

# 常压下预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的实验研究\*

曹树利<sup>1)2)</sup> 李寿哲<sup>1)2)†</sup> 牛裕龙<sup>1)2)</sup> 李容毅<sup>3)</sup> 朱海龙<sup>3)</sup>

1) (大连理工大学, 三束材料改性教育部重点实验室, 大连 116024)

2) (大连理工大学物理学院, 大连 116024)

3) (山西大学物理电子工程学院, 太原 030006)

(2023 年 4 月 26 日收到; 2023 年 5 月 26 日收到修改稿)

开展了预混甲烷 ( $\text{CH}_4$ ) 和空气的微波等离子体放电燃烧实验, 研究火焰余辉形态、光谱分布和温度特性随着微波功率、燃空当量比和轴向观测位置的变化规律. 实验发现预混  $\text{CH}_4/\text{Air}$  的稀薄燃烧极限当量比  $\phi = 0.4$ ; 在微波等离子体放电时, 当  $\phi < 0.4$ , 以放电诱导的燃烧过程为主要特征, 而当  $\phi \geq 0.4$  时, 等离子体放电燃烧的中心区会明显收缩并逐渐出现丝状放电, 这里低约化场强区的燃烧和高约化场强区的放电燃烧相互影响. 利用发射光谱仪测得预混  $\text{CH}_4/\text{Air}$  微波等离子体放电燃烧光谱的特征谱带,  $\text{OH}(\text{A-X})$ ,  $\text{NH}(\text{A-X})$  和  $\text{CN}(\text{B-X})$ , 沿着轴向空间位置的强度分布和随着当量比的变化, 发现了轴向上近余辉的等离子体放电燃烧区和远余辉的燃烧区, 并通过分析  $\text{CN}(\text{B-X})$  振转谱带的强度分布, 计算得到振动与转动温度, 发现以  $\phi = 0.4$  为分界点形成两种不同的随当量比变化规律. 最后, 根据  $\text{CH}_4$  扩散燃烧火焰、 $\text{CH}_4/\text{N}_2$  混合气体等离子体放电以及  $\text{CH}_4/\text{Air}$  混合气体等离子体放电燃烧的发射光谱对比分析讨论了等离子体增强燃烧过程中的反应路径和机理.

**关键词:** 大气压, 微波等离子体, 放电, 甲烷

**PACS:** 52.25.-b, 32.30.Bv, 52.50.Sw, 88.20.fq

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230676

## 1 引言

随着工业化的进程, 人类对于能源的需求持续增长, 导致全球化石燃料消耗急剧增加<sup>[1]</sup>, 因此, 优化燃烧技术以提高燃烧效率并减少排放污染对于可持续性发展具有重要意义<sup>[2,3]</sup>. 低温非平衡态等离子体增强燃烧技术作为一种新型的技术, 在提高燃烧效率、拓宽稀薄燃烧极限、缩短点火延迟时间、增强火焰稳定性等方面显示出一定的效果, 为燃烧强化和排放控制提供了新的技术手段<sup>[4-6]</sup>. 目前的研究表明, 等离子体增强燃烧的作用机制主要归因于热效应、化学动力学效应和输运效应<sup>[7-9]</sup>. 在热效应中, 等离子体主要通过产生大量焦耳热以

提高气体温度, 从而加速化学反应速率; 在化学动力学效应中, 等离子体内部的高能电子和离子将通过直接电子碰撞解离、离子碰撞解离和重组解离以及反应物与电子激发态分子和振动激发态分子的碰撞解离等方式产生丰富的活性自由基, 这些粒子的参与对燃烧过程中化学反应路径的选择具有重要影响; 在输运效应中, 等离子体中的高能粒子将大分子的燃料物质分解为小分子的燃料碎片, 从而改变了混合气体的组分以及相应的物理特征参数(黏滞系数、传导率等), 另外, 等离子体中的离子在电场的加速下会对流场产生强扰动, 从而增强燃料组分的混合程度.

甲烷作为地球上人类消耗的主要化石能源燃料, 对于甲烷和空气燃烧体系的研究具有重要意

\* 国家自然科学基金(批准号: 11975003)和中央高校基本科研业务费资助(批准号: DUT22LAB105)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [lisz@dlut.edu.cn](mailto:lisz@dlut.edu.cn)

义. 将等离子体放电与甲烷燃烧过程相结合可以有效优化传统燃烧技术并提高能源利用效率, 为了增强燃烧过程, 采用多种等离子体放电的方式, 如介质阻挡放电<sup>[10,11]</sup>、电晕放电<sup>[12,13]</sup>、射频放电<sup>[14]</sup>、微波放电<sup>[15–18]</sup>、纳秒脉冲放电<sup>[19]</sup>、滑动弧放电<sup>[20,21]</sup>等. 在这些等离子体放电中, 微波等离子体因其能量耦合效率高, 运行适用气体压力范围宽, 放电状态稳定, 不使用电极来维持等离子放电, 以及所产生的等离子体密度高等优势而具吸引力. 相应地, 国内外学者对预混甲烷和空气微波等离子体增强燃烧的研究很关注, 开展了一系列的研究工作<sup>[15,22–33]</sup>. Hong 等<sup>[22]</sup>通过一种燃料喷嘴将预混甲烷和空气注入空气微波等离子体炬中, 研究了空气微波等离子体炬对燃烧火焰的影响, 实验发现空气微波等离子体炬中的氧原子和激发态氧分子等活性物种对碳氢化合物燃料的燃烧发挥着重要的作用. Wu 等<sup>[28]</sup>采用一种放置于谐振腔开口处的石英十字架燃烧器, 研究了氩微波等离子体对预混甲烷/氧气混合物燃烧的影响, 结果表明 OH(X) 自由基在等离子体辅助燃烧的火焰稳定性方面起着重要作用. Wang 等<sup>[29]</sup>采用一种将微波能量与预混甲烷和空气耦合的定容圆筒装置, 研究了微波等离子体对预混甲烷和空气点火特性的影响, 结果表明利用微波共振产生的非热等离子体可以实现较大体积的空间点火并且获得的能量转换效率比传统火花塞点火模式高 13.4%. Li 等<sup>[33]</sup>采用一种燃烧器将微波能量耦合到悬浮火焰上, 研究了微波等离子体对预混甲烷

和空气燃烧火焰的影响, 实验发现微波等离子体产生的活性自由基, 如氧原子和氮分子离子, 通过化学动力学方法改变着火火焰的传播行为. 这些大量实验和理论研究证实了等离子体辅助燃烧的优势, 包括火焰传播速度加快、辐射强度升高、稀薄燃烧极限加宽、不完全燃烧产物减少以及能够在更宽的气体压力和温度范围内稳定存在<sup>[34–37]</sup>. 尽管已经开展了不少研究, 但导致等离子体增强燃烧的确切机制仍在积极探索中, 为此需要开展进一步的研究工作.

本文研究了将甲烷和空气混合气体以涡流的方式注入到放电管进行微波放电时混合气体在放电等离子体中燃烧现象及物理化学反应机制. 实验中, 通过相机实时拍照, 探究不同当量比下预混甲烷和空气微波等离子体放电和燃烧状态的变化特征; 通过发射光谱仪 (OES) 测量诊断了预混甲烷和空气微波等离子体放电和燃烧过程中产生的自由基种类及变化规律, 同时根据特征谱带确定了转动温度和振动温度的变化特征; 利用傅里叶变换红外光谱仪 (FTIR) 在线诊断了放电燃烧产物及其变化规律; 最后, 基于不同混合气体放电的发射光谱以及红外光谱的对比分析, 对其中发生的反应路径进行了讨论.

## 2 实验装置

常压下预混甲烷和空气微波等离子体放电的实验装置主要由微波放电系统、配气系统和光谱诊断系统组成, 如图 1 所示.

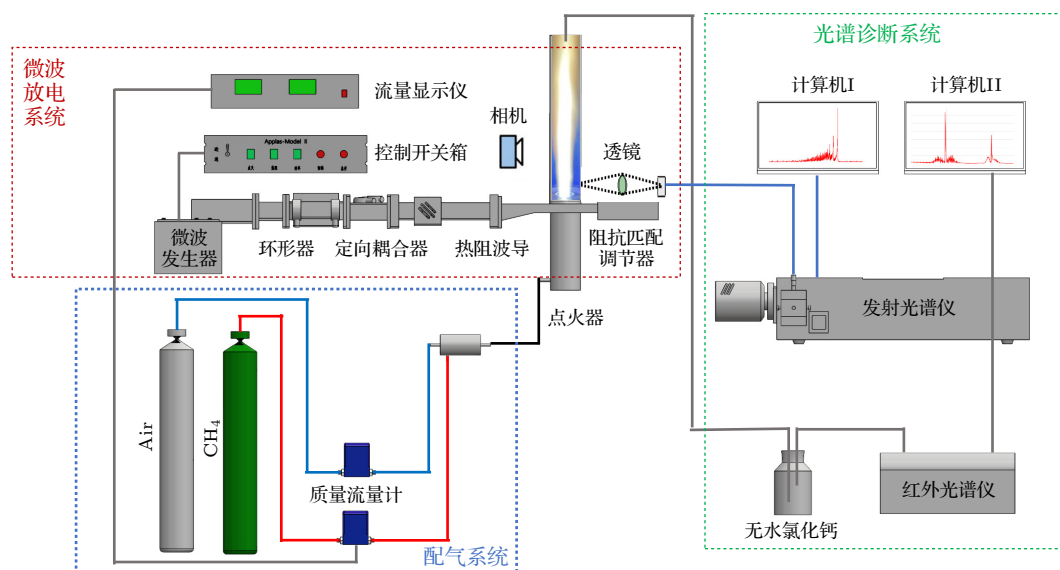


图 1 实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup.

