レーザ励起蛍光法による噴流中の濃度測定*

長谷川達也^{*1}, 宮脇浩司^{*2}
山口譽起^{*1}, 大岩紀生^{*1}Concentration Measurement in a Jet by Laser-Induced
Fluorescence MethodTatsuya HASEGAWA, Koji MIYAWAKI,
Shigeki YAMAGUCHI, and Norio OHIWA

Iodine concentrations in a nitrogen cold jet were measured by the laser-induced fluorescence method. The fluorescence signal was found to depend on the jet velocity, but the dependency became negligible above 10m/s as the sampling volume became smaller than the volume of the focal point. Concentration measurements in a cold nitrogen jet were then performed at a velocity of 46.7m/s. The distribution profiles of the average concentration along the jet axis showed familiar jet profiles. The transition to turbulence was recognized by the longitudinal decrease of the peak concentration. The distribution profiles showed self-similarities.

Key Words: Spectroscopic Measurement, Laser, Mass Transfer, Jet, Turbulent Mixing, Laser Induced Fluorescence

1. 緒 言

レーザ分光の手法を用いた原子、分子濃度の測定は、非接触で流れ場を乱すことがなく、時間、空間分解能が高いという特徴を持つ。本研究は、それらの手法の一つであるレーザ励起蛍光法(Laser Induced Fluorescence Method, 以下 LIF 法と略す)を用い、等温噴流中における濃度分布測定を行ったものである。

LIF 法は、ラマン散乱法やレイリー散乱法⁽¹⁾などに比べて散乱強度が大きく、濃度測定には都合がよい。このため、点測定だけでなく、二次元断面濃度分布測定も行われている。ただ、測定対象となる物質の共鳴遷移波長にレーザの発振波長を合せなければならないので、さまざまな物質に対して応用するには、可変波長レーザが必要である。また温度や圧力、周囲気体の濃度変化のある場合には、消尽率に変化が生じるため、これを考慮しなければ定量的測定はできない。

本研究では、アルゴンイオンレーザの波長 514.5 nm の光に対して共鳴遷移線を持つよう素(I_2)の流れの中に混入し、これを濃度の検出対象としている。ま

た圧力がほぼ一定とみなすことのできる、流速が数 m/s～数十 m/s の等温噴流において、濃度測定を行うため、消尽率の変化に関する考慮は本来必要としない。しかし、本研究で扱っているような流速範囲においても、蛍光強度が流速に依存する⁽²⁾という結果が得られており、LIF 法を用いて等温噴流中の濃度のみを測定するうえでの制約となっている。本研究ではその原因について考察するとともに改善を試みた。そのうえで噴流中に混入したよう素分子の濃度分布を LIF 法を用いて測定した。

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置 実験装置の系統図を図 1 に示す。噴流気体には窒素またはヘリウムを用い、マイクロフィルタで 1 μ m 以上の不純物を除去したのち、よう素片の入ったガラス容器を通過させて、よう素を混入する。よう素は 25°C において 41.3 Pa の蒸気圧を持つので、混入は容易であり、混合気に対するよう素の濃度は 0.04% 程度となる。混合気はパイレックスガラス製ノズル(内径 2 mm)から噴流となって流出する。また、ノズル管の外側にガラス球と金網を通して整流された窒素を流す。この外部流は、噴流の周囲のほこりなどの除去、および噴流を外部空気の乱れから保護する役

