

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14170

研究課題名(和文) 高圧力場での高周波バリア放電における非平衡および熱平衡プラズマメカニズム

研究課題名(英文) Non-thermal and thermal plasma formation of radio-frequency dielectric barrier discharge under high-pressure conditions

研究代表者

津江 光洋 (Tsue, Mitsuhiro)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：50227360

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：高圧力環境下のメタン/空気混合気に対して高周波バリア放電による非平衡プラズマの生成挙動と点火挙動に着目し、容器内の雰囲気圧力の影響および放電周波数の影響を最小点火エネルギーの測定およびプラズマ分光計測を実施することで詳細に調べた。1180kHz以下で実験を実施したが、周波数に対して最小点火エネルギーの極小値があることがわかった。放電周波数の増加は反応性の増大に寄与するが、熱的な散逸効果がある可能性が示された。500kPaの環境下では非平衡から熱平衡プラズマへの遷移が分光計測により示された。放電周波数の増大による点火特性の改善は、プラズマ反応および燃焼反応を考慮した数値解析においても確認された。

研究成果の概要(英文)：The ignition mechanism of non-thermal plasma formed by a radio-frequency dielectric barrier discharge was investigated for methane/air mixtures under high-pressure conditions. The minimum ignition energy was measured, and the plasma emissions were analyzed by spectrometers, considering the effects of the pressure and the frequency on the plasma formation. The results indicated that there was the minimal value of the minimum ignition energy against ambient pressure and the discharge frequency. An increase in the discharge frequency resulted in an enhancement of the active flame kernel formations although there might be active heat loss over a certain threshold of the frequency. At 500kPa, transitions from non-thermal to thermal plasmas were clearly observed in spectrograms measured with a high-speed imaging spectrometer. The effects of the frequency on the ignition performance was also validated by a chemical reaction analysis considering plasma and chemical reactions.

研究分野：燃焼工学

キーワード：非平衡プラズマ 点火 燃焼 希薄混合気 プラズマ反応 化学反応

1. 研究開始当初の背景

エンジンの熱効率増大と環境負荷物質低減のため、乱流、希薄混合気などの極限環境における革新的な点火手法が望まれる。そのひとつに高周波パルスおよびバリア放電などを用いた非平衡プラズマによる点火がある。非平衡プラズマによる点火は、従来の火花点火のように高温のプラズマや火炎核を形成せず、高速に変動する電界により電子温度のみが励起され、電子衝突反応によりラジカルやイオンを生成し活発な化学反応により点火する手法であり、その応用が期待されている。全体の温度が低温になるため、熱損失量が低減され、乱流中等の高散逸な環境下において点火性能が向上する可能性がある。非平衡プラズマは大気圧以下の低圧力環境下において多くの研究がなされている。しかしながら、エンジンレベルの高圧力環境下において、非平衡プラズマの生成挙動に関する知見は乏しい。高圧力環境下においては、電子と分子の衝突が活発となり、低温プラズマから高温プラズマへの遷移も考えられる。放電形態によりその生成範囲も大きく影響されるのに加え、高圧力環境下における低温プラズマの生成挙動は未だ良くわかっていない。本研究では、高圧力環境における高周波放電による低温プラズマ生成挙動に着目している。

2. 研究の目的

近年、熱効率向上の観点から希薄混合気の使用が想定されている。希薄混合気は反応性が乏しいため、燃焼速度を上昇させることを目的として高流動、高乱流場での燃焼が行われる。そのような環境下において乱流拡散などにより非常に散逸的であり、高温プラズマなどの高温度の火炎核を生成する手法では、曲率が大きく燃焼速度の小さい初期の火炎核においてはエネルギーの散逸が大きい。そのため、このような環境下においては低温プラズマによる点火手法は非常に有益である。しかしながら、高圧力環境下における低温プラズマの生成は困難であるのに加え、その挙動やメカニズムに関する知見は限定的である。そのため、本研究において高圧力環境下における非平衡プラズマによる点火手法の確立に必要な知見の取得を行う。エンジン燃焼器内の高圧力環境下における非平衡プラズマ生成挙動、熱プラズマへの遷移およびその反応特性の把握するため、定容容器内における高圧力環境下での実験および数値計算により調べることでメカニズムを明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、定容容器内における低圧から高圧力環境下において高周波誘電体バリア放電 (DBD) により非平衡プラズマを生成した。図1に実験装置の概略図を示す。定容容器はA7000系材料で作成されており、光学測