大气压微波等离子体发生系统由大连吉格米特电子科技发展有限公司制造, 该系统由连续微波电源、微波发生器 (GA3.0 SM70)、环形器 (HY-BJ26)、定向耦合器 (WR340DDCB3.0)、热阻波导、微波等离子体耦合适配波导、石英放电管、点火器和阻抗匹配调节器等部件组成. 微波由工作频率为 2.45 GHz 的磁控管产生, 微波最大输出功率为 3 kW, 所产生的微波通过环形器和定向耦合器传输到微波等离子体耦合适配波导, 末端的阻抗匹配调节器实现对系统的阻抗匹配. 配备功率表的定向耦合器用于检测入射功率和反射功率, 并由这两者之差确定耦合到等离子体内的微波功率. 放电管穿过微波等离子体耦合适配波导宽壁上的一对圆孔装配, 石英材质的放电管的几何尺寸为内径 21 mm、厚度 2 mm、长度 110 mm, 用于约束在放电管内产生的微波等离子体. 预混的工作气体以涡流的形式从放电管一端引入, 一方面可以保护放电管不受到来自中心区高温等离子体的侵蚀, 另一方面能够有效稳定等离子体的放电. 点火器由两根钨丝构成, 施加的交流高压能在钨丝的尖端之间产生火花放电. 在放电时, 点火装置中的两根钨丝会在推杆的带动下移动至放电管位于适配波导中心的位置, 通过火花放电产生种子电子引起气体击穿, 形成稳定的等离子体放电之后, 钨丝退出放电管.

配气系统由储气瓶、质量流量计 (D07-19BM) 和预混器组成. 本实验采用标准状态升/分钟 (standard liter per minute, SLM) 作为气体流量单位, 甲烷质量流量计和空气质量流量计的流量规格分别为 0—15 SLM 和 0—30 SLM. 由高压储气瓶供给的甲烷 (99.9%) 和空气 (99.999%) 分别经减压阀减压至 0.2 MPa 后, 再经质量流量计进行流量调节后送入预混器进行充分混合, 然后引入放电管中. 本实验中, 甲烷/空气混合气体的燃料当量比  $\phi$  的变化范围为 0—0.8. 用于描述燃烧火焰中氧化剂和燃料的混合比例的燃料当量比  $\phi$  通常定义为

$$\phi = \frac{(\text{CH}_4/\text{Air})}{(\text{CH}_4/\text{Air})_{\text{st}}}, \quad (1)$$

其中,  $(\text{CH}_4/\text{Air})$  是甲烷和空气实际通入量之比,  $(\text{CH}_4/\text{Air})_{\text{st}}$  是甲烷和空气化学计量之比.

光谱诊断系统由单反相机 (EOS 700D)、发射光谱仪 (Acton SP2750)、傅里叶变换红外光谱仪

(Bruker Tensor II) 等组成. 单反相机用于拍摄预混甲烷和空气微波等离子体放电和燃烧形态. 光谱仪用于实时采集预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的发射光谱信号. 该光谱仪配备了 PIXIS 400 型液氮冷却电荷耦合器件 (CCD) 探测器, 并配备 3 种不同规格的光栅: 150 g/mm, 1800 g/mm, 2400 g/mm. 光谱仪的波长扫描范围为 300—900 nm, 最小分辨率为 0.01 nm. 在测量时, 采用焦距为 7.5 cm 的石英平凸透镜与光纤构成的光学系统作为光谱仪的外置光路, 等离子体测量区域和光纤探头距离透镜均设为其二倍焦距 (15 cm) 的位置, 这样通过移动平台调整平凸透镜与光纤探头的光轴的位置来测量沿等离子体轴线方向空间分辨的发射光谱. 傅里叶变换红外光谱仪用于测量预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的产物成分. 该红外光谱仪扫描范围为 800—4000  $\text{cm}^{-1}$ , 最小分辨率为 0.5  $\text{cm}^{-1}$ . 为了测量产物成分, 在微波等离子体耦合适配波导上方放置一个内径 55 mm、厚度 5 mm、长度 400 mm 的石英隔离管, 在中央插入一根细长的金属取样管, 用于收集预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的产物. 另外, 石英隔离管也能够隔离周围空气, 防止空气进入取样管内对实验测量造成干扰. 放电燃烧的产物在与取样管相连的隔膜泵吸入下, 按照一定的流速经过  $\text{CaCl}_2$  干燥剂后, 通入光程长度为 10 cm、带有  $\text{CaF}_2$  窗片的气体池中, 最后, 傅里叶变换红外光谱仪对放电燃烧产物的分析结果以波数和吸光度为坐标轴的谱图形式呈现.

### 3 实验测量结果与讨论

#### 3.1 不同当量比的甲烷/空气预混微波等离子体放电燃烧特征

图 2(a)—(c) 是利用相机拍摄的预混甲烷和空气在微波等离子体下的放电燃烧形态以及在自然燃烧 (NC) 状态下的火焰形态. 实验中, 首先在放电管中产生稳定的空气微波等离子体放电, 然后, 在预混器中缓慢加入甲烷使得混合气体中甲烷对空气的当量比  $\phi$  依次设置为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7 等一系列值, 维持混合气体在各个预混状态下稳定放电, 利用相机对预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧形态拍摄侧视照片 (图 2(a)), 以及俯视照片 (图 2(b)). 之后, 分别在各个当量比下稳定放电燃烧时关闭微波电源, 对预混甲烷和空气在



自然燃烧条件下火焰形态拍摄俯视照片, 如图 2(c) 所示. 由于放电管进气口位置距离放电管出口端观察点的位置较远, 自然燃烧发生在波导管内部的放电管内, 火焰传播高度不足以到达放电管出口, 因此, 没有拍摄到自然燃烧火焰形态的侧视照片. 从图 2(a) 可以观察到位于放电管中心处的亮白色区域和放电管中心的外缘以及余辉的浅蓝色区域. 当  $\Phi < 0.4$  时, 余辉区的形态特征基本不随当量比变化; 而当  $\Phi \geq 0.4$  时, 余辉区的高度随着当量比的增大呈现逐渐降低的趋势, 并且中心亮白区逐渐出现径向收缩, 此外, 余辉区由浅蓝色逐渐转变为蓝色. 从图 2(b) 的放电管内部的放电燃烧情况可知, 在微波功率一定的条件下, 当  $\Phi < 0.4$  时, 等离子体放电燃烧区域保持稳定状态并未发生明显变化; 当  $\Phi \geq 0.4$  时, 随着当量比的逐渐增大, 明亮区域逐渐收缩. 又从图 2(c) 可以看出, 自然燃烧火焰的当量比存在一个临界值, 即  $\Phi = 0.4$ , 当  $\Phi \geq 0.4$  时, 甲烷和空气混合气体可以维持燃烧; 而当  $\Phi < 0.4$  时, 甲烷和空气混合气体不再能够自持燃烧. 这个当量比  $\Phi = 0.4$  是可以实现火焰传播的最低值, 是预混气体在这个实验条件下的稀燃极限<sup>[4]</sup>. 另外, 从图 2(c) 可以观察到, 甲烷燃烧火焰形成了一个与放电管内壁相邻的一个环形区域, 这是由于预混气体是从与放电管壁相切的管路以涡流的方式引入的缘故. 再有, 在图 2(a) 和图 2(b) 中, 对应  $\Phi < 0.4$  时情况, 等离子体放电发生在放电管中心的高约化场强区域并引发燃烧, 而在近邻放电管内壁的环形区域因较低的约化场强不能产生等离子体放电, 并且此时的燃空当量比太低, 根据图 2(c)

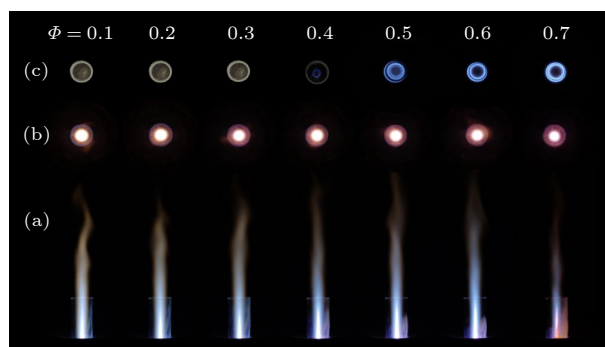


图 2 预混甲烷和空气的微波放电燃烧形态 (微波功率为 1200 W) 的 (a) 侧视图和 (b) 俯视图, 以及 (c) 自然燃烧火焰形态 (NC) 俯视图

Fig. 2. (a) Side view and (b) top view of premixed methane and air microwave plasma discharge and combustion at microwave power of 1200 W and (c) top view of natural combustion flame.

