

各種火炎における大気圧低温プラズマ支援燃焼に関する研究

廣澤謙弥* 吉本隆光**

Low temperature Plasma assisted Combustion at Atmospheric pressure for various species of Flame

Kenya HIROSAWA* Takamitsu YOSHIMOTO**

ABSTRACT

The bio-mass gas which is one of renewable energies is remarked for keeping resources and environment. However, it makes unstable flames and emits Fuel NO_x, because it contains such adulterants as moisture, nitrogen and their compounds. Meanwhile, Plasma Assisted Combustion is studied now. Then, fuel gas is radicalized due to plasma produced in the fuel gas by dielectric barrier discharge. In this study, as biomass gas is imitated, the fuel which is methane or hydrogen is diluted with nitrogen. Therefore, the stability limit, flame temperature and NO_x are measured on various conditions. The results are obtained as follows. (1)In diffusion flame, blow off velocity is increased to about 2 times when plasma is applied in methane. This effect is also remarked when methane was diluted by nitrogen. In case of hydrogen flame, the constriction is observed earlier with increasing the fuel velocity. (2)When the high voltage (5000~10000V) is discharged in the fuel, radical makes the flame stabilized. (3)In diffusion combustion of the fuel to contain small amount of ammonium, Fuel NO_x concentration is decreased by plasma. But in premixed combustion, it is increased.

Keywords : plasma assisted combustion, bio-mass gas, NO_x concentration, flame stability

1. はじめに

現在、資源の枯渇や地球環境汚染などの種々の問題に対応するため、比較的豊富で環境負荷の小さい、ガス燃料への注目が集まっている⁽¹⁾。その中でもバイオマスガスは、再生可能エネルギーでありゼロエミッションを達成できることから、特に関心が高い。しかしながら、バイオマスガスは、低カロリー・低濃度燃料で、安定燃焼させるには高濃度化の前処理等が必要になる。また燃料中に水分や窒素・二酸化炭素等を含み、燃焼が比較的不安定である。それに加えて、燃料中に窒素化合物を含むため、フューエル NO_x を生成し、周囲の大気環境を汚染するリスクがある。

そこで、本研究では、燃料ガスに大気圧低温プラズマ⁽²⁾によって、ガスの活性化して、燃焼の安定化を図る。またその火炎内構造について調べた⁽³⁾⁽⁴⁾。加えて、燃料中に NH₃ や N₂ を混入し、バイオマスガスを疑似的に生成し、ここにプラズマを印加することによる、Fuel NO_x の生成への影響を調べた。また、プラズマ支援燃焼時の火炎電子密度および電子温度への影響を調べる

ための安定した燃焼場を得るため、平面火炎バーナを製作した。その火炎特性についても報告する。

2. 実験方法

2.1 実験装置構成 Fig.1 に実験装置の系統図を示す。燃料には、バイオマスガスの可燃性成分であるメタンあるいは水素を用いる。また、燃料に窒素を混入することによる希釈や、アンモニアを燃料に加えて窒素化合物含有燃料を疑似的に生成することでバイオマスガスを模擬した。各ボンベから燃料や希釈用ガス(窒素)または酸化剤(空気)さらにフューエル N (アンモニア)を、実験条件に合わせて、それぞれ設置された流量計で流量測定後、混合してノズルから噴出して火炎を形成した。これらのガスは、流量計で調整され、ガラス管へ流入する。ガラス管内部には高電圧電極を挿入し、ガラス管外に巻きつけたアース電極との間で、誘電体バリア放電を生じさせた燃料ガスをプラズマ状態にした。この際電圧は、数 kV 程度(5kV~10kV)のものを、17 kHz の高周波で印加した。プラズマ化された

* 専攻科 機械システム工学専攻

** 機械工学科 特任教授

ガス内ではラジカルが生成される．このような可燃ガスがガラス管上部から噴出し，火炎を形成した．

2.2 火炎観察 ノズル上に形成された火炎が，プラズマ印加によりどのように変化するか観察する．特に火炎の安定性に注目し，火炎の形成できる燃料の噴出限界の流速を測定する．また，シュリーレン写真を用いて火炎及びガス流へのプラズマの影響を調査した．

2.3 火炎構造測定(火炎内温度分布・NOx 濃度)

