層流部分予混合火炎における火炎色の定量化とその決定要因*

立 田 節 雄^{*1}Quantitative Determination of Flame Color and Its Determining Factor in
Propane/Air Laminar Partially Premixed FlamesSetsuo TATSUTA^{*2}^{*2} Department of Mechanical Engineering, Asahikawa National College of Technology,
2-2 Syunkohdai, Asahikawa-shi, Hokkaido, 071-8142 Japan

The color of propane/air coflow laminar partially premixed flame was quantitatively determined by chromaticity coordinates defined by CIE 1931 standard colorimetric system. Equivalence ratio of the mixture was varied from 2.0 to 8.0. The differences in flame color attributed to burning conditions such as equivalence ratio, fuel flow rate and surrounding air velocity were examined with a colorimeter. Spectroscopic measurements were also taken to clarify the determining factors of the flame color. The contributions of the visible lights emitted from reaction zone, recombination zone and soot zone to the flame color were evaluated by introducing the concept of additive mixture of color stimuli.

Key Words: Combustion, Partially Premixed Flame, Color, Chromaticity Coordinates, Colorimeter, Spectroscopic Measurement, Gaseous Fuel

1. ま え が き

火炎の色はその内部で起こっている現象を把握するうえで重要な情報源である。例えば、輝炎の色からは、火炎中に存在するすす粒子の温度を経験的に知ることができる。また、青炎の色には、燃熱反応で生成された励起化学種についての情報が含まれている。

著者らは、(1)火炎色のデータベースを構築すること、(2)火炎色のもつ物理的な意味を明らかにすること、(3)火炎色を燃焼計測・燃焼制御に応用することを目的として、火炎の色に関する基礎研究を行っている。これまで、層流予混合火炎⁽¹⁾⁽²⁾および層流拡散火炎⁽³⁾の火炎色をXYZ表色系色度座標で定量化し、燃焼条件および燃料の種類による違いを明らかにした。また、ラジカルやすす粒子などの発光成分が、火炎色に及ぼす影響を評価した。さらに、層流予混合火炎において、火炎色から当量比を非接触計測する方法を提案し、測定精度、測定上の問題点、燃焼機器制御への適用性を検討している⁽⁴⁾⁽⁵⁾。しかし、火炎色そのもの

の研究例は極めて少なく、データの蓄積も十分とはいえない。特に燃焼装置で多く見られる部分予混合火炎の火炎色については、目視観察による詳細な説明⁽⁶⁾⁽⁷⁾があるのみである。

そこで本研究では、層流部分予混合火炎の火炎色をXYZ表色系色度座標で定量化し、層流予混合火炎および層流拡散火炎と比較することで、燃焼形態による火炎色の違いを明らかにした。また、可視発光スペクトルと火炎色の関係を調べるとともに、発光モデルに基づいて火炎色の決定要因を考察した。

2. 実験装置および実験方法

2・1 XYZ表色系色度座標 火炎色を定量化するさい、XYZ表色系色度座標を用いた。標準表色系の一つであるXYZ表色系では、3種類の色刺激の混合によって色を表現する。この表色系において、火炎などの光源から放射される色光 E は、次のような等色式で表色される⁽⁸⁾。

$$E \equiv X[X] + Y[Y] + Z[Z] \cdots \cdots (1)$$

ここで、 $[X]$ 、 $[Y]$ および $[Z]$ は基本的な色刺激であり、原刺激と呼ばれる。 X 、 Y および Z は色刺激の混合量を表す3刺激値であり、以下のように算出される。

* 原稿受付 2003年9月8日。

^{*1} 正員、旭川工業高等専門学校機械工学科(〒071-8142 旭川市春光台2条2)。

E-mail: tatsuta@asahikawa-nct.ac.jp

$$\left. \begin{aligned} X &= k \int_{380 \text{ nm}}^{780 \text{ nm}} P(\lambda) \cdot \bar{x}(\lambda) \cdot d\lambda \\ Y &= k \int_{380 \text{ nm}}^{780 \text{ nm}} P(\lambda) \cdot \bar{y}(\lambda) \cdot d\lambda \\ Z &= k \int_{380 \text{ nm}}^{780 \text{ nm}} P(\lambda) \cdot \bar{z}(\lambda) \cdot d\lambda \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 $P(\lambda)$ は色光 E の放射量の相対分光分布、 λ は波長、 $\bar{x}(\lambda)$ 、 $\bar{y}(\lambda)$ 、 $\bar{z}(\lambda)$ は等色関数、 k は3刺激値の Y の値を測光量と一致させるための比例定数である。XYZ表色系色度座標 (x, y, z) は、これらの3刺激値から計算される。

$$(x, y, z) = \frac{(X, Y, Z)}{X+Y+Z} = \frac{(X, Y, Z)}{S} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 S は3刺激値の和であり、刺激和と呼ばれる。また、 $x+y+z=1$ であるため、色光の色は座標 (x, y) のみで表現される。

