

## エキサイプレックス蛍光法による高温気流中の噴霧火炎の解析\*

坂下直己\*<sup>1</sup>, 天谷賢児\*<sup>2</sup>, 新井雅隆\*<sup>2</sup>Analysis of Spray Flame Structure in a Hot Air Stream  
by Exciplex Fluorescence MethodNaoki SAKASHITA, Kenji AMAGAI and Masataka ARAI\*<sup>3</sup><sup>3</sup> Department of Mechanical System Engineering, Gunma University,  
1-5-1 Tenjin cho, Kiryu-shi, Gunma, 376 8515 Japan

Fuel droplet and vapor distributions in a spray flame formed in the hot air stream were measured by an exciplex fluorescence method. Kerosene was used as a test fuel. Kerosene was miscible with a small quantity of exciplex-forming dopants, TMPD (*N, N, N', N'*-tetramethyl-1,4-phenylene diamine) and naphthalene. A Nd:YAG laser (355 nm) was used for excitation of the fuel. The fuel spray was injected from a swirl atomizer into an air stream. Air temperature was changed from room temperature to 1000 K which was higher than the self-ignition temperature of a kerosene spray. Distributions of the fuel droplets and vapor were strongly affected by the air temperature. Furthermore it was confirmed that the fuel vapor was transported into recirculating flow area formed on the flame holder.

**Key Words:** Combustion, Flame, Burner, Spray, High Temperature Combustion, Exciplex Fluorescence

## 1. 緒 言

ガスタービンの熱効率改善を目的として、燃焼器内への導入空気を高温化する試みがなされている。最近では燃焼器への導入空気温度は燃料の自着火温度を上回り、1200Kを超えるものが開発されている<sup>(1)</sup>。このような高温気流中では、火炎の安定化がはかれる反面、高温化に伴い導入空気の動粘度が増加するために、燃料と空気の乱流混合が抑制され、燃焼状態が悪化する。このような背景から、燃料の自着火温度を超えるような高温気流中における火炎の挙動に関する詳細な実験が望まれてきた。

著者らは気流温度を室温から 1000K の範囲で変化させ、気流温度が噴霧火炎の構造に与える影響を研究し、いくつかの報告<sup>(2)</sup>を行って来た。前報までの研究により、気流の高温化によって燃料液滴の蒸発が促進され、噴霧火炎基部に青炎が見られるようになることや、火炎が著しく長くなることなどが確認された。また、シュリーレン法を用いて噴霧周囲の流れを観察した結果、高温気流中では青炎が見られることから火炎

基部で局所的に予混合化が進むものの、液滴の蒸発が促進されて火炎基部に燃料蒸気の流れが生じることが確認された。これによって噴霧内部への空気導入が阻害され、全体的には燃焼状態が悪化することがわかった。このように気流の高温化は噴霧や火炎構造に大きな影響を与えることが確認されたが、その構造をより明確にするためには、噴霧液滴や燃料蒸気の火炎内での分布を詳細に調べる必要がある。

そこで本研究では、エキサイプレックス蛍光法<sup>(3)</sup>を用いて噴霧火炎基部および火炎内部における燃料液滴および燃料蒸気の分布を測定した。また、燃料噴射弁位置に保炎板を取り付けて、火炎基部に再循環領域を形成させた場合についても同様な実験を行い、保炎板の有無による蒸気濃度分布の変化も調べた。

## 2. 灯油を用いた場合のエキサイプレックス蛍光の分光計測

2・1 エキサイプレックス蛍光法 本研究では燃料として灯油を用い、蛍光物質としてナフタレンとTMPD(*N, N, N', N'*-テトラメチル 1-4 フェニレンジアミン)を用いた。図1にナフタレン-TMPDのエキサイプレックス系を示す<sup>(3)</sup>。蛍光物質を溶媒に溶かした状態ではナフタレンとTMPDの分子間距離が比較的近く、