火炎内構造を調査するため，素線 0.1mm のR型熱電対 (Pt-PtRh13%) 用いて温度測定する．また，NOx はサンプリングプローブを用いて吸引して NOx 分析計 (島津製, NOA-8000) で測定した．

2.4 火炎伝播観察 プラズマ印加による火炎伝播への影響を観察した．ガラス管に，予混合気充填させ点火し，その際の火炎伝播の様子を高速度動画撮影した．

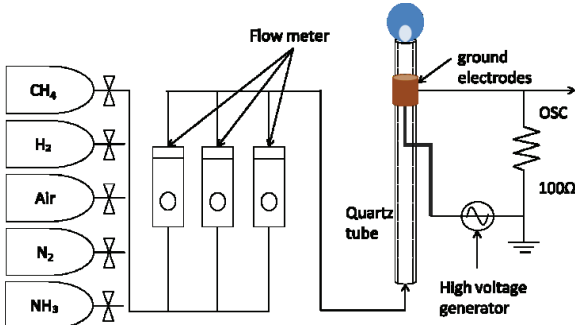


Fig.1 Flow sheet

3. 実験結果

3.1 噴流火炎

3.1.1 火炎吹き飛び速度 メタン拡散火炎においてプラズマを印加すると，火炎の吹き飛び速度が上昇し，火炎の安定性が増すことが，Fig.2 のように先行研究で報告⁽⁵⁾されている．このグラフは，ノズル直径ごとの火炎の吹き飛び速度を示している．

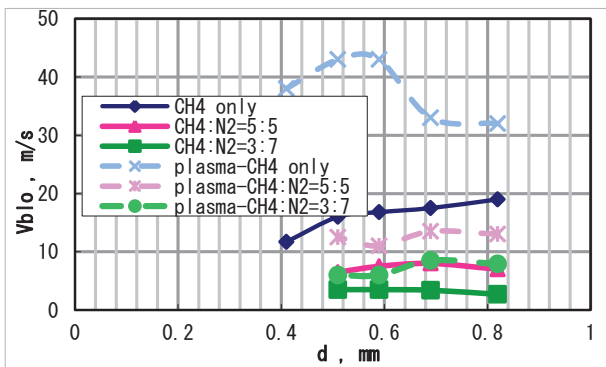


Fig.2 The blow off velocity of methane micro flame

純粋なメタン拡散火炎に対して，窒素分を混入し燃料成分を薄めることで，吹き飛び速度が低下することが分かる．しかしながら，これらの燃料に対して，プラズマを印加することで，吹き飛び速度が 2 倍程度増大

し，火炎の安定性が高まっている．これは，窒素で薄めた燃料に対しても，有効であることから，不純物を多く含むバイオマスガスによる燃焼に対しても有効性があると言える．この結果を受けて，同じくバイオマスガスの主成分である水素でも，同様の実験を行った．Fig.3 にその結果を示す．水素は，燃焼速度がメタンに比べて高いため，数十倍高い吹き飛び速度となっていることが分かる．また，窒素で希釈した場合は，メタンと同じく，吹き飛び速度が低下した．しかしながら，内径 0.51mm のノズルにおいてプラズマを印加したが，火炎吹き飛び速度が向上する傾向はみられなかった．この理由の一つとして，メタン等炭化水素燃料では火炎伝播速度 30~40cm/s (当量比 1 近傍) であるが，水素の火炎伝播速度は 150~200cm/s と非常に高く，プラズマ支援でのラジカルによる燃焼促進の効果は火炎安定効果としては見られなかった．

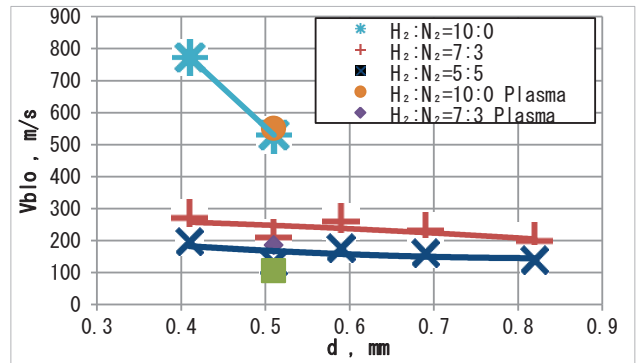
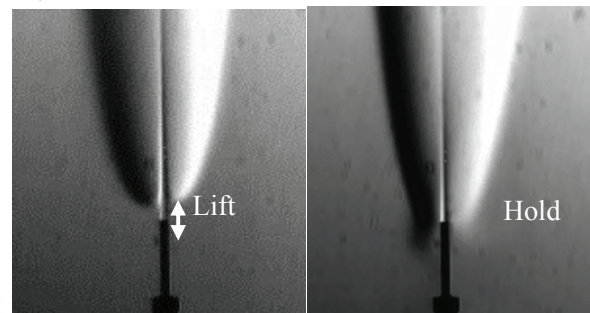