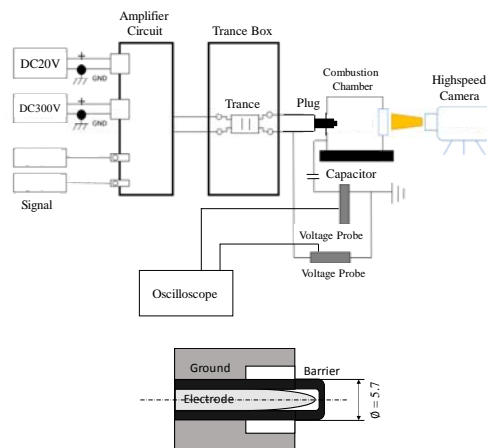
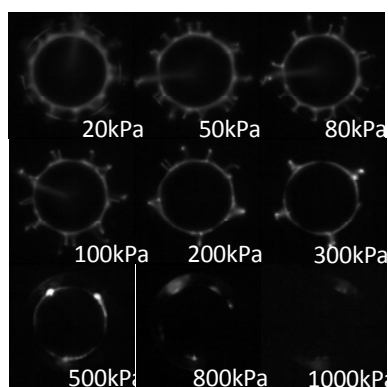


図1 実験装置概略図

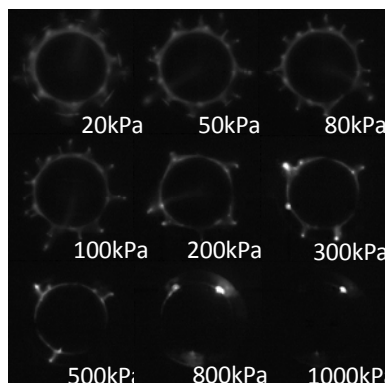
定を可能とするために光学窓が取り付けられている。実験に用いる混合気は混合気タンク内で用意され均一混合気を得られるように攪拌されている。混合気にはメタン/空気混合気を使用した。空気は窒素79%, 酸素21%からなる。定容容器内において、セラミックを用いた同芯状の点火プラグを利用し、高周波高電圧を印加することにより非平衡プラズマを生成して点火特性を調べた。高周波高電圧電源は回路の共振を利用し、コイルを交換することで周波数を変更することができる。一次電源は直流電源であり、300Vまで電圧を調整することができる。パルスジェネレータ (Quantum, 9514) により発振周波数を調整し、増幅回路により高周波高電圧波形を作成する。放電の最高周波数は1180kHzであった。また、プラグ間隙に最大40 kVp-pの電圧をかけることが可能である。本研究では放電時間を2.0ms以下とする。高周波放電のエネルギーを求めるため、電極と接地間に1nFのコンデンサを用い二つの電圧プローブで測定する (Tektronix, P6015) ことでV-Qリサーチ法により求めた。放電および初期火炎核形成の様子は高速度カメラ (Vision Research, V2511) を用いて測定を行った。また、放電の状態を調べるため分光器を用いて放電の分光計測を行った。放電の波長範囲を広く高波長分解能で測定する目的においてはエシエル分光器 (Bunkokeiki, EMDP-100) を、時間分解能を大きく狭波長帯域で測定するときにはイメージング分光器 (Bunkokeiki, MK-301-2PN) を用いて測定を行った。実験は室温環境下で実施され、燃焼容器内の圧力を20kPaから1000kPaへと変化させて実験を行った。