* 平成元年 3 月 11 日 東海支部第 38 期総会講演会において講演, 原稿受付 昭和 63 年 7 月 28 日。

^{*1} 正員, 名古屋工業大学(〒466 名古屋市昭和区御器所町)。

^{*2} 学生員, 名古屋工業大学大学院。

割を果たす。噴流および外部流は、測定部を通過した後、送風機の負圧を用いて室外へ排気される。

アルゴンイオンレーザ(NEC GLG 3300)より発生したレーザ光(波長514.5 nm, 1 W)は、片凸レンズ1(焦点距離150 mm)で測定部に集光され、その後凹面鏡(曲率半径300 mm)により反射され、再び測定部に集光される。集光部の直径は約0.135 mmである。測定部で発生する蛍光は、レーザ光軸と直交する光軸上に置かれた両凸レンズ2(焦点距離150 mm, 直径80 mm)により集光され、光電子増倍管(浜松ホトニクス R 758)によって電流に変換される。よう素の蛍光は520~700 nmの幅の広い連続スペクトルであるので、レーザ光の波長を除去した蛍光全域の強度を測定するため、光電子増倍管の直前には長波長透過フィルタ(半減波長値540 nm)が設置されている。また入射光量を調整するためのピンホールも同じ位置に置かれている。

蛍光強度は光電子増倍管で検出されたのち、反転増幅器($R=10\text{ M}\Omega$, $C=10\text{ pF}$, 時定数 10^{-4} s)により増幅され、電圧としてパーソナルコンピュータに挿着したA-D変換器(サンプリング時間2.5 μs , 12bit, 4 000ワード)で読取られる。その後、得られたデータから蛍光の平均強度が計算される。

2.2 測定原理 よう素の蛍光波長分布は広範囲にわたるので、蛍光現象を理解するには、準位間の励起移乗を考えなければならない。しかし、本研究のように、広範囲の波長をまとめて測定している場合には、2準位モデルとして理解することが多い。

本研究で用いたアルゴンイオンレーザは、ドップラー効果によって周波数幅が広がったブロードバンドレーザである。またレーザ光の強度は光軸を中心にガウス分布しており、焦点におけるピーク強度は $I_0=1.4\times 10^4\text{ W/cm}^2$ 程度である。よう素が飽和蛍光を起こす

レーザ強度を I_{SAT} とすると、大気圧では $I_{\text{SAT}}=1.5\times 10^5\text{ [W/cm}^2\text{]}$ ⁽³⁾程度であるので、本実験で用いたレーザでは飽和蛍光は起きないと考えられる。このとき、蛍光強度 S_F は式(1)で与えられる⁽⁴⁾。

$$S_F = \eta h\nu \frac{\Omega}{4\pi} V_c \frac{A_{21}}{A_{21} + Q} \frac{B_{12}}{c} I_0 f_1 N_{12} \dots\dots\dots (1)$$

ここで η は光学系の効率、 h はプランク係数、 ν はレーザ周波数、 Ω は測光の立体角、 V_c は被測定体積、 $A_{21}/(A_{21} + Q)$ は励起状態から蛍光を発生して脱励起する割合を示すStern-Volmer因子で、 A_{21} は自然放出率、 Q は消尽率である。 B_{12} は吸収線強さ、 c は光速、 f_1 は基底状態近くにあるよう素分子の割合(ボルツマン分布による)、 N_{12} は単位体積当たりのよう素分子数である。式(1)を導くにあたり、励起されたよう素の解離は無視し、励起移乗は定常状態であるとしている。式(1)の $Q(p, T)$, $f_1(T)$ は温度や圧力の関数であるので、蛍光信号は温度と圧力に依存する。

本実験では、圧力、温度、レーザ出力は一定であるとみなせるので、蛍光強度はよう素の数密度と被測定体積だけに比例する。この場合、蛍光強度は式(2)のように表される。

$$S_F = CN_{12} V_c = CN_{12} u \tau_t \dots\dots\dots (2)$$

ここで C は比例定数、 u は流速、 τ_t はレーザ光の照射されている被測定体積をよう素分子が通過するのに要する時間である。ただし、レーザ光の中を分子が通過する間のみ蛍光が発生すると考えている。式(2)によれば、流速が増加すると単位時間当たりに通過する分子の数は増加するが、蛍光強度は通過する分子数と滞在時間の積によって決まるから、蛍光強度はよう素濃度に比例し、流速には依存しないことになる。

