火炎中におけるすす粒子の存在形態と光学的性質*
(第2報)水谷幸夫^{*1}, 大浦康二^{*2}Morphology of Soot Particles in a Flame and Their Optical Properties
(2nd Report)

Yukio MIZUTANI and Kohji OURA

A method to estimate the primary spherical particle number (PSPN) distribution pattern and average volume-equivalent diameter of soot aggregates suspended in a rich ethylene-air premixed flame was developed, where TEM data such as the primary spherical particle diameter, the fractal dimension and PSPN distribution pattern of soot aggregate specimens collected on a sheetmesh were combined with optical data such as the dissymmetry ratio in differential scattering intensity. The growth of soot particles along the central stream line was observed, and the effects of the complex refractive index were examined. The growth of soot particles mainly occurred through the aggregation of primary spherical particles, whereas the growth of the primary particles themselves was very slow. The fractal dimension and the PSPN distribution pattern of aggregates were kept almost constant during the growth process. The complex refractive index had only the secondary effects as compared with the effects of the fractal shape and PSPN distribution pattern of soot aggregates.

Key Words: Combustion, Premixed Flame, Soot, Optical Measurement, Electron Microscopy, Polydisperse Aggregates, Aggregate Morphology, Optical Property

1. 緒言

シートメッシュ上に火炎中のすすを捕集して、電子顕微鏡で観察すると、図1に示すように、ほぼ均一な直径を持つ多数の球形粒子が集まって凝集体を形成しているのが見える⁽¹⁾。多くの場合、球形粒子の直径 d_p は数十nm、凝集体の最大長さ L は数十～数百nmで、可視光の1波長以下の領域に多数の球形粒子が密集して、不定形の凝集体として浮遊していることになる。すす凝集体を互いに数波長以上隔たった均一粒径の球形粒子と見なしてミー散乱理論を適用した研究が未だに行なわれているが、その不合理なことは明瞭である。

1波長以下の領域に多数の球形粒子が分散している凝集体の光散乱に関しては、Jones⁽²⁾⁽³⁾が厳密な理論解析を行っており(以後、これを凝集体散乱理論と呼ぶことにする)、基本的な問題は解決している。しかし、凝集体の形状や大きさ(構成する球形粒子の数)が一定していない上に、光の入射方向と

散乱方向に対する凝集体の姿勢も様々であることを考えると、すすの光学的測定、特にその基礎となる理論計算は、それほど容易ではない。それでも、最近では多数の研究者がこの問題に取り組んでおり、それに関する詳細な展望も出版されている⁽⁴⁾。

凝集体を構成する一次球形粒子数の不均一性(以後、凝集体の「粒子数分布」と呼ぶ)、フラクタル的な不定形性、光の入射/散乱方向に対する凝集体のランダム姿勢等、すべての因子を考慮して凝集体散乱理論を厳密に適用することが困難であるならば、

図1 すすの透過型電子顕微鏡写真 ($h=20\text{mm}$)

* 原稿受付 平成6年5月18日。

*¹ 正員, 大阪大学工学部 (〒565 吹田市山田丘2-1)。*² 准員, 三菱重工長崎造船所 (〒851-03 長崎市深堀町5-717-1)。

何らかの近似理論が必要となるが、それには次の3種類のものが提案されている。

(1) 等価球近似：凝集体を等価球に置き換えて、その直径 D_e （以後、等価ミ－直径と呼ぶ）を予め凝集体理論から計算しておく⁽⁵⁾⁽⁶⁾。ただし、凝集体の散乱特性を完全に代表する等価ミ－直径というものには存在しないので⁽²⁾、特定方向の散乱断面積、もしくは2方向の散乱断面積の比（たとえば散乱強度非対称比 $R_{pp}(\theta)$ ）等に限定した等価直径となる。

