

Development of a Laser Absorption NO/NO₂ Measuring System for Gas Turbine Exhaust Jets

Y. Zhu; H. Yamada; S. Hayashi

(Japan Aerospace Exploration Agency)

7-44-1 Jindaijihigashi, Chofu, Tokyo 182-8522, Japan

zhu.yuxiu@jaxa.jp; yamada.hideshi@jaxa.jp; hayashi.shigeru@jaxa.jp

Key Words: Diode Laser, Absorption, Multipass, Exhaust, NO/NO₂

For the protection of the local air quality and the global atmosphere, the emissions of trace species including nitric oxides (NO and NO₂) from gas turbines are regulated by local governments and by the International Civil Aviation Organization. In-situ measurements of such species are needed not only for the development of advanced low-emission combustion concepts but also for providing emissions data required for the sound assessment of the effects of the emissions on environment.

We have been developing a laser absorption system that has a capability of simultaneous determination of NO and NO₂ concentrations in the exhaust jets from aero gas turbines. A diode laser operating near 1.8 micrometer is used for the detection of NO while a separated visible tunable diode laser operating near 676 nanometers is used for NO₂.

The sensitivities at elevated temperature conditions were determined for simulated gas mixtures heated up to 500K in a heated cell of a straight 0.5 m optical path. Sensitivity limits estimated as were 30 ppmv-m and 3.7 ppmv-m for NO and NO₂, respectively, at a typical exhaust gas temperature of 800K. Experiments using the simulated exhaust flows have proven that CO₂ and H₂O vapor - both major combustion products - do not show any interference in the NO or NO₂ measurements.

The measurement system has been applied to the NO/NO₂ measurements in NO and NO₂ doped real combustion gas jets issuing from a rectangular nozzle having 0.4 m optical path. The lower detection limits of the system were considerably decreased by using a multipass optical cell. A pair of off-axis parabola mirrors successfully suppressed the beam steering in the combustion gas jets by centralizing the fluctuating beam in sensor area of the detectors.

1.まえがき

燃焼排気ガス中のNOとNO₂を併せてNO_x(窒素酸化物)と呼び、よく知られている酸性雨や光化学スモッグの大気汚染の原因物質でもある。近年環境に対する関心が高まっているにつれ、大気汚染物質として排出規制が強化されつつ、高効率でNO_x排出の少ない航空エンジンの開発が従来以上に求められている。しかし、航空エンジンの排気ノズル内の流れ場は高エンタルピ流であるため、プローブ法によるNO_xの高速分析は難しい[1, 2]。そこで、高速の波長変調が可能である半導体レーザーは様々な気体の分析、かつ定量的な絶対濃度計測が可能と知られ、また、レーザー自体が小型、軽量、かつ低コストであることから、今後燃焼場の実測においても有力な手段となる。

著者らは、半導体レーザー吸収分光法に基づいて非接触で高精度な測定が可能な航空エンジン排気成分NO、NO₂計測装置の研究開発を取り込んだ。本稿では、開発した装置の信頼性と実用性を検証するために、加熱セル及び模擬エンジン排気ジェット発生器によるNO、NO₂の同時計測を行い、感度、再現性、及び精度を検討した。

2.測定原理及び性能評価装置

本研究では、波長分解能の低い従来の吸収分光法と異なり、線幅の狭い半導体レーザーの波長走査によって計測対象成分による吸収を計測し、NO、NO₂の絶対濃度を求めた。本装置の測定原理は、Beer-Lambert法則に基づく。

$$I_{\omega} = I_{0,\omega} \exp[-S(T,\omega) \times g(\omega,T,P) \times N \times l] \quad (1)$$

ここで、 $I_{0,\omega}$ は周波数 ω のレーザー入射光の強度、 I_{ω} は吸収パス l (計測対象成分を通過した光路長) を透過したレーザーの強度、また、 $S(T,\omega)$ は温度 T 及び ω における吸収ライン強度、 $g(\omega,T,P)$ は ω, T 及び圧力 P における吸収ライン形状関数、 N は吸収成分の数密度である。(1) 式より

$$N = \frac{1}{S \cdot l} \int_{\omega} \ln \frac{I_{0,\omega}}{I_{\omega}} d\omega \quad (2)$$