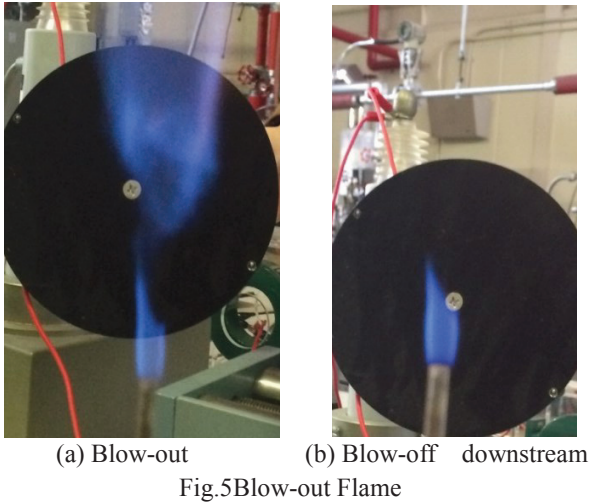
Fig.3 The blow off velocity of hydrogen micro flame

3.1.2 メタン火炎の安定性と火炎伝播 Fig.4 にメタンを 0.65L/min で内径 0.81mm のノズルから噴出させ，形成した火炎のシュリーレン写真を示す．この条件では，通常であれば(a)のように火炎基部の浮き上がりが大きくなり，さらに流量を増やすことで，火炎は吹き飛んでしまう．しかしながら，プラズマを印加することによって，火炎基部は，ノズルに密着し，より安定に燃焼していることが分かる．また，より大きなノズルでは，Fig.5 に示すように，吹き飛び速度付近で火炎が上流側と下流側に分断され，吹消え現象を生じた．また，さらに流量を増加させることで，火炎基部のみを残した火炎を生じる．



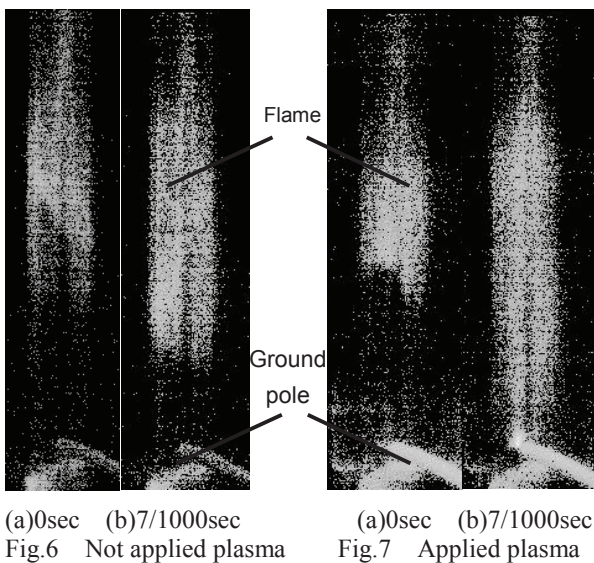
(a) Not applied plasma (b) Applied plasma

Fig.4 Schlieren photograph of methane flame



また、プラズマによる火炎伝播への影響を観測するため、ガラス管内に当量比 1 のメタン予混合気燃料で満たし、管内を伝播する火炎を高速度ビデオカメラで撮影した。撮影位置は接地電極のから下流およそ 50mm 付近である。Fig.6 にはプラズマを印加しなかった時のもの、Fig.7 はプラズマを印加した時のものを示す。それぞれ設置電極からおよそ 20mm 上方に火炎先端が達した(a)を基準とし、7/1000 秒後の画像を(b)に示した。このときガラス管の内径は 8.9mm のものを使用し、メタンは 80mL/min、空気は 800mL/min 供給した。

