雰囲気レーザー誘起蛍光法(LIFA法)による噴流画像の 濃度分布定量化処理*

城戸章宏^{*1}, 小川英之^{*1}, 宮本 登^{*1}

Quantitative Processing to Calculate Mixture Strength in Jet Streams by Laser-Induced Fluorescence of Ambient-gas (LIFA Method)

Akihiro KIDO, Hideyuki OGAWA and Noboru MIYAMOTO

The mixture formation processes of unsteady gas jets were visualized and quantified with an adaptation of the LIF technique (LIFA). The mixture strength was quantified by the fluorescence intensity of iodine in the ambient gas which was excited by the sheet light of a Nd:YAG laser. At the optimum setting of the initial iodine concentration in the ambient gas, a better than 95% accuracy was obtained with this method for the air entrainment ratio, and better than 75% was obtained for equivalence ratios over 2.5 with methane fuel jets. The result showed that a considerable amount of air was entrained just under the umbrella profile at the top of the jet.

Key Words: Spectroscopic Measurement, Flow Visualization, Optical Engineering, Unsteady Gas Jet, Laser-Induced Fluorescence, Image Processing, Quantitative Measurement, Iodine Fluorescence

1. 緒 言

間欠噴霧燃焼系での燃焼およびエミッションを改善するうえで、燃料噴霧の蒸発および空気との混合挙動の解明は重要である。とくに非蒸発噴霧に関しては、従来、透過光減衰法とコンピュータトモグラフィ法との併用による、噴霧中の燃料液滴濃度分布の測定⁽¹⁾⁽²⁾などが試みられてきた。また、燃料ガス領域の濃度測定では、LIF法(Laser Induced Fluorescence)が注目され、よう素混合ガスの噴射による噴流内部の濃度測定⁽³⁾、二酸化窒素による火花点火機関の燃焼室内混合気濃度の解析⁽⁴⁾⁽⁵⁾、エキサイプレックス法による蒸発噴霧の濃度分布測定⁽⁶⁾⁽⁷⁾などが試みられている。しかし、いずれの手法においてもとくにその定量化に大きな問題が残されている。

本研究では、従来のLIF法とは逆に、雰囲気ガス中に蛍光物質(よう素)を予混合し、燃料噴射後任意のタイミングで発光させNd:YAGレーザーのシート光でこれを励起することにより、その蛍光強度分布の画像情報から混合気濃度を定量的に測定する手法、つまり

雰囲気蛍光法(LIFE法:Laser Induced Fluorescence of Ambient-gas)の定量化処理に対する基礎的な検討を行い、併せて非定常ガスジェットにおける導入空気および当量比の測定に対してその応用を試みた。

なお本手法は、ガスおよび液体燃料のいかにかわらず、非定常噴流の濃度分布定量化を簡単に行える利点を有している。

2. 実験装置および方法

2.1 測定光学系および噴射系 図1に雰囲気蛍光法の光学系と噴射系の概略を示す。供試高压容器は、四つの側面に有効径82mmの石英ガラス観測窓と、上面にノズルとを有する立方体構造となっている。ガス噴射系にはペローズ式ガス等速噴射装置を使用した。これは、シリンダ中のピストン片面に水を供給することによってピストンを動かし、シリンダに充てんされたガスを等速噴射するものである。雰囲気蛍光法に用いる蛍光物質に、二酸化窒素、臭素、およびよう素を試したが、蛍光強度が比較的強いことから本研究ではよう素を使用した。

LIFA画像の撮影は、よう素を予混合した雰囲気ガスを、発振周期15Hzに設定したNd:YAGレーザ

* 原稿受付 平成4年1月22日。

^{*1} 正員、北海道大学工学部(〒060 札幌市北区北13条西8丁目)。

第2高調波(中心波長532 nm)のシート光で励起し、これによって得られる630 nm付近の蛍光を、長波長透過フィルタおよびイメージンシファイア(浜松ホトニクスC2925)を介し、レーザと同期させたCCDカメラにて撮影し、VTRに連続記録した。シート光は、シリンドリカルレンズおよびコンベックスレンズにより形成されたもので、そのサイズは厚さ0.8 mm、幅70 mmである。