吸収成分の数密度の測定精度を向上させるためには、適切な吸収ラインの波長選定や十分な吸収パスの確保が重要である。本研究では、HITEMP [3] データベースを用いて、NO、NO₂ の吸収ライン強度が高く、かつ CO₂ や H₂O 等のライン干渉のない吸収ラインを選び出し、それに対応する商用レーザーチップを選定した。NO 吸収に対応した吸収ラインを 1.8 μm (5568.25 cm^{-1})、NO₂ 吸収には 0.676 μm (14790.49 cm^{-1}) とした。図 1(a)(b) には NO、NO₂、CO₂、H₂O のレーザー走査可能域付近の吸収ラインを示す。

図 2 に開発した NO、NO₂ 測定装置、校正用加熱セル、模擬エンジン排気発生器の概略図を示す。NO、NO₂ 測定装置では、中心波長 5568.25 cm^{-1}

の DFB (Distributed Feedback) タイプレーザー、14790.49 cm^{-1} の FP (Fabry-Perot) タイプレーザーを用いた。各半導体レーザー光を二股に分け、高温セルあるいは模擬エンジン排気を通過した光と、通過しないリファレンス光の強度を同時に測定する。

同測定装置の基本性能を確認するために、温度や成分濃度、圧力等の諸条件を容易に制御できるステンレス製校正加熱セルを用いた。加熱セル(内

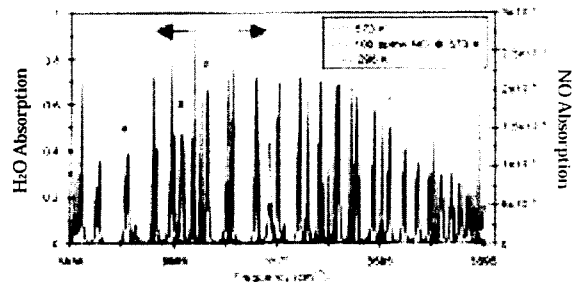


Fig.1. (a) Water vapor spectra and NO band spectrum calculated at 1 atm for 1 m path absorption.

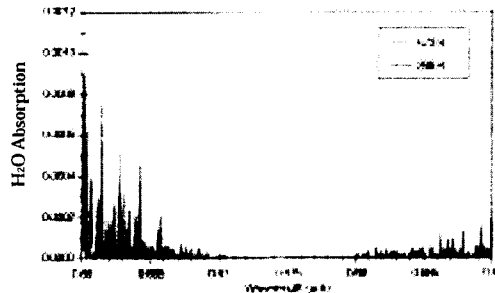


Fig.1. (b) Water vapor spectra calculated at 1 atm for 1 m path absorption.

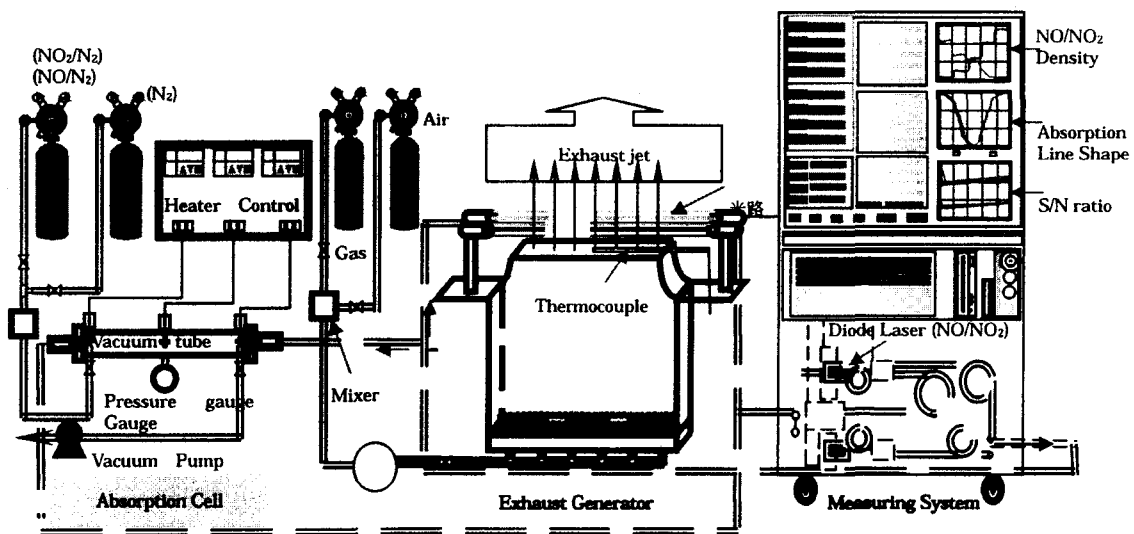


Fig.2. Schematic diagram of the experimental set-up.

