

ISSN 0389-4010  
UDC 662.611.2  
535.37  
535.8

# 航空宇宙技術研究所報告

TECHNICAL REPORT OF NATIONAL AEROSPACE LABORATORY

TR-999

## 実用的なCARS温度計の研究

五味光男・渡辺泰夫・江口邦久  
黒沢要治・金井美一

1988年10月

航空宇宙技術研究所  
NATIONAL AEROSPACE LABORATORY

# 実用的なCARS温度計の研究\*

五味光男\*\* 渡辺泰夫\*\*\* 江口邦久\*\*\*\*

黒沢要治\*\*\*\*\* 金井美一\*\*\*\*\*

## A SIMPLIFIED CARS THERMOMETRY FOR PRACTICAL USE

Mitsuo GOMI, Yasuo WATANABE, Kunihisa EGUCHI,

Yohji KUROSAWA, Yoshikazu KANAI

### ABSTRACT

A new and simple technical method of data acquisition by CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy) thermometry was studied. The proposed method provides instantaneous temperature determination with quick measurement of an intensity ratio of  $N_2$  CARS spectra by the use of a specially prepared monochromator, two photomultipliers and a data processor including an A/D converter, a circuit for sampling-hold mechanism and a personal computer. This method is capable of providing close to real-time temperature measurements for high rate of laser shot repetition, and the remarkable cost reduction of optical and electronic instruments.

The measured results were compared and verified with a thermocouple (<1200 K) and the conventional multiplex CARS method (1600 ~ 2000 K). Various causes of, and their contributions to, the measurement errors introduced into the instruments were evaluated experimentally. Application to a practical burner was made with reasonable results.

### 1. はしがき

レーザー測定技術の燃焼研究への応用が近年盛んになったが、中でも温度やガス成分濃度の測定が可能なCARS (Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy) が注目され、実用化のための研究が活発に行われている。低濃度ガス成分の測定<sup>1,2)</sup>、CARS信号光の圧力依存性<sup>3,4)</sup>、温度と濃度の同時測定<sup>5,6)</sup>やLDV (Laser Doppler Velocimeter)との組合せによる2成分同時測定<sup>7,8)</sup>など応用の拡

大をめざした意欲的な研究が進められてきた。

CARS法が光学的測定法として優れている点は、微小測定体積、測定対象物との非接触、瞬時情報の収集、コヒーレントな信号光などをあげることができる。一方欠点としては励起ビーム強度が非常に高いために危険でかつ光学部品を損傷しやすく、光学上の調整(=励起ビームの位相整合)の困難さ、データ処理の複雑性、装置全体が極めて高価であることなどであろう。このうち光学上の調整方法としてはやや複雑であるが測定精度を重視したBOX CARS<sup>9)</sup>、Folded CARS<sup>10)</sup>が、また調整が比較的容易なUSED CARS<sup>11)</sup>、MAC法<sup>2)</sup>等が提案されたが位相整合の困難さは依然として残っている。データ処理に関してはCARS光の全スペクトルを多チャンネル受光器で測定し、理論

\*昭和63年7月4日受付

\*\*熱流体工学部

\*\*\*空気工学部

\*\*\*\*宇宙研究グループ

\*\*\*\*\*原動機部

\*\*\*\*\*レオニクス(株)(研修生)

値によるスペクトル形状の近似 (full-fitting と呼ぶ) を行って温度を決定する方法 (multiplex CARS method) が主流を成していたが, Eckbrethらによって簡易スペクトル処理法 (quick-fitting と呼ぶ)<sup>11)</sup> が提案された。この方法は渡辺らの応用例<sup>2)</sup> にも見られるように精度的には full-fitting 法と大差なく有効な方法であるが, 高性能分光器, 多チャンネル受光器を用いたデータ収集装置に依存しているため大幅な高速化は実現しなかった。

筆者らの研究グループはこれまでの研究成果<sup>2,7, 12-17)</sup> を基礎にして光学系の改良をはかると共にさらに一つの独創的な分光技法の導入によって, 簡易でかつ画期的に速いデータ処理ができる実用的な温度計測用 CARS 測定装置を実現した<sup>18-22)</sup>。

本報告では, その原理と構成, 測定精度および応用測定例などについて述べる。

## 2. CARS スペクトルの部分強度比とその温度依存性

周波数  $\omega_1$  のレーザー光と,  $\omega_1$  から  $\Delta\omega$  低周波数側にラマン遷移したレーザー光  $\omega_2$  (ストークス光) とを位相整合して物質に入射するとエネルギー保存則と運動量保存則

$$\begin{aligned} \omega_3 &= 2\omega_1 - \omega_2 \\ K_3 &= 2K_1 - K_2 \end{aligned} \quad (1)$$

$\omega_i = i$  ビームの周波数  
 $K_i = i$  ビームの波数ベクトル

を満足する光  $\omega_3$  (反ストークス光, 以下 CARS 光と呼ぶ) が発生する。これは入射光と同様なコヒーレント光である。CARS 光の強度  $I_3$  は次式で表せる。

$$I_3 = \left( \frac{4\pi^2 \omega_3}{C^2} \right)^2 I_1^2 I_2 |\chi^{(3)}|^2 Z^2 \quad (2)$$

ここに

$I_1$  :  $\omega_1$  の強度

$I_2$  :  $\omega_2$  の強度

$C$  : 光速

$Z$  : 位相整合長

$\chi^{(3)}$  : 三次の非線型感受率

温度に依存して変化する CARS 光のスペクトル形状は  $\chi^{(3)}$  によって決り, 通常のを空気を用いた燃

焼反応の場合は多量に含まれる窒素分子 ( $N_2$ ) の Q-ブランチ線を利用する。各スペクトル線の線幅は本来非常に狭いが, 測定上は分光器の波長分解能, 入射スリット幅, レーザの線幅などの影響で広くなり, 隣りあう線が互に重なり合って滑らかなスペクトル曲線となる<sup>12)</sup>。理論計算近似ではこれらの影響をスリット関数として表し, 各線に対する半値全幅 (FWHM :  $cm^{-1}$ ) とその強度分布形状 (ガウス分布) として与える。

分光器 (後述) の入射スリット幅を  $50 \mu m$  に設定し, 定常火炎で測定した CARS スペクトルとこれに対する理論近似結果 (1928K) を比較して図 1 に示す。この時のスリット関数は  $5.5 cm^{-1}$ , レーザ線幅  $0.5 cm^{-1}$  の条件であった。このスリット関数を用いて計算した 500, 1500, 2500K の理論スペクトル曲線を図 2 に示す。なお, 計算のもとになっている Q-ブランチ線幅  $\Gamma$  は回転量子数  $J$  および温度  $T$  の関数として次式<sup>23)</sup> を用いた。

$$\Gamma = 8T^{-(0.71)} - 18.6T^{-(1.45)} \cdot J \quad (3)$$

ただし

$$900K \leq T$$

さて測定されたスペクトルに対して 2 つの特定部分の強度比を求める際, どの部分を選択するかが問題となる。Eckbrethら<sup>11)</sup>, 渡辺ら<sup>2)</sup> の方法は, 図 3 に示すようにスペクトル全体を右側の大きなピークを中心とした COLD 域, 左側の低い山を中心とした HOT 域およびその中間部分を WARM 域とし, これらの範囲の面積比を部分強度比とし,

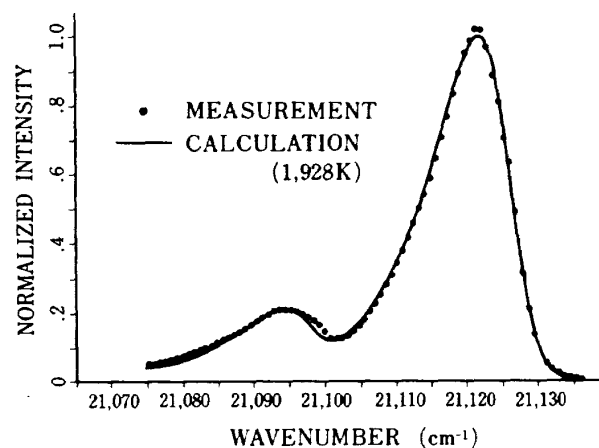


図 1 小型分光器 (表 1) による CARS スペクトル ( $N_2$ -Q ブランチ) の測定値と理論近似曲線の比較

WARM/COLD, HOT/COLD 等と温度との関係を表す計算例を示している。しかし温度の低い場合(例えば 500K)には HOT 域がほとんど現れないため利用しにくく、さらにスペクトル幅をスリット幅で決定する(後述)場合にはスリット位置のわずかな設定誤差が強度比に大きな影響を与える。そこで図 2 の下方に(1)および(2)で示したスリット幅を採用した。(2)はスペクトル全体を、(1)は COLD 部分を中心とした狭い幅とし、それぞれ CH2 および CH1 とした。面積比は CH1 の一方のスリット刃の位置  $\beta$  で決る。CH2 のスリット刃の位置は余裕をみて広げておいても左右両端にスペクトル強度が存在しないので問題とならない。し

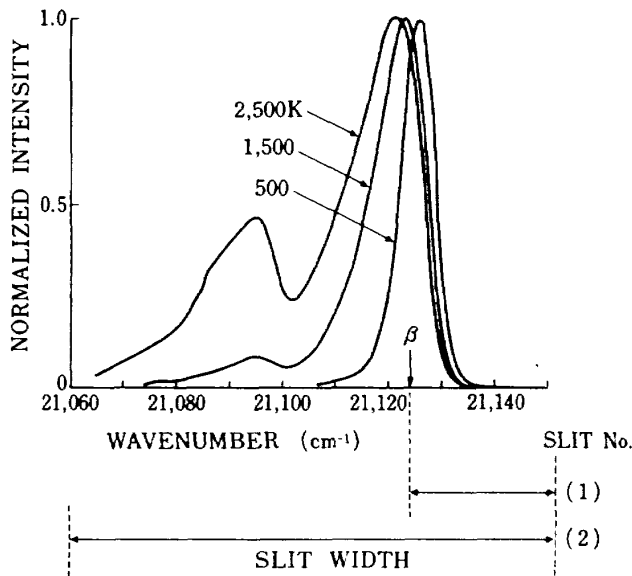


図 2 CARS スペクトルの温度依存性およびスペクトルとスリットの関係

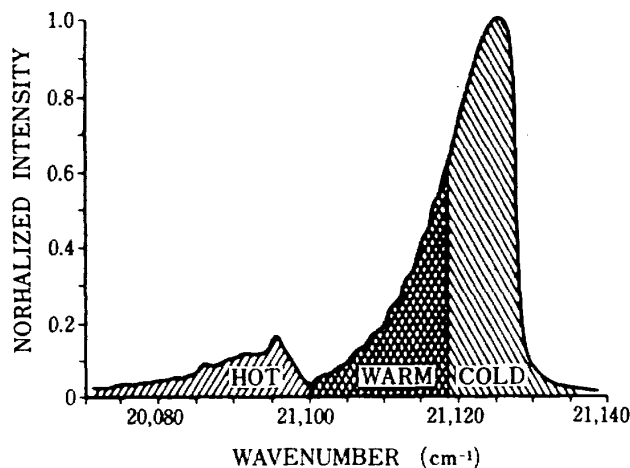


図 3 Quick fitting のためのスペクトル分割例<sup>11)</sup>

たがって本方法の利点は、2つのスリットの位置および幅を決める際に CH1 の一方のスリット刃の位置のみを正確に決めればよいという容易さにある。ここで  $\beta$  について次の 2 種類

$$\begin{aligned} \beta_1 &= 21122.5 \text{ cm}^{-1} \\ \beta_2 &= 21124.5 \text{ cm}^{-1} \end{aligned} \quad (4)$$

を選び強度比  $S = I_2/I_1$  を各温度のスペクトル曲線から求め、温度との関係で示したのが図 4 である。曲線の CASE-1 は  $\beta_1$ 、CASE-2 は  $\beta_2$  の場合である。この曲線はそれぞれ次式によって近似できる。

$$\begin{aligned} T_1 &= -9.603 \cdot S^4 + 1.500 \text{E} + 02 \cdot S^3 \\ &\quad - 8.968 \text{E} + 02 \cdot S^2 + 2.812 \text{E} + 03 \cdot S \\ &\quad - 2.017 \text{E} + 03 \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} T_2 &= -8.735 \text{E} - 01 \cdot S^4 + 2.176 \text{E} + 01 \cdot S^3 \\ &\quad - 2.139 \text{E} + 02 \cdot S^2 + 1.198 \text{E} + 03 \cdot S \\ &\quad - 1.033 \text{E} + 03 \end{aligned} \quad (6)$$

$\beta$  は任意に選定することができる。この比の値が大きすぎたり小さすぎたりすると、測定系のダイナミックレンジや測定精度とも関係して誤差が増加することもあるので、CASE-2 が好ましい。

CARS 法においては後述のようにパルス発振レ

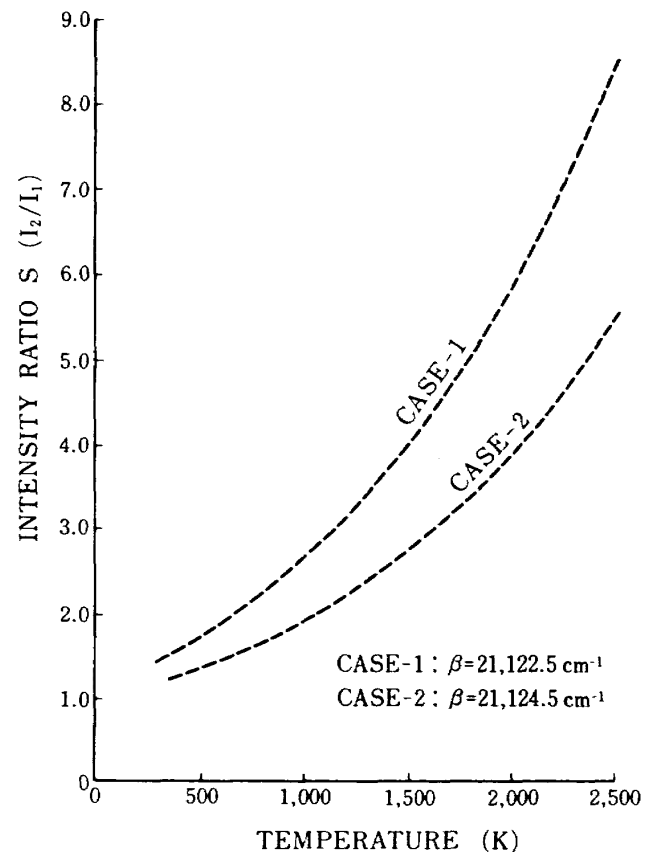


図 4 温度とスペクトル強度比の関係

ーザを用いるので、一回のレーザー発振（ショットと呼ぶ）毎にスペクトルデータが得られる。上記の関係をいれれば、 $I_1$ 、 $I_2$ を測定することにより

ただちに温度を決定することができるので、従来の各ショット毎のスペクトルデータの収集および理論近似という複雑な作業が省け、処理時間も画期的に速くなり、さらに処理装置も簡易となる。実際に  $I_1$  および  $I_2$  を測定する方法についての概念図を図5に示す。分光器内部の収束光路中にハーフミラーを設置し、CARS光を2等分して互に垂直な2つのスリット上に結像させ、測定すべきスペクトル幅をそれぞれのスリットの幅で決定する。分光器の構造についての詳細は後述する。

