ISSN 2186-5647

レーザー誘起ブレイクダウン分光法（LIBS）による過濃燃焼場の局所当量比計測

－LIBS 発光強度比の温度依存性に関する検討－

日大生産工(院)　○小出　裕貴
日大生産工　岩田 和也　今村　宰　山﨑　博司　秋濱　一弘

1 緒言

エンジン燃焼に伴う粒子状物質（PM）や窒素酸化物（NOx）は，燃焼温度と当量比に強く依存して生成されており，燃焼状態の把握が必要不可欠である．しかし，エンジン内部の燃焼場は，不均一であることから，局所的な計測手法であるレーザー誘起ブレイクダウン分光法（LIBS）に着目した．レーザー誘起ブレイクダウン分光法とは，原子・分子発光分析の一種である．測定対象にレーザー光を集光し，レーザーエネルギーを与えると，原子中の束縛電子が励起状態を経た後，電離状態に至り，ブレイクダウン（絶縁破壊）を起こす．この際にプラズマが発生し，自由電子が元の軌道に遷移する際，各原子・分子が固有波長の光を発する．この光の波長及び発光強度を分光測定することで，対象の定性・定量分析を行うことができる．これを用いて，原子・分子発光の（燃焼由来／酸化剤由来）発光強度比から，局所的な原子数比（当量比）の見積を行うことが可能である．

先行研究では，過去に例のない輝炎場の LIBS スペクトル及び原子・分子発光強度比と，測定対象の対向流拡散火炎の数値計算で求めた当量比との比較を行い，相関関係を示した [1)]．しかし，直線関係からずれる傾向があり，温度依存性の影響が懸念されていた．そこで本研究は，LIBS 発光強度比の温度依存性について検証した．

2　実験装置および方法

2．1　LIBS実験概略図

Fig1にLIBS実験の概略図を示す．入射レーザーエネルギーは100mJ/pulseと固定して，Nd:YAGレーザー（第二高調波，532nm）をレンズで集光し，測定対象である対向流拡散火炎内で，ブレイクダウン（絶縁破壊）を起こしプラズマを発生させる．プラズマの発光を光ファイバーで分光器に送り，LIBSスペクトルの観測を行った．この生スペクトルは，すすの赤色発光やプラズマの連続発光が原因で，バックグラウンドを含んでおり，これを差し引く，ベースライン補正を行い，計75回のスペクトルを平均化して，1つのLIBSスペクトルを算出した．また，ディレイジェネレーター（Stanford Research Systems社製 Model DG645）を用いて，レーザー発振周波数を1Hzに設定を行い，分光器の測定タイミングを同期している．分光器の積分時間（露光時間）は1.0msとした．

測定対象として対向流バーナーに，上管から燃料（プロパン）0.40L/minと空気2.60L/min，下管からは空気3.00L/minのみを供給して，平面拡散火炎を形成した．また，温度依存性の検証を目的として，燃料（プロパン）0.47L/minと空気5.00L/minを上下管共に等しい流量で供給を行い，当量比一定（Φ=2.2）で温度が異なる平面拡散火炎を形成し，2つの条件下で測定した．

本研究では，対向流バーナー位置を上下方向に変更することで，上管5mmから15mmの区間内に，1mm毎ずつ測定点（ブレイクダウンポイント）を設けて，異なる燃焼状態におけるLIBSスペクトルの変化を観測した．また，熱電対で対向流バーナーの上下管のガス温度の測定を行い，ガス温度と流速，モル分率を用いてCHEMKIN-PROの数値計算により測定点（ブレイクダウンポイント）の原子数比（当量比）と温度を算出してLIBSスペクトルとの比較を行った．

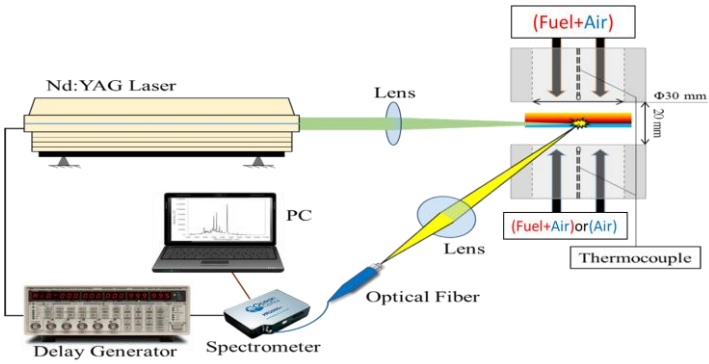

図１　LIBS 実験概略図

Local Equivalence Ratio Measurement in Fuel Rich Combustion by Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS)

－ Study on Temperature Dependence of LIBS Emission Intensity Ratio －

Hiroki KOIDE, Kazuya IWATA, Osamu IMAMURA, Hiroshi YAMASAKI and Kazuhiro AKIHAMA

２．２　局所原子数比の算出方法

LIBSの発光強度比との比較のため，化学反応シミュレーションソフトCHEMKIN-PROのOpposed-flow flameモデルを用いて対向流拡散火炎中の［C］:［H］:［O］原子数を計算した．気相反応機構としてWangら[2]によるKM2モデルを用いた．本モデルは202の化学種と1351の素反応から成り，計算条件として，ガス供給口の気体温度上昇による流速増加分を加味している．

