

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560249

研究課題名(和文) 非平衡プラズマによる高圧可燃予混合気の着火機構に関する研究

研究課題名(英文) Ignition of compressed air-fuel mixture by non-equilibrium plasmas

研究代表者

高橋 栄一 (TAKAHASHI, EIICHI)

独立行政法人産業技術総合研究所・エネルギー技術研究部門・上級主任研究員

研究者番号：90357369

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：内燃機関の希薄燃焼に基づく熱効率向上のために、近年、非平衡プラズマによる体積的な着火、燃焼促進技術が注目されている。本研究では、非平衡プラズマ放電を広範囲に生成するための放電形成機構、およびそれら非平衡プラズマによる着火、燃焼支援機構について調べた。その結果、空間に残存するプラズマの電子分布が連続放電に与える影響、並びに非平衡プラズマが照射された予混合気の圧縮着火遅れ時間が短くなることが明らかとなった。特にメタンの予混合気において、プラズマにより形成された化学種の質量分析、および着火遅れ時間のシミュレーションとの比較を行い、ホルムアルデヒドによる促進効果の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：Non equilibrium plasmas are receiving special interest to improve thermal efficiency of the internal combustion engines because of its potential on volumetric ignition achievement and the use of alternative chemical reactions. Physics of the non-equilibrium discharge formation for the volumetric ignition and enhancement of ignition and combustion by the irradiation of the plasma to the air/fuel mixtures were studied. The effect of spatial plasma distribution to the morphology of the successive discharge and the shortening of ignition delay on compression ignition were examined. It was found the formaldehyde is the plausible candidate which enhances the compression ignition of methane/air mixture based on the mass spectral analysis and chemical kinetic simulations.

研究分野：プラズマ物理

キーワード：非平衡プラズマ 体積的着火 希薄燃焼 ストリーマ放電 誘電体バリア放電

1. 研究開始当初の背景

(1) 地球温暖化の防止や化石燃料の有効利用の観点から、自動車エンジンやコジェネレーション等の内燃機関の更なる熱効率の向上が求められている。そのための有力な方法の一つは希薄燃焼の実現である。しかし、希薄予混合気中の着火および燃焼は基本的に困難となるため、新たな着火や燃焼促進法の開発が必要とされていた。

(2) その様な状況のなかで、ストリーマ放電などに代表される非平衡プラズマは、従来のスパーク放電の様な熱を用いた着火が局所的なものであることに対して、体積的な着火を実現できる可能性を有しているため注目されていた。さらに、非平衡プラズマは電子のエネルギーが気体中のイオンや中性分子に比べて高く、熱平衡状態では形成が極めて困難な反応性の高いラジカルの形成も期待できる。しかし、反応性の高いラジカルはその寿命も短く、投入エネルギーの限られる非平衡プラズマ放電において形成される密度も限られるため、それが着火、燃焼促進にどの様に影響を及ぼしているかは定かではなかった。また、非平衡プラズマ放電の投入エネルギーを増すために、ストリーマ放電を繰り返し行う試みも多く行われていたが、放電形成初期と後期において放電の形状は大きく異なり、ストリーマ放電の特徴である、大きな電界強度を有する電界構造の形成も定かではなかった。

2. 研究の目的

本研究ではストリーマ放電に代表される非平衡プラズマ放電を広範囲に形成するために必要なプラズマ形成機構の理解、およびそれら非平衡プラズマ放電による着火、燃焼支援実験を実施し、プラズマ中に形成された着火・燃焼に寄与する化学種を分析し、化学動力学シミュレーションと併せて検討する事を目的とする。

3. 研究の方法

(1) 着火・燃焼支援に向けて、ストリーマ放電を広い空間の範囲に形成するためには、繰り返し放電における、あるサイクルのストリーマ放電がその前の放電からどの様な影響を受けるかを調べる必要がある。実際、繰り返し放電では繰り返しが進むにつれて放電領域が狭くなり、従来のスパーク放電に近くなる傾向が見られる。そこで、本研究では高電圧を高速でスイッチング可能な MOSFET スイッチを用いて、矩形の電圧のダブルパルスを生じ、それぞれの電圧パルスを針電極に印加することでストリーマ放電を連続して形成した。ダブルパルスの時間間隔を変化させることで、前の放電が後の放電に対して与える影響を、圧力、酸素分圧の影響も含めて詳細に調べた。