的实验结果, 在这个区域内不能发生燃烧, 而由中心区域的放电等离子体径向扩散填充; 对于  $\Phi \geq 0.4$  的情形, 不仅在放电管中心区域发生放电燃烧过程, 在其周边到放电管管壁的低约化场强环形区域同时发生燃烧现象, 这样中心区域产生的焦耳热不易扩散到外面而会引发热颈缩现象, 正如照片所示在这个区域显现出径向收缩的趋势.

### 3.2 甲烷/空气预混微波等离子体放电燃烧产物的 FTIR 分析

图 3 是在总气流量为 18 SLM 条件下, 燃空当量比  $\Phi$  分别为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5 时, 利用 FTIR 分别在自然燃烧条件下和微波功率为 1200 W 时产生的微波等离子体放电增强条件下对燃烧后产物成分检测的结果. 对于没有等离子体增强的自然燃烧的情况, 当  $\Phi < 0.4$  时, 燃烧熄灭, FTIR 检测的是预混气体的组分, 因此测量结果以  $\text{CH}_4$  成分为主, 如图中黑线所示; 而当  $\Phi \geq 0.4$  时, 预混甲烷和空气混合气体处于富氧的燃烧状态, 所以 FTIR 检测结果以燃烧产物  $\text{CO}_2$  为主, 甲烷被完全燃尽, 未检测到  $\text{CH}_4$  成分. 然而在微波等离子体放电增强燃烧的条件下, 在燃空当量比从 0.1—0.5 变化的所有情况下, 等离子体放电燃烧状态维持稳定, 另外, 对产物的 FTIR 分析可知, 除了  $\text{CO}_2$  为主要成分外, 还检测出  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{NO}_2$  和  $\text{NO}$  等成分.  $\text{CO}_2$

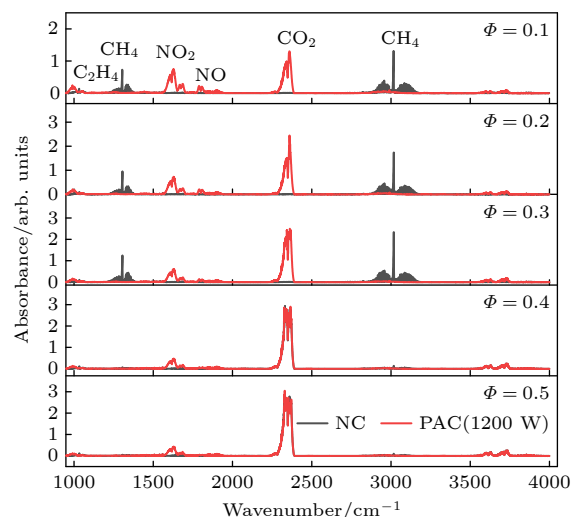
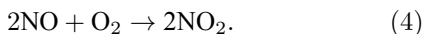
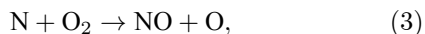
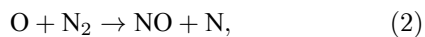


图 3 不同当量比下预混甲烷和空气自然燃烧 (NC) 和在微波等离子体放电 (微波功率为 1200 W) 增强燃烧的红外光谱图

Fig. 3. Infrared spectra of natural combustion of premixed  $\text{CH}_4$  and air and microwave plasma discharge enhanced combustion (microwave power of 1200 W) at a series of equivalence ratios.

是等离子体增强后的燃烧产物,并且可以看出随着当量比增大,  $\text{NO}_x$  的含量逐渐减小. 微波等离子体具有高能量密度和高温环境,其中产生的高能粒子使得空气中  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  分子发生碰撞、激发和电离,形成了更加丰富的物种,例如氮原子和氧原子等,从而产生新的反应链,相应地,  $\text{NO}_x$  的生成路径有如下化学反应<sup>[11]</sup>:



这意味着在高温环境下  $\text{NO}_x$  形成主要受氧气含量的影响,那么,当  $\Phi$  值较大时,甲烷消耗氧气的量增加,从而减小了参与反应 (2)—(4) 式的氧气量,因此,表现为在较高  $\Phi$  值时,对  $\text{NO}_x$  的产生一定的抑制作用.

### 3.3 甲烷/空气预混微波等离子体放电燃烧的发射光谱特征

图 4(a) 和图 4(b) 是在总气流量为 18 SLM、微波功率为 1200 W 时,利用发射光谱仪采集到的不同当量比下的空间分辨发射光谱图. 在本实验

中,定义  $x$  轴沿放电管轴线指向余辉方向,并设微波等离子体耦合适配波导开口处为  $x = 0$  cm,光谱采集点分布在  $x = 0$ —5.8 cm 范围区间. 从图 4(a) 可以看出,当  $\Phi = 0.3$  时,在轴向距离为  $x \leq 3.4$  cm 范围内,发射光谱的主要特征谱带为 OH(A-X), NH(A-X) 和 CN(B-X) 三个谱带;轴向距离  $x \geq 5.0$  cm 范围内,发射光谱以 OH(A-X) 谱带为主. 而由图 4(b) 可以看出,当  $\Phi = 0.6$  时,在轴向距离  $x \leq 5.0$  cm 范围内,发射光谱主要特征谱带为 OH(A-X), NH(A-X) 和 CN(B-X) 三个谱带;在轴向距离为  $x > 5.0$  cm 范围内,可以测量的发射光谱以 OH(A-X) 为其主要谱带.

基于图 4(a) 和图 4(b) 的光谱图把其中特征谱带 OH(A-X), NH(A-X) 和 CN(B-X) 的发射谱线强度随轴向距离的变化曲线在图 5 中绘出. 这里分别选用 OH(A-X, 0-0) 中 308.9 nm 处, NH(A-X, 0-0) 中 336.0 nm 处和 CN(B-X, 0-0) 中 388.3 nm 处谱线的强度作为标注谱带强度相对大小的各自谱带的参考强度. 由图 5 可见,随着轴向距离的增大, OH(A-X), NH(A-X) 和 CN(B-X) 谱带强度一致地呈现下降的趋势. 值得注意的是,在  $x = 5.0$  cm

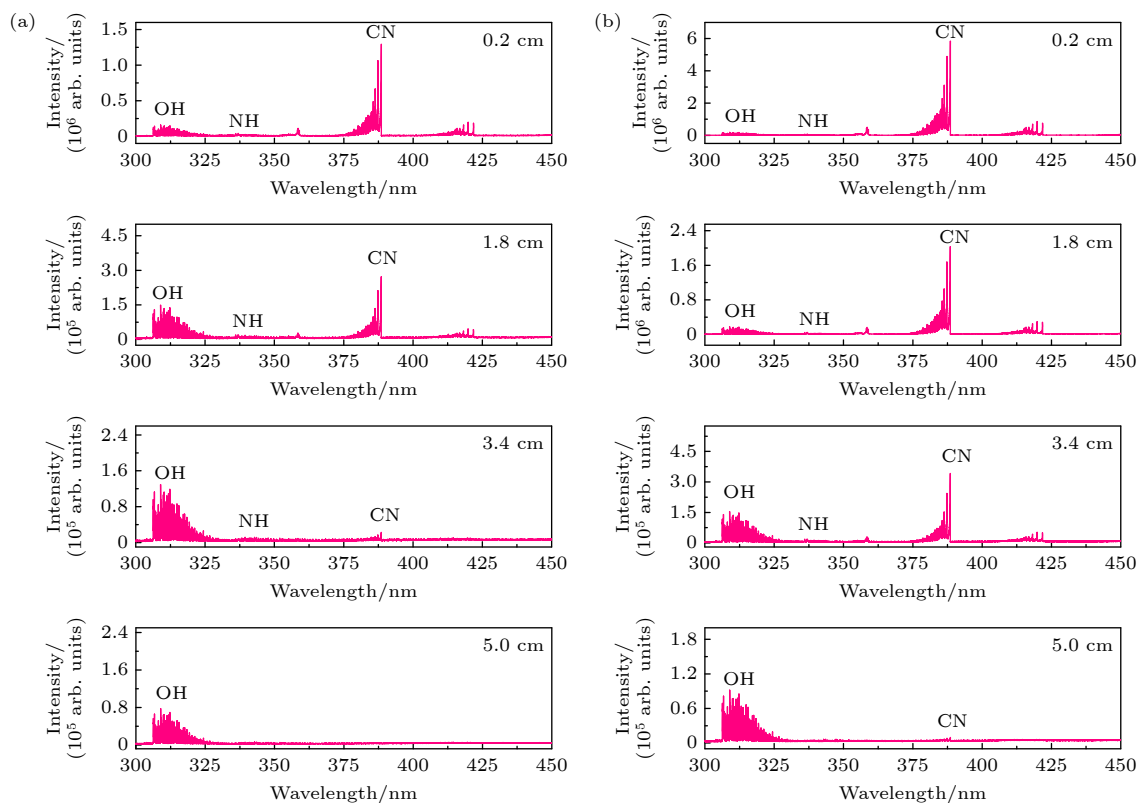


图 4 在总气流量为 18 SLM、微波功率为 1200 W 时,当量比分别为 (a)  $\Phi = 0.3$  和 (b)  $\Phi = 0.6$  下的沿  $x$  轴空间分辨发射光谱图

Fig. 4. Spatial distribution of emission spectra at a series of positions along  $x$  axis at the equivalence ratio of (a) 0.3 and (b) 0.6, respectively, with the fixed total gas flow rate of 18 SLM and microwave power of 1200 W.

