部分予混合拡散火炎の火炎構造* (CARS による温度および濃度分布の測定)

荒木 信幸^{*1}, 牧野 敦^{*1}, 新田 豊^{*2}

The Structure of Partially-premixed Diffusion Flames (Measurement of Temperature and Concentration Profiles with CARS)

Nobuyuki ARAKI, Atsushi MAKINO, and Yutaka NITTA

Laser spectroscopic techniques offer a number of advantages over the physical probing methods due to their remoteness and nondisturbance. Among these techniques, coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS) has received considerable attention because of its strong signal levels and coherence. In this study, CARS is applied as a method of measuring gas temperature and species concentration in combustion fields, and the structure of the flames established in the forward stagnation region of a porous cylindrical burner has been investigated. A simple evaluation method for the concentration has been introduced. Practicability of CARS for combustion studies has been examined and demonstrated, and compared with data of a thermocouple for the temperature and those of gas chromatography for the concentration.

Key Words: Combustion, CARS, Laser, Temperature Measurement, Concentration Measurement

1. 緒 言

燃焼研究, 特に火炎の消炎機構を調べるような場合には, 消炎直前の火炎構造は非常に重要である。しかしながら, そのような不安定な火炎は外乱を受けやすく, 熱電対などによる測定は, 測定領域の流れ場を乱すという物理的な意味からも, 触媒性という化学的な意味からも問題が多い。

CARS(Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy)は最近注目されているレーザを用いた非接触測定法の一つであり, 上記の問題を回避できることのほかに, 時間的にも空間的にも高い分解能が期待される。

CARSに関する研究は, 20数年前からなされてきたが, 一つの測定法としてはまだ一般に広く普及しているとはいえない。しかし, 研究の発展や, レーザ技術の進歩に伴って, しだいに実用的になってきつつある。

今回は, 多孔質円筒バーナ前方よどみ領域に形成された火炎の温度分布, 濃度分布について, CARS によ

る測定結果と熱電対およびガスクロマトグラフによる測定結果を比較し, 燃焼研究における CARS の実用性について検討した。

2. CARS の原理

2・1 CARS 光の発生過程 CARS は, 媒質中に特定の振動数を有する 2 種類のレーザ光 $\omega_1, \omega_2 (\omega_2 < \omega_1)$ を入射することにより新しく $\omega_3 (=2\omega_1 - \omega_2)$ のコヒーレントな光束を生じる現象である。その発生過程を図 1 に示す。反ストークスラマン散乱は, レーザ光 ω_1 の入射により実存エネルギー準位 V_1 の分子が励起され, 仮想準位 I_1 を経た後, 実存準位 V_0 に達するという過程で生ずる散乱で, 通常は非常に微弱である。しかし, 外部から ω_1 の光とともに ω_2 の光を入射すると, 光子の自己増殖性⁽¹⁾が促進され, コヒーレントな反ストークスラマン散乱光(CARS 光)が得られる。実際には, これら 4 光子の出入りに時間的なずれはなく, 瞬時に起こるものとみなして差支えない。しかも, 得られた CARS 光は, その発生領域での温度や, 対象成分の濃度などの情報を含んでいる。

2・2 温度測定 図 1 には分子の振動準位 V_1 が一つだけ示してあるが実際にはさらにいくつかの振動励起準位および回転励起準位を持っている。低温時に

* 平成 2 年 3 月 13 日 東海支部第 39 期総会講演会において講演, 原稿受付 平成元年 3 月 13 日。

^{*1} 正員, 静岡大学工学部 (〒432 浜松市城北 3-5-1)。

^{*2} 学生員, 静岡大学大学院。

は、分子は低い準位に数多く存在するが、高温になるにつれてしだいに高い準位に遷移する分子の数が增加し、したがって散乱スペクトルは広がりを持つようになる。厳密な温度の評価には、スペクトル波形の温度依存性を考慮した計算を行い、それと測定波形をフィッティングすることにより行うべきである(誤差 $\pm 1\%$)⁽²⁾。しかし、計算およびフィッティングに多大な時間を要するので、ここでは最も一般的で簡便な方法を用いた。それはスペクトル波形のピークの1/5の線幅を比較して評価する方法⁽³⁾(図2)で、1400°Cでは誤差30°C程度で測定が可能である。なお今回の燃焼場では全域にわたって十分な窒素が存在していると予想されるので、温度測定に関する対象成分を窒素とした。

