



## 線香花火における液体微粒化現象の高速可視化計測

### High-Speed Visualization of Liquid Atomization Phenomena in Sparkling Fireworks

井上 智博\*, 渡辺 紀徳, 姫野 武洋, 越 光男, 寺島 洋史  
 (Chihiro INOUE) (Toshinori WATANABE) (Takehiro HIMENO) (Mitsuo KOSHI) (Hiroshi TERASHIMA)  
 東京大学 東京大学 東京大学 横浜国立大学 東京大学  
 (Univ.of Tokyo) (Univ.of Tokyo) (Univ.of Tokyo) (Yokohama National Univ.) (Univ.of Tokyo)

Sparkling fireworks are composed of black powder containing no metal wrapped in a twisted paper. The fireworks have their unique beauty. However, the physics behind the beauty is a 400-year mystery. In this study, high-speed visualizations are conducted to study the individual stages in the life of sparkling fireworks. We find that droplets, which will be the streaks of light, are formed from liquid atomization induced by bursting of the fireball itself or the bubbles on the surface. The liquid droplets originate from inside the fireball and not from its surface. We successfully capture time series of images during explosions of droplets, and determine that the bursting of the droplet is caused by microexplosion. From the visualization results, the surface tension coefficient and the diffusion coefficient are estimated. The mechanism of oxygen supply is also investigated.

Keywords: Sparkling Fireworks, Liquid Atomization, Bursting Bubble, Microexplosion, Physical Properties.

### 1. 結論

日本の花火の歴史は、戦国時代に鉄砲とともに黒色火薬が伝来したことで幕を開けた<sup>(1)(2)</sup>。以来、夏の風物詩の一つとして、打上げ花火や手持ち花火が広く楽しまれている。初期の花火は和火と呼ばれ、火薬に黒色火薬を用いて、黒体輻射によって色を出した。明治以降になると、海外から燃焼温度の高い火薬が輸入され、炎色反応によって鮮やかな色を見せるようになった。これを洋火という。今日の打上げ花火は洋火が中心である。手持ち花火の一種である線香花火は、江戸時代に始まり、今日に至るまで、約 400 年にわたって日本で親しまれている。線香花火は、約 0.1g の黒色火薬を紙繕りで包み、寄り合わせて作られる。国産線香花火の火薬には、松煙、硫黄、硝石の混合物である黒色火薬のみが原料として用いられ、金属粉などは混入しない。紙繕りの下端に火をつけると火球が形成され、やがて心地よい音とともに、火球から火花(火弾)が放出される。独特の美しさと儚さをみせる線香花火は和火であり、黒体輻射で発色する。

過去に、寺田<sup>(3)</sup>が、線香花火の物理的・化学的事象に関心を持ったことはよく知られている。中谷・関口<sup>(4)</sup>は、燃焼中の線香花火を可視化し、火薬中の炭素および周囲酸素の重要性を指摘した。清水<sup>(5)</sup>は、火薬成分と火弾の関係を調査し、硫化カリウムと炭素が火弾の破裂に重要であることを示した。前田<sup>(6)</sup>は、X線により火球内部構造を診断し、あわせて、火球の成分分析を行った。また、火弾形成過程についても検討を行い、火球表面の一部が火弾として放出され则认为した。その後、伊藤<sup>(7)</sup>は、火球の結晶構造を推定している。このように、いくつかの研究を見つけることができるものの、火球から火弾が飛び出し、下流で連鎖的に破裂する線香花火の特徴的事象に関して、それらの機構は十分には明らかにされてこなかった。従って、線香花火の美の物理は、400年の謎であった。近年、著者ら<sup>(8)</sup>は、高速カメラを用いた可視化計測を行うことで、線香花火における液体微粒化現象の重要性をはじめて明示し、火弾が火球内部から生じることを明らかにした。しかし、より詳細な可視化計測に基づく微粒化機構の理解は今後の課題として残されていた。そこで本論文では、高速カメラを用いた拡大撮影実験を行うことで、火球から火弾が飛び出す過程と火弾が破裂する過程について理解を深めること

を目的にする。あわせて、火球の表面張力係数と物質拡散係数を推定した結果について報告する。

### 2. 実験の方法

図 1 に示す、筒井時正玩具花火製造所製の長手線香花火、巧(たくみ)を使用した。燃焼中の線香花火の様子を、高速カメラ(Photron SA-X)を用いて可視化した。その際、自発光写真と、バックライト法による影写真を時系列に取得した。代表的なフレームレートとシャッタースピードは、それぞれ 10,000/s と 1/100,000s である。

### 3. 可視化計測結果

線香花火の時間積分画像を、図 2 に示す。点火後しばらくすると、紙繕りの下端に火球が形成される(stage1)。このとき、火弾は飛散しない。続いて、火球から間欠的に勢いよく火弾が飛び出し、遠方で破裂する(stage2)。その後、火球から連続



Fig. 1 Sparkling fireworks before ignition.  
(Black powder is wrapped in paper at the left end.)

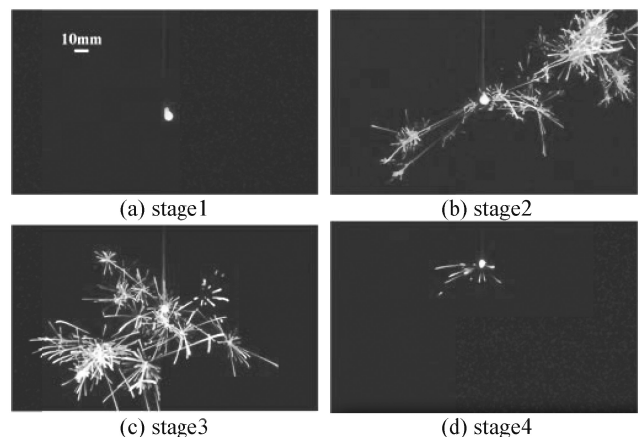
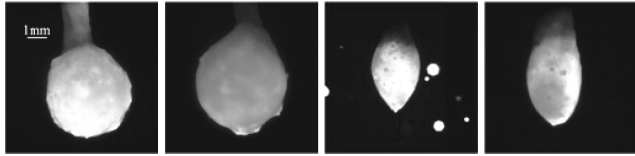