径 38mm、長さ 500mm) は、真空ポンプ及び圧力計、500K まで加熱可能なヒーティングシステムから構成される。また、模擬エンジン排気発生器を用いて、実エンジン排気成分に近い条件で性能及び問題点の確認を行った。

3. 感度特性

NO、NO₂ 濃度測定装置の感度特性及び検出限界は、吸収パスが一定の場合、ほぼ選定した吸収ラインのライン強度によって決められる。また、ライン強度は吸収分子の温度に依存し、その依存性は各吸収ラインの波長選定によって異なる。開発した測定装置の波長選定の有効性を検証するために、既知濃度の NO あるいは NO₂ 標準ガスを較正加熱セルに充填し、セル内圧力を常に 1 atm になるように制御して、平均セル温度を常温～500K 範囲内で変化させたときの吸収ライン強度 $S(T)$ と $S(298K)$ との強度比を求めた。ガス温度は加熱セルの測定部チューブの 3 箇所に均等に設置された熱電対によって測定された。

図 3 と図 4 は吸収ライン強度の温度依存性を示す。●点は実測値で、実線は実測値を用いて 1000K まで累乗近似線を求めた結果を示す。破線は 1メートル吸収パスの成分濃度の検出限界濃度値を示す。

図 3 及び図 4 に示すように、吸収ラインのライン強度は温度上昇につれ低下し、それに対応して、検出限界濃度値は上昇する。NO 及び NO₂ の検出限界は、常温でそれぞれ 14.5ppmv-m と 1 ppmv-m で、800K ではそれぞれ 30ppmv-m と 3.7ppmv-m までに上昇する。従って、NO₂ の検出感度は NO のそれより 1 桁高いことがわかった。一方、空気過剰の連続燃焼であるガスタービンエンジンの排気中の NO は通常 30～40ppm であるが、開発した計測装置を実機計測に応用した場合、1メートル吸収パスでは不十分で、マルチパスなどの手法を用いて吸収パスの延長が必要である。また、他成分干渉が少なく、より強い吸収ライン

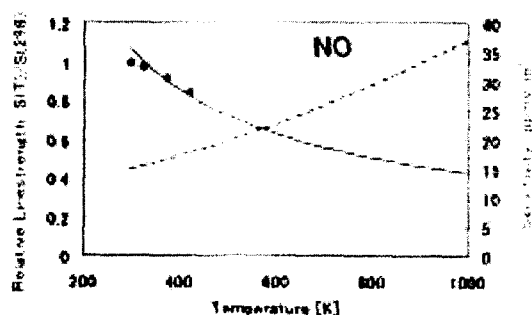


Fig.3. Temperature dependence of linstrength ratio and sensitivity for NO detection.

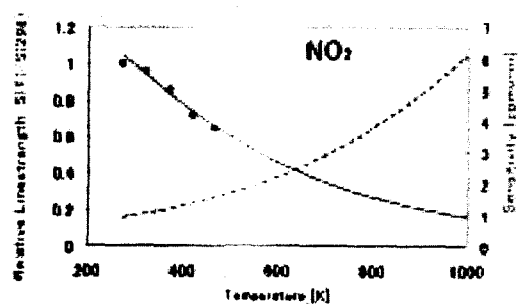


Fig.4. Temperature dependence of linstrength ratio and sensitivity for NO₂ detection.

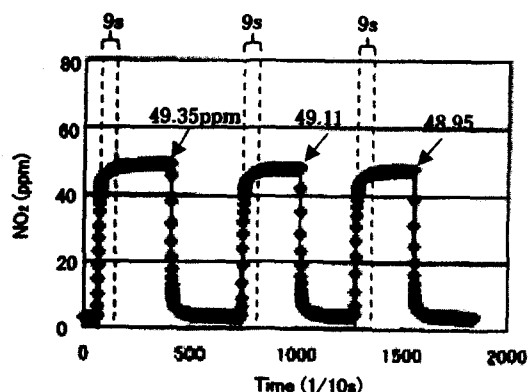


Fig.5. Reproducibility of NO₂ detection at 297K, 1 atm, and 0.5 m path absorption.