(2) 多孔球近似⁽⁷⁾：凝集体をその回転半径 R_g （凝集体重心から各一次球形粒子までの距離のrms値）に比例した直径 D_e （比例定数は1.6前後）の多孔球に置き換え、次式で定義される実効複素屈折率 m_e を使う。

$$G(m_e) = \eta_v G(m) \quad (1)$$

ただし、 m は一次球形粒子の複素屈折率で、

$$G(m) = (m^2 - 1)/(m^2 + 2), \quad \eta_v = N_p d_p^3 / D_e^3$$

この方法は、等価直径 D_e の決め方が確立されていないので、考慮の対象から外すことにする。

(3) Guinier law⁽⁸⁾：電子雲のX線散乱特性に対する近似法則であるが、Dobbinsら⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾はこれをすすの散乱に利用することを提案している。この場合、散乱強度非対称比は複素屈折率 m に無関係に、凝集体の回転半径 R_g の二乗平均値と波数 k の関数となる。

前報⁽¹⁾においては、1列直鎖凝集体と2列直鎖凝集体に等価球近似を適用し、Felskeら⁽⁵⁾の等価ミ－直径の経験式を利用して、エチレン-空気濃ずり混合火災中に浮遊するすす凝集体の粒度分布を推定した。また、計測結果に及ぼす複素屈折率の影響についても検討した。しかし、凝集体のフラクタル形態（フラクタル次元 D_f ）の検討が不足していた。さらに、火災の安定性が不足していて、データの精度に問題があった。

本報においては、凝集体が合体しても、一次球形粒子の直径とフラクタル次元には変化が生じないというマスフラクタルの性質を利用して、電子顕微鏡写真から一次球形粒子の直径 d_p とフラクタル次元 D_f を決定し、その次元を持つランダム分枝鎖凝集体に等価球近似とGuinier lawを適用して、粒度分布の検討を行なった。

さらに、改良を加えたバーナで、精度のチェックを行いながら散乱強度非対称比を計測するとともに、軸流線に沿った凝集体の変化を観察した。

2. 記号

A_a ：凝集体の投影面積

A_p ：単一球形粒子の投影面積
 a_{ij}, d_{ij}, r_{ij} ：式(13)と(14)の付属式で定義される θ_i と θ_j の関数
 a_1, a_2 ：式(5)中の適合定数
 b ：式(3)中の係数で、 α_L と α_p の関数
 $C_{pp}(\theta)$ ：散乱角 θ における角散乱断面積
 $c = L/R_g$ ：経験定数
 c_1, c_2 ：凝集体の形状で決まる定数
 D_e ：凝集体の等価ミ－直径 nm
 D_f ：フラクタル次元
 D_v ：凝集体の体積平均粒径 nm
 d_p ：一次球形粒子の直径 nm
 $G(m) = (m^2 - 1)/(m^2 + 1)$ ：複素屈折率の関数
 h ：バーナポートからの高さ mm
 k ：波数 nm^{-1}
 k_f ：式(7)中の定数
 L ：凝集体の最大長さ nm
 m ：一次球形粒子の複素屈折率
 m_e ：式(1)で定義される、多孔球と見なした凝集体の実効複素屈折率
 $N_a(N_p)$ ： N_p 個の一次球形粒子を含む凝集体の数
 N_p ：凝集体を構成する一次球形粒子の数
 N_{pg} ： N_p の幾何平均値
 n ：直鎖凝集体の列数
 $P(N_p)$ ： N_p の確率密度関数（粒子数分布）
 $q = 2k \sin(\theta/2)$
 r ：バーナ軸からの半径方向距離 mm
 R_g ：凝集体の回転半径 nm
 $R_{pp}(\theta)$ ：式(2)で定義される散乱強度非対称比
 α ：式(9)中の経験定数
 $\alpha_e = \pi D_e / \lambda$ ：凝集体の等価粒径パラメータ
 $\alpha_L = \pi L / \lambda$ ： L で定義された粒径パラメータ
 $\alpha_p = \pi d_p / \lambda$ ：一次球形粒子の粒径パラメータ
 $\eta_v = N_p d_p^3 / D_e^3$ ：等価多孔球の充填率
 θ ：入射方向から測った散乱角度
 λ ：波長 nm
 σ_g ： N_p の幾何標準偏差
 $\omega_1 \sim \omega_5$ ：凝集体の形状で決まる定数
 添字
 PP：入射光と散乱光の偏光方向
 $P=V$ は垂直偏光、 $P=H$ は水平偏光
 i, j ：二つの共役散乱方向