Fig.2 Four stages in sparkling fireworks<sup>(8)</sup>

原稿受付：2014年10月22日

\* 正員，東京大学（〒113-8656，東京都文京区本郷7-3-1）  
E-mail: inoue@rocketlab.t.u-tokyo.ac.jp

的に火弾が飛び出す(stage3). 最後に、弱々しく火弾が放出される(stage4). 線香花火には、以上四つの段階があることが経験的に知られており、それらは花の名前に例えて<sup>(9)</sup>、順に蕾・牡丹・松葉・散菊、あるいは人生に倣って<sup>(9)</sup>幼年期・青年期・壮年期・老齢期と称される。次に、stage1 から stage4 における火球を高速カメラで撮影した結果を、図 3 に示す。Stage1 と stage2 では火球は球形に近い。表面は荒く、固体の成分が残っている。一方、stage3 および stage4 の火球は紡錘型である。主に液相から成り、表面に多数の小さな気泡が存在する。以



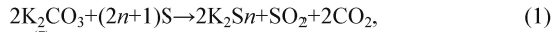
(a) stage1 (b) stage2 (c) stage3 (d) stage4  
Fig.3 Shape of fireball (different fireworks in each stage)

下では、まず stage2 における火球から火弾が放出される現象について述べたあと、stage3 について説明する。

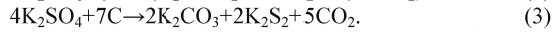
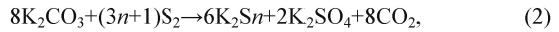
### 3.1 Stage2 における火弾放出過程

#### 3.1.1 火球の変形と燃焼ガスの噴出

高速カメラで撮影した stage2 における影写真を、時系列に図 4 に示す。時刻  $t=0\text{ms}$  において二酸化炭素などの燃焼ガスが充満して膨張した熔融火球を認めることができる。過去に清水<sup>(9)</sup>は、燃焼中の火球成分は硫化カリウム( $\text{K}_2\text{S}_x$ )、チオ硫酸カリウム( $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_3$ )、硫酸カリウム( $\text{K}_2\text{SO}_4$ )、炭酸カリウム( $\text{K}_2\text{CO}_3$ )、炭素(C)などであるとした上で、化学反応として次式を提示した。



伊藤<sup>(7)</sup>は、以下の式を示している。



次に、 $t=1\text{ms}$  では、十分高圧になった火球が破裂し、矢印で示

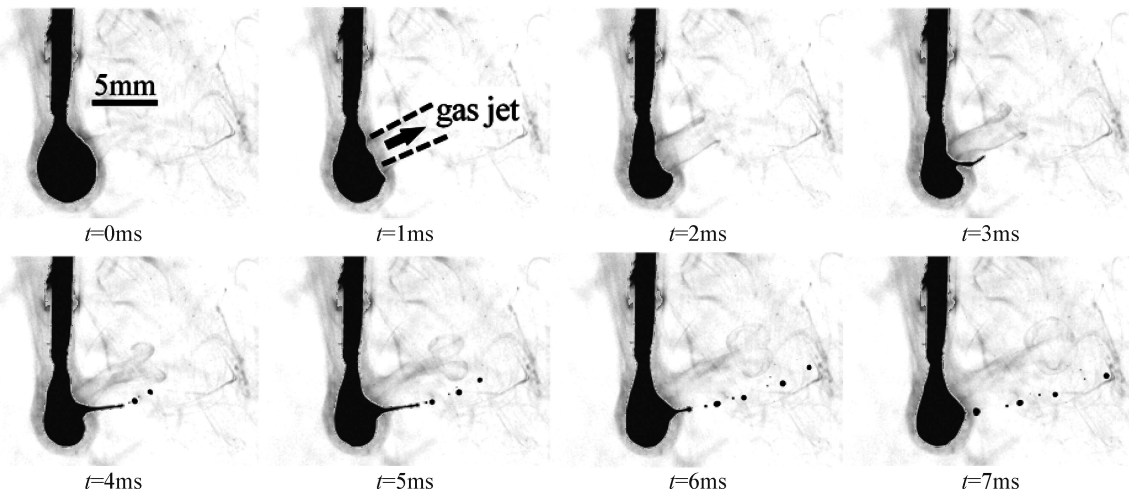


Fig.4 Time series images of the bursting fireball, and ejection of gas and droplets. (backlighting image in stage2)

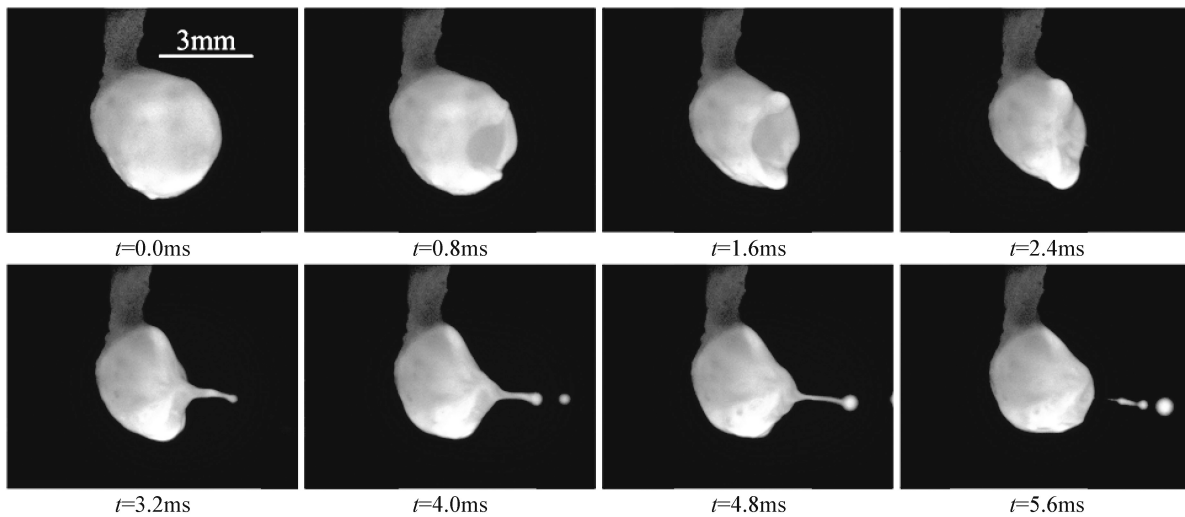


Fig.5 Time series images of droplet generation process. (stage2)