4. 研究成果

最初に図2に放電周波数 $f=910\text{kHz}$, 30kVp-pの電圧をかけた場合の放電の様子を示す。図2-aは空気の場合の、図2-bには当量比 $\phi=0.3$ のメタン/空気混合気の場合の結果を示す。これらの計測は電極に正対して測定を行った。この場合、放電挙動を100000fpsで測定



(a) 空気



(b) $\phi=0.3$

図2 空気および $\phi=0.3$ のメタン/空気混合気における誘電体バリア放電の様子

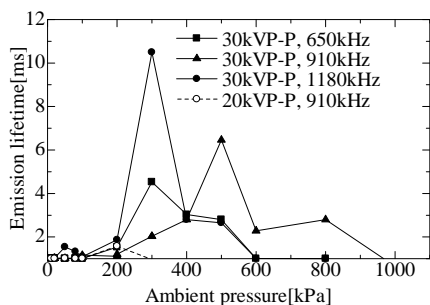


図3 放電期間と雰囲気圧力の関係

し、露光時間は $9.5\mu\text{s}$ とした。図2からわかるように、ストリーマーが 500kPa の高圧力環境下においても観察されることがわかる。圧力が低くなるにつれて発光強度が弱いながら、誘電体表面上に観察される放電の発光領域が広がっていることがわかる。また、フィラメント状の放電が外部電極へつながっているのが観察される。 300kPa 以上になると強い発光が観察されているのがわかる。これらの強い発光は圧力上昇とともに強くなり、プラズマが熱プラズマに遷移している可能性がある。当量比 $\phi=0.3$ の場合には、高圧力においてより強い発光が観察される。これは、炭化水素は放電の紫外光発光の吸収断面積が大きいために、光イオン化距離が短くなることで不均一性が大きくなると考えられる。

プラズマの状態を調べるため、様々な圧力環境下において発光寿命に関して高速度カ

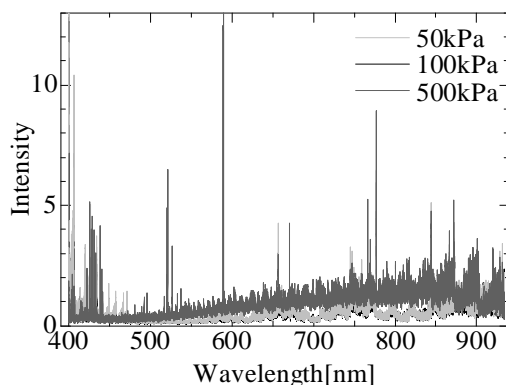


図4 $\phi=0.5$ のメタン/空気混合気の放電周波数 $f=1030\text{kHz}$ の場合の平均プラズマ放射スペクトル

メラを用いて測定した。図3に高周波放電を 1ms の間与えた場合の発光寿命の変化を示す。 $f=910\text{kHz}$ の場合には、放電電圧を 20kVp-p および 30kVp-p で計測を行った。加えて、 30kVp-p で電圧を固定し、放電周波数を 650kHz から 1180kHz に変化させて計測を行った。 20kVp-p の場合、プラズマの発光寿命は概ね放電時間と同じであり、雰囲気圧力 300kPa までは発光が観察されたものの、それ以上の圧力では放電が観察されなかった。一方で、 30kVp-p の場合には 300kPa 以上の高圧力においても発光が確認された。周波数が大きくなってもそれに対応して放電寿命が最大となる圧力は線形に増大しなかった。放電特性の周波数依存性が示唆される。