3. 散乱強度非対称比の計算

3.1 理論

前報⁽¹⁾と同様、入射光と θ° 並びに $(180 - \theta)^\circ$ をな

す2方向の角散乱断面積 C_{PP} の比,

$$R_{PP}(\theta) = C_{PP}(\theta) / C_{PP}(180 - \theta) \quad (2)$$

と定義される散乱強度非対称比 $R_{PP}(\theta)$ を考え, 入射/散乱方向に対する凝集体のあらゆる姿勢にわたっての平均値をとることとする. ただし, 添字PPは入射光と散乱光の偏光方向が両ビームを含む面に垂直(V)か水平(H)かを示す.

Felske⁽⁵⁾は, 凝集体散乱理論を用いて, 一次球形粒子数 $N_p \leq 33$ の凝集体の $R_{VV}(\theta)$ の値を計算し, それに適合する等価粒径パラメータ $\alpha_c (= \pi D_c / \lambda)$, ただし, D_c は等価ミー直径)を次の経験式で与えている.

$$\alpha_c = b \alpha_p^{0.2} \alpha_L^{0.8} \quad (3)$$

ただし,

$$\begin{aligned} \alpha_p &= \pi d_p / \lambda, \quad \alpha_L = \pi L / \lambda \\ b &= 0.6 + 0.58[1 - \exp\{-c_1(\alpha_L / \alpha_p - 2)\}] \\ &\quad \times (0.9623 - c_2 \alpha_L - 0.0141 \alpha_L^2) \end{aligned}$$

c_1 と c_2 は定数で, 図2の1列直鎖凝集体に対して5.0と0.25, 2~3列直鎖凝集体に対して5.0と0.0052, ランダム分枝鎖凝集体に対して1.7と0.0052である.

Lamia⁽⁴⁾⁽⁶⁾は凝集体散乱理論を用いて $R_{HH}(45^\circ)$ の値を計算し, つぎの経験式を与えている.

$$\alpha_c = \alpha_p \omega_1 \alpha_L \omega_2 (\omega_3 \alpha_L^2 + \omega_4 \alpha_L + \omega_5) \quad (4)$$

ここで, $\omega_1 \sim \omega_5$ は凝集体の形状によって決まる定数であり, 1列直鎖凝集体に対して0.0168, 1.1580, 0.0243, -0.2587, 0.7821, ランダム分枝鎖凝集体に対して0.1413, 0.0425, -0.3026, 1.2250, 0.0563である.

これら2種類の経験式は, いずれもコンピュータの記憶容量の関係で, $N_p \leq 33$ の範囲でしか保証されていない. 電顕写真(図1参照)によると, 本研究で対象とした濃予混合火災内に存在するすす凝集体の大部分はこの範囲に属するが, 粒子数分布検討の都合上, 次式を用いて $N_p = 100$ までの外挿を行なった.

$$\alpha_c = a_1 + a_2 \ln N_p \quad (5)$$

ここで, a_1 と a_2 は適合定数である.

FelskeらやLamiaの経験式を利用して凝集体の粒度分布を検討するためには, L と N_p の関係が分かっているなければならない. 図2(a)~(c)に示す n 列直鎖凝集体の場合には, 一次球形粒子同志の点接触を仮定すると, つぎの関係が得られる.

$$L = N_p d_p / n \quad (6)$$

図2(d)に示すランダム分枝鎖凝集体の場合には, マスフラクタルの概念を適用すると, 次の指数法則が成り立つ⁽¹¹⁾.