2.2 実験装置 実験装置は既報⁽³⁾と基本的に同じものを用いた。火炎は内径8 mm、外径10 mmの銅製円管バーナ上に形成される。燃料には純度99%以上のプロパンを用いた。燃料流量 Q_f を1.32, 2.53, 3.26 cm³/sに設定し、当量比 ϕ を2.0, 4.0, 8.0と変化させた。火炎の揺らぎを抑えるため、火炎の周囲に空気を同軸状に流した。周囲空気は整流されたのち、出口内径が50 mmの縮流ノズルから噴出する。ノズル出口での周囲空気の平均流速 u_a は、0.2, 1.0, 2.0 m/sとした。

火炎の色度座標は刺激値直読方式の色彩計(ミノルタCS-100⁽⁹⁾)で測定した。この色彩計は0.01~299 000 cd/m²の範囲で輝度も同時に測定できる。輝度が12 cd/m²以上の標準光源Aで測定する場合、色度座標の確度および繰返し性は、それぞれ ± 0.004 および ± 0.002 である。同一の測定条件において、輝度の確度および繰返し性は、それぞれ $\pm 2.0\%$ および $\pm 0.2\%$ である。色彩計の受光部にクロズアップレンズを取付け、直径1.5 mmの領域で色度座標と輝度を測定した。光軸が火炎中心軸に対して直角になるように色彩計を設置し、色彩計の焦点位置を火炎中心軸上で合せた。

2.3 分光装置 分光装置は集光レンズ(材質BK7, 焦点距離120.7 mm, 直径30 mm)、紫外光カットフィルタ(日本分光L37)、回折格子分光器(日本分光CT-10, 回折格子: 刻線本数1 200本/mm, プレーズ波長500 nm)、光電子増倍管(浜松ホトニクスR1617)および増幅器で構成される。火炎から放射された可視光は集光レンズを通り、分光器の入射スリット(幅0.2 mm, 高さ1.0 mm)上に等倍で結像される。分光装置の分光感度を相関色温度⁽¹⁰⁾が2 130 Kのハ

ロゲンランプを用いて調べておき、分光装置からの出力に対して補正を行った。赤外領域に近い波長域では紫外発光の二次回折光の影響を受ける可能性があるのので、可視発光スペクトルは380 nmから720 nmの範囲で測定した。

3. 火炎色の定量化

3.1 色度座標および輝度の分布 当量比 $\phi=2.0, 4.0, 8.0$ における色度座標 (x, y) と輝度 L の分布を図1に示す。燃料流量 Q_f は1.32 cm³/s, 周囲空気流速 u_a は1.0 m/sである。バーナ先端からの軸方

Fig.1 Profiles of chromaticity coordinates and luminance

向距離 H を火炎長 FH で無次元化した値 H/FH が、0.08, 0.15, 0.25, 0.40, 0.60, 0.80 および 0.90 の位置において、火炎中心軸からの半径方向距離 R を 0.5 mm 間隔で変えて測定した。なお、火炎長 FH はバーナ先端から輝炎領域の先端までの距離と定義した⁽¹¹⁾。輝度の分布には、目視による青炎、暗い輝炎（輝度が約 500 cd/m^2 以下）、明るい輝炎（輝度が約 500 cd/m^2 以上）の領域が示されている。

$\phi=2.0$ の火炎は大部分が青炎であり、消炎した反応帯（内炎）の先端付近に、極めて低輝度の黄赤色の領域が観察される。反応帯の外周部には、CO の燃焼による青白色の弱い発光領域である再結合領域⁽¹²⁾（外炎）が見られる。反応帯領域の色度座標は $(0.22 \sim 0.25, 0.23 \sim 0.29)$ であり、先端側ほど x は大きく、 y は小さくなっている。再結合領域の色度座標に位置によらずほぼ一定値 $(0.22 \sim 0.24, 0.22 \sim 0.23)$ となっている。この値は予混合火炎の外炎での色度座標⁽⁴⁾と一致している。