附近,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  谱带强度趋于消失, 而  $\text{OH(A-X)}$  谱带仍保持一定强度的数值. 由于  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  谱带只在甲烷和空气的混合气体放电中能够被观测到, 如甲烷和空气的火花放电实验中<sup>[38]</sup>, 而  $\text{OH(A-X)}$  谱带在放电和燃烧实验中都会存在, 如甲烷和空气燃烧火焰的光谱测量实验<sup>[39]</sup>, 因此, 将在轴向  $x \leq 5.0$  cm 范围内具有  $\text{OH(A-X)}$ ,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  发射特征谱带的区域定义为等离子体放电燃烧区域, 而将在轴向  $x > 5.0$  cm 范围内只具有  $\text{OH(A-X)}$  特征谱带的区域定义为燃烧区. 这种区分和前述根据图 2 中照片分析对等离子体放电燃烧区域的划分一致. 在放电燃烧区内, 空气等离子体放电产生的 N 原子和甲烷在等离子体高能粒子的作用下分解产生的 CH 分子碎片反应生成激发态  $\text{CN(B)}$ , 其数量会随着等离子体余辉区距离的增大而减小, 正如图 5 中发射光谱强度变化趋势所示. 而激发态  $\text{NH(A)}$  和  $\text{OH(A)}$  分子的产生分别源于在等离子体炬近余辉区内的氮原子和水分子的碰撞重组<sup>[40]</sup> 以及高能电子与水分子的碰撞解离<sup>[41]</sup>, 而水分子是甲烷和空气中氧分子燃烧的产物. 在燃烧区, 对应着等离子体的远余辉端, 存留的活性氮原子含量已经非常少, 基本观察不到激发态  $\text{CN(B)}$  的辐射,  $\text{NH(A)}$  的发射强度也下降得非常明显, 但是  $\text{OH(A)}$  自由基的发射强度相对来说减少得较慢, 并且保持一定的强度, 这个区域的光谱特征和甲烷和空气自然燃烧情况一致, 参照图 4 中的发射光谱图强度分布可以非常明显地观察到这点.

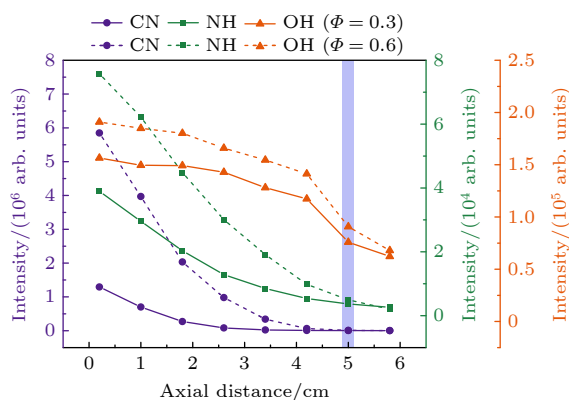


图 5 在总气流量为 18 SLM、微波功率为 1200 W 时, CN, NH 和 OH 自由基发射强度随轴向距离的变化曲线

Fig. 5. Plot of emission intensities of CN, NH and OH bands versus the axial distance at a total gas flow rate of 18 SLM and microwave power of 1200 W.

为进一步考察等离子体放电增强燃烧随着当量比的变化情况. 在总气流量为 18 SLM, 微波功率分别为 1200 W, 1400 W 和 1600 W 条件下, 在轴向  $x = 1.0$  cm 位置处分别采集了各个情况的在不同当量比下预混甲烷和空气微波等离子体放电时的发射光谱图, 由于测量得到的发射光谱特征一致, 图 6 仅给出微波功率为 1400 W 时的一组典型光谱图. 如前所述, 图 6 记录的预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的发射谱, 以  $\text{OH(A-X)}$ ,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  特征谱带为主, 包含了以 308.9 nm 为带头的  $\text{OH(A-X}, \Delta v = 0)$  顺序带组、以 336.0 nm 为带头的  $\text{NH(A-X}, \Delta v = 0)$  顺序带组、以 359.0 nm 为带头的  $\text{CN(B-X}, \Delta v = 1)$  谱带、以 388.3 nm 为带头的  $\text{CN(B-X}, \Delta v = 0)$  谱带和以 421.6 nm 为带头的  $\text{CN(B-X}, \Delta v = -1)$  谱带. 随着当量比的增大,  $\text{OH(A-X)}$ ,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  的发射强度均呈现增加趋势.

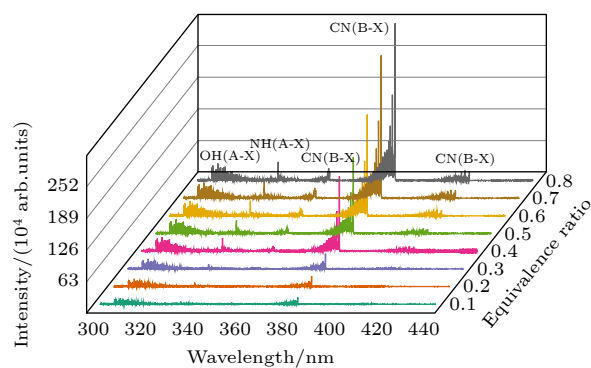


图 6 在总气流量为 18 SLM、微波功率为 1400 W 时, 不同当量比下预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的发射光谱

Fig. 6. Emission spectra of premixed  $\text{CH}_4$  and air microwave plasma discharge and combustion at a series of equivalence ratios, a total gas flow rate of 18 SLM and microwave power of 1400 W.

图 7(a) 和图 7(b) 分别是基于图 6 的实验数据得到的  $\text{OH(A-X)}$ ,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  发射谱带强度以及这些谱带强度的相对比值, 如 CN 和 NH 以及 NH 和 OH, 随当量比的变化曲线. 从图 7(a) 可知, 随着当量比的增大,  $\text{OH(A-X)}$ ,  $\text{NH(A-X)}$  和  $\text{CN(B-X)}$  谱带强度都表现出增长趋势. 从图 7(b) 可知, 以当量比  $\Phi = 0.4$  为转折点, CN/NH 和 NH/OH 两对自由基的发射强度比值的增长呈现两种趋势: 当  $\Phi < 0.4$  时, 发射谱带强度比值增长相对缓慢; 随着当量比的增大, 即  $\Phi \geq 0.4$  时, 发射谱带强度比值增长明显变快, 显示出与低当量比值时不同的

变化趋势. 正如前面 3.1 节介绍, 当量比值  $\Phi = 0.4$  是稀燃情况下能够维持自然燃烧的极限值. 在  $\Phi < 0.4$  的条件下, 在放电管中心的高约化场强区是以甲烷和空气混合气体放电过程为主要特征的并伴随着燃烧过程发生, 而在  $\Phi \geq 0.4$  时, 放电管中心的等离子体区是预混的甲烷和空气以及放电管内边缘低约化场强区域燃烧后的产物卷入进来所形成的多种组分放电的结果.

### 3.4 甲烷/空气预混微波等离子体放电燃烧温度特征的光谱学诊断

在本实验中, 能够测量到的 OH(A) 的转动能级中粒子数分布处于过布居状态, 另外, NH(A-X) 谱线强度较弱且谱带之间交叠严重, 而对 CN(B-X) 谱带的测量分析表明在其振转能级上的粒子数分布处于热平衡分布, 所以, 在下面的诊断中通过对 CN 谱带的定量分析来确定其转动和振动温度,

并寻找其变化规律. 图 8(a) 和图 8(b) 是在轴向位置  $x = 1.0$  cm 处, 利用 CN(B-X, 0-0) 谱带计算得到的转动温度. 在计算过程中, 选取 CN(B-X, 0-0) 谱带的  $P(J)$  分支中  $J = 50, 51, 52, 53, 54, 55$  和 56 这 7 条谱线, 如图 8(a) 所示, 利用如下的玻尔兹曼公式对这些转动谱线强度进行线性拟合:

$$\ln \left[ \frac{I}{(2J' + 1)\nu^4} \right] = A - \frac{B_v J' (J' + 1) hc}{k T_{\text{rot}}}, \quad (5)$$

