、すすの生成条件の違いや生成・成長の進行度に応じて様々な幾何学的構造をとるものが存在すると考えられるが、特性値が広範囲にわたる今回の試料を用いることで、実際のすす粒子の挙動予測に有効なデータの収集が期待できる。なお、凝集体サイズは同一種類のサンプルでも一定ではなく種々のサイズが含まれるため、熱泳動速度の計測時に個々のすす粒子の凝集体サイズを同時計測した。

2.2. 実験装置

実験装置の概要図を Fig.2 に示す。実験は温度の異なる2枚のアルミ製板の隙間に温度勾配のある測定場を形成し行った。低温側の板 (90 mm×90 mm×20 mm) は室温のまま

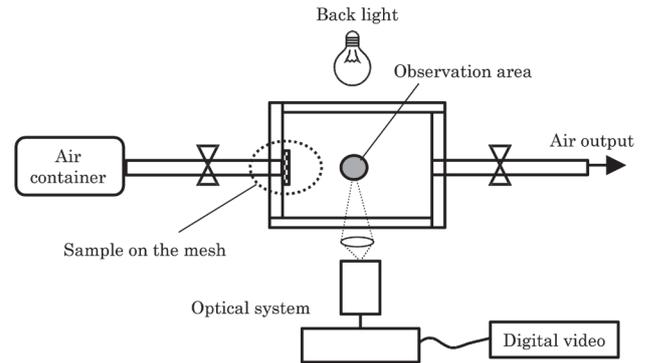


Fig.2 Experimental apparatus

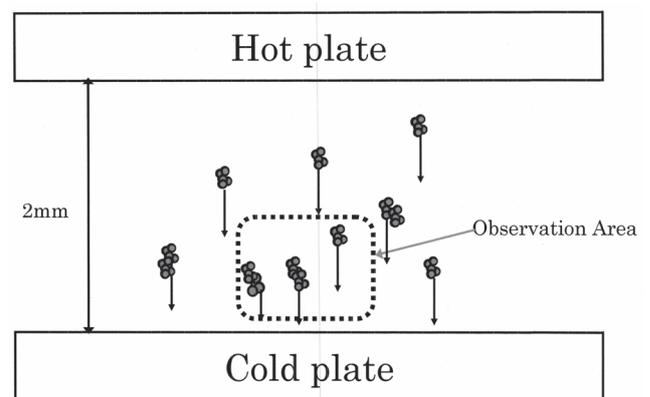


Fig.3 Schematic drawing of observation area

とし、高温側の板 (90 mm×90 mm×30 mm) を加熱した。2枚の板は、高温側の板を上にして水平平行に設置し、間にスペーサーを入れて間隔を 2mm とした。その際温度勾配は、測定場の中の2点の高さの異なる場所の温度を熱電対で測定することによって計測した。この実験装置の測定場においては、温度分布がほぼ直線的となり、温度勾配はほぼ一定値となることが確認されている[22,23]。高温板を低温板の上方に設置する事により、通常重力場で行う本実験に関して温度勾配を形成した際に測定場に発生する自然対流を抑制している。さらに、2枚の板の間隔に対して板の面積を充分広く設定する事によって、自然対流による場の乱れを抑制するだけでなく、カーボンブラック導入による温度場及び速度場の乱れを短時間で安定させている。さらに、板の隙間をガラス板で囲み密閉し対流の影響を低減した。このような装置を用いることで、温度勾配が 60 K/mm 程度以下の場合であれば通常重力場でも自然対流の発生が十分抑制され、熱泳動現象の精度の高い測定が可能であることが確認されている[24]。試料粒子のカーボンブラックは、空気中に分散し、気流とともに測定場に導入した。導入には空気ポンプを用いて圧力差により導入した。その際のポンプの圧力は 0.3 MPa に保ち、測定場に導入されたカーボンブラックを、後方に照明を設置した状態で顕微鏡光学系により撮影し、デジタルビデオに録画することに

