

■原著論文/ORIGINAL PAPER■

# 非平衡プラズマによる着火促進のシミュレーション Simulation of Ignition Enhancement by Non-Thermal Plasma

滝田 謙一<sup>1\*</sup>・JU, Yiguang<sup>2</sup>

TAKITA, Kenichi<sup>1\*</sup> and JU, Yiguang<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院工学研究科 〒980-8579 仙台市青葉区荒巻青葉 6-6-01  
Tohoku University, 6-6-01 Aoba, Aramaki, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

<sup>2</sup> プリンストン大学機械航空工学科  
Princeton University, Princeton, NJ 08544, U.S.A.

2007年6月25日受付; 2007年9月20日受理/Received 25 June, 2007; Accepted 20 September, 2007

**Abstract :** Ignition enhancement effect by using a non-thermal (non-equilibrium) plasma generated by a nanosecond high-voltage discharge was numerically investigated. Electron-impact reactions and ion recombination reactions were added to an oxidation mechanism of Methane and Hydrogen fuels in order to consider an interaction between plasma and flame. The results showed that the non-thermal plasma drastically reduced ignition delay times of premixed gases of Methane and Hydrogen fuels and its effectiveness increased with discharge time and strength of the electric field. Moreover, it was confirmed that an efficiency of the non-thermal plasma for ignition enhancement was higher than that of a thermal plasma.

**Key Words :** Ignition, Plasma, Non-equilibrium, Radical

## 1. 緒言

著者らは、スクラムジェットエンジンにおける強制点火器としてプラズマジェット (PJ) トーチを研究[1-5]してきた。PJ トーチの利点は、O 原子等の多くの活性ラジカルを直接、燃焼場に供給できる点であると考えられている。図1には、例として水素/空気量論混合気少量の O ラジカルを添加した場合の着火遅れ時間の変化を示す。ラジカル添加により着火遅れ時間が大幅に短縮されており、特に着火限界付近では、モル分率 (C(O)) で 0.01 % のラジカル添加により 2 桁程、着火遅れ時間が短くなっている。このようにラジカルの存在が着火を著しく促進するのは明らかであるが、PJ トーチの実験結果において、ラジカルの効果のみを陽的に抽出するのは困難であった。PJ 上流から燃料を噴射した場合、燃料が直接、高温の PJ に衝突し、投入電力が高ければ容易に着火、強い燃焼が起こる。一方、PJ 下流から燃料を噴射した場合、ほとんどの条件で強い燃焼を起こすことはできなかった。それらの傾向は、作動ガス種つまりはラジカル種や燃料の種類には依存しなかった。ラジカルの失活は極めて早く、その存在領域は PJ の極めて

限られた高温領域のみである。結局、投入電力の大きさが着火の成否を決定する最大の要因となる。

近年、極めて短時間の高電圧印加により非平衡プラズマを発生させ、それにより着火、燃焼を促進させる試み[6,7]

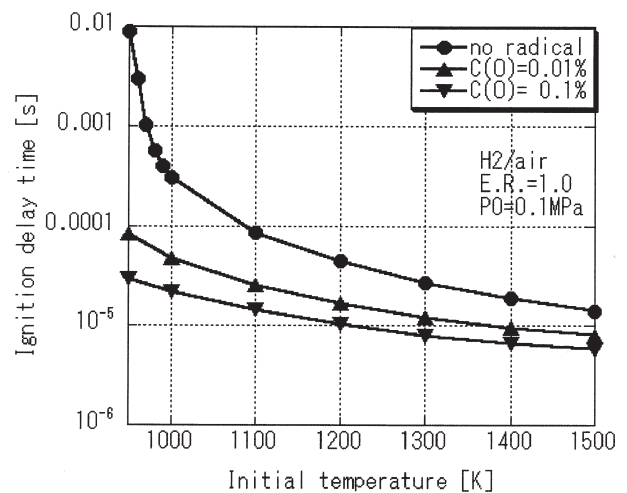


Fig.1 Effect of O radical addition on ignition delay time of H<sub>2</sub>/air mixture