Fig.6 のプラズマを印加しない場合に比べて、Fig.7 の印加した場合の方が、より早く火炎が上流側に遷移していることが分かる。また、この傾向は、接地電極付近で顕著に見られ、逆に(a)より下流部では、大きな変化は見られなかった。プラズマ印加によって生じるラジカルの寿命は、数マイクロ秒と非常に短いため、電極直後の伝播速度にのみ影響を及ぼしたものであると考えられる。



また、火炎の安定に大きくかわるのは、ノズル出口における燃焼速度と燃料噴出速度のつり合いである。以上の結果から、プラズマ支援燃焼によるラジカルの生成により、ノズル出口付近の燃焼速度が増大したため、Fig.4 や Fig.5 で示したようなノズル出口付近に火炎が密着し保たされていると考えられる。

3.1.3 水素火炎の形状への影響 Fig.8 に水素拡散火炎の各流量における火炎を映した直接写真を示す。このとき、ノズル内径は 0.82mm であった。4L/min までは先細った火炎で、流量増大に伴って火炎長さが伸長していることがわかる。しかしながら、5L/min では突如火炎長さは短くなり、火炎先端が開いている。さらに流量を増加させると、火炎長さがさらに短縮するほか、上流部にくびれを生じ、流量増加に伴ってくびれの位置がノズル側に近づいていることがわかる。これは、くびれより下流部が乱流状態となったためであると考えられる。

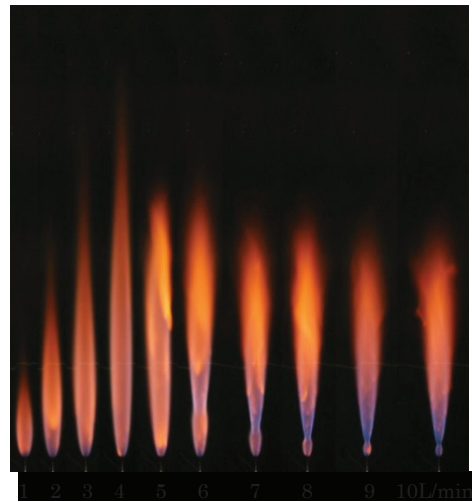
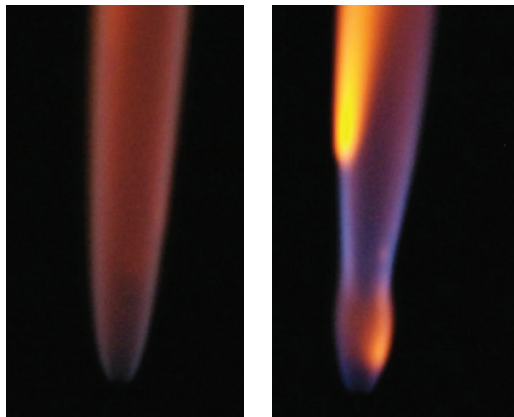


Fig.8 Configuration of Hydrogen diffusion flame

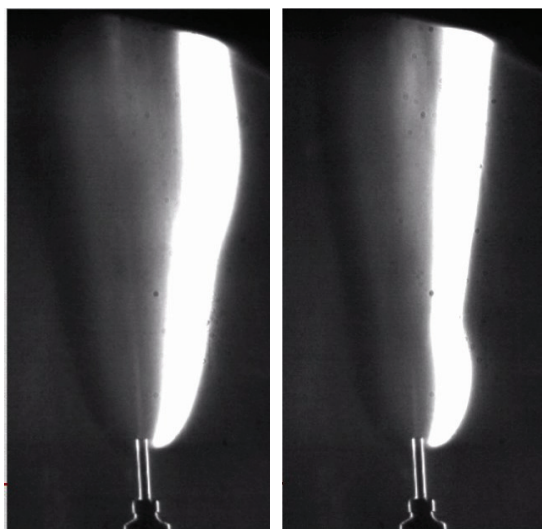
続いて、Fig.9 に水素拡散火炎に対するプラズマ印加の有無による火炎基部の形状の比較を示す。(a)は、プラズマを印加していない状態、(b)は、印加した状態を示している。この時、燃料流量はどちらも 4L/min とした。(a)では Fig.8 中の 4L/min の火炎と同じく、くびれない火炎形状であった。しかし、プラズマを印加すると、Fig.8 中の 6L/min 以上の火炎と同様に上流部にくびれを生じた。

