

平成21年6月1日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2009

課題番号：19360094

研究課題名（和文） マイクロ燃焼における化学的消炎機構に関する研究

研究課題名（英文） On Chemical Quenching Mechanisms in Microscale Combustion

研究代表者

鈴木 雄二（SUZUKI, YUJI）

東京大学大学院工学系研究科・教授

研究者番号：80222066

研究成果の概要（和文）：

携帯型発電システムなどで注目されるマイクロ燃焼器では、火炎の消炎距離よりも狭い流路幅が用いられることが多い。本研究では、壁への熱損失により燃焼反応が失活する熱的消炎と、ラジカルが壁面で消滅する化学的消炎について、壁面材料、壁温の影響を定量的に評価した。石英製マイクロ燃焼器、位相ロック PLIF 計測システムの開発を行い、定常・振動火炎の消炎限界に関する系統的实验から、壁面が火炎に与える影響を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Micro combustors for portable power generation are of great interest for a high energy density with hydrocarbon fuels. In such systems, micro conduits smaller than the quenching distance of flame are usually employed. In the present study, we have examined quantitatively the effects of wall materials and wall temperature on two quenching phenomena; thermal quenching due to wall heat loss and chemical quenching due to destruction of radicals on the wall. Through developments of micro quartz combustors and a phase-locked OH-PLIF measurement system, we have elucidated the wall effect on flames in micro scale.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	8,700,000	2,610,000	11,310,000
2008年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2009年度	2,500,000	750,000	3,250,000
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：マイクロ燃焼、消炎距離、表面反応、レーザー計測、モデリング

1. 研究開始当初の背景

近年、携帯電子機器、小型医療・福祉機器、自立ロボットの発達に伴い、リチウムイオン電池に代わって炭化水素燃料から発電する数 W-数 10W 級の超小型エネルギー源が注目されている。産業界では、メタノール直接型燃料電池（DMFC）の開発が進められているが、単位面積当たりの発電量は $0.1\text{W}/\text{cm}^2$ 程度

にとどまる。一方、燃焼型の発電システム、すなわち、熱光・熱電発電システムは、燃料の種類が限定されず、 $1\text{W}/\text{cm}^2$ オーダーの発電が可能であり、補機がほとんど必要のないシステムとして超小型エネルギー源に適している。

マイクロ熱光・熱電発電システムでは、燃料の持つ化学エネルギーを熱エネルギーに

変換するためのマイクロ燃焼器が必要となる。特に、熱光発電システムでの発電密度・発電効率は燃焼器温度とともに向上するため、1200°C以上の高温が実現できる気相燃焼が望ましい。一方、気相燃焼では、消炎が問題となる。消炎には、熱的、化学的の2つのメカニズムがあることが知られている。従来のマイクロ燃焼器に関する研究では、熱的消炎の抑制に重点が置かれ、多孔質体やスィスロール燃焼器のように、超過エンタルピーによる保炎が検討されてきた。

しかし、最近、Masel & Shannon(2002)は、壁面の化学種の影響を調べ、化学的消炎機構の重要性を指摘している。彼らは、ステンレス、石英、アルミナ、コーディエライトで製作したマイクロ流路において、壁温が300°C前後と低いときには熱的消炎が支配的になるために材質の影響は無視できるのに対し、壁温が900°C以上になると、壁面材質によって消炎距離が10倍以上大きく変化することを示した。彼らは、燃焼部下流で気体を膨張させ、20Torr程度の低圧領域でのOHラジカルの分布をLIFにより計測し、壁面材料の影響を調べたが、壁面が不透明であったこともあり、計測の難しさから定量的かつ明確な説明を得ることはできなかった。

我々は、従来より、マイクロスケールでの触媒燃焼に取り組み、アルミの陽極酸化を用いたPd/ナノポーラスアルミナ触媒層の製作方法を確立し、ブタン燃焼において極めて高い活性を有することを明らかにした。また、マイクロ触媒燃焼のモデル化、および、マイクロセラミック触媒燃焼器の開発に取り組み、触媒燃焼においても100MW/m³と極めて高い燃焼密度を実現できることを示した。また、フラップ型マイクロアクチュエータ群による同軸噴流火炎の能動制御に取り組み、レーザー誘起蛍光(LIF)による計測から、フラップ動作周波数を適切に選ぶことで大規模渦構造が活性化し、混合および燃焼反応が活発になった結果、CO排出量を顕著に抑制できることを明らかにした。さらに、条件付OH₂ライン法による非定常火炎の温度測定法を開発し、色素レーザーおよび冷却CCDカメラを1セットのみ使用する比較的単純なシステムでありながら、火炎面の平均温度を十分高い精度で計測可能であることを示した。