\* Corresponding author. E-mail: takita@cc.mech.tohoku.ac.jp

が多くなされている。印加時間が極めて短いため、長時間電力を供給し続けなければならないPJトーチのような熱プラズマよりエネルギー効率が高いと考えられ、スクラムジェットエンジンの点火器[8,9]としても検討されている。非平衡プラズマの着火促進性を予測するには、電子温度や電子衝突反応を考慮し、プラズマ反応と燃焼反応のカップリング[10]を行わなければならない。単に初期のラジカル濃度の影響を考察する従来の着火解析法[1,3]では、非平衡プラズマによる着火促進過程を解析できない。そこで、本研究では、プラズマ特性や電子衝突反応によるラジカル、イオンの生成等を組み込んだ着火解析手法の確立を試みた。

## 2. 計算方法

### 2.1. 計算方法

本研究では高電圧印加によりプラズマ化したメタン/空気予混合気または水素/空気予混合気の着火遅れ時間を計算し、印加時間や印加電場の大きさが混合気の着火遅れに与える影響を調べる。

#### 2.1.1. 平均電子温度の算出

印加する電場の強さ、混合気の組成からボルツマン方程式を解き、電子のエネルギー分布を求め、その平均電子エネルギー[eV]を平均電子温度( $T_e$ )[K]に換算した。尚、印加する電場の強さをここでは換算電界すなわち電界強度Eと粒子数密度nとの比E/nで表し、その単位としてタウンゼント[Td: 1 Td =  $1 \cdot 10^{-17}$  V · cm<sup>2</sup>]を用いる。ボルツマン方程式の解析には汎用ソフトであるBolsigコード[11]を用いた。図2には、メタン/空気混合気の場合の平均電子エネルギーの当量比(E.R.)依存性を示す。図において、1 eV = 11,604 Kである。予混合気の場合、平均電子エネルギーの当量比への

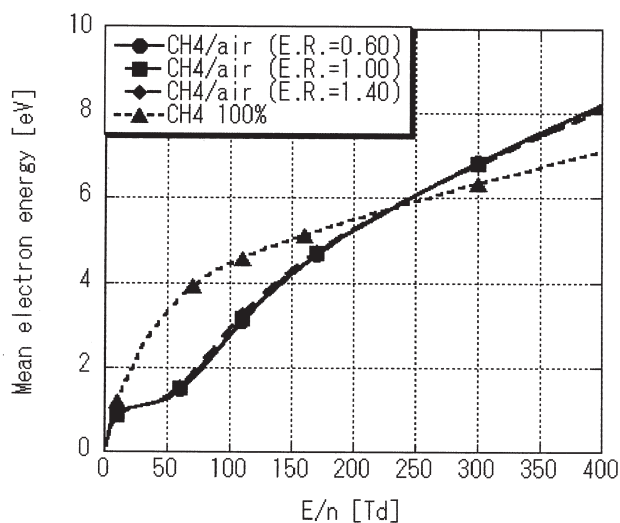


Fig.2 Effect of equivalence ratio of CH<sub>4</sub>/air mixture on mean electron energy

依存性はほとんどないことがわかる。メタン単独ガスの場合、異なる分布を示す。また、初期ガス温度への依存性はほとんどない結果であった。

#### 2.1.2. 電子衝突反応解析

平均電子温度を用いて電子衝突反応[12] (15 中性粒子, 9 イオン, 電子, 30 素反応) の反応速度( $k$ )を算出し、高電圧印加時間後の各ラジカル、イオン、電子のモル分率を計算する。本研究で用いた電子衝突反応を用いることにより、メタンプラズマの主要生成物モル濃度と投入エネルギーの関係を調べた実験結果をよく再現できることがYang[12]により報告されている。電子衝突反応の反応速度は次のように電子温度に対するアレニウス型で表示されることを利用し、計算はCHEMKINコード[13]を改良して行った。

$$k_j = A_j T_e^{B_j} \exp(-C_j / T_e) \quad (1)$$

上の式でA, B, Cは定数、 $k_j$ の単位は[molecules<sup>n</sup> · cm<sup>m</sup> · s<sup>-1</sup>]。また、本解析では中性粒子同士の反応から電子を生成する過程を含んでいないため、電子濃度の初期値として微量(モル分率で $10^{-20}$ 程度)を仮定しているが、電子生成、増殖過程が極めて速いため、初期濃度への依存性は小さいことを確認している。また、高電圧印加時には、プラズマ反応と中性粒子間の反応が同時進行するが、後に示すように着火遅れ時間に占める高電圧印加時間の割合が小さいため、この間の中性粒子同士の反応の影響は小さい。尚、励起されてエネルギー準位の高い分子の反応は含んでいない。メタンと水素の解析は同じ反応機構を用いた。