$\phi=4.0$ および 8.0 の火炎は基部側が青炎で、その下流側に輝炎が形成される。 ϕ が大きいほど輝炎の領域は広くなり、輝度も高い。青炎および暗い輝炎の領域では、色度座標が軸方向の位置によって大きく変化する。明るい輝炎の領域では色度座標の分布が均一であり、 x は $0.49 \sim 0.51$ 、 y は $0.40 \sim 0.42$ となっている。

3.2 火炎色の軸方向分布 図2は、図1の火炎において、中心軸上で測定した色度座標を xy 色度図上にプロットしたものである。図2には JIS で規定された系統色名の区分⁽¹³⁾が表示されており、色度座標と色名を対応付けることができる。括弧内の数値は輝度であり、一点鎖線は黒体放射軌跡を表す。比較のために、プロパンを燃料とする予混合火炎⁽²⁾ ($\phi=0.8 \sim 1.4$) および拡散火炎⁽³⁾ の色度座標の位置が破線で示されている。

$\phi=2.0$ では、予混合火炎に比べて、色が全体的に白みを帯びている。また、予混合火炎の場合とは逆に、基部側ほど緑みが強い。色名は基部側がうすい青緑、他の大部分は青みの白である。 $\phi=4.0$ および 8.0 では、位置によって色が大きく変化する。色名は青炎領域で青みの白および白、暗い輝炎領域は黄みの白、うすい黄赤および黄赤、明るい輝炎領域は黄赤である。拡散火炎に比べて、青炎領域の色はいくぶん緑みが少ないが、輝炎領域の色には大きな違いが見られない。輝炎領域の色度座標は黒体放射軌跡に近い位置にある。 $\phi=8.0$ の火炎において、明るい輝炎領域 ($H/FH=0.6 \sim 0.9$) の相関色温度は 2060 K から 2320 K

Fig. 2 Axial profiles of flame colors

の範囲にある。その値は、燃料流量 Q_f および周囲空気流速 u_a が同一の拡散火炎での値に比べて、約 100 K 高くなっている⁽¹⁴⁾。

$\phi=2.0$ および 8.0 の火炎において、燃焼条件を変えて測定した中心軸上での色分布を図3に示す。 Q_f を増加、あるいは u_a を減少させると水炎が長くなり、火炎に占める輝炎の割合が増す。その結果、火炎の基

Fig. 3 Effects of Q_f and u_a on flame colors

部側において、 H/FH が同じ位置での火炎色は、燃焼条件によって異なるものとなる。しかし、火炎全体の色分布は1本の曲線で表すことができる。

4. 火炎色の決定要因

4・1 発光スペクトル 火炎色の決定要因を明らかにするため、図1および図2の火炎において、中心軸上で可視発光スペクトルを測定した。その結果を図4に示す。

$\phi=2.0$ での可視発光スペクトルは、予混合火炎の場合⁽¹⁾と同様に、387.2, 431.5 nmにバンドヘッドをもつCHラジカルバンドスペクトル、473.7, 516.5, 563.6 nmにバンドヘッドをもつ C_2 ラジカルスワンバンドシステム、および主としてCOとOの再結合反応による連続スペクトルで構成されている。基部側($H/FH=0.15$)に比べて、火炎の先端側($H/FH=0.60$)ではCHラジカルと C_2 ラジカルバンドスペクトルが弱くなり、連続スペクトルの強度が増している。これは、図1(a)の輝度分布から明らかのように、

(a) $\phi=2.0$ (b) $\phi=4.0$ (c) $\phi=8.0$ Fig. 4 Spectra measured at various H/FH

火炎の先端側ほど反応帯からの発光が弱くなり、COの燃焼に伴う再結合領域からの発光が相対的に強くなるためと推察される。 $\phi=4.0$ において、青炎と暗い輝炎の境界付近($H/FH=0.60$)では、上述の化学発光のほかに、すす粒子の熱発光による連続スペクトルが長波長側で現れている。暗い輝炎の領域($H/FH=0.80$)では、熱発光による連続スペクトルが完全に支配的となり、化学発光は無視することができる。すす粒子がより生成されやすくなる $\phi=8.0$ では、 $\phi=4.0$ の場合に比べて、基部側から熱発光による連続スペクトルが現れている。