\* 原稿受付 2001年1月30日。

<sup>1</sup> 群馬大学大学院(〒376-8515 桐生市天神町1-5-1)。<sup>2</sup> 正員, 群馬大学工学部。

E-mail: arai@me.gunma-u.ac.jp

Nd:YAG レーザの第3高調波(355nm)の光を照射することで励起錯体( $N_p$ /TMPD) $^*$ が生成され、これが基底状態に戻るときに490nmを中心とする蛍光を発する。これに対して気相中では分子同士が離れているため、レーザー光による励起錯体の生成は少なく、単にTMPDによる蛍光380nmが得られる。ただし、TMPDは酸素によるクエンチングを起こしやすいと言われており<sup>(4,5,6)</sup>、これまでの実験は主に窒素雰囲気中で行われてきた。また、溶媒として灯油を用いた報告も少ない。そこで、実際に噴霧火炎にエキサイプレックス法を適用する前に、灯油にTMPDとナフタレンを混ぜた場合の液相および気相の蛍光スペクトルを測定した。

**2・2 分光実験** 図2に分光実験に用いた装置の概略を示す。噴霧燃焼の実験に用いるものと同様に灯油にナフタレン9wt%とTMPD1wt%を溶解した溶液を作り石英セルに入れた。液相部の蛍光を分光分析するために、石英セル内の溶液に直接Nd:YAGレーザ(出力:78mJ/pulse, パルス幅10ns, 波長355nm)を照射した。蒸気相の蛍光を分析する場合は石英セルをヒータで加熱し、溶液を大気圧下で沸騰させて蒸気を作った。形成された蒸気は石英セルの上部で外気によって冷やされ湯気となるが、石英セルの直上では蒸気がまだ凝縮していないので、レーザー光をその部分に照射した。

蛍光は対物レンズで分光器へ導き、分光像をI/I(イメージインテンシファイア)付きCCDカメラで撮影した。気相の測定においては蛍光が極めて微弱であったのでレーザー光自身の反射光やレイリー散乱光をできるだけカットする必要がある。このためこれらの散乱光を除去するように355nmカットフィルターを

分光器のスリットの前に設置した。図3にこのカットフィルターの透過率特性を示す。このフィルターを用いることにより、340~360nmの範囲の光をほぼ完全にカットすることができる。

**2・3 分光分析結果** 図4に灯油にTMPDとナフタレンを溶解した場合の気相および液相の蛍光スペクトルを示す。この図は得られた蛍光強度の最大値が1となるように示してある。実際の燃焼実験では液相は液滴であり蒸気濃度も石英セルを用いた場合と異なるが、波長域は変化しないと考えられる。本実験で得られた気相に対するピーク波長は382nm、液相では498nmになっており、他の燃料を用いたときの分光分析による蛍光スペクトル<sup>(4,5)</sup>と概ね一致していた。また、灯油(液体)のみにレーザを照射すると410nmをピークとする蛍光が現れるが、蛍光物質を混入すると励起錯体による蛍光が相対的に強くなることが確認された。