2. 研究の目的

本研究では、マイクロ流路内における気相燃焼に対する壁面材料、壁温の影響を定量的に評価し、マイクロ燃焼器の設計に極めて重要な消炎限界について系統的な知識を得ることを目標とする。特に、光学的アクセスを可能とするマイクロ燃焼器の壁面材質として、石英(SiO₂)を用い、壁面の活性度、壁

温、圧力を変化させながら消炎距離を評価し、種々のパラメータの影響を定量化する。そして、LIFを用いたレーザー計測により、燃焼器内部のOH分布、火炎温度を測定し、マイクロ流路内の気相燃焼における、消炎のメカニズムを明らかにすることを目的とする。さらに、得られた知識をもとに、安定かつ高燃焼密度を実現するマイクロ燃焼器の設計に具体的な指針を与えることを目指す。

3. 研究の方法

(1)マイクロ燃焼テストベンチの構築

壁温を系統的に変化させながら、消炎距離を変化させるため、図1に示すようなマイクロ燃焼テストベンチを構築した。すなわち、マイクロ燃焼器の壁面材質として光学計測が可能な石英(SiO₂)を選び、燃焼流路の幅を0.7, 1.0, 1.5mmと系統的に変化させた燃焼器を製作した。壁面には黒色石英を融着させ、両側から赤外線ランプで加熱することにより、壁面温度を300°C程度から900°C程度まで変化させた。壁温は壁面から0.5mmの位置に挿入した熱電対でモニターするとともに、スポット径の小さい放射温度計を用いて温度分布を計測した。

実験はメタン-空気予混合燃焼を対象とし、壁温、当量比、混合気流速を系統的に変化させ、保炎可能領域のマッピングを行った。また、OH自発光を高速度ICCDカメラにより撮影し、振動火炎の観察を行った。

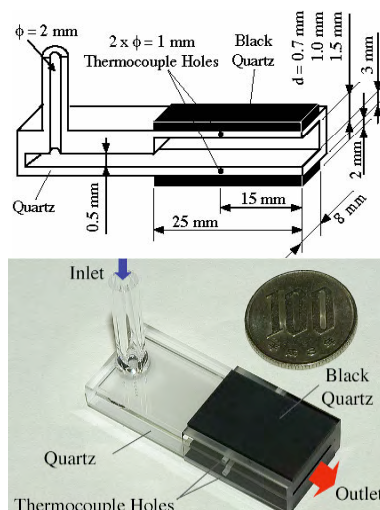


図1 石英製マイクロ燃焼器

(2)壁面の化学種が消炎距離に与える影響の評価

熱的境界条件を一定に保ち、壁面の化学種のみを変化させるため、金属薄膜を蒸着させた石英平板プレートを2枚用意し、平板間隔を変化させながらプレート下部にブンゼン火炎を近づけ、消炎距離を計測した。この際、石英プレートに融着させた黒色石英を赤外

線ランプで加熱することによって壁温を変化させた。金属薄膜は、アークプラズマガンにより成膜し、極めて平滑な厚さ 100nm の Cr, Ni 膜を形成させた。

(3)位相ロック PLIF 計測システムの開発

火炎の状況は、CH ラジカルの自発光計測、OH ラジカルの LIF 計測により、定量的に調べた。CH ラジカルは 431nm のバンドパスフィルタを用い、PMT により計測した。OH ラジカルの励起光としては A2S+←X2P(1,0)バンドの Q1(8)吸収線に相当する 283.553nm の波長を用いた。

LIF 計測時には、色素レーザーからの紫外パルス光を光学系により 0.1mm 程度まで絞った後に、シート光として流路側壁から照射した。画像は、冷却 ICCD カメラで取得し、デジタル処理を行った。

本研究の振動火炎の周波数は 50Hz 以上であり、時系列情報を得ることは難しい。また、流路が狭いために相対的にノイズが大きく、信頼性のあるデータ取得には LIF 画像を位相平均する必要がある。そのため、振動火炎の周期に合わせて位相ロックを行う、位相ロック PLIF 計測システムの開発を行った。

