

対向入射レーザー誘起蛍光法による火炎中の NO 分布の可視化

田村 雅之・Dagmar Wolff・田井 秀男

東京ガス(株)インフォメーションテクノロジー研究所 〒260-91 千葉市美浜区中瀬 2-3

Imaging of NO in Flames Using Laser-Induced Fluorescence with Counter Propagating Beams

Masayuki TAMURA, Dagmar WOLFF and Hideo TAI

Information Technology Research Institute, Tokyo Gas Co., Ltd., 2-3, Nakase, Mihama-ku, Chiba 260-91

Laser-induced fluorescence (LIF) technique using an ArF (λ 193 nm) excimer laser is an effective tool for high-sensitive measurements of NO distributions in flames. However the depletion of the excitation beam caused by absorption of water is a serious problem in using this wavelength. In order to solve the problem, LIF with counter propagating beams is proposed and it is demonstrated on the NO distribution measurement in a Bunsen burner flame.

1. ま え が き

燃焼排ガス中の窒素酸化物が、酸性雨等の環境問題を引き起こすと指摘されている。この問題を解決することが重要な課題となっている状況下で、燃焼排ガス中に含まれる窒素酸化物の火炎内での生成機構をより詳細に検討し、次世代の低環境負荷燃焼の研究、開発に役立てることが急務となっている。このためには、火炎中の窒素酸化物分布を計測し、その生成状況を把握することが不可欠である。

一般に排気ガス中の分子種濃度測定に比べて、火炎中の濃度分布の測定は格段に困難である。これに対し、近年、火炎内物質の非接触可視化技術として、レーザー誘起蛍光法、ラマン散乱法、CARS (coherent anti-stokes Raman scattering)、縮退 4 光波混合等の光計測が応用され始めている。レーザー誘起蛍光法 (laser induced fluorescence: LIF) は、ラジカルや分子を光励起し、後に緩和過程で輻射される蛍光を測定するものであり、火炎中の各種化学種の分布を、非接触、高感度で瞬間計測できる手法として広く研究されてきている。窒素酸化物のひとつ、NO の生成に関わる各種ラジカル類について、層流火炎を用いた LIF 計測の詳細な研究が進んでおり¹⁾、また実用燃焼器に近い、より複雑な燃焼系についても、193 nm のチューナブル ArF エキシマレーザー

を用いて NO の良好な 2 次元分布の可視化が報告されている²⁾。NO の生成反応は火炎中の広い範囲にわたって進行するものであるから、可視化範囲の大小は、状況の理解に大きく関わる。後述するように、193 nm の励起光を使用する場合、可視化領域を広くとれるという利点がある。その反面、励起光が水蒸気等により吸収されることが問題となっていた。本論文では、この励起光吸収の問題を解決するシンプルかつ有効な計測法を提案する。

2. 使用する電子遷移

LIF に使用される NO の電子遷移はいくつかある。それぞれの遷移について、過去に、長所と短所が議論されている³⁾。226 nm 付近の A-X 遷移は、他の化学種の遷移とのオーバーラップが少なく、また利用可能な回転遷移の数も豊富である。この点は、特に温度計測等に重要であり、A-X 遷移を使用する場合の長所である。また、分子衝突による無輻射緩和過程の影響も、この A-X 遷移についてはよく研究されており⁴⁻⁶⁾、このことも A-X 遷移を使用する際の利点である。しかしながら、レーザー光をシート状に広げて 2 次元計測をする平面 LIF 法を使用して、火炎中の NO 分布を広い測定空間で瞬時計測しようとする場合、ある程度の強い光源が要

求されるが、226 nm 付近で分光に適した光源は、色素レーザーの 1~2 mJ/pulse 等に限られ、大きな強度が得られない。一方、ArF チューナブルエキシマレーザー (193 nm) は数百 mJ/pulse の強度が得られ、この波長帯が NO の D-X 遷移の一部に一致している。この遷移を使用すれば、A-X 遷移を使用するよりも高感度の測定ができ、レーザーシートを広げての可視化範囲も広くとることができる。