2.3 濃度測定 CARS光強度 I_3 と分子数密度 N 、入射レーザー光のエネルギー密度 I_1 、 I_2 の間には

$$I_3 \propto N^2 I_1^2 I_2 \dots \dots \dots (1)$$

の関係がある⁽⁴⁾。したがって、濃度を評価するためには対象成分とラマンシフトの近い物質の入った参照セル(濃度既知)を用いてスペクトル波形のピーク値を比較する方法をとることが多い。しかしながら、CARS光の強度は光学系(レンズ、プリズムなどの位置や角度)の変化に対して非常に敏感であり、測定点を変化させるような場合には適用が困難である。そこで、今回は濃度測定の対象成分を酸素に限定し、次のような方法で濃度を評価した。

まず、火炎のない状態で、測定箇所において、多量の空気を流しながらCARSスペクトルを得る(ピーク値： I_A)。次に火炎を形成させて同じ位置で(光学系を全く変化させないで)火炎内のCARSスペクトルを得る(ピーク値： I_C)。これらのスペクトルから前述の方法で温度を求める。その温度をそれぞれ T_C 、 T_A [K]とし、空気中の酸素の分子数密度を N_A 、酸素濃度を X_A 、火炎中についてはそれぞれ N_C 、 X_C とすると、

$$X_C = X_A \cdot (T_C/T_A) \cdot (N_C/N_A) \dots \dots \dots (2)$$

図1 CARS光の発生過程

となる。したがって式(1)と式(2)より

$$X_C = X_A \cdot (T_C/T_A) \cdot (I_C/I_A)^{1/2} \dots \dots \dots (3)$$

として酸素濃度が得られる。ここで $X_A=0.21$ とした。

3. 実験装置

光学系の配置を図3に示す。YAGレーザー(波長：532 nm)の一部は、色素によりそれぞれ必要な波長に変換され(N_2 : 607.3 nm, O_2 : 580.0 nm)、YAGレーザー光とともに測定点に集光される。測定領域を通過した後の光は、ダイクロイックミラーによりYAGレーザーおよび色素レーザーは除去されCARS光が分光器(512 ch)に取り込まれる。

高い空間分解能を得るために、BOXCARS配置とした。BOXCARSは光学系の調整がやや複雑であり、広い範囲の測定には適当でないといわれており、MAC法などの方法も提案されているが⁽⁵⁾、今回の測定範囲(移動量10 mm程度)内においては十分対応できると考えた。

燃焼装置については、バーナに焼結金属円筒(直径20 mm、ブロンズ)を用い、下方から整流された空気を吹きつける。燃料にはメタンを用い、過濃混合気を吹き出して、前方よどみ領域に形成される二重火炎を測定対象とした(図4)。

4. 測定結果および考察

4.1 他の測定法との比較 図5～7にCARSと熱電対およびガスクロマトグラフによる測定結果を文献値⁽⁶⁾とともに示す。文献⁽⁶⁾では、相似なバーナ(直径60 mm)で安定燃焼場の火炎構造を測定しているの、これらと本実験結果とを無次元距離上で比較することはCARSの適用性を考える上で有用である。ここで、