### 3. 装置の構成

図6(a)に全体構成図を、図6(b)に装置の写真を示す。主な構成はレーザー、光学系（入射部、出射部）および分光処理部より成っている。

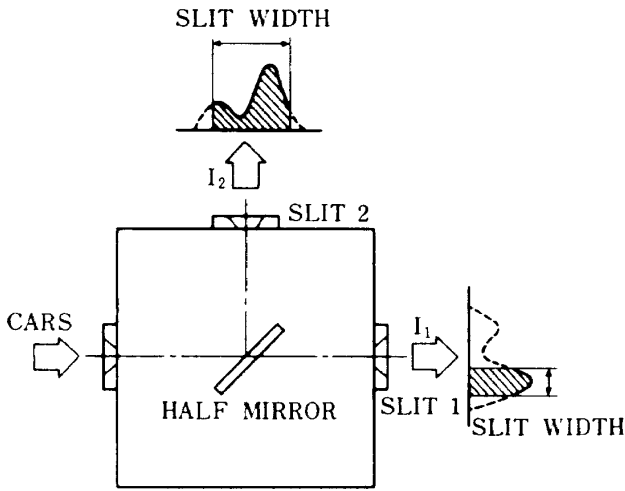
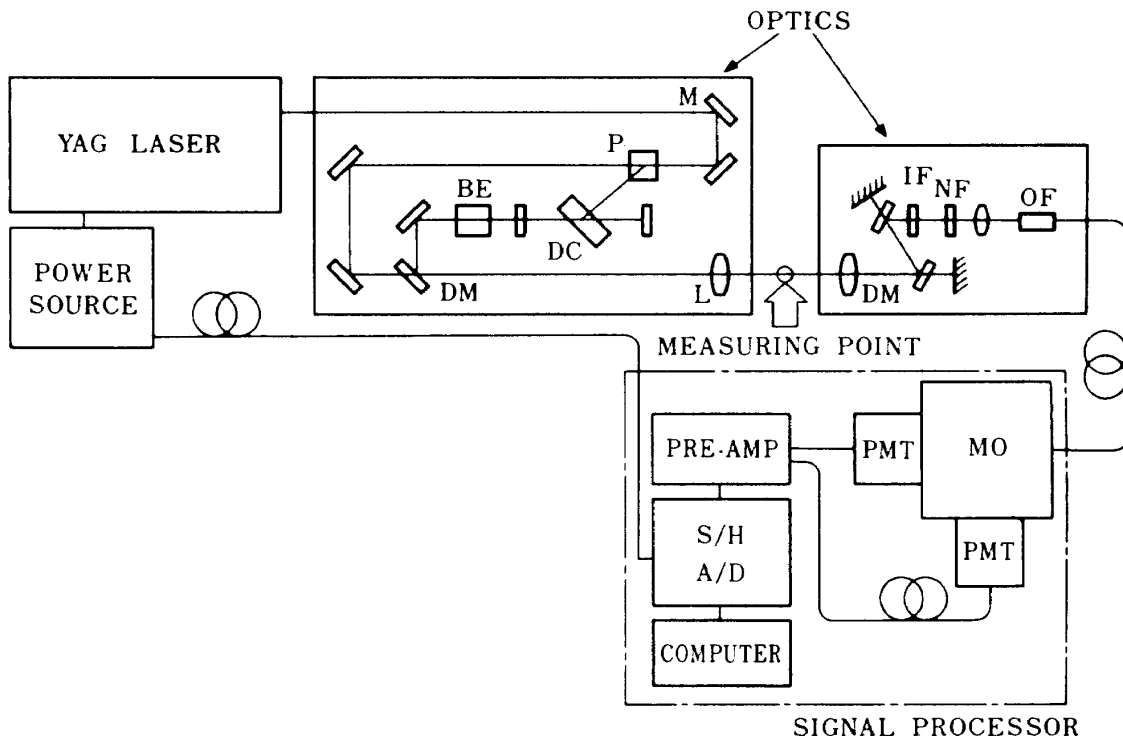


図5 スペクトル強度比を測定するための分光器の構造とスリット幅の関係



- |                           |                               |
|---------------------------|-------------------------------|
| P: PRISM                  | S/H: SAMPLE HOLD UNIT         |
| M: MIRROR                 | IF: INTERFERENCE FILTER       |
| L: LENS                   | NF: NEUTRAL DENSITY FILTER    |
| DC: DYE FLOWING CELL      | OF: OPTICAL FIBER             |
| BE: BEAM EXPANDER         | MO: MONOCHROMATOR             |
| DM: DICHROIC MIRROR       | A/D: ANALOG DIGITAL CONVERTER |
| PMT: PHOTOMULTIPLIER TUBE |                               |

図6(a) CARS温度計系統図

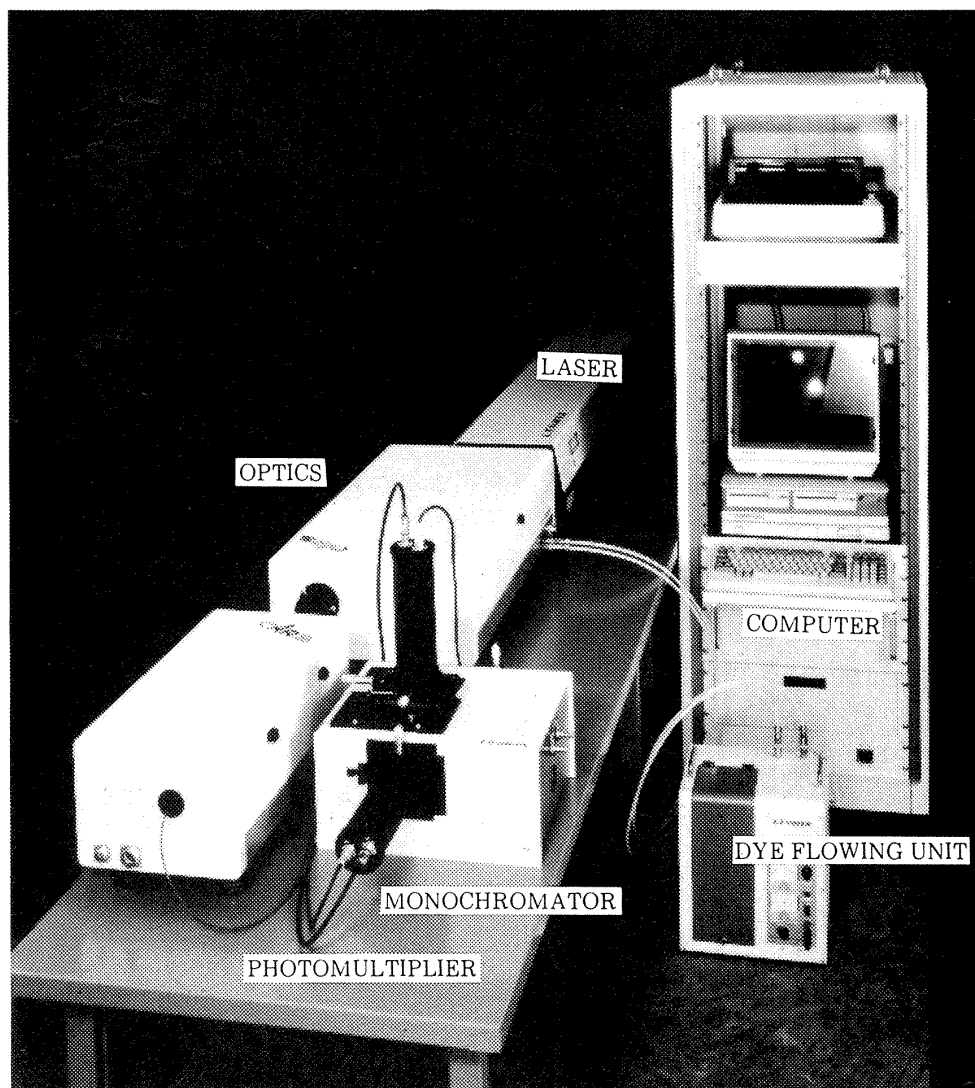


図 6 (b) CARS 温度計装置

### 3.1 入射光学系

本光学系の特徴は、ビーム整合法の一つである MAC (Minimum Angle Crossed-Beam method) 法<sup>2)</sup>を有効に利用するために三角プリズムによるビーム分割方法を取入れたこと、および簡単な構造の色素レーザを採用したことである。従来の MAC 法では円形のビームの半分をナイフエッジで強制的に遮断して半円形ビームにしていたが、これはレーザエネルギーの半分しか使用できず非能率的であった。本方法は図 7 に示すように底辺が 25mm、頂角 152°の三角プリズムを利用する。Nd・YAG レーザ (20Hz 発振, モデル YG581-20, Quantel 社) の 2 倍高調波  $\omega_1$  ビームをプリズムの中心に入射して 2 つの半円形ビームを作る。一方のビームはそのままの形で励起用  $\omega_1$  として使

用し、他方はレンズで収束し色素レーザ励起光とする。このプリズムは入射位置をずらせることによって分割比を変え  $\omega_1$  と  $\omega_2$  の強度比を任意に設定することもできる。色素レーザは半円形ビームによって励起され発振するが、 $\omega_2$  のビーム形状はやや半円形に近い楕円形となる。MAC 法 (図 8) では両ビームの最も強度の高い中心部が共に鮮明な形をしている方が好ましいので、レンズ入射前でナイフエッジにより整形する。このようにしてレーザビームを効率良く MAC 法に使うことができた。

従来の色素レーザは励起光エネルギーに対する変換効率が低く、1 台の発振系では充分な  $\omega_2$  の強度が得られず、2 台目のセルを用いてさらに増幅する 2 段方式を用いていたが、1 台の簡単な発

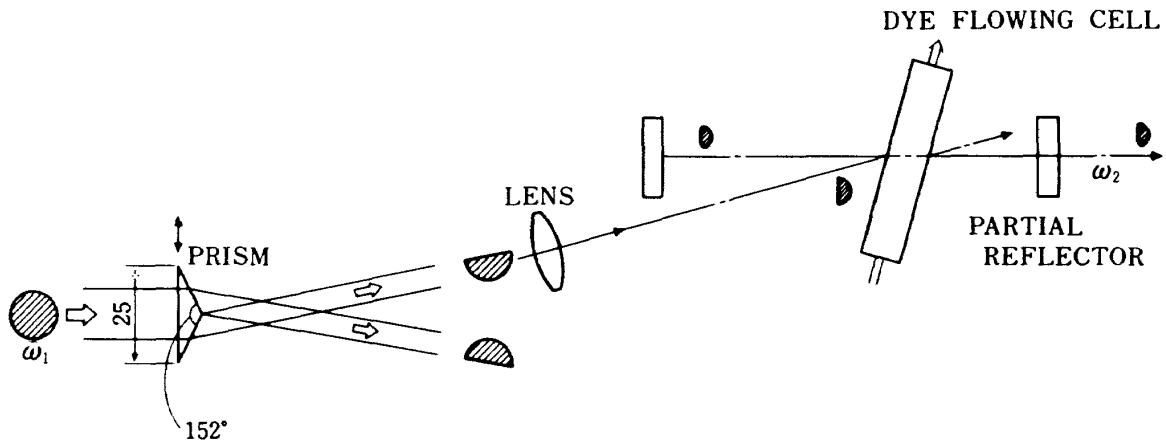


図7 三角プリズムによるビーム分割と色素レーザ励起

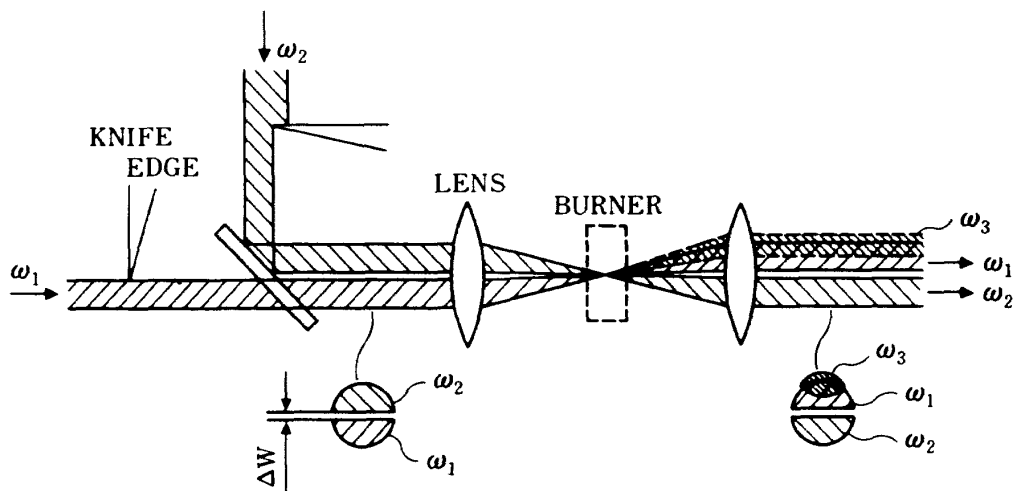


図8 MAC (Minimum Angle Crossed beam method) によるビーム整合法

$\omega_1, \omega_2$ : 励起光

$\omega_3$ : CARS 光

振系で高い変換効率を有するものを試作し、これを使用した。色素レーザの媒質としてはローダミン640をエタノールで希釈して用いた。

### 3.2 受光系

$\omega_3$ を励起光から分離抽出し光ファイバーを介して分光器へ導く。

#### 3.2.1 多重反射型分光装置

MAC法の位相整合では $\omega_3$ は $\omega_1$ の外側に出る(図8)が、 $\omega_1$ と $\omega_2$ の交差角が小さいので $\omega_1$ と非常に接近している。多重反射型分光装置は $\omega_3$ を $\omega_1$ から分離・抽出する装置でその構造を図9に示す。分散プリズムを使用する方法に比較し