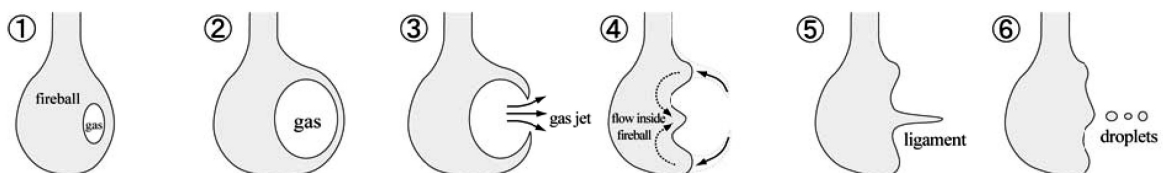


Fig.6 Schematic of droplet generation process. (vertical cross sectional view in stage2)<sup>(8)</sup>

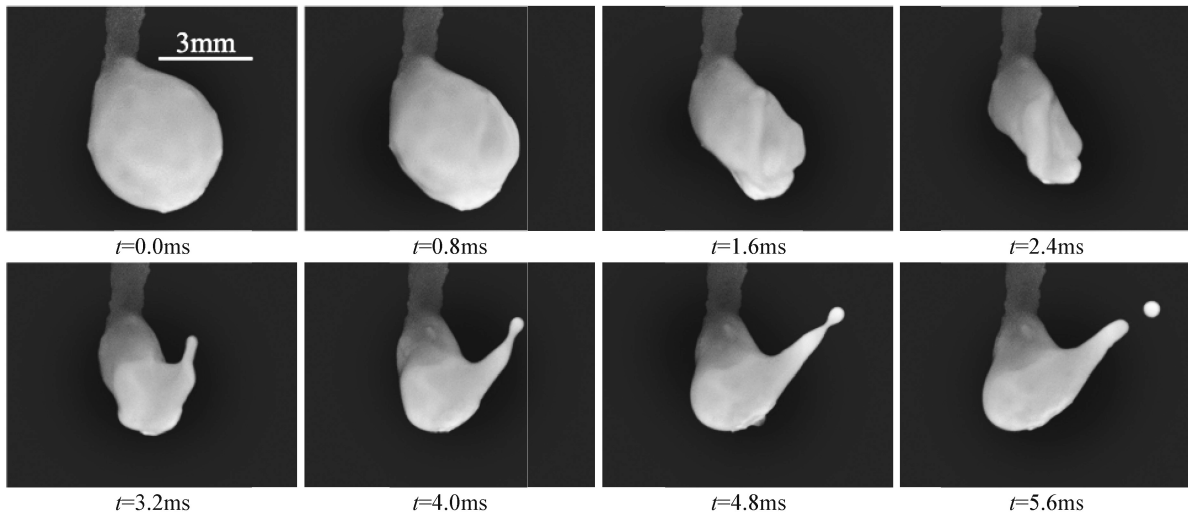


Fig.7 Time series images of droplet generation process enhanced by shrinking fireball. (stage2)

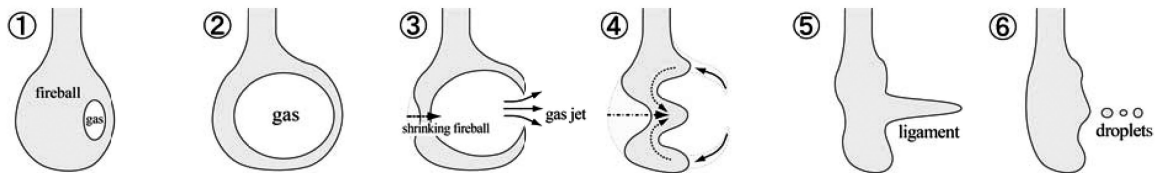


Fig.8 Schematic of droplet generation process enhanced by shrinking fireball. (vertical cross sectional view in stage2)

すように、数 m/s で右上方向へとガスが噴出するのと同時に、火球が収縮する。ただし、この噴流は火球を取り囲む煙と内部のガスの両者が混在している。その後  $t=3\text{ms}$  に、火球の右手から液糸が水平方向に伸長する。噴流の方向と液糸の方向が異なること、また、ガス噴出後に液糸が成長することから、噴流は液糸の生成に直接寄与しないと推察できる。 $t=4\text{ms}$  以降で、液糸からいくつかの液滴が分裂し、飛散する。飛散した液滴が周囲酸素と反応して火弾となる。

### 3.1.2 火球からの火弾放出機構

図 5 に、stage2 における自発光写真を時系列に示す。 $t=0.0\text{ms}$  において膨張した火球の右側が、 $t=0.8\text{ms}$  で破裂して穿孔が形成される様子を確認できる。一旦、穿孔が形成されると、縁に作用する表面張力によって、 $t=2.4\text{ms}$  にかけて穿孔が拡大する。その後、 $t=3.2\text{ms}$  において、火球内部から液糸が伸長し、 $t=4.0\text{ms}$  で分裂する。これらの可視化結果を踏まえて、火球からの液滴放出過程を、図 6 に模式的に示す。ここでは火球断面を示している。