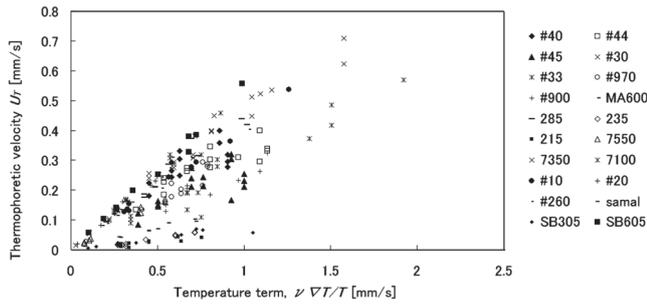


Fig.4(a) Thermophoretic velocities

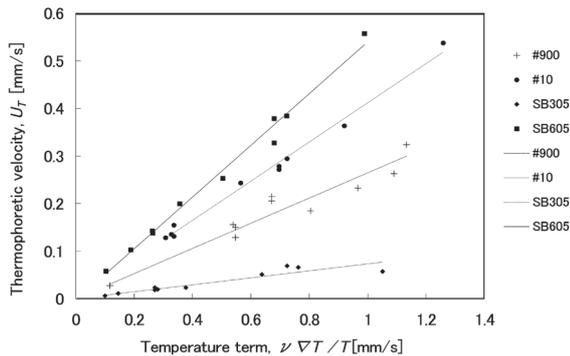


Fig.4(b) Proportional relationship between thermophoretic velocities and temperature term

よって、カーボンブラックの挙動を記録した。顕微鏡光学系を用いて粒子の挙動を拡大観察することにより、すずの凝集体サイズと熱泳動速度を同時に測定することを可能としている (Fig.3)。拡大観察では、測定場における粒子のサイズと挙動を 225~300 倍に拡大して観察した。観察系の空間分解能は 3~4 μm 程度である。

今回の実験は、重力のある場でおこなったため、粒子速度の測定値には重力による落下速度も含まれることになる。そこで、温度勾配を有する場合の測定値から温度勾配がない場合における重力のみによる終端落下速度を差し引いて熱泳動速度とした。温度勾配がない場合における粒子の終端落下速度の測定をまずおこなった。顕微鏡光学系による測定の結果、導入された粒子の凝集体サイズは数 μm ~ 200 μm 程度に分布することがわかった。終端落下速度は凝集体サイズに依存して変化するが、その値は、サイズが決まればほぼ一意的に定まるため、このデータを用いて熱泳動速度の算出が可能である。

3. 実験結果および考察

前述した試料 (Table 1) を用い、温度勾配 0.42~26.3 K/mm の条件において熱泳動速度と凝集体サイズの同時測定の実験をおこなった。熱泳動速度の全試料についての測定結果を Fig.4 に示す。同じ試料番号の試料を使用した実験でも、種々の凝集体サイズの粒子が存在しているが、図で

はそれらを区別せずに全てプロットしている。熱泳動速度は一般的に温度に関する項 $\nu \nabla T / T$ に比例することが知られている [14,25] ため、図では $\nu \nabla T / T$ に対して熱泳動速度の測定値をプロットした。この比例関係を式で書くと以下のように表される。

$$U_T = -K_{th} \cdot \frac{\nu \nabla T}{T} \quad (1)$$

ここで U_T は熱泳動速度、 ν は空気の動粘性係数、 K_{th} は熱泳動係数である。熱泳動係数 K_{th} に関しては、遷移領域の条件では粒子サイズや材質により K_{th} は様々な値をとることが知られている。また、凝集体であるすず粒子では、前述したように一次粒子サイズは自由分子流れ領域に相当し、凝集体の全体サイズはほぼ遷移領域に相当することとなるが、燃焼場で生成されるすず粒子の熱泳動挙動に関しては $K_{th} = 0.55$ とすると実測値と比較的合うという研究結果が報告されている [26]。