て光路を非常に短くできる利点がある。2枚の対向させたダイクロイックミラーは入射角 $10^\circ$ に対しLWP (Long Wave Pass) 500nmの特性を有し、 $\omega_3$ に対しては95%以上の反射率を、 $\omega_1, \omega_2$ に対しては80%以上の透過率を持つ。ミラー間の距離 $L_m$ を変えることにより反射繰返し回数 $2n$  ( $n=1, 2, 3, \dots$ )を変えられる。経験上 $n=3$ が適当であった。この状態では $\omega_1$ がわずかに目視できる程度に残留し、これが非常に微弱な $\omega_3$ (通常目視できない)用の光路ガイドとして後方に位置する収束レンズ、光ファイバーの光軸調整に使用できる。この点もプリズムを使用する場合より有効である。なお透過した強い $\omega_1, \omega_2$ はミラー後方のビームトラップで吸収される。

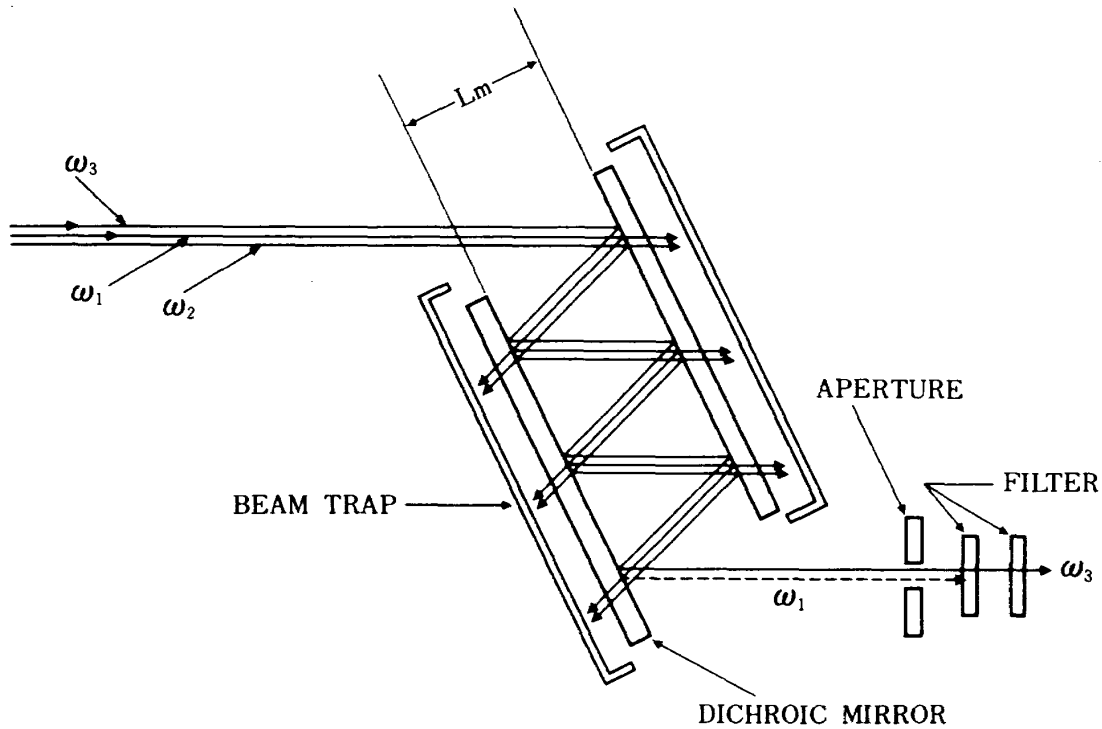


図9 多重反射型分光装置と $\omega_3$ の抽出方法

3.2.2 狭帯域フィルターと減衰フィルター

残留した $\omega_1$ および迷光除去のため狭帯域干渉フィルター (I.F.F) を用いる。特性は $\omega_3$ に対してバンド幅 (FWHM) 約20nm, 透過率約45%である。 $\omega_1$ の残留光が強すぎる場合には2枚使用することもある。さらに吸収タイプの連続可変フィルター (N.D.F) を用いて測定に必要な適度な光量に調整する。

3.2.3 光ファイバー

特にモードを重視しないので、ステップインデックスタイプ (SI) あるいはグレーテッドインデックスタイプ (GI) のどちらでもよい。本装置ではGI型, 石英, コア/クラッド径400/550 $\mu$ m, コードタイプ (絶縁ビニール), NA (Numerical Aperture) 0.2を使用した。大きいコア径を使用した理由は入射光軸を合わせ易いことおよび入射損失を減らすためであるが, 他方入射時に光軸調整不良による損失も生じ易い<sup>13)</sup>ので光軸の慎重な調整が必要であった。

3.3 分光処理部

CARS光を分光器内で2方向に分割し, 2台の

出射スリット後方に設けたフォトマルチプライヤ (以下 PMT) でその強度を測定し, 比 $S=I_2/I_1$ を求める。レーザパルスの発振幅が10ns以下と非常に小さく, 従ってPMT, 増幅器, サンプルホールドなどは全て速い応答性が要求される。しかしデータ処理は2チャンネルの情報が各レーザショット毎に得られるだけであるから簡単になる。

3.3.1 分光器

分光器の構造を図10に, 諸元を表1に示す。グレーティングを経て球面鏡からスリットへ向けて収束する光路上に半透過ミラーを設置し, CARS光を2つに分割して互に垂直な2台のスリット上へ収束させる。透過側をNo.1, 反射側をNo.2としてスリット幅は図2に相当する様にそれぞれ調整する。No.2はスリット全体を上下方向に微動させ焦点を合わせることが出来る。スリットは共に両開き型であるため中心波長の設定にはNo.1を固定し, No.2は微動台によって調整する。

3.3.2 フォトマルチプライヤと増幅器

PMT はシンチレーションカウンタ用高速タイプの R-580 (ヘッドオン, 38mm $\phi$ , 浜松フォト



表1 分光器の諸元

焦点距離	f=250mm
明るさ	F4.3
グレーティング	有効面 52×52mm
分散能	約3nm/mm (グレーティング1,200本/mm)
分解能	0.1nm (FWHM)
スリット	幅0~4mm, 最小目盛10μm 高さ1~20mm, V型しぼり可変
波長表示	最小目盛0.1nm
波長精度	±0.1nm
波長再現性	±0.1nm
波長範囲	最大200~1,400nm

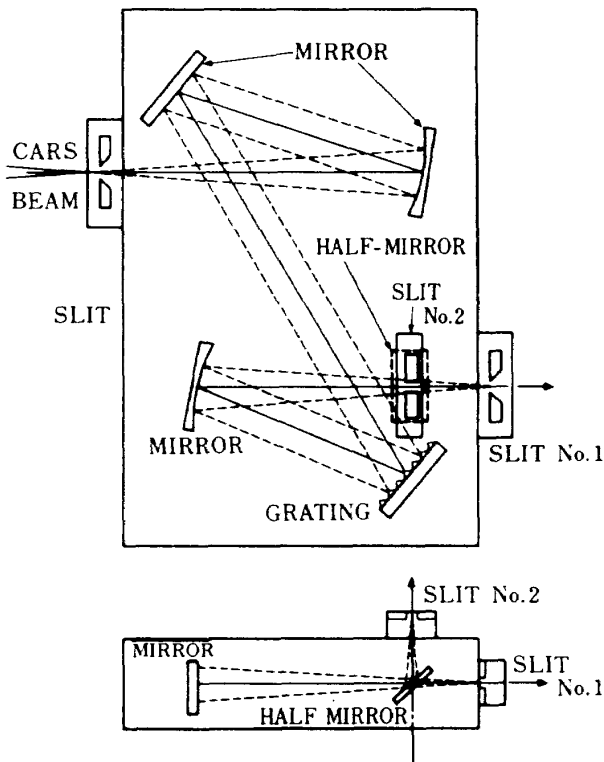


図10 特殊小型分光器の構造

ニクス)を使用した。増幅器は突発信号用(モデル2005型, CANBERRA社)で, 立上がり時間は15ns以下と速い。感度は内部のジャンパープラグのさし換えによって4.5mVまたは22.7mV/pCの選択ができるが, 本装置では後者を用いた。

### 3.3.3 サンプルホールドユニット (S/H)

信号の立上がり速いためサンプルホールドが動作するまでのタイミングが最も重要となる。図11に各機器のタイミングチャートを示す。YAGレ

ーザQスイッチの動作パルスから, レーザ光が発生してPMTで受光するまでの時間は, 光路差にも依る(光速0.3m/ns)が, 約350nsである。PMTで立上がった信号にどこでホールドをかけるかを指示するサンプルコマンド信号に対しては150~850nsの遅延時間を設定できる。これは例えば光路が長くなったりPMTや増幅器の特性による遅れを考慮したためである。サンプルホールド(モデルSHM-7MC, DATEL社)の減衰率は10μV/μsであるため, ホールドした電圧に対してデータ取込用のA/Dスタートパルスは余裕を見て3μs遅らせた。なおA/D変換器には12bitを用いた。

### 3.3.4 コンピュータ処理

出力信号が $I_1, I_2$ のみで, かつ出力周期が50ms(20Hz)であるためデータ処理が極めて容易となった。データ処理は統計処理を中心としているが, 各測定点毎に1000個のデータ処理を行い, 平均値, 変動値, ヒストグラム等を出力する。この際データ選別として

$$|T_i - \bar{T}| \leq 3\sigma \quad (8)$$

$\sigma$  : 標準偏差

$\bar{T}$  : 平均温度

を3回繰返し, 不良データの排除を行う。コンピュータ(モデルAIDACS 4200G, アイ電子測器)での入力も含めた計算処理時間は1測定点当たり約90秒であった。

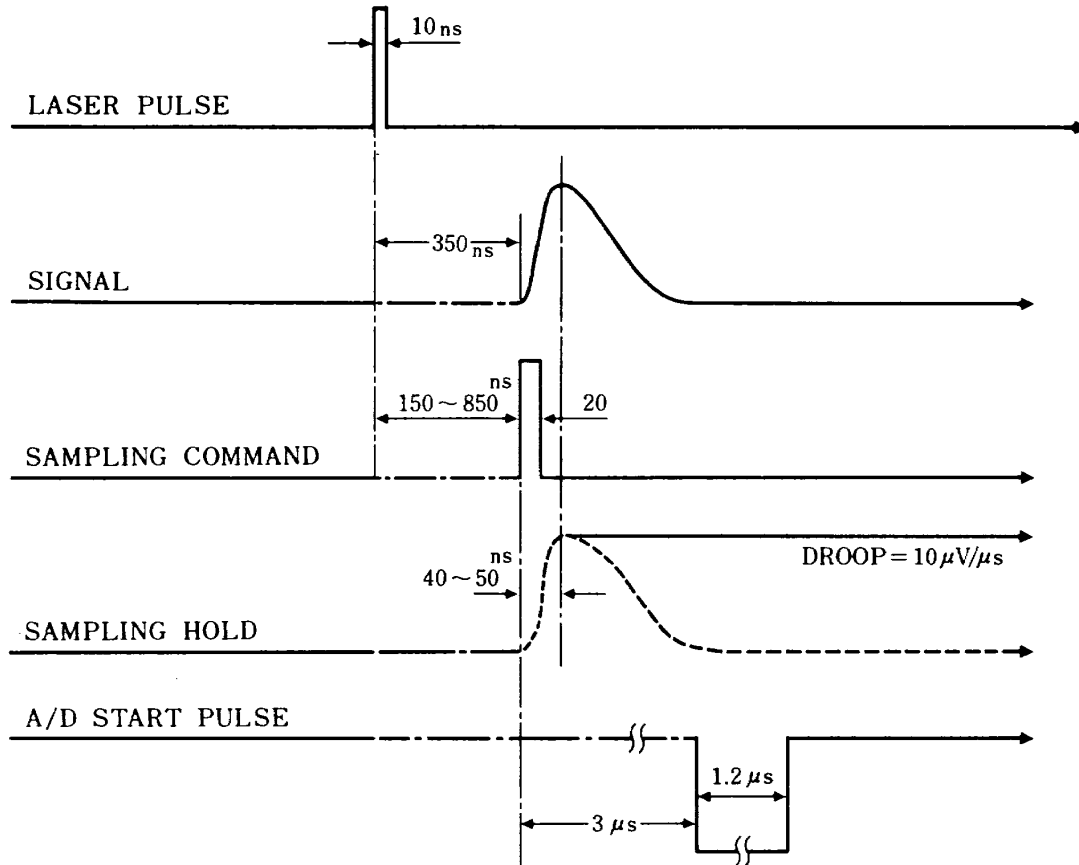


図11 データサンプリングのためのタイミングチャート

#### 4. 測定精度

CARS 法による温度測定値に対する評価は、熱電対補正值<sup>15,24)</sup>、ナトリウム D 線反転法<sup>25)</sup>などとの比較例がありこれらの結果は CARS 法の有効性を実証しているものの従来の方法と CARS 法の比較に関しては空間的、時間的分解能の違い、物理的に接触・非接触の違い、等の問題点は存在する。測定精度を論じる際、絶対値に対する評価と変動値に対する評価とが必要である。レーザ発振は間欠的であるから、データは統計処理が前提となる。そのため変動値の測定に関しては、分光処理部を構成する諸機器の特性が変動値に寄与する割合を分析し、室温および電気炉の一定温度におけるそれぞれ 10,000 個のデータをもとに系の全体的な変動値に対する考察を行った。また絶対値に対する評価は電気炉及びバーナを対象として、熱電対測定値および従来の multiplex CARS 法との比較で述べる。さらに測定対象が著しい温度勾配を有する時に測定誤差を生ずる要因として問題と

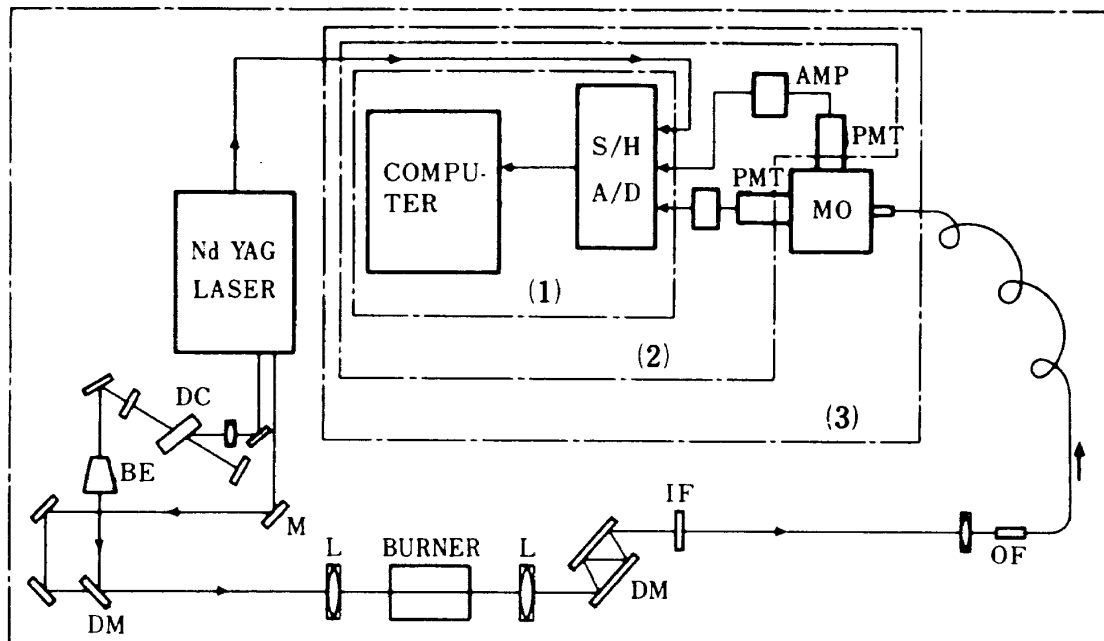
なる測定体積長さ（以下空間分解能という）をブンゼンバーナを用いて調べ、実際の空間分解能の見積を行った。

