

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 29 日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560225

研究課題名(和文) 粒子状物質の熱泳動挙動に対する燃焼ガス成分の影響

研究課題名(英文) Influence of combustion gas species on thermophoretic behavior of particulate matter

研究代表者

鈴木 正太郎 (Suzuki, Masataro)

長岡技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10282576

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：熱泳動とは、温度勾配のある場に浮遊する微小な粒子が低温側に向かって力を受ける現象のことで、粒子状物質の挙動を予測したり制御したりする際に考慮する必要がある現象である。本研究では、この熱泳動現象に対してガス成分がどのように影響を及ぼしているかを調べるため、微小重力装置を用いて実験を行い理論モデルを検討した。実験データを解析したところ、理論式中に含まれるパラメータである適応係数がガスの種類によって異なることがわかった。気体分子のどの物性値がその適応係数を決定づけているのかを検討した結果、分子直径との相関が強いことがわかった。また、混合ガスに対して適応係数を算出する最適な方法を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Thermophoresis is the phenomenon that a small particle in a gas with a temperature gradient receives a force toward the lower temperature side. This phenomenon is supposed to influence practically on the movement of particulate matter in exhaust gas from combustors. The influence of gas components on the thermophoretic velocity is investigated in this work. Microgravity experiments are conducted and a theoretical model is examined. It is found that the accommodation coefficients, which are parameters included in the theoretical formula, differ among tested gas species. Correlations of these coefficients with some gas properties are examined and clear correlation is found with the molecular diameter. Binary gas mixtures are also examined and a suitable method is proposed for determining the coefficients.

研究分野：燃焼

キーワード：熱泳動 微小重力 粒子状物質 混合ガス

### 1. 研究開始当初の背景

熱泳動とは、温度勾配のある場に浮遊する微小な粒子が低温側に向かって力を受ける現象のことである。微粒子が低温壁にしばしば堆積するのはこの現象に起因する。燃焼場から生じる微粒子状物質は、非常に高い温度勾配の中で生じ成長するので、その過程で熱泳動の影響を強く受ける。また、フィルタ等による捕集の際にも、低温の固体壁面と高温の排ガスとの間に高い温度勾配が存在することになるので、この熱泳動の影響が無視できない。

これまで、理論モデルの検討を行う際に定量的な基準となるような十分な精度の実験データは得られていなかった。通常重力場では温度勾配が自然対流を誘起するため計測精度に疑問があり、微小重力場では実験例が少なくデータ量が不足していた。そこで研究代表者は、0.6 m 程度の短距離を自由落下させる微小重力実験装置を開発し、微小重力実験を数多く繰り返すことによりデータを蓄積できる環境を構築し(科研費(若手B)17710129)、実験データを蓄積するとともに理論モデルの検討を進めてきた(科研費(基盤C)20560182)。得られた実験結果に基づいて理論モデルを改良した結果、改良した理論予測式によって実験をよく再現できるようになった。

研究のこの段階までは雰囲気ガスとして空気をを用いてきたが、理論モデルを実用的なものとするには混合ガスでも予測できるようにする必要がある。実際、これまでに実験を進めてきた中で、混合ガスの取り扱いに課題があることがわかってきた。装置を開発する過程で得た実験データは湿度の影響が想定外に大きいことを示唆しており、そのような大きな影響は既存の理論では説明できていない。現実の燃焼場で、微粒子状物質(スス粒子)が、燃焼ガス、すなわち二酸化炭素や水蒸気を含む混合ガス中に浮遊することを考えても、混合気体中での挙動を定量的に把握することは不可欠である。

### 2. 研究の目的

本研究は、気体の種類が熱泳動に及ぼす影響を明確にすることを目的として実施した。気体のどのような性質が現象に影響するかを特定するために、まず、様々な種類の気体を用いて実験データを蓄積する必要がある。得られた実験データを基準にしながら、混合ガスの取り扱い方に関するいくつかの理論を比較・検討し、既存の理論モデルに混合ガスの項を追加する。このような手順で研究を進めることにより、燃焼ガスのような混合気体中での熱泳動を予測できる理論モデルを構築することを目指した。