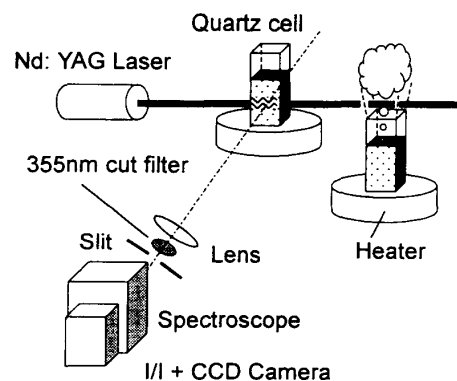


Fig.2 Experimental apparatus for measurement of exciplex fluorescence spectra

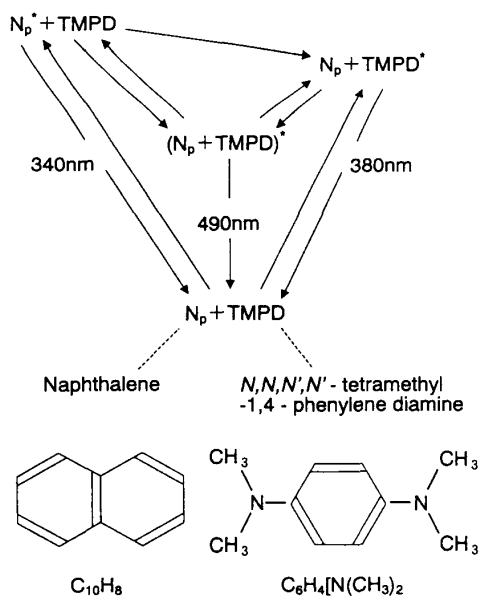


Fig.1 Schematic of naphthalene/TMPD exciplex system

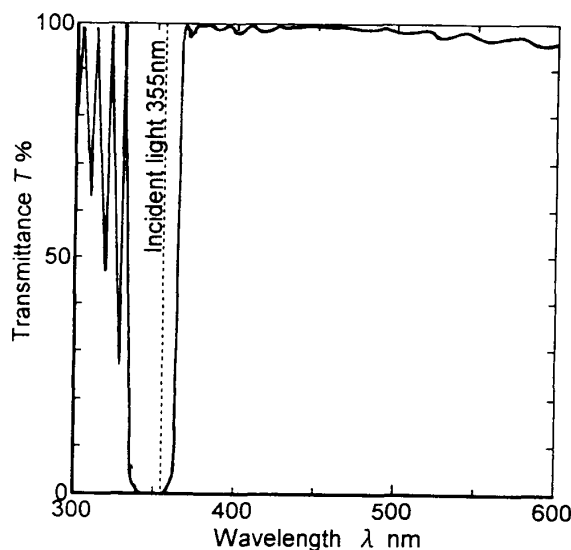


Fig.3. Transmittance of 355nm cut filter

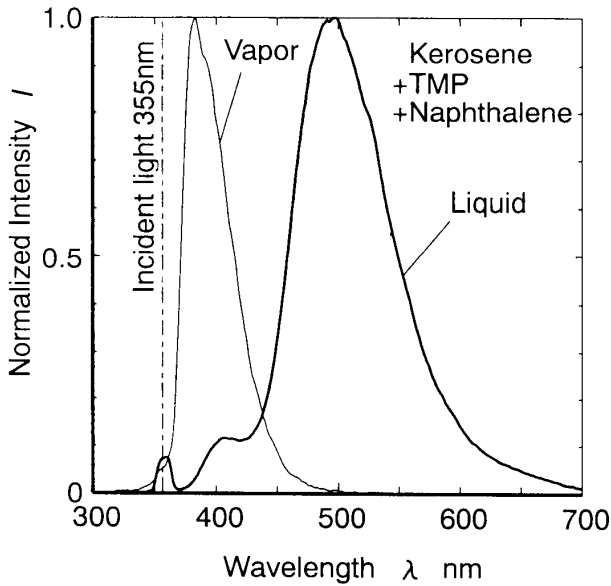


Fig.4. Fluorescence spectra of 1wt%TMPD-9wt%naphthalene-kerosene mixture at the liquid and vapor phases

### 3. 噴霧火炎の計測

3・1 実験装置および実験方法 図5に実験装置の概略を示す。高温の空気を作り出すためにラジアンチューブバーナによる熱交換式加熱器を用いた<sup>(2)</sup>。これにより、気流温度  $T_a$  を室温から最高 1000K まで変化させた。気流温度  $T_a$  は気流出口の熱電対を用いて測定した。高温の空気は内径 85mm の出口より鉛直上方に噴出する。この気流出口の中心にホロコーンタイプのスワールノズルを設置し、燃料を噴射した。このとき燃料の温度を一定に保つために燃料配管とノズルを水冷した。燃料は前述の灯油に TMPD とナフタレンを溶解したものを用いた。燃料噴射量は良好な噴霧が形成される  $9.5 \times 10^{-4} \text{kg/s}$  とし、すべての実験を通して一定とした。

励起光源には Nd:YAG レーザの第3高調波の光を用いた。レーザ光は焦点距離が 1000mm の凸レンズで集光してできるだけレーザ光密度の高いビームを作り、噴射ノズルの中心軸を通るようにして水平に照射した。測定点でのビーム径はおよそ 2mm である。蛍光の撮影は I/I 付き CCD カメラで行った。撮影にあたっては図6に示すフィルターを利用した。気相と液相からの蛍光をできるだけ分離できるように液相の撮影には中心波長 530.5nm、半値幅 2nm の干渉フィルターを、気相用には中心波長 387.1nm、半値幅 18nm の干渉フィルターをそれぞれ用いた。また、レーザの散乱光は蛍光に比較して強く、干渉フィルターだけではその影響を除くことができないため、前述の 355nm 付近の光をカットするフィルターも同時に用いた。