##### 4.1 測定精度に影響を及ぼす要因とその評価

測定値に影響を及ぼす要因として一般に以下の諸点が考えられる。

- (A) N<sub>2</sub> 以外のガスによる非共鳴散乱光の発生
- (B) 火炎および周辺からの CARS 光に対する近スペクトルの迷光
- (C) 空間分解能が悪く、焦点周りからの種々異なる温度下において発生した CARS 光の影響
- (D) ガス圧力の影響によるラマン線幅の変化
- (E) スペクトルを処理する分光器、受光器、およびデータ処理装置の特性

(A)~(D)項については、実験条件、測定対象などに強く依存するので評価が困難である。しかし、一般的な使用条件（たとえば常圧下での空気によるガス燃焼等の測定に使用すること）および十分小さい空間分解能となる光整合法を用いることを



DC : DYE CELL, BE : BEAM EXPANDER, DM : DICHROIC MIRROR  
 OF : OPTICAL FIBER, L : LENS, IF : INTERFERENCE FILTER  
 S/H : SAMPLE HOLDER, A/D : A-D CONVERTER  
 MO : MONOCHROMATOR, M : MIRROR, AMP : PRE-AMPLIFIER  
 PMT : PHOTOMULTIPLIER TUBE

図12 測定誤差を生ずる要因の分類

- (1) 処理装置
- (2) フォトマルチプライア
- (3) 分光器

前提とすれば、(A)~(D)の影響は無視できる。従って(E)に着目し、図12に示すように各構成要素にもとづいて誤差要因を次のように分類(1点鎖線)した。

- (1) 処理装置
- (2) フォトマルチプライア
- (3) 分光器

各要因が全体の誤差にどの程度寄与しているかを実験的に分析した。さらに統計上どの程度のショット数を処理すれば正確な温度が得られるかを詳細に検討した。誤差の評価は全てコンピュータに取込んで処理するため、その基となる最終処理部の方から順を追って述べる。

#### 4.1.1 処理装置

ここで処理装置とは PMT 出力以降の S/H, A/D, コンピュータを一括したものである。光強度  $I_1, I_2$  を測定する系統をそれぞれ CH1, CH2 とす

る。この処理装置系では電気的ノイズが測定誤差となる。定電圧信号を処理装置の CH1 と CH2 に入力してその出力特性を測定した。入力レベルを変えた時に出力側の比の値 (CH2/CH1) がどのように変化するかを図13に示す。CH1 と CH2 に等しい入力をしているので、理想的には入力レベルに関係なく CH2/CH1=1 になる。低入力側で標準偏差が徐々に増加しているのは処理装置内部で発生する電気ノイズによるものである。しかし入力レベルがフルスケールの 10% (0.5V) 以下になるまでは標準偏差 1% 以下であり、しかも通常測定時の入力レベル (2~3V) においては 0.3% 程度で実用上は問題無い。なお温度測定時は CH2/CH1 比が 1.2~5 の範囲にあり、その比の分子に対して分母が相対的に小さな値となる。そのため誤差もこれに比例して増加する。

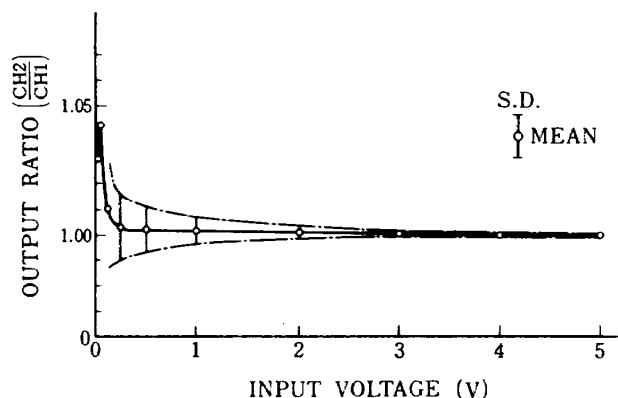


図13 処理装置による測定値の変動  
(MEAN: 平均値, S.D: 標準偏差)

#### 4.1.2 フォトマルチプライヤ

2つのPMTで測定した強度比をもとに温度を算出するため、PMTの入力光強度と出力電流の関係が直線性をもち、かつ2つの感度特性が等しいことが重要な条件である。直線性と感度はブリーダ抵抗等の設定によって変化するため、最適な設定にすることが必要である。CARS光の強度を変化させて2つのPMTに等しく入力し、その出力を測定した。図14に300ショットのデータについて横軸はCH2の強度を電圧に変換して示し、縦軸は比CH2/CH1で示した。このデータは前項処理装置特性にPMT特性が加わった結果を示している。各入力光強度に対するCH2/CH1比の平均値はほぼ一定の値となり、これは2つのPMTが直線性をもちことを示している。平均値が1.03となったのは2つの感度にわずかな差があるためであるが、これは温度計算時に補正できる。標準偏差値は通常測定時の入力レベルにおいて約0.7%あり、処理装置だけの場合に比較して0.4%の増加が見られる。この原因は2つのPMTの応答性の差および高速パルス入力にともなうサンプリング時のタイミングの微小変動によるものと考えられる。

#### 4.1.3 分光器

出射スリット上の結像面における像の位置変動が測定精度に影響を与える。スリットをしぼるとその変動を顕著にとらえられるため、変動の影響を受けないスリット全開の状態を基準にして比較

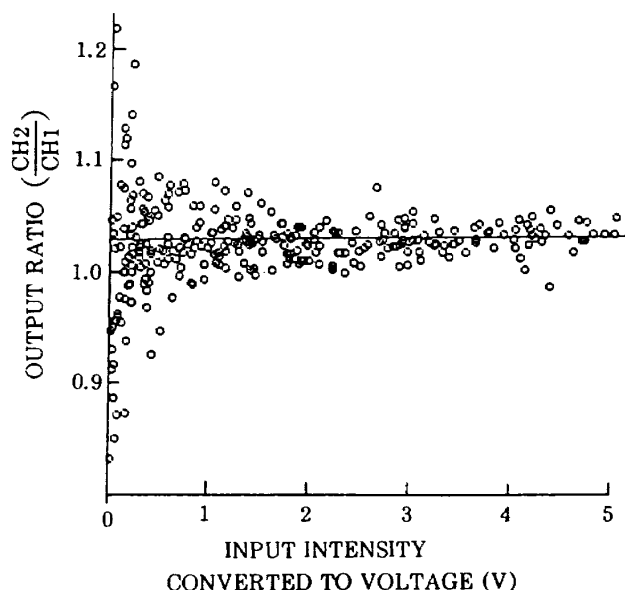


図14 (処理装置+PMT)による測定値の変動

した。入射光にはスペクトルの安定したレーザー光(532nm)を用いた。スリット全開の状態では、スペクトルすべてがスリットの影響を受けずに2つのPMTに等しい光量で入射する。スリット全開の場合(図15(a))にもCH1/CH1比に変動が見られるが、これは前項で述べたPMTおよび処理装置の特性から生じているものである。スリットを30μmに絞った場合(図15(b))には(a)に比較して変動幅が約1.5倍に増加した。つまり標準偏差として1.1%あり、スリットによる影響は0.4%の増加となる。なお、像の微小な位置変動が何に起因しているかは断定できない。

#### 4.1.4 総合精度

前項に述べた要因を総合した場合の実測定時の誤差を考察する。実際に温度測定した際の誤差を調べるため、室温および電気炉内温度を測定して検討した。サンプル数として10000ショットのデータを用いた。このような多数のデータが簡単に得られるのも本装置の特長の一つである。図16(a), (b)に測定結果を温度幅10Kのヒストグラムで示す。(a)は室温, (b)は電気炉内温度でいずれも良好なガウス分布を示している。標準偏差値/平均温度はそれぞれ25/292K, 55/928Kとなった。この変動分の内訳を前項に述べた3つの誤差要因によって生じるものと、他の要因によるものとに分けて表

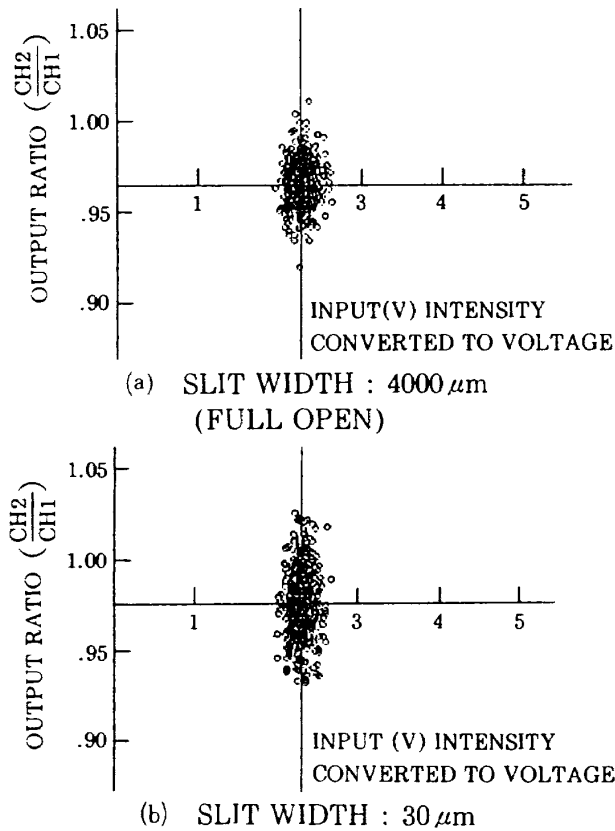


図15 (処理装置+分光器)による測定値の変動

2に示す。なお表中の値は各要因毎に得られた比に対する測定誤差を温度に換算したものである。これら3つの要因によって生ずる誤差の全体誤差に占める割合は室温で72% (18K), 高温時に62% (33K) でこのうち最も大きいのは PMT によるものである。約 1/3 を占める他の要因によって生じる誤差は、経験上から見て広帯域色素レーザーのスペクトル強度変動によるものであり、今後改善の余地がある。

次に何ショットのデータを処理すれば信頼できる温度が得られるかを考察する。処理するデータを図17のように定義する。以下、平均するショット数  $N$  をパラメータとして整理する。10,000個データを  $N$  個ずつの 100 ブロックに分けて、まずブロック毎の平均値 ( $T_N$ ), 標準偏差 ( $S_N$ ) を求め、さらにこの  $T_N$  及び  $S_N$  の平均値 ( $S_{TN}$ ), 標準偏差 ( $S_{SN}$ ) を求める。 $N$  は 5, 10, 50, 100, 500, 1000, 5000 の7種類を選択した。 $N$  と  $T_N(1) \sim (100)$  の関係を図

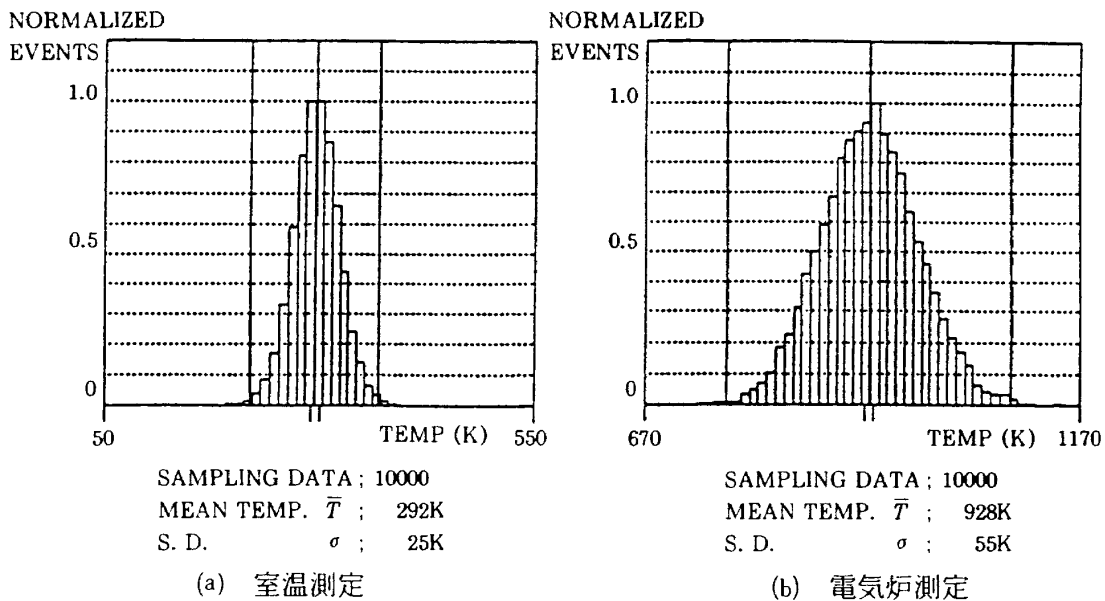


図16 温度のヒストグラム

表2 誤差要因の変動値

CAUSES	MEAN TEMP. ERROR	292K	928K
		STANDARD DEVIATION (K)	
DATA PROCESSOR		3	4
PHOTOMULTIPLIER		9	19
MONOCHROMATOR		6	11
OTHERS		( 7 )	(21)
TOTAL ACCURACY		25	55