図2 温度評価手法

ϕ : 当量比, $-f_w$: 無次元吹き出し速度, η : 無次元距離であり

$$-f_w = (v_w/V) \cdot (Re/2)^{1/2} \dots\dots\dots (4)$$

$$\eta = (Z/R) \cdot (2Re)^{1/2} \dots\dots\dots (5)$$

v_w : パーナからの吹き出し速度

V : 主流速

Z : パーナからの距離

R : パーナ半径

Re : レイノルズ数

である。なお、この文献および今回の測定では、 SiO_2 でコーティングした直径 $50 \mu\text{m}$ の Pt/Pt-13%Rh 熱電対を用いている。

温度測定に関しては、熱電対による値とほぼ一致し、図5において火炎帯付近で $\pm 100^\circ\text{C}$ 程度の違いとなっている。温度評価における不確かさの要因としては、一般的にはまず圧力狭まり (Pressure Narrowing) の問題が挙げられる。しかしながら、1/5 ピークによる評価方法は圧力依存性が小さいことがわかっている

し⁽⁷⁾、もともと今回の燃焼場は大気開放であるので無視できるものと思われる。また、SN比の問題については装置の性能によるのはもちろんであるが、光軸設定時の作業技術という人為的要因が大きく、定量的な議論は難しい。そのほか、今回の装置では波長が $470.8 \sim 475.8 \text{ nm}$ の範囲を 512 ch の分光器で分析したが、その結果、温度評価の最小きざみは 1400°C 付近で 30°C 程度であった。なお、熱電対のふく射補正には燃焼場における気体の熱物性値が必要となるが、これらを正確に求めることは困難であるため、ふく射補正は行わなかった。しかし、火炎近傍においては最大 10% 程度の誤差が見込まれる。

図5のバーナの近傍では今回測定した熱電対による値が高くなっているが、これは、熱電対が火炎からのふく射を受けるためと考えられる。このように、熱電対では測定点の周囲の影響を受けるので、得られた温度分布もなだらかな曲線となっている。これに対して CARS による測定結果では、温度分布に2箇所の極大

図3 光学系の配置

図4 燃焼装置

図5 温度および濃度分布 ($\phi=1.55$, $-f_w=8$)

図6 温度および濃度分布 ($\phi=1.8$, $-f_w=8$)

が認められる。実際に形成されているのは予混合火炎と拡散火炎の二重火炎であるので、この測定結果は、空間分解能という点でCARSが優れていることを示している。このことは逆にいうと、火炎自体の微小なゆらぎが、測定結果のばらつきに与える影響が大きいということである。

濃度測定に関しては、定性的にはガスクロマトグラフによるものと一致しているが、ほぼ測定領域全体にわたってCARSによる結果は低い値を示している。この理由としては、ガスクロマトグラフでの測定では、ガス採取用プローブを火炎中に差し込むので、反応が妨げられ、酸素が多めに測定されること、あるいはプローブにより採取されたガス成分が、測定点周辺の平均となってしまうことなどが考えられる。しかし、CARSにとってより大きな問題は、測定可能な濃度の限界が存在するという点である。

空間的分子数密度が減少すると、CARS光強度は低下し、SN比が悪くなり温度および濃度が評価できなくなる。それを補うために入射レーザー光を強めすぎると誘電破壊が起こり⁽⁸⁾、測定不能となる。

また、分子数密度の減少によりCARS光強度が低下すると、非共鳴感受率の影響が相対的に大きくなり、スペクトル波形がゆがみ、ピーク強度による濃度評価の信頼性は低下する⁽⁹⁾。そのことを考慮し、計算値とのフィッティングにより低濃度の評価を行う方法も報告されている^{(10),(11)}が、温度の場合と同様に多大な手間と時間を要するので、今回は採用しなかった。

本実験では、約3%が検出可能な酸素濃度の限界であった。この3%という値は絶対的なものではなく、分光器の性能や測定領域の温度などによっても左右されるが、今回のように、温度が高くなるに伴って濃度が低下するという状況では低濃度の検出は非常に困難になる。

図7 温度および濃度分布($\phi=3.0$, $-f_w=8$)