其中,  $I$  为光强,  $J'$  为上能级转动量子数,  $\nu$  为跃迁波数,  $A$  为常数,  $h$  是普朗克常数,  $c$  是真空中光速,  $k$  是玻尔兹曼常数,  $T_{\text{rot}}$  为玻尔兹曼斜率法所确定的转动温度,  $B_v$  是振动态为  $v$  的转动常数, 在本文实验情况下经查表其取值为  $1.96 \text{ cm}^{-1}$ . 本实验通过光谱软件采集背景信号来去除环境噪声对光谱的影响, 这极大地提高了实验结果的准确性. 那么, 通过玻尔兹曼斜率法对转动谱线强度进行线性拟合情况如图 8(b) 所示, 图中黑色圆点代表实

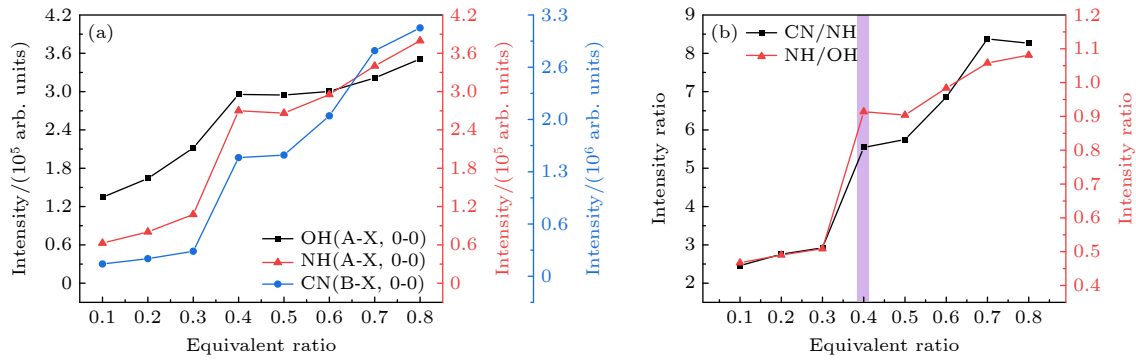


图 7 在微波功率为 1400 W 时, (a) OH(A-X)、NH(A-X) 和 CN(B-X) 谱带的发射强度以及 (b) CN/NH 和 NH/OH 自由基对的发射强度比值随当量比的变化

Fig. 7. Variations of emission intensity of (a) OH(A-X), NH(A-X) and CN(B-X) bands and (b) intensity ratio of radical pairs of CN/NH and NH/OH versus the equivalence ratios at the microwave power of 1400 W.

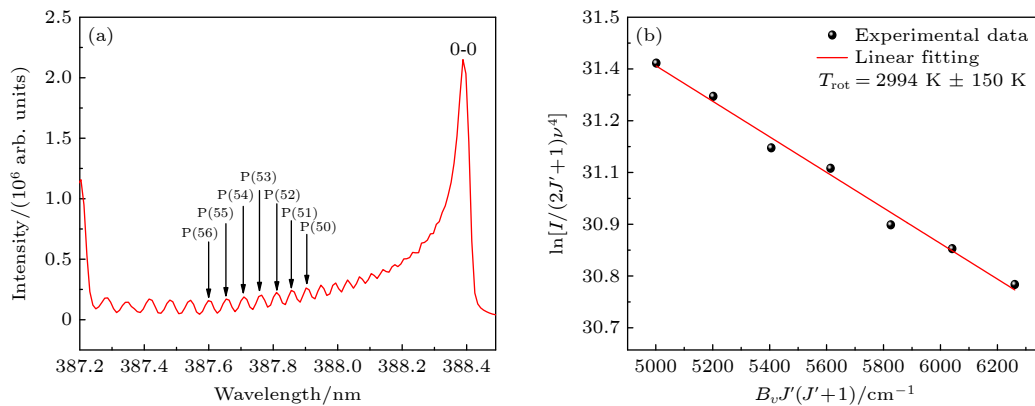


图 8 (a) 计算 CN 谱带的转动温度所选用的 P 支谱线; (b) 对 CN 谱带中所选转动谱线强度分布的玻尔兹曼拟合

Fig. 8. (a) Measured spectrum of P-branch of CN band and candidate spectral lines for calculation of rotational temperature; (b) Boltzmann fitting of intensity of selected lines in CN band.



验测量数据, 红色实线则表示线性拟合的结果. 例如, 在功率 1200 W、气流量 18 SLM 和当量比为 0.5 的条件下, CN 的转动温度为 2994 K, 且其测量误差为  $\pm 150$  K, 拟合度  $R^2$  为 0.97. 图 9(a) 和图 9(b) 是根据上述方法确定的 CN 转动温度分别随当量比和微波功率的变化曲线. 其中图 9(a) 给出了在总气流量为 18 SLM、功率分别为 1200 W, 1400 W, 1600 W 的条件下, CN 转动温度随当量比的变化曲线. 从图 9(a) 可以看出, 在总气流量为 18 SLM, 微波功率为 1200 W 条件下, CN 转动温度随当量比呈现先下降后保持水平的趋势, 也就是在  $\Phi < 0.4$  范围内, CN 转动温度从 5660 K 下降至 3000 K; 而在  $\Phi \geq 0.4$  范围内, CN 转动温度基本保持在 3000 K. 类似地, 当微波功率为 1400 W 和 1600 W 时, 也能够观察到相同的规律变化. 进一步地, 依次计算了在总气流量为 18 SLM 和当量比分别为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7 以及 0.8 条件下, CN 转动温度随微波功率的变化曲线, 如图 9(b) 所示. 从图 9(b) 可以看出, 当  $\Phi < 0.4$  时, CN 转动温度随功率增大而下降; 当  $\Phi \geq 0.4$  时, CN 转动温度基本不随功率发生改变, 保持在 3000 K. 实验发现当量比为 0.4 的值是形成两种不同等离子体和燃烧协同作用的分界点, 当更多的甲烷加入等离子体增强的燃烧过程时, 使得进入放电管内的预混气体的组分由于甲烷的裂解和重组变得更复杂, 导致热传导系数、黏滞系数、电导率等物理参量发生改变, 这种组分和物性发生改变的混合气体的放电必然发生相应的变化. 目前为止鉴于诊断条件的限制还不能给出进一步的机理分析, 但仅能通过实验观察

来给出相应的结果.

图 10(a) 和图 10(b) 是在轴向位置  $x = 1.0$  cm 处, 利用 CN(B-X) 谱带计算得到的振动温度. 从图 10(a) 可以看到, CN 自由基  $\Delta v = 0$  顺序带组所在位置没有其他自由基的谱线, 从而可以无干扰地分辨出谱带, 方便后面分析. 选用 CN(B-X,  $\Delta v = 0$ ) 谱带中 385.0 nm, 385.4 nm, 386.1 nm 和 387.1 nm 处的谱线进行玻尔兹曼斜率拟合, 具体的拟合公式如下:

$$\ln \left( \frac{I_{v'v''}}{\nu^4} \right) = C - \frac{G(v')hc}{kT_{\text{vib}}}, \quad (6)$$

其中,  $I_{v'v''}$  为发射光强,  $v'$  和  $v''$  分别为上下能级振动量子数,  $\nu$  为跃迁辐射的波数,  $C$  为常数,  $h$  是普朗克常数,  $c$  是真空中光速,  $k$  是玻尔兹曼常数,  $T_{\text{vib}}$  为玻尔兹曼斜率法所确定的振动温度. (6) 式中的振动项  $G(v')$  展开表示为

$$G(v') = \omega_e \left( v' + \frac{1}{2} \right) - \omega_e x_e \left( v' + \frac{1}{2} \right)^2 + \omega_e y_e \left( v' + \frac{1}{2} \right)^3 + \cdots, \quad (7)$$

其中,  $\omega_e$ ,  $\omega_e x_e$  和  $\omega_e y_e$  是双原子分子振动系数, 对于 CN 双原子分子来说,  $\omega_e = 2163.9 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_e x_e = 20.2 \text{ cm}^{-1}$ , 而  $\omega_e y_e$  近似认为是零. 具体的拟合结果如图 10(b) 所示, 拟合结果呈现线性关系, 因此 CN 振动能级分布处于热平衡分布状态. 在功率为 1800 W、气流量为 18 SLM 和当量比为 0.5 的条件下, 由此确定的 CN 振动温度为 6303.6 K, 测量误差为  $\pm 600$  K, 拟合度  $R^2$  为 0.96. 图 11(a) 和图 11(b) 是根据上述方法确定的 CN 振动温度分别随当量

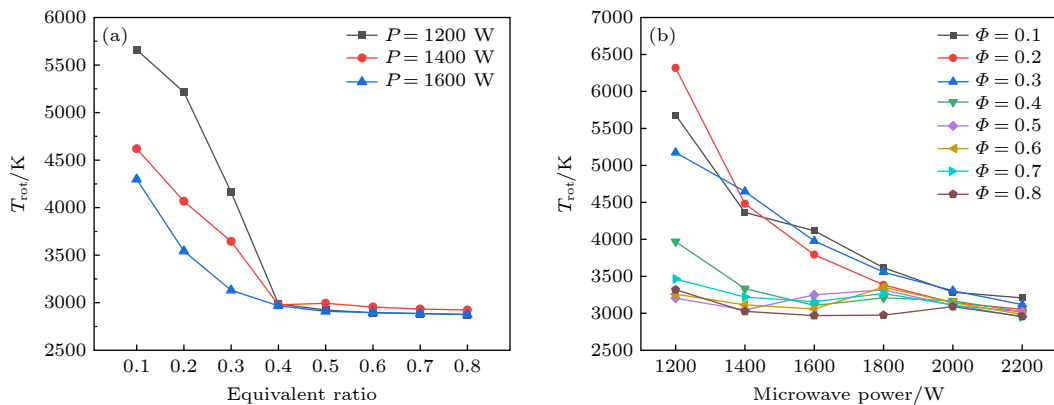


图 9 在总气流量为 18 SLM 条件下, (a) 微波功率分别为 1200 W, 1400 W 和 1600 W 时, 由 CN 谱带确定的转动温度随当量比的变化曲线; (b) 当量比分别为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7 以及 0.8 时, 转动温度随微波功率的变化曲线

Fig. 9. Plot of the rotational temperature determined from CN bands versus (a) the equivalent ratio at a series of microwave power and (b) microwave power at various equivalent ratios, respectively, at a fixed total gas flow rate of 18 SLM.