(2) 次に、非平衡プラズマが予混合気の着火

燃焼に与える影響を調べるため、予混合気中で放電を形成し、その照射を受けたガスを急速圧縮膨張装置で圧縮し、自己着火における着火遅れ時間への影響を調べるとともに、それらプラズマが照射されたガスの成分を検知管や質量分析法を適用して調べた。特に、プラズマによって形成される化学種に関して、照射効果が持続する“寿命”についての評価を実施した。また、形成が予想される化学種の候補が無い状況では質量分析が有効な方法の一つであるが、一般に用いられている電子線によるイオン化では化学種のフラグメント化が懸念される。そこで、本研究ではイオン付着法によるソフトイオン化を行い、ほぼフラグメントフリーの分析を実現した。イオン付着質量分析によって得られたプラズマ照射ガスの成分と、照射された予混合気の圧縮着火時間遅れの結果を化学動力学シミュレーションによる依存性と比較した。

4. 研究成果

(1) 非平衡プラズマを広範囲に形成する技術開発において、時間的に連続する放電において前の放電が後の放電に与える影響を調べるため、矩形のナノ秒高電圧ダブルパルスを針電極に印加する実験を実施した。主な実験結果を図1に示す。

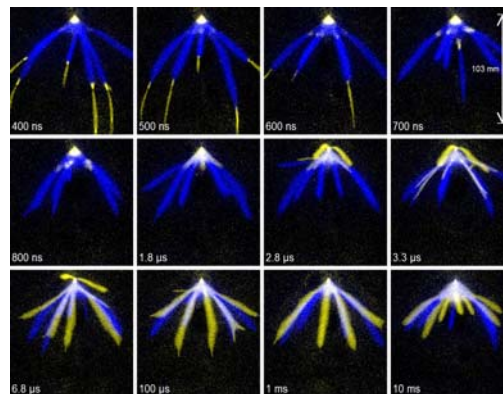


図1:ダブルパルスストリーマ放電像

実験は放電を見やすくするために 133mbar に減圧した放電容器の中で実施した。図中の数字はダブルパルスの時間間隔を表している。ICCDカメラを2台用いて先の放電像と後の放電像をそれぞれ取得し、色を青と黄色にして重ね合わせている。これから分かるように、時間間隔が 600ns 以下と短い場合には後の放電は最初の放電を延長して形成している。これは、時間間隔が短い場合には先の放電で形成されたプラズマの導電率がまだ高く維持されているため、あたかも針電極が空間に維持されている様に延長されたものと考えられる。次にさらに長い時間間隔である 700ns から 1.8μs においては、後のパルスによるストリーマ放電は抑制されていることがわかる。2 番目の電圧パルスによって放電が始まるのは時間間隔が 2.8μs 以降であり、その場

合も放電は前の放電路の周縁を沿う様に伝搬していることが分かった。このことは、繰り返しナノ秒パルスを用いた着火実験においても、繰り返し周波数が高過ぎれば、前の放電が後の放電路に対して強い影響を及ぼすことを示している。この実験のパラメータ条件では、時間間隔が 10ms において、ほぼ前の放電の形状と後の放電の形状の相関が無くなった。

(2) 前の放電が後の放電路に影響を及ぼすか否かについては、電子密度の減少の速さに依存すると考えられる。そこで、上記の延長減少の持続時間の圧力依存性を調べたところ、圧力を P としたとき、持続時間 $\Delta t \propto 1/P^2$ の依存性を得た。このことから電子の三体付着反応、再結合過程を通じて失われていることが予想される。プラズマの動力学計算により、イオン化した窒素分子 N_2^+ や酸素分子 O_2^+ が N_4^+ や O_4^+ を経て電子と再結合する早い損失経路が寄与するモデルで実験結果を説明することができた。一方、酸素分圧を下げると N_4^+ と O_2 の荷電交換反応で O_2^+ は形成されるものの、酸素分圧が少ないことにより O_4^+ の形成が進まず、酸素分子による電子付着が減少する効果も併せて電子の損失が遅くなることが分かった。燃焼では圧力も高くこれらの影響が持続する時間も短くなるが、本研究の結果を外挿すれば、数十マイクロ秒の持続時間が大気圧で予想される。また電子の損失機構も温度圧力の影響を受けるため、詳細な反応機構の検討が必要である。

(3) 次に非平衡プラズマが予混合気に与える影響を調べた。燃焼にはプラズマにより形成された、電子やイオン、各種ラジカル、反応生成物の寄与が考えられ、さらに非平衡プラズマは非熱プラズマとも呼ばれるが加熱する効果もあるため、これらの影響を分離することは難しい。そこで、予混合気を形成された非平衡プラズマの中を通過させることで、プラズマ部と燃焼部を分離し、その予混合気