以上の観察より、火炎から放射される可視光は、反応帯からの化学発光、再結合領域からの化学発光、すす粒子が存在する領域からの熱発光が重なったもので

Fig. 5 Emission model in partially premixed flame

あることがわかる。また、それらの相対強度が位置によって変化するため、色分布が生じていることは容易に理解される。しかし、発光スペクトルからは、3種類の発光成分の火炎色に対する寄与について、定性的な情報しか得られない。そこで、以下のような発光モデルを用いて、火炎色の決定要因を考察した。

4・2 発光モデル 図5に示すように、火炎から放射される可視光は、基部側に形成される反応帯からのCHラジカル、C₂ラジカルおよびCOの燃焼による化学発光、外周部に形成される再結合領域からのCOの燃焼による化学発光、すす領域からの熱発光が加法混色⁽¹⁵⁾したものとする。その場合、火炎の色度座標 (x, y) は次式で表すことができる。

$$\left. \begin{aligned} x &= \frac{x_c S_c + x_r S_r + x_t S_t}{S_c + S_r + S_t} \\ y &= \frac{y_c S_c + y_r S_r + y_t S_t}{S_c + S_r + S_t} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 x と y は色度座標、 S は刺激和を表す。添字 c, r, t は、それぞれ、反応帯、再結合領域およびすす領域から放射された可視光を意味する。

図6は、式(4)の物理的意味を xy 色度図上で説明したものである。記号●で示した火炎の色度座標 (x, y) は、3種類の可視光の色度座標 (x_c, y_c) 、 (x_r, y_r) 、 (x_t, y_t) を結ぶ三角形の領域内にあり、それらの刺激和 S_c, S_r, S_t を重みとする重心の位置にくる。

3・1節で述べたように、 (x_r, y_r) は(0.22~0.24, 0.22~0.23)、 (x_t, y_t) は(0.49~0.51, 0.40~0.42)であり、位置によってほとんど変化しない。反応帯の外周部に再結合領域があるため、 (x_c, y_c) を直接測定することは困難であるが、おおよその値は見積もることができる。すなわち、基部側の青炎領域からの発光は、火炎帯および再結合領域からの発光が加法混色したものであるため、 (x_c, y_c) は次のように計算できる。

$$\left. \begin{aligned} x_c &= \frac{xS - x_r S_r}{S - S_r} = \frac{x(Y/y) - x_r(Y_r/y_r)}{(Y/y) - (Y_r/y_r)} \\ y_c &= \frac{yS - y_r S_r}{S - S_r} = \frac{y(Y/y) - y_r(Y_r/y_r)}{(Y/y) - (Y_r/y_r)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (5)$$

Fig. 6 Contribution of three emissions to flame color

3刺激値の Y は輝度 L に比例するので、式(5)は以下のようにも表すことができる。

$$\left. \begin{aligned} x_c &= \frac{x(L/y) - x_r(L_r/y_r)}{(L/y) - (L_r/y_r)} \\ y_c &= \frac{y(L/y) - y_r(L_r/y_r)}{(L/y) - (L_r/y_r)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (6)$$

図6には、図2の $\phi=2.0$ ($H/FH=0.08\sim0.60$)、 4.0 ($0.08\sim0.40$)および 8.0 ($0.08, 0.15$)について、式(6)で計算した (x_c, y_c) が記号■、▲、◆で示されている。計算のさい、火炎の色度座標 (x, y) および輝度 L には、中心軸上での測定値を用いた。また、再結合領域の色度座標 (x_r, y_r) は(0.230, 0.225)とし、輝度 L_r には火炎帯との境界付近で測定した輝度を便宜的に用いた。図6に示すように、 (x_c, y_c) は(0.22~0.25, 0.27~0.30)と見積もられ、 (x_c, y_c) もまた位置による違いは少ないと予想される。