図 2 に、システムの概要を示す。

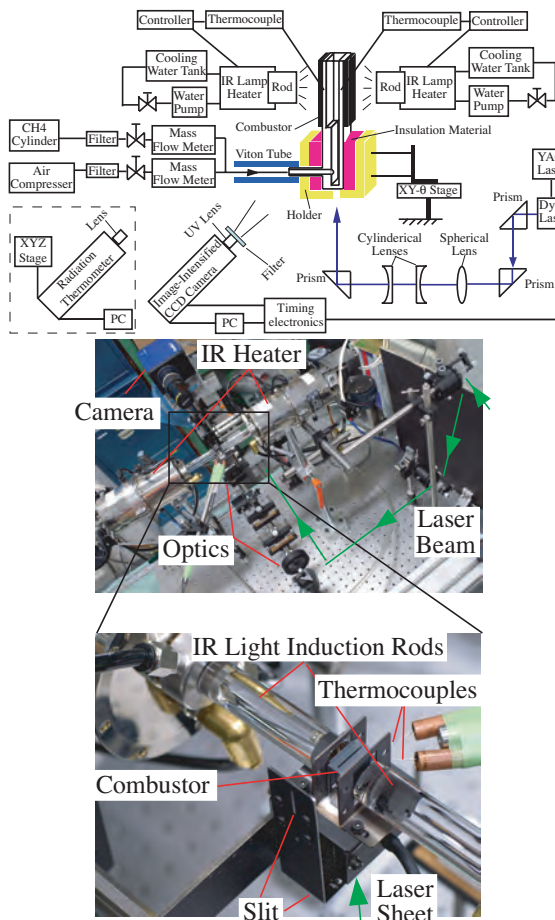


図 2 位相ロック PLIF 計測システム

(4) 振動火炎の火炎温度計測

燃焼状態の評価には、火炎温度の計測が重要であるが、マイクロ燃焼器での熱電対などの挿入は場を見出す可能性が高く、非接触測定が望ましい。そこで、本研究ではこれまで開発してきた条件付 OH 2 ライン法を用いた。

通常、OH 2 ライン法では、2つの独立した励起光源、ICCD カメラを用いて、異なる励起波長に対する蛍光強度の比から温度を求める。しかし、色素レーザー、ICCD カメラはいずれも極めて高価であり、また、励起光ビーム、測定領域のアライメントに手間がかかるなどの欠点がある。条件付 OH 2 ライン法では、OH ラジカルの分布から火炎面の位置を抽出し、火炎面の位置における OH ラジカルの平均濃度を求める。これを 2つの異なる励起波長で行うことにより、火炎面での温度が求まる。励起光波長は、蛍光強度の温度特性などを考慮し、P1(7), Q2(11)に相当する 285.005 nm, 285.073 nm を選んだ。前述の位相ロック PLIF により得られる火炎面近傍の OH 濃度から火炎温度を算出した。

(5)全反射を用いた壁面近傍の OH 計測の試み

通常の LIF では、壁面での反射によって、壁近傍の OH 濃度を計測することは不可能である。本研究では、壁面ごく近傍の OH ラジカル濃度を計測するため、内壁で励起光を全反射させ、近接場光で表面の数 10nm の計測を行うシステムを構築した。そして、アセトン蒸気の LIF 濃度計測などに適用して計測精度の評価実験を行った。

4. 研究成果

(1)マイクロ燃焼テストベンチの構築

図 3 に石英チャネル内の定常火炎と振動火炎の OH 自発光像を示す。定常火炎では、バルク平均流速に応じて火炎位置が固定されるが、過濃側では振動火炎が生じ、チャネル出口で着火し、火炎面が上流に伝搬した後、消炎し、再び出口で着火を繰り返す。図 4 は、チャネル幅 0.7mm の流路において、異なる壁面温度に対して得られた保炎可能領域である。壁温が上がると保炎可能領域が拡大することが示される。また、チャネル幅が狭くなると保炎可能領域が縮小し、保炎領域が存在するための臨界壁面温度が増大する。