$$N_p = k_f (R_g / d_p)^{D_f} \quad (7)$$

ただし, k_f は定数, D_f はフラクタル次元である. $L/R_g = c$ (定数)と仮定して⁽¹¹⁾, 両辺の対数をとると,

$$\log N_p = D_f \log(L/d_p) + \log(k_f/c^{D_f}) \quad (8)$$

図1に示したような凝集体の電顕顕微鏡写真から, 各凝集体に対する N_p と L/d_p の値を得て, 両対数グラフにプロットすると, 直線の勾配から D_f が, 切片から (k_f/c^{D_f}) の値が得られる. その際, N_p の値は, 電顕写真上でプランメータを用いて測定される凝集体の投影面積 A_a と, スケールを用いて測った一次球形粒子径 d_p の平均値から計算される投影面積 A_p から,

$$N_p = (A_a/A_p)^\alpha \quad (\alpha = 1.08) \quad (9)$$

として算出する⁽¹⁾. また, L/d_p の値は, スケールを用いて電顕写真上で測定する.

以上は等価球近似を用いる方法であるが, つぎにGuinier lawを用いる方法について考察する. この方法では, 凝集体の回転半径 R_g とフラクタル次元 D_f の値が必要であるが, 1列直鎖凝集体については,

$$D_f = 1, \quad R_g = [d_p^2(N_p + 1)(N_p - 1)/12]^{1/2} \quad (10)$$

ランダム分枝鎖凝集体については, 上述の方法で D_f の値と N_p の関数としての L の値が求まり,

$$R_g = L/c \quad (11)$$

で回転半径の値が計算できる. ここでは, $c = 3.55$ なる値を採用する⁽¹⁰⁾. 粒子数分布 $P(N_p)$ を持つ凝集体の場合, 回転半径 R_g の2乗平均値は,

$$\overline{R_g^2} = \Sigma [R_g^2(N_p) N_p^2 P(N_p)] / \Sigma [N_p^2 P(N_p)] \quad (12)$$

図2 すず凝集体の形状

で計算される。ただし、 $P(N_p)$ には前報⁽¹⁾で採用した上限付き離散型対数正規分布を用いる。

$\overline{R}_g^2$ と散乱強度非対称比 $R_{VV}(\theta_i)$ との関係は、つぎのように与えられている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。

$$q_i \overline{R}_g^2, q_j \overline{R}_g^2 \leq 1.5 D_f: \quad \overline{R}_g^2 = (a_{ij}/k^2) \ln R_{VV}(\theta_i) \quad (13)$$

$$q_j \overline{R}_g^2 > 1.5 D_f: \quad q_i \overline{R}_g^2 \exp[-q_i \overline{R}_g^2 / (1.5 D_f)] = [R_{VV}(\theta_i) / d_{ij}]^{2/D_f} \quad (14)$$

ただし、 $\theta_j = 180 - \theta_i$, $q_i = 2k \sin(\theta_i/2)$, $a_{ij} = 0.75 / [\sin^2(\theta_j/2) - \sin^2(\theta_i/2)]$, $d_{ij} = [2.718 / (1.5 D_f)]^{D_f/2} / r_{ij}^{D_f}$, $r_{ij} = \sin(\theta_i/2) / \sin(\theta_j/2)$ である。

3.2 計算結果

後述の実験データによると、バーナポート上方

(a) Empirical relation of Felske et al.

(b) Lamia's empirical relation

図3 等価粒径パラメータの値 ($d_p = 20.5\text{nm}$, $\lambda = 514.5\text{nm}$)

$h = 20\text{mm}$ の中心軸上で採取されたすすサンプルの電顕写真から、一次球形粒子の直径 $d_p = 20.5\text{nm}$ 、凝集体のフラクタル次元 $D_f = 1.42$, $c/k_f^{1/D_f} = 0.805$ が得られる。この結果を用い、光の波長 $\lambda = 514.5\text{nm}$ にとって、等価球近似に属するFelskeらとLamiaの経験式を計算し、 $N_p = 100$ まで外挿した結果が図3である。参考までに、1～3列直鎖凝集体に対する結果も記入しておいた。

凝集体が上限付き離散型対数正規分布 ($N_p \leq 100$, 幾何平均値 N_{pg} , 幾何標準偏差 σ_g)で表される粒子数分布⁽⁷⁾を持つものとし、図3の結果を用いて、散乱強度非対称比 (Felskeらに対しては $R_{VV}(45^\circ)$, Lamiaに対しては $R_{HH}(45^\circ)$)を計算した。一例とし

(a) Empirical relation of Felske et al.