なお、Nd:YAGレーザの長波長光除去のため、50%透過波長590 nmの短波長透過フィルタを入射光側に挿入し、それに対応して蛍光観測側には、10、50%および90%透過波長がそれぞれ590、600 nmおよび630 nmの長波長透過フィルタを使用した。

撮影した画像情報の処理装置にはFDM 98-4(フォトロン)を使用した。その解像度および濃度階調は、それぞれ256×256および64階調である。

霧雰気のベースガスおよび噴流には窒素を用いた。また、これらのガスの温度は容器外壁に巻き付けたりボンヒータなどによって調整したが、原則として333 Kに保持し、霧雰気圧力は大気圧とした。

2.2 LIFA法による混合気濃度分布の測定理論

2.2.1 蛍光物質の濃度と蛍光強度 単位面積、単位時間当たりの強度 J_s なるシート光が蛍光物質中に入射する場合、光軸上の位置 x における単位面積・単位時間当たりの入射光強度 $J(x)$ 、およびその微小変化量 $dJ(x)$ はLambert-Beerの法則により次式で与えられる。

$$dJ(x) = -k_x C(x) J(x) dx \quad \cdots (1\cdot a)$$

$$\text{ここで, } J(x) = J_s \exp\left[-k_x \int_0^x C(x) dx\right] \quad \cdots (1\cdot b)$$

k_x : 入射光波長における吸光係数 $\text{m}^3/\text{mol}\cdot\text{m}$

$C(x)$: 蛍光物質のモル濃度 mol/m^3

図1 実験装置模式図

励起直後の蛍光分子の数は、吸収された光量に相当するので、位置 x における微小体積 dx 中の励起蛍光分子相当数 $dN(x)$ は以下になる。

$$dN(x) = -dJ(x) \\ = k_x C(x) J(x) dx \quad \cdots (1\cdot c)^{(8)}$$

励起された蛍光分子には、発光遷移するものと、無ふく射遷移するものがあり、それぞれの速度定数を k_1 および k_2 とし、さらに励起開始からの時間を t とすれば、蛍光分子相当数 $dN(x)$ に対する時間関数 $d^2N(x, t)$ は次式で与えられる。

$$d^2N(x, t) = -dN(x)/\tau \cdot \exp(-t/\tau) dt \quad \cdots (1\cdot d)^{(8)}$$

ただし、 $\tau = 1/(k_1 + k_2)$

一方蛍光強度は、 k_1 を定数として励起蛍光分子数の時間関数と比例関係にあるため、蛍光強度の時間関数 $d^2F(x, t)$ は次式で与えられる。

$$d^2F(x, t) = -k_1 d^2N(x, t) \\ = (k_1 k_x / \tau) C(x) J(x) \exp(-t/\tau) dx dt \quad \cdots (1\cdot e)$$

本研究では、励起光源に用いたパルスレーザの発光時間(数ns)ならびに特性時間 τ は、蛍光強度観察ゲートの開いている時間に比べて極めて小さいため、時間関数式(1・e)の全時間積分値 $dF(x)$ を観察しているものと考えてよい。すなわち、

$$dF(x) = k_1 k_x C(x) J(x) dx \quad \cdots (1\cdot f)$$

$dF(x)$ はシート光入射断面におけるものであり、実際に測定される蛍光強度は、シート光に沿った X 軸断面と容器ガラス面との間(Y 軸上の距離 L_y)に存在する蛍光物質[濃度 $C(y)$]によって $dF(x)$ がさらに減衰した値となる。測定する蛍光波長の吸光係数を k_y とすると、測定位置における蛍光強度 $dF(x, y)$ は、式(1・b)の場合と同様に次式となる。

$$dF(x, y) = dF(x) \exp\left[-k_y \int_0^y C(y) dy\right] \\ = k_1 \exp\left[-k_y \int_0^y C(y) dy\right] k_x C(x) J(x) dx \quad \cdots (1\cdot g)$$

ここで、シート光入射面から観測側の容器ガラス面までの区間 L_y において $C(y)$ を一一定値 C_0 とすると、

$$dF(x, y) = k_1 \alpha J_s k_x C(x) \exp\left[-k_x \int_0^x C(x) dx\right] dx \quad \cdots (1\cdot h)$$