### 3. 研究の方法

#### 3.1 実験の概要

落下装置全体の概略を図1に示す。装置は

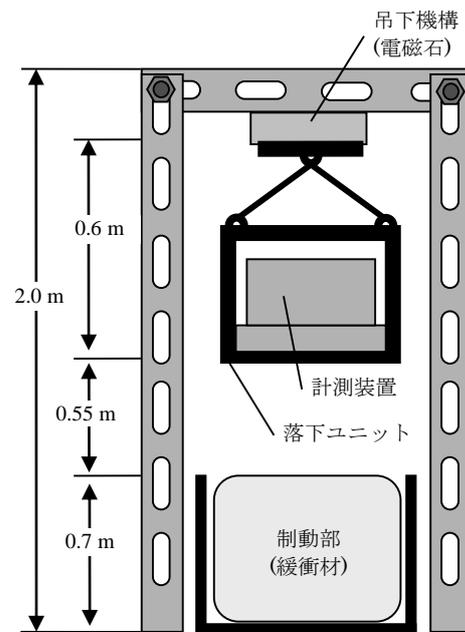


図1. 落下装置

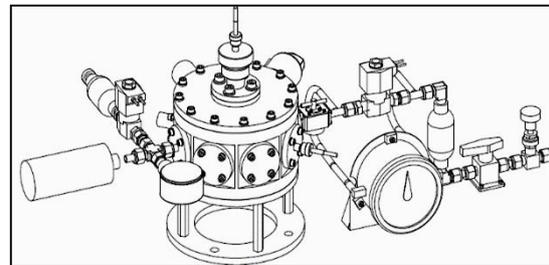


図2. 計測装置

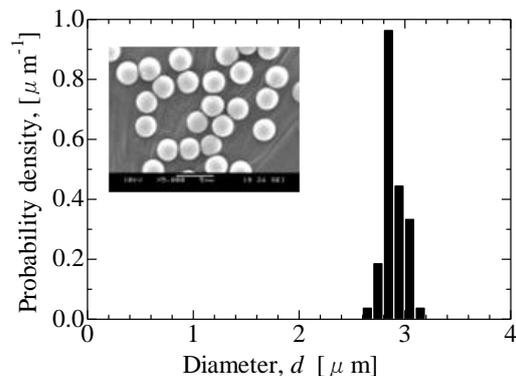


図3. 実験に用いた PMMA 粒子の粒径分布

落下塔(落下ユニットを吊り下げるフレーム)・落下ユニット・制動部(緩衝材)で構成され、落下ユニットには計測装置(図2)が搭載される。熱泳動速度の計測は、落下ユニットが自由落下する 0.3 s 程度の間に行われることになる。

計測装置は、圧力容器と、それに給排気を行う配管系で構成される。圧力容器内には、 $\phi 100$  mm のアルミ壁面ふたつが 1.50 mm の隙間を空けて対向して上下に配置されており、この隙間に浮遊させた粒子の熱泳動速度が計測される。下部壁面はプレートヒーターにより加熱され、常温程度である上部壁面との間

に所定の温度勾配が形成される。給排気の配管には上流側・下流側のそれぞれに電磁弁が組み込まれており、最初は弁が共に閉じた状態で、上流側が加圧され下流側が減圧されている。また、上流側には配管途中に粒子溜タンクが配置され、その中には平均粒径  $2.9 \mu\text{m}$  の球形 PMMA 粒子 (図 3) が入れられている。落下開始の直前に上流側・下流側の弁が共に開き、上流側から圧力容器を通過して下流側へと向かうガスの流れが生じ、この流れによって試料粒子が計測区間に導入される。吹き込み後、上流側・下流側の弁が同時に閉じ、容器内の流れは停止する。落下ユニットが自由落下し制動用の緩衝材に接触するまでのあいだ、粒子は壁面間を低温壁側に向かって、重力の影響を受けずに熱泳動速度で移動することになる。粒子は、壁面間に照射したレーザー光の散乱により可視化され、その挙動がハイスピードカメラに記録される。得られた画像を解析することにより、粒子個々の速度が計測される。

