

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22340170

研究課題名（和文） 非平衡プラズマによる燃焼化学の制御

研究課題名（英文） Control of combustion chemistry with the help of nonequilibrium plasma

研究代表者

佐々木 浩一（SASAKI KOICHI）

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：50235248

研究成果の概要（和文）：予混合ガスバーナー火炎にマイクロ波を照射すること、および、予混合ガスバーナー火炎に誘電体バリア放電を重畳することにより、火炎中の電子の温度がガスの温度より高い非平衡状態を作り出し、これにより、通常の火炎とは異なる非平衡燃焼化学反応状態が実現できることを示した。

研究成果の概要（英文）：We have realized nonequilibrium combustion chemistry with the help of nonequilibrium plasmas, where the temperature of electrons is much higher than the temperatures of atomic/molecular species. We used the irradiation of microwave and the superposition of dielectric barrier discharge onto a premixed gas burner flame for realizing the nonequilibrium combustion states.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2011年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2012年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
年度			
年度			
総計	13,000,000	3,900,000	16,900,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：プラズマ支援燃焼，非平衡燃焼化学反応，電子エネルギー，マイクロ波，誘電体バリア放電，電子加熱，予混合バーナー火炎，ラジカル密度

1. 研究開始当初の背景

化石燃料由来の二酸化炭素の90%以上が燃焼を通じて排出されていることから、燃焼技術の高度化は低炭素社会の実現に不可欠である。従来の燃焼は熱平衡下での化学反応現象である。燃焼科学は古くからの学問で、これまでにかなり徹底的に研究された分野であることから、熱平衡下での化学反応現象という制約の範囲内で考える限り、燃焼技術において革新的なイノベーションは期待しにくいものと考えられた。

一方、材料プロセッシングなどの分野では、電子の温度がガス温度より桁違いに高い非平衡プラズマを応用する技術が発展している。非平衡プラズマでは、エネルギーの高い電子が中性分子に衝突することにより化学反応性の高いラジカルが生成され、プラズマ全体が高い化学反応性を持つ。

本計画を提案した当時、欧米においては、非平衡プラズマの持つ高い化学反応性を燃焼ガスに適用し、熱平衡下とは異なる非平衡燃焼化学反応状態を実現しようとする研究

が台頭しており、プラズマ支援燃焼という言葉が生まれつつあった。一方、我が国においては、非平衡プラズマを燃焼技術に応用しようとする研究はあまり行われていなかった。また、自動車エンジン内でプラズマを生成することにより希薄燃料燃焼を実現し、自動車の走行燃費を向上させることを目指すNEDOプロジェクトが進められていた(研究代表者も関与)ものの、プラズマが燃焼におよぼす効果の基礎的側面に関する理解は著しく不足しており、実用化研究を科学的に正しい方向で効率的に進めるためにも、プラズマ支援燃焼に関する基礎研究を進める必要があった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、火炎の電子加熱または火炎と大気圧非平衡プラズマとの重畳により、電子によって駆動された非平衡燃焼化学反応状態を実現し、その基礎的学理を深めることにある。具体的には、火炎の電子エネルギー分布とガス温度との間に非平衡性を発現させるための方法を開発すること、火炎の電子エネルギー分布に発現する非平衡性を定量的に把握すること、および、火炎の電子エネルギー分布の変化が燃焼化学反応をどのように変化させるかをできるだけミクロな視点から定量的に解明し、非平衡燃焼の学理を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 予混合バーナー火炎へのマイクロ波照射による電子加熱実験

火炎はそれ自身弱い電離状態にあるプラズマであり内部に電子を含んでいる。プラズマ支援燃焼の研究では、火炎に様々なタイプのプラズマを重畳する実験が行われているが、本研究では、火炎がそれ自身プラズマであることに着目し、放電を生じずに火炎内の電子を加熱することにより高エネルギー電子を発生させ、燃焼化学反応に対する高エネルギー電子の効果を調べたほうが基礎研究