ただし、 α は Y 軸方向の蛍光透過率を表すものであり、次式で与えられる。

$$\alpha = \exp(-k_y C_0 L_y) \quad \cdots (1\cdot i)$$

式(1・h)において、 $C(x)$ 以外の変数あるいは定数は既知量としてあらかじめ与え得るので、任意位置の蛍

光強度測定から、その位置 x における蛍光物質の濃度 $C(x)$ が算出可能となる。

2・2・2 蒸発燃料の当量比および導入空気濃度の算出
燃料噴射直前における雰囲気ガス中の蛍光物質と空気の初期濃度がそれぞれ C_0 および A_0 [mol/m³] であったものが、燃料の噴射後、燃料と空気との混合によって C と A_c とに変化した場合、導入空気濃度 A_c および燃料濃度 F_c は次のようになる。

$$A_c = (C/C_0)A_0 \quad \dots\dots\dots (2\cdot a)$$

$$F_c = (1 - C/C_0)(A_0 + C_0) \quad \dots\dots\dots (2\cdot b)$$

一方、供試燃料をメタン系炭化水素に例をとると、その組成は C_nH_{2n+2} であるから空燃比 A/F は上式から、

$$A/F = \frac{28.8}{14n+2} \times \frac{(C/C_0)A_0}{(1 - C/C_0)(A_0 + C_0)} \quad \dots\dots (2\cdot c)$$

理論空燃比 $(A/F)_{th}$ は、

$$(A/F)_{th} = 69.6(3n+1)/(14n+2) \quad \dots\dots\dots (2\cdot d)$$

したがって当量比 ϕ は、

$$\phi = 2.41(3n+1)(1 + C_0/A_0) \frac{1 - C/C_0}{C/C_0} \quad \dots\dots (2\cdot e)$$

すなわち蛍光物質の濃度比 (C/C_0) が与えられれば、式(2・a)、(2・e)からそれぞれ導入空気濃度および当量比 ϕ の算出が可能となる。

2・2・3 画像処理による混合気濃度分布の解析

図2に示すように、レーザー光 J_s が蛍光物質濃度 C_0 の空間に入射してから画像処理開始位置 L_x まで進行すると、 J_0 に減衰するものとする。画像処理メッシュ Δ における蛍光物質の濃度を入射光側から $C_0, C_1, C_2, \dots, C_n$ とすれば、 n 番めのメッシュにおける蛍光強度 F_n は、式(1・h)から次のようになる。

$$F_n = k_1 a J_0 \exp\left(-k_x \Delta \sum_{m=1}^n C_m\right) [1 - \exp(-k_x C_n \Delta)] \quad \dots\dots\dots (3\cdot a)$$

これを C_n について解くと、

$$C_n = \frac{-1}{k_x \Delta} \ln \left[1 - \frac{F_n}{k_1 a J_0} \exp\left(k_x \Delta \sum_{m=1}^n C_m\right) \right] \quad \dots\dots\dots (3\cdot b)$$

ここで、 F_0 の測定結果から定数 $k_1 a J_0$ を与えるものとする、上式は以下のように書き換えられる。

図2 各種パラメータと処理メッシュ

$$C_n = \frac{-1}{k_x \Delta} \ln \left[1 - \frac{F_n}{F_0} \gamma \exp\left(k_x \Delta \sum_{m=1}^n C_m\right) \right] \quad \dots\dots\dots (3\cdot c)$$

ただし、 $\gamma = 1 - \exp(-k_x C_0 \Delta)$

すなわち、入射光側から式(3・c)を用いて順次計算することによって、画像処理メッシュごとに C_n が決定され、式(2・a)および式(2・e)から導入空気濃度、当量比 ϕ の算出がそれぞれ可能となる。

3. 蛍光理論の検証

3・1 吸光係数の測定 理論の検証に先立って、供試蛍光物質であるよう素の窒素雰囲気における吸光係数 k の測定を行った。この場合、図3で示されるように、よう素添加の容器に対して白色光を照射し、各波長における吸光の割合をマルチチャンネル検出器付き分光器(日本分光CT-25C)で測定した。なお、吸光係数 k の算出には、式(1・b)から導いた次式を用いた。

$$k = -1/(CL) \ln(S/S_0) \quad \dots\dots\dots (3\cdot d)$$

ただし、 C :よう素の濃度

L :容器中の光路長

S :よう素がある場合のスペクトル

S_0 :よう素がない場合のスペクトル

図4にその測定結果を示す。図4から、よう素の吸光係数は入射光波長525nm付近で最大となることがわかる。したがって、よう素使用時の励起光源としてNd:YAGレーザー第2高調波(中心波長532nm)を用いることによって、比較的強い蛍光を得ることが可能であり、また、後述のように測定蛍光波長として630nmを選択したため、本研究における入射光および測