本研究で用いる気体の種類としては、燃焼ガスを念頭に置いて選定した。燃料ガスや燃焼ガスの典型的な成分であることから、メタン、二酸化炭素、水 (蒸気)、窒素を雰囲気ガスとして用いた。また、気体のどのような性質が現象に影響しているのかを探るため、比較対象としてアルゴン・一酸化二窒素も調べた。水蒸気については、液化しない条件で実験を行う必要がある。このため、高温・低圧での実験が行えるように既存装置の改修を行った。

### 3. 2 理論検討の概要

熱泳動速度は、以下のように無次元化することにより換算速度に変換される。

$$V_R = \frac{\rho T_{F0}}{\mu \nabla T} V_T \quad (1)$$

ここで  $V_R$  は換算速度、 $V_T$  は熱泳動速度、 $\mu$  は粘度、 $\rho$  は密度、 $T_{F0}$  は基準温度、 $\nabla T$  は温度勾配である。以前の研究 (科研費 (基盤 C) 20560182) で、Brock (1962) の理論に修正を加えて熱泳動速度の予測式を改良している。それをこの  $V_R$  の形で表すと次式のようになる。

$$V_R = 2 \frac{C_S(k+C_T K_n) + C_H C_M K_n (C_T K_n + k - 1)}{(1+2C_M K_n)(1+2k+2C_T K_n)} \quad (2)$$

ここで、 $k$  は周囲気体と粒子との熱伝導率の比、 $K_n$  はクヌーゼン数 (平均自由行程と粒子半径との比) で、 $C_M$ 、 $C_T$ 、 $C_S$ 、 $C_H$  は順に、すべり流れ、温度跳躍、熱ほふく流、熱応力すべり流れの定数である。これらの数値の中で、定数  $C_i$  ( $i$  は添字 M, T, S, H のいずれか) はこれまで、いくつかの異なる数値が異なる研究者により提案されているが、基本的には気体によらない一定値として扱われてきた。

これらの定数  $C_i$  のうち、 $C_M$  および  $C_T$  は、適応係数  $\alpha$  を用いて以下のように表される。

$$C_M = \frac{2-\alpha_m}{\alpha_m} \quad (3)$$

$$C_T = \frac{15}{8} \left( \frac{2-\alpha_t}{\alpha_t} \right) \quad (4)$$

ここで  $\alpha_m$ 、 $\alpha_t$  はそれぞれ運動量適応係数と運動エネルギー適応係数である。いずれの適応係数も、気体分子が粒子表面に衝突し跳ね返るときの性質を示すもので、衝突が鏡面反射的などとき  $\alpha_j = 0$  となり、拡散反射的などとき  $\alpha_j = 1$  となる ( $j$  は添字 m または t)。気体の種類や混合状態が、定数  $C_i$  や適応係数  $\alpha_j$  にどのように影響するかを、実験結果に基づいて検討していくのが理論検討の基本的な作業となる。

## 4. 研究成果

### 4. 1 単一気体の熱泳動速度

まず、アルゴン・窒素・二酸化炭素の 3 種のガスについて、圧力を変えることにより  $K_n$  を変えて実験を行い、換算速度  $V_R$  とクヌーゼン数  $K_n$  との関係調べた。文献で提案されている定数  $C_i$  の数値 3 組から算出される理論予測と得られた実験結果とを比較したところ、二酸化炭素に関して顕著な不一致が確認された。図 4 にその二酸化炭素の結果を、表 1 に用いた文献値を、それぞれ示す。予測 2 は明らかに実験と合わず、それに比べれば予測 1, 3 は実験に近いところにある。しかし、 $K_n = 0.15$  では、どちらの予測とも実験値のエラーの範囲に入っていない。これは、定数  $C_i$  の数値がガスにより異なるためであると考えられる。すなわち、アルゴンや窒素の場合には文献の推奨値がたまたま合っていたが、二酸化炭素の場合には合わなかったのではないかということである。