非平衡プラズマの生成と圧力の関係を調べるため、 $f=1030\text{kHz}$ 高周波電圧により当量比 $\phi=0.5$ の混合気に対してバリア放電を行い、エシエル分光器を用いてプラズマ放射スペクトル測定を行った。圧力 50kPa , 100kPa および 500kPa と変化させた。図4に 390nm から 940nm の範囲においてプラズマの放射スペクトルを示す。検知器であるICMOSのゲートを 2ms とし、 200 枚の画像を平均化することでスペクトルを求めた。本計測においては直流電源の一次電圧を 200V と固定して計測を行った。圧力が 50kPa の場合、原子発光スペクトル (427nm (C), 434nm (H γ), 520nm (O), 567nm (N), 656nm (H α), 747nm (N), 750nm (O), 777nm (O), 844nm (O)) が明確に観察された。雰囲気圧力が 100kPa の場合においても概ね同じスペクトルが観察されており、重なっている。一方で、雰囲気圧力が 500kPa の場合、 526nm (Mg) や 589nm (Na) といった原子スペクトルが明確に確認された。これは空気中に含まれるエアロゾル成分に起因すると考えられる。それらの原子スペクトルの発光に加えて、スペクトル全体のベースラインの立ち上がりが見られる。これはプラズマの黒体放射に起因すると考えられ、プラズマが熱プラズマに遷移していると考えられる。高圧力の場合には、電子と分子の衝突回数が多くなり、放電の途中で熱プラズマに遷移した

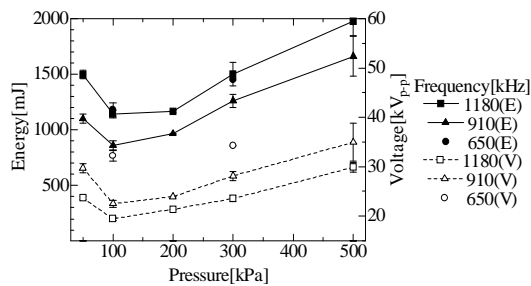


図5 $\phi=0.6$ のメタン/空気混合気に対し放電期間を2msに固定した場合の最小点火エネルギーや二次電圧と圧力の関係

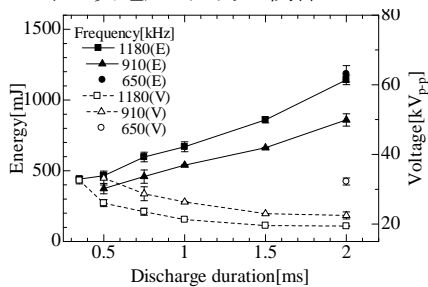


図6 圧力0.1MPa, $\phi=0.6$ の時の最小点火エネルギーや二次電圧と放電期間の関係

と考える。

次に放電周波数を変化させ、放電期間を2msと固定した場合の最小点火エネルギーと雰囲気圧力の関係を示す。この場合、最小点火エネルギーはロジスティック回帰法により解析を行い点火確率が50%の点であるとした。以下の解析において最小点火エネルギーは全てロジスティック回帰法により求めた。放電期間が固定のため、電圧を変化させることでエネルギーを変化させた。図5に $\phi=0.6$ のメタン/空気混合気に対して試験を行った結果を示す。全体として、雰囲気圧力が100kPaにおいて最小点火エネルギーが極小値を持つことがわかる。大気圧付近までにおいては、圧力の増大とともに反応性が向上し、点火が促進されると考えられる。一方で、圧力がそれより大きくなるにつれて逆に点火エネルギーが増大していく。圧力の上昇とともにエネルギーの緩和による温度の上昇や熱プラズマの生成などによる熱損失の影響が示唆される。周波数に着目すると910kHzのエネルギーが最小であることがわかる。周波数が小さいとラジカルの蓄積が遅く、逆に大きすぎると熱エネルギーへに変化し、熱損失の影響が大きくなると考えられる。

図6に圧力0.1MPaを当量比 $\phi=0.6$ の混合気に対して、放電期間と最小点火エネルギーの関係を示す。放電周波数が大きい方が最小二次電圧は低くなる。また、放電期間が長くなると最小二次電圧は低くなるが、最小点火エネルギーに換算すると放電期間とともに大きくなっていることがわかる。

図7に放電電圧を35kVp-pに固定した場合の最小点火エネルギーと当量比の関係を示す。電圧が固定のため、放電期間を変化させることでエネルギーを変化させた。当量比が

