微小重力下におけるろ紙のふく射着火現象に及ぼす照射波長の影響*

高橋 絢也^{*1}, 藤田 修^{*2}, 伊藤 献一^{*2}Effect of Light Wavelength on Radiative Ignition of
Filter Paper in MicrogravityJunya TAKAHASHI, Osamu FUJITA^{*3} and Kenichi ITO^{*3} Division of Mechanical Science, Hokkaido University,
Kita 13 Nishi 8, Kita-ku, Sapporo-shi, Hokkaido, 060-8628 Japan

The objective of this work is to provide information about the details of the effect of light wavelength on radiative ignition of solid material. An experiment of radiative ignition has been performed in microgravity to determine the events occurring in ignition processes in a quiescent atmosphere. Filter papers were irradiated by infrared radiation (CO₂ laser 10.6 μm) or near infrared radiation (Diode laser, 800.1 nm). The ignition delay was measured for various experimental conditions, and the density change of gas phase before ignition were observed by a Mach-Zehnder interferometer. The results showed that the ignition delay time of the infrared radiation was much shorter than that of near infrared radiation, and it was observed that the difference of light wavelength of radiations had a strong effect on the ignition process. It was suggested that one of main reasons to give the difference was the difference of radiative absorption in gas phase as well as the difference of absorptivity by solid surface according to the Mach-Zehnder interferometer.

Key Words: Ignition, CO₂ Laser, Diode Laser, Solid Fuel, Microgravity, Infrared Radiation, Near Infrared Radiation, Gas Phase Absorption

1. 背景・目的

固体の着火を考えた場合、最も基本的な熱輸送の形態の一つであるふく射の影響を考えることは、固体の着火機構を理解する上で重要である。そのため固体のふく射着火に関する、様々な実験や数値計算が行われており、多くの着火モデルが提案されている。

固体のふく射着火は、加熱時の照射強度、試料特性、形状によりその支配要因は異なり⁽¹⁻⁷⁾、特に気相における熱伝達や物質拡散は現象に強く影響を及ぼす⁽⁸⁻¹¹⁾。その一方で、通常重力環境下での実験では、加熱時の自然対流の影響により、試料近傍につねに強い流れが発生しており、現象の理解を難しくしている。このため、従来の研究の多くは数値解析的手法により、着火の議論を行ない、これらの計算結果を地上実験と比較

するという手法が取られてきた。例えば、微小重力環境に相当する静止雰囲気における一次元場でのモデル⁽¹²⁻¹⁵⁾に基づく研究が行われており、更に近年では、流れ場を含めた多次元場でのモデル⁽¹⁶⁻²¹⁾が示されており、重力の違いによる気相における着火形態の変化などの予測も試みられている。

このような中で著者らは、近年国内の微小重力実験環境が整ってきたことを利用し、ふく射加熱による紙の着火現象を、自然対流の影響のない静止雰囲気で観察してきた^(22, 23)。これらの研究では、CO₂レーザ（波長 10.6 μm）や半導体レーザ（波長 800.1 nm）を加熱源とし、微小重力下の静止雰囲気においてろ紙の着火過程を詳細に観察し、その着火機構などについて議論を行ってきた。

固体のふく射着火において、ふく射加熱源の照射強度の影響は、着火現象を考える上で重要な要因の一つであるが、ふく射加熱源の照射波長もふく射着火における気相での反応、特に気相における吸収影響を考える上で重要な要因の一つであると考えられる。例えばセルロースの熱分解を考えた場合、低温から着火に至る条件で放出される熱分解および酸化分解生成物(CO,

* 原稿受付 2002年9月4日。

^{*1} 准員, 北海道大学大学院工学研究科(〒060-8628 札幌市北区13条西8)。^{*2} 正員, 北海道大学大学院工学研究科。

E-mail: ofujita@eng.hokudai.ac.jp

CO₂, H₂O, CH₄, C₂H₆ 等) では、2~18 μ m の赤外光に強い吸収特性を有しており、また 1 μ m より短い赤外波長域ではほとんど吸収がないことから⁽²⁴⁾、気相における吸収は照射源の波長に対する依存性が大きく、照射波長の違いがふく射着火現象に及ぼす影響は大きいと考えられる。しかしこれまでふく射加熱源の波長の違いが着火現象に与える影響について調べられた例はなく、その詳細は必ずしも明らかではない。