そこで、実験結果と最もよく合う適応係数  $\alpha_j$  の数値を最小二乗法により算出した。推測値を表 2 に、実験結果との比較を図 5 に、そ

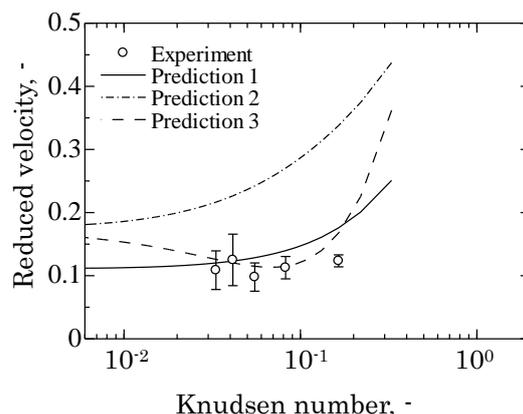


図 4 クヌーゼン数と換算速度 (二酸化炭素) 理論予測との比較

表 1 文献で用いられている係数の値

	$C_M$	$C_T$	$C_S$	$C_H$	$\alpha_m$	$\alpha_t$
1*	1.000	1.875	0.750	1.000	1.0	1.0
2**	1.140	2.180	1.170	1.000	0.935	0.925
3**	1.140	2.180	1.170	3.000	0.935	0.925

\* Hoshino et al. (2010)

\*\* Chang and Keh (2012)

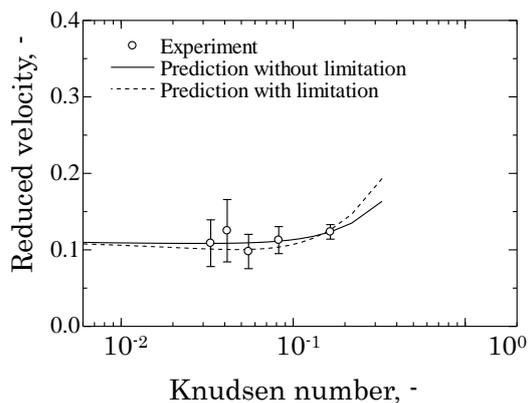


図 5 クヌーゼン数と換算速度（二酸化炭素）  
係数修正後

表 2 二酸化炭素の係数（推測値）

	$\alpha_m$ , -	$\alpha_t$ , -
without limitation	1.193	1.307
with limitation	0.841	1.000

表 3 各ガスの  $\alpha_m$  の推算値と物性

Gas	$\alpha_m$ , -	A	B	C
Ar	0.987	39.9	3	3.659
N <sub>2</sub>	0.986	28.0	5	3.784
CO <sub>2</sub>	0.821	44.0	5	4.643
CH <sub>4</sub>	0.890	16.0	6	4.158
N <sub>2</sub> O	0.836	44.0	5	4.662

A: Molecular weight, g/mol

B: Degree of freedom, -

C: Molecular diameter, Å

それぞれ示す。推測値の算出の際には、適応係数の範囲 ( $0 \leq \alpha_m \leq 2$ ,  $0 \leq \alpha_t \leq 1$ ) を考慮に入れた場合と入れなかった場合との 2 種類があるので、それらを両方、示してある。合うように調整したわけなので当然だが、理論予測が実験結果とよく合う結果となっていることが図からわかる。

適応係数の数値がガスの種類によって異なることが確認されたので、次に、その数値が、ガスのどういう物性や性質によって決まっているのかを検討した。そのメカニズムが把握できれば、ガスの種類を変えたときの予測が容易となるはずである。

この検討に際しては、推測値の算出方法を便宜的に単純化する必要があった。図 5 をみると 2 種類の予測の線はあまり違ってない。このことは、二つの適応係数の数値が異なっても、組み合わせ方を適当に選べば似た結果が得られるということを示している。もし実験誤差によりデータの数値が変化すると、例えばその変化が許容レベル内であったとしても、適応係数の推算値の組は大きく変わってしまう可能性がある。図 5 で行ったような、実験結果と合う数値を割り出す方法で二つの適応係数の正しい組み合わせを見つけるためには、実験値のエラーバーを小さくし  $K_n$  の範囲も