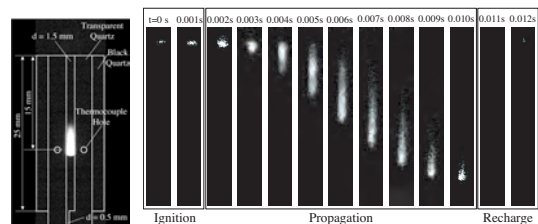


図 3 石英チャネル内の定常火炎 (左) と振動火炎 (右) の OH 自発光像

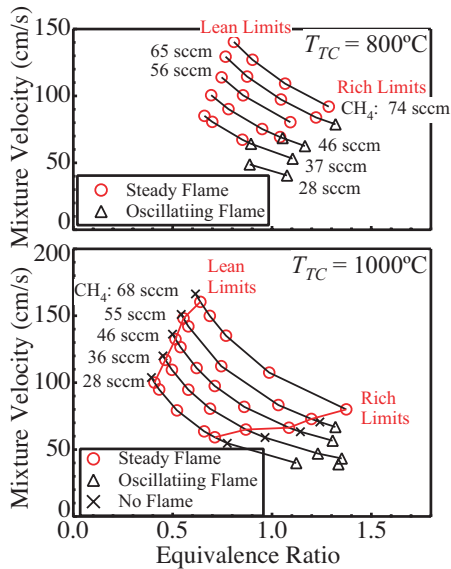


図4 保炎可能領域マップ (チャンネル幅 0.7mm)

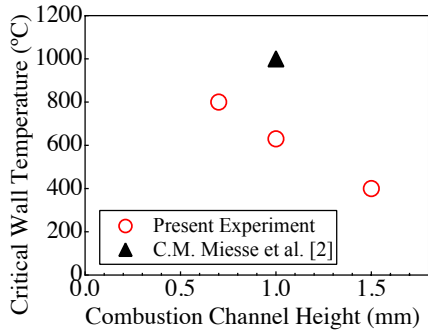


図5 チャンネル幅と臨界壁面温度の関係

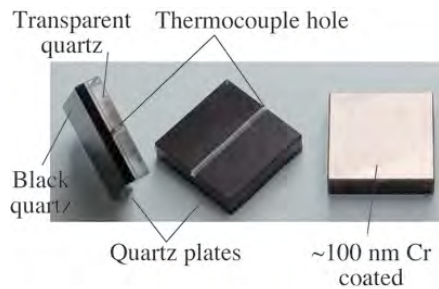


図6 消炎距離測定用石英プレート

(2)壁面の化学種が消炎距離に与える影響の評価

図6に、実験に用いた石英プレートを示す。石英表面から 0.5 mm の位置に熱電対を挿入して温度制御を行った。図7にメタン-空気系に対する消炎距離と壁面温度の関係を示す。不活性な石英表面では、壁温を上げていくに従って消炎距離は減少し、1000°Cでは 0.7 mm となる。一方、Cr, Ni 表面の場合も、石英表面よりは消炎距離がやや大きいのが、やはり壁温上昇とともに減少し、石英表面との違いは小さい。従って、化学的消炎効果は存在するが、熱的影響が支配的であることが明らかになった。

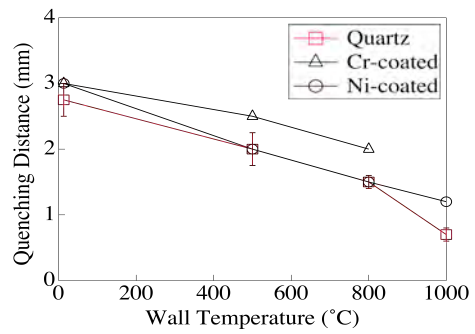


図7 メタン-空気消炎距離の計測結果

(3)位相ロック PLIF 計測システムの開発

図8に、 $T_{TC} = 800\text{ }^\circ\text{C}$ 、 CH_4 flow rate = 70 sccm、 $\phi = 1.5$ (平均流速 0.357 m/s)における、位相ロック OH-PLIF によって得られた振動火炎の画像を示す。図8aの単一画像ではノイズの影響が大きいのが、200枚のアンサンブル平均 (図8b)、6x6のビンニング処理を行うことによって、ランダムノイズの少ない画像を得ることができる。

図9に、流路出口から 11 mm, 12 mm, 14 mm における同一位相の位相平均 PLIF 画像を示す。下流側では側壁近傍に2つのOHピークが、上流側では中央に単一のピークが得られ、火炎面が曲率を持つことが判る。