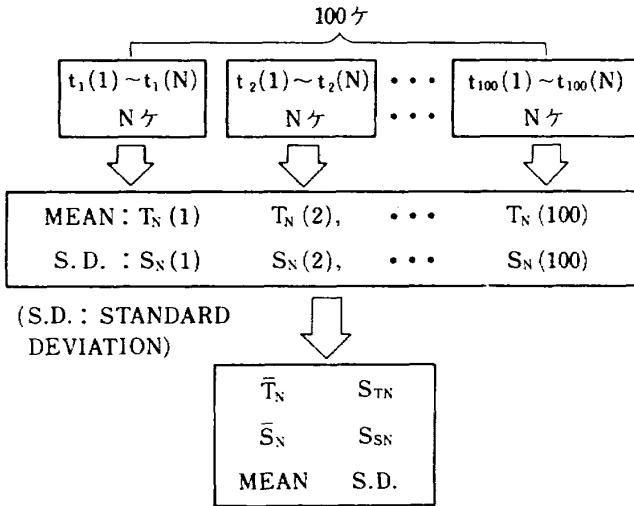


図17 処理データ名の定義

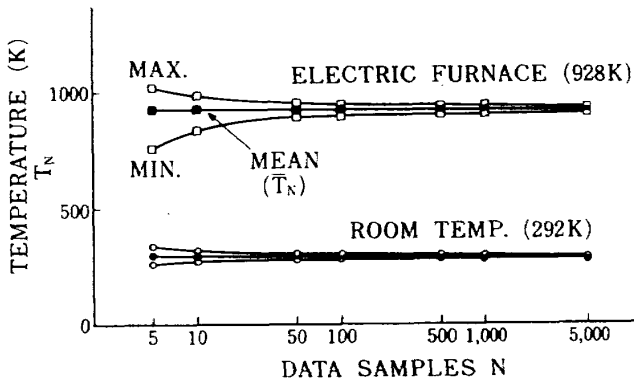


図18 処理データ数 N と平均値  $T_N$  の関係

18に、また  $N$  と  $S_N(1) \sim (100)$  の関係を図19に示す。 $S_N$  は  $T_N$  で無次元化した。 $N$  が増加するにしたがって平均値と標準偏差は安定することがわかる。この処理データ数による信頼性の差は、平均値に関しては  $S_{TN}$  そして標準偏差に関しては  $S_{SN}$  の値で比較すると明瞭である。図20、図21にそれぞれの結果を示す。 $N$  の増加にともない急激に減少し、しだいになだらかになる。このなだらかになり始める点は平均値の場合は  $N=100$ 、標準偏差の場合は  $N=500$  である。さらにヒストグラム(図22(a)~(g))を見ると、 $N=500$  以上でガウス分布に近い形が得られている。

以上のことから、信頼のある結果を得るには500以上のデータが処理上必要である。

4.2 電気炉での比較

カンタル線加熱炉内に直径40mm、長さ370mm

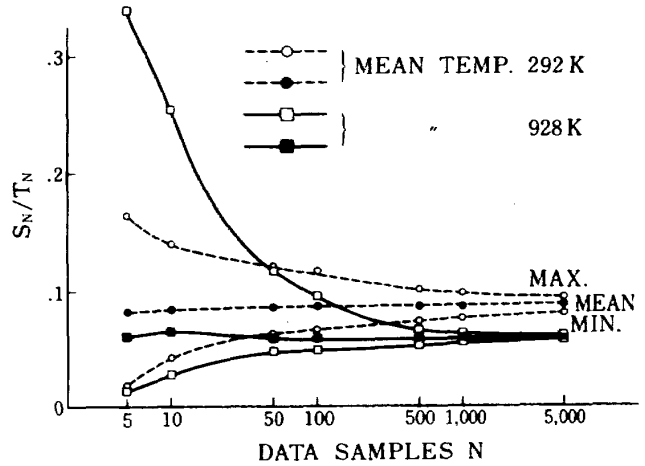


図19  $N$  と標準偏差値  $S_N$  の関係

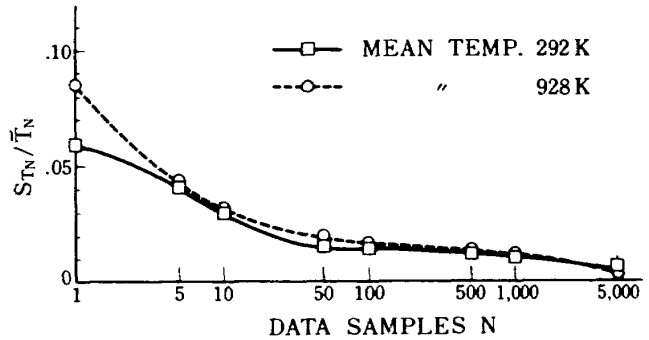


図20  $N$  と平均値変動  $S_{TN}$  の関係

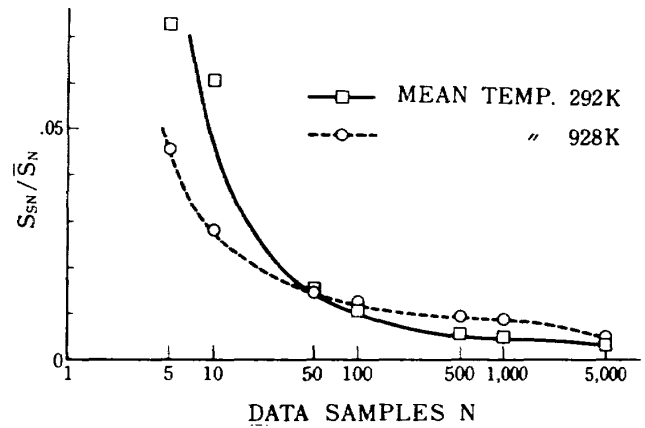


図21  $N$  と標準偏差値変動  $S_{SN}$  の関係

の石英管を装着した装置(図23、図24)において、石英管の  $N_2$  ガス温度を R 型、線径  $50 \mu m$ 、先端露出部長さ  $30 mm$  の熱電対で測定し CARS 温度計測定値と比較した。管内長さ方向温度分布は中心付近ではほぼ一定で、CARS の空間分解能が多少悪くても測定結果にあまり影響を及ぼさない。熱電対値は補正していないが、管内ガスが密閉され対流が少ないことや化学反応がないこと、素線が細

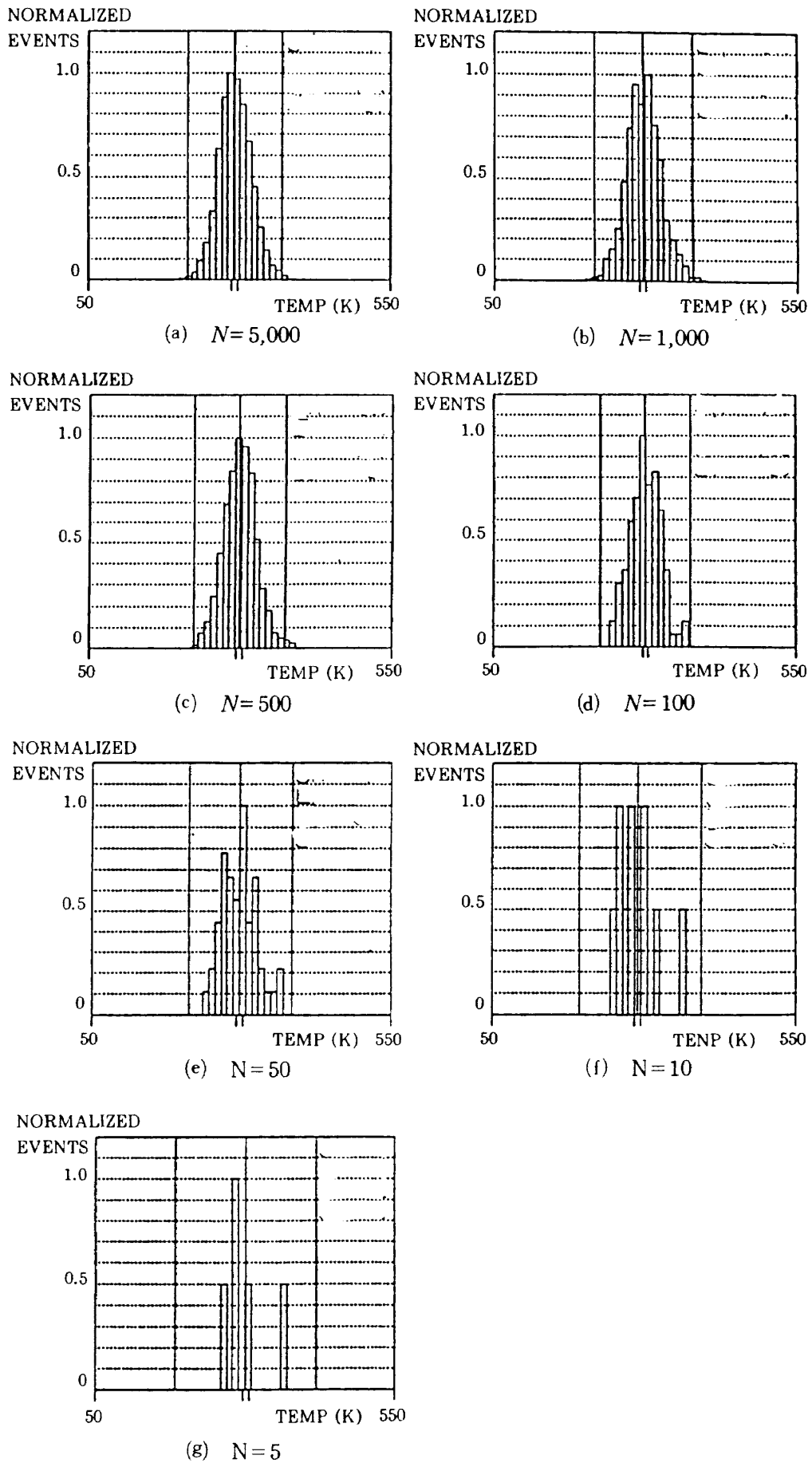


図22 Nによるヒストグラムの変化

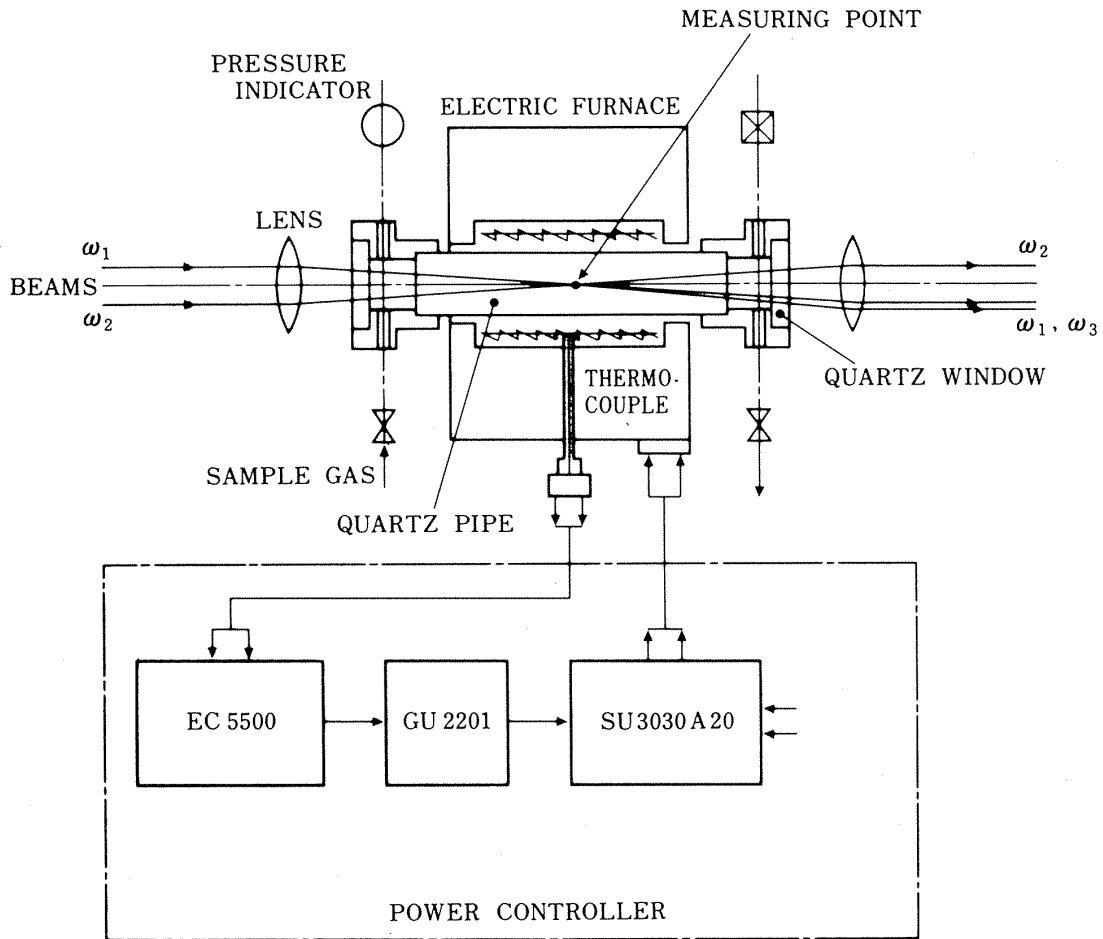


図23 電気炉による実験装置の系統図

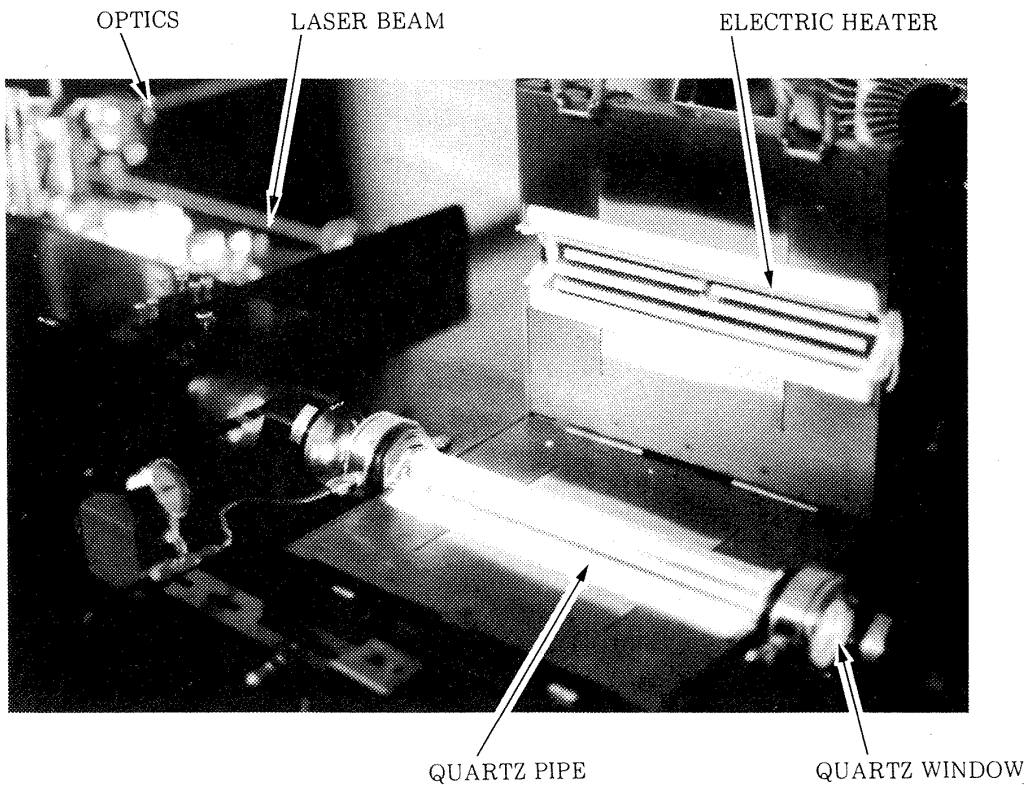


図24 電気炉の温度測定



く、露出部が長いことおよび温度が $\leq 1,200\text{K}$ と低いことなどから熱伝導や輻射による影響は無視した。電気炉内温度は設定温度に対して10~15分で安定した。測定は室温から100Kずつ上げて各2回測定した。結果を図25に示す。1回の測定値は1,000個のデータの平均値である。本測定結果は

