

専攻	総合 エネルギー工学	学籍番号	811108	指導教官氏名	大竹一友教授
申請者氏名	出口祥啓				英 貢教授
					吉川典彦助教授

## 論 文 要 旨

論文題目	レーザー分光法を用いたすす生成に関する研究
------	-----------------------

(要旨 1,200字以内)

すす粒子生成の初期段階である分子レベルの化学反応機構の解明を目標として、レーザーを用いた信頼性の高い温度・濃度の計測法を確立することを目指した。また、すす粒子径およびPAH (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) の蛍光を種々の火炎で測定してそれらの関係を明確にすると共に、化学反応機構の数値シミュレーションとの比較・検討を行った。

レーザー計測法の開発は、ラマン散乱法、CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy)、蛍光法、DBS (Diffusion Broadening Spectroscopy)、ミー散乱法について行った。

多原子分子に対する従来のラマン散乱法、CARSではエネルギー準位間に存在する擾乱を正確に考慮して解析を行っているものではなく、これが計測時に生ずる誤差の最大の原因となる。本研究では、フェルミ共鳴、 $\rho$ 型ダブルリングなどの擾乱を考慮し、それらの影響が強く現れる高温域でも正確な計算が行える手法を確立した。水蒸気、アセチレンのラマン散乱とCARSにおけるシミュレーション結果は実験と良い一致を示しており、計測精度が向上する。

不飽和領域においてレーザー誘起蛍光法を適用するため、新たに準飽和モデル法と三線蛍光法を提唱した。準飽和

モデル法は定常仮定を用いて遷移レート方程式を解くことにより、飽和蛍光法の概念を準飽和領域に適用する。この方法では、50%程度の飽和度があればOHの温度・濃度の計測が可能となる。三線蛍光法は同一の励起上位準位を持つ三本の吸収線を励起することにより、OHの温度と濃度を決定する方法である。この方法は、より一般的な条件および低い飽和度で計測が可能であり、観測される蛍光強度の減衰は計測結果にあまり影響を及ぼさないなどの多くの利点も有している。

燃料過多の火炎に対し、CARS, DBS, 蛍光法を適用し、すす粒子とPAHの蛍光強度の関係を明かにした。すす粒子の生成が認められない領域でもPAHが観測され、すす粒子に先立って生成している。当量比・燃料組成の変化はすす粒子生成には顕著に影響を及ぼすが、PAH生成にはそれほど大きな影響を与えないことが確認された。本研究で用いた化学反応モデルは上記の影響を定性的に説明できる。但し、このモデルでは、すす、PAH生成量が低温側で過大評価される傾向にあり、反応速度定数、各化学種の熱化学データなどの正確な見積りが必要となる。

数種のPAHに対して気相状態における蛍光スペクトルを計測し、蛍光法によるPAHの濃度測定の可能性を検討した。各分子の蛍光波形はピーク波長、半値幅などが異なるため、広い温度、励起波長範囲で基礎データを蓄積することにより蛍光法によるPAHの濃度測定が可能になると考えられる。