そこで、Fig.10 に示すように、この火炎のシュリーレン写真を撮影した。(a)がプラズマ印加していない状態、(b)が印加している状態を示している。火炎内を流れるガス流に注目すると、(a)では、図中の線に沿って、細長い層流が下流まで続いていることがわかる。それに対して、(b)では層流部がノズル出口からわずかしか存在していない。また、層流部の終点は、およそくびれの位置に位置しており、くびれより下流では下流部に向けて先の広がってゆく乱流が観察された。既報⁽³⁾

でプラズマ印加時にガス流に乱流が生じることが観測されている。またプラズマ印加時に、生じる電場によって、イオンが移動することでイオン風が生じることが知られている。



(a) Not applied plasma (b) Applied plasma
Fig.9 Direct photograph of constriction by applying plasma



(a) Not applied plasma (b) Applied plasma
Fig.10 Schlieren photograph of constriction by applying plasma

3.1.4 NO_x 濃度への影響(拡散燃焼) Fig.11 に、メタン拡散火炎における、NO_x 濃度を示す。燃料流量は 100mL/min とし、ここに窒素 10mL/min を混入した。測定位置は、ノズル直上 7.5mm とし、ノズル径は 0.82mm とした。NO_x 濃度は 25ppm 程度であったが、ここにプラズマを印加した場合、1 割程度低減した。

一方で、窒素中にアンモニアを 10% 含んだ混合ガスを、燃料ガス中に混合させると、NO_x 濃度は 245ppm 程度まで増大した。これは、燃焼することによってアンモニアがフューエル NO_x に変換されたためであると考えられる。この燃料に対して、電圧 7kV、周波数 9.75kHz 程度でプラズマを印加した場合、NO_x は 15%

程度低減した。(低減時の測定値は 200~225ppm)

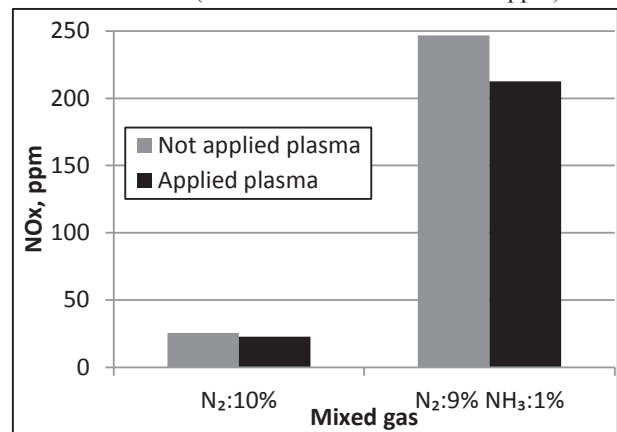


Fig.11 NO_x concentration of methane diffusion flame

また、Fig.12 では、主燃料をメタンから水素に切り替えて同様の実験を行った。アンモニアを混入せず、プラズマも印加しない場合は、NO_x 濃度は 20ppm 程度であったが、プラズマ印加によりメタンと逆の傾向に増加している。

一方アンモニアを混入した場合は、メタン同様に NO_x 濃度が増大し、そこへのプラズマ印加により NO_x 濃度は 20%程度低下している。これは、フューエル NO_x の生成での影響を与えるようであり、プラズマを印加することにより、その発生を抑えられたと考えられる。

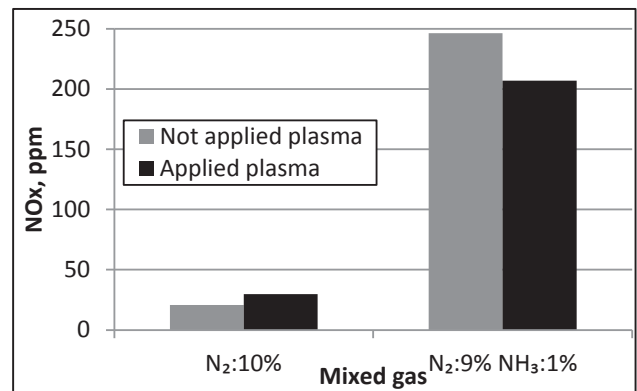


Fig.12 NO_x of hydrogen diffusion flame

3.1.5 NO_x 濃度への影響(予混合燃焼) Fig.13 にメタン予混合火炎における、ノズル直上高さ方向の NO_x 濃度分布を示す。ガス流量は、メタン 200mL/min、空気 1.5L/min とする。また、窒素を 20mL/min 混入した。