図7は画像処理の方法について示している。レーザ光はノズル先端から 5mm おきにさまざまな高さで噴霧火炎に照射した。取得した画像は火炎の自発光像とレーザ照射による蛍光が上乘せされた像となっている。このうちのレーザが照射された部分だけを切り取り、各高さごとに貼り合わせることで、ノズル先端からの高さ 45mm までの気相および液相の蛍光像を合成した。このとき、火炎の発光分が重なっているため、火炎が見られなくなるまで画像全体の表示濃度範囲を調整し、火炎像が消えて蛍光像のみが残るようにした。

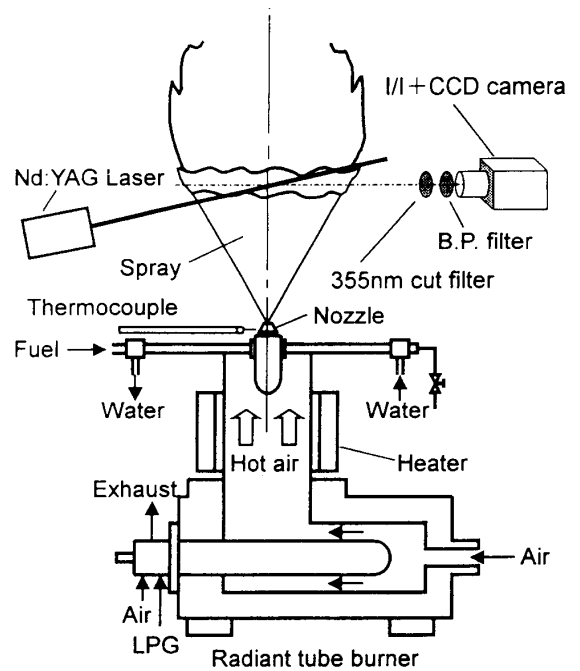


Fig.5 Experimental apparatus rig for high temperature spray combustion

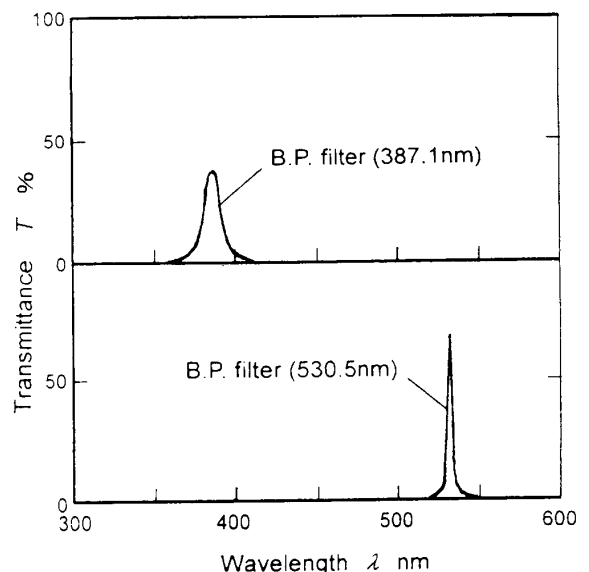


Fig.6 Transmittance of band pass filters

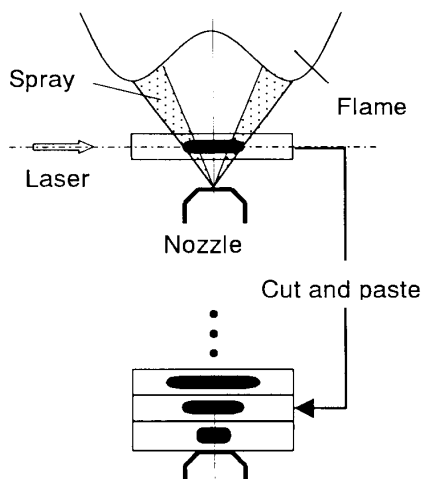
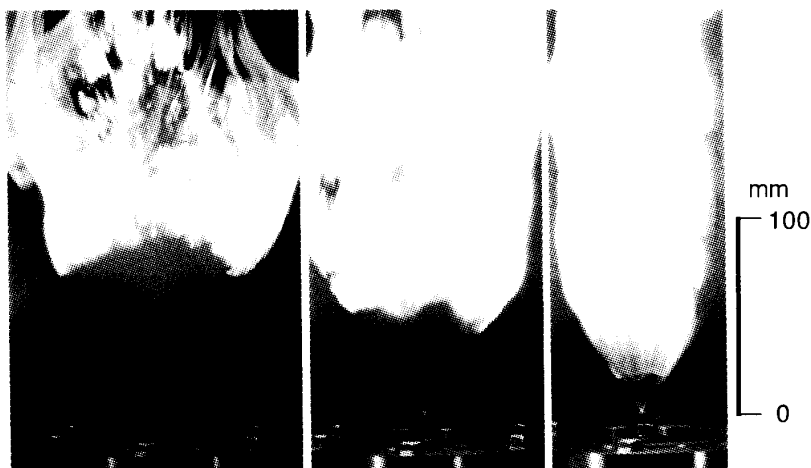