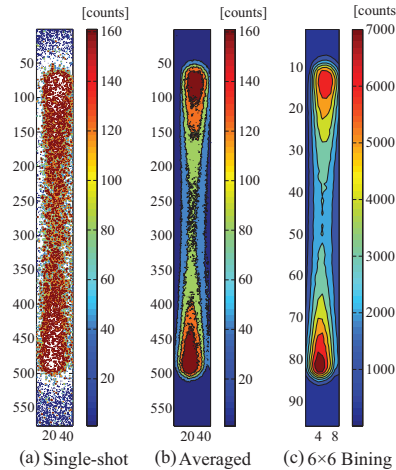


図8 位相ロック PLIF 画像

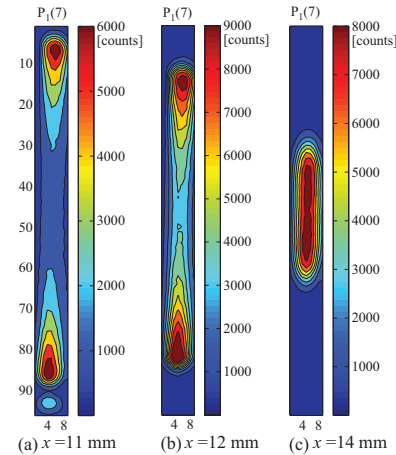


図9 位相平均 PLIF 画像の流れ方向変化

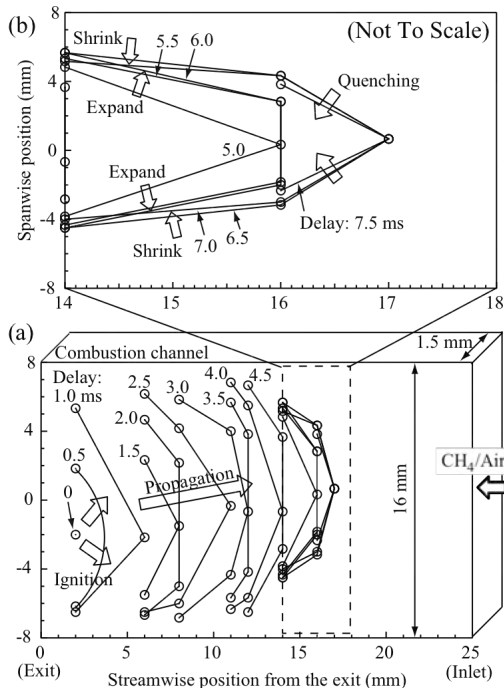


図 10 振動火炎における火炎面の伝播と消炎過程

図 10 に、位相ロック PLIF 画像から得られた、振動火炎における流路出口での点火、火炎面上流への伝播、消炎の過程を示す。過濃条件であるため、流路出口で周囲空気と混合することにより点火し、火炎面は流路内を上流側に進む。この際、壁温は側壁近傍の方がやや低いため、火炎の温度も低いと考えられ、燃焼速度の違いから側壁近傍がやや遅れて進行し、曲率を持った火炎面となる。火炎面が進行するに従って火炎面の速度は減少し、側壁近傍から火炎面が消滅する。そして、中心部分のみに火炎面が残って最終的に消炎に至る。位相ロック PLIF 計測により、これらのプロセスを初めて明らかにすることができた。

(4) 振動火炎の火炎温度計測

図 11 に、2 ライン OH 法により求めた火炎面温度分布を示す。図中、各時間遅れでの流れ方向位置は図 10 の火炎面に対応している。この図から、火炎の伝搬過程で火炎温度が一旦上昇し、その後下降すること、側壁と中心の中間位置の温度が中心付近よりも高いこと、消炎直前には中心付近の温度が上昇することが示される。図 12 の火炎温度の時系列変化からも、温度上昇と下降が示されるが、これは自発光計測から算出した火炎面速度(図 13)の加速・減速に対応している。