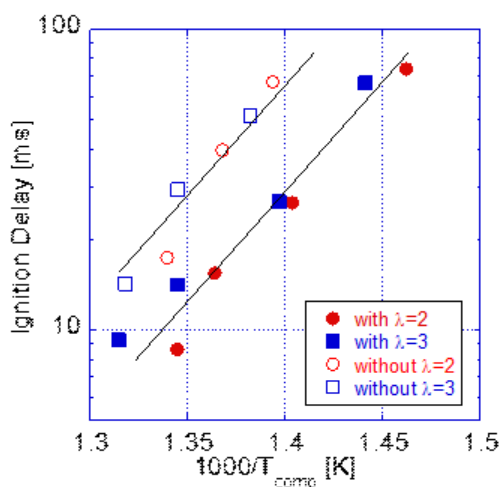


図 2: ノルマルヘプタン予混合気の着火遅れの温度依存性

を、急速圧縮膨張装置を用いて圧縮し、着火させた。

様々な予混合気に対してプラズマ照射を行い、圧縮着火における着火遅れ時間に対する影響を調べた。特に、図 2 にノルマルヘプタン予混合気の圧縮着火遅れに対するプラズマ照射の有無の影響を、図 3 にメタン予混合気の圧縮着火遅れに対するプラズマ照射の有無の影響を示す。塗りつぶされたデータ点はプラズマが照射されているデータを、開いたデータ点は照射されていないデータを表している。両方の予混合気において、各温度

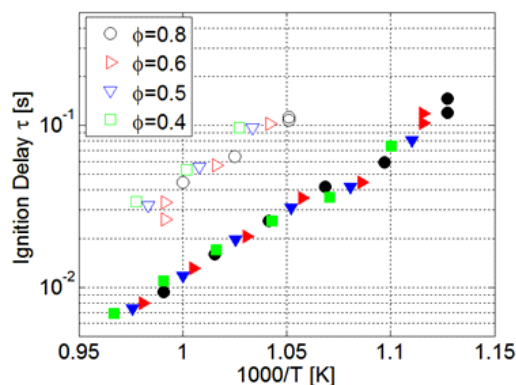


図 3: メタン予混合気の圧縮着火遅れの温度依存性

において閉じたデータ点がグラフの下方にシフトしていることから、プラズマの照射は共に着火遅れ時間の短縮をもたらしていることがわかる。特にメタン予混合気による実験では当量比に対する依存性はほぼ見られなかった。また、データ点の、温度の逆数に対する傾きが照射と非照射においてほぼ一致していることから、プラズマ照射はこの圧縮着火の総括反応において、活性化エネルギーに対しては影響を与えず、頻度因子に対しての影響をもたらしていることがわかる。

(4) この様な着火遅れ時間の短縮をもたらしている化学種を検討するために、プラズマが照射された予混合気に含まれる成分分析を行った。本研究の評価実験で照射効果の寿命が数 10 分以上持続できることがわかったので、照射ガスをサンプリングバッグに採取し、分析を実施した。その結果、プラズマが照射されたメタン予混合気からは、オゾンや水素も検出されたが、さらにイオン付着質量分析を実施したところホルムアルデヒドが検出された。このホルムアルデヒドの密度はおよそ 100ppm 程度であった。また、重合したより大きな分子は検出されなかった。

(5) この成分分析と着火遅れ実験結果を比較検討するために化学動力学シミュレーションを実施した。その結果を図 4 に示す。計算コードとしては Chemkin II を使い、化学反応モデルとしては GRI-Mech3.0 を用いた。この計算ではホルムアルデヒド 100ppm を初期

状態の混合したものを閉じたデータ点で、混合していないものを開いたデータ点で表している。混合によって着火遅れが同様に短縮していることがわかる。また、実験結果と同様に当量比に対して着火遅れがほとんど変化していない。一方、同様なシミュレーション