また、外部ふく射の気相吸収の影響に関しては、PMMA の様に発生するガスの吸収係数が大きい場合や、照射強度が大きいといった条件ではその影響の重要性が報告されているが^(9,11)、セルロース系の材料については、気相における吸収の影響そのものを明確に観察した例は少なく、数値解析においても、そのような条件では吸収の影響は無視される場合が多い。しかし、セルロース系の材料は日常生活の中でも幅広く用いられるもので、その着火機構を詳細に明らかにすることは重要である。

これらのことから、加熱源の照射波長の違いによる影響について調べるため、赤外光波長を持つ CO₂ レーザ (波長 10.6 μ m)、近赤外光波長を持つ半導体レーザ (波長 800.1nm) を加熱源として実験・検討を行った。

2. 実験装置および方法

本研究におけるデータのほとんどは微小重力環境下において取得した。微小重力環境を得る手段としては、(株)日本無重量総合研究所 (MGLAB) の 100m 級落下施設 (微小重力レベル 10⁻⁵G, 微小重力時間 4.5sec) を利用した。

微小重力実験で使用した装置は燃焼室、加熱用のレーザ、光源に He-Ne レーザ (波長 633nm) を用いた Mach-Zehnder 干渉系、撮影用カメラからなる。燃焼室内部の様子を図 1 に示す。燃焼室は 230×150×170mm の矩形構造をしており、試料が燃焼室のほぼ中央に固定されている。このように燃焼室中では試料が底面に対し垂直に立てられており、その正面から加熱用レーザが照射される。着火の様子は燃焼室上部の観察窓を通し、デジタルビデオカメラを用いて記録した。

ふく射加熱源としては赤外光波長を持つ CO₂ レーザ (SYNRAD 41-1-28, 波長 10.6 μ m)、および近赤外光波長を持つ半導体レーザ (Spectra-Physics Model HS, 波長 800.1nm) を用いた。レーザ出力は OHPIR 社の F150A (ヘッド部) 及び NOVA (ディスプレイ部) を

用いて測定し、レーザ出力分布は、レーザ光位置を固定したまま、直径 1mm のピンホール通してレーザ光中心において水平・垂直方向に関し 0.5mm 毎に測定し、その積分値が総出力になることを確認し決定した。

図 2 に出力を 8W とした時の両レーザの出力分布を示す。このようにどちらのレーザもこの出力では最大値 0.17W/mm²、半値巾 6.2mm の分布となっていることがわかる。

Fig.1 Combustion chamber

Fig.2 Laser power distribution of CO₂ laser and Diode laser.
(Max:0.17W/mm², Bandwidth 6.2mm)

実験用試料としては、ろ紙 (ADVANTEC filter paper No.1, 試料面密度 90g/m^2 , 試料厚さ約 0.2mm , 繊維直径 $25\mu\text{m}$, 保留粒子径 $6\mu\text{m}$) を用いた。ろ紙はほぼ純粋なセルロース ($(\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5)_n$, 99%以上) であり, これまで行われてきたセルロースの着火研究との比較が容易であると考えられる。しかし加熱源を近赤外にした場合, 表面が白色の状態では試料表面における吸収がほとんど無く, 長時間の加熱においても熱分解ガスの発生は見られなかった。そこで試料表面における吸収率を高くするため, 試料表面にカーボンコピーを施し, 表面を黒色に加工したものを標準試料として用いた。また, ろ紙を黒く加工した際, ある一定以上の黒さでは, 表面の黒さの違いが着火遅れ時間に与える影響はほとんどなく, またカーボン付着による試料表面組成の変化が着火特性へ与える影響が小さいことは既に実験的に確かめられている⁽²³⁾。作成されたろ紙は $95\times 56\text{mm}$ に切り出したものを真鍮製のホルダに固定し, デシケータ内で 24 時間乾燥させて使用した。