図3 吸光係数測定装置模式図

図4 吸光係数の波長特性(よう素)

定蛍光波長における吸光係数 k_x , k_y は、それぞれ 123, 15.3 m³/mol/m となる。

式(1・h)において、よう素の Y 軸方向濃度 $C(y)$ をその最大濃度である C_0 で一定と仮定したが、さきに記したとおり測定蛍光波長における吸光係数 k_y が比較的小さいこと、また本実験には Y 軸上の区間 L_y を 50 mm に設定したため、光路 L_y に占める噴流幅の比は小さいことなどから、 L_y でのよう素濃度を C_0 一定とした仮定に起因する蛍光強度の測定誤差は極めて小さいものといえる。なお、この場合の蛍光透過率は式(1・i)から 85% 以上であって、このことから $C(y)$ を一定値として扱い得ることが推察される。

3・2 蛍光強度の理論値と実測値 蛍光強度の測定光学系は、図 1 とほぼ同様であるが、燃料は噴射せず、蛍光測定系における長波長透過フィルタ直後に分光器を、また、高压容器の代わりに X, Y 軸および高さ方向の内側寸法 20×15×40 mm の容器をおおの設置し、よう素濃度を変数として蛍光強度の測定を行った。よう素は昇華性の固体であるため、容器内の温度を変えることによって、その蒸気圧から濃度算出を行った。

図 5 に、5 とおりの濃度におけるよう素の蛍光スペクトルを示す。この場合、よう素の濃度 0.206 mol/m³ を最大濃度 $C_{\max}$ と設定し、その際の蛍光強度 $F_{\max}$ をベースに蛍光強度 F を無次元化した値を図 5 の縦軸とした。

図 5 から、使用した長波長透過フィルタの影響もあるが、 $F/F_{\max}$ は 630 nm 付近で最大となることがわかる。蛍光物質の各濃度における蛍光強度の最大値を用いて、よう素濃度と蛍光強度との関係を求めた結果を図 6 に示す。図 6 の横軸は、よう素濃度 C と最大値 $C_{\max}$ との比であり、縦軸は $F/F_{\max}$ である。

図 5 よう素の蛍光スペクトル

図 6 において、○印で示した実験値と実線で示した理論値とが良好な一致を示していることから、混合気濃度の定量比に対する、式(1・h)の妥当性が得られたものと言える。

4. 測定精度の検討

4・1 蛍光強度 F の測定精度 図 7 に、容器中の蛍光物質濃度を 0.206 mol/m³ とし、シート光軸上の任意位置 X における LIFA 画像からの蛍光強度 F を画像処理開始位置 L_x での蛍光強度 F_0 で無次元化した値を、 $k_x C_0 X$ に対して示す。図 7 から、実線で示した測定値と一点鎖線の理論値とが比較的良好に一致することが再度明らかになったと同時に、測定値のばらつきは理論曲線からほぼ ±5% の誤差範囲におさまっていることがわかる。

本研究では、VTR を介して LIFA 画像の解析を行ったため、蛍光強度の測定誤差が ±5% 程度となったが、画像を直接コンピュータのメモリ上に取り込めば、その差はさらに低減し得るものと考えられる。

図 6 よう素の無次元濃度と無次元蛍光強度との関係

図 7 蛍光強度の測定値と理論値との比較

4.2 蛍光強度 F の測定誤差が蛍光物質濃度 C の算出に及ぼす影響 この種の測定には比較的強い蛍光信号を必要とするが、それにかかわる因子として画像処理開始位置 L_x 、処理メッシュ Δ 、吸光係数 k_x 、 k_y 、および蛍光物質濃度の初期設定値 C_0 などが挙げられる。ここでは、図2で示した画像処理開始位置 L_x における蛍光強度 F_0 の特性について検討した。