図3には、量論混合比のメタン/空気混合気に強さ130 [Td]の電場を印加した時の代表的な生成物モル分率の時間履歴を示す。印加開始後、電子(e<sup>-</sup>)、イオン(CH<sub>3</sub><sup>+</sup>)、ラジカル(H)が同時に生成されていく様子がわかる。

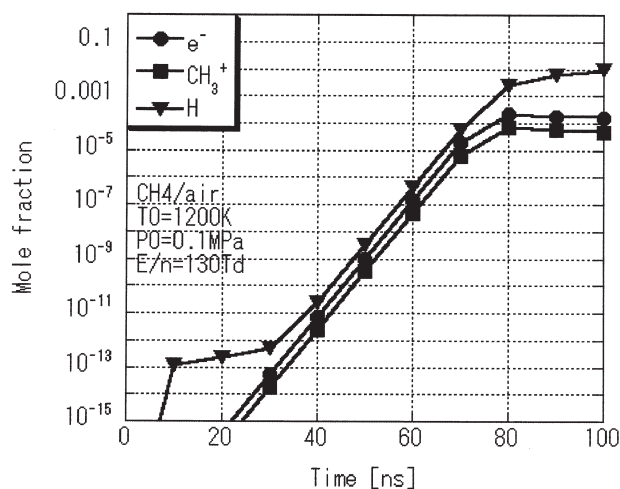


Fig.3 Formation of electron, ions, and radicals by high-voltage discharge to CH<sub>4</sub>/air mixture

### 2.1.3. 燃焼反応解析

高電圧印加を止め, その時点での混合気組成を初期条件として予混合気の着火・燃焼反応の解析を行う. 反応計算には GRI Mech. Ver.3.0 [14] (53 中性粒子, 325 素反応) に, 次のような形のイオンと電子の再結合反応[15]を加えて行った.



これらの反応過程における温度はガス温度とし, 電圧を印加していないため電子衝突反応は考慮しない. また, 着火遅れ時間の解析には CHEMKIN パッケージ[13]の SENKIN コードを用いた. 着火時間の定義は高電圧印加前の混合気の温度から 200 K 上昇した時点とした.

### 2.2. 熱化学データの算出

着火遅れ時間の解析には各化学種のエンタルピーのデータが必要になるが, 多くのイオン種 (例えば  $CH_4^+$ ,  $CH_2^+$  等) は文献等からデータを見つけてはできなかった. 従来, 通常火炎に含まれるイオン種 (例えば  $CHO^+$ ,  $H_3O^+$ ,  $C_3H_3^+$  等) のデータはよく調べられているが, 火炎以外のプラズマとの干渉効果については研究されていなかったためである. そこで, CHEMKIN ライブラリーに含まれている同じ組成の中性化学種のエンタルピーの温度による近似多項式において, 生成エンタルピーの値だけをイオンの値[16,17]に代えた多項式を用いて近似した. また, 電子の持つエンタルピーは平均電子温度の算出の際に求めた平均電子エネルギーから算出した.

## 3. 計算結果および考察

### 3.1. 着火遅れ時間

図 4 には, 量論混合比のメタン/空気混合気の着火遅れ時間への高電圧印加時間の影響を調べた結果を示す. 混合気初期温度は 1,200 K, 雰囲気気圧力は 0.1 MPa の結果である. 印加時間は着火遅れ時間より 4 桁から 5 桁短く, 極めて短時間である. 印加時間が長くなると, 電子衝突反応によりメタン, 酸素, 窒素の各分子のラジカルやイオンへの分解反応が進む. そして, それら活性化学種の増加に伴い, 着火遅れ時間が短縮されていく. 当然, 印加される電場の強さが強いほど, 着火遅れ時間の短縮が見られる印加時間は小さくなる. 図 5 には, 着火遅れ時間に及ぼす印加する電場の大きさの影響を示す. ある程度の電場の大きさまでは, ほとんど効果が現れないが, 効果が現れる電場強さを越えると一気に着火時間が短くなっていく傾向が見られる. 着火遅れ時間の短縮は電子衝突反応により生成したラジカル濃度に支配されると考えられ, 着火促進メカニズムは従来のラジカル添加解析と同様である.

