2次元イメージ処理分光装置によるフレイム中の 発光強度空間分布の測定

相馬 憲一・小豆畑 茂・宮寺 博

株式会社日立製作所日立研究所 日立市久慈町 (〒319-12)

(1987年1月8日受理)

Measurement of the Spatial Distribution of Flame Emission Intensities
Using a 2-Dimensional Imaging Spectrometer

Ken-ichi SOHMA, Shigeru AZUHATA and Hiroshi MIYADERA

Hitachi Research Laboratory, Hitachi, Ltd., Kuji-cho, Hitachi 319-12

(Received January 8, 1987)

The present study demonstrates spatially resolved distributions of radical emission (C_2 , OH and CH) for propane/air premixed flat flame at a low pressure (100 torr), by using a 2-dimensional imaging spectrometer has high spatial and resolution and can be scanned continuously over ultraviolet through visible region (200 nm~760 nm). This instrument consists of an objective lens, two gratings, an intermediate slit, an image slit, an image intensifier and an ocular lens. Two gratings are arranged and moved symmetrical for an intermediate slit. The first grating works as a light scatter and the second one is used as light. The intermediate slit, which is set up between first and second grating, controls the scattered light incident on the second grating. The light reflected by the second grating is focused on the face of the image intensifier. The electrically shuttering of the image intensifier controls the detection time of this instrument.

1. 緒 言

フレイム中に存在するラジカルや活性分子を検出することは、燃焼反応やフレイム構造を解明する上で重要である。通常、化学種の測定にはサンプリングプローブを用いるが、この方法では燃焼の場を乱し、更には活性種を失活させるため、非接触の計測技術が必要となる。この要求を満足する計測法として、発光分析やLIF (Laser Induced Fluorescence) 法が有効であることは、既に知られており、いくつかの報告がある^{1)~3)}。

これらの手法では、特定波長のみの蛍光を測定する手

段が必要とされる。当初、測定対象の特定の点に対して、分光器により特定波長の蛍光の検出が行われていた^{3)~8)}。その後、フレイム構造解明のために、フレイム中での化学種の分布の観察が要求され、測定点をフレイム中で移動しフレイム全体の情報を得る方法が採られた。次いで、測定対象の任意の線上について計測する方法が、M. Alden等^{9),10)}により開発された。さらに、面の計測すなわち画像として計測する方法が、M.G. Allen等^{11),12)}, G. Kychakoff等¹³⁾により開発された。これら、線や面としての計測においては、干渉フィルタを用いて、特定波長の光のみが検出されていた。しかしながら、干渉フィ

ルタを用いる方法では、フィルタを交換して波長を選択するために、連続的に波長の測定ができず、さらに、測定対象化学種の箇数が多い場合や、蛍光波長が不明である場合には、多くの干渉フィルタを必要とする。また、干渉フィルタによる光強度の減衰が大きい、使用環境により特性が一定しない等の問題があり、その改善が課題とされていた。

そこで、本報では任意の発光体から必要な波長の光のみを画像として連続的に検出できる、2枚の回折格子から構成した2次元イメージ処理分光装置、及びそれを用いたプロパン/空気予混合フラットフレーム中ラジカル分布の測定例について報告する。

2. 2次元イメージ処理分光装置の原理と構成

2.1 原理

通常のカメラでは、測定対象の光を対物レンズで集光し、その全波長成分についてフィルム面上に結像するような光学系を用いて画像を得ている。2次元イメージ処理分光装置では、通常のカメラのフィルムの代りに、波長に依って反射角度が異なる分光素子である回折格子を配置し、Fig. 1 に示す概念に基づき、波長毎 ($\lambda_i, \lambda_j, \lambda_k$) に結像させようとしたものである。

本装置では、echellette 型平面回折格子を用いた。断面図を Fig. 2 に示す。この型の回折格子は、のこぎり

Fig. 2 Sectional view of echellette plane grating. AO: incident light ray; OB: scattered light ray; NO: direction normal to the back plane of the grating; MO: direction normal to the face of the groove.

歯状の断面を持つ。図のように、角度 θ, α, β 、長さ d を定めると、1つの溝と隣りの溝で回折を起す光の光路差が、波長 λ の整数倍に等しいときに、回折光は強め合うので、

$$m\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (1)$$

$$m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$

の関係が得られる。(1)式によれば、例えば $m=1$ について考えると、回折格子平面に入射する光 AO の入射角 α を決めれば、波長 λ の光は同平面に対して出射角 β の方

Fig. 1 Conceptual diagram of a 2-dimensional imaging spectrometer. Incident light is scattered by a grating, yielding images at different wavelengths λ .