本研究では, 照射されたふく射加熱の中心を原点とし, レーザビーム軸方向を z 軸, それと垂直方向を r 軸とし, z 軸と試料表面のなす角度を照射角度と定義する。加熱時の気相における反応の様子は, Mach-Zehnder 干渉法 (移動干渉縞法) により, 試料側面から観察を行い, r 方向および z 方向へのガス拡散や密度変化の様子を可視化し, デジタルビデオカメラにより撮影した。

レーザを試料へある期間照射すると, 試料は着火する。着火の判定法としては, 圧力上昇の測定や OH ラジカルの発光測定などによる方法も考えられるが, 本研究では, 最も単純に, 直接映像に青炎もしくは輝炎が観察された瞬間を着火と定義した。したがって着火以前に低温反応が生じ, ゆっくりとした体積膨張が発生するような場合は着火とは見なさないことにした。

3. 着火現象の観察

観察された赤外光加熱による紙の着火の様子を図 3 に示す。これは落下塔実験により, 加熱源を CO_2 レーザとして酸素濃度 21%, 窒素 79% の雰囲気において, ろ紙に図 2 に示すようなレーザ加熱を与え, 着火させた時の様子をデジタルビデオカメラ (30frame/s) により撮影したものである。

この図において白線で示した部分が試料部であり, レーザは右方から試料面に垂直に照射されている。こ

のように加熱開始後ある時間経過すると, 試料表面からガス状の物質が発生し始め(a), 時間と共に拡散していく様子が確認された(b)(c)。これはろ紙の加熱により発生した熱分解生成物が Mach-Zehnder 干渉計で用いた He-Ne レーザ光を散乱したものが見えていると考えられる。更に加熱が続くと試料から離れた位置において発光を伴った反応が観察された(d)。本研究ではこの発光が観察された瞬間を着火とした。

また加熱源を近赤外光とし着火させたときの様子を図 4 に示す。

Fig.3 Ignition phenomena of filter paper under Microgravity (Infrared, N_2 79% O_2 21%)

Fig.4 Ignition phenomena of filter paper under Microgravity (Near Infrared, N_2 79% O_2 21%)

これは加熱源に半導体レーザを用い、図3と同じ雰囲気条件・照射強度においてろ紙を加熱・着火させた時の様子である。レーザは図3同様右方から照射されており、白線で示した部分が試料部である。このように加熱開始後、赤外ふく射加熱の時と同様に、試料表面から熱分解ガスが発生・拡散し、着火に至る。しかし加熱開始から着火までの時間は赤外ふく射加熱条件と比べ非常に長く、特に赤外ふく射による着火では熱分解ガスの発生が観察されてから着火まで0.5s程度であるのに対し、近赤外ふく射による着火では1s以上の時間を要している。このように同じ雰囲気条件・照射強度においても加熱源の波長の違いにより着火の様子に明らかな違いが見られた。

4. 照射波長の影響

前節で示したように、照射加熱源の波長の違いより、着火の様子、特に着火遅れ時間に大きな違いが見られた。このことを詳細に調べるため、酸素21%、窒素79%の雰囲気条件において、照射強度を変化させて実験を行った。図5にビーム径を固定し、レーザ出力を変化させた時の両者の着火遅れ時間を示す。

Fig.5 Comparison of ignition delay between Infrared radiation and Near Infrared radiation

図において横軸はレーザ出力、縦軸は着火遅れ時間であり、赤外ふく射加熱による結果を□、近赤外ふく射加熱による結果を△で示した。この図から同じ照射強度であっても両者の着火遅れ時間は大きく異なり、どの条件においても赤外ふく射加熱条件の方が着火遅れ時間は短くなっていることがわかる。

このように照射加熱源の波長の違いにより、同じ照射強度条件においても、着火遅れ時間が異なるという結果が得られた。この違いの要因として(1)試料表面におけるふく射吸収の違い、(2)気相におけるふく射吸収の違い、が考えられる。