非平衡プラズマは平衡 (熱) プラズマより効率的に着火促

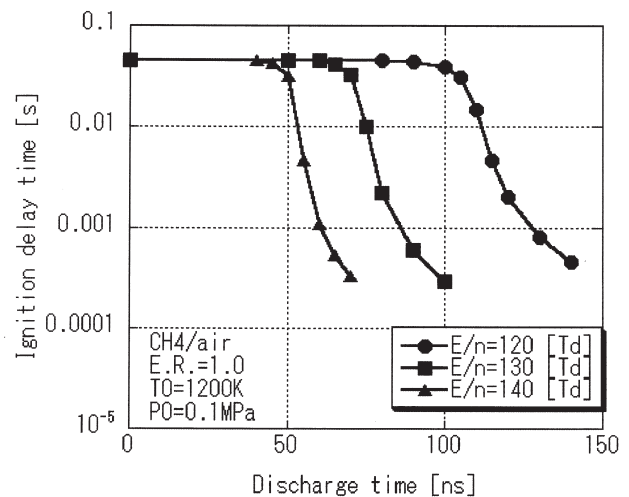


Fig.4 Effect of discharge time on ignition delay time of CH<sub>4</sub>/air mixture

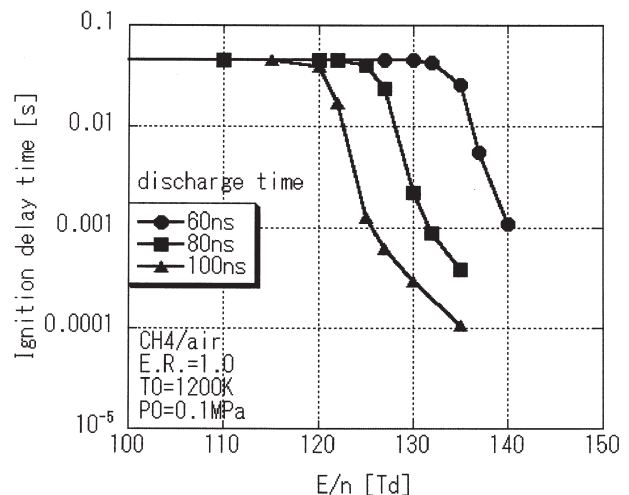


Fig.5 Effect of strength of electric field on ignition delay time of CH<sub>4</sub>/air mixture

進を行えると報告[6,7]されている. そこで, 平衡プラズマと非平衡プラズマの着火促進に対するエネルギー効率の比較を試みた. まず, 非平衡プラズマの計算において, 高電圧印加前後の混合気が有するエンタルピーを求め, その差 ( $\Delta H$ ) を求める. このエンタルピー差を印加前の混合気の比熱 ( $C_{p0}$ ) で割り, 温度上昇量 ( $\Delta T$ ) に換算する. 初期温度にこの温度上昇量を加えた温度 ( $T_0'$ ) において着火解析を行い, 求めた着火遅れ時間を平衡プラズマによる着火時間と定義した.