したがって、火炎の色分布は、主として刺激和 S_c, S_r, S_t が位置によって異なるために生じているといえる。例えば、反応帯および再結合領域からの可視光によって火炎色が決定されている青炎領域では、色度座標 (x, y) は (x_c, y_c) と (x_r, y_r) を結ぶ直線上にあり、その位置は S_c と S_r の強度比に依存する。この領域では火炎の先端側ほど反応帯からの発光が弱くなり、 S_r は S_c に比べて相対的に強くなる。それゆえ、青炎領域の色度座標は先端側ほど青緑の区分の近くにある (x_c, y_c) 側から、青みの白の区分にある (x_r, y_r) 側へ移動すると考えられる。また、暗い輝炎領域では、先端側ほどすす粒子の熱発光が強くなる。そのため、熱発光の刺激和 S_t の増加とともに、色度座標 (x, y) は (x_r, y_r) 側から黄赤の区分にある (x_t, y_t) 側へ連続的に移動することになる。さらに、明るい輝炎領域では、反応帯および再結合領域からの発光の影響

は無視することができ、色度座標はすす領域からの熱発光のみによって決定される。この領域の色度座標は、拡散火炎の場合⁽³⁾と同様に、光路上に存在するすす粒子の温度や密度・粒径・組成などの空間分布に依存し、黒体放射軌跡に沿ってわずかに移動するものと推察される。

5. 結 論

プロパン層流部分予混合火炎において、火炎色をXYZ表色系色度座標で定量化するとともに、可視発光スペクトルおよび発光モデルに基づいて、火炎色の決定要因を考察した。その結果、以下のことが明らかになった。

(1) $\phi=2.0$ では、火炎色が予混合火炎よりも白みを帯びており、色名は基部側がうすい青緑、他の大部分は青みの白である。 $\phi=4.0$ および 8.0 の火炎色は、基部側から先端側にかけて青みの白、白、黄みの白、うすい黄赤、黄赤へと変化する。拡散火炎に比べて、青炎領域の色は緑みが少なく、輝炎領域の色には大きな違いは見られない。

(2) 火炎から放射される可視光は、反応帯からの化学発光、再結合領域からの化学発光、すす領域からの熱発光が重なったものである。火炎の色分布はそれらの相対強度の違いによって生じている。

(3) 火炎の構造と発光現象を単純化した発光モデルを用い、加法混色の考え方を導入することで、それらの3種類の発光成分が火炎色に及ぼす影響を明らかにした。

文 献

- (1) Ito, K., Ihara, H., Tatsuta, S. and Fujita, O., Quantitative Characterization of Flame Color and Its Application (Introduction of CIE 1931 Standard Colorimetric System), *JSME Int. J.*, Ser. II, **35**-2 (1992), 287-292.
- (2) Tatsuta, S., Fujita, O. and Ito K. (Sideman, S. and Hijikata, K., eds), *Imaging in Transport Processes*, (1993), 471-479, Begell House.
- (3) 立田節雄・藤田修・伊藤献一, 層流拡散火炎における火炎色の定量化とその決定要因, 機論, **64**-624, B (1998), 2669-2675.
- (4) 立田節雄・藤田修・伊藤献一, 火炎色による層流予混合火炎の当量比計測, 機論, **62**-593, B (1996), 368-373.
- (5) 立田節雄・藤田修・伊藤献一, 火炎色による層流予混合火炎の当量比計測 (第2報), 機論, **64**-625, B (1998), 3084-3090.
- (6) Gaydon, A. G. and Wolfhard, H. G., *Flames, Their Structure, Radiation and Temperature*, 3rd ed., (1970), 10-11, Chapman and Hall.
- (7) Gore, J. P. and Zhan, N. J., NO_x Emission and Major Species Concentrations in Partially Premixed Laminar Methane/Air Coflow Jet Flames, *Combust. Flame*, **105** (1996), 414-427.
- (8) JIS Z 8701-1995 (色の表示方法-XYZ表色系及び $X_{10}Y_{10}Z_{10}$ 表色系), (1995).
- (9) 山崎康雄, 計測技術, 増刊号, (1987), 158-161.
- (10) JIS Z 8725-1999 (光源の分布温度及び色温度・相関色温度の測定方法), (1999).
- (11) 火の百科事典, (1999), 148, 丸善.
- (12) Glassman, I., *Combustion*, 2nd ed., (1987), 111-114, Academic Press.
- (13) JIS Z 8110-1995 (色の表示方法—光源色の色名), (1995).
- (14) 立田節雄・藤田修・伊藤献一, 色度座標による層流部分予混合火炎の色の数値化, 第32回燃焼シンポジウム講演論文集, (1994-11), 458-460.
- (15) 末田哲夫, オプトロニクス技術活用のための光学部品の使い方と留意点, 増補改訂版, (1989), 208, オプトロニクス社.