2.3 実験方法 蛍光強度の流速依存性を調べる場合には、流量を一定に保って噴流中のよう素濃度を一定にし、ノズル径を変化させて、噴流の速度を変化させた。本実験で用いたノズル径 d は1.2, 1.5, 2, 3, 4 mmで、得られた噴流の平均出口速度は、27.7, 17.7, 9.97, 4.43, 2.49 m/sである。測定位置はいずれの流速に対しても、噴流中心軸上、ノズル先端から2 mmである。なお、この実験では噴流としてヘリウム-よう素混合気を使用しており、外部流は流していない。噴流にヘリウムを用いたのは、よう素に対する消尽断面積が小さく、蛍光強度が大きいからである。予備実験によれば、蛍光強度は窒素の場合よりも1けた大きいことが示された。

噴流の蛍光強度分布を調べる場合には、ノズルを半径方向および軸方向に移動させ、それぞれの位置における平均蛍光強度を測定した。測定は半径方向、軸方

図1 実験装置系統図

向それぞれに対して蛍光が検知できなくなるまで行った。光電子増倍管の暗電流は最大蛍光強度に対して0.6%以下であることを確認した。この実験においては、噴流には主に窒素とよう素の混合気、外部流には窒素を用いた。この理由は、(1)窒素とヘリウムではよう素に対する消尽断面積が1けた違うため、ヘリウム-よう素噴流に対し窒素外部流を用いると、窒素を取り込んで蛍光が弱くなるという現象が起こり、正確な濃度測定ができなくなる。(2)ヘリウム噴流に対し外部流としてヘリウムを用いると、密度の小さいヘリウム外部流に浮力や外乱が働き、噴流をかく乱してしまうからである。

3. 流速と蛍光強度の関係

流速と蛍光強度の関係を調べた結果を図2に示す。蛍光強度は測定値の最大値を1としてあり、噴流速度は流量と断面積から求めた平均速度で表してある。図2中の D_0 は被測定領域の直径であり、光電子増倍管直前に設置したピンホールの径と、集光レンズ2の位置によって、変化させている。

$D_0=0.215$ mmの場合(曲線A)、流速18 m/sまでは流速の増加とともに蛍光強度が増加しているが、それ以上の流速では蛍光強度の変化はみられない。同様の結果は高城ら⁽²⁾によっても得られている。この結果は式(2)とは矛盾するものであり、LIF法の利用によって問題である。

曲線Aの条件では、被測定領域の直径のほうがレーザ光の幅よりも大きいので、分解能を高めるため、被測定領域の直径を $D_0=0.150, 0.038$ mmと小さくしていった場合の結果を曲線B, Cに示す。被測定領域を小さくすることによって、曲線Cに示すように流速10 m/s以上では蛍光強度一定、5 m/s以上10 m/s以下では蛍光強度の変化を10%以内にする事ができ

図2 蛍光強度の流速依存性

ることがわかる。ただし、流速2.5 m/s付近では依然として蛍光強度が低下している。

以上の実験結果により、被測定領域がレーザ光の幅よりも大きいときには蛍光強度の流速依存性が顕著であり、被測定領域を小さくすると改善されることが明らかになったが、この理由を次のように考えてみた。

よう素の蛍光寿命は、他の物質に比べて長いことが知られているが、この蛍光寿命を考えると、よう素分子がレーザ光を通過してから発光することになり、流速依存性がでてくる。寿命を τ_f とすると、蛍光を発している時間は $(\tau_i + \tau_f)$ となり、蛍光強度は式(3)のようになる。

$$S_F = CN_{I2}u(\tau_i + \tau_f) \dots\dots\dots (3)$$

レーザ光の焦点の直径を d_0 とすると、 $\tau_i + \tau_f = (d_0 + u\tau_f)/u$ となり、式(3)は式(4)のように表せる。

$$S_F = CN_{I2}d_0(1 + u\tau_f/d_0) \dots\dots\dots (4)$$

流速 $u=27.7$ m/s, $d_0=0.135$ mm, $\tau_f=1$ μ s⁽⁵⁾とすると、 $u\tau_f/d_0=0.2$ であり、その影響は20%近いことになる。