以上のところから、本研究で対象とした振動火炎では、熱的な影響が支配的であることが示唆される。

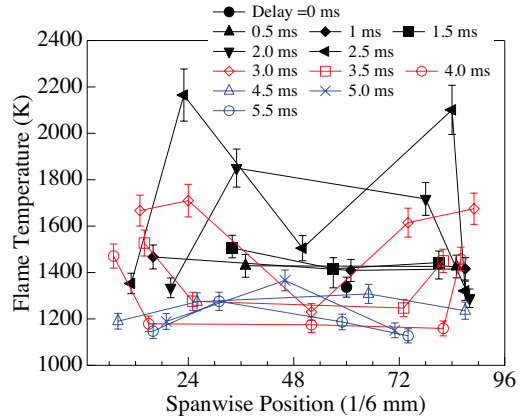


図 11 火炎面温度の計測結果

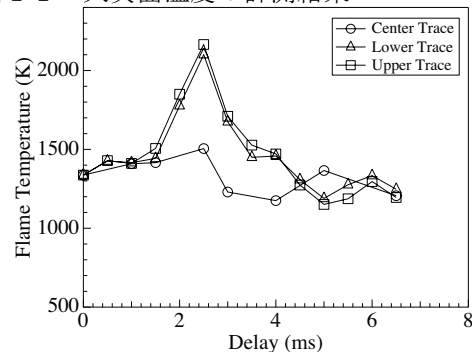


図 12 火炎面の時系列温度変化

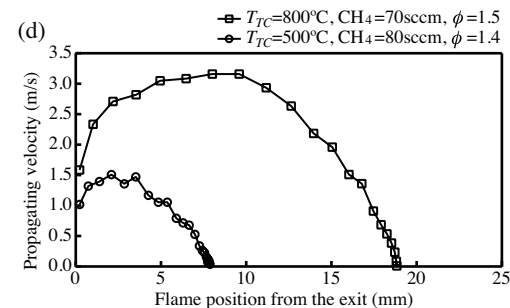


図 13 OH 自発光計測から算出した火炎面速度

(5) 全反射を用いた壁面近傍の OH 計測の試み

図 14 に石英プリズム内でレーザー光を全反射させ、表面にアセトンをした時の蛍光強度を示す。表面近傍の強い蛍光が得られているが、表面から 1mm オーダーまで浸透しており、エバネセント波による励起とは下考えにくい。今後さらなる検討が必要である。

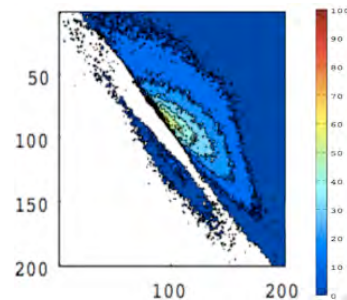


図 14 石英プリズム近傍のアセトン蛍光強度分布

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Experimental Study of Micro-scale Premixed Flame in Quartz Channels,” Proc. Comb. Inst., Vol. 32, Issue 2, (2009), pp. 3083-3090.

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Quenching Mechanism Study of Oscillating Flame in Micro Channels Using Phase-locked OH PLIF,” Proc. Comb. Inst., Vol. 33, (2011), in press.

〔学会発表〕(計9件)

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Flame Propagation and Quenching in Ultra-Thin Quartz Combustors,” Proc. 7th Int. Workshop on Micro and Nanotechnology for Power Generation and Energy Conversion Applications (PowerMEMS 2007), Freiburg, (2007), pp. 265-268.

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Microscale Gas-Phase Combustion in Ultra-Thin Quartz Channels,” 日本機械学会熱工学コンファレンス, 京都, (2007), pp. 173-174.

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Experimental Study of Micro-scale Premixed Flame in Quartz Channels,” 32nd Int. Symp. Combustion (Combustion 2008), Montreal, (2008), Book of Abstract, p. 18, 1E09.

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “On Flame-Wall Thermal-Coupling in Micro Combustors,” Proc. 7th JSME-KSME Thermal and Fluid Engineering Conf. (TFEC-7), Sapporo, (2008), C125, 2pp.

Fan・鈴木・笠木, “石英チャンネル内マイクロ予混合燃焼における壁面の熱的影響,” 第45回日本伝熱シンポジウム, つくば, (2008), pp. 225-226.

Fan・鈴木・笠木, “壁温を制御した超薄型石英チャンネルにおける振動火炎に関する研究,” 第46回日本伝熱シンポジウム, 京都, (2009), pp. 53-54.

Fan・鈴木・笠木, “位相ロック OH-PLIF によるマイクロ流路内振動火炎の非定常温度計測,” 第47回日本伝熱シンポジウム, 札幌, (2010), 発表予定.

Fan, Y., Suzuki, Y., and Kasagi, N., “Quenching Mechanism Study of Oscillating Flame in Micro Channels Using Phase-locked OH PLIF,” 33rd Int. Symp. Combustion (Combustion 2010), Beijing, (2010), to be presented.

Fan, Y., Lin, W., Suzuki, Y., and Kasagi, N.,

“Investigation of Wall Chemical Effect on Flame Quenching,” 33rd Int. Symp. Combustion (Combustion 2010), Beijing, (2010), to be presented.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

○取得状況(計0件)

〔その他〕

URL <http://www.mes1.t.u-tokyo.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 雄二 (SUZUKI, YUJI)

東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号: 80222066

(2) 研究分担者

笠木 伸英 (KASAGI, NOBUHIDE)

東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号: 80107531

(3) 連携研究者 なし