比和微波功率的变化曲线. 其中图 11(a) 是在总气流量为 18 SLM、微波功率分别为 1200 W, 1400 W, 1600 W 的条件下, CN 振动温度随当量比的变化曲线. 从图 11(a) 可以看出, 在总气流量为 18 SLM, 功率为 1200 W 条件下, CN 振动温度随当量比呈现先下降后保持水平的趋势, 也就是在  $\phi < 0.4$  范围内, CN 转动温度从 7600 K 下降至 6400 K; 而在  $\phi \geq 0.4$  范围内, CN 转动温度基本保持在 6400 K. 类似地, 当微波功率为 1400 W 和 1600 W 时, 也能够观察到相同的规律变化. 进一步地, 依次计算在总气流量为 18 SLM 和当量比分别为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7 和 0.8 条件下, CN 振动温度随微波功率的变化曲线, 如图 11(b) 所示. 从图 11(b) 可以看出, 当  $\phi < 0.4$  时, CN 振动温度随功率增大而下降; 当  $\phi \geq 0.4$  时, CN 振动温度基本不随功率发生改变, 保持在 6400 K. 在研究振动温度的变化规律中得到的结果和前面测量 CN 转动温度

的变化规律得到特征一致, 当量比为 0.4 是形成两种不同等离子体和燃烧协同作用的分界点.

### 3.5 甲烷/空气预混微波等离子体放电燃烧反应路径的讨论

在甲烷/空气自然燃烧的现象中, 发生的化学反应过程以重粒子之间的热碰撞为主要特征,  $\text{CH}_4$  在高温作用下产生 H 原子, 而后 H 原子在  $\text{O}_2$  作用下产生 O, OH 自由基, 这些活性粒子促进了燃烧过程中链式反应的进行. 在等离子体辅助燃烧的火筒强化机制中, 发生的化学反应过程除了重粒子之间的热碰撞外, 等离子体放电产生的高能电子与氧分子以及甲烷分子的碰撞产生了大量的原子和分子碎片, 使得链式反应的路径更加丰富, 同时激发态活性粒子的出现大大降低了反应活化能. 例如, 除了  $\text{O}_2$  在高压电子作用下解离产生 O 原子外,  $\text{N}_2$  在高压电子作用下产生的电子和振动激发

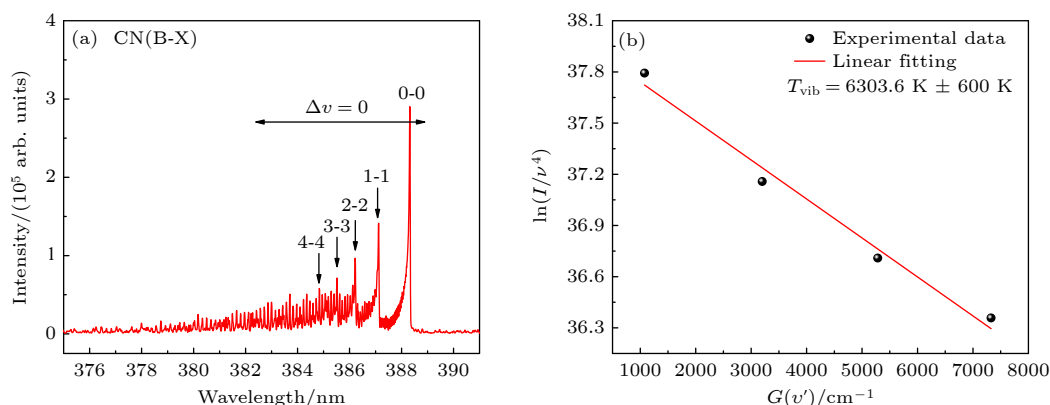


图 10 (a) 计算 CN 振动温度所选用的带组带头; (b) 对 CN 谱带中所选带组的带头强度分布的玻尔兹曼拟合

Fig. 10. (a) Measured spectrum of CN bands and candidate bandheads for calculation of vibrational temperature; (b) Boltzmann fitting of intensity of selected bandheads in CN band.

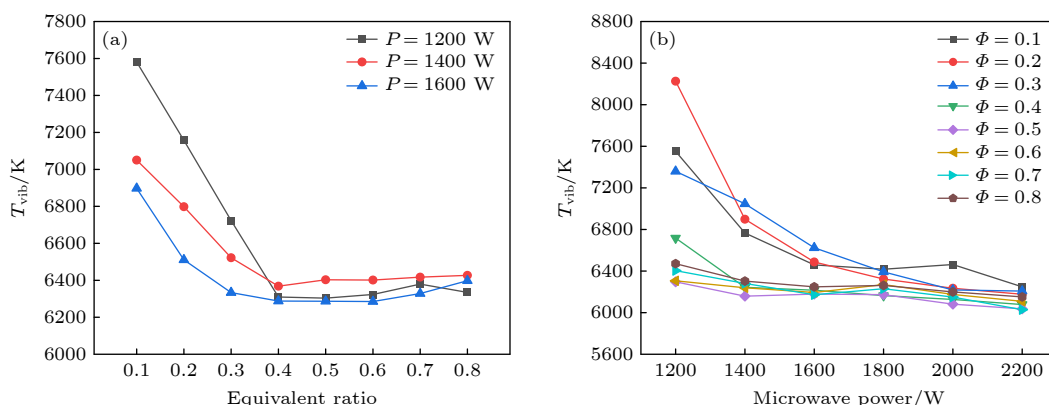


图 11 在总气流量为 18 SLM 条件下, (a) 微波功率分别为 1200 W, 1400 W 和 1600 W 时, 由 CN 谱带确定的振动温度随当量比的变化曲线; (b) 当量比分别为 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7 以及 0.8 时, 振动温度随微波功率的变化曲线

Fig. 11. Plot of the vibrational temperature determined from CN bands versus (a) the equivalent ratio at a series of microwave power and (b) microwave power at various equivalent ratios, respectively, at a fixed total gas flow rate of 18 SLM.

态  $N_2(v)$  与  $O_2$  的碰撞反应也会产生 O 原子, 而已有文献 [17, 18, 22] 表明活性 O 原子在促进燃烧过程中起到非常重要的作用.

对 3 种实验条件下获得的发射光谱图的对比和分析来研究  $CH_4$  在放电燃烧过程中的反应路径. 图 12(a)—(c) 是在放电管轴上  $x = 1.0$  cm 的位置分别采集到的  $CH_4$  在放电管中扩散燃烧火焰、 $CH_4/N_2$  混合气体等离子体放电以及  $CH_4/Air$  混合气体等离子体放电燃烧的发射光谱图. 实验中, 微波功率设置在 1200 W, 图 12(b) 中甲烷和氮气按照 0.3:17.8 比例预混, 而图 12(c) 中甲烷和空气的预混比例设置在 0.7:17.3. 从图 12 可以观察到,  $CH_4$  扩散燃烧火焰的发射光谱以 OH, CH,  $C_2$  为主, 这与 Zhu 等 [42] 的观察结果一致;  $CH_4/N_2$  等离子体发射光谱以 CN,  $C_2$  为主, 这与 Dilecce 等 [43] 的观察结果一致;  $CH_4/Air$  等离子体放电燃烧发射光谱以 OH, NH 和 CN 为主.