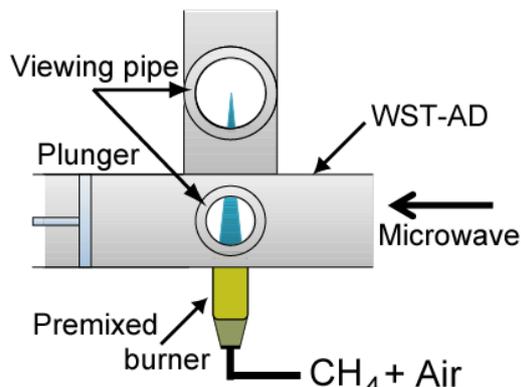


図1 予混合バーナー火炎へのマイクロ波照射実験装置

としてより効果的であると考えた。

図1は予混合バーナー火炎に周波数 2.45 GHz のマイクロ波を照射することにより火炎中の電子を加熱する実験装置を示している。東芝サイズの導波管のH面に予混合バーナーを設置し、火炎は導波管を貫通している。燃焼にはメタンと乾燥空気の混合ガスを用い、完全燃焼時の化学反応出力は331 Wである。導波管の側面にのぞき穴を設け、導波管内の火炎を観察した。導波管を貫通した火炎先端部も別の場所から観察した。導波管はプランジャーで終端されており、火炎の位置で最も強い定在波電場となるようにプランジャーの位置を調整した。マイクロ波電力は300 Wとした。反射マイクロ波はEHチューナーで再度火炎の方向に戻され、マイクロ波電源に戻るマイクロ波反射電力は20 W以下に調整されているが、マイクロ波部品が強く加熱されていることから、火炎に吸収されるマイクロ波電力は僅かと考えている。定在波電場を仮定したとき、火炎の位置でのマイクロ波電場の大きさは302 V/cmである。

(2) 予混合バーナー火炎への誘電体バリア放電重畳実験

次に、予混合バーナー火炎に大気圧非平衡プラズマの一種である誘電体バリア放電を

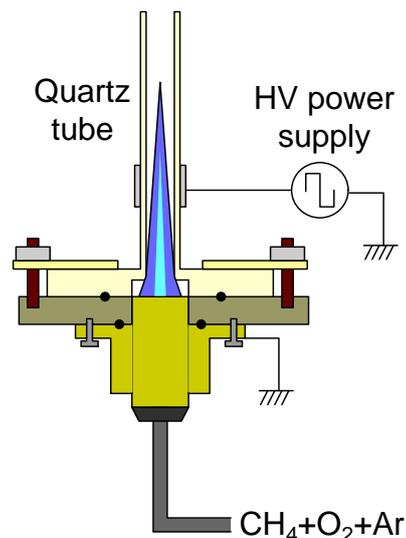


図2 予混合バーナー火炎に誘電体バリア放電を重畳するための実験装置

重畳するために図2に示す実験装置を構築した。図2に示す装置では、絶縁体台座にバーナーノズルを取り付け、ノズル上方に形成される予混合火炎を石英管で覆った。石英管の外側にアルミニウム製の円筒電極を設置し、円筒電極に低周波・高電圧の方形波交流電源を接続した。バーナーノズルを電気的に接地することにより、石英管の内側に火炎を軸方向に横切る電流路を有する誘電体バリア放

電を生成した。レーザーを用いたラジカル密度の計測を行う場合には、石英管を上方に持ち上げ、バーナーノズルと石英管下端の間に石英管に覆われない空間を作って、その部分にレーザー応用ラジカル計測技術を適用した。

4. 研究成果

(1) マイクロ波照射による電子加熱の実験的証拠

予備実験の段階において、図1の装置を用いて予混合バーナー火炎にマイクロ波を照射すると、燃焼速度が増加することが観測されていた。このとき、火炎中のOHおよびCHラジカルの発光スペクトルから評価される回転温度に変化がないことから、燃焼速度の増加は熱的な効果によるものではなく、マイクロ波によって加熱された電子に起因する非平衡効果によるものと推測されたが、電子加熱を示す実験的証拠は得られていなかった。本計画を開始した後、火炎中の窒素分子の2nd positive systemの発光強度を測定したところ、通常の火炎では観測されない2nd positive systemの発光がマイクロ波の照射により明瞭に観測されることがわかった。窒素分子の2nd positive systemを発光させるには10 eV以上のエネルギーを持つ電子が必要であることから、マイクロ波の照射によって火炎中の電子は加熱されており、それに金する非平衡効果によって燃焼速度が増加したことが確かめられた。