$$\Delta T = \Delta H / (\rho_0 C_{p0}) \quad (4)$$

$$T_0' = T_0 + \Delta T \quad (5)$$

図 6 には初期温度 1,200 K, 雰囲気気圧力 0.1 MPa, 電場の強さ 130 Td において生成した非平衡プラズマの各印加時

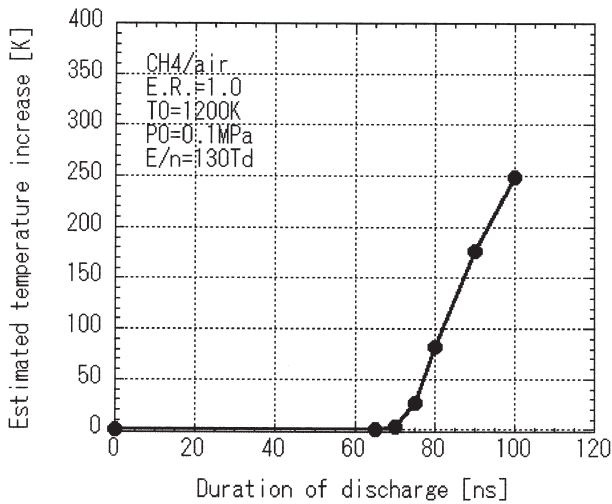


Fig.6 Estimated temperature increase

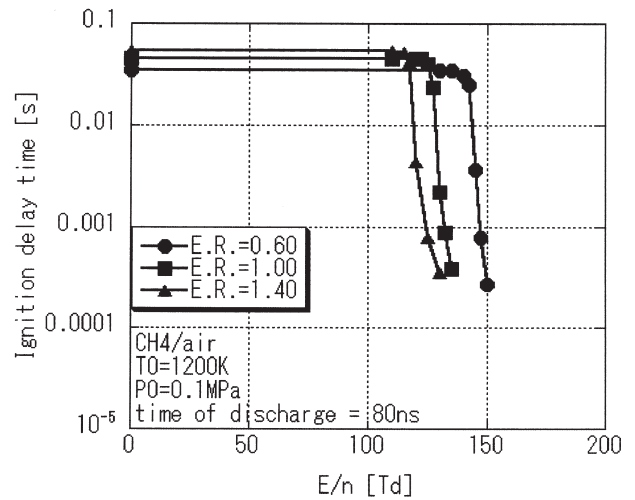


Fig.9 Effect of equivalence ratio of CH<sub>4</sub>/air mixture on relation between strength of electric field and ignition delay time

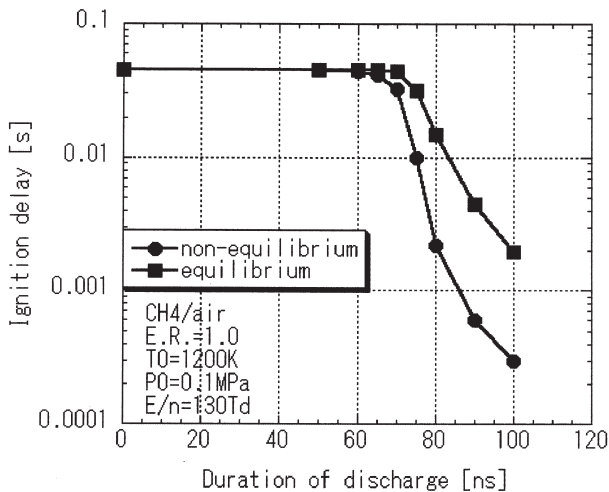


Fig.7 Comparison of energy efficiency for ignition enhancement effect between non-thermal plasma and thermal plasma

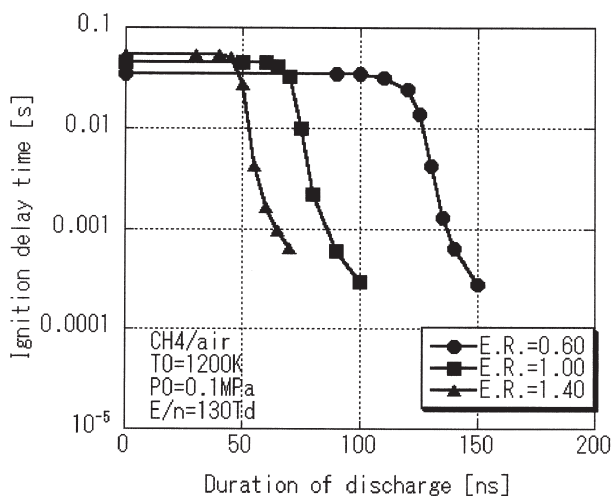


Fig.8 Effect of equivalence ratio of CH<sub>4</sub>/air mixture on relation between discharge time and ignition delay time

間に対する平衡プラズマに換算した温度上昇量を示す。印加時間が 70 ns を越えると大きく上昇し始めており、予混合気の分解が進んでいることがわかる。図 7 に量論混合比のメタン/空気混合気について、平衡(熱)プラズマと非平衡プラズマを比較した結果を示す。着火遅れ時間が短縮され始める印加時間が非平衡プラズマのほうが短く、同じ印加時間であれば着火遅れ時間の短縮率が非平衡プラズマのほうが大きいことがわかる。例えば、印加時間 100 ns の時、非平衡プラズマの着火遅れ時間は平衡プラズマの着火遅れ時間の約 7 分の 1 である。この結果は非平衡プラズマのほうが効率的に着火促進できることを示している。次に混合気の当量比が非平衡プラズマによる着火促進効果に及ぼす影響を調べた。