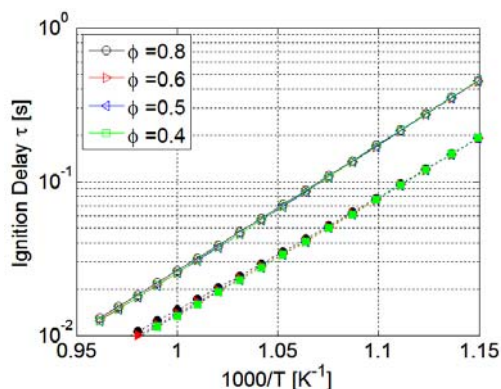


図 4: メタン予混合気の着火遅れに関する化学動力学シミュレーション

ンを他のオゾンや窒素酸化物を初期状態への混合を仮定して実施したところ、温度や当量比に対する実験結果と異なる結果が得られた。従って、今回のメタン予混合気へのプラズマ照射によって着火遅れをもたらした長寿命化学種としては、ホルムアルデヒドである可能性が最も高いと考えられる。一方、これまでにオゾンの混合による着火遅れの短縮に関する論文が報告されている。しかし本研究でオゾンを独立にバリア放電で形成し、メタン予混合気への効果を評価したが着火遅れ時間に対する影響は見られなかった。これは、実験に用いた急速圧縮膨張装置では、ガスの充てんに 1 分以上に時間を要する事、吸気管の金属管が細いことから、圧縮前に分解してしまった可能性などが考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① Eiichi Takahashi, Naoaki Saito, Hirohide Furutani, Takuma Ono, Makihito Nishioka, Combustion enhancement of methane/air mixture by nonthermal plasma processing, SAE Technical Paper, 2015, 2015-01-1786.
- ② Eiichi Takahashi, Hirokazu Kojima, Hirohide Furutani, Control of pressure-rise-rate in compression ignition by pulsed plasma irradiation, Japanese Journal of Applied Physics, No.54, 2015, 01AG03, doi:107567/JJAP.54.01AG03.
- ③ Nijdam Sander, Eiichi Takahashi, Aram Markosyan, Ute Ebert,

Investigation of positive streamers by double pulse experiments, effects of repetition rate and gas mixture, Plasma Sources Science & Technology, 23, 2014, 25008, doi:10.1088/0963-0252/23/2/025008.

- ④ Eiichi Takahashi, Hirokazu Kojima, Hirohide Furutani, Control of pressure-rise rate of compression ignition by stratification of reformed premixture using pulse DBD irradiation, SAE Technical paper, 2014, 2014-01-2665, doi:10.4271/2014-01-2665.
- ⑤ Nijdam Sander, Eiichi Takahashi, Jannis Teunissen, Ute Ebert, Streamer discharges can move perpendicularly to the electric field, New Journal of Physics, No.16, 2014, 103038, doi:10.1088/1367-2630/16/10/103038.

[学会発表] (計 8 件)

- ① 高橋 栄一、プラズマが照射された予混合気の圧縮着火特性、RC264:先端計測法および数値解析モデリングに基づく燃焼制御の高度化に関する国際協力研究分科会、2015年1月14日、京都大学品川オフィス (東京都)
- ② 小野 拓磨、高橋 栄一、西岡 牧人、メタン予混合気への誘電体バリア放電プラズマ照射による着火及び燃焼促進効果の検討、第52回燃焼シンポジウム、2014年12月5日、岡山コンベンションセンター (岡山県)
- ③ Eiichi Takahashi, Hirokazu Kojima, Takashi Kashiwazaki, Hirohide Furutani, Ignition and combustion enhancement of methane/air mixture by irradiating the dielectric barrier discharge, 2014年6月23日、The Beach Tower Okinaka (沖縄県)
- ④ Eiichi Takahashi, Hirokazu Kojima, Seiya Yamaguchi, Takashi Kashiwazaki, Hirohide Furutani, Ignition and Combustion control by dielectric barrier discharge for HCCI engine, 8th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP8), 2014年2月5日、福岡コンベンションセンター (福岡県)
- ⑤ 高橋 栄一、小島 宏一、山口 誠也、予混合気の非平衡プラズマ放電による着火制御、第51回燃焼シンポジウム、2013年12月4日、大田区産業プラザ (東京都)
- ⑥ 高橋 栄一、小島 宏一、山口 誠也、パルス状 DBD 印加による着火制御効果、第24回内燃機関シンポジウム、2013年11月26日、神戸大学 (兵庫県)
- ⑦ Eiichi Takahashi, Hirokazu Kojima, Akira Sasaki, Kisimoto Yasuaki, Streamer induced in RF plasmas by

KrF-laser irradiation, XXXI ICPIG Granada 2013, 2013年7月15日、グラナダコンgresセンター（スペイン）

- ⑧ 高橋 栄一、ナイダム サンダー、ダブルストリーマ放電において前放電が後放電の形状に及ぼす影響、プラズマパルスパワー放電合同研究会、2013年5月17日、まちなかキャンパス長岡（新潟県）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 2 件）

名称：燃焼促進方法
発明者：高橋栄一
権利者：高橋栄一
種類：特許
番号：特願 2013-215949
出願年月日：2013年08月27日
国内外の別：国内

名称：内燃機関の着火制御装置
発明者：高橋栄一
権利者：高橋栄一
種類：特許
番号：特願 2013-190037
出願年月日：2013年07月18日
国内外の別：国内

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 栄一 (TAKAHASHI Eiichi)
産業技術総合研究所・エネルギー技術研究
部門・上級主任研究員
研究者番号：90357369

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

古谷博秀 (FURUTANI Hirohide)
産業技術総合研究所・再生可能エネルギー
研究センター・副研究センター長
研究者番号：20357932

加藤 進 (KATO Susumu)

産業技術総合研究所・エネルギー技術研究
部門・主任研究員

研究者番号：20357932