(2) 熱平衡燃焼と非平衡燃焼との間の遷移現象

予混合バーナー火炎に照射するマイクロ波をパルス化し、マイクロ波照射開始直後およびマイクロ波遮断直後における発光強度の過渡的变化を調べた。図3は窒素分子の2nd positive systemの発光強度の時間変化をあらわしている。2nd positive systemの発光強度はマイクロ波照射後時定数0.35 msで指数関数的に増加し、マイクロ波遮断後時定数0.01 ms未満で急速に低下した。0.01 ms以下の立下り時定数は、マイクロ波照射による電子加熱(冷却)の時定数をあらわすものと考えられる。一方、0.35 msの立上がり時定数は、加熱された電子の寿命をあらわしているものと考えられる。加熱された電子の寿命は輸送による損失と気相反応による損失の二つの過程で決まるが、バーナーのノズルの形状からガス流速を求め、観測領域にガスが滞在する時間の逆数として輸送損失の周波数を見積もると約 $2 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ となった。実験で観測された加熱された電子の損失周波数は約 $3 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ であるので、加熱された電子は $1 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ の周波数で気相において失われていると考えられる。加熱された電子の気相損失

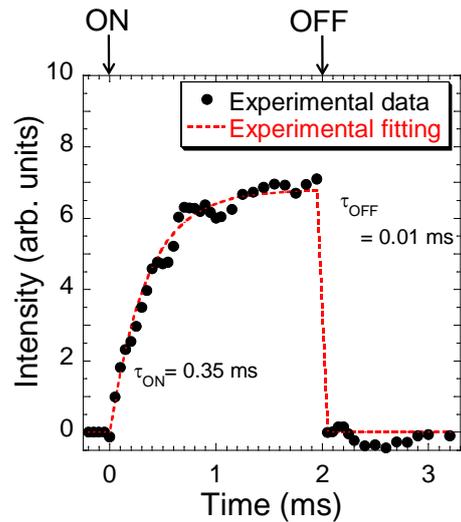


図3 予混合バーナー火炎へのパルスマイクロ波照射において観測された窒素分子2nd positive systemの発光強度の時間変化。

は分子等との非弾性衝突を意味し、これによってラジカル等が生成されて燃焼化学反応を非平衡化しているものと考えられる。

同様の実験をOHおよびCHラジカルの発光強度についても実施した。OHラジカルおよびCHラジカルの発光強度は立上がりおよび立下り時定数がともに0.35 msであった。これらの値は高エネルギー電子との衝突によって過剰に生成されたOHラジカルおよびCHラジカルの損失周波数をあらわすものと考えられ、窒素分子の2nd positive systemの発光強度の場合と同様の考察から、非平衡燃焼化学反応で重要な役割を果たすこれらのラジカルの気相反応周波数は $1 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ 程度であるものと見積もられた。

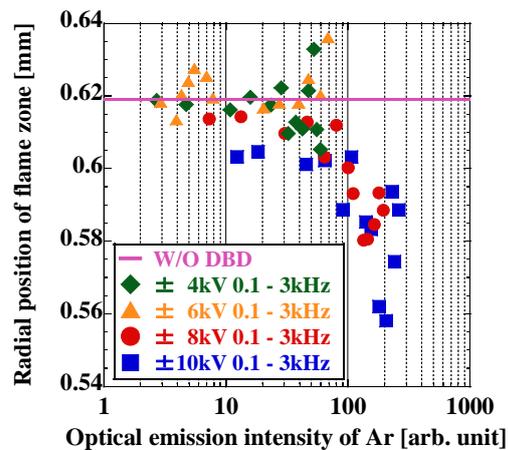


図4 誘電体バリア放電重畳予混合バーナー火炎における火炎帯の半径とアルゴンの発光強度との関係。

(3) 高エネルギー電子による燃焼速度の制御
 誘電体バリア放電を予混合バーナー火炎に重畳する実験では、メタンと乾燥空気の混合ガスを燃焼に用いると、放電に起因する窒素分子の 2nd positive system の発光が OH ラジカルの発光スペクトル計測における雑音となったため、アルゴン・酸素・メタンの混合ガスを燃焼に用いた。アルゴンの発光には 10 eV 以上のエネルギーを持つ電子が必要であり、通常の火炎ではアルゴンの発光は観測されなかったが、誘電体バリア放電を重畳した火炎ではアルゴンの発光が強く観測され、火炎内に高エネルギー電子が供給されたことが確認できた。

誘電体バリア放電を重畳した場合でも、火炎長の短縮が明瞭に観測され、燃焼速度が増加するという結果が得られた。このとき、OH ラジカルおよび CH ラジカルの発光スペクトルからそれらの回転温度を評価すると、OH ラジカルの回転温度は誘電体バリア放電の重畳によってほとんど変化せず、CH ラジカルの回転温度は誘電体バリア放電の重畳によってむしろ低下した。CH ラジカルの回転温度の低下は、誘電体バリア放電重畳予混合バーナー火炎における CH ラジカルの生成反応が通常の熱平衡火炎の場合と全く異なっていることを示唆するものと考えられる。