1,000K以下の低温域でも非常に良い一致が得られることを示した。

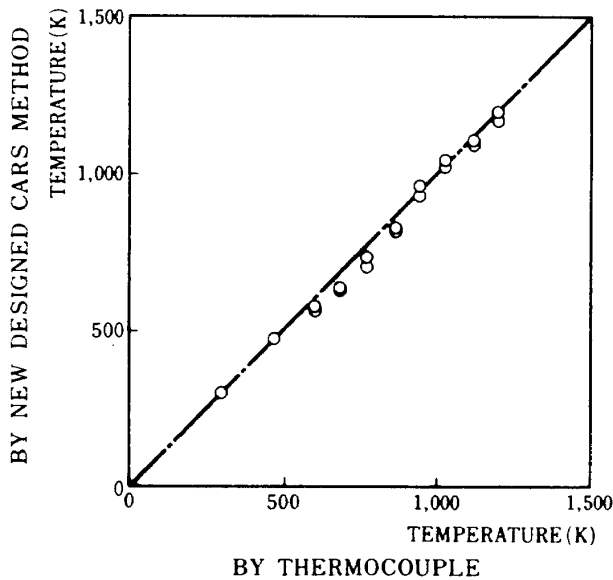
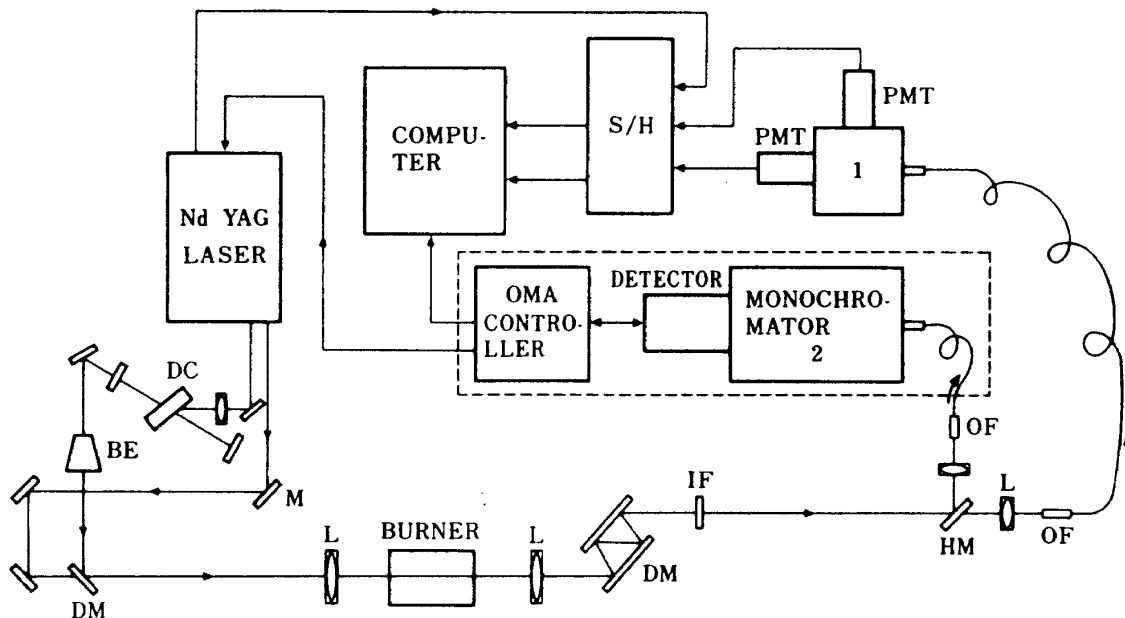


図25 電気炉温度に対する熱電対値とCARS温度計測定値との比較

### 4.3 バーナでの比較

バーナはフラットフレームバーナ<sup>2)</sup>および拡散バーナ<sup>13)</sup>を用いた。熱電対による測定が困難であるため従来の multiplex CARS 方式による測定値との比較を行った。測定方法は図26に示すようにCARS光を2等分し、一方は従来装置である高性能分光器 (monochromator-1), OMA を利用した測定系 (図の点線内) へ導き、他方は本装置の測定系へと導く。従って測定は全て同時計測である。従来方法によるCARSスペクトル測定結果と理論計算による近似曲線例を図27に示す。実験スペクトルは100データの平均値である。理論計算のスリット関数は $2.3\text{cm}^{-1}$ で温度は $2,002\text{K}$ であった。燃焼条件および測定点を変えて $1,600\sim 2,000\text{K}$ における燃焼ガス温度を測定し両者の結果を比較した (図28)。CASE-1, CASE-2は前記(5), (6)式に合わせて求めた結果で、どちらの曲線を用いてもその差はなく、全体的によく一致している。



DC: DYE CELL, BE: BEAM EXPANDER, DM: DICHOIC MIRROR,  
 OF: OPTICAL FIBER, HM: HALF MIRROR, IF: INTERFERENCE FILTER  
 S/H: SAMPLE HOLDER, OMA: OPTICAL MULTICHANNEL ANALYZER

図26 CARS温度計と従来測定方法 (Multiplex CARS) との比較のための同時測定装置系統図 (点線内: 従来方法)

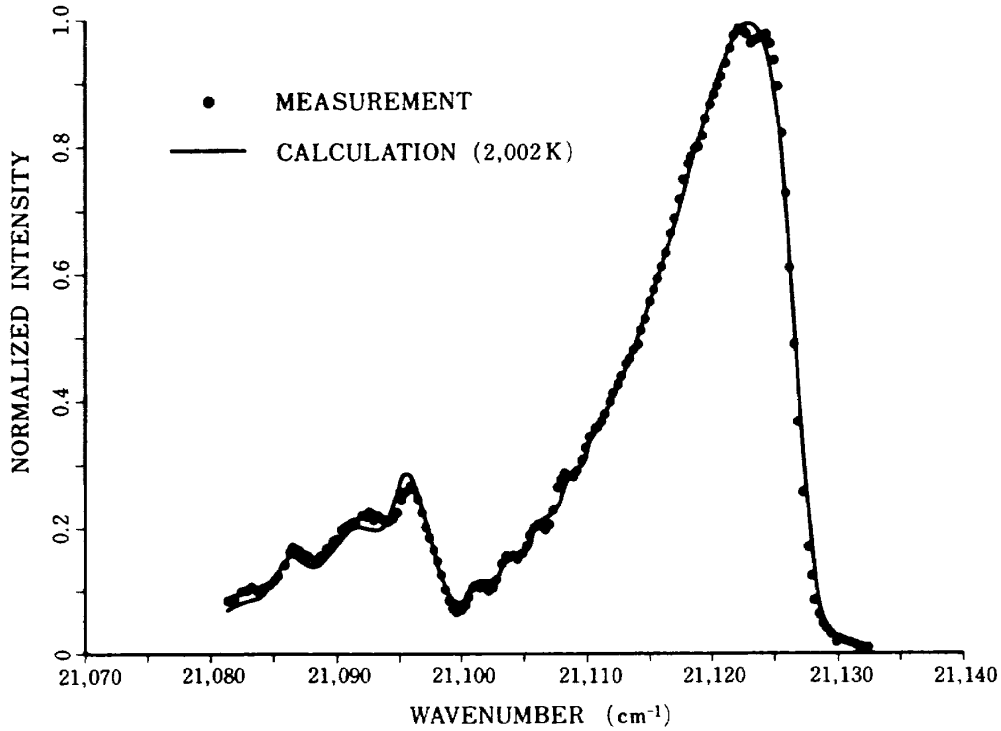


図27 Multiplex CARS法によるCARSスペクトルの測定値と理論近似曲線例

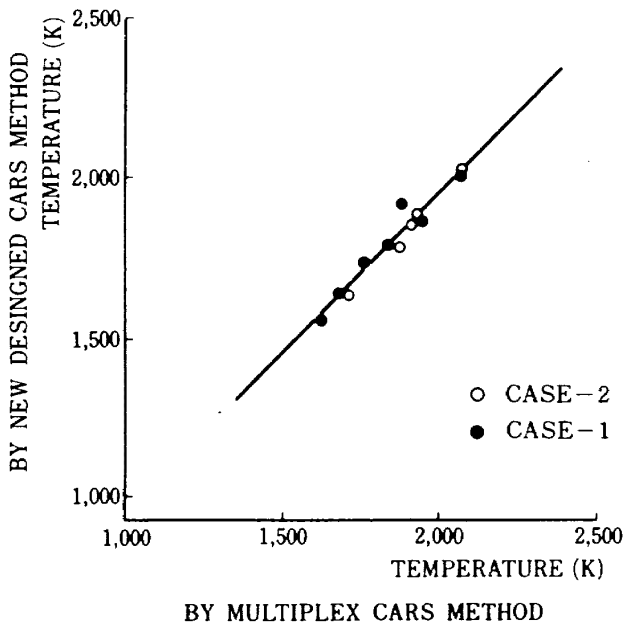


図28 バーナ火炎におけるCARS温度計測定値(縦軸)と Multiplex CARS法による測定値(横軸)との比較  
(CASE-1 (5)式を用いた場合)  
(CASE-2 (6)式を用いた場合)

4.4 空間分解能

$\omega_1$  と  $\omega_2$  を交差させた時ビーム方向の位相整合長(図29, 以下空間分解能)が測定精度に影響を

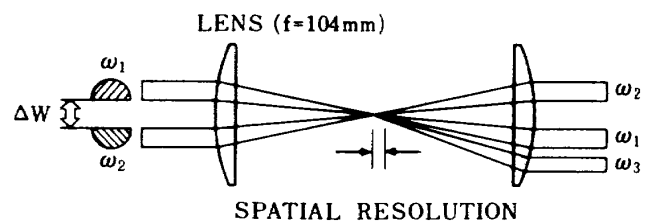


図29 ビーム間隔と空間分解能の関係

及ぼす。空間分解能は一般に測定体積で表すが、図29の様にレーザービームをレンズで集光すると焦点近傍では直径が0.1mm以下となるので問題とならず、長さのみを対象とした。CARS光強度はガス密度の二乗に比例するので、温度勾配すなわち密度勾配の大きいところでは、高密度側での信号強度が全強度に対して大きな割合を占める。結局測定値は低温側へ偏る。このように空間分解能は実験条件によって左右されるので一般的にその定義は難しい。下記の条件のもとで空間分解能の推定を試みた。外径18mmの小型ブンゼンバーナの端面から10mm上方の火炎断面(図30, 図31)を測定した。観察される火炎厚みは数mmで、特に内部では温度勾配が非常に大きい。測定は、(1)等温線(同心円と想定)の接線方向にビームを交

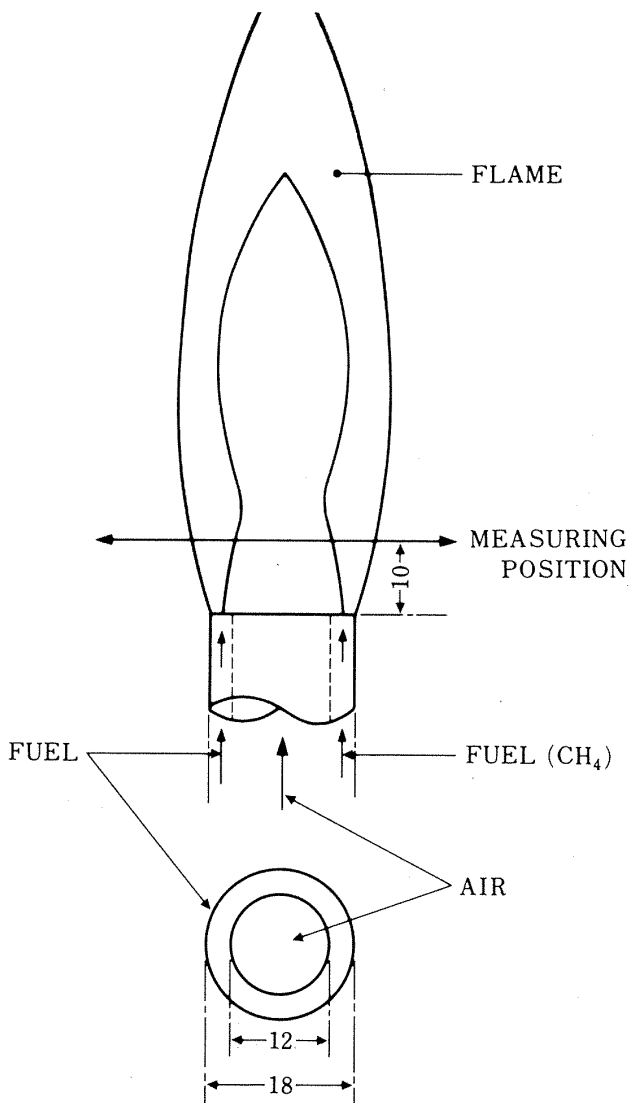


図30 ブンゼンバーナおよび温度測定位置

差させビームを横切る方向にバーナを移動して温度分布を測定する(図32(a))。接線方向には温度勾配は小さいので  $4W$  を多少小さくしても影響はなく、正しい半径方向の温度分布を測定できる。(2)バーナをビーム方向(法線方向)へ移動する(図32(b))。温度勾配が非常に大きいため測定値は空間分解能の影響を敏感に受ける。(1)の場合、 $4W=0.2\text{mm}$  で測定した結果を図33中▼で示した。(2)については  $4W=0$  (●印),  $0.3\text{mm}$  (△印),  $0.6\text{mm}$  (○印) の3種類について測定し、(1)と比較して示した。△と●の結果は低温側に偏り、○の値は▼の結果とよく一致した。このことより  $4W=0.6\text{mm}$  の値は、ほぼ妥当な空間分解能を与えていると考えられる。この結果から空間分解能の値を見積もる。 $4W=0.6$  で測定した半径方向各