Figure 4(a) より、それぞれの試料について、ほぼ比例関係があり (図上で原点を通る直線に乗る)、その直線の傾きは粒子の種類によって異なることが分かる。温度に関する項と熱泳動速度の関係に関して比例関係をより分かりやすく示すためにいくつかのサンプル (#900, #10, SB305, SB605) に関してその近似直線を Fig.4(b) に示した。前述したように、同一試料番号でも種々の凝集体サイズのデータが混在しているが、それでもほぼ直線に乗っている点も注目される。また尾野ら [27] は、すず粒子の熱泳動速度はすず粒子の構造、特に空隙率の大きさに依存し、空隙率が大きい場合には自由分子流れ領域 (粒子径が気体の平均自由行程に比べて十分小さい場合) について適用される Waldmann が提案した理論式 ((2) 式) にほぼ従うことを報告している。

$$U_T = -\frac{3\nu}{4(1 + \frac{\pi}{8}\alpha_m)} \cdot \frac{\nabla T}{T} \quad (2)$$

ここに、 α_m は運動量に関する適応係数である。 α_m は 0 から 1 の値を取り、通常熱泳動現象における計算では $\alpha_m = 1$ 程度の値となることが知られている。このとき $K_{th} = 0.53$ となる。

Figure 4 中で測定値の点と原点とを結ぶ直線の傾きが K_{th} に相当する。測定した熱泳動速度の結果をもとに熱泳動係数 K_{th} を計算し、結果を Fig.5 に示した。Figure 5 においては、算出した K_{th} を試料別に分け、凝集体サイズに対してプロットした。その結果、 K_{th} は同一試料に対しては凝集体サイズによらずほぼ一定であり、その値は試料ごとに 0.011~0.56 の範囲の値をとることがわかった。

今回の試料は微小な一次粒子の凝集体であるため、その熱泳動挙動は、凝集の状況、とりわけ凝集の粗密さ (凝集の程度) に依存すると考えられる。凝集の程度は、無次元密度により表されると考えられる。無次元密度が大きくなると言うことは真密度に対してかさ密度が大きくなると言

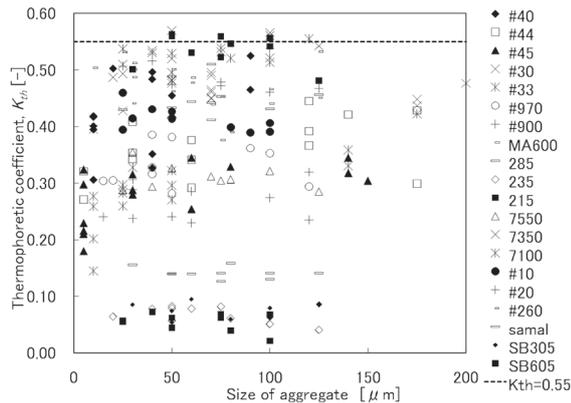


Fig.5 Thermophoretic coefficient

うことであり、これは全体的により隙間の少ない、密に凝集した構造をとることを示す。逆に無次元密度が小さくなると言うことは、隙間の多い粗な凝集構造をとることを示す。粒子の凝集の程度を示す無次元密度と、熱泳動速度の大きさを示す K_{th} の関係を Fig. 6 に示した。Figure 6 より、無次元密度が大きくなると K_{th} が小さくなるという関係が見られた。さらに、その関係は実験した試料の範囲においてほぼ一つの線上にのっており、すなわち、凝集体の無次元密度が決まれば熱泳動速度が一意的に定まることを示している。

また、無次元密度が 0.05 程度以下まで小さくなるとほぼ一定となることもわかる。熱泳動挙動は粒子と周囲気体との相互作用により決定されるが、数十 nm の微小な一次粒子の凝集体ということを考慮すると、無次元密度が小さく凝集が粗である場合には一次粒子のスケールでの熱泳動作用の影響が強くなる、すなわち自由分子流れ領域の挙動に近づくと考えられる。一方、無次元密度が大きく凝集が密である場合には、周囲気体との相互作用においては、一次粒子のスケールの構造よりも凝集体全体のスケールが支配的、すなわち希薄の程度が小さくなり、熱泳動速度は小さくなってくると考えられる。無次元密度が 0.05 程度より小さくなると K_{th} は 0.54 程度の値に漸近しているが、この値は自由分子流れ領域の粒子での値である 0.53 とほぼ等しく、無次元密度が 0.05 程度以下になると、凝集体においてもその熱泳動挙動は自由分子流れ領域の挙動と同様となること分かる。