$C(x)$ は区間 $0 \sim L_x + \Delta$ において一定値 C_0 であるから、式(1・h)により、 F_0 は次のように与えられる。

$$F_0 = k_1 I_s \exp[-(1 + \Gamma)\delta][1 - \exp(-\Theta\delta)] \quad \dots\dots\dots(4 \cdot a)$$

ただし、 $\delta = k_x C_0 L_x$

$$\Gamma = k_x L_y / (k_x L_x)$$

$$\Theta = \Delta / L_x$$

式(4・a)は δ について極大値 $F_{0 \max}$ を有し、その場合の δ 、すなわち $\delta_{\max}$ は次のようになる。

$$\delta_{\max} = \ln[(\Gamma + 1 + \Theta)/(\Gamma + 1)]/\Theta \quad \dots\dots\dots(4 \cdot b)$$

また、 $\Theta \ll 1$ ならば、無次元蛍光強度 $F_0/F_{0 \max}$ は、ほぼ次式のようにになる。

$$F_0/F_{0 \max} \approx (\delta/\delta_{\max}) \exp(1 - \delta/\delta_{\max}) \quad \dots\dots\dots(4 \cdot c)$$

すなわち $F_0/F_{0 \max}$ と $\delta/\delta_{\max}$ との関係は、図8のように表示され、 $\delta/\delta_{\max} = 1$ において蛍光強度 F_0 は最大となる。このことは、与えられた Γ および Θ の値に応じて $\delta/\delta_{\max}$ が1となるように C_0 を設定すれば、処理領域全般で強い蛍光信号が得られることを示す。

次に、蛍光強度の測定誤差による蛍光物質濃度 C の算出誤差について、図2での C_1 算出の場合を一例として検討した。

式(1・h)から F_1 は、

$$F_1 = k_1 a I_s \exp[-k_x C_0 (L_x + \Delta)] \times [1 - \exp(-k_x C_1 \Delta)] \quad \dots\dots\dots(4 \cdot d)$$

上式から、蛍光強度 F_1 の測定誤差 E_f に基づく蛍光物質濃度 C_1 の算出誤差 E_c は、 $\Delta \ll 1$ の場合、おおむね以下のようにになる。

図8 蛍光強度の $\delta/\delta_{\max}$ 依存性

$$|E_c/E_f| \approx \exp(\delta\Theta R_c) \quad \dots\dots\dots(4 \cdot e)$$

ただし、 $R_c = C_1/C_0$

$$\delta\Theta = k_x C_0 \Delta$$

図9に、 $|E_c/E_f|$ と R_c との関係を示す。なお、図9中の実線は、5章での実験で用いた $\delta\Theta$ による結果を示している。図9から、 $\delta\Theta$ を極端に大きくし設定しない限り、 R_c が変化したにしても、濃度 C_1 の算出誤差は蛍光強度測定誤差 ($\pm 5\%$ 程度) とほぼ同一であることがわかった。

4.3 C/C_0 の誤差が導入空気濃度および当量比の算出に及ぼす影響 2・2・2項において、導入空気濃度 A_c および当量比 ϕ は蛍光物質濃度比 C/C_0 から求められることを述べた。ここで、 C/C_0 の誤差を E_c とすると、 A_c の算出誤差も E_c となるが、当量比算出誤差 E_e はメタン系燃料の場合、式(2・e)から以下のように与えられる。

$$|E_e/E_c| \approx 1 + 2.411(3n+1)/\phi \quad \dots\dots\dots(4 \cdot f)$$

図10に、メタン系燃料を使用した場合の $|E_e/E_c|$ と当量比 ϕ との関係を示す。図10から、当量比の低下にともなって $|E_e/E_c|$ は著しく増大すること、また、その傾向は供試燃料のカーボン数 n が増大するほど顕著となることがわかる。したがって、当量比が低い領域の定量化を精度良く行うには、燃料中のカーボン数 n が大きいほど、濃度比算出誤差すなわち蛍光強度測定誤差 E_f を小さくすることが必要である。