Fig. 3 Scattering of incident light by echellette plane grating. l_1 : light of wavelength λ_1 ; l_2 : light of wavelength λ_2 ; l_t : $l_1 + l_2$; NO: direction normal to the back plane of the grating.

向に回折される¹⁴⁾。従って、入射光 l_t が波長 λ_1 の光 l_1 と波長 λ_2 の光 l_2 ($\lambda_1 > \lambda_2$) から構成される時、Fig. 3 のように、(1)式により l_1 は格子平面に対する法線 NO から出射角 x 方向に、 l_2 は出射角 y 方向に回折される。このように示されるのは、 λ_1 と λ_2 が回折格子の分解能以上に波長間隔がある場合である。

Fig. 4 Light path in a standard monochromator. Incident light, l_t , consists of three distinct, narrow spectra centered at wavelengths λ_i, λ_j , and λ_k .

分光器において、例えば l_t が $\lambda_i, \lambda_j, \lambda_k$ のバンド幅の狭いスペクトルで構成される場合、Fig. 4 に示すように l_t は分散され、出射スリットから直角に出射される波長 λ_j の光のみが検出される。

Fig. 1 においては、スクリーンが検出器に対応し、スクリーンが3枚あれば、各波長毎の画像が得られることを示す。通常、スクリーンすなわち検出器は1枚なので、回折格子を回転し、順次波長毎の画像を得る。

2.2 構成

上記原理において、 l_t がバンド幅の広いスペクトルを持つ場合については、Fig. 5 に示すように分散された光もまた、ある波長幅を持って検出器に入射する。これを Fig. 1 に対比させると、1枚のスクリーン上に縦方向ににじんだ帯状の画像となり、2次元（イメージ）の分光ができないことを意味する。そこで、Fig. 5 のように l_t がバンド幅の広いスペクトルを持つ場合についても、2次元分光が可能な光学系が要求される。

ここでは、回折格子を光混合素子として用いる工夫に対応した。すなわち、通常、回折格子は入射光を、その構成波長毎に分散方向を変え分光する素子として用いられるが、この機能を逆に利用することにより、光混合素子としても機能させることができる。

Fig. 3 に示した光路とは逆に、 l_1 及び l_2 を格子平面に対する法線 NO からの角度をそれぞれ x, y として同一点 O に入射させるならば、回折格子は、その点 O から格子平面に対する法線 NO からの角度 z 方向に l_t として、光を混合して反射させる機能を果たす。

Fig. 6 に、この考え方に基づいて構成した2次元イメ

Fig. 5 Light path in a standard monochromator. Incident light, l_t , consists of continuous spectral band.

Fig. 6 Light path in a 2-dimensional imaging spectrometer.

ーシ処理分光装置の光学系の概略を示す。第1分光器は、Fig. 5 に示す分光器と同様であり、ここで用いる回折格子は光分散素子として機能する。分散された光の一部は、中間スリットを経て第2分光器へと入射する。この分光器の回折格子を、光混合素子として用いることにより、第2分光器の出射スリットから出て来る光は分散しない光となる。Fig. 1 に対応させるならば、1枚のスクリーン上ににじみなく結像する。なお、第1分光器と第2分光器は、ほぼ対称的な光学配置とし、2枚の回折格子の駆動についても、光学的対称性を維持するように工夫した。

第2分光器へ入射される光の波長域は、第1分光器の回折格子の角度により決まり、その波長域についての微

分の程度は、中間スリットの幅により決まる。

本装置の光学系は0分散形の分光器としたので、第1分光器の分解能で装置全体の波長分解能は決定される。ここでは、1200本/mmの回折格子を使用し、500 nmにおける分散が2.4 nm/mm、入射スリット及び中間スリットの最大開口幅は2mm であるので、第2分光器への入射光について、最大 4.8 nm の線幅を持つ入射光を、分散しない光として出射スリットから出射させることができ、にじまない画像として結像可能である。

3. 2次元イメージ処理分光装置の性能

2次元イメージ処理分光装置の性能を、Fig. 7 に示す

Fig. 7 Schematic diagram of a 2-dimensional imaging system.

Fig. 8 Transmittance characteristic of color filters. Filters A, B and C transmit light at wavelengths greater than 390 nm, 460 nm and 620 nm, respectively.

