

学 位 論 文 の 要 旨

Measurement of Soot Particle Size Distribution in a Laminar Diffusion Flame Using Multiwavelength Polarization Ratio Method (多波長偏光比法を用いた層流拡散火炎におけるすす粒径分布の測定)

氏 名 Long Cheng (程 龍) 印

大気中の粒子状物質の主な発生源は化石燃料の火炎から生成されるすすであり、その制御にさらなる注目が集まっている。粒子状物質排出低減のためには、その初生が 10 nm オーダと言われるすす粒子計測技術の開発と発展が必要不可欠となる。本研究は、Mie 散乱理論を用いる多波長偏光比法 (MPR: Multiwavelength polarization ratio) に着目し、層流拡散火炎内で生成するすす粒子の粒径計測への適用可能性について検証を行ったものである。

第 1 章では、研究の背景・目的が紹介される。粒径・粒度分布の定義、一般的に用いられる計測手法について述べる。本論文には 2 つの目的がある。1 つ目の目的は、MPR 法で計測できる最小すす粒径を確認することである。2 つ目の目的は、凝集体に関わるものである。火炎中のすす粒子は流下にしながら衝突・合体を繰り返し、その形態はブドウの房のような複雑な形状を呈するようになる。凝集体の存在が MPR 法の計測結果に与える影響を検討する必要がある。すす粒子の計測法は、採取法と非接触法の 2 つに分けられる。採取法では、ある程度の空間に存在する粒子を同時に吸引するため、時間・空間の貴重な情報が失われる。1 次粒子から凝集体までのすす粒子の成長の時間経過を知るため、非接触法が必要である。さらに MPR 法は、すす粒径分布を計測できるだけでなく、粒子の屈折率を定めることもできる。

第 2 章では、MPR 法の計測原理ならびに実験装置および方法について説明がなされる。本手法は Mie 散乱理論に基づく。粒子からの散乱光強度パターンは、粒子径、入射光波長、偏光成分の関数で与えられる。MPR 法では、2 つの波長の光源と 2 つの偏光成分を用いることで、連立方程式を解くように多変量解析により変数の値を決定していく。本研究では、高さ 30 mm のボタン層流拡散火炎を計測対象とする。火炎中心に z 軸、半径方向に r 軸を定義する。レーザ光源波長は、405 nm, 488 nm とした。出力はそれぞれ 300 mW, 200 mW である。散乱光強度は、散乱角度 60 deg の位置に設置された 2 台の偏光カメラ (4D Technology, PolarCam) を用いて得られた。画素数は 648×488, 諧調は 12bit である。2 つの波長を用いて同時計測を行うため、2 台のカメラは光軸に対して対称位置に設置される。散乱光強度の理論値と実測値の差を最小化するように、粒子数、幾何平均粒径、幾何

標準偏差，複素屈折率の 4 つの未知パラメータを決定していく。

第 3 章では，MPR 法の計測精度検証のために，透過光減衰法（LEM: Light extinction method），携帯型エアロゾル粒径分布測定器（PAMS: Portable aerosol mobility spectrometer）を用いた。前者はすす総体積の比較に用いられる。すす総体積の計測は凝集体の影響を受けづらいため，計測法の信頼性を示すひとつの指標となる。後者はすす粒径分布の比較に用いられる。凝集体をどの程度の精度で計測できるかが吟味される。それぞれの計測法の原理ならびに実験条件が紹介される。MPR 法と LEM 法で得られたすす体積分率（SVF: Soot volume fraction）を， $z = 20 \text{ mm}$ ， $z = 25 \text{ mm}$ で比較した。MPR 法と PAMS 法で得られた粒径分布を， $z = 20 \text{ mm}$ と $z = 25 \text{ mm}$ で比較した。

第 4 章では，実験結果ならびに考察が示される。 $z = 20 \text{ mm}$ ， $z = 25 \text{ mm}$ のすす粒子の幾何平均粒径と温度分布を示す。 $z = 20 \text{ mm}$ において，幾何平均粒径は火炎中心軸から火炎帯に向かってだんだん大きくなる。火炎帯が火炎中心軸より温度が高いことによると考えられる。流下とともに幾何平均粒径は大きくなり，粒子数は減少する。これはすすの凝集と酸化が進んでいくためと考えられる。MPR 法の計測精度についても詳しく説明がなされる。SVF を算出し，LEM 法を用いて得られたデータと比較する。 $z = 20 \text{ mm}$ において，2 つの方法で得られた SVF は同様の分布と数値を示す。 $z = 20 \text{ mm}$ から下流に移動すると，酸化によって SVF が減少する。粒径分布について PAMS 法での計測結果と比較すると，MPR 法で得られたピーク粒径は，PAMS 法で得られたそれより小さくなる。散乱光強度の計測精度の影響だと考えられる。また，凝集体の割合の増大とともに，MPR 法の過小評価の傾向が大きくなる。凝集体の存在が MPR 法の計測結果におよぼす影響について検討を行った。典型的な凝集体を仮定した場合，その旋回半径は 45% 過小評価される可能性があることが示されている。