火炎長の短縮は同時に火炎帯の半径の縮小を意味するので、火炎の発光強度分布の観測から火炎帯の半径を算出し、アルゴンの発光強度の関数として整理したところ、図 4 に示す結果が得られた。縦軸は火炎帯の半径であり、それが小さいほど火炎長が短縮していて燃焼速度の増加が著しいことをあらわす。横軸は時間積分したアルゴンの発光強度であり、火炎における高エネルギー電子の量を反映する。電源に用いた低周波高電圧の電圧および周波数を変えることにより様々な誘電体バリア放電を生成したが、実験条件の変化のさせ方にかかわらず、燃焼速度の増加は火炎中の高エネルギー電子の量でほぼ制御されることを示す結果が得られた。即ち、誘電体バリア放電を重畳した予混合バーナー火炎は非平衡燃焼化学反応状態にあり、高エネルギー電子の量が燃焼化学反応を支配する最も重要なパラメータとなっていることが示された。

(4) 非平衡燃焼状態における OH ラジカル密度計測

誘電体バリア放電が重畳された予混合バーナー火炎中の OH ラジカル密度をキャビティリングダウン吸収分光法およびレーザー誘起蛍光法により測定した。その結果、OH ラジカル密度は誘電体バリア放電の重畳により著しく増加することはなく、むしろ、僅かに低下する時間および位置があるという

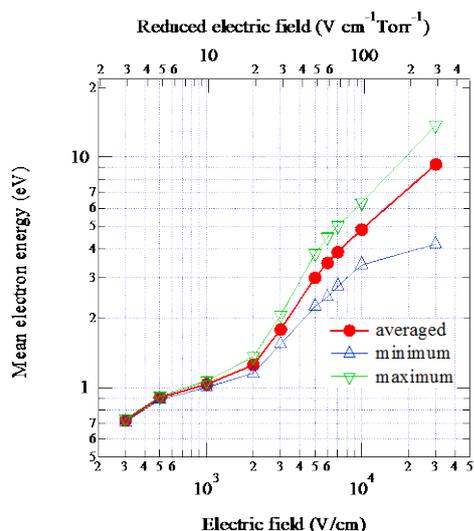


図 5 マイクロ波が照射されたメタン・乾燥空気の混合ガスの平均電子エネルギーをモンテカルロ法で推定した結果。

結果が得られた。これまで、プラズマ支援燃焼の研究では、放電の重畳により OH ラジカル密度が著しく増加し、燃焼化学反応のレートを増加させていると漠然と考えられてきたが、本研究の結果は、生成反応と消滅（酸化）反応のバランスで決まる OH ラジカル密度は放電の重畳で必ずしも増加していないにもかかわらず燃焼速度が増加することを示すものである。

(5) マイクロ波照射された火炎の電子エネルギー分布関数の推定

高エネルギー電子が重要な役割を果たす非平衡燃焼化学反応状態についての定量的理解を得るためには、火炎の電子エネルギー分布関数を知る必要がある。火炎の電子エネルギー分布関数を測定するのは極めて困難であるため、本研究では、マイクロ波が照射されたメタン・空気混合ガス（プラズマ）中における電子スオームパラメータをモンテカルロ法により求めた。

図 5 はモンテカルロ法で計算された電子エネルギー分布関数から求めた電子の平均エネルギーを示している。横軸はマイクロ波の電界であり、火炎の温度を考慮して求めた換算電界も同時に示している。3 種の曲線は、交番するマイクロ波電界の 1 周期における電子エネルギーの最大・平均・最小値をあらわしている。マイクロ波電界が 2 kV/cm を超えると電子の加熱が顕著となり、電子エネルギーは急激に増加している。実験で用いたマイクロ波電力 300 W に対応する導波管内のマイクロ波電界は 302 V/cm であるが、これはバーナーノズルを設置しない理想導波管内の電界であり、実際には、バーナーノズルの突起部などにおいて局所的に強い電界が存在するものと考えられる。実験では 300 W を

超えるマイクロ波電力においてバーナーノズルの端部などで放電が生じたが、図 5 からはメタン・酸素・窒素の混合ガスでは 5 kV/cm を超えるマイクロ波電界で放電が生じることが予測される。したがって、導波管内のバーナーノズル付近で局所的に生じた 5 kV/cm 程度の電界により火炎中の電子が強く加熱され、非平衡燃焼化学反応状態が発現したものと考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