Fig.7 Reconstruction of exciplex fluorescence image

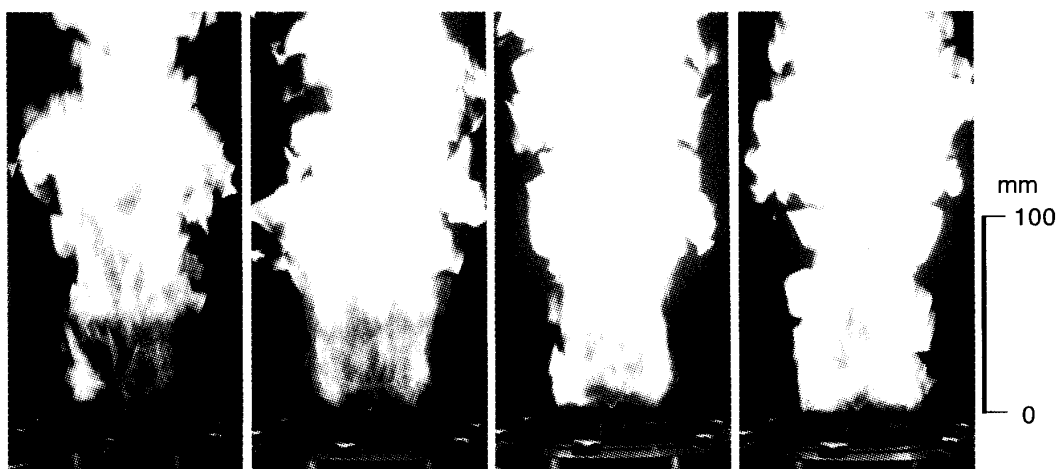
本研究では輝炎を伴う火炎内のエキサイプレックス蛍光を計測するので測定条件が良くない。また、大気圧中の測定で燃料蒸気密度も低いことから、測定感度を高めるためレーザー光はシート状にせず、ビームのまま使用することにした。このため測定結果を解釈するためには上述した合成処理が必要になり、瞬時の二次元情報としての意義は失われるが、連続噴霧燃焼基部の液相と蒸気相の構造を解析するための計測の第一段階としては、このような手法でもさしつかえないと考えている。

3・2 噴霧火炎 噴霧火炎基部の直接写真を図8に示す。保炎板なしの場合には気流速度を 2.6m/s で一定とした。気流温度の上昇とともに火炎が細長くなり、着火位置が上流側に移行している様子がわかる。



$T_a=300K$        $T_a=600K$        $T_a=900K$   
Kerosene,  $V_a=2.6m/s$ ,  $M_f=9.5 \times 10^{-4}kg/s$