方法によって調べた。黒色板を四角形 (30mm×30mm), 円形 (直径30 mm), 正三角形 (一辺 30mm) に切り抜き, 波長 390 nm 以上の光を50%以上透過する色フィルタ(A)を四角形の孔へ, 波長 460 nm 以上の光を50%以上透過する色フィルタ(B)を円形の孔へ, 同様に, 波長 620 nm 以上透過する色フィルタ(C)を三角形の孔へはり付け, 後方から白色光を照射して測定対象とした。白色光源には, 太陽光を用いた。測定対象からの光は, 太陽光スペ

クトルと Fig. 8 に示す色フィルタの波長特性により決定されるので, バンド幅の狭いスペクトルを持つ光ではなく, ある波長幅を持つブロードなスペクトルの光となる。

測定対象からの光を対物レンズにて集光し, 2次元イメージ処理分光装置から射出する光を, 有効径18mmのイメージインテンシファイア(紫外光～可視光領域対応)を用いて増幅し, 観察した結果を Fig. 9 に示す。2次

Fig. 9 Resolution of a 2-dimensional imaging spectrometer. Photo 1: 300 nm; Photo 2: 400 nm; Photo 3: 500 nm; Photo 4: 600 nm; Photo 5: 700 nm.

元イメージ処理分光装置の波長設定を 300 nm とした時には、いずれのフィルタからも光は透過しないので像は得られない (Photo 1). 400 nm に設定して初めて、390 nm 以上透過のフィルタから光が透過し、四角形が観察できた (Photo 2). 同様に、500 nm に設定した時には、460 nm 以上透過のフィルタからの光として四角形及び円形が観察できた (Photo 3). 測定は 700 nm まで行い、波長分解能及び伝達画像の空間分解能について、良好な結果を得た (Photo 4, Photo 5).

4. フレーム中ラジカル分布の測定

次に、フレームの流れ方向にのみ温度、濃度分布を持つプロパン/空気予混合フラットフレームを対象とし、フレーム中ラジカルの発光強度分布の測定を試みた。フレームは約 100 torr の減圧下に形成し、発光帯をフレームの流れ方向に引き延し、発光強度分布を観察しやすくした。

バーナーを Fig. 10 に示す。予混合室には、プロパンと空気とが充分混合するように、グラスウール、アルミナビーズ (1 mm^φ) を充填した。混合気体の噴出ノズルには、均一なフレームを得るために、孔径 50 μ m, 気孔率 50% の SUS 製焼結板を用いた。空気比は、供給された燃料を完全燃焼させるに必要な理論空気量に対して空気過剰な 1.4 とした。

このフレーム全体の発光を、JASCO CT-100 型モノクロメーター (焦点距離 1000mm, 1200本/mm 回折格子) にて分光分析した結果を Fig. 11 に示す。306 nm から 330 nm 付近までと、431 nm, 517 nm に強い発光が観察される。306 nm 付近から 330 nm 付近までの広い波長領域で観察される発光は、OH ラジカルの $^2\Sigma \rightarrow ^2\Pi$ 遷移による。431 nm の発光は、CH ラジカルの $^2\Delta \rightarrow ^2\Pi$

Fig. 10 Configuration of a premixed flat flame burner.

遷移による。387 nm 付近の発光もまた CH ラジカルによる。517 nm の発光は、 C_2 ラジカルの $^3\Pi \rightarrow ^3\Pi$ 遷移による。他に、 C_2 ラジカルによる発光は、438 nm 付近及び 474 nm 付近にも観察される。

OH ラジカル、CH ラジカル及び C_2 ラジカルは、炭化水素系燃料を用いたフレームでは容易に観察される発光である。また、図中 336 nm 及び 359 nm の発光は、それぞれ NH ラジカルの $^3\Pi \rightarrow ^3\Sigma$, CN ラジカルの $^2\Sigma \rightarrow ^2\Sigma$ 遷移による。これらは、燃料プロパン中に約 1000 ppm NH_3 を添加したために観察された。なお、スペクトルの帰属は、Gaydon の文献¹⁾により行った。

得られたスペクトルを基に、OH ラジカル、CH ラジカル、 C_2 ラジカルについて、それぞれ中心波長を 308 nm, 431 nm, 517 nm として 2 次元分光を行った結果を Fig. 12 に示す。なお、入射スリット及び中間スリットの幅は 2mm としたので、測定波長幅は中心波長から ± 2.4 nm となる。フレームと 2 次元イメージ処理分光装置との距

Fig. 11 Emission spectrum of a propane / air premixed flame. Ammonia was added to the fuel / air mixture.