1. 上杉喜彦, 佐々木浩一, 「定常予混合バーナーの燃焼におよぼすプラズマ支援効果」, プラズマ・核融合学会誌 89, 225 (2013) (査読無, 解説依頼論文)
2. K. Sasaki and K. Shinohara, “Transition from equilibrium to nonequilibrium combustion of premixed burner flame by microwave irradiation”, J. Phys. D: Appl Phys. 45, 455202 (2012) (査読有)
DOI: 10.1088/0022-3727/45/45/455202
3. M. ElSabbagh, S. Kado, Y. Ikeda, and K. Sasaki, “Measurements of rotational temperature and density of molecular nitrogen in spark-plug assisted atmospheric-pressure microwave discharges by rotational Raman scattering”, Jpn. J. Appl. Phys. 50, 076101 (2011) (査読有)
DOI: 10.1143/JJAP.50.076101

[学会発表] (計 30 件)

1. 財満 和典, 石亀 裕晃, 佐々木 浩一, 「二次元レーザー誘起蛍光法によるプラズマ支援予混合火炎内の OH ラジカル密度計測」, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学, 2013 年 3 月)
2. 財満和典, 富岡智, 佐々木浩一, 「キャビティレーザリングダウン吸収分光法によるプラズマ支援バーナー火炎中の OH 密度測定におけるミラー径の影響」, 第 30 回プラズマプロセッシング研究会 (アクトシティ浜松, 2013 年 1 月)
3. Haruaki Akashi, “Modeling of Plasma Assisted Combustion”, 65th Gaseous Electronics Conference, AT&T Conference Center, Austin, USA, 2012 (招待講演)
4. K. Zaima and K. Sasaki, “Measurement of OH radical density in dielectric barrier discharge enhanced premixed burner flame”, 65th Gaseous Electronics Conference, AT&T Conference Center, Austin, USA, 2012
5. K. Sasaki and K. Shinohara, “Time

constants in the transition between equilibrium and nonequilibrium combustion states of premixed burner flame irradiated by pulsed microwave”, 65th Gaseous Electronics Conference, AT&T Conference Center, Austin, Austin, USA, 2012

6. K. Zaima and K. Sasaki, “Measurement of OH radical density in premixed burner flame with superposition of dielectric barrier discharge using cavity-ringdown absorption spectroscopy”, 11th Asia Pacific Conference on Plasma Science and Technology, Kyoto University, Kyoto, Japan, 2012
7. K. Sasaki, “Control of combustion chemistry with the help of nonequilibrium plasmas”, 11th Asia Pacific Conference on Plasma Science and Technology, Kyoto University, Kyoto, Japan, 2012 (招待講演)
8. 財満 和典, 佐々木 浩一, 「近赤外キャビティレーザリングダウン吸収分光法を用いた誘電体バリア放電支援予混合バーナー火炎内の OH ラジカル密度計測」, 第 73 回応用物理学会学術講演会 (愛媛大学, 松山大学, 2012 年 9 月)
9. 明石治朗, 佐々木浩一, 「Simulation of Plasma Assisted Combustion (2): Electron energy distribution functions in methane, oxygen and argon mixture gas」, 第 59 回応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学, 2012 年 3 月)
10. 財満 和典, 河野 明廣, 佐々木 浩一, 「誘電体バリア放電から供給される高エネルギー電子による予混合バーナー火炎内の燃焼反応活性化」, 第 59 回応用物理学関係連合講演会 (早稲田大学, 2012 年 3 月)
11. 財満 和典, 佐々木 浩一, 「誘電体バリア放電重畳予混合バーナー火炎の燃焼反応変化のメカニズム」, 第 47 回応用物理学会北海道支部/第 8 回日本光学会北海道地区合同学術講演会 (北海道大学, 2012 年 1 月)
12. 明石治朗, 吉永智一, 佐々木浩一, 「マイクロ波照射による空気メタン予混合ガス火炎中の電子の挙動」, Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂, 2011 年 11 月)
13. 財満 和典, 明石 治朗, 河野 明廣, 佐々木 浩一, 「誘電体バリア放電重畳予混合バーナー火炎における過渡現象」, Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂, 2011 年 11 月)
14. 佐々木 浩一, 「プラズマ科学から燃焼工