(1)の要因について考える場合、それぞれの波長での試料表面における吸収率を知る必要がある。しかし、ろ紙の様に加熱と共に試料表面の状態が変化する物質では、試料表面における吸収率は時間と共に変化する。照射したエネルギーの内、どの程度が表面で吸収され、反応に寄与しているかを特定するのは非常に困難である。そこで直接映像に熱分解生成物が確認されてから着火までの時間において、拡散している熱分解生成物の先端位置を各加熱時間毎に測定し、その比較を行った。同じ試料・同じ雰囲気条件では、熱分解生成物量・生成速度は試料表面で吸収されたエネルギー量に依存するため、これらを比較することにより、試料表面における吸収率の違いについて知ることができると考えられる。また熱分解生成物の拡散は試料表面における熱分解生成物の発生だけではなく、気相における膨張の影響も含まれるが、その点を考慮しても試料表面における吸収率の目安になると考えられる。

図6に加熱時間に対する熱分解生成物の拡散の状況を示す。

Fig.6 Comparison of the top position of plume

この図において、横軸は加熱時間、縦軸は試料表面から観察された熱分解生成物分布の先端位置までの距離である。この図から、8Wにおける赤外ふく射加熱(□)と近赤外ふく射加熱(△)を比較した場合、同じ照射出力でも赤外ふく射の方が熱分解生成物の発生・拡散共に早い事がわかる。このことから同じ照射強度におい

ては、近赤外ふく射よりも赤外ふく射の方が試料表面における吸収率が高く、反応に寄与するエネルギー量が大きいと考えられる。しかし、10Wの近赤外ふく射加熱条件(▲)と8Wの赤外ふく射加熱条件(□)を比較した場合、熱分解生成物の拡散は同程度である。それにも関わらず、着火遅れ時間は赤外ふく射の方が短く、また8Wの近赤外ふく射加熱条件(△)と5Wの赤外ふく射加熱条件(●)を比較すると、熱分解生成物の拡散は近赤外ふく射の方が速いにもかかわらず、着火遅れ時間は同程度か、むしろ赤外ふく射加熱の方が短くなっている。

このように、同じ照射強度においては表面における吸収率は赤外ふく射加熱の方が大きい、表面における吸収熱量が同程度と推測される条件で比較した場合においても、着火遅れ時間は赤外ふく射加熱の方が短い。このことから、図5に示された着火遅れ時間の違いは(1)の要因に加えて(2)の気相における吸収現象の違いも極めて重要であると考えられる。

ここで(2)の要因について考えるため、熱分解生成物の拡散速度が同程度であった10Wの近赤外ふく射加熱条件と8Wの赤外ふく射加熱条件において、Mach-Zehnder干渉映像からレーザ光軸上での干渉縞の移動量を測定し、その比較を行った。これにより得られた結果を図7に示す。

これはレーザ光軸中心上において試料表面から6mm, 8mmの位置における干渉縞の移動量を時間毎に測定したものであり、横軸が加熱時間、縦軸が縞の移動本数である。また図中の矢印は、それぞれの加熱条件において、直接映像から観察された熱分解生成物分布の先端が干渉縞測定位置(6mm, 8mm)に到達した時刻を示している。ここで干渉縞の移動本数は気相の屈折率が常温空気より小さくなったときの移動方向を正としており、この移動量は気相の温度変化を定性的に示していると考えられる。

このように、どちらの条件においても加熱開始してから一定時間後、加熱と共に干渉縞の移動量が増加する様子が見られた。これは試料表面からの熱伝導により気相温度が上昇し、気相密度が減少したためであると考えられる。また赤外ふく射加熱と近赤外ふく射加熱では、この加熱初期の縞の移動量は、 $z=6\text{mm}$, 8mm のどちらの位置においても、近赤外ふく射加熱条件の方が若干大きいものの、両者の間に大きな違いは見られない。しかし熱分解生成物が拡散し始めた後においては両者の傾向が異なることが理解できる。 $z=6\text{mm}$ における近赤外ふく射加熱条件では、熱分解生成物の到達直後少しの期間は増加が見られるものの、その後着

Fig.7 Comparison of fringe shift of Infrared and Near Infrared Beam at $z=6\text{mm}$ and 8mm . Arrows (↓) denoted the time when the top of the plume reaches the individual position