離は、さきほど同様1100mmとした。

OH ラジカルは、フレイム中の広い領域で発生していることが分り、多くの反応にて生成されていることが予

Photo 1

Photo 2

Photo 3

Fig. 12 Spatial distributions of emission intensities in the flat flame measured with the 2-dimensional imaging spectrometer. Photo 1: OH radical; Photo 2: C_2 radical; Photo 3: CH radical.

想される (Photo 1). 気相析出のすすの前駆物質の1つと考えられている C_2 ラジカル¹⁵⁾は、着火面の極く狭い領域にのみ存在している (Photo 2). 本実験では、空気比が1以上の完全燃焼のフレイムを用いたが、燃料と空気とが充分に混合された完全予混合のフレイムとはなっていないことや、着火面付近ではフレイムの温度が低いこと等が C_2 ラジカルの生成原因として考えられる。なお、生成した C_2 ラジカルは、フレイム全体としては量論的に空気過剰のため、酸化され CO_2 となりフレイム後流ではすすの生成は観察されなかった。

CH ラジカルは、プロパンの解離生成ラジカルの1つであり、その分布は OH ラジカルと C_2 ラジカルの分布の中間に観察された (Photo 3).

以上、CH ラジカルや C_2 ラジカルのように、比較的バンド幅の狭いスペクトルの場合のみならず、OH ラジカルのようにバンド幅の広いスペクトルについても、良好に波長毎の画像が得られることが確認できた。

5. 結 言

以上、フレイム等の発光体について、必要な波長の光のみの画像を連続的に検出することを目的に検討した。その結果、分光素子としての回折格子を光混合素子として使用する光学系とした、2枚の回折格子からなる2次元イメージ処理分光装置を試作し、その性能を確認した。

減圧下にあるプロパン/空気予混合フラットフレイムについて測定した結果、CH ラジカルや C_2 ラジカルのような、バンド幅の狭いスペクトルを有する測定対象のみならず、OH ラジカルのようなバンド幅の広いスペクトルを有する対象についても、良好な画像として観察できた。本装置を用いることにより、フレイム等の発光体中において、測定対象の分布領域が狭い、あるいは分布箇所が不明な時の検出が容易になる。更に、フレイム構造のみならず、プラズマ CVD、放電現象等発光を伴う反応系の解明に有用と思われる。

最後に、本研究は通商産業省工業技術院の石油代替エネルギー関係技術実用化開発費補助金による研究の一環により実施されたものであり、ここに記して謝意を表する。

文 献

- 1) A. G. Gaydon: *Spectroscopy and Combustion Theory* (Chapman and Hall Ltd. London, 1948).
- 2) J. W. Daily: *Appl. Opt.* **15**, 955 (1976).
- 3) D. R. Crosely: *Laser Probes for Combustion Chemistry ACS Symposium Series* (American Chemical Society, Washington, DC 1980).

- 4) P. A. Bonczyk and J. A. Shirley: *Combust. Flame* **34**, 253 (1979).
- 5) R. Cattolica: *Appl. Opt.* **20**, 1156 (1981).
- 6) D. Stepowski and M. J. Cottreau: *Appl. Opt.* **18**, 354 (1979).
- 7) S. J. Harris and A. M. Weiner: *Opt. Lett.* **6**, 434 (1981).
- 8) R. P. Lucht, D. W. Sweeney and N. M. Laurendeau: *Combust. Flame* **50**, 189 (1983).
- 9) M. Aldén, H. Edner, G. Holmstedt, T. Högberg and S. Svanberg: *Appl. Opt.* **21**, 1236 (1981).
- 10) M. Aldén, H. Edner and S. Svanberg: *Appl. Phys.* **B29**, 93 (1982).
- 11) M. G. Allen, R. D. Howe and R. K. Hanson: *Opt. Lett.* **11**, 126 (1986).
- 12) M. G. Allen and R. K. Hanson: *21th Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute (1986)*.
- 13) G. Kychakoff, R. K. Hanson and R. D. Howe: *20th Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute (1984)*.
- 14) 日本化学会編: 新実験化学講座 基礎技術 3 光〔I〕 (丸善, 東京, 1976) p. 149.
- 15) A. G. Gaydon: *The Spectroscopy of Flames* (Chapman and Hall, New York, 1970).