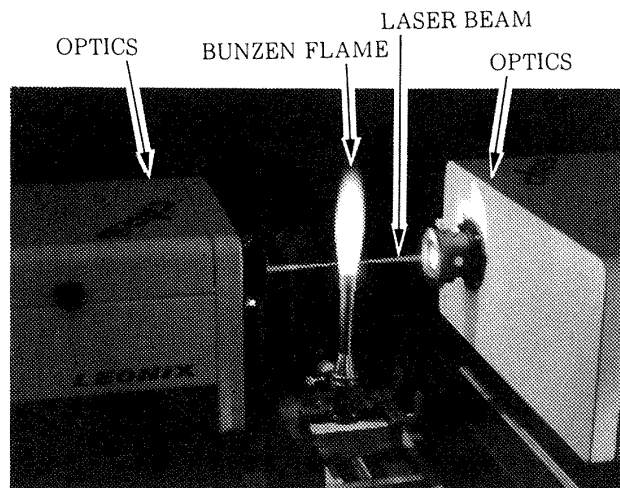
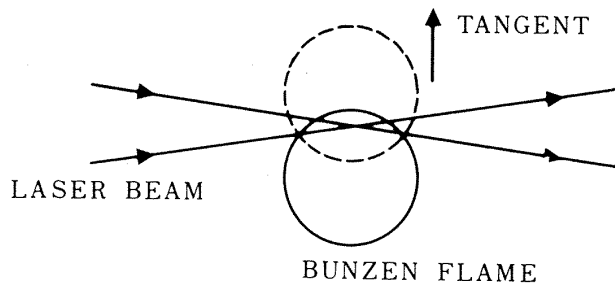
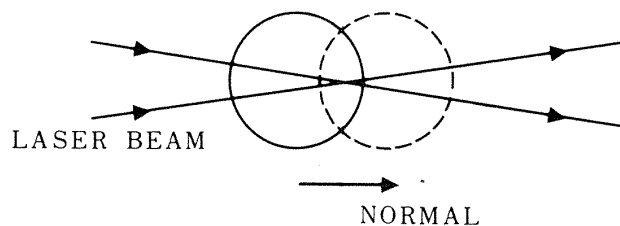


図31 ブンゼンバーナの温度測定



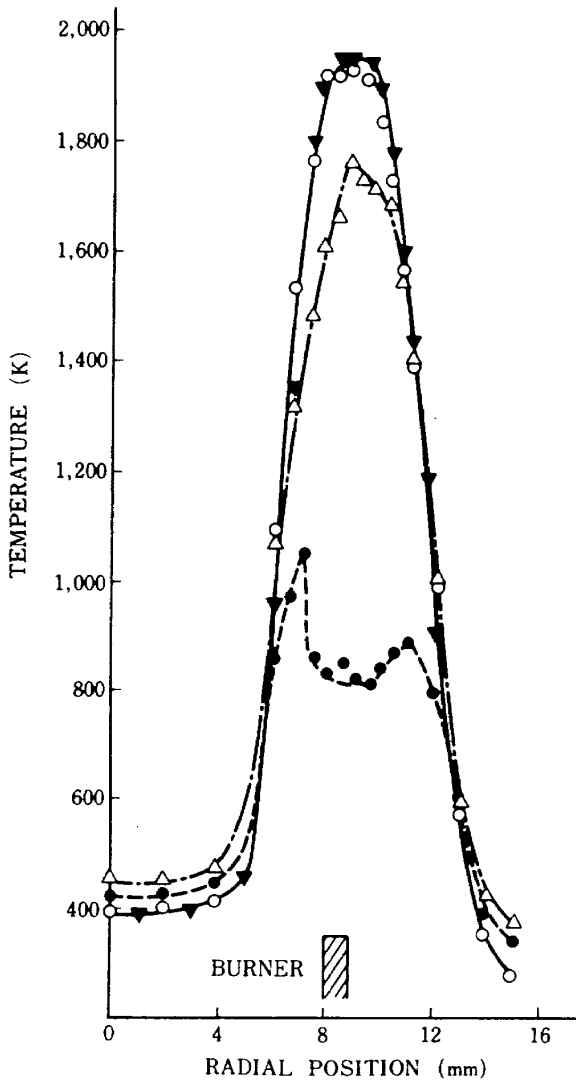
(a) 等温線の接線方向



(b) 等温線の法線方向

図32 レーザビームに対するブンゼン火炎面の移動方向

測定点でのヒストグラムを図34に示す。 $R=4\text{mm}$  から  $R=6\text{mm}$  までは非常に温度勾配が大きくヒストグラムも急激に変化する。 $R=6.5\text{mm}$  ではさらに大きく変化している。このような急激な温度勾配を有する点に着目して、仮に温度が上昇し始めた  $600\text{K}$  に着目し、低温側からバーナを移動して最初に  $600\text{K}$  がヒストグラムに現れ始め ( $R=R1$ ),



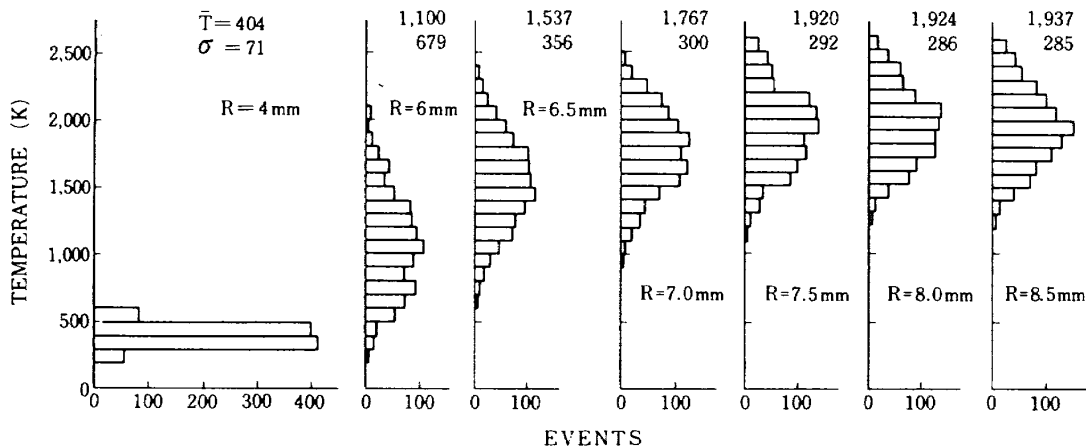
- ▼ : ビーム方向が等温線の接線方向,  $\omega_1$  と  $\omega_2$  のビーム間隔  $\Delta W = 0.2\text{mm}$
- : ビーム方向が等温線の法線方向,  $\Delta W = 0.6\text{mm}$
- △ : ビーム方向が等温線の法線方向,  $\Delta W = 0.3\text{mm}$
- : ビーム方向が等温線の法線方向,  $\Delta W = 0\text{mm}$

図33 空間分解能の影響によるブンゼンバーナ半径方向温度分布の変化

さらにバーナを移動していくとヒストグラムは高温データによって占められ600Kのデータが消失する点 ( $R=R_h$ )が生ずる。この半径位置の差  $|R_h - R_l|$  がビーム方向の空間分解能として定義できる。火炎断面の中心線上4箇所に急激な温度勾配が存在するのでそれに求め平均した結果、空間分解能は2.2mmであった。一般的な測定ではこのように大きい温度勾配は存在しにくいので空間分解能はさらに小さくなると見込まれる。

### 5. 測定例

スターリングエンジン用バーナや、パルス燃焼器への応用<sup>20)</sup>例があるが前者の測定例を述べる。500°Cの加熱空気に強い旋回(tangential swirl)を与え短炎化を図ったバーナ(図35)である。燃料はプロパンを使用し中央のノズルから噴出される。燃焼ガスは燃焼室出口に設けたシリンダヘッドの外周に沿って排出される。バーナ周辺の測定装置の外観写真を図36に示す。当量比( $\phi$ ) 0.4および0.8の条件下で、スロート後方30mmの軸位置における半径方向測定結果を、平均温度分布(図37(a))および温度変動分布(図37(b))で示した。横軸は燃焼器スロートの内半径  $R_0$  で無次元化している。図38(a), (b)には  $\phi=0.4$  および  $\phi=0.8$  の全ての測定点でのヒストグラムを示した。温度勾配の変化に伴い、分布形状が顕著に変化している様子が明らかにされていて興味深い。各点とも1,000個のデータを処理しているが、実時間測定に近い



$\bar{T}$  : 1000データの平均温度     $\sigma$  : 1000データの標準偏差  
 R : バーナ中心からの測定半径位置

図34 ブンゼンバーナ測定温度ヒストグラム

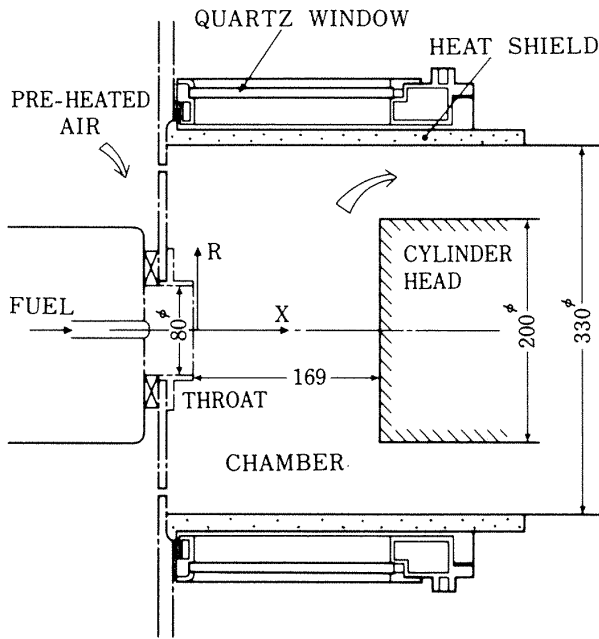


図35 スターリングバーナの概要

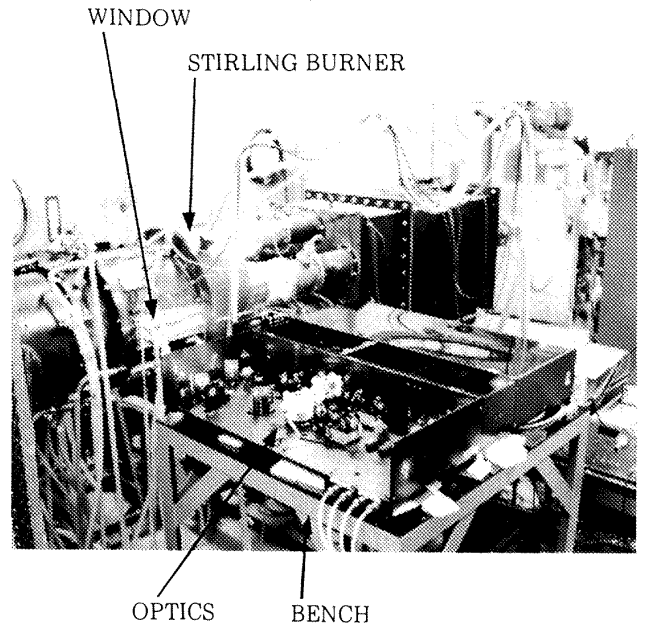
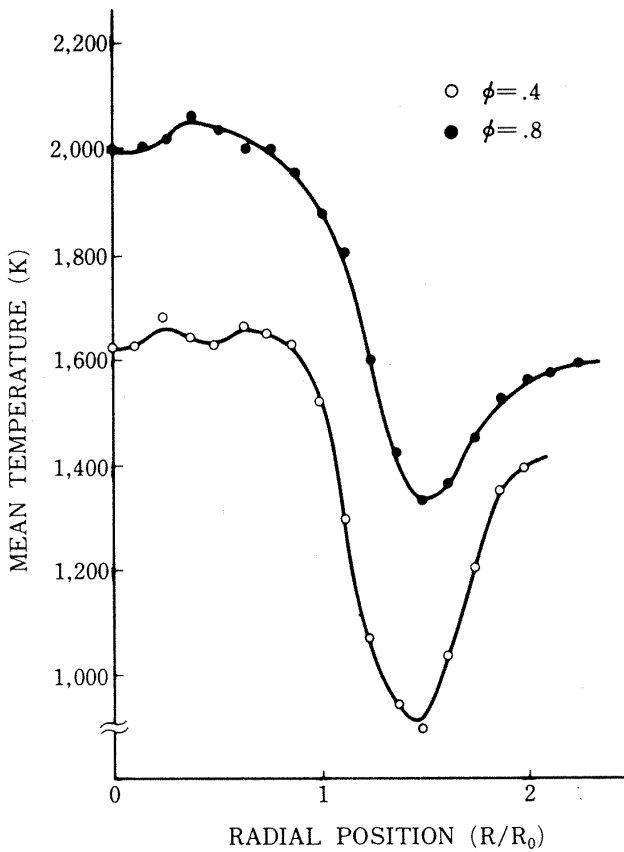
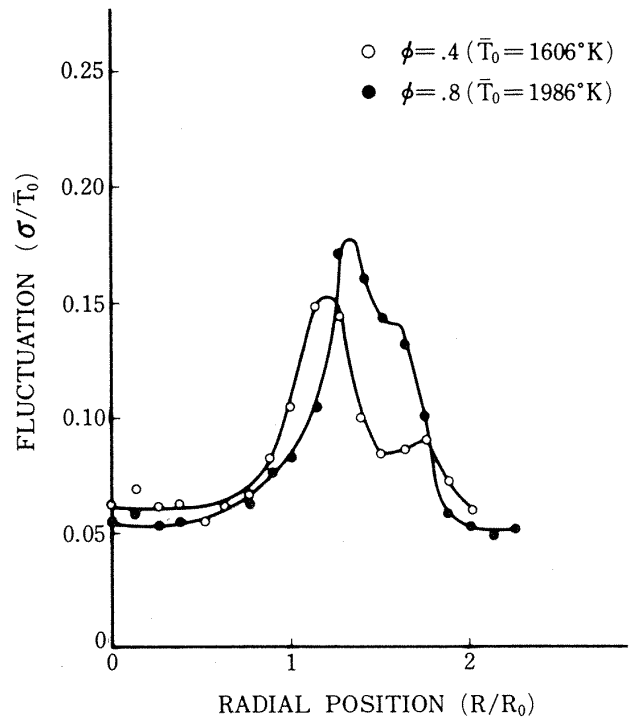