Fig.8 Photographs of spray flames formed in a hot air stream



$T_a=340K$        $T_a=600K$        $T_a=800K$        $T_a=1000K$   
 $V_a=6.3m/s$        $V_a=9.5m/s$        $V_a=9.5m/s$        $V_a=9.5m/s$   
Kerosene,  $M_f=9.5 \times 10^{-4}kg/s$

Fig.9 Photographs of spray flames in a hot air stream (flames held by the flame holder)

燃焼形態を考えると  $T_a=300\text{K}$  および  $600\text{K}$  では液滴群の燃焼とそれによる火炎伝播が燃焼の主なメカニズムであると考えられる。  $T_a=900\text{K}$  になると噴霧火炎基部に青炎が見られる。これは高温の気流により液滴の蒸発が促進され、燃料蒸気と周囲空気とが予混合気を形成するため青炎が形成されているものと思われる。噴霧中心部では燃料が酸素不足のまま蒸発するので、青炎の後流では未燃蒸気が拡散燃焼して輝炎を形成していると考えられる。

噴霧ノズルに直径  $D=50\text{mm}$  の保炎板を取り付けた場合の火炎写真を図9に示す。実験で用いた気流速度では、保炎板に火炎が付着する様子が観察された。気流が保炎板の周囲を流れることで、保炎板後流に再循環領域が形成される。この流れに伴い燃料液滴もしくは蒸気が再循環領域に取り込まれ、保炎板上で燃焼可能な混合気が形成されるものと考えられる。これにより保炎板上に火炎が形成され、それが噴霧の燃焼を安定化させると解釈できる。気流温度による火炎形状の大きな変化は見られなかったが、気流温度の上昇とともに火炎の輝度は著しく上昇した。いずれとも火炎基部に輝度の強い輝炎が形成されているが、目視ではその内部に中空円錐状の燃料噴霧が観察された。

**3.3 エキサイプレックス法による気相および液相分布の計測** まずはじめに、保炎板のない場合の気相および液相の蛍光像を求めた。結果を図10に示す。前述のように、この画像を得るために画像濃度の表示範囲を調整してある。具体的には、もとの画像濃度が0から255階調の範囲で取り込まれているものを、階調を0(図中の最も黒い部分)から76(白)の範囲で表示し、火炎成分を除いた。

$T_a=300\text{K}$  では液滴が  $z=45\text{mm}$  以上にまで達しているのがわかる。図中の破線は  $T_a=300\text{K}$  における液相の画像をもとに推定した中空円錐状の噴霧シースの外縁である。  $T_a=300\text{K}$  の場合の噴霧は中空円錐状に噴出されているにもかかわらずノズル中心軸上で強い液相の蛍光が観察された。これは、噴霧内部の再循環流に乗って微小な噴霧が浮遊しているためと解釈できる。

$T_a=600\text{K}$  になると  $z=30\text{mm}$  付近からノズル中心軸上で液相の蛍光がなくなっているが、内部を浮遊していた比較的小さな液滴が高温の気流によって蒸発し始めたためだと考えられる。これは蒸気からの蛍光像を見ると明らかで、  $T_a=300\text{K}$  のときには液相とほぼ同一領域に蒸気の蛍光が観察されたが、  $T_a=600\text{K}$  以上になると噴霧の存在しない部分に蒸気の蛍光が観察されるようになる。