に対応するレーザーチップの選定も感度向上の方法である。

4.再現性および精度

加熱セルに NO₂ 標準ガス (メーカ検定値 49.4ppm) と空気を定圧状態で交互に流し、濃度の変化を測定し、測定値の再現性及び精度を検証した。測定装置のキャリブレーションは NO₂ 標準ガス (106ppm) を加熱セルに充填して行った。

図 5 は標準ガスと空気の 3 回切り替えの濃度測

定値の変化を示す。3つの濃度ピーク値は49.35ppm、49.11ppm、48.98ppmで、再現性が良く、検定値に対する絶対誤差も0.7%以内と小さかった。また、標準ガスに切替えてから濃度測定値が検定値の96%になるまでの所要時間は10秒以下であった。

5. 模擬エンジン排気での干渉性の確認

ガスタービンエンジンの排気中に通常数%のCO₂とH₂Oが含まれている。本研究においては、これらの成分の干渉がない吸収ラインを選定しているが、模擬エンジン排気発生器での実計測においてその有効性確認を行った。図6はその結果を示す。常温状態において、まず、流量20l/minの空気を発生器に供給し、次に、濃度106ppm、流量5l/minのNO₂ガスを追加し(図6中(a))、続いて濃度2000ppm、流量5l/minのNOガスを追加した(b)。また、初期に流した空気の代わりに、図中(c)で同流量のCO₂/Air(CO₂濃度4.365%)を流して、暫く経ってから、再度初期の空気(20l/min)に切替えた(d)。最後に、空気流量を20l/minから15l/minに減して(e)、図中(f)で濃度106ppm、5l/minのNO₂ガスを止めた。これらの一連の動作において、成分濃度の変化に追従して計測値も適正に変化した。一方、空気から同流量のCO₂/Airに切替えた際に、計測値の変化が認められなかった。図7に示す温度430Kでの実験においても、CO₂の干渉影響がないことが確認された。

6. 排気中のレーザービームの屈折

図6と図7に示すように、NO、NO₂濃度測定値の変動は大きかった。その平均値は供給ガスの濃度値と良く一致しているのに対して、その変動幅はNO、NO₂の濃度が変わってもほぼ変わらなかった。また、NO₂の測定値変動幅②よりもNOの変動幅①の方が大きい。これについては二つのことが考えられる。

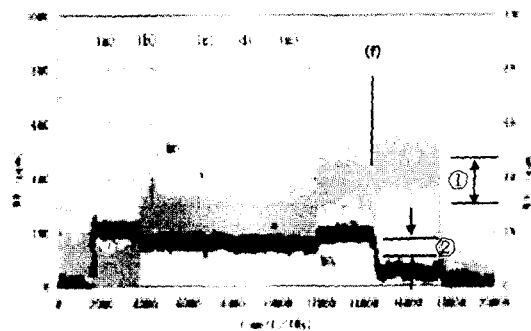


Fig.6. Examination of interference with CO₂ in NO and NO₂ detection at 293K, 1 atm, and 0.5 m path absorption.

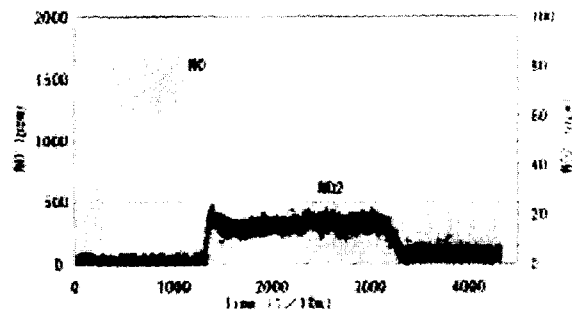


Fig.7. Examination of interference with CO₂ in NO and NO₂ detection at 430K, 1 atm, and 0.5 m path absorption.