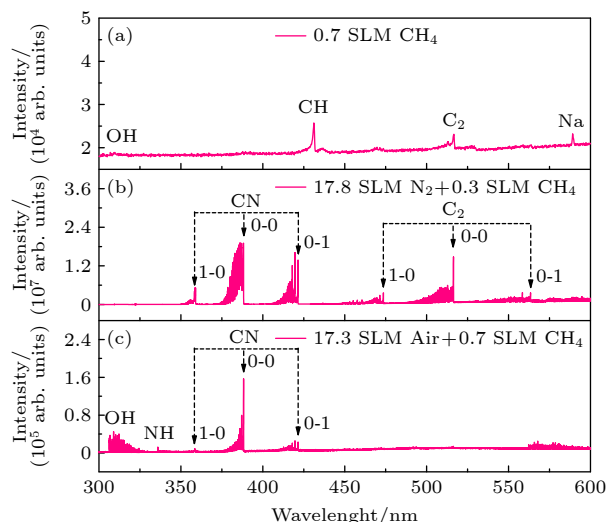


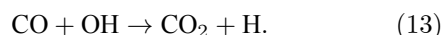
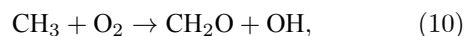
图 12 (a)  $CH_4$  在空气中扩散燃烧时的发射光谱图; (b)  $CH_4/N_2$  按照 0.3:17.8 比例预混微波等离子体放电发射光谱图 (微波功率 1200 W); (c)  $CH_4/Air$  按照 0.7:17.3 比例预混时微波等离子体放电燃烧的发射光谱图 (微波功率 1200 W)

Fig. 12. Emission spectra of (a)  $CH_4$  diffusion combustion in the ambient air without microwave plasma discharge; (b) microwave plasma discharge in  $CH_4/N_2$  with mixing ratio of 0.3:17.8 (microwave power of 1200 W); (c) microwave plasma discharge and combustion in  $CH_4/Air$  with mixing ratio of 0.7:17.3, respectively (microwave power of 1200 W).

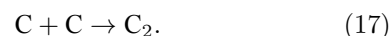
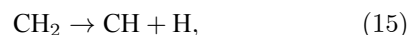
在  $CH_4/Air$  自然燃烧过程中,  $CH_4$  中一个 C—H 键在高温作用下断裂, 生成 H 和  $CH_3$ , 接着 H 和  $O_2$  迅速反应生成 O 和 OH 自由基, 反应化学式如下:



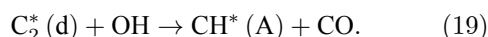
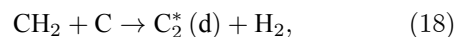
在反应 (8) 中生成的  $CH_3$  能与  $O_2$  反应生成  $CH_2O$ , 进一步地, 在 OH 和 O 自由基作用下逐步反应生成最终产物  $CO_2$  和  $H_2O$ , 如下所示:



然而, 在甲烷扩散燃烧的贫氧条件下, 氧气含量的减小将影响反应 (9)—(13) 的进行, 此时  $CH_4$  不能够充分燃烧, 结果就不能完全转化为最终产物  $CO_2$  和  $H_2O$ . 但是,  $CH_4$  会在高温作用下不断脱氢依次生成  $CH_3$ ,  $CH_2$ ,  $CH$ ,  $C$ , 与此同时  $C$  与  $C$  之间反应能够生成  $C_2$ , 反应化学式如下:



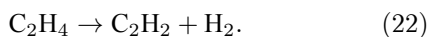
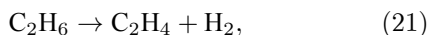
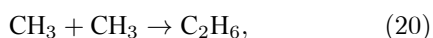
除以上反应路径外, 从图 12(a) 中观察到的  $C_2^*(d)$  是反应过程中的中间产物  $CH_2$  与  $C$  反应产生的,  $C_2^*(d)$  进一步与 OH 反应生成  $CH^*(A)$  [24], 反应化学式如下所示:



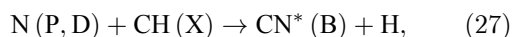
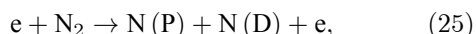
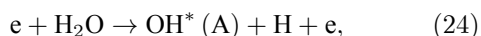
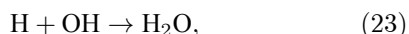
因此, 在图 12(a) 能够观察到 OH, CH,  $C_2$  谱带, 而未采集到反应过程中的中间产物  $CH_3$  和  $CH_2$  发射谱带的原因是这些分子的寿命较短. 还有,  $N_2$  分子在等离子体放电下分解产生的  $N(P, D)$  原子能够与 CH 反应生成激发态  $CN^*(B)$ , 正如在图 12(b) 和图 12(c) 中观察到 CN 谱带. 值得注意的是, 当甲烷被引入到用于微波等离子体放电的纯氮气或纯空气中时, 由于 CN 自由基的产生需要较低的活化能, 导致来自氮气相关物种的谱带 (如  $N_2$  或  $N_2^+$ ) 会被 CN 谱带所取代 [44]. 另外, 对于  $CH_4/N_2$  混合气体放电等离子体的情形中, 由于不存在  $O_2$  组分, 前述 O 原子参与的反应过程 (9)—(13) 以及 (19) 此时不会发生, 与 OH 和 CH 相应的谱带也就不存在了.

在  $CH_4/Air$  预混等离子体放电燃烧的产物中通过 FTIR 测量能够检测到高碳链烷烃. 在等离子

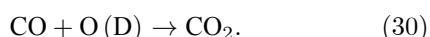
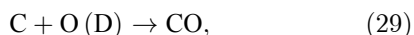
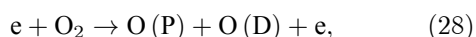
体作用下,  $\text{CH}_4$  存在高碳链烷烃生成路径, 其表现为两个  $\text{CH}_3$  反应生成高碳分子  $\text{C}_2\text{H}_6$ , 接着  $\text{C}_2\text{H}_6$  不断脱氢依次生成  $\text{C}_2\text{H}_4$  以及  $\text{C}_2\text{H}_2$ , 化学反应式如下:



其中产生的  $\text{C}_2\text{H}_2$  会与 O 自由基反应生成  $\text{CH}_2$ , 并进一步生成 CH, 最后在富氧条件下会充分反应生成  $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$ . 生成的  $\text{H}_2\text{O}$  不仅能够与高能电子碰撞生成  $\text{OH}^*(\text{A})$  和 H, 而且能够与等离子体分解产生的 N 原子反应生成  $\text{NH}^*(\text{A})$  [38], 具体反应过程如下所示:



因此, 在图 12(c) 中能观察到 OH 和 NH 谱带. 另外, 在等离子体作用下产生的 O(P, D) 自由基活性高且数量多, 能够与 C 充分反应, 如下所示:



这样就抑制了与 (18) 和 (19) 式对应的反应过程, 所以, 在图 12(c) 中未观察到  $\text{C}_2^*(\text{d})$  和  $\text{CH}^*(\text{A})$  的化学荧光.

综上, 在等离子体辅助燃烧过程中, 等离子体放电产生的高能电子碰撞分解  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2$  和  $\text{O}_2$  分子产生 OH, O(P, D), N(P, D), O, H, CH 和  $\text{CH}_3$  等活性自由基, 从而丰富了反应路径, 降低了反应活化能, 增强了燃烧过程, 在碳氢化合物燃料的燃烧过程中发挥着重要的作用.

## 4 结 论

本文开展了预混甲烷和空气在大气压微波等离子体放电燃烧的实验研究. 实验发现预混甲烷和空气稀薄燃烧极限为 0.4, 在微波等离子体放电引发燃烧后, 当  $\Phi < 0.4$  时, 预混甲烷和空气微波等

离子体放电燃烧形态基本保持稳定, 以混合气体放电诱导的燃烧过程为其主要特征, 而当  $\Phi \geq 0.4$  时, 低约化场强区的燃烧和高约化场强区混合气体的放电燃烧使得放电管的中心区发生热颈缩现象, 导致随着当量比的增大放电燃烧状态明显收缩. 此外, 利用发射光谱仪测得预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的发射光谱的特征谱带为 OH(A-X), NH(A-X) 和 CN(B-X); 通过测量轴向的光谱强度分布以及随着当量比的变化规律, 发现了近余辉的等离子体放电燃烧区和远余辉的燃烧区; 通过采集和分析 CN(B-X) 谱带的振转谱线的强度分布, 计算得到相应的振动与转动温度, 发现以稀薄燃烧极限  $\Phi = 0.4$  为分界点, 在  $\Phi < 0.4$  范围内, 振动和转动温度随着当量比的增大而降低, 而在  $\Phi \geq 0.4$  范围内, 这两个温度不随当量比的变化而改变. 最后, 根据  $\text{CH}_4$  扩散燃烧火焰、 $\text{CH}_4/\text{N}_2$  混合气体等离子体放电以及  $\text{CH}_4/\text{Air}$  混合气体等离子体放电燃烧的发射光谱对比分析, 讨论了等离子体增强燃烧过程中的反应路径, 结果表明被高能电子碰撞解离的氮分子和氧气分子所产生的 O(P, D) 和 N(P, D) 原子在碳氢化合物燃料的燃烧中发挥着重要的作用.

