

ディビジョン番号	10
ディビジョン名	分析化学

大項目	1. 分析化学
中項目	1-2. レーザー分光分析
小項目	1-2-2. 同位体効果平面レーザー蛍光

概要（200字以内）

現在、エネルギー資源の消費増大は大きな社会問題であり、新エネルギーの開発や既存のエネルギー技術の向上が必要である。燃焼は現在のエネルギー源の主力であり、その変換効率の向上と有害排出物の低減を実現する燃焼技術が要求されている。そこで燃焼現象の解明が重要となるが、温度、流れ、濃度などの計測技術が重要である。中でもレーザー計測技術は有力であり、PLIF (Planar Laser-Induced Fluorescence: 平面レーザー誘起蛍光) 法は代表的な手法である。PLIF 法では平面レーザー光で励起した測定対象種からの蛍光を二次元計測し、その濃度分布を見積もる。高感度かつ空間・時間分解計測が可能で、燃焼現象の解明にこれまで大きく貢献してきた。本小項目では PLIF 法の応用に新たな可能性を与えるものとして、同位体を応用した新手法を取り上げる。

現状と最前線

同位体トレーサーを用いた PLIF 法による水蒸気添加メタン火炎中の OH の由来の計測⁽¹⁾

火炎計測に同位体トレーサーを利用した報告は、同位体で標識付けした化学種の挙動から燃焼生成物の生成機構を解明することを目的として、安定化学種の測定ではガスクロマトグラフィーや質量分析法を、OH や C₂ などの中間化学種の測定では分光法を用いて行われている。しかし、中間化学種の分光測定に基づいた報告例⁽²⁾⁽³⁾はわずかな上、その手法も分光器での点計測に留まっている。そこで、二次元分光計測（面計測）が必要となる。

二次元分光計測の一般的な手法である、カメラを用いた自発光二次元計測では、同位体の自発光バンドの波長が非常に近く、同位体間の選択的検出は困難である。一方、PLIF 法（図 1）では同位体シフトによる両者の励起波長の差と、レーザー光の優れた単色性のため、選択的観測が可能である。

本研究では、同位体トレーサーを用いた PLIF 法を提案するとともに、この手法を用いて水蒸気添加メタン火炎中の OH に関する新たな知見を得ることを目的とした。

火炎中への水蒸気添加は、(A) 火炎温度低下による Thermal NO 抑制、(B) 作動流体の質量増加による燃焼器の出力向上などの利点を有し、ガスタービン等の燃焼器で実用されている。水蒸気添加が火炎に及ぼす影響には、火炎温度低下、添加した水蒸気の解離反応、化学種の濃度変化、燃焼反応の進行の抑制などいくつか考えられ、その解明には全体としてだけでなく個々の影響にまで着目した研究が重要となる。しかし、実際の水蒸気添加火炎ではこれら個々の現

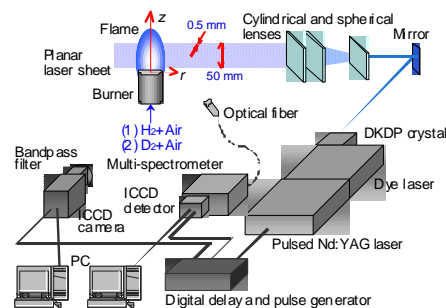


図 1 PLIF 装置

象が同時に起こるため、既往の検討では数値計算に基づくものが主となっており、実験に基づいた実証はほとんど行われていない。

本研究では実験に基づいた実証を目的とし、同位体トレーサーを用いた PLIF 法によって水蒸気添加メタン火炎中に混在する「添加した水蒸気の解離反応に由来する OH」と「メタンの燃焼反応に由来する OH」について調べた。水蒸気添加メタン火炎中には上述の 2 種類の OH が混在する。一方、重水蒸気添加メタン火炎では添加した重水蒸気の解離反応からは OD が生じ、OH はメタンの燃焼反応に由来するもののみとなる。水素と重水素は同位体であり、水蒸気と重水蒸気はほぼ同じ反応経路をとると期待できる。そこで、両者が火炎温度などに対して及ぼす影響にも有意な差が現れないと仮定すれば、

(水蒸気添加メタン火炎の OH の内、添加した水蒸気の解離反応に由来する OH 分布)

$$= (\text{水蒸気添加メタン火炎の OH 分布}) - (\text{重水蒸気添加メタン火炎の OH 分布})$$

が成り立つと考えられる。図 2 は、メタン-酸素-窒素予混合火炎 (当量比 0.9) での実験結果である。水蒸気を添加した場合の OH 分布から、重水蒸気を添加した場合の OH 分布を差し引いており、添加した水蒸気の解離反応に由来する OH 分布に相当すると考えられる。定量的な検討のために可視化領域内の全ピクセルの OH 蛍光強度積算値を求めた結果、メタンの燃焼反応に由来する OH の割合には当量比依存性がほとんど見られなかった。これは水蒸気添加による火炎温度低下の程度が当量比によって大きく変化するものではないためと考えられる。一方、添加した水蒸気の解離反応に由来する OH の割合は燃料過濃条件で高くなった。燃料過濃条件では未燃分が多く、これが添加した水蒸気の解離を促すと考えられる。このように同位体トレーサーを用いた PLIF 法によって、個々の水蒸気添加効果の内、添加した水蒸気の解離の解明につながる知見を実験から得ることができた。

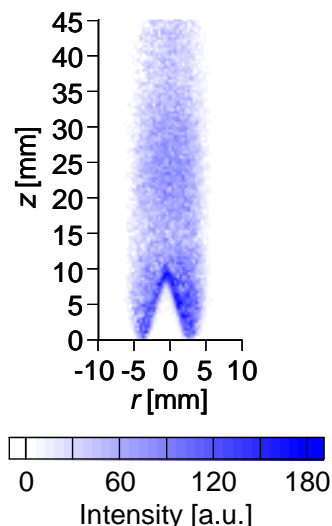


図 2 添加した水蒸気の解離反応由来の OH 分布

[1] Atsushi Katoh, Masahisa Shinoda, Kuniyuki Kitagawa, and Ashwani K. Gupta, *J. Eng. Gas. Turbines Power-Trans. ASME*, **128**, 8-12 (2006)

[2] H. P. Broida, and A. G. Gaydon, *Proc. R. Soc. A-Math. Phys. Eng. Sci.*, **218**, 60-69 (1953)

[3] R. E. Ferguson, *J. Chem. Phys.*, **23**, 2085-2089 (1955)

将来予測と方向性

- ・ 5年後までに解決・実現が望まれる課題
同位体シフトの詳細検討と波長選択、他の元素の同位体を含む分子への適用
- ・ 10年後までに解決・実現が望まれる課題
時間分解能の向上による動的観察、速度場との詳細リンク

キーワード

同位体シフト、レーザー蛍光、二次元測定、燃焼場反応機構、中間化学種

(執筆者： 名古屋大学 北川邦行)