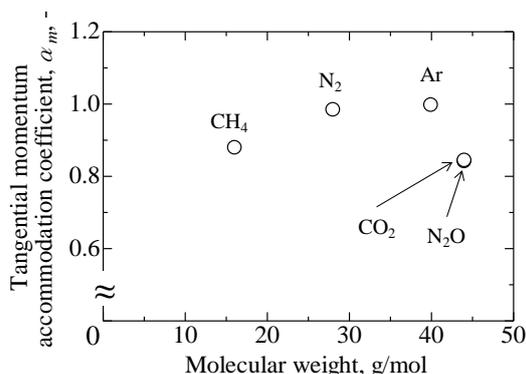


図 6 適応係数との相関・分子量

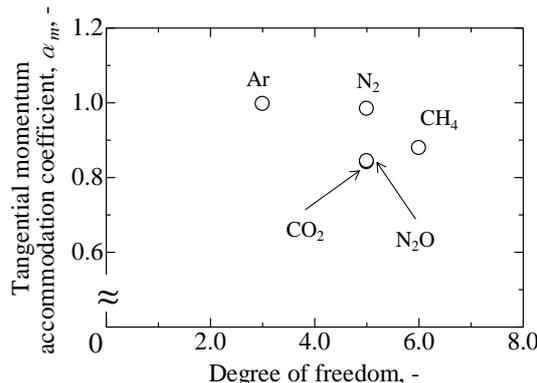


図 7 適応係数との相関・自由度

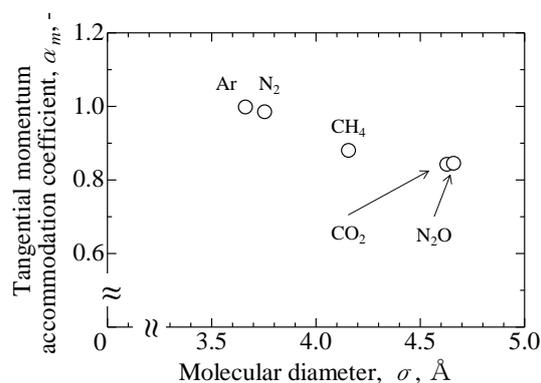


図 8 適応係数との相関・分子直径

広げなければならない。そのためには、広範囲の条件で大量にデータを蓄積する必要があるが、現段階では非現実的である。そこで適応係数の推算を便宜的に片方だけに限定することにした。表 2 の、適応係数の範囲を考慮して推算した数値の組をみると、 $\alpha_t$  の方が上限に当たっている。このことから、他のガスについては最初から  $\alpha_t$  を 1 に固定し、 $\alpha_m$  のみを最小二乗法で算出することにした。適応係数に影響を与えそうなガスの物性値としては分子量・自由度・分子直径を候補に挙げて、それらと適応係数の相関を検討した。

得られた  $\alpha_m$  の推算値を物性値と共に表 3 に示す。また、物性値と適応係数との相関を図 6~8 に示す。分子量の相関（図 6）をみると、CH<sub>4</sub> から Ar までは分子量の増加とともに適応係数が増えているが、CO<sub>2</sub> と N<sub>2</sub>O では

逆に減っており、単純な関係にはないことがわかる。自由度の相関 (図 7) をみても、同じ自由度 5 のガスである  $N_2$  と  $CO_2$  および  $N_2O$  とで適応係数が異なっており、こちらも単純に自由度で決まるような関係ではない。一方、分子直径の相関 (図 8) では、分子直径が増すにつれて適応係数が減少していくというきれいな相関があるようにみえる。このことは、適応係数を分子直径が決定づけていることを示唆する。適応係数が小さくなるということは気体分子の衝突が鏡面反射的な状況に近づくということであるから、この相関は、分子が小さいと拡散反射的に、大きいと鏡面反射的になるということの意味する。このことは、粒子表面に分子直径と同程度の凹凸があると考えれば理解できる。すなわち、分子が小さいときには表面の凹凸に分子が入り込んで衝突するので拡散反射的に跳ね返り、分子直径が大きいと凹凸に入り込みにくくなるので鏡面反射的になると考えられる。