凝集体の熱泳動挙動が無次元密度で整理できるという Fig.6 で得られた結果は、一次粒子のスケールが自由分子流れ領域に入る程度に小さい条件の下で成立しており、一次粒子のスケールが大きくなると、今回得られた一意的な関係から外れてくると予想される。すなわち、今回得られた関係には、適用限界があると考えられ、その点について検討した。今回の試料では、一次粒子径が 16~80 nm に分布しており、特に一次粒子径の大きい (75~80 nm) 試料での測定値を Fig.6 中で中抜きマークにより示した。中抜きのマーク (Δ) で示した測定値は、例外なく他の測定値より

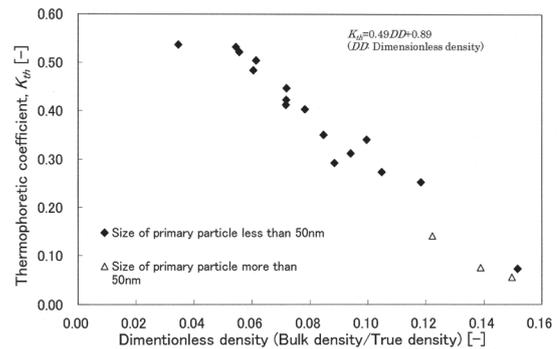


Fig.6 Dimensionless density

K_{th} の値が小さくなっていることが分かる。これより、今回の関係を用いて K_{th} を精度良く予想するためには、一次粒子径が常圧では、50 nm 程度以下の場合に適用すべきであるといえる。燃焼場に存在するすす粒子を考えると、その一次粒子径はおおむね 50 nm 以下であり、今回得られた関係がそのまま適用できるものと考えられる。

前述したように燃焼場での熱泳動によるすす粒子の堆積を検討した既往の研究では、 $K_{th} = 0.55$ という値が得られている[26]が、今回の Fig.6 から考えると、既往の研究で測定したすす粒子は凝集度が低いものであったと考えられる。既往の研究では、すす粒子の壁面への堆積量を測定することで間接的に熱泳動速度を算出し、 K_{th} の値を計算していたが、今回の研究では個々の粒子の熱泳動速度を直接測定して K_{th} の値を算出している。これにより、熱泳動に及ぼす粒子の形状の影響が初めて明らかになり、さらにすす粒子の無次元密度から熱泳動係数を推算することを可能とした。

4. 粒子の熱泳動による挙動の評価

上述のようにすす粒子の熱泳動挙動は、凝集の程度に強く依存し、凝集の程度を表す無次元密度が決まればほぼ一意的にその熱泳動係数を推算できることがわかった。これはすすの発生や堆積が問題となる燃焼装置やプロセスの設計や運転において大変有用な予測手法となると考えられる。そこで実際の温度勾配を有する場を想定してケーススタディをおこない熱泳動効果を考慮したすす粒子の挙動の予測について実例を示す。

4.1. ケーススタディ 1

火災近傍での、すす粒子に及ぼす熱泳動効果の影響に関して検討を行った。円筒形トレイに蓄えられた液体燃料の液面上に形成される火炎 (プール燃焼火炎) は、定期的に火炎に突起部を発生しながら燃焼する。この突起部が成長する瞬間の突起部下部の火炎付近では、上昇気流の影響が弱まり気流の鉛直方向の速度成分が小さくなる。この時、火炎付近を移動しているすす粒子に働く熱泳動効果により誘起される速度が、気流速度に対して相対的に大きくなり、