D-X 遷移を使用するにあたっては、いくつかの問題点も指摘されていた。例えばこの遷移は、O₂ の B-X 遷移とオーバーラップしており、使用可能な遷移は限られているという点である。しかし、(0, 1) バンドの R₁ (26.5) 線などは、O₂ の遷移とよく分離され、使用可能であることが報告されており⁷⁾、この遷移を用いて広範囲の分布の可視化が容易に可能である。

ところが、D-X 遷移を使用するには未だ解決されていないもうひとつの問題点がある。この波長域では水蒸気の吸収が顕著であるため、励起光が吸収されて減衰してしまう。水蒸気はほぼ無輻射で緩和するため、LIF 信号の検出そのものには影響はないが、LIF 信号 S は

$$S = \phi n f_{\nu', \nu''}(T) g \eta B I \quad (1)$$

のように励起光強度 I に比例するため、火炎内の励起光の減衰状況が正確に把握できなければ、計測不可能である。ここで n は NO の密度、 $f_{\nu', \nu''}(T)$ はボルツマン因子、 g は縮重度、 η は蛍光の量子収率、 B はアインシュタインの B 係数、 ϕ は検出器の効率等を含む定数である。乱流火炎等非正常現象の場合、励起光を吸収する水蒸気の分布は刻々と変化するため、これを正確に知ることは実際上不可能である。

3. 原 理

逆方向に伝搬する 2 つのレーザーシートパルスを考える (Fig. 1)。パルス A は +x 方向、パルス B は -x 方向に伝搬するものとし、レーザーシートの幅方向を y 軸とする。パルス A によって誘起された LIF 信号 S_A は次のように表される。

$$S_A(x, y) = \phi n f_{\nu', \nu''}(T) g \eta B I_A(x=0, y) \exp\left[-\int_0^x \alpha(\zeta, y) d\zeta\right] \quad (2)$$

ここで α は場所 (x, y) における励起光波長の吸収係数である。一方、パルス B によって誘起された LIF 信号 S_B は次のように表される。

$$S_B(x, y) = \phi n f_{\nu', \nu''}(T) g \eta B I_B(x=0, y) \exp\left[\int_0^x \alpha(\zeta, y) d\zeta\right] \quad (3)$$

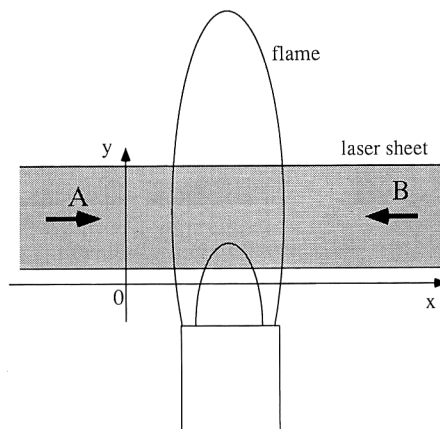


Fig. 1. Counter propagating two excitation beams.

式(2)と式(3)の両辺を掛け合わせ、平方根をとると、つぎの関係が得られる。

$$\sqrt{\frac{S_A(x, y) S_B(x, y)}{I_A(x=0, y) I_B(x=0, y)}} = \phi n f_{\nu', \nu''}(T) g \eta B \alpha n \quad (4)$$

この式(4)は α を含まないので、励起光の吸収の影響が除去されたことを表している。この式より、2 つの LIF 信号 $S_A(x, y)$, $S_B(x, y)$ から位置 (x, y) における NO 濃度を求めるには、励起光 I_A , I_B の $x=0$ における y 方向プロファイルがわかればよい。また、定量的測定には、温度 $T(x, y)$ によって決定される基底状態のボルツマン分布、量子収率 η の場所 (x, y) による変化 (クエンチング等、分子衝突による無輻射緩和過程の影響) が重要となる。