火直前までほとんど変化は見られなくなる。また $z=8\text{mm}$ においても熱分解生成物が十分に拡散した 1.2s 以降において縞の移動はほとんど見られない。これは加熱と共に気相の温度は上昇するものの、熱分解生成物の拡散により気相における屈折率が増加し、その結果、縞の移動が進まなくなると考えられる。しかし赤外ふく射加熱条件においては、熱分解生成物拡散後も縞の移動は停止することなく、むしろ熱分解生成物到達後は変曲点を持つ様な形で縞の移動量が急激に増加し、そのまま着火に至る。この違いの理由として、(1)発生している熱分解生成物の違い、(2)気相温度の違い、が考えられるが、同じ試料を加熱し、また図6からも両者の熱分解生成物の発生・拡散は同程度であることから、発生した熱分解生成物による影響はどちらの条件においても同程度に現れると考えられる。このことから、干渉縞の移動量の違いは気相温度の違いによるものと考えられる。

近赤外ふく射加熱では熱分解ガスによる吸収は極めて小さいため⁽²³⁾、発生した熱分解ガスは気相において加熱されることなく拡散していくのに対し、赤外ふく

Fig.8 Ignition phenomena of filter paper under Microgravity (Infrared, Irradiation Angle = 60deg)

射では、気相吸収により、熱分解生成物が試料表面より離れた位置でも加熱され、気相が試料表面からの熱伝導によってのみ加熱される近赤外ふく射加熱よりも気相温度が上昇していると考えられる。

この赤外ふく射加熱における気相吸収の影響について確かめるため、試料面に対して照射角度を変化させた実験を行った。微小重力環境下では、熱分解生成物はふく射加熱の照射角度によらず、試料面とほぼ垂直に吹き出し拡散していくため、気相における吸収が無い場合、着火はふく射加熱の照射角度によらず試料面の法線軸上から生じると予想される。一方、気相吸収の影響が強い場合は、レーザー光軸上から着火が開始するはずである。

照射角度を変化させた時の着火の様子の典型的な例を図8に示す。これは図2に示すCO₂レーザー加熱において、レーザー光軸(z軸)と試料面の為す角(照射角度)を60°とし、酸素濃度21%、窒素79%の雰囲気において着火させた時の様子である。図では図3、4と同様白線枠で示した部分が試料部であり、レーザーは右方から照射されている。このように加熱開始後、熱分解生成物は照射角度90°の時と同様に試料表面と垂直方向にドーム状に拡散し始める(a)(b)。その後気相において着火が観察されたが(c)、(c)の矢印で示すように着火は試料面の法線軸上ではなく、レーザー光軸上において開始する。一方半導体レーザーを用いた場合、着火はレーザー照射軸によらず、試料に垂直な中心軸上付近で生じる場合が多い。これらの結果、CO₂レーザーの場合はレーザー

光軸上の気相において、ふく射吸収により温度が上昇し、そのことが着火に有利に作用していることがわかる。

このように、気相反応に対する照射波長の影響は大きく、気相吸収の小さい近赤外ふく射加熱では、試料表面からの熱伝導により表面から離れた可燃混合気形成位置まで温度上昇させる必要があるが、気相吸収が大きい赤外ふく射加熱では、気相がふく射により直接加熱されるため、可燃混合気を形成している位置での温度が上昇しやすい。このように赤外ふく射加熱では気相吸収が着火に大きな影響を及ぼし、着火遅れ時間は近赤外ふく射加熱よりも短くなり、図5に示すような結果が得られたと考えられる。

本研究により、微小重力環境下でのろ紙のふく射着火において、照射波長の影響を調べることで、気相におけるふく射吸収の影響について実験的に明らかにすることができた。この結果は、従来から数多く行われてきたセルロースを燃料としたふく射着火に対する数値計算に対しても、一つの基本的な情報を与えるものを考えられる。

5. 結論

本研究では、微小重力環境下でろ紙のふく射着火実験を、異なるレーザー光源を用いて行うことにより、着火に及ぼすふく射光の波長影響を実験的に調べ、以下のような結果が得られた。