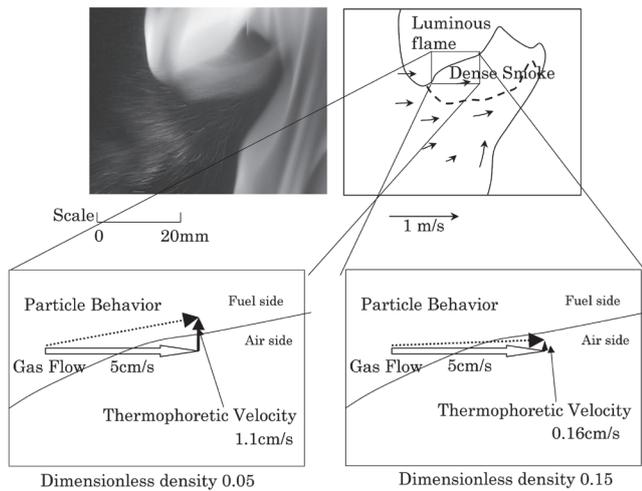


Fig.7 Relationship between gas flow and thermophoretic effect [8]

Table 2 Estimated thermophoretic velocity

Dimensionless density	0.05	0.1	0.15
Thermophoretic coefficient	0.55	0.34	0.075
Thermophoretic velocity: Fuel side (mm/s)	11.72	7.25	1.60

熱泳動による影響が顕著となる。これにより、すすの成長が促進され非常に濃い煙が生成されることが実験により確認されている[8]。Particle tracking 法により突起部が成長する時の火炎近傍の気流を観測すると、Fig.7のように、上昇気流の影響が弱まり気流はほぼ水平方向に流れている。すすは、火炎の燃料側で生成し成長することが知られているが、成長中のすす粒子が流れによって移動し燃料側から火炎面に近づいていった場合、火炎面近傍では大きな温度勾配が存在するため、すす粒子は火炎面と反対方向に熱泳動力を受け進行方向を変えながら移動することとなる。実際にどの程度すす粒子の移動方向が変化するかについて推算を試みた。火炎面近傍の燃料側にすす粒子が存在するとし、その場所の温度を 1300 K、温度勾配を 200 K/mm と仮定した[28]。この条件におけるすす粒子が呈する熱泳動速度は(1)式を用いて計算できる。計算には熱泳動係数 K_{th} の値が必要になるが、すす粒子として 3 種類の異なる無次元密度 0.15, 0.10, 0.05 を持つものを仮定し、Fig.6 を用いて K_{th} の値を決定した。計算結果を Table 2 に示す。

推算した熱泳動速度ベクトルを Fig.7 に書き込むことにより、粒子の挙動に与える熱泳動の影響が確認できる(無次元密度が 0.15 と 0.05 の場合について記入した)。この図より、熱泳動の効果が無ければすぐに火炎に突入し消耗するはずのすす粒子が、熱泳動の効果のためにより長い時間火炎近傍を移動することとなることが分かる。長い時間火炎近傍に滞在することは、すす粒子の成長を促進するため、

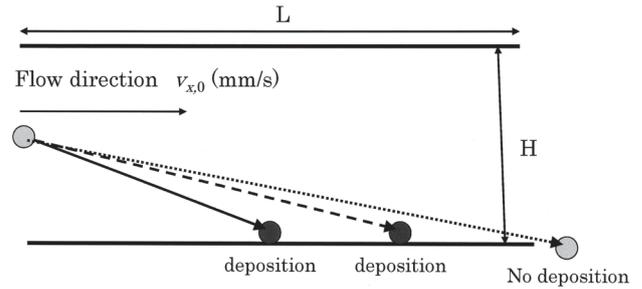


Fig.8 Schematic drawing of experimental setting

熱泳動の影響がこのプール燃焼火炎で観察されている濃い煙の発生の一因になっていることが本ケーススタディから考察できる。

4.2. ケーススタディ 2

すすの堆積に関しては、熱泳動によるすす粒子の挙動を考慮して堆積効率 ϵ_{th} を以下の式(3)を用いて評価する方法が Tsai ら[29]により提案されている。

$$\epsilon_{th} = \frac{U_T L}{v_{x,0} H} = K_{th} \frac{Lv\sqrt{T}}{v_{x,0} HT} = K_{th} \frac{Lv\Delta T}{v_{x,0} H^2 T} \quad (3)$$