- ① まず、熔融した火球の内部に燃焼ガスが発生し、
- ② 次第に燃焼ガスが増加することで火球が膨張する。
- ③ 内部の圧力が十分上昇すると、火球が破裂し、同時に燃焼ガスが噴出する。
- ④ その後、火球表面の穿孔が表面張力によって拡大し、穿孔の縁が火球本体へと取り込まれる。すると火球内部に発生した流れが集中して凸部が形成され、
- ⑤ 凸部が液糸となって伸長する。
- ⑥ 最終的に、液糸が分裂して液滴が放出される。

以上より、火球からの火弾放出は、火球表面ではなく、火球内部から生じることが分かる。なお、火弾の放出方向が水平方向に偏在するのは、火球内部に炭化した紙縊りが存在するためである(付録を参照)。

膨張時の火球を構成する膜が薄い場合における火弾放出過程の可視化結果を図 7 に、その模式図を図 8 に示す。膜が薄いときは、図 5 および図 6 で見られた火球に形成される流れの効果に加えて、火球全体が収縮することで液糸の生成が強化され、太い液糸から火弾が飛散する。

### 3.2 Stage3 における火弾放出過程

火球からの火弾放出過程を可視化した結果を、図 9 に示す。Stage2 の時とは異なり、火球は紡錘型をしており、全体が大きく変形することはない。表面に多数の気泡の存在を認めることができる。火球の左側に見える光源は、飛散した火弾が発光したものである。時系列に見ると、 $t=0.1\text{ms}$  において、火球の右上の泡が破裂してできた孔が拡大する。その後、 $t=0.5\text{ms}$  にかけて液糸が成長し、やがて先端から液滴が分裂する。現象を模式的に図 10 に示す。Stage3 の火弾放出現象は、stage2 と比べて時間・空間スケールが小さいものの、泡の破裂に伴って火弾が放出されるという機構そのものは同じであることが分かる。Stage3 では、火弾は火球表面の多数の泡から放出されるため、図 2(c)に示すように火弾が火球を取り囲む。なお、stage4 における火弾放出過程も stage3 と同様であることを確認している。従って、線香花火の火弾は常に火球内部から放出されるため、放出直後の火弾は周囲酸素と十分に反応しておらず発光しない。その結果、例えば図 2(d)において、火球と火弾の光は連続しておらず、間に暗い領域が存在する。以上で述べた泡の破裂に伴う液滴生成は、例えば、水面上の気泡の破裂<sup>(10)</sup>時にも類似の現象を確認できる。

### 3.3 火弾の破裂

Stage3 における火球から火弾が放出される際の可視化結果を、図 11(a)に示す。矢印で示した液滴は、火球を離脱して約 30ms 後に破裂する。同液滴が破裂する様子を、時系列に図 11(b)に示す。 $t=0\text{ms}$  まで大きさを変えずに飛散した液滴は、 $t=0.1\text{ms}$  から、内部でのガス発生によって、急激に膨張・破裂を繰り返す。 $t=1.3\text{ms}$  で 3 つに分裂したそれぞれの液滴が再び膨張・破裂し、多数の液滴が生成される。こうしてできた個々の液滴が周囲酸素と反応して、松葉状の火弾になる。液滴の色が、次第に薄くなるのは、表面温度が上昇して明るくなるためである。一連の過程は、液滴内部にガスが発生して破裂に至る、液滴の微小爆発現象<sup>(11)-(13)</sup>と類似している。しかし、火弾内部で発生するガス種およびガス発生機構について、その詳細は現在のところ明らかにされていない。

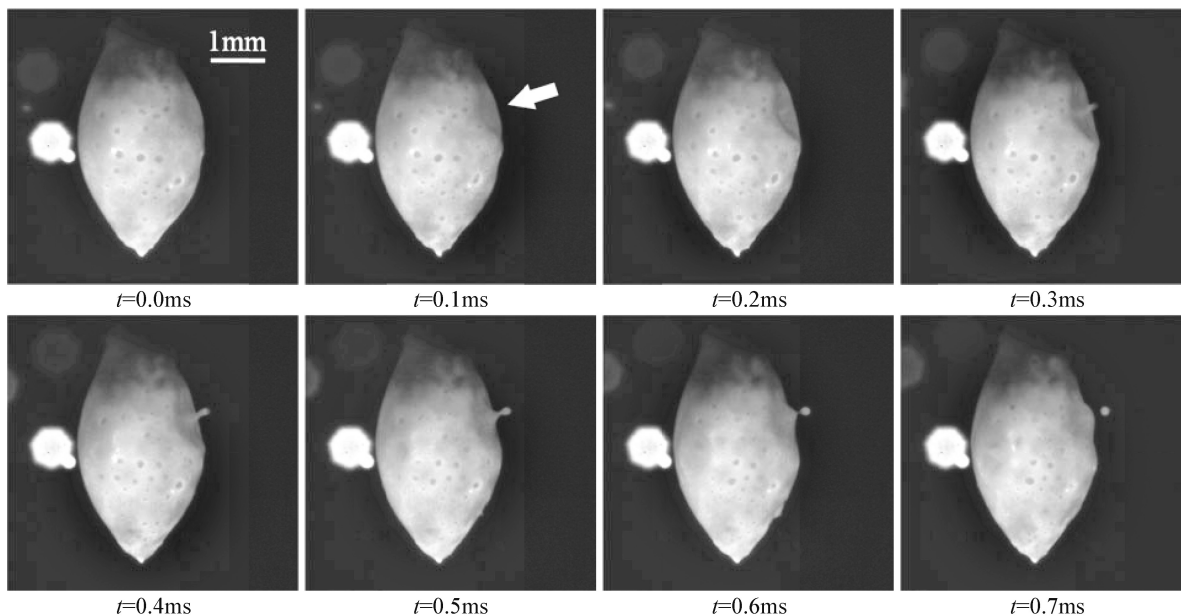


Fig.9 Time series images of droplet generation process. (stage3)