図 8 は当量比を 0.6, 1.0, 1.4 とした場合の着火遅れ時間の比較を示す。電場の強さは 130 Td とした。図から、当量比 1.40 の燃料過剰の混合気において、最も短い印加時間で着火遅れ時間の短縮が見られる。混合気が希薄になるにつれて、着火遅れ時間の短縮効果が現れる印加時間が長くなる。プラズマ化していない通常のメタン/空気予混合気の場合、最も着火遅れ時間が短いのは当量比 0.60 の希薄混合気であり、燃料濃度が増加するにつれて着火遅れ時間は大きくなる。高電圧印加の影響はこれとは逆の傾向となった。図 9 には、着火遅れ時間と電場強さの関係に及ぼす当量比の影響を示す。当量比が大きくなるほど、着火遅れの短縮が見られる電場強さが小さくなる。

### 3.2. 感度解析

非平衡プラズマによる着火促進プロセスをより詳細に調べるため、電子衝突反応の感度解析を行った。その結果、次の 2 つの電子生成過程が最も重要であることがわかった。

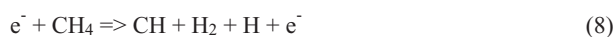


Table 1 Rate coefficients of reactions (6) and (7)

Reaction No.	$A_j$	$B_j$	$C_j$
(6)	1.71E-8	0.1185	204926.7
(7)	2.85E-12	0.835	187172.5



上式の反応により生成された電子が以下に示す電子衝突反応 ((8)-(10)) により, 多くのラジカルを生成し, それらのラジカルの存在によりメタンの酸化反応が促進される. (8)-(10) の反応は全体の着火遅れ時間に対して影響の大きい順に記したものであり, 他にも多くの反応が寄与している. (6),(7) の反応はメタン濃度に依存し, 結局, これが前節でメタン濃度が大きいほど着火促進効果が大きくなった理由であると考えられる. 表 1 には反応 (6),(7) の速度定数 [12] を示す. これらの速度定数は計算値であり, その精度に関して出典論文[12]に詳細な記述はなく, 定数を変化させると各反応の重要度の序列が若干異なる結果となる可能性もある. しかし, メタン分子への電子衝突反応において, 特定のラジカルを生成する反応ではなく, 2 個の電子とイオンを生じる電子増殖反応が支配的であるという結論は変わらないと考える. 一方, (6),(7) の反応で生成されるイオンについては, 本解析では電子との再結合反応しか含んでいないため, 着火促進への寄与は考慮されていない. 今後の課題であると思われる.



### 3.3. 水素/空気混合気の解析

メタン同様, 水素に対しても次のような電子衝突反応 (11),(12) により, 非平衡プラズマによる着火促進効果が期待できる. Bozhenkov et al.[6]は, 水素分子の衝突断面積がメタン分子の衝突断面積よりも大きく, また混合気中における水素のモル分率が大きいため, 水素/空気予混合気のほうがメタン/空気予混合気よりも電子衝突反応による着火促進効果が大きくなると報告している.



図 10 には, 高電圧印加が量論混合比の水素/空気混合気の着火遅れ時間に及ぼす影響を調べた結果を示す. また,

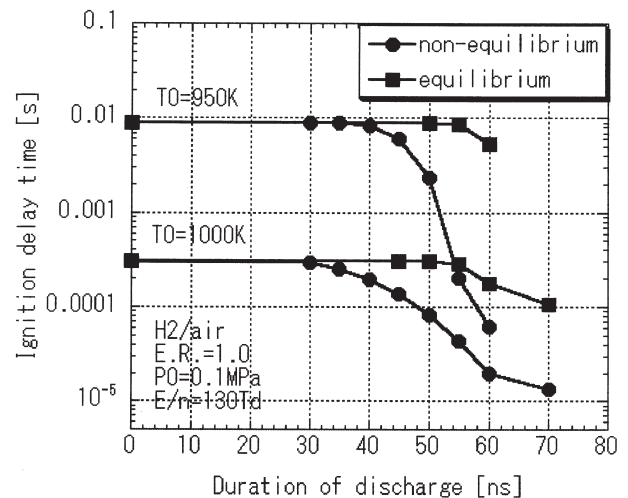


Fig.10 Comparison of ignition enhancement effect for H<sub>2</sub>/air mixture between thermal plasma and non-thermal plasma