プラズマを印加することで、ノズルより上流側においても、NO_x が生成されていることがわかる。これは、高電圧電極からの放電により短絡防止対策のために、サンプリングプローブに長い碍子管を用いた。火炎で加熱されたプローブが高温になり、NO_x の生成反応が起きたと考えられる。ただし、プラズマ印加時にのみ NO_x が生成していることから、プラズマ印加により、反応性の高いラジカルが生成され、高温場で反応した

と考えられる。

そこで、プラズマ印加の有無での比較のため高さ 0 mm での NO_x 濃度を合わせ (図中点線)。下流部に進むにつれて、プラズマ印加の有無による NO_x 濃度の差が広がっていくことがわかる。これは、予混合気中でのプラズマ印加により生成されたオゾンやラジカルによって、燃焼が促進されたと考えられる。

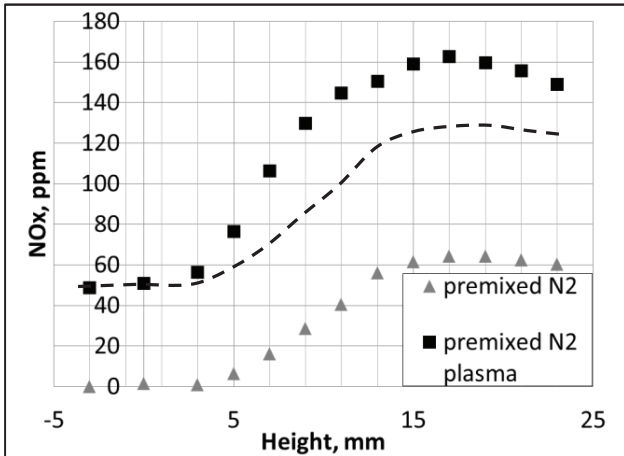


Fig.13 NO_x of methane premixed

Fig.14 にメタン予混合火炎における、ノズル直上高さ方向の NO_x 濃度分布を示す。ガス流量は、メタン 200mL/min, 空気 1.5L/min とする。また、アンモニアを 10%含む窒素を 20mL/min 混入した。

プラズマを印加していない場合でも高い NO_x 濃度であることから、アンモニアの燃焼により、NO_x 生成量のピークが、混入無のものに比べて、5 倍程度に増大していることがわかる。プラズマの印加の有無による NO_x 濃度の差が下流に行くほど縮んでいる。

上流部での NO_x 濃度の立ち上がり大きいのは、アンモニアの活性化による燃焼促進でフェューエル NO_x が生成されていることが主要因と考えられる。

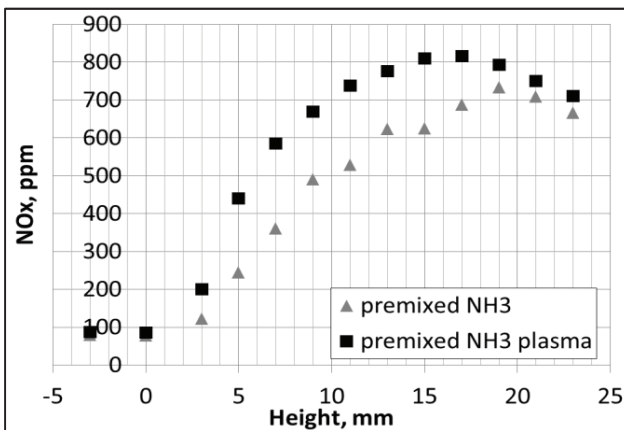


Fig.14 NO_x of methane premixed with ammonium

3.1.6 火炎温度への影響 Fig.15 にメタン(既報), Fig.16 に水素拡散火炎の、各高さ断面におけるノズル

半径方向の火炎内温度分布を示す。ノズル径は、0.82mm のものを用い、燃料流量はメタン 20mL/mi, 水素 100mL/min とした。このような内径が 1mm のノズルで形成される火炎は、マイクロフレームと呼ばれる。