$T_a=800\text{K}$  に達すると火炎基部に青炎が現れ、  $z=35\text{mm}$

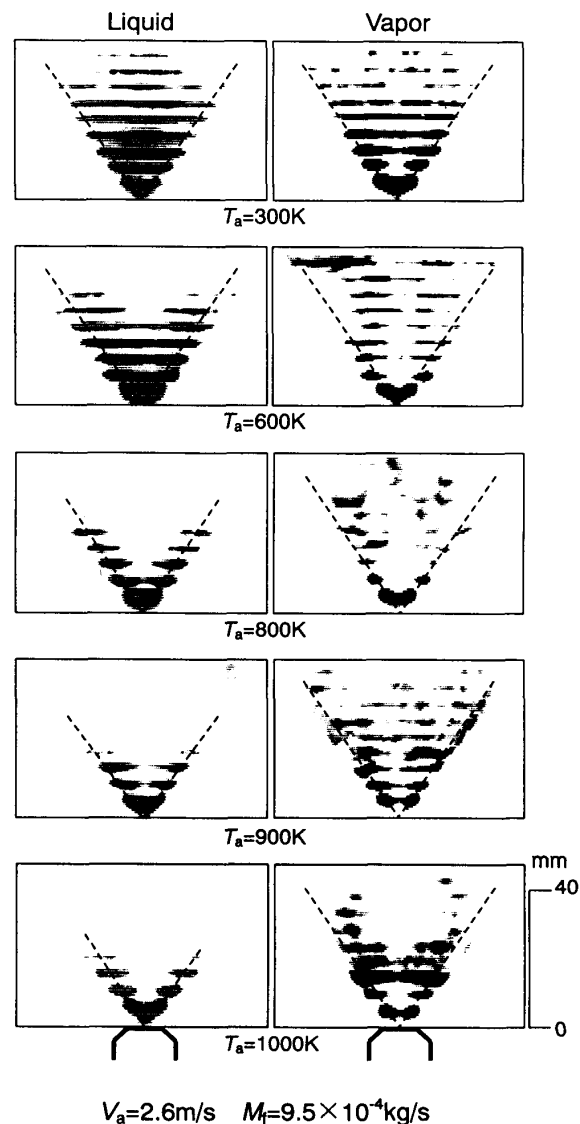


Fig.10 Liquid and vapor phase distributions of kerosene fuel in the flames held on the high temperature air stream

以上では液相からの蛍光が観察されなくなる。  $T_a=900\text{K}$  以上になるとこの傾向はさらに顕著になり、液滴が消失する高さが低くなっているのがわかる。これはノズルから燃料が噴出されてすぐに高温気流にさらされ液滴が急速に蒸発するためと考えられる。このとき青炎の着火位置はノズルに非常に近く(約  $15\text{mm}$ )、噴霧は青炎内にまで達している。また、蒸気からの蛍光が青炎(高さ  $15\text{mm}\sim 40\text{mm}$ )の内側で観察されており液滴が蒸発した後、蒸気として噴霧内部に存在していることがわかる。

噴霧内部で観察される蒸気は蛍光強度にばらつきが見られる。これは、たえず液滴が蒸発するとともに周囲空気と乱流混合されるために燃料蒸気の濃淡があるためと考えられる。

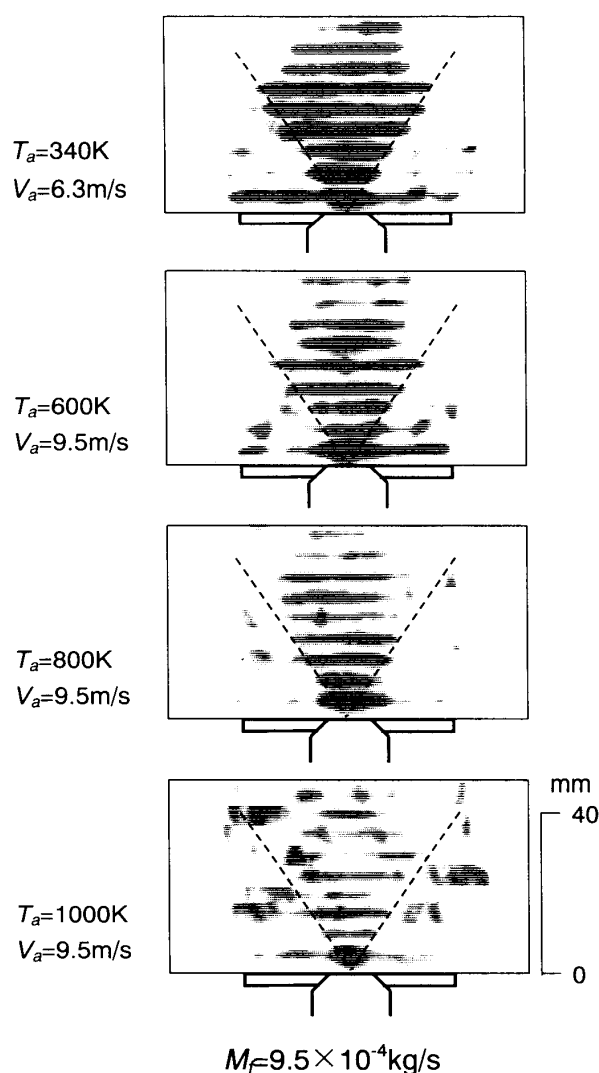


Fig.11 Various vapor phase distributions in the high temperature spray flames with flame holder