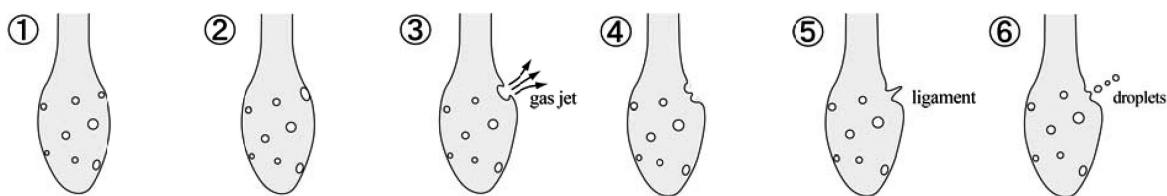
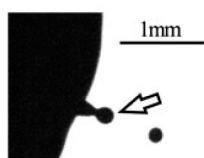
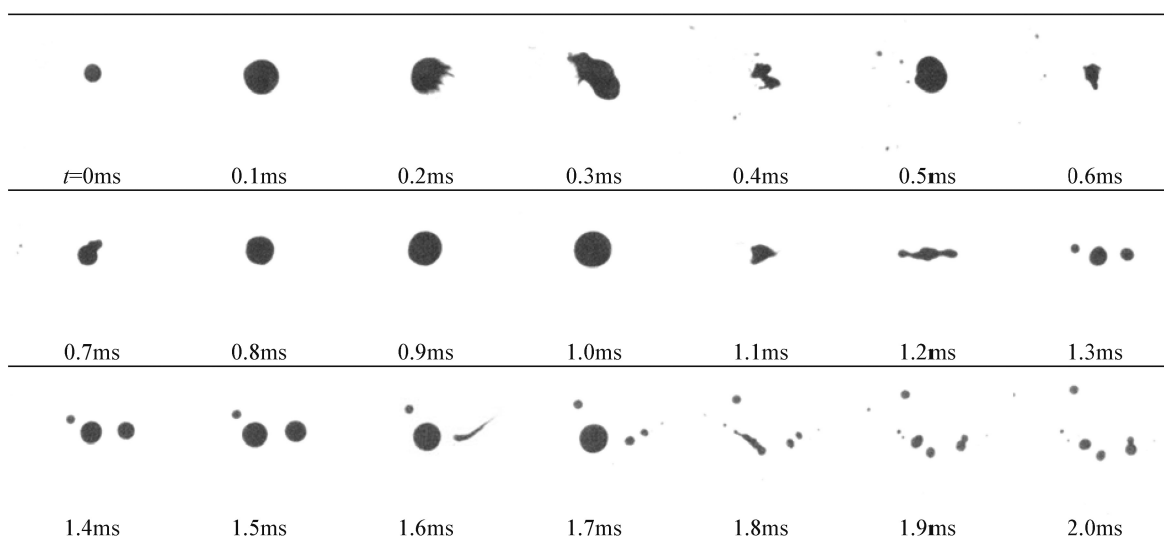


Fig.10 Schematic of droplet generation process. (stage3)



(a) Droplet to be burst



(b) Time series images in every 0.1ms  
Fig.11 Bursting droplet by microexplosion

( $t=0$ ms corresponds to the time approximately 30ms after droplet ejection.)



#### 4. 火球の物性値

可視化結果をもとに、火球密度  $\rho$  [kg/m<sup>3</sup>]、表面張力係数  $\sigma$  [N/m]、火球に貫入する酸素の物質拡散係数  $D$  [m<sup>2</sup>/s] の値を推定する。

##### 4.1 火球の表面張力係数

点火後、stage2 に達した線香花火を二酸化炭素中で消火し、10 個の火球の質量を電子天秤((株)エー・アンド・デイ GR-60 計測精度±0.4mg)で計測したところ、火球一個あたり約 30mg であった。火球内部に燃焼ガスが存在しない、収縮時の直径が約 3mm であることから、火球密度は  $\rho \sim 2000$  kg/m<sup>3</sup> と求められる。また、膨張時の直径  $D$  が  $D \sim 4$  mm であることから、膨張時の火球の膜厚さ  $h$  は  $h \sim O(10^{-1})$  mm である。次に、火球破裂開始時刻を  $t=0$  ms として、時系列の穿孔直径を、図 12 に示す。火球破裂後 1ms 間に穿孔直径が 2.5mm (半径が約 1.3mm) 拡大することから、穿孔の拡大速度  $V$  は、 $V \sim 1$  m/s である。ところで、火球の表面張力係数  $\sigma$  [N/m] を用いて、速度  $V$  を次式で表すことができる<sup>(14)</sup>。

$$V \sim (\sigma / \rho h)^{0.5} \tag{4}$$

これより、 $\sigma \sim O(10^{-1})$  N/m であると推算できる。なお、図 12 において、穿孔直径の広がりが次第に緩やかになるのは、穿孔の縁が次第に厚くなる ( $h$  が大きくなる) ためである。続いて、

火球内部のラプラス圧力  $p$  [Pa] は、次式から求められる。

$$p = 4\sigma / D \sim O(10^2) \tag{5}$$

よって、燃焼ガスが充満した火球内部は雰囲気より数 100Pa ほど高压になる。

##### 4.2 火球における酸素の拡散係数

Stage2 において、火球が破裂する際の可視化結果を、図 13 に示す。膨張した火球 ( $t=0$  ms) は、 $t=1$  ms で破裂する。火球下部にできた穿孔が  $t=2-4$  ms にかけて拡大しながら、内部の燃焼ガスを放出する。火球内部に気泡の発生を確認できないことから、周囲酸素は火球を構成する膜を貫通して内部に到達しない。 $t=5$  ms において、表面張力によって駆動された慣性力によって、液糸が伸長する。同時に、火球内部の一部が外部に露出する。その結果、 $t=6$  ms 以降、周囲酸素と反応して生成された燃焼ガスが、多数の気泡となって現れる。矢印が新たに発生した気泡を表す。