ここで $v_{x,0}$ は x 軸方向の粒子の導入速度、 L は堆積壁面の長さ、 H は流路の幅、 ΔT は流路の幅 H における温度の差である。この式では、Fig.8 に示す流路中で、気流に乗って移動するすす粒子が熱泳動の効果により移動方向を変える状況を計算している。流路に入った粒子のうち、流路を通過するものと、壁面に衝突し堆積するものが出てくるが、衝突し堆積することになる粒子の比率を計算することで堆積効率 ϵ_{th} を求めている。すす粒子の速度の x 軸方向成分は流入する流れの速度、 y 軸方向成分は熱泳動速度として計算しており、これらの速度には平均値を用いている。すなわち、粒子は直線的に移動することとして堆積効率 ϵ_{th} を推算していることになる。

燃焼場近傍では温度勾配が数百 K/mm にもなるため堆積効率が大きくなると考えられる。また、すす粒子の熱泳動係数の違いにより堆積効率が変化する。すなわち、熱泳動係数の小さいものは熱泳動の影響を受けにくく、管内に堆積する前に管そのものを抜けてしまうものが多いために堆積効率が低くなる。一方で熱泳動係数が大きいものは熱泳動の影響を受けやすく、堆積が促進され堆積効率が大きくなる。

温度勾配を有する流路中でのすす粒子の堆積挙動について、いくつかの実際の場の条件を設定して計算するケーススタディをおこなった。 K_{th} の値は、すす粒子の無次元密度から K_{th} の値が一意的に決まるという今回の結果(Fig.6)を用いて算出した。今回の計算では、無次元密度は 0.15, 0.10, 0.05 の 3 種類とし、温度勾配 $\sqrt{T} = 100$ K/mm, 平均温度 $T = 1000$ K とした。この条件で流路の長さ L と幅、導入速度を変化させて無次元密度との関連を算出した。

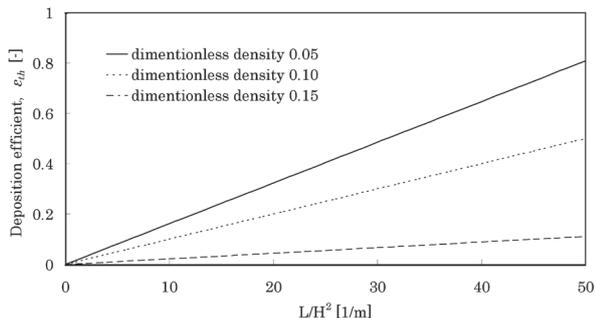


Fig.9 Dependence on pipe length and width

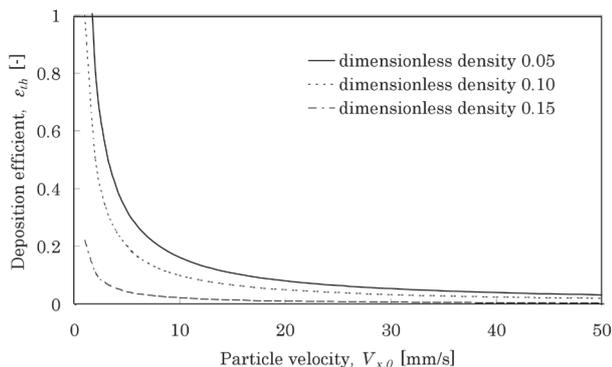


Fig.10 Dependence on particle velocity

まず流路の長さと同幅への依存を確認した (Fig.9). 無次元密度 0.05 の粒子では L/H^2 がおよそ 50 になると 80 % 堆積してしまうが、その一方で無次元密度 0.15 の粒子では L/H^2 がおよそ 45 にならなくては堆積効率は 10 % を超えないこともわかりその無次元密度の大きさは堆積効率に大きく影響を与えることがわかった。