プロパンが完全燃焼する際の反応式（$C_3H_8 + 5O_2 \rightarrow 3CO_2 + 4H_2O$）より，CとOの原子数比から当量比Φを求めることができ，Φ（C/O）=10〔C〕/3〔O〕の式が成り立つ[1]．しかしLIBS計測の指標となる，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比に対して，HとOの原子数比から求まるΦ(H/O)を考慮する必要があり，Φ(H/O)=10〔C〕/8〔O〕の式を用いて，当量比Φ（H/O）を算出した．

Fig2は横軸に対向流バーナーの上管からの距離と，右縦軸に数値計算による当量比（原子数比）を示す．CとHの拡散が異なるため，火炎中のΦ（C/O）とΦ（H/O）が異なる場合がある．また，Fig2の写真は対向流拡散火炎中心部（90°回転）であり，左縦軸に示す火炎温度の最高温度と，青炎部が概ね一致していることから，数値計算は妥当であると考えられる．

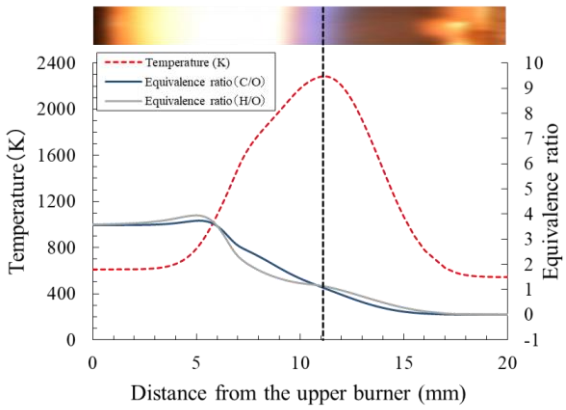

図２　数値計算と火炎画像の比較
（C3H8:Air=0.4:2.6）

４　実験結果および考察

Fig3は対向流バーナーの上管から燃料と空気，下管からは空気のみを供給した拡散火炎内の測定結果であり，縦軸にLIBSスペクトルから面積計算で算出したH_{656nm}/O_{777nm}発光強度比と横軸に数値計算で算出したΦ（H/O）を示す．燃料が濃い対向流バーナーの上管付近ほど，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比が増加する相関関係を示した．先行研究[1]では，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比とΦ（C/O）の比較を行い，直線関係からずれる傾向があった．しかし，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比に対して，横軸に同化学種であるΦ（H/O）を用いると，直線的で良好な相関関係を示した．

Fig4は当量比一定で温度が変化する拡散火炎内で，LIBSスペクトルから算出したH_{656nm}/O_{777nm}発光強度比と数値計算で算出した温度の比較を示す．温度差は700K以上あるが，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比は一定的であり，HとOの原子数比は温度の影響をほとんど受けず測定できることが考えられる．今後はより低温側の測定点を増加して，検証する予定である．

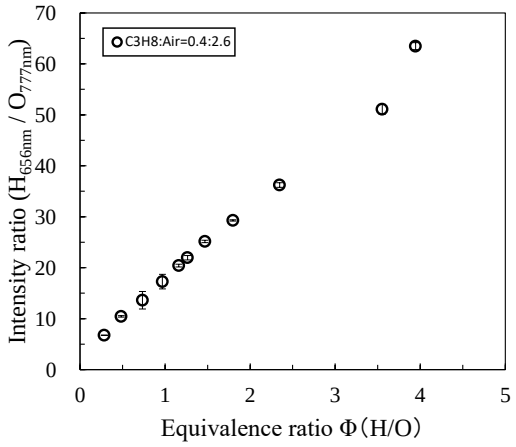

図３　LIBS H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比と当量比Φ（H/O）の比較

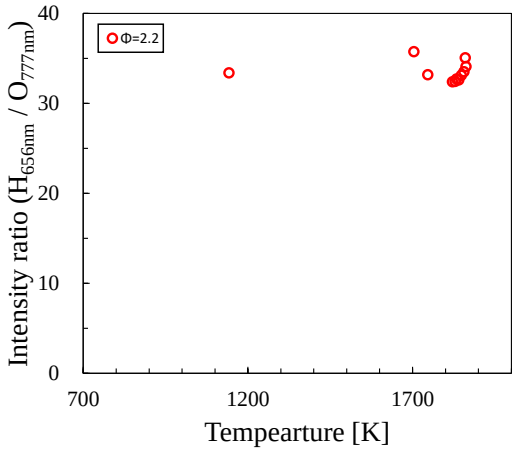

図４　LIBS H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比と温度の比較

５　結言

本研究ではLIBSによる輝炎場の局所原子数比（当量比）計測を行い，温度依存性ついて調査した結果，以下の知見を得た．

・H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比は，原子数比（H/O）と直線的な相関関係があることが分かった．

・当量比一定で温度が異なる拡散火炎内の測定結果より，H_{656nm}/O_{777nm}発光強度比は一定的であり，温度依存性が小さく、燃焼計測に問題がないことが示唆された．

「参考文献」

1) 秋濱一弘・高月基博・岩田和也・今村宰・山崎博司・福井健二・冬頭孝之, 自動車技術会論文 Vol. 48, No. 6: 1185-1192 (2017).

2) Wang, Y., Raj, A. and Chung, S. H., Combust. Flame,162:586-596 (2015).