4. 実 験

実験配置を Fig. 2 に示す。193 nm チューナブル ArF エキシマレーザー (Lambda Physik LPX 150 T) からのレーザー光は、ビームスプリッター BS1 で 2 方向に分割される。レーザーのパルス幅と線幅は、それぞれ 20 ns, 0.003 nm (FWHM) である。ビーム A とビーム B は、レンズ系を使用してシート状に整形してもよいが、本実験では、ビーム (10×25 mm) の中心部のみを 1×20 mm のスリットアパーチャーで切り出して使用した。火炎入射直前での強度は、それぞれ 4 mJ/cm²・pulse, 2 mJ/cm²・pulse である。本手法を行うには原理上、LIF 信号の励起光強度に対する線形性が失われてはならない。したがって、これらの強度は、NO の LIF 信号の飽和を避けるため、2 MW/cm² 以下に抑えられなくてはならない⁷⁾。ビーム A は、図中矢印 A の方向に沿って火炎中を通過し、ビーム B は矢印 B の方向で

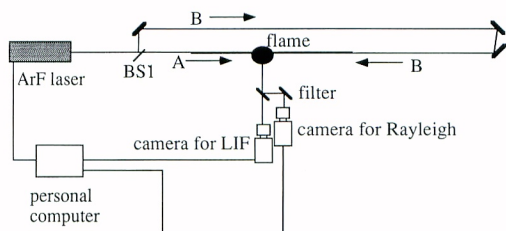


Fig. 2. Experimental set-up.

火炎中を通過する。このとき、ビーム B は、11 m のオプティカルディレイを事前通過しており、2 つのビームが火炎を通過するタイミングは 33 ns のずれを伴う。ここで使用した火炎は、同軸 2 次空気流を伴うベンゼンバーナーで、 CH_4 /空気火炎である。燃料/空気比は 0.417 sl/m : 2.78 sl/m の燃料過剰 (空気比 0.7) で燃焼させた。LIF 信号は、ビーム伝搬方向に垂直な方向に設置されたイメージンシファイア付き CCD (charge coupled device) カメラ (LaVision Flamestar : 384×286 pixels) によってとらえられる。レーリー散乱信号をカットするため、193 nm 反射フィルター (100%, 45° 入射, バンド幅 20 nm FWHM) を使用し、結像系には 105 mm, f/4.5 (UV Nikkor) を用いた。2 つのパルスからの信号を別々のカメラで計測すれば、瞬間計測 (33 ns という時間スケールでは NO 分布の変化はないと仮定できる) が可能であるが、本実験は、定常火炎を用いた原理確認実験であるため、1 台のカメラで、ゲートタイミングを変えて 2 回計測した。クロストークなく信号検出が可能であることを、各々のビームを遮って確認した。レーザーシートの強度プロファイルはそれぞれ別の CCD カメラで計測した空气中分子からのレーリー散乱信号によって同時に測定される。

5. 結 果

Fig. 3 (a), (b) に、パルス A, B による LIF 信号の画像をそれぞれ示す。いずれも 30 回の測定の前平均画像である。レーリー散乱を用いて、レーザー強度プロファイルの補正をした。矢印は励起光伝搬の方向を示す。この 2 枚の画像の違いから、励起光の吸収の影響が蛍光分布に影響を与えていることがわかる。Fig. 3 (c) は、上記の手続きで求めた最終的な画像である。すなわち、Fig. 3 (a), (b) のそれぞれ対応するピクセルごとに掛け合わせ、測定された A, B 両ビームの強度プロファイルの積で割り、平方根をとったものである。これにより、励起光の吸収による影響が除去されたこととなる。