火球の膨張収縮の周期である約 10Hz の間に、周囲酸素は火球を貫入して内部に供給されない。そこで、火球中の酸素の拡散係数  $D$  [m<sup>2</sup>/s] とすると、次式が成り立つ。

$$D < h^2 / \tau_D = 10^{-7} \text{ [m}^2/\text{s]} \tag{6}$$

ここで、火球の膨張収縮周期  $\tau_D \sim 0.1$  s、火球膜厚さ  $h \sim 0.1$  mm である。式(6)より、火球における酸素の拡散係数は、高々  $D \sim 10^{-8}$  [m<sup>2</sup>/s] と推定される。

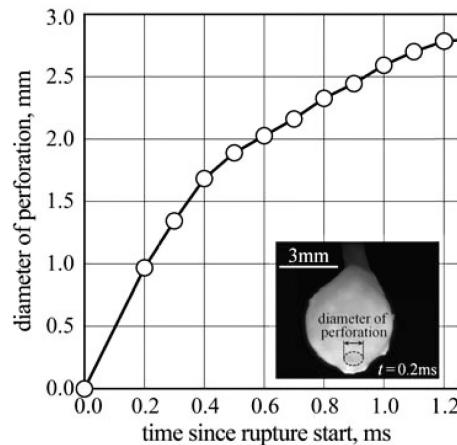


Fig.12 Time variation of the perforation diameter. (stage2)

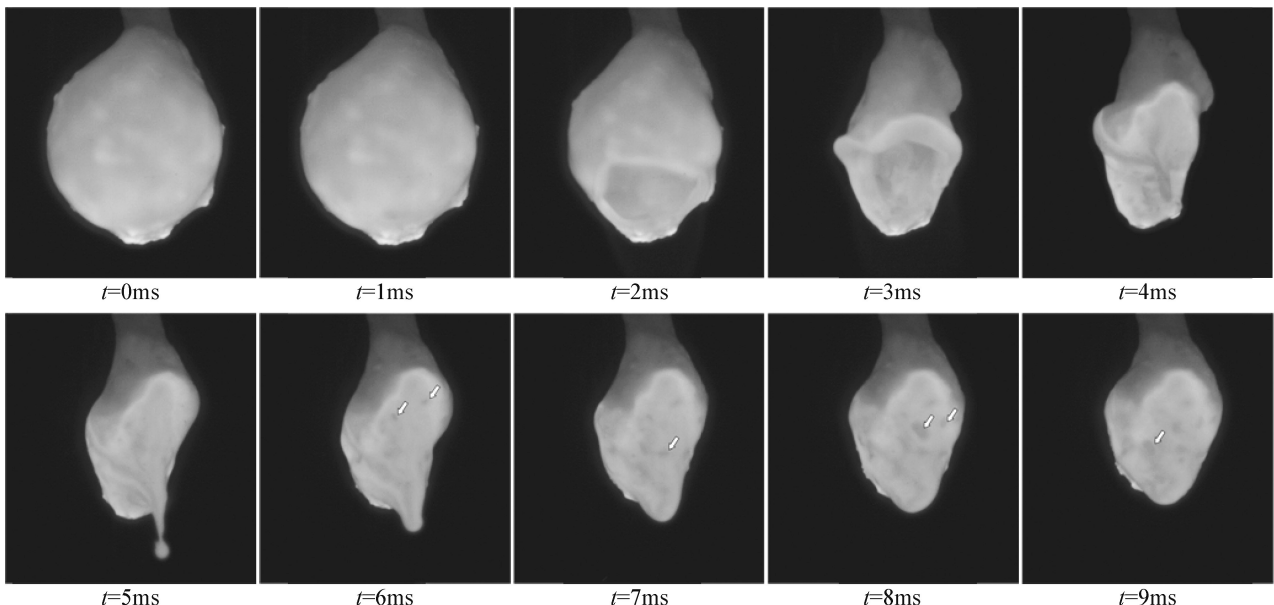


Fig.13 Time series images of bubble generation after bursting fireball. (stage2)

### 5. 火球内部への酸素供給機構

Stage2 では、火球内部への酸素の供給と燃焼ガスの発生が、火球の破裂および火弾の放出に不可欠である。しかし、火球内部への酸素供給機構は明らかでない。また、前章より、周囲酸素は分子拡散のみでは火球内部に貫入できない。

図 14 に、連続した 2 回の火弾放出時の様子を示す。膨張した火球( $t=0\text{ms}$ )の右下矢印部に穿孔が生じ、拡大する。縁に作用する表面張力によって、孔は広がりながら( $t=1-3\text{ms}$ )、再度火球へと引き戻されて一体化する( $t=4-7\text{ms}$ )。その後しばらくすると再度火球が膨張し、 $t=50\text{ms}$  で火球の左下が破裂して、火弾が放出される。この可視化結果に基づき、火球内部への酸素供給機構として、破裂後の表面張力に駆動された火球の運動によって、酸素が拡散した表面の一部が内部に取り込まれると考える。この過程を、図 15 に模式的に示し、以下で説明する。

- ① 周囲酸素が拡散によって火球表面に蓄積される。火球の外皮は、周囲酸素と反応する。同時に、火球内部に燃焼ガスが堆積し始める。外皮の太線は、酸素が拡散した領域を模式的に示している。(図 14 の  $t<0\text{ms}$ )
- ② 火球表面に蓄積された酸素が増加する。同時に、内部の燃焼ガスが増加し、火球は膨張する。(  $t=0\text{ms}$  )
- ③ 火球内部圧力が上昇して破裂する。生じた穿孔は、次第に拡大する。(  $t=1\text{ms}$  )
- ④ 表面張力によって穿孔の縁が太くなりながら、火球に引き戻される。このとき火球は収縮する。(  $t=3\text{ms}$  )
- ⑤ 穿孔の縁が巻き込まれるように火球と一体化し、酸素が貫入した外皮の一部が内部に取り込まれる。同時に、液糸が伸長・分裂して液滴が放出される。(  $t=4-7\text{ms}$  )
- ⑥ 火球が破裂した位置から約 90 度位相がずれた位置に、酸素が多く取り込まれる。(  $t=8\text{ms}$  )
- ⑦ 以降、取り込まれた酸素が火球内部の炭素と反応して、燃焼ガスが発生し、気泡が成長する。一部の気泡は液滴放出