まず模擬エンジン排気におけるレーザービームの各種屈折が原因である。光は均一な媒質の中では直進するが、異なった媒質の境界面に入射する時、レーザー光が伝搬する両媒質中での伝搬速度が異なるため、その境界を通過後にレーザー光の進行方向が変わる現象が起こす。また、同一媒質でも密度勾配、温度勾配、速度勾配などによってレーザー光の伝搬速度が変化する時に光波の進行方向も変わる[4]。模擬エンジン排気中に存在するこのような不均一性によって、レーザービームの伝搬先のスポットが揺れ、検知センサーから外れ、計測値の変動を起したと考えられる。このレーザービームのスポット揺れ現象をビームステアリング現象と定義する。

二つ目は検知センサーの受光面積の大きさが考えられる。今回使用したNO検知センサーの1mm角受光面に対して、NO₂検知センサーの受光面が5mm角と大きかった。ビームステアリング現象を考慮すると、検知センサーの受光面積が十分な大きさを持つことが要求される。

このビームステアリング現象は高いエンタルピーを持つ流れ場である航空エンジンの排気ノズル内のNO_xガス濃度の測定可否に対して重要なポイントになる。その発生がレーザービームの空間揺れに関連していることから、著者らは、放物面鏡を用いてその影響を抑えることを試みた。また、計測感度を上げるために、マルチパス光学系を設置し、比較実験を行った。その結果は図9に示す。図8にその光学系の概略を示す。レーザービームの揺れ空間をすべてカバーできる大きさの放物面鏡を検知センサーの前に設置し、揺れたレーザービームを検知センサーに集光させた。また、両凹面ミラーの間にレーザービームを多重反射させ、NOの場合は80回、NO₂の場合は12回反射させることにより、NO成分の吸収パスを40.5mに、NO₂成分のそれを6.5mまで延長した。図9に示すように、NO及びNO₂の測定値の変動幅は実用可能なレベルまで抑えられた。

7. 結論

本研究では、半導体レーザー吸収分光法を用いて非接触で燃焼排気中のNO、NO₂濃度の測定を確立するため、加熱セル及び模擬エンジン排気発生器によってNO、NO₂濃度計測を行い、次のような結論を得た。

- (1) 選定した吸収ラインにおいて、NO及びNO₂の検出限界は、常温でそれぞれ14.5ppmv-mと1ppmv-mで、800Kではそれぞれ30ppmv-mと3.7ppmv-mまでに上昇した。
- (2) 模擬エンジン排気を用いてCO₂の干渉影響がないことを確認した。
- (3) 対象成分濃度の測定値の再現性が良く、検定値に対する絶対誤差も0.7%以内と小さかった。
- (4) レーザービームの空間揺れに強く関連する現象（ビームステアリングという）の発生により生じた測定値の時間変動を放物面鏡の使用によって抑えた。

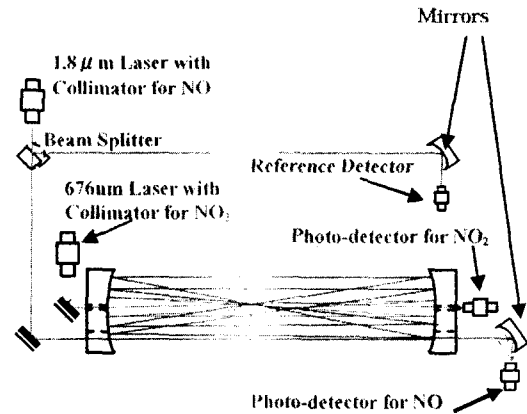


Fig.8. Typical optical multi-pass set-up

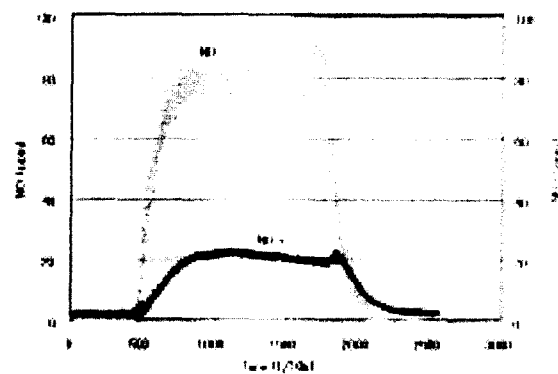


Fig.9. NO and NO₂ determination with the multi-pass cell having parabola mirrors at 430K, 1 atm, 40.5 m path for NO and 6.5 m for NO₂ path absorption.

参考文献

- [1]林茂, 平成12年度航空安全・環境適合技術研究に関する研究報告集, 航空宇宙技術研究所(2000), 41-44.
- [2]Hori, M., *Combust. Sci. Tech.*, 23 (1980), 133-133.
- [3]Rothman, L.S., *HITRAN-JavaHAWKS*, Ontar Corporation (2003).
- [4]Chu, B., *Laser Light Scattering*, 169 (1974).