比較のため, メタン/空気混合気の場合と同様な手法で求めた平衡プラズマによる着火遅れ時間も示してある. 初期温度は 950 K と 1,000 K の 2 例, 雰囲気気圧力は 0.1 MPa, 電場の強さは 130 Td の結果である. 図から, メタン/空気混合気同様, 非平衡プラズマのほうが平衡プラズマより着火遅れ時間の短縮が見られる印加時間が短く, 同一の印加時間であれば着火遅れ時間が短いことがわかる. 水素に関しても, 非平衡プラズマのほうが効率よく着火促進を達成できることを示している.

## 4. 結論

短時間高電圧印加により発生する非平衡プラズマによる着火促進効果の解析手法を提案し, 解析を実施した結果, 次のような結論を得た.

印加時間が長いほど, また印加する電場の強さが強いほど, 着火促進効果が大きくなる. 同じ投入エネルギーであれば, 非平衡プラズマのほうが平衡プラズマより着火促進効果が大きい. また, これらの結果は燃料の種類によらないことが明らかとなった.

CH\* 等の励起分子の反応[10,15], 各イオンと中性粒子の反応等はまだ組み込まれておらず, 今後それらについても導入していく必要がある. また, 着火実験においては流れが存在しており, 荷電粒子の拡散等も着火現象における重要な因子となる. 反応場と流れ場のカップリングも今後の課題である.

## 謝辞

本研究は NEDO 平成 18 年度産業技術研究助成事業 (プロジェクト ID: 06D45801d) により成されたものであり, 謝意を表す.

## References

1. Takita, K., *Combust. Flame* 128: 301-313 (2002).
2. Kitagawa, T., Moriwaki, A., Murakami, K., Takita, K., Masuya, G., *J. Prop. Power* 19: 853-858 (2003).
3. Takita, K., *Combust. Sci. and Tech.* 175: 743-758 (2003).
4. Takita, K., Murakami, K., Nakane, H., Masuya, G., *Proc. Combust. Inst.* 30: 2843-2849 (2005).
5. Takita, K., Abe, N., Masuya, G., Ju, Y., *Proc. Combust. Inst.* 31: 2489-2496 (2007).
6. Bozhenkov, S.A., Starikovskaia, S.M., Starikovskii, A.Y., *Combust. Flame* 133: 133-146 (2003).
7. Starikovskii, A.Y., *Proc. Combust. Inst.* 30: 2405-2417 (2005).
8. Klimov, A., Bityurin, V., Moralev, I., Tolkunov, B., Vystavkin, N., *AIAA-Paper* 2005-3248 (2005).
9. Yarantsev, D.A., Leonov, S.B., Biturin, V.A., Savelkin, K.V., *AIAA-Paper* 2005-3396 (2005).
10. Ju, Y., Macheret, S.O., Shneider, M.N., Miles, R.B., and Sullivan, D.J., *AIAA-Paper* 2004-3707 (2004).
11. Kinema Research & Software, SIGLO Series, <http://www.kinema.com/>
12. Yang, Y., *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 23: 327-346 (2003).
13. Kee, R.J., Grcar, J.F., Smooke, M.D., Miller, J.A., Sandia National Laboratories Report, SAND85-8240 (1985).
14. Smith, G.P., Golden, D.M., Frenklach, M., Moriarty, N.W., Eitener, B., Goldenberg, M., Bowman, C.T., Hanson, R.K., Song, S., Gardiner Jr., W.C., Lissianski, V., Qinj, Z., GRI-Mech homepage, Gas Research Institute (1999).
15. Eranslan, A.N., Brown, R.C., *Combust. Flame* 74: 19-37 (1988).
16. Anicich, V.G., Blake, G.A., Kim, J.K., McEwan, M.J., Huntress, Jr., T.H., *J. Physical Chemistry* 88: 4608-4617 (1984).
17. NIST Standard Reference Database No.69, <http://webbook.nist.gov/chemistry/> (2005).