次に粒子の導入速度が堆積にどのような影響を与えるかについて調べた (Fig.10). 導入速度が非常に小さい (無次元密度 0.05, 0.10 で導入速度 1.0 mm/s の時) と堆積効率は 1 を超え、すなわち全てが堆積することになる。導入速度が大きくなるにつれて堆積効率は下がっていき、無次元密度 0.05 ではおよそ 17 mm/s の時、無次元密度 0.10 では 10 mm/s の時、無次元密度 0.15 では 3 mm/s の時堆積効率 10 % 未満となることがわかる。

以上のケーススタディで、すす粒子の無次元密度からその熱泳動係数を求め、堆積効率を算出する実例を示した。これより、無次元密度と熱泳動係数の関係を明らかにした今回の研究結果が、燃焼装置等でのすす粒子の堆積効率を評価し、装置の最適制御や設計に応用できる工学的に有用な知見であることが分かった。

ここで流路内の条件について考えてみると、温度勾配があるため流路内の温度には分布があり、また現実には流速や温度勾配にも分布があると考えられる。したがって、厳密な予測をするためには、すす粒子に働く力 (熱泳動力、流体抵抗力、重力等) を数え上げ、運動方程式を解くこと

により粒子の挙動を求めるべきである。しかしながら、特に微小な凝集体であるすす粒子に働く流体抵抗力は、その大きさを規定するのが困難であるとともに、凝集体の大きさごとに異なってくるため、計算は非常に煩雑となり、工学的な見積もり手法としてはあまり現実的な方法とは言えない。式 (3) を用いて、温度や温度勾配は平均値を場の代表値として用いたここで示した方法は実用的な推算手法であると考えられる。また、熱泳動係数が無次元密度のみから推定できるという本研究の結果は、個々のすす粒子の大きさや流体抵抗力を考慮せずに粒子の挙動を推算することができるという意味で非常に有用であることが分かる。

5. 結言

本研究では、すす粒子の熱泳動挙動を解明するため、制御された測定場の中で特性の明らかなすす粒子 (カーボンブラック) の熱泳動による挙動を個々の粒子について測定した。凝集体であるすす粒子の形態と熱泳動速度との関係を定量的に評価し、その結果を用いて熱泳動によるすす粒子の挙動を定量的に予測する方法を検討した。

結果として、熱泳動挙動の特性値である熱泳動係数が凝集体の凝集の程度 (粗密さ) に強く依存することがわかった。さらに、凝集の程度に関してかさ密度を真密度で割った無次元密度を指標として整理できることを明らかにした。特に一次粒子径が 50 nm 以下の場合には無次元密度と熱泳動係数にはほぼ一意的な関係があり、すす粒子の無次元密度から熱泳動係数を定量的に推定できることを見いだした。すなわち、すす粒子の熱泳動において凝集体の凝集の程度と熱泳動係数の定量的関係について初めて明らかにすることができた。具体的には無次元密度が小さくなると、すなわち隙間の多い凝集体構造になると、熱泳動係数は大きくなり、最終的に 0.53 に漸近する。この値は、自由分子流れ領域における粒子の熱泳動挙動とほぼ一致している。

上述の推定方法を用いたケーススタディとして、実際の燃焼場における熱泳動の影響を検討した。燃焼場近傍での粒子の挙動を定量的に評価し、熱泳動力が粒子の挙動に大きな影響を及ぼすことを確認した。また、すすの堆積効率の見積もりへの応用についての実例も示した。本研究結果は、燃焼装置等の最適制御や設計にも応用できる工学的に有用な知見であるといえる。

謝辞

本研究は文部科学省グローバル COE プログラム (理工連携による化学イノベーション) の支援を受けた。また、本研究の一部は、文部科学省の支援を受け、東京大学「超微細リソグラフィー・ナノ計測拠点」において実施された。ここに感謝を記す。