水素の火炎温度は、通常の大径ノズルで形成される火炎の温度分布と異なり、火炎中心付近に最高温度点を持っていることがわかる。これは、既報⁽⁵⁾のメタンマイクロフレームと同様の傾向であり、内径が小さいノズルで、小流量の火炎を形成した場合、形成形態が自然対流より拡散により強く支配され、また火炎サイズも小さいため、伝播や輻射の影響により火炎中心部に最高温度点があると考えられる⁽⁵⁾。

さらに、プラズマ印加時にいずれの火炎においても、火炎上流側、中心側で僅かに温度上昇し、外側では、温度が低下する傾向が見られた。これは、プラズマ印加による燃焼促進の影響により、火炎形状が変化したためであると考えられる。

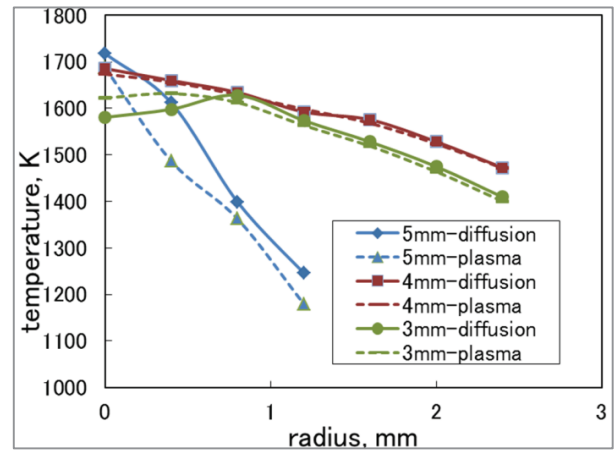


Fig.15 Temperature profile of methane micro flame

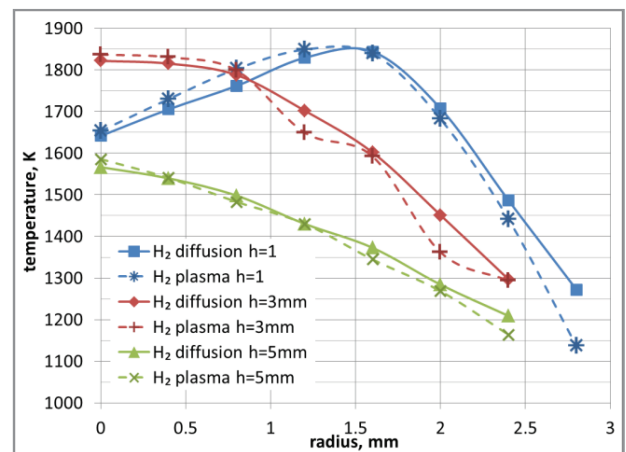


Fig.16 Temperature profile of hydrogen micro flame

3.2 平面火炎と電子密度・電子温度測定

以上の様に、プラズマ支援燃焼を行うことで、火炎に種々の影響が見られた。低温プラズマ内では、電子

温度のみが高められる。このようなガスを用いた火炎内の電子密度および電子温度がどのような状態であるかを解明することは、燃焼において、電子が燃焼に及ぼす影響を知るうえで重要である。

火炎における電子温度や電子密度を測定するためには、安定した火炎が求められるため、以下のような平面火炎を製作し、その燃焼特性を評価した。

3.2.1 ノズル形状と火炎形状 Fig.17 に平面火炎用ノズルの概要図を示す。チャンバー内に繊維を充填し、ここに予混合ガスを流入させると、チャンバー内に入った拡散される。その後ガスは、上部に設置した多孔質の焼結金属の無数の孔から噴出し、平面火炎を形成する。メタン 0.6L/min 空気 6L/min の予混合気による Fig.18 のような平面的な火炎を形成した。

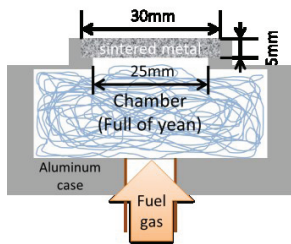


Fig.17 Flat flame nozzle



Fig.18 Flat flame

3.2.2 火炎内温度分布 Fig.19 に各高さ断面における、半径方向の火炎内温度分布を示す。燃料はメタンを流量 0.6L/min の当量比 1 とし、焼結金属のノズルから噴出させている。どの高さ断面においても、均一な温度分布を持っていることがわかる。このことから平面的な火炎を形成していることがわかる。