(b) Lamia's empirical relation

図4 透過球近似による散乱強度非対称比の計算結果 (ランダム分枝鎖凝集体, $\lambda = 514.5\text{nm}$, $m = 1.90 - 0.55i$)

図5 Guinier lawによる散乱強度非対称比 (条件は図4に同じ)

て、上述の電顕写真のランダム分枝鎖凝集体に対する計算結果を図4に示す。さらに、Guinier lawに基づいて同様の計算を行なった結果を図5に示す。"Monodisperse"と表示した曲線は $\sigma_g = 0$ と同意で横軸は N_p に、それ以外の曲線は N_{pg} に対応する。

4. 実験装置とその精度

供試バーナは、Charalampopoulosの設計⁽¹²⁾を参考に、前報⁽¹⁾のものに改良を加えた。図6に構造の概要を示す。ポートには直径60mmの焼結金属板がはめ込まれており、周辺が管路壁とともに水ジャケットで水冷されている。焼結金属板を通して当量比2.3のエチレン-空気混合気を流速0.06m/sで流出させて火炎を形成させる。周囲の環状ポートからは窒

図6 濃予混合火炎バーナ

素を同じく流速0.06m/sで流出させ、火炎を周囲空気から遮断する。ポート上30mmの位置にセラミックハネカムが置かれ、火炎の安定性を向上させる。バーナは移動装置に固定されており、光学系やプローブを移動させることなく多点の測定ができる。

SiO₂被覆した素線径0.1mmのPt/Pt-13%Rh熱電対で火炎内の温度分布を測定した。 $r \leq 15$ mm, $h = 5 \sim 25$ mmの範囲で温度が900~1100℃の範囲に納まっており、火炎中心部の温度は十分一様である。なお、ふく射補正を省略したので、実際の温度はこれより100℃程度、高いと考えられる。

電顕観察用すすサンプル採取装置、散乱強度非対称比測定用光学系等の測定装置並びに測定方法は前報⁽¹⁾と同様である。蒸留水中に浮遊させたポリスチレンラテックス球(平均粒径109nm, 相対標準偏差2.78%)を用いて光学系の精度を検定したところ、 $R_{VV}(45^\circ)$ については理論値(1.62)の $\pm 2\%$ 以内、 $R_{HH}(45^\circ)$ については理論値(1.70)の $\pm 4\%$ 以内の値が得られることが確認された。電顕写真の倍率も同じポリスチレンラテックス球で検定した。

測定は $h = 10 \sim 25$ mmの軸上7点で行なった。

5. 実験結果

5. 1 電子顕微鏡による観察結果

表1 電顕観察の結果

h mm	d_p nm	N_{pg}	D_v nm	σ_g	D_f
10.0	18.0	6.6	37.4	0.29	1.65
12.5	19.1	12.3	50.5	0.31	1.66
15.0	18.7	15.5	53.4	0.34	1.70
17.5	20.2	15.4	58.8	0.34	1.59
20.0	20.5	17.9	61.1	0.30	1.42
22.5	21.2	16.1	59.0	0.27	1.59
25.0	21.5	22.5	69.5	0.31	1.60

図1に示したような電顕写真をバーナ軸上の各位置で数枚ずつ撮影し、上述の方法で解析した結果を表1に示す。表中、単一球形粒子径 d_p は多数粒子の平均値であるが、図1に見られるように、ほぼ均一粒径であるため、特に平均値の表示はしていない。また、体積平均粒径 D_v は次式で計算される。

$$D_v = [\sum (N_a(N_p) N_p d_p^3) / \sum N_a(N_p)]^{1/3} \quad (15)$$

$N_a(N_p)$ は N_p 個の一次球形粒子を含む凝集体の数で、加算($\sum$)は $N_p = 1 \rightarrow 100$ について行なう。 d_p , N_{pg} , D_v はポートからの高さ h が増すにつれて単調に増加しており、流線に沿ってすす粒子が成長を続けていることが分かる。その際、 d_p の増加率は小さく、成長