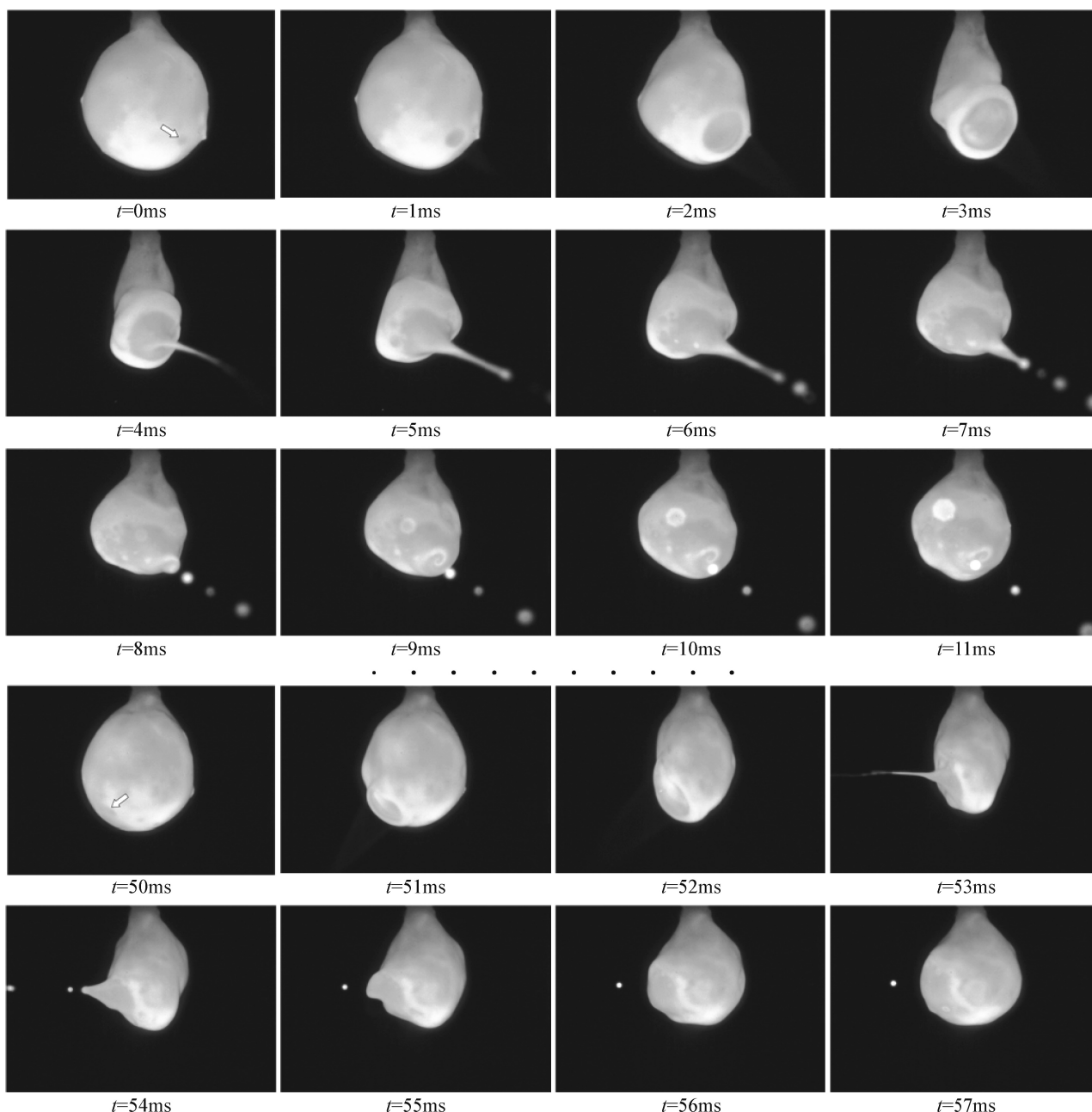


Fig.14 Time series images of consecutive droplet ejection process. (Stage2)

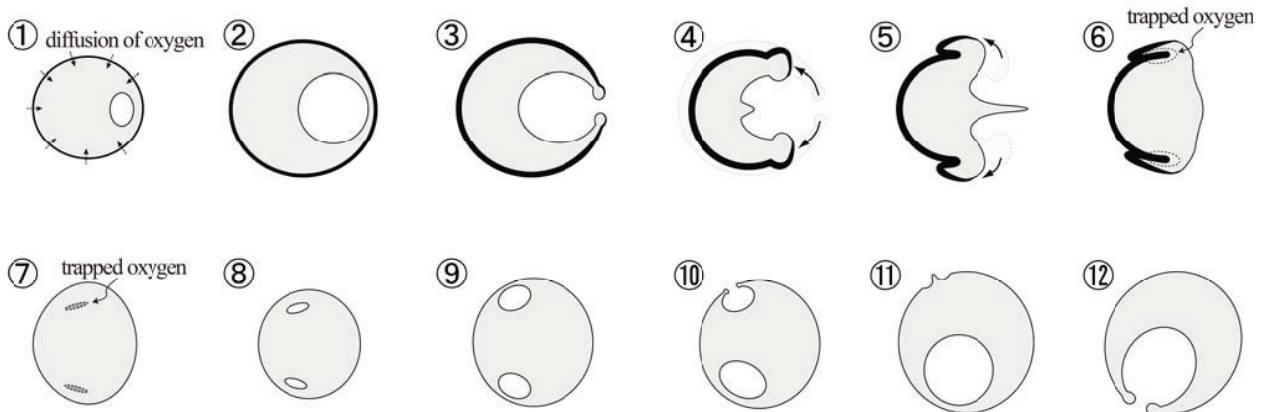
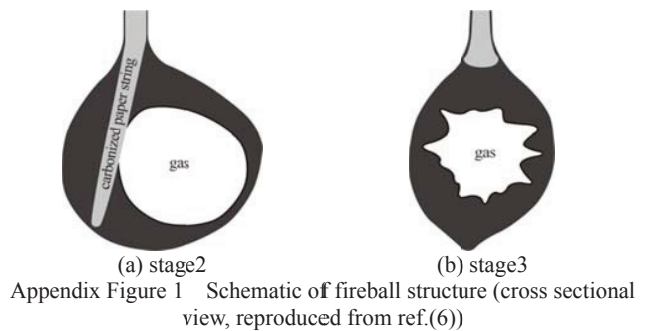