したがって、図2の曲線Aを得た実験での被測定領域が、図3(a)のようになっていたとすると、蛍光領域の増加分 $u\tau_f$ だけ蛍光強度は大きく検出されることになる。そして流速がある値以上になれば、蛍光領域の増加は光電子増倍管の視野の外に出てしまうので、蛍光強度の増加は得られないことになる。また図3(b)のような被測定領域とレーザ光の関係になれば、流速依存性はなくなる。

以上に述べた原因以外にも、レーザ光に照射されている時間が長いための解離の影響などが考えられるが、本実験で得られた改善の結果については、上記の理由が妥当だと考える。

図3 レーザ光と被測定体積の関係

4. 噴流中の濃度分布測定

3章で述べたように、被測定領域の大きさを最も小

図4 窒素噴流の平均よう素濃度分布

さくした場合には、流速 10 m/s 以上では蛍光強度が流速に依存しないので、出口平均流速 46.4 m/s の窒素噴流 ($Re=6.9 \times 10^3$) と流速 0.15 m/s の窒素外部流の場合について平均濃度分布を測定した。噴流、外部流ともに窒素を用いたのは2章で述べた理由からである。蛍光強度の流速依存性がないとすれば、よう素濃度の相対値は式(2)より次のように求められる。

$$N_{I_2}/N_{I_2max0} = S_F/S_{Fmax0} \dots\dots\dots (5)$$

ここで N_{I_2max0} , S_{Fmax0} は、それぞれノズル出口中央での単位体積当たりのよう素分子数と蛍光強度である。

図4はノズル出口からの距離 z/d に対する、平均濃度分布の変化を示している。横軸はノズル中心からの半径 r である。濃度は下流に行くにつれて拡散し、ガウス分布形になる様子がわかる。

噴流中心軸上の平均濃度の変化を図5に示す。ここでは、ヘリウム噴流の場合(噴流速度 46.4, 100 m/s)の結果も示してある。ヘリウム噴流では、窒素外部流による消尽率の変化が起こるので、結果は定性的なものである。図5から、窒素噴流では発達した乱流領域への遷移が $z/d=7.5$ 付近で起きていること、ヘリウム噴流同士の比較では流速が早いほうが遷移が早いことがわかる。

図6は、図4の $z/d=7.5, 10, 12.5$ の場合の平均濃度

図5 噴流中心軸上の平均濃度の変化

図6 平均濃度の相似性

分布を、半値幅と最大濃度で正規化したものである。濃度分布は z/d の値がいずれの場合も、ほぼ相似であることを示している。

また図 6 中に示した Tollmien の速度分布⁽⁶⁾と比較してみると、速度分布と濃度分布はほぼ相似形であることもわかる。流速の小さいところで濃度や流速よりも小さくなっているのは、流速の減少にともなって蛍光強度が小さくなるためと考えられる。

5. 結 言

LIF 法を用いて等温噴流中の濃度分布測定を行い、以下の結果を得た。

(1) 被測定領域をレーザ焦点の大きさよりも小さくすることによって、10 m/s 以上では、流速による蛍光強度の変化をなくすることができる。

(2) 蛍光強度の流速依存性の小さい状態で、窒素

噴流中のよう素濃度分布を測定した結果、流れ方向に沿った平均濃度分布の変化は噴流の特徴を示し、相似性を持つ。また中心軸上の平均濃度の変化は発達した乱流領域への遷移の様子を示す。

この研究は昭和 62 年度(財)實吉奨学会研究助成金の援助によって行われた。ここに感謝の意を表する。

文 献

- (1) Yoshikawa, N., ほか 3 名, *Proc. 13th Int. symp. Space Technol. Sci.*, (1982), 529.
- (2) 高城・ほか 3 名, 機論, 54-501, B (1988), 1179.
- (3) McDaniel, J. C., Jr., Ph. D Thesis, (1982), 120, SUDAAR No. 532.
- (4) 文献(3)の 34 ページ.
- (5) Capelle G. A. and Broida H. P., *J. Chem. Phys.*, 58-10 (1973), 4212.
- (6) Schlichting, H., *Boundary-Layer Theory*, (1979), 749, McGraw-Hill.