は主として凝集の進行によって生じている。ただ、 σ_g と D_f の値はほとんど変化しておらず(平均値は0.31と1.60)、凝集体のフラクタル形状と粒子数分布形状を一定に保ったままの凝集の進行と言える。

5. 2 光学法による観察結果

前報⁽¹⁾では、488.0nmと514.5nmの2種類の波長で測定を行ったが、結果に大差のないことが分かったので、本報では514.5nmのみで測定を行った。2種類の散乱強度非対称比 $R_{VV}(45^\circ)$ と $R_{HH}(45^\circ)$ の測定値を最大変動範囲とともに表2に示す。測定値は多数回の平均を取っているの、精度は最大変動範囲(6%以下)の数分の1以下となり、図4や図5に適用するには十分な精度と考えられる。

この結果をポートからの高さ h を10~25mmの範囲で7段階に変えて描いた図4と図5に対応する各図に適用して、幾何平均一次粒子数 N_{pg} を求めた。その際、幾何標準偏差 σ_g の値を0~0.5の範囲で種々に変化させた。その結果の例を、1列直鎖凝集体と、電顕観察(表1)で得られたフラクタル次元を持つランダム分枝鎖凝集体について、表3に示す。表中、TEM data欄は表1の電顕データを転載したものである。また、Felske, Lamia, Dobbinsと記入したのは文献(5)、(6)、(9)の主著者に対応し、FelskeとLamiaの経験式、ならびにGuinier lawを用いたことを意味する。図1の電顕写真から、凝集体の形状は1列直鎖ではなく、ランダム分枝鎖であることは分かっているが、比較のために両方の計算を行ったものである。均一粒径に対応する $\sigma_g = 0$ から σ_g の値を増して行くと、 N_{pg} と D_v の値は減少して行く。これから、粒子数分布形は光学測定に大きな影響を与え、これを考慮しない測定は無意味であることが分かる。1列直鎖凝集体を仮定すると、同じ σ_g を持つランダム分枝鎖凝集体を仮定した場合に比べて、数分の1の N_{pg} の値が得られる。

ここで、 σ_g にどのような値を選ぶのが最も合理的かという問題が持ち上がる。すす粒子を採取する

際に、電顕用シートメッシュに張ったコロジオン膜上で、凝集体同志の合体が起こる可能性を考えると、電顕データと一致する N_{pg} を与える σ_g 値を採用することも合理的ではない。そこで、前報⁽¹⁾と同様、最大頻度の凝集体が最も合体を起こし易いが、合体によって出現頻度の順位が入れ替わることはないとの考えの下に、電顕データと確率密度関数 $P(N_p)$ のピーク位置の一致する σ_g 値を採用することにする。

このように選ばれた光学データと電顕データを比較したのが図7と図8である。前報⁽¹⁾では一次球形粒子の約25%が凝集体を形成することなく、単一粒子として存在すると報告したが、改良後のバーナでは、 $h=10\text{mm}$ で9%であった単一粒子の割合が12.5mmまでに5%以下に急減し、22.5mmではほぼ0%になってしまうことが判明した。そこで、単一球形粒子は $N_p=1$ の凝集体として扱うこととした。

1列直鎖凝集体を想定した図7はランダム分枝鎖凝集体を想定した図8に比べて、ピークの高さが著しく高いが、これは電顕データに含まれるフラクタル次元(1.6程度)を無視して、 $D_f=1$ と置いた当然の結果である。両図の比較から、凝集体のフラクタル形状は光学計測の結果に大きな影響を与えることが分かる。図8からGuinier lawを用いるDobbinsらの方法が最も電顕データに近い結果を与え、続いてLamia, Felskeらの経験式を用いたものの順になっている。電顕試料採取の際に、コロジオン膜