#### 4. 2 混合の影響

ガス単体の適応係数と、複数のガスを混合したときの適応係数との間にどのような関係があるのかを調べるため、Ar,  $N_2$ ,  $CO_2$  の 3 種のガスについて、これらのうち 2 種を組み合わせ合わせた混合ガスでの実験を行って、実験と合う適応係数の算出手法の検討を進めた。

文献を調べたところ、混合ガスの方法としては、エネルギーバランスに基づく方法と、質量分率から計算する方法、分子間相互作用に基づく方法の 3 つの方法があることがわかった。そこで、混合ガス 3 種類それぞれについて、実験結果をそれらの 3 つの方法による予測と比較した。

その結果 (図 9)、調べた混合ガス 3 種類全てに対して最も実験とよく合うのは分子間相互作用に基づく方法であった。特に特徴的なのは Ar と  $N_2$  を混合させた場合である (図 9(a))。この組み合わせでは、各ガス単体の適応係数がほとんど同じであるにも関わらず、混合すると適応係数が僅かながら増加するという実験結果が得られた。この特徴を再現するのは 3 つの算出方法のうち分子間相互作用に基づく方法のみである。また、Ar と  $CO_2$  の組み合わせに対しても、この方法が最も良く実験結果と合っている (図 9(b))。

#### 4. 3 水蒸気での実験装置の開発

水蒸気を雰囲気として実験を行う場合、圧力条件の上限が飽和蒸気圧で決まってしまう。限られた無重力時間での実験で精度を確保するためには、その圧力が、ある程度は高くなければならないので、計測装置の内部を高温にしなければならない。そこで、そのための装置の改修 (図 10) を行った。構成する部品を耐熱製品と交換し、フレームに断熱材を配置して容器と配管の全体を保温できるようにすると共にカメラ等を高熱から保護し、容器・配管の気密性を改善する作業を進めた。その