References

1. Goren, S. L., *J. Colloid and Interface Sci.* 61:77-85 (1977).
2. Rosner, D. E., and Seshadri, K., *Proc. Comb. Inst.* 18:1385-1394 (1981).
3. Morse, T. F., and Cipolla, Jr., J. W., *J. Colloid and Interface Sci.* 97:137-148 (1984).
4. Dobbins, R. A., and Megaridis, C. M., *Langmuir* 3:254-259 (1987).
5. Fujita, O., Iguchi, S., Takeuchi, A., and Ito, K., *Proc. Thirty-Fourth Symp. (Jpn.) Combust. (in Japanese)*, 517-519 (1996).
6. Fujita, O., and Takeshita, Y., *The Fourth International Microgravity Combustion Workshop*: 217-222 (1997).
7. Ito, K., and Fujita, O. *Nensho-Kenkyu*, 125:21-31 (2001).
8. Dobashi, R., Kong, Z.-W., Toda, A., Takahashi, N., Suzuki, M., and Hirano, T., *Fire Safety Science - Proceedings of the Sixth International Symposium*: 255-264 (2000).
9. Shaw, B. D., Dryer, F. L., Williams, F. A., and Haggard, J. B. Jr., *Acta Astronautica* 17:1195-1202 (1988).
10. Lee, K.-O., Manzello, S. L., and Choi, M. Y., *Combust. Sci. and Tech.* 132:139-156 (1998).
11. Manzello, S. L., Choi, M. Y., Kazakov, A., Dryer, F. L., Dobashi, R., and Hirano, T., *Proc. Comb. Inst.* 28:1079-1086 (2000).
12. Derjaguin, B. V., and Yalamov, Y., *J. Colloid Sci.* 20:555-570 (1965).
13. Brock, J. R., *J. Colloid Sci.* 17:768-780 (1962).
14. Waldmann, L., *Z. Naturforschung* 14a:589-599 (1959).
15. Suzuki, S., and Dobashi, R., 20th ICDERS Paper No.205 (2005).
16. Suzuki, S., and Dobashi, R., 21st ICDERS Paper No.239 (2007).
17. Maruko, K., Iwahara, K., Suzuki, M., and Masuda, W., *Proc. Forty-Fifth Symp. (Jpn.) Combust. (in Japanese)*, 238-239 (2007).
18. Hamamoto, M., Suzuki, M., and Masuda, W., *Proc. Forty-Sixth Symp. (Jpn.) Combust. (in Japanese)*, 90-91 (2008).
19. Eisner, A. D., and Rosner, D. E., *Combust. Flame* 61:153-166 (1985).
20. Eisner, A. D., and Rosner, D. E., *J. PhysicoChemical Hydrodynamics* 7:91-100 (1986).
21. Mackel, D. B., and Kennedy, I. M., *Proc. International Combustion Symposium* 23:1551-1557 (1991).
22. Toda, A., Ohi, Y., Dobashi, R., Hirano, T., and Sakuraya, T., *J. Chem. Phys.* 105, 7083-7087 (1996).
23. Dobashi, R., Ohi, Y., Toda, A. and Hirano, T. *Journal of the Society of Powder Technology Japan (in Japanese)*, 36(1), 4-9 (1999).
24. Ohi, Y., Toda, A., Dobashi, R., and Hirano, T., *Proc. of 9th Int. Symp. on Transport Phenomena in Thermal-Fluids Eng.*, 1, 286-290 (1996).
25. Waldmann, L., *Academic Press Inc.* 323-344. (1961).
26. Waldmann, L. Z., and Schmitt, K. H., In: C. N. Davies (Ed.). *Aerosol science. London: Academic Press.* (1966).
27. Ono, H., Dobashi, R., Hirano, T., and Sakuraya, T., *Proc. Comb. Inst.*, 29, 2375-2382 (2002).
28. Pagni, P. J., and Okoh, C. I., *The Twentieth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, Pa., 1045-1054 (1984).
29. Tsai, C.-J., & Lu, H.-C., *Aerosol Science and Technology*, 22, 172-180 (1995).