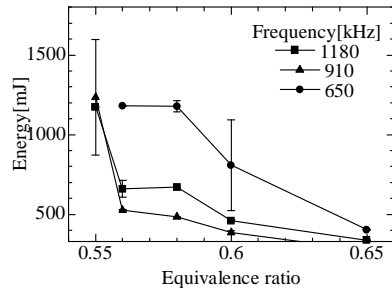


図7 圧力0.1MPa, 放電電圧35kVp-pのよう時の最小点火エネルギーと放電期間の関係

小さくなるにつれて最小点火エネルギーが大きくなっていることがわかる。これまでの結果と同様に周波数が910kHzの時に最小点火エネルギーが最小となっていることがわかる。この結果からも概ね最適な周波数が存在していることがわかる。周波数が650kHzの最小点火エネルギーが910kHz, 1180kHzの場合と比較して大きくなっており、これらの差異は希薄限界側に当量比が下がるほど大きくなっていることがわかる。以上のことから、周波数が大きくなるとラジカルの生成が活発になると考えられる。しかしながら、振動エネルギーなどの緩和により熱となり熱損失などの影響で無視できなくなり最適周波数が存在すると考えられる。

これらの放電周波数がプラズマ生成に及ぼす影響を調べるため、イメージング分光器と高速度カメラを使用して $\phi=0.5$ の混合気に対してプラズマ放射スペクトル計測を実施した。ラジカルの生成特性の代表として $H\alpha$ (656nm)の原子スペクトル近傍の放射に着目し、100000fpsで637.9nmから662.9nmのスペクトルを測定した。放電周波数を $f=650$ kHz, 910kHzおよび1180kHz, 雰囲気圧力を50kPa, 100kPaおよび500kPaの9条件で測定を行った。100kPaおよび500kPaの時は放電電圧を25kVp-pとし、50kPaの時は20kVp-pとした。その結果を図8に示す。50kPaと100kPaの場合、放電時間全体にわたり $H\alpha$ などの原子スペクトルが明確に観察された。縦状のスペクトログラムが観察されており、連続的な発光は観察されない。そのため、熱プラズマに遷移せず非平衡プラズマが生成していると考えられる。また、周波数の影響に着目すると、周波数が大きくなればなるほどスペクトルの強度が大きくなっていると考えられる。一方で500kPaの場合に着目すると、放電周波数が650kHzの場合には50kPaおよび100kPaの場合とあまり違いはない。しかしながら、 $f=910$ kHzおよび1180kHzにおいて明確な違いが観察された。初期にスペクトルが観察されない期間があり、その後原子スペクトルが観察される。高圧力の場合、放電が困難となるため、放電の経路が低圧の時と比較して限定されると思われる。そのため、初期においてはファイバの視野内に放電が入らなかったと考えられる。その後、電子やイオンができるに従い、放電領域が広がり放射が観察され