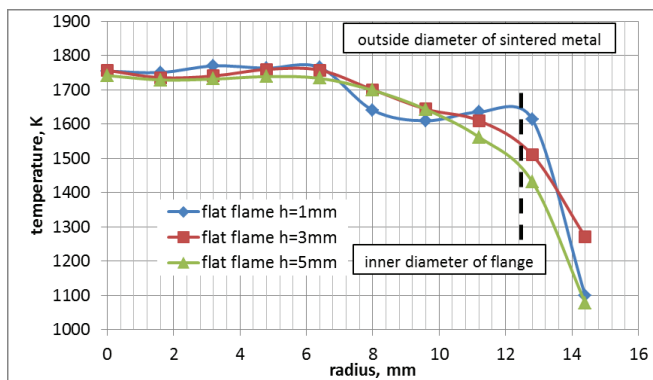


Fig.19 Flat flame temperature in radius direction

また、Fig.20 に、ノズル中心部における、燃料流量ごとの高さ方向の温度分布を示す。ここから、半径方向だけでなく、高さ方向にも温度低下の少ない火炎であることがわかる。これは、流れ方向に面した広汎な火炎面を持つことによって、火炎中心部が保温されているためであると考えられる。それに加えて、燃料流量を増加させるにつれて、全体的に温度が上昇している。しかしながら、燃料流量 0.8L/min では、火炎基部

の温度が低下していることがわかる。これは、火炎面が燃料流量の増加によって下流部へ遷移したためであると考えられる。

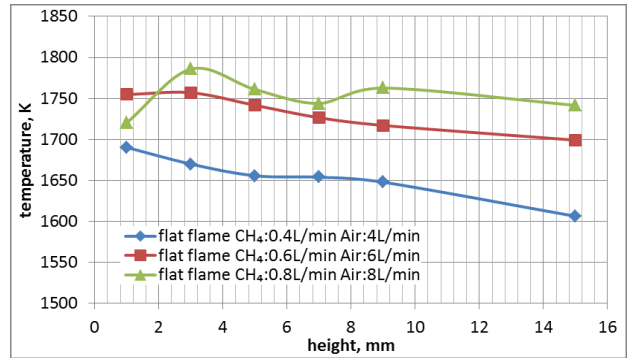


Fig.20 Flat flame temperature in height direction

4. まとめ

(1)メタンを主燃料とする火炎にプラズマ支援燃焼を行い、吹き飛び速度が 2 倍ほどになり、火炎の安定性が向上することを確認した。希釈な燃料での効果も同様に火炎安定効果があることが分かった。水素においては、吹き飛び速度には差が見られないが、燃料噴出速度を上げていくと、プラズマ印加により火炎基部でのくびれ部（層流）が早く形成される。

(2) プラズマ支援燃焼において、ガラス管内における火炎伝播の様子から、ラジカルの発生により燃焼速度が高まって、火炎が安定すると思われる。その因子として、電子密度・温度が関係すると思われる。今後、平面火炎にて電子密度・温度による燃焼への影響を明らかにする必要がある。

(3)メタンまたは水素拡散火炎に対してアンモニアを添加し、プラズマ支援燃焼を行うと、NOx 生成量が 15% 程度低減する。また、メタン予混合火炎に対してアンモニアを添加し、プラズマ支援燃焼を行った。プラズマを印加しない場合に比べて、より上流部で NOx が生成される。

参考文献

- (1)吉本隆光・木之下幸一郎・北村英樹・谷川涼一,高温学会誌, 5-36 (2010) 233-239.
- (2)赤松浩・金田知大・市川和典: 神戸高専研究紀要, 50 (2012), pp.87-92.
- (3)長家知生, 赤松浩,高寺健太郎,吉本隆光,プラズマ応用科学 (Journal of JAPS), 21-1(6/2013), 41-46.
- (4)K.TAKATERA, T.YOSHIMOTO, H.AKAMATSU, T.NAGAYA, T.TAKAGI: Proceedings of The 4th International Symposium on Micro and Nano Technology, ID27 (2013).
- (5)高寺健太郎, 吉本隆光: 「各種燃焼方式によるマイクロフレームの燃焼特性」, 神戸高専研究紀要, 第 52 号, pp1-6, 2014