- 学へのアプローチ：プラズマ支援燃焼」, 応用物理学九州支部シンポジウム (かんばんの宿柳川, 2011年11月) (招待講演)
15. H. Akashi, K. Sasaki, and T. Yoshinaga, "Modeling of electron behaviors under microwave electric field in methane and air pre-mixture gas plasma assisted combustion", 64th Gaseous Electronics Conference, Salt Palace Convention Center, Salt Lake City, USA, 2011
 16. K. Zaima, N. Takada, and K. Sasaki, "Effect of the superposition of a dielectric barrier discharge onto a premixed gas burner flame", 64th Gaseous Electronics Conference, Salt Palace Convention Center, Salt Lake City, USA, 2011
 17. K. Sasaki, "Effect of energetic electrons on combustion of premixed burner flame", 64th Gaseous Electronics Conference, Salt Palace Convention Center, Salt Lake City, USA, 2011 (招待講演)
 18. 財満 和典, 高田 昇治, 河野 明廣, 佐々木 浩一, 「予混合バーナー火炎への誘電体バリア放電重畳による燃焼反応の変化」, 第 72 回応用物理学学会学術講演会 (山形大学, 2011年9月)
 19. K. Zaima, K. Takada, and K. Sasaki, "Control of combustion reactions in a premixed gas burner flame by the superposition of a dielectric barrier discharge", 第 24 回プラズマ材料科学シンポジウム (大阪大学, 2011年7月)
 20. K. Sasaki, H. Akashi, and Y. Ikeda, "Possibility of combustion control with the help of nonequilibrium plasma: plasma-assisted combustion", 第 24 回プラズマ材料科学シンポジウム (大阪大学, 2011年7月) (招待講演)
 21. 明石 治朗, 佐々木 浩一, 「プラズマ支援燃焼における基礎シミュレーション・マイクロ波照射メタン空気予混火炎について」, 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (神奈川工科大学, 2011年3月)
 22. 財満 和典, 高田 昇治, 河野 明廣, 佐々木 浩一, 「予混合バーナー火炎への誘電体バリア放電重畳による燃焼速度増加のメカニズム」, 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (神奈川工科大学, 2011年3月)
 23. K. Zaima, N. Takada, A. Kono, and K. Sasaki, "Enhancement of burning velocity in premixed gas burner flame by the superposition of a dielectric barrier discharge", 4th International Conference on Plasma Nanotechnology and Science, Takayama Public Cultural Hall, Takayama, Japan, 2011
 24. K. Sasaki, K. Shinohara, and N. Takada, "Enhancement of burning velocity in premixed burner flame due to electron heating by microwave irradiation", 49th AIAA Aerospace Sciences Meeting including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition, Orlando World Center, Orlando, USA, 2011
 25. 財満 和典, 高田 昇治, 河野 明廣, 佐々木 浩一, 「予混合バーナー火炎への誘電体バリア放電重畳による火炎形状の変化」, プラズマ・核融合学会第 27 回年会 (北海道大学, 2010年11月)
 26. 佐々木 浩一, 「プラズマ支援燃焼: プラズマ応用工学から燃焼工学へのメッセージ」, 機械学会関西支部燃焼懇話会 (立命館大学, 2010年10月) (招待講演)
 27. H. Akashi and K. Sasaki, "Modeling of electron transport parameters in methane and air mixture gas", Joint 63rd Gaseous Electronics Conference and 7th International Conference on Reactive Plasmas, Maison de la Chimie, Paris, France, 2010
 28. M. ElSabbagh, S. Kado, M. Kaneko, Y. Ikeda, and K. Sasaki, "Spatiotemporal evolutions of gas density and gas temperature in spark-plug assisted atmospheric-pressure microwave discharges", Joint 63rd Gaseous Electronics Conference and 7th International Conference on Reactive Plasmas, Maison de la Chimie, Paris, France, 2010
 29. 佐々木 浩一, 篠原 功次, 高田 昇治, 「予混合バーナー火炎へのマイクロ波照射による燃焼状態変化の時定数」, 第 71 回応用物理学学会学術講演会 (長崎大学, 2010年9月)
 30. 明石 治朗, 佐々木 浩一, 「メタン空気混合ガス中の電子輸送係数」, 第 71 回応用物理学学会学術講演会 (長崎大学, 2010年9月)
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
佐々木 浩一 (SASAKI KOICHI)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 50235248
 - (2) 研究分担者
明石 治朗 (AKASHI HARUAKI)
防衛大学校・応用科学群・准教授
研究者番号: 20531768