## 参考文献

- [1] Chu S, Majumdar A 2012 *Nature* **488** 294
- [2] Starikovskaia S M 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 353001
- [3] Denissenko P, Bulat M P, Esakov I I, Grachev L P, Volkov K N, Volobuev I A, Upyrev V, Bulat P V 2019 *Combust. Flame* **202** 417
- [4] Ju Y G, Sun W T 2015 *Prog. Energy Combust. Sci.* **48** 21
- [5] Sun W T, Uddi M, Won S H, Ombrello T, Carter C, Ju Y G 2012 *Combust. Flame* **159** 221
- [6] Tang Y, Sun J G, Shi B L, Li S Q, Yao Q 2021 *Combust. Flame* **231** 111483
- [7] Kim W, Mungal M G, Cappelli M A 2010 *Combust. Flame* **157** 374
- [8] Sun W T, Uddi M, Ombrello T, Won S H, Carter C, Ju Y G 2011 *Proc. Combust. Inst.* **33** 3211
- [9] Starikovskiy A, Aleksandrov N 2013 *Prog. Energy Combust. Sci.* **39** 61
- [10] Mu H B, Yu L, Li P, Tang C L, Wang J H, Zhang G J 2015 *Plasma Sci. Technol.* **17** 1019
- [11] Ono R, Ogura K, Mogi T 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 365201
- [12] Redondo A B, Troussard E, van Bokhoven J A 2012 *Fuel Process. Technol.* **104** 265
- [13] Cruccolini V, Discepoli G, Cimarello A, Battistoni M, Mariani F, Grimaldi C N, Dal Re M 2020 *Fuel* **259** 116290
- [14] Chintala N, Bao A, Lou G F, Adamovich I V 2006 *Combust. Flame* **144** 744
- [15] Wolk B, DeFilippo A, Chen J Y, Dibble R, Nishiyama A,



- Ikeda Y 2013 *Combust. Flame* **160** 1225
- [16] Ehn A, Petersson P, Zhu J J, Li Z S, Aldén M, Nilsson E J K, Larfeldt J, Larsson A, Hurtig T, Zettervall N, Fureby C 2017 *Proc. Combust. Inst.* **36** 4121
- [17] Zhang X L, Niu Y L, Li S Z, Cao S L, Ji C J 2021 *Phys. Plasmas* **28** 123511
- [18] Li S Z, Niu Y L, Cao S L, Zhang J, Zhang J L, Li X C 2022 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **55** 235203
- [19] Mao X Q, Chen Q, Guo C H 2019 *Energy Convers. Manage.* **200** 112018
- [20] Kang H, Choi S, Jung C M, Kim K T, Song Y H, Lee D H 2020 *Int. J. Hydrogen Energy* **45** 30009
- [21] Feng R, Li J, Wu Y, Jia M, Jin D 2020 *Aerosp. Sci. Technol.* **99** 105752
- [22] Hong Y C, Uhm H S 2006 *Phys. Plasmas* **13** 113501
- [23] Wang C J, Wu W 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** 464008
- [24] Wu W, Fuh C A, Wang C J 2015 *Combust. Sci. Technol.* **187** 999
- [25] Fuh C A, Wang C J 2020 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **48** 2646
- [26] Hemawan K W, Wichman I S, Lee T, Grotjohn T A, Asmussen J 2009 *Rev. Sci. Instrum.* **80** 053507
- [27] Dedic C E, Michael J B 2021 *Combust. Flame* **227** 322
- [28] Wu W, Fuh C A, Wang C J 2015 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **43** 3986
- [29] Wang Z, Huang J, Wang Q, Hou L Y, Zhang G X 2015 *Combust. Flame* **162** 2561
- [30] Stockman E S, Zaidi S H, Miles R B, Carter C D, Ryan M D 2009 *Combust. Flame* **156** 1453
- [31] Hammack S, Lee T, Carter C 2012 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **40** 3139
- [32] Michael J B, Chng T L, Miles R B 2013 *Combust. Flame* **160** 796
- [33] Li Y H, Chen C T, Fang H K 2019 *Energy* **188** 116007
- [34] Hwang J, Bae C, Park J, Choe W, Cha J, Woo S 2016 *Combust. Flame* **167** 86
- [35] Ward M A V 1980 *J. Microwave Power* **15** 193
- [36] Chen B S, Garner A L, Bane S P M 2019 *Combust. Flame* **207** 250
- [37] Zhang X H, Wang Z W, Wu H M, Zhou D, Huang S, Cheng X B, Chen J Y 2020 *Combust. Flame* **222** 111
- [38] Kammermann T, Kreutner W, Trottmann M, Merotto L, Soltic P, Bleiner D 2018 *Spectrochim. Acta Part B* **148** 152
- [39] Kojima J, Ikeda Y, Nakajima T 2005 *Combust. Flame* **140** 34
- [40] Fuh C A, Clark S M, Wu W, Wang C J 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 163303
- [41] Chen Z Y, Peng Y B, Wang R, He Y N, Cui W Z 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 240702 (in Chinese) [陈泽煜, 彭玉彬, 王瑞, 贺永宁, 崔万照 2022 物理学报 **71** 240702]
- [42] Zhu X R, Khateeb A A, Roberts W L, Guiberti T F 2021 *Combust. Flame* **231** 111508
- [43] Dilecce G, Ambrico P F, Scarduelli G, Tosi P, De Benedictis S 2009 *Plasma Sources Sci. Technol.* **18** 015010
- [44] Hu W, Tang J Y, Wu J D, Sun J, Shen Y Q, Xu X F, Xu N 2008 *Phys. Plasmas* **15** 073502

# Experimental study on microwave plasma discharge and combustion of premixed methane and air at atmospheric pressure<sup>\*</sup>

Cao Shu-Li<sup>1)2)</sup> Li Shou-Zhe<sup>1)2)†</sup> Niu Yu-Long<sup>1)2)</sup>

Li Rong-Yi<sup>3)</sup> Zhu Hai-Long<sup>3)</sup>

1) (*Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Ministry of Education, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*)

2) (*School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*)

3) (*College of Physics and Electronic Engineering, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

( Received 26 April 2023; revised manuscript received 26 May 2023 )

## Abstract

In this work, we carry out the experiments on an atmospheric-pressure premixed methane and air microwave plasma discharge combustion with premixed methane and air to study the morphology, the spatial distribution of species, and the temperature characteristics for various microwave power values and methane-to-air equivalent ratios ( $\Phi$ ) at a series of measurement positions. The experimental results show that the equivalent ratio of 0.4 corresponds to the limit value for lean-combustion of premixed methane and air. And for  $\Phi < 0.4$ , the discharge flame is mainly characterized by the combustion induced by premixed methane and air microwave plasma discharge, while, for  $\Phi \geq 0.4$ , the discharge flame is constricted into filaments radially, and the natural combustion occurs in the region of low reduced electric strength and the combustion induced by plasma discharge in the region of high reduced electric strength, which affect each other. The variations of emission intensity of OH (A-X) band, NH (A-X) band and CN (B-X) band with the measuring position and the equivalent ratio  $\Phi$  are measured by using optical emission spectrometry (OES). It is found that the discharge combustion occurs in near afterglow and the combustion in far afterglow. And the vibrational temperature and the rotational temperature of the plasma discharge combustion are determined by analyzing the emission bands of CN(B-X) and the variations of both vibrational and rotational temperatures with equivalent ratio, exhibiting very different varying tendencies for cases of  $\Phi < 0.4$  and  $\Phi \geq 0.4$ , respectively. Finally, the reaction pathway and mechanism are discussed on the basis of the comparative analyses of the emission spectra of CH<sub>4</sub> diffusion combustion flame, premixed methane and nitrogen microwave plasma discharge, and premixed methane and air microwave plasma discharge combustion.

**Keywords:** atmospheric pressure, microwave plasma, discharge, methane

**PACS:** 52.25.-b, 32.30.Bv, 52.50.Sw, 88.20.fq

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230676

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11975003) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. DUT22LAB105).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [lisz@dlut.edu.cn](mailto:lisz@dlut.edu.cn)



## 常压下预混甲烷和空气微波等离子体放电燃烧的实验研究

曹树利 李寿哲 牛裕龙 李容毅 朱海龙

## Experimental study on microwave plasma discharge and combustion of premixed methane and air at atmospheric pressure

Cao Shu-Li Li Shou-Zhe Niu Yu-Long Li Rong-Yi Zhu Hai-Long

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 155201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230676

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230676>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

大气压甲烷针-板放电等离子体中粒子密度和反应路径的数值模拟

Numerical simulation on particle density and reaction pathways in methane needle-plane discharge plasma at atmospheric pressure

物理学报. 2018, 67(8): 085202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172192>

大气压非平衡等离子体甲烷干法重整零维数值模拟

Zero-dimensional numerical simulation of dry reforming of methane in atmospheric pressure non-equilibrium plasma

物理学报. 2021, 70(7): 075206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201700>

大气压脉冲放电等离子体射流特性及机理研究

Discharge characteristics and mechanism of plasma plume generated by atmospheric pulsed discharge

物理学报. 2021, 70(9): 095202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202246>

大气压电晕等离子体射流制备氧化钛薄膜

Deposition of titanium oxide films by atmospheric pressure corona discharge plasma jet

物理学报. 2021, 70(9): 095205 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202181>

大气压氩气刷形等离子体羽的特性研究

Discharge characteristics of argon brush plasma plume operated at atmospheric pressure

物理学报. 2021, 70(15): 155201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202091>

微波谐振腔低气压放电等离子体反应动力学过程

Reaction dynamic process of low pressure discharge plasma in microwave resonant cavity

物理学报. 2022, 71(24): 240702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221385>