Fig.15 Oxygen supply by motion of fireball and molecular diffusion. (stage2, horizontal cross sectional view.)

を伴わずに破裂し、一部は液滴を放出するに至る。(t>10ms)  
 この考えに基づくと、ある方向に火弾が放出された後、次の火弾は別の方向に飛散する。図2(b)を見ると、火弾が火球の左右に飛散していることを確認できる。

Stage2 では、火球表面への酸素の拡散と、表面張力に駆動された破裂時の火球の運動の二つの効果によって、火球内部に酸素が取り込まれる。Stage3 と stage4 の段階でも、両者が重要であるものの、気泡のスケールが小さくなるので、拡散の効果が相対的に重要になる。



Appendix Figure 1 Schematic of fireball structure (cross sectional view, reproduced from ref.(6))

## 6. 結論

400年の謎である線香花火の美の物理を明らかにすることを目的に、火球と火弾を高速度カメラで鮮明に可視化することで、線香花火における液体微粒化現象がより詳細に明らかになった。以下の結論を得た。

- (1) 火弾は火球内部から放出される。花火の前半では、火球破裂時に火球に発生する流れが集中することで液糸が伸長し、火弾が放出される。加えて、火球の膜厚が薄い場合には、火球収縮の効果も相まって火弾が勢よく放出される。火球からのガス噴出は、火弾放出に直接寄与しない。
- (2) 花火の後半では、紡錘型の火球表面にできた多数の気泡が局所的に破裂することで、多くの火弾が放出される。
- (3) 火球の表面張力係数は  $O(10^{-1})\text{N/m}$  である。火球における酸素の拡散係数は  $O(10^{-8})\text{m}^2/\text{s}$  である。
- (4) 火球表面への酸素の拡散と、表面張力に駆動された破裂時の火球の運動の二つの効果によって、火球内部に酸素が供給される。

今後は、非定常温度計測と熱分析試験を通じて、より詳細な火弾破裂機構を明らかにする予定である。

## 謝 辞

本研究は、日本液体微粒化学会からの2014年度微粒化研究推進助成の支援を受けた。(株)Photronの桑原譲二博士には可視化実験に協力頂いた。山口大学の三上真人教授には液滴微小爆発に関して有益なコメントを頂いた。ここに記して深謝する。

## 付 録

過去に前田ら<sup>(6)</sup>が X 線によって可視化した火球内部構造の模式図を、付図1に示す。Stage2 と stage3 のいずれの場合も火球内部はガスが充満した空洞となっていると報告している。Stage2 では、炭化した紙縷りが存在しない方向に液滴が多く放出される。

## 文 献

- (1) 小勝郷右：花火-火の芸術-, 岩波新書, 第3刷(2006).
- (2) 武藤輝彦：日本の花火のあゆみ, リーブル(2000).
- (3) 寺田寅彦：寺田寅彦随筆集, 岩波文庫, 第2巻, 第22刷(1964).
- (4) 中谷宇吉郎, 関口讓：線香花火および鐵の火弾に就いて, 理化学研究所彙報, 第6巻下, 第12号(1927), 1083-1103.
- (5) 清水武夫：線香花火に関する研究, 工業火薬協会誌, 第18巻, 第5冊(1957), 359-369.
- (6) 前田明ら：線香花火の研究 第1部~第4部, 東京都立新宿高等学校定時制 物理部(1962).
- (7) 伊藤秀明：線香花火の実験的考察—熔融  $\text{K}_2\text{Sn}$  中の石墨結晶の構造的酸化反応—, 化学と教育, 第39巻, 第6号(1991), 70-73.
- (8) Inoue,C., Koshi,M, Terashima,H., Himeno,T. and Watanabe,T.: Origin of Droplets in Sparkling Fireworks, Sci. Tech. Energetic Materials, Vol.74, No.4(2013), 106-111.
- (9) 清水武夫：花火の話, 河出書房新社, 第1刷(1976).
- (10) Kientzler,C.F., Arons,A.B., Blanchard,D.C. and Woodcock,A. H.: Photographic Investigation of the Projection of Droplets by Bubbles Bursting at a Water Surface, Tellus, Vol.6, No.1(1954), 1-7.
- (11) Lasheras,J.C., Fernandez-Pello,A.C., and Dryer,F.L.: Experimental Observations on the Disruptive Combustion of Free Droplets of Multicomponent Fuels, Combustion Science and Technology, Vol.22(1980), 195-209.
- (12) Lasheras,J.C., Fernandez-Pello,A.C., and Dryer,F.L.: On The Disruptive Burning of Free Droplets of Alcohol/N-Paraffin Solutions And Emulsions, Eighteenth Symposium (International) on Combustion, Vol.18(1981), 293-305.
- (13) Mikami,M, and Kojima,N.: An Experimental and Modeling Study on Stochastic Aspects of Microexplosion of Binary-Fuel Droplets, Proceedings of the Combustion Institute, Vol.29(2002), 551-559.
- (14) De Gennes,P.G., Brochard-Wyart,F. and Quere,D(共著), 奥村剛(訳)：表面張力の物理学, 吉岡書店, 第2版, 第4刷(2012).