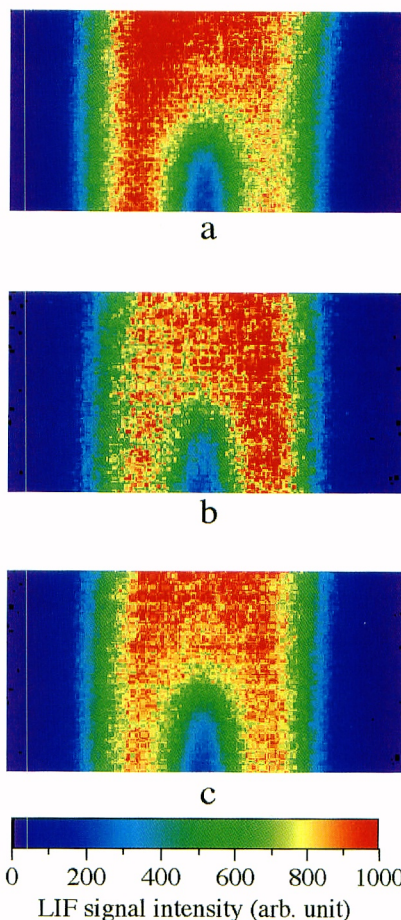


Fig. 3. Laser induced fluorescence images (corrected for each laser sheet intensity profiles) : (a) excited by beam A, (b) excited by beam B, (c) final processed image.

より正確な NO 分布をこの蛍光強度分布から知るには、下単位の数密度分布が必要である。これは、温度分布を同時に測定し、ボルツマン分布を仮定することで得られる。しかしながら、ここで使用している下単位 ($j=26.5$) の数密度分布の温度依存性は、典型的な火炎温度である 2000 K 付近では比較的緩やかである (1900~2100 K の間で 10% の変化)。したがって、火炎内の NO 分布に目的を限れば、Fig. 3 (c) の蛍光強度分布が、ほぼ NO 分布とみなしてもよいといえる。

6. ま と め

193 nm チューナブル ArF レーザーを用いる NO の LIF 測定において、水蒸気分子による励起レーザー光の吸収が測定結果に及ぼす影響を議論し、これを解決する

シンプルかつ有用な手法を示した。この手法は、火炎中の NO 分子の分布を、広い領域で 2 次元測定する際に有用である。

文 献

- 1) 平野 光, 辻下正秀: “平面レーザー誘起蛍光法による炭化水素火炎の Prompt NO 生成と火炎温度の診断技術”, 光学, **23** (1994) 765-774.
- 2) R. Hönig, G. Kappler, P. Andresen and N. Brehm: “Multi species detection in a liquid fuelled model combustor using tunable excimer lasers,” Combust. Sci. Technol., **102** (1994) 255-272.
- 3) M. P. Lee, B. K. McMillin and R. K. Hanson: “Temperature measurements in gases by use of planar laser-induced fluorescence imaging of NO,” Appl. Opt., **32** (1993) 5379-5396.
- 4) G. A. Raiche and D. R. Crosley: “Temperature dependent quenching of the $A^2\Sigma^+$ and $B^2\Pi$ states of NO,” J. Chem. Phys., **92** (1990) 5211-5217.
- 5) D. E. Heard, J. B. Jeffries and D. R. Crosley: “Collisional quenching of $A^2\Sigma^+$ NO and $A^2\Delta$ CH in low pressure flames,” Chem. Phys. Lett., **178** (1991) 533-537.
- 6) P. H. Paul, J. A. Gray, J. L. Durant, Jr. and J. W. Thoman, Jr.: “Collisional quenching corrections for laser-induced fluorescence measurements of NO $A^2\Sigma^+$,” AIAA J., **32** (1994) 1670-1675.
- 7) A. M. Wodtke, L. Hüwel, H. Schlüter, G. Meijer, P. Andresen and H. Voges: “High-sensitivity detection of NO in a flame using a tunable ArF laser,” Opt. Lett., **13** (1988) 910-912.