表3 1列直鎖およびランダム分枝鎖凝集体
に対する光学法の結果
($h=20\text{mm}$, $m=1.90-0.55i$)

	σ_g	Straight chain		Branched chain	
		N_{pg}	D_v nm	N_{pg}	D_v nm
TEM data	0.30	—	—	17.9	61.1
Felske	0 (Monodisperse)	14.9	50.5	36.3	68.0
	0.10	12.2	47.2	27.0	61.6
	0.20	6.6	38.4	12.0	47.1
	0.30	2.3	27.2	3.5	31.1
	0.40	1.0	18.9	0.8	19.3
Lamia	0 (Monodisperse)	20.8	56.5	34.6	66.9
	0.10	17.2	53.0	29.0	63.1
	0.20	9.6	43.6	17.7	53.5
	0.30	3.7	31.7	8.4	41.7
	0.40	1.0	20.5	3.1	29.8
Dobbins	0 (Monodisperse)	13.3	48.6	47.6	74.4
	0.10	10.1	44.4	37.5	68.7
	0.20	4.6	34.0	21.9	57.4
	0.30	1.4	22.9	10.8	45.3
	0.40	—	—	4.4	33.7

表2 散乱強度非対称比の測定値

h mm	$R_{VV}(45^\circ)$	$R_{HH}(45^\circ)$
10.0	1.30 (-3%~+5%)	1.51 (-2%~+2%)
12.5	1.58 (-6%~+6%)	1.65 (-1%~+1%)
15.0	1.66 (-3%~+6%)	1.84 (-4%~+4%)
17.5	1.85 (-3%~+3%)	1.96 (-1%~+1%)
20.0	1.99 (-4%~+3%)	2.13 (-2%~+3%)
22.5	2.08 (-1%~+2%)	2.41 (-3%~+5%)
25.0	2.62 (-4%~+4%)	3.54 (-5%~+3%)

図7 1列直鎖凝集体に対する粒度分布

 ($h=20\text{mm}$, $m=1.90-0.55i$)

上でどの程度の合体が起こっているのか分からない以上、どの方法が優れているのか確定はできないが、Dobbinsらの方法が好ましい傾向を表わしていると言える。また、等価球近似は凝集体を構成する一次球形粒子数 N_p が増加すると計算量が急増し、外挿に頼らざるを得なくなるが、Dobbinsらの方法ではそのようなことが生じないので、適用対象が広がる。

つぎに、幾何平均一次粒子数 N_{pg} と幾何標準偏差 σ_g が中心流線に沿ってどのように変化して行くかを調べた。ランダム分枝鎖凝集体を想定した結果を

図9 中心流線に沿う幾何平均一次粒子数の変化

 (ランダム分枝鎖凝集体, $m=1.90-0.55i$)

図8 ランダム分枝鎖凝集体に対する粒度分布

(条件は図7に同じ)

図9と図10に示す。いずれの方法でも電顕データと類似の傾向を示すが、 N_{pg} , σ_g ともに、電顕データよりやや小さ目の値になっている。類似の傾向を示すのは粒子数分布のピーク位置を合わせた当然の結果とも言えるが、一応、火災中での凝集体の成長状態の目安にはなろう。

5.3 複素屈折率の影響

等価球近似と多孔球近似においては、一次球形粒子の複素屈折率 m の値が必要で、光学測定の結果はその影響を受ける。上で使用した値 $m=1.90-0.55i$ はLeeとTien⁽¹³⁾が提案したものであるが、前報⁽¹⁾で

図10 中心流線に沿う幾何標準偏差の変化

(条件は図9に同じ)

も述べたように、これまで採用されてきた複素屈折率の値は、実部が1.5~2.0、虚部が0.5~1.0の範囲にあり、両者の和が2.5に近い。そして、実部と虚部は結果に逆の影響を及ぼすので、LeeとTienのものと対極の関係にある $m=1.50-1.0i$ について検討を行えば、複素屈折率の影響範囲を明らかにできる。