図36 スターリングバーナの温度測定

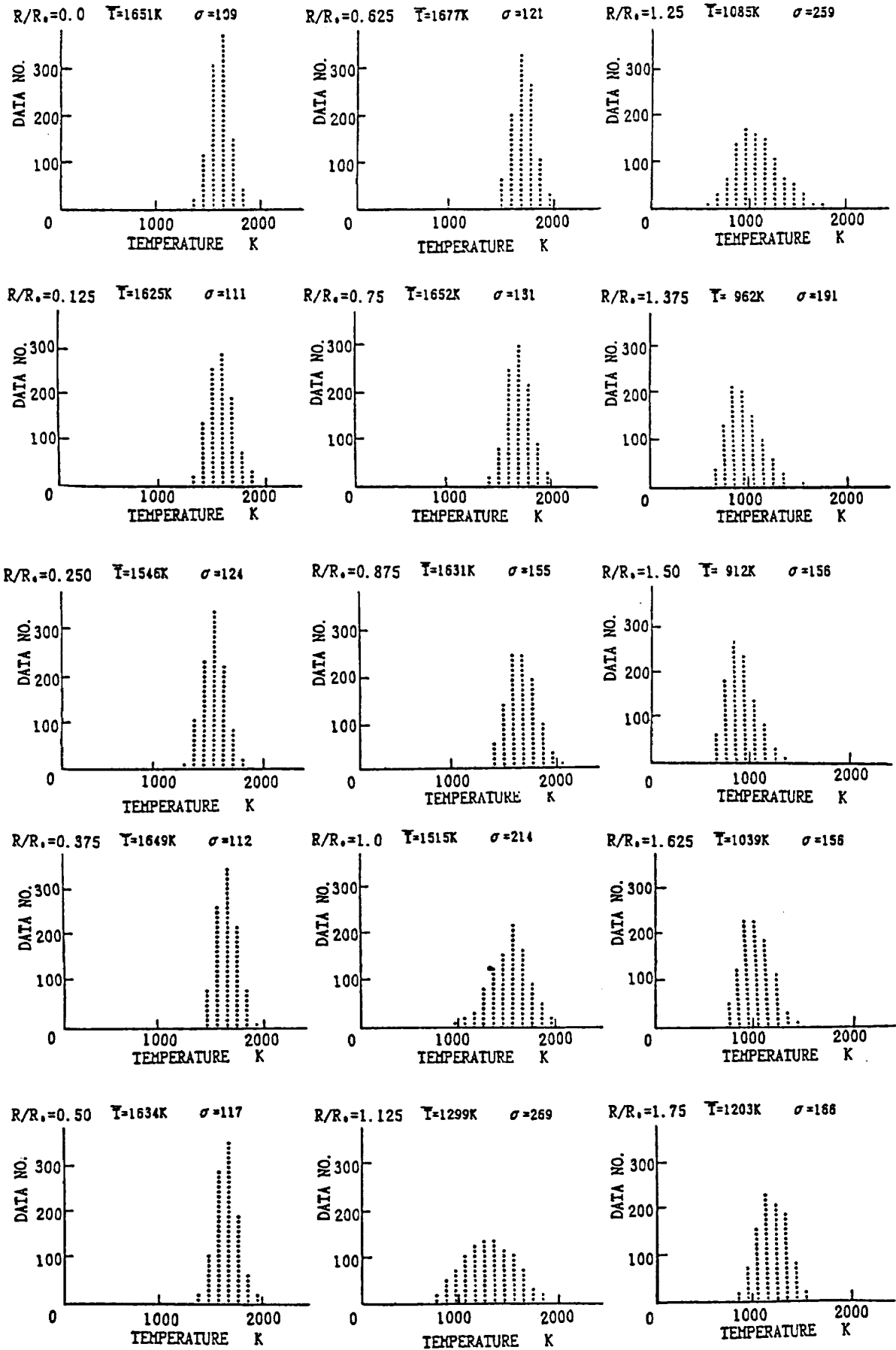


(a) 平均温度 (1000ショット)  
 $R$  : バーナ中心からの半径位置  
 $R_0$  : スロート内半径 = 40mm  
 $\phi$  : 当量比



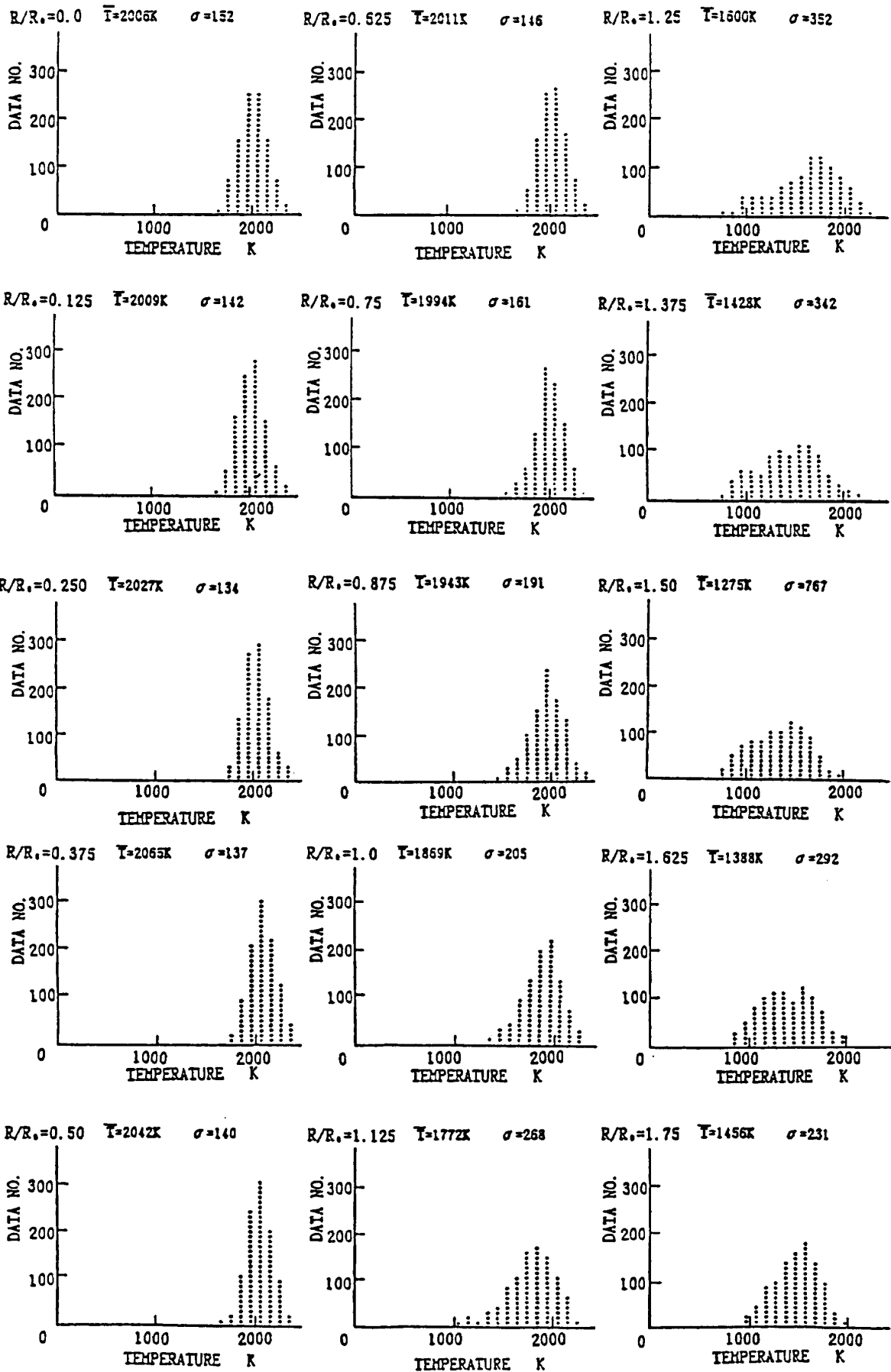
(b) 変動値 (1000ショット)  
 $\sigma$  : 標準偏差  
 $\bar{T}_0$  : バーナ中心での平均温度

図37 軸流方向  $X=30\text{mm}$  におけるスターリングバーナの半径方向平均温度および変動値の当量比による変化



(a)  $\phi=0.4, X=30\text{mm}$

図38 温度ヒストグラム(1000ショット)の半径位置による変化



(b)  $\phi=0.8$ ,  $X=30\text{mm}$   
 図38 (つづき)

計測が達成できた。

## 6. ま と め

本研究により次の様な成果を得ることができた。

- (1) 熟練した技能や量子力学上の複雑な計算手段を必要とせずに容易に使用できる実用的な CARS 温度計を実現できた。
- (2) 従来の CARS 法に比べて画期的に速く、実時間測定に近い測定が可能となった。
- (3) 従来の CARS 法で用いた高価な高性能分光器、高感度多チャンネル受光装置、大記憶容量を備えたコンピュータ等が不要となり、著しく低コスト化が図れ、分光処理部装置の価格は従来の 10 分の 1 以下になり得る。
- (4) 上記に伴い、精密装置の使用法、保守および高級プログラムの管理などの負担が著しく軽減された。
- (5) 三角プリズムによりレーザービームを効率よく分配でき、コンパクトな色素レーザーおよび MAC 法との結合により、光学系装置が小型化され扱い易くなった。
- (6) 測定精度は従来方法と比べて大差なく、より測定精度を高めるためには、PMT の安定化、色素レーザーの改善等を図る必要がある。今後、適用範囲をさらに広げるためには高圧のガス雰囲気や種々の特殊な条件下における影響に対する一層の検討が必要である。

## 謝 辞

本研究を進めるにあたり、終始懇切なる御指導と励ましを頂いた熱流体力学部流体騒音研究室、藤井昭一室長に深く感謝の意を表します。

なお、本研究は通産省工業技術院の省エネルギー技術開発「汎用スターリングエンジンの研究開発」の支援研究である「公害・高負荷燃焼技術の研究」の一環として行ったものである。

## 参 考 文 献

- 1) R. L. Farrow, R. P. Lucht, G. L. Clark, and R. E. Palmer : Species Concentration Measurements using CARS with nonre-

sonant susceptibility normalization, *Appl. Opt.*, 24, 2241-2251 (1985).

- 2) 渡辺泰夫, 手崎 衆, 藤井昭一 : シングルパルス CARS による火炎内濃度測定, *分光研究*, 33, 327-334 (1984).
- 3) J. H. Stufflebeam, J. F. Verdick, and R. J. Hall : CARS Diagnostics of High Pressure and Temperature Gases, AIAA-83-1478 (1983).
- 4) H. Kataoka, S. Maeda, C. Hirose, and K. Kajiyama : A Study for N<sub>2</sub> CARS thermometry at High Pressure, *Appl. Spectrosc.*, 37, 503 (1983).
- 5) A. C. Eckbreth and T. J. Anderson : Dual Broadband CARS for Simultaneous Multiple Species Measurements, *Appl. Opt.*, 24, 2731-2736 (1985).
- 6) L. P. Goss, G. L. Switzer, and D. D. Trump : Temperature and Species-Concentration Measurements in Turbulent Diffusion Flames by the CARS Technique, AIAA-82-0240 (1982).
- 7) S. Fujii, M. Gomi, and K. Eguchi : A Remote Laser-Probe System for Velocity and Temperature Measurements, *Trans. ASME, Jour. of Fluids Eng.* 105, 128-133 (1983).
- 8) L. P. Goss and D. D. Trump : Simultaneous CARS and LDA Measurements in a Turbulent Flame, AIAA-84-1458 (1984).
- 9) A. C. Eckbreth : BOXCARS : Crossed-Beam Phase-matched CARS Generation in Gases, *Appl. phys. Lett.*, 32, 421-423 (1978).
- 10) J. A. Shirley, R. J. Hall, and A. C. Eckbreth : Folded BOXCARS for Rotational Raman Studies, *Opt. Lett.*, 5, 380-382, (1980).
- 11) A. C. Eckbreth, G. M. Dobbs, and J. H. Stufflebeam : CARS Temperature and Species measurements in Augmented Jet Engine Exhausts, AIAA-83-1294 (1983).



- 12) 五味光男, 石塚只夫, 藤井昭一 : CARSによる火炎温度の計測方法, 航技研資料, TM-457 (1982).
- 13) S. Fujii, M. Gomi, and Y. Jin : Instantaneous CARS Thermometry in Turbulent Flames, Comb. and Flame, 48, 233-240 (1982).
- 14) S. Fujii, M. Gomi, K. Eguchi, S. Yamaguchi, and Y. Jin : Time-Resolved LDV and CARS Measurements in a Premixed Reacting Flow, Combust. Sci. and Tech., 36, 211-226 (1984).
- 15) 渡辺泰夫, 五味光男, 江口邦久, 手崎 衆 : CARSによる燃焼計測(I)温度計測精度の検討 航技研報告, TR-939 (1987).
- 16) 渡辺泰夫, 五味光男, 江口邦久, 手崎 衆 : CARSによる燃焼計測(II)成分濃度計測, 航技研報告, TR-940 (1987).
- 17) 五味光男, 江口邦久, 渡辺泰夫 : 燃焼診断のための遠隔レーザ計測方法の研究, 航技研報告, TR-979 (1988).
- 18) 藤井昭一, 五味光男 : レーザによる高温ガス温度計測の簡易化, 航空宇宙学会誌, 35, 303-310 (1987).
- 19) S. Fujii and M. Gomi : Fast Temperature Determination by Nitrogen Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy, AIAA Jour., 26-3, 311-315 (1988).
- 20) 江口邦久, 黒沢要治, 五味光男, 斉藤和夫 : 2連式バルブレスパルスバーナに関する研究—パルス燃焼時の温度分布特性—, 航技研報告, TR-973 (1988).
- 21) 金井美一 : 実用化をめざしたCARS法温度計測装置の開発, インспек, 14, 54-59 (1987).
- 22) 五味光男, 藤井昭一, 金井美一 : CARS温度計の測定精度, 日本機械学会論文集, ~~88-759~~ 55-512 B.
- 23) R. J. Hall : Pressure-broadened Linewidths for N<sub>2</sub> Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy Thermometry, Appl. Spectrosc., 34, 700-702 (1980).
- 24) R. L. Farrow, P. L. Mattern, and L. A. Rahn : Comparison between CARS and Corrected Thermocouple Temperature Measurements in a Diffusion Flame, Appl. Opt., 21, 3119-3125 (1982).
- 25) R. R. Antcliff and O. Jarrett Jr. : Comparison of CARS Combustion Temperatures with Standard Techniques, AIAA-83-1482 (1983).

---

## 航空宇宙技術研究所報告 999号

昭和63年10月発行

発行所 航空宇宙技術研究所

東京都調布市深大寺東町7丁目44番地1

電話三鷹(0422)47-5911(大代表)〒182

印刷所 株式会社 東京プレス

東京都板橋区桜川 2 - 27 - 12

---

**Printed in Japan**