4.2 吹き飛び近くの温度・濃度分布 図8に、バーナに吹き付ける主流速を増加させて火炎が吹き飛びに至るまでの温度分布の変化を測定した例を示す。図中 a はよどみ速度こう配であり

$$a = 2V/R \quad \dots\dots\dots (6)$$

である。

これを見ると、例えば、温度分布の二つの極大の大小関係の変化や最高温度の低下の割合などがよくわかるし、火炎帯前後の温度こう配より外部への熱損失の割合を求めることが可能となった。このような温度分布の変化を各種の条件(当量比、吹き出し速度など)に関して知ることは、燃焼研究において非常に興味深いことであるが、ここに示したような火炎の測定に熱電対を用いることは燃焼場を乱し、吹き飛び条件を変えるため不可能である。

図9には、同様に酸素濃度分布の変化を示す。酸素濃度については前述のように測定限界があったが、この例では吹き飛び直前の場合($a=548\text{ s}^{-1}$)において、測定範囲全域で検出が可能であり、火炎帯を通して酸素がリークしていることから火炎の反応強度が低下している様子がうかがえる。

このように、今回の燃焼場においてはCARSは非常に有用であった。しかしながら、温度測定については、測定範囲全域にわたって多量の同一分子が存在していることが必要であり、そうでない燃焼場、例えば純粋拡散火炎や酸素-燃料の予混合火炎などの場合には、測定に際して困難が生じるものと予想される。

濃度測定に関してガスクロマトグラフと比較すると、多成分同時測定ができないことがCARSの欠点の一つとして挙げることができる。対象成分に応じて色素レーザーの波長を変える作業は實際上、意外に手間のかかることであり、測定の簡易性という点ではまだ問題があるといえる。

図8 温度分布の速度こう配による変化

図 9 酸素濃度分布の速度こう配による変化

また、今回酸素濃度評価に用いた方法は他の成分 (CH_4 , CO , H_2 など) にそのまま適用することはできず、参照セルまたはフィッティングによる方法かその他の方法を検討しなければならない。

5. 結 論

(1) 本実験の燃焼場の温度測定に CARS を用いることにより空間分解能の高い結果を得ることができた。温度評価の最小きざみは 1400°C 付近で約 30°C であり、火炎自体のゆらぎなどの影響も含んだ測定結果

のばらつきは $\pm 100^\circ\text{C}$ 程度であった。

(2) CARS を用いて、比較的簡便な方法により酸素濃度を評価できることがわかったが、その方法では今回の燃焼場において約 3% が検出可能な濃度の限界であった。

(3) 火炎の吹き飛び機構に知見を与え得る、吹き飛び直前の温度分布、酸素濃度分布を測定することができた。

文 献

- (1) 前田, 現代化学, 151(1983), 56.
- (2) Leipertz, A., Durao, D. F. G. ほか 2 名編, *Instrumentation for Combustion and Flow in Engines*, (1989), 107, Kluwer Academic Pub.
- (3) Kajiyama, K., Sajiki, K., Kataoka, H., Maeda, S. and Hirose, C., *SAE Tech. Paper*, Ser. 821036(1982).
- (4) 前田・足立・五十嵐, 分光研究, 28-6(1979), 353.
- (5) 藤井・五味, 日本航空宇宙学会誌, 35-401(1987), 303.
- (6) Yamaoka, I. and Tsuji, H., *16th Symposium (International) on Combustion*, (1976), 1145, The Combustion Institute.
- (7) 梶山・藤本, 機械の研究, 37-11(1985), 1253.
- (8) 大沢, 燃焼研究, 74(1987), 12.
- (9) 足立・紙透・前田, レーザー研究, 13-3(1985), 232.
- (10) Eckbreth, A. C., *Laser Diagnostics for Combustion Temperature and Species*, (1988), 220, Abacus Press.
- (11) 渡辺・手塚・五味・藤井, 第 22 回燃焼シンポジウム前刷集, (1984-11), 10.