第 5 章では，計測精度を向上させるための補正法が詳細に紹介される。粒子からの散乱光強度パターンの計測を基本とする MPR 法において，計測角度，計測位置，カメラ感度の直線性，偏光素子の漏れ，といった因子の影響は可能な限り小さく抑えておく必要がある。キャリブレーションプレートを燃料ノズル上に設置し，偏光カメラで撮影する。これにより散乱角度を計算で補正する。CCD カメラの露光時間と散乱光強度は比例しない。この問題を解決するため，露光時間と散乱光強度の関係を定めた。積分球に 406 nm, 498 nm の LED 光源からの光を導入し，一様な光源を作った。露光時間を変えながら撮影し，ピクセルごとの感度曲線を作成した。

第 6 章では，本研究を総括した。

学 位 論 文 の 要 旨

Measurement of Soot Particle Size Distribution in a Laminar Diffusion Flame Using Multiwavelength Polarization Ratio Method (多波長偏光比法を用いた層流拡散火炎におけるすす粒径分布の測定)

氏 名 Long Cheng (程 龍) 印

The major source of particulate matters in the atmosphere is soot particles generated in fossil fuel flames. The control of particulate matters in the flame has been attracting more attention. Developing soot particle diagnostic techniques which can detect baby soot having a size on the order of 10 nm is necessary for the reduction of the particulate matter emissions. In this study, a particle sizing method, the multiwavelength polarization ratio (MPR) method based on the Mie scattering theory is introduced, and its feasibility for the soot measurement in a laminar diffusion flame is investigated.

In Chapter 1, the background and purpose of the research is introduced. There are two purposes in this thesis. The first one is to make sure the smallest measurement limit of the MPR method. The second one is about secondary particles, namely aggregates. With the downstream distance, the morphology of soot particles becomes complicated due to the collision of particles. It is necessary to discuss the effect of the existence of aggregates on the MPR measurement. Soot particle measurement methods can be classified into two groups; sampling methods and non-intrusive methods. In sampling methods, particles exist in a certain volume is collected at once and the temporal and spatial information will not be reserved. In order to understand the growth process from primary particles to aggregates, non-intrusive method is needed. The MPR method can provide not only the particle size distribution but also the refractive index of the particle.

In Chapter 2, the principles of the MPR method, experimental setup and procedure are to be explained. The principle is based on the Mie scattering theory. The scattered light patterns are given as a function of the particle size, incident light wavelength, and the orientation of polarization. By employing a multivariate analysis regarding two wavelength and two components of polarization, the value of four unknown parameters are to be determined. A butane laminar diffusion flame is used whose height is set at 30 mm. The z and r axes are set along the center axis and the radial direction, respectively. The wavelengths of the incident light are 405 nm and 488 nm, whose power are 300 mW and 200 mW. The scattered light is acquired using two polarization cameras (4D Technology, PolarCam) set symmetrically at 60 deg with respect to the beam axis. The pixel size is 648 x 488,

and its bit depth is 12 bit.

In Chapter 3, a light extinction method (LEM) and the portable aerosol mobility spectrometer (PAMS) are used to validate the accuracy of the MPR method. The LEM method is used for comparison of the total soot volume in flame, which is insensitive to the existence of aggregates of particles. The PAMS method is used for comparison of the particle size distribution by which the measurement accuracy of the MPR method applied to the samples containing aggregates is examined. The measurement principles, experimental setup and experimental conditions of these methods are introduced. The soot volume fractions (SVF) obtained by the MPR and LEM methods are compared at $z = 20$ mm and $z = 25$ mm. With the downstream distance, the overall SVF decrease owing to the oxidation. The particle size distributions obtained by the MPR and PAMS methods are compared at $z = 20$ mm and $z = 25$ mm.

In Chapter 4, the results and discussion are shown. The geometric mean diameter and the temperature distribution in the radial direction at $z = 20$ mm and $z = 25$ mm are introduced. At $z = 20$ mm, the soot particle size gradually increases from the flame center to the flame sheet, which can be attributed to the temperature profile. The temperature at around the flame sheet is higher than that at the flame center. The geometric mean diameter increases as moving downstream the flame. The particle number decreases as moving downstream the flame. It is considered that the aggregation of soot particles and oxidation are increasing gradually. The measurement accuracy of the MPR method is also discussed in detail. The SVF is calculated and compared with the data obtained using LEM. At $z = 20$ mm, the SVF obtained by two methods have a similar distribution and values. Moving downstream from $z = 20$ mm, the overall SVF decrease owing to the oxidation. The particle size distribution is compared with that obtained by PAMS. The peak diameter obtained by the MPR method is smaller when compared with those for PAMS, which can be attributed to the measurement accuracy in the light intensity. The largest limit of measurement is affected by the existence of aggregates. With the increase in the population of aggregates, the MPR method tends to underestimate the diameter even more. Under a certain assumption, the radius of gyration is underestimated by 45%.

In Chapter 5, the correction methods which are used to improve the accuracy of the measurement were introduced in detail. By using calibration plate placed on the fuel nozzle and taking some images with the polarization cameras, the scattering angle is precisely corrected. By using an integrating sphere, the linearity of the sensitivity curve of the polarization camera is corrected.

In Chapter 6, this study was summarized.