図9 蛍光強度測定誤差が濃度比の算出に及ぼす影響

図10 濃度比の算出誤差が当量比算出に及ぼす影響

図 11 LIFA 法による非定常ガスジェット中の導入空気割合および当量比解析結果

本研究の範囲では、蛍光強度比 F/F_0 の測定誤差 E_f は $\pm 5\%$ 以下であり、また $\delta\theta = 0.0076$ なので、 E_c は E_f とほぼ等しい。したがって、当量比算出に関しては、カーボン数 $n=1$ のメタン燃料ジェットを想定した場合、図 10 から、当量比が 2.5 以上で $|E_e/E_c|$ が 5 以下となるため、その誤差 E_e は $\pm 25\%$ 以下と考えられる。

5. 実験結果および考察

本測定手法を非定常空素噴流に対して適用した一例を図 11 に示す。なお、処理画像は噴射後 540 ms のものであり、噴射速度および噴孔径は、それぞれ 56 mm/s および 7 mm である。また、この場合の実験条件としては、 $\delta/\delta_{\max} = 1.43$ 、 $\delta\theta = 0.0076$ である。図 11 は左から、導入空気割合 (A_c/A_0)、メタンおよびヘキサン燃料を想定した場合の当量比分布を示しており、それぞれ噴流の中心軸から左半分を 8 階調表示している。

導入空気割合の解析結果から、低速非定常ガスジェットの先端は半径方向に広がる傘状となること、傘の外縁近傍には渦状の空気巻込み構造があること、また、そのため傘の上流部における、噴流中心軸より半径方向に若干離れた位置では、空気導入量の比較的高い領域が著しく拡大する傾向があることなどがわかる。また、ガスジェットのコアは、これまで定常ジェットに対して解析されてきた結果⁽³⁾と同様に、非定常下でも下流側で細くなる円すい状になっていることが本手法からも認められた。

一方、当量比 ϕ の解析結果から、ヘキサンに比べて、理論空燃比が小さいメタンを想定した場合のほうが、

当量比が全般に低下している。なお、ヘキサンを想定した場合の、当量比が 1 から 5 の領域には、かなり大きな計算誤差が存在しているため、その領域の輪郭を明確に表示し得ていないものと思われる。なお、この点に関しては、蛍光強度の計測精度向上によって、ある程度解決可能である。

6. 結 論

非定常噴流の混合気形成状態の定量化観察を目的として、LIFA 法における定量化測定あるいは画像情報処理に対する精度上の基礎的検討を行うとともに、ガスジェットの構造解明に対するその適用を試みた。その結果、以下の諸点を明らかにすることができた。

(1) よう素を用いた LIFA 法において、非定常噴流への導入空気濃度および当量比の定量化手法を確立した。

(2) $k_X C_0 L_X$ の値を式(4・b)で示した最適値に設定することにより、本手法で測定する蛍光の信号強度を高くすることができる。

(3) 本手法における、導入空気濃度算出誤差は $\pm 5\%$ 以下であり、またメタンにおける当量比算出誤差は、当量比 2.5 以上で $\pm 25\%$ 以下である。なお、供試燃料のカーボン数増加にともない、当量比算出誤差は増大する。

(4) 低速非定常ガスジェットの先端は、半径方向に広がる傘状となり、傘形状の外縁上流部において空気導入が顕著となっている。また、非定常でのガスジェットのコアは、下流側で細くなる円すい状となることも確認された。

本研究の遂行に際して、北海道大学応用電気研究所

竹村健助教授には種々のご助言を賜った。また本実験では、北海道大学工学部 山崎賢治技官、ならびに大学院生 佐野貴弘君、日産自動車(株) 早川 光君、トヨタ自動車(株) 後藤岳史君の協力を得た。ここに感謝の意を表する。

文 献

- (1) 西田・ほか3名, 機論, 57-537, B (1991), 1886.
- (2) 斎藤・ほか4名, 機論, 57-543, B (1991), 3973.
- (3) 山口・ほか3名, 機論, 55-519, B (1989), 3566.
- (4) Nagasaka R, *MASTER SCI. RES. REP.*, Univ. California, Berkeley, (1988).
- (5) Cole, J. B., ほか1名, *Appl. Phys.*, 13 (1980), 733-45.
- (6) Melton, L. A., *Appl. Opt.*, 22-14 (1983), 2224.
- (7) 田辺・ほか3名, 第9回内燃機関合同シンポジウム講論集, (1991), 379.
- (8) 日本分光学会, 蛍光測定, (1983), 4, 学会出版センタ.