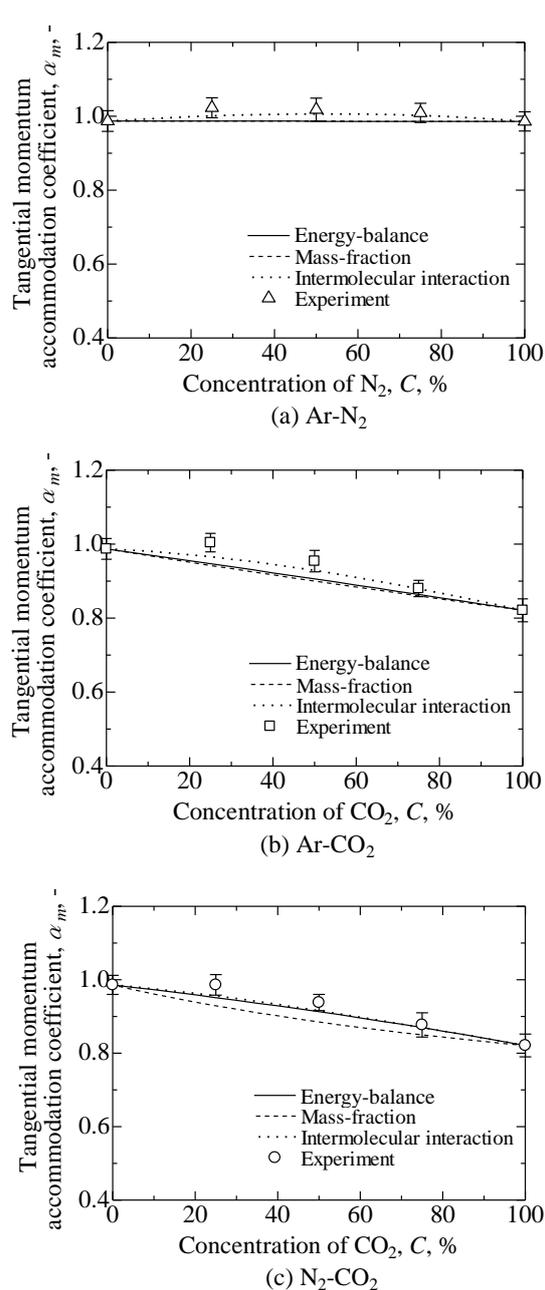


図 9 混合ガスの適応係数

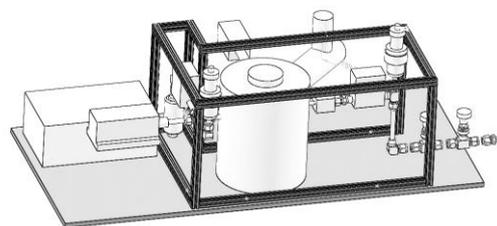


図 10 高温対応のための装置の改修

結果、圧力が 10 kPa から 30 kPa までの限られた条件ではあるものの、水蒸気雰囲気下で熱泳動速度を計測できるようになった。

実験データから得られた適応係数を用いて湿り空気中の熱泳動速度を算出したところ、湿度が高くなるほど熱泳動速度が大きくなるという、当初から着目していた傾向を定性的

には再現することができた。しかし、現時点では解析結果に疑問が残っている。実験結果から熱泳動パラメータを推定して理論予測を行うと、実験結果に比べて圧力依存性が低くなり、熱泳動パラメータを調節してもこの違いは解消できなかった。すなわち、高圧側で理論予測を実験値と合わせると、低圧側では理論予測が実験値に比べて過小となった。このような疑問があることから、本研究課題の終了後も引き続き、実験の精度や信頼性を検討し、慎重に解析を進めていく。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Mohd Azahari Bin Razali, Masayuki Mori, Masataro Suzuki, Wataru Masuda, Effects of gas species on pressure dependence of thermophoretic velocity, Journal of Aerosol Science, 査読有, Vol.54, pp.77-87, 2012
- ② Mohd Azahari Bin Razali, Masayuki Mori, Masataro Suzuki, Wataru Masuda, Measurement of Thermophoretic Parameters for Binary Gas Mixtures, Journal of Aerosol Science, 査読有, Vol.63, pp.60-68, 2013
- ③ Mohd Azahari Bin Razali, Masataro Suzuki, Wataru Masuda, Dependences of Thermophoretic Parameters on Gas Properties, 日本燃焼学会誌, 査読有, Vol. 56, No. 175, pp.67-73 2014

[学会発表] (計 4 件)

- ① Mohd Azahari Bin Razali, Masayuki Mori, Masataro Suzuki, Wataru Masuda, Effects of Gas Species on Pressure Dependence of Thermophoretic Velocity, 34th International Symposium on Combustion, W4P042, 2012
- ② Mohd Azahari bin Razali, 鈴木正太郎, 増田渉, Measurement of Thermophoretic Parameters for Combustion-related Gas Species, 第 50 回燃焼シンポジウム講演論文集, pp.248-249, 2012
- ③ 赤羽敬太, 増田渉, 鈴木正太郎, 二粒子間の距離が熱泳動速度に及ぼす影響, 第 50 回燃焼シンポジウム講演論文集, pp.596-597, 2012
- ④ 飛田航, 鈴木正太郎, 増田渉, 粒子-冷壁面間の距離が粒子の熱泳動力に与える影響, 日本機械学会北陸信越支部学生会第 42 回学生員卒業研究発表講演会, 2013

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

鈴木 正太郎 (SUZUKI, Masataro)

長岡技術科学大学・工学部・准教授

研究者番号：10282576

##### (3)連携研究者

増田 渉 (MASUDA, Wataru)

長岡技術科学大学・工学部・教授

研究者番号：80143816