保炎板を用いた場合の噴霧火炎中における燃料蒸気分布を図 11 に示す。この図においても破線で噴霧シースを示してある。 $T_a=340\text{K}$ においては、保炎板直上に濃い蒸気の層が形成されているのがわかる。ノズル先端から $z=30\text{mm}$ 付近まではほぼ噴霧形状と同様に蒸気領域も半径方向へ広がる様子がわかる。また、高さが $35\text{mm}$ 以上では蒸気の領域は逆に狭められているのがわかる。この蒸気相の領域が半径方向に狭くなる位置は、再循環流部の後流で強い輝炎が見られる位置とほぼ一致している。すなわち、保炎板上の火炎が火種となって主噴霧の燃焼が開始される位置がほぼ $z=35\text{mm}$ 付近であり、これによって燃料蒸気が消費されていくものと考えられる。

$T_a=600\text{K}$ 以上においても燃料蒸気は保炎板の後流部で観察された。 $T_a=800\text{K}$ 以上では、輝炎が強くなるために十分な蒸気の蛍光像を得ることができなかつ

たが、基本的には保炎板後流部全体に蒸気が広がっていく傾向が見られた。

これらの画像からノズルより噴射された液滴は周囲空気によって蒸発させられるとともに、再循環流により保炎板直上に運ばれ、この燃料蒸気が周囲空気と乱流混合して保炎板の上部に一次燃焼領域を形成することがわかる。また、再循環領域の後流では再循環流中で燃焼されなかった燃料の蒸気と外部からの高温気流が乱流混合を行い、乱流拡散燃焼領域を形成する。気流の高温化とともに蒸気の蛍光強度が減少しているように見えるがこれは蒸発が促進されることで、噴霧液滴が噴射方向の運動量を失い、循環流中に蒸気がスムーズに取り囲まれ、保炎板の後流全体に蒸気が分散されたためと解釈できる。しかし、雰囲気温度によって TMPD の蛍光強度が変化する<sup>(5,6)</sup>との報告もあり、定量的な議論には噴霧火炎中の詳細な温度分布を考慮する必要がある。

#### 4. 結 言

燃料の灯油に TMPD とナフタレンを溶解し、エキサイプレックス蛍光法を用いて噴霧火炎中の蒸気相ならびに液相の分布を計測した結果、以下の結論を得た。

- (1) 燃料の灯油に TMPD とナフタレンを溶解し Nd:YAG レーザの第 3 高調波の光を照射して蛍光スペクトルを測定すると、蒸気相のピーク波長は $382\text{nm}$ 、液相のピーク波長は $498\text{nm}$ である。
- (2) 気流温度の上昇とともに噴霧の消失位置は低くなりノズル中心軸上から液滴が消失するが、蒸気相はノズル中心軸上にも見られるようになる。
- (3) 保炎板を用いた場合、再循環流によって燃料蒸気層が保炎板直上に形成される。また、気流の高温化に伴い蒸気相は保炎板後流全体に広がる。

本研究は(財)石油産業活性化センターの援助を受けて行われたものである。また、本研究を行うにあたり本学学生村岡睦君の協力を得た。ここに記して感謝の意を表す。

#### 参考文献

- (1) 鳥越, 川添, 機誌, 95-877, (1992), pp.874-875.
- (2) 長谷川, ほか 3 名, 機論, 65-639, (1999), pp.293-299.
- (3) Melton, L.A., Applied Optics, 22-14, (1983), pp.2224-2226.
- (4) 深見, ほか 3 名, 機論, 58-549, (1992), pp.295-301.
- (5) 葉, ほか 3 名, 機論, 60-569, (1994), pp.321-326.
- (6) 千田, ほか 3 名, 機論, 63-607, (1997), pp.322-327.