そこで、この複素屈折率の値を用いて、図7と図8のFelske法の計算をやり直してみた。その結果、一列直鎖凝集体に対しては $\sigma_g=0.19$, $N_{pg}=11.2$ と、図7のLamia法の曲線とほぼ重なる結果が、ランダム分枝鎖凝集体に対しては $\sigma_g=0.24$, $N_{pg}=13.1$ と、やはり図8のLamia法の曲線とほぼ重なる結果が得られた。このことから、凝集体のフラクタル形態や粒子数分布形状の影響に比べれば、複素屈折率の影響は小さく、二次的なものであると言える。

6. 結 論

電子顕微鏡写真から得られるすすの一次球形粒子径、凝集体のフラクタル次元と粒子数分布に関するデータを散乱強度非対称比のデータと組み合わせることにより、エチレンの濃予混合火炎中に浮遊するすす凝集体の粒子数分布と体積平均粒径を推定する方法を検討した。凝集体の散乱特性を与えるモデルとしては、厳密な凝集体散乱理論に基づいて作成された等価球近似法と、電子雲のX線散乱に対する近似理論であるGuinier lawを利用する方法を試用した。そして、バーナ中心流線に沿ってのすす粒子の成長の様子を調べるとともに、複素屈折率の値が結果に及ぼす影響の程度を検討した。その結果を要約すると、以下ようになる。

(1) 凝集体の形状は、コロジオン膜上に採取する前後とも、マスフラクタル指数法則に従うランダム分枝鎖に近く、しかもフラクタル次元は採取時の合体によっても変化せず、1.60程度と考えられる。

(2) 等価球近似と、Guinier lawを用いる方法とで

は、後者の方が電顕データに近い結果を与える。しかし、結果に大差がない上に、コロジオン膜上での合体の程度が不明であるので、優劣は付けがたい。

(3) バーナ中心流線に沿って、一次球形粒子径の僅かな成長と、凝集の顕著な進行が見られる。しかし、凝集体形状（フラクタル次元）と粒子数分布形状（幾何標準偏差）は、ほぼ一定に保たれる。

(4) 凝集体形状と粒子数分布形状に比べれば、複素屈折率が測定結果に与える影響は軽微である。

終わりに、実験に協力いただいた、当時的大阪大学工学部4年次学生 矢壁庄二、大川博靖の両氏に感謝の意を表する。

文 献

- (1) 水谷, 祐谷, 大浦, 機論, **59**-566B (1993-10), 3263.
- (2) Jones, A.R., Proc. R. Soc., Lond., **A336**-1724 (1979-5), 111.
- (3) Jones, A.R., J. Phys. D: Appl. Phys., **12**-10 (1979-10), 1661.
- (4) Charalampopoulos, T.T., Prog. Energy Combust. Sci., **18**-1 (1992), 13.
- (5) Felske, J.D., Hsu, P.-F. and Ku, J.C., J. Quant. Spectrosc. Radiant Heat Transfer, **35**-6 (1986), 447.
- (6) Lamia, L., MSc Thesis, LSU Mech. Eng. Dept., (1990-5).
- (7) Dobbins, R.A. and Megaridis, C.M., Appl. Opt., **30**-33 (1991-11), 4747.
- (8) Guinier, A. and Fournet, G., Small-Angle Scattering of X-Rays (Trans. by C.B. Walker), (1955), Wiley, New York.
- (9) Dobbins, R.A., Santoro, R.J. and Semerjian, H.G., 23rd Symp. (Int.) on Combust., (1990), p.1525.
- (10) Puri, R. · ほか3名, Combust. Flame, **92**-3 (1993-2), 320.
- (11) Megaridis, C.M. and Dobbins, R.A., Combust. Sci. and Tech., **71**-1/3 (1990), 95.
- (12) Charalampopoulos, T.T., Rev. Sci. Instrum., **58**-9 (1987-9), 1638.
- (13) Lee, S.C. and Tien, C.L., 18th Symp. (Int.) on Combust., (1981), p.1159.