- (1) ろ紙のふく射着火において、ふく射光源の波長の違いにより着火遅れ時間が大きく異なる。近赤外光波長と赤外光波長では赤外光波長の方が着火遅れ時間が短くなる。
- (2) ろ紙のふく射着火において、照射波長の違いは固体の吸収率の違いによる加熱速度と、ふく射の気相吸収の両方に影響を及ぼす。このうち熱分解生成物放出後は気相吸収が着火に及ぼす影響が大きい。ガス化開始時間を同じになる様に出力を調節した場合でもCO₂レーザーの方が着火遅れ時間が近赤外光の半導体レーザーと比べ短いのはこの影響による。
- (3) ろ紙のふく射着火において、試料表面に対する照射角度を変化させた場合、赤外光のCO₂レーザーで

は、着火は照射角度によらずレーザー光軸上から開始する。このことは、CO₂ レーザの場合、気相吸収が着火位置に支配的影響を与えていることを示している。

謝 辞

本研究は NASDA および (財) 日本宇宙フォーラムの「宇宙環境利用に関する地上研究公募」によって行われたことを記し、感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) S. Martin, Proc. Combust. Inst. 10 pp. 877-896 (1965)
- (2) N. J. Alvares, S. B. Martin, Proc. Combust. Inst. 13 pp. 905-914 (1971)
- (3) T. J. Ohlemiller, M. Summerfield, Proc. Combust. Inst. 13 pp. 1087-1094 (1971)
- (4) T. X. Phuoc, M. P. Mathur, J. M. Ekmann, Combust. Flame, vol. 93 pp. 19-30 (1993)
- (5) J. C. Chen et al, Combust. Flame, 97 pp. 107-117 (1994)
- (6) B. A. Wong, George R. Gavalas, Richard C. Flagan, Energy and Fuel, 9 pp. 484-495 (1995)
- (7) James E. Brown, T. Kashiwagi, Polymer Degradation and Stability, 52 pp. 1-10 (1996)
- (8) N. Mutoh, T. Hirano, K. Akita, Proc. Combust. Inst. 17 pp. 1183-1190 (1978)
- (9) T. Kashiwagi, Combust. Flame, 34 pp. 31-244 (1979)
- (10) Y. Yoshizawa, H. Kubota, Proc. Combust. Inst. 19 pp. 787-795 (1982)
- (11) T. Kashiwagi, Combust. Flame, 44 pp. 223-245 (1982)
- (12) T. Kashiwagi, Combustion Sci. and Tech. 8 pp. 225-236 (1974)
- (13) M. Kindelan, F. A. Williams, Combustion Sci. and Tech. 16 pp. 47-58 (1977)
- (14) C. Di Blasi, S. Crescitelli, G. Russo, G. Cinque, Combust. Flame, 83 pp. 333-344 (1991)
- (15) S. H. Park, C. L. Tien, Combustion Sci. and Tech. 95 pp. 173-192 (1994)
- (16) G. Kushida, H. R. Baum, T. Kashiwagi and C. Di Blasi, Journal of Heat Transfer, 114 pp. 494-502 (1992)
- (17) K. Nakabe, K. B. McGrattan, T. Kashiwagi, H. R. Baum, H. Yamashita, G. Kushida, Combust. Flame, 98 pp. 361-374 (1994)
- (18) K. B. McGrattan, T. Kashiwagi, H. R. Baum, S. L. Olson, Combust. Flame, 106 pp. 377-391 (1996)
- (19) Y. Nakamura, H. Yamashita, T. Takeno, Combust. Flame, 120 pp. 34-48 (2000)
- (20) Pei-Hsun Lin, Chiun-Hsun Chen, Combustion Sci. and Tech. 151 pp. 157-187 (2000)
- (21) J. L. Cordova, A. C. Fernandez-Pello, Combustion Sci. and Tech. 156 pp. 271-289 (2000)
- (22) O. Fujita, J. Takahashi, K. Ito, Proc. Combust. Inst. 28 pp. 2761-2767 (2000)
- (23) 藤田修, 高橋純也, 伊藤献一, 日本機械学会論文集(B 編) Vol68, No666, pp568-575 (2002)
- (24) A. D. Cross: 赤外線吸収スペクトル入門, 東京化学同人