



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	誘電体バリア放電支援予混合バーナー火炎における高エネルギー電子の役割に関する研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	財満, 和典
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第11887号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58599
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Kazunori_Zaima_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 財満 和典

学 位 論 文 題 名

誘電体バリア放電支援予混合バーナー火炎における高エネルギー電子の役割に関する研究
(Studies on the role of high-energy electrons in premixed burner flame assisted by dielectric barrier discharge)

電子の温度がガス温度に比べて桁違いに高い非平衡プラズマは、電子工学や機械工学などのさまざまな分野で応用されている。非平衡プラズマでは、ガス温度が低くても、運動エネルギーの大きい電子が活性種を生成するため、熱平衡状態にある化学反応系では非常に高い温度を必要とする反応を生じさせることができ、容器の耐熱性能等の制約をあまり受けることなく化学反応制御を実現できる。また、エネルギーを電子のみに投入すればよいことから、省エネルギープロセスになりうるとの期待もされている。

従来、非平衡プラズマは、低圧力のガス中でしか生成できなかったが、最近の研究の進歩により、大気圧のように高い圧力のガス中でも非平衡プラズマを生成できるようになった。これを、非平衡大気圧プラズマと呼び、真空装置を必要としないことから、バイオ・医療分野および環境工学分野等での応用が検討されるようになった。

一方、火炎は熱平衡プラズマの一種であるが、その中で生じる燃焼化学反応は、素反応と呼ばれる中間活性種間の反応が複雑に作用して進行している。しかしながら、それらは熱平衡下での化学反応であるため、反応速度はガス温度によって決定される。

近年、非平衡プラズマを用いた燃焼制御によって、超希薄燃焼を実現し化石燃料消費を低減する技術や、含水バイオマス燃料の利用を可能とする技術が研究されるようになった。この技術において重要なことは、放電プラズマから供給される高エネルギー電子が活性種を生成することで、熱平衡下の燃焼化学反応系では生じない化学反応を発現させ、燃焼反応を活性化することであると考えられているが、重要な活性種や重要な化学反応に関する微視的理解は十分でない。

このように、非平衡プラズマを用いた燃焼反応支援のメカニズムは、これまでブラックボックスであった。本研究では、放電によって供給される高エネルギー電子が燃焼化学反応系に与える役割に着目して調べ、燃焼促進過程に関する理解を深めることを目的とした。基礎的研究により燃焼促進のメカニズムを微視的に理解することは、プラズマ支援燃焼を用いた技術を進歩させるために重要であると考えられる。メカニズムの理解が十分になれば、必要最小限のエネルギーを与えることで燃焼反応を活性化する装置の設計に応用できると考えられる。

研究の方法として、予混合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、燃焼化学反応系に放電で生成される高エネルギー電子を供給した。実験に用いた誘電体バリア放電重畳バーナーは、メタン、酸素、およびアルゴンの予混合ガスを用いて生成したバーナー火炎の全体もしくは上部を石英管で覆い、石英管の外側に取り付けたアルミニウム電極と金属製のバーナーノズルの間に高電圧低周波を印加することで誘電体バリア放電を発生させるものとした。発光分光法、レーラー散乱法、二次元レーザー誘起蛍光法、二光子吸収レーザー誘起蛍光法、および、キャビティリングダウン吸収分光法などのプラズマ計測手法を用いて、プラズマから供給された高エネルギー電子が生成す

る化学活性種と燃焼化学反応系の相互作用による燃焼反応の変化を調べ、高エネルギー電子の供給に起因する化学反応系の変化に関する知見を収集した。

本論文の第 1 章では、本研究の背景について述べ、本研究の目的および意義を示した。

第 2 章では、本研究で用いた実験装置、計測方法の原理、および、測定方法について記述した。

第 3 章では、予混合バーナー火炎に放電を重ねし、放電の周期に対して十分長い時間にわたって時間積分した測定によって得られた結果を示した。特に、放電の重畳による火炎形状の変化と、その際の燃焼ガス温度および高エネルギー電子の量との関係について調べた。その結果、燃焼ガス温度を変化させることなく、火炎に供給する高エネルギー電子の量を制御することで、燃焼反応の活性度(燃焼速度)を制御できることを示した。

第 4 章では、誘電体バリア放電による高エネルギー電子の間欠的供給に対する火炎形状の時間変化を測定し、燃焼速度の過渡的応答を調べた。その結果、短時間の高エネルギー電子の供給が燃焼速度の変化をもたらすが、その変化の持続時間は電子の供給時間に比べて非常に長いということがわかった。また、燃焼速度の変化には揺り返し現象が存在し、放電の重畳により燃焼速度が時間・空間的に増加・減少する様子が観測された。

第 5 章では、キャビティリングダウン吸収分光法を用いて OH ラジカルの密度を測定し、誘電体バリア放電重畳の有無における OH 密度の違いを議論した。また、OH 密度の絶対値を算出した。その結果、燃焼化学反応で生成される OH 密度は、放電によって生成される OH 密度に比べて大きいことが示唆された。また、求めた OH の絶対密度は、化学反応解析を用いて計算した OH の密度とおおよそ一致する $10^{16} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ のオーダーであることがわかった。

第 6 章では、誘電体バリア放電の重畳時において、ガス温度、OH 密度、 $\text{OH}(X^2\Pi)$ および $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ の回転温度、および、Ar および OH の発光強度の変化を放電周期内で時分解測定し、放電によってパルス的に生成された高エネルギー電子が化学反応に与える影響を微視的に検討した。高エネルギー電子が供給される時間帯で観測される OH の発光強度の増加は電子衝突励起のみでは説明できず、化学反応系の変化に起因することを見出した。また、高エネルギー電子が供給された時に生成される $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ は低い回転温度を有していることを示した。これらのことから、火炎に高エネルギー電子が供給されると回転温度の低い $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ を生成する化学反応が活性化すると考えられ、文献に基づきその化学反応について議論した。

第 6 章での検討により、回転温度の低い $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ は酸素原子によって生成される可能性示されたため、第 7 章では、酸素原子密度の半径方向分布測定を行った。その結果を、Ar の発光強度の空間分布、および、 $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ の密度および回転温度の空間分布と比較し、高エネルギー電子の供給に起因する燃焼化学反応変化のメカニズムについて議論した。高エネルギー電子が供給された時間帯に、火炎の予熱帯において酸素原子密度が変化する様子を実験的に見出した。また、化学反応解析の結果、燃焼反応状態に無い予混合ガスに酸素原子を供給すると、非常に速い反応で酸素原子が消費された後、着火遅れ時間が短縮することがわかり、実験で観測した予熱帯での酸素原子生成がきっかけとなって燃焼反応の活性化が生じた可能性が示唆された。

第 8 章では、本研究で得られた結果をまとめ、残された課題および今後の展望を示した。

以上に述べたとおり、本研究により、プラズマ支援燃焼火炎における高エネルギー電子の役割に関する基礎的知見が得られた。得られた知見は、プラズマ支援燃焼装置の開発およびその効果的動作条件の決定等に貢献するものである。