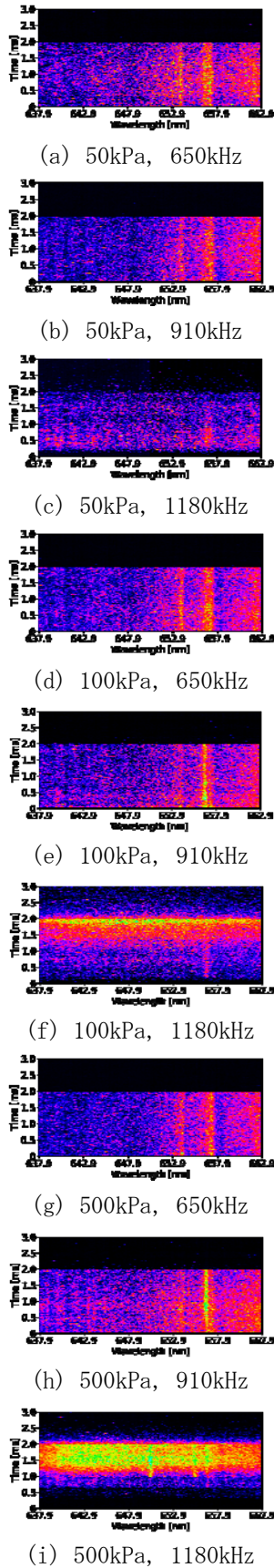


図8 $\phi=0.5$ の混合気に対するプラズマの放射スペクトルの時間変化

た。さらにその後、強い連続スペクトルが観察されているのがわかる。この強い連続放射スペクトルはプラズマの黒体放射スペクト

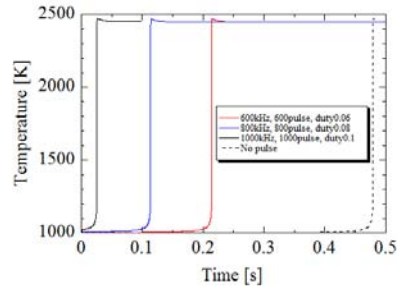


図9 $\phi=0.6$ の混合気に対し 1ms の期間中において同じパルス幅で同じパルス数電界を加えた場合の温度変化

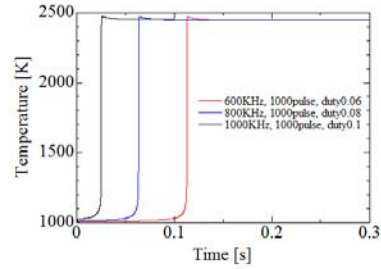


図10 $\phi=0.6$ の混合気に対し同じパルス幅で同じパルス数電界を加えた場合(エネルギー一定の場合)の温度変化

ルによると考えられる。連続スペクトルが観察されることにより、プラズマは熱プラズマに遷移していると考えられる。また、 $f=1180\text{kHz}$ のほうが $f=910\text{kHz}$ と比較して連続スペクトルが観察される時期が早くなっており、周波数が高いほうが電子の衝突頻度が高く熱プラズマの遷移が早くなると考えられる。

非平衡プラズマの反応挙動と電界周波数の関係を調べるため、プラズマ反応および燃焼反応を考慮した点火シミュレーションを実施した。高周波放電に対し、放電するときのデューティ比を変化させ、電界が ON(放電中)は電子衝突反応および燃焼反応を、電界が OFF 時には電子再結合反応および燃焼反応を解いた。燃焼反応中にはオゾンの反応を加えてある。GRI-Mech3.0 のメタン燃焼モデルにプラズマ反応、再結合反応および燃焼反応を加え 81 化学種、397 反応モデルを用いて数値解析を実施した。当量比 $\phi=0.6$ の混合気に対し、1 気圧、1000K、電子温度 31500K の条件で計算を行った。図 9 に同じ期間(1ms) エネルギーを与えることを想定し、周波数ごとにパルス数を変化させた場合を示し、図 10 にエネルギー一定の場合を想定しパルス数およびパルス幅を加えた場合の結果を示す。放電期間を一定にしている図 9 においては、周波数が大きくなると入力されるパルス数が大きくなるため、放電エネルギーが大きくなる。一方で図 10 においては、パルス数が同じとなるため、加えられる電界エネルギーは同じである。各々の結果において、周波数が高いほうが点火遅れ時間が短縮されていることがわかる。結果は省略するが、周波数

が大きいほうが電子濃度の上昇およびそれに伴うラジカル濃度の上昇が促進されている。本シミュレーションでは、非平衡プラズマから熱プラズマへの遷移は模擬できないが、周波数の上昇により最小点火エネルギーが減少し点火性能が向上する結果に対しラジカル生成が高周波数になると活発であるという事実から説明できる。非平衡プラズマ生成に及ぼす放電周波数の影響を明確にしたのに加え、熱プラズマへの遷移挙動を捉えることができた。

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)

[学会発表] (計 1 件)

1. Shinji Nakaya, Taichi Kobayashi, Shingo Iseki, Mitsuhiro Tsue, Masaaki Kono, Kanehiro Nakamura, Effects of Discharge Frequency on Ignition Behaviors of DBD for Lean Methane/Air Mixtures, 11th Asia Pacific Conference on Combustion, 2017 年 12 月 10 日～12 月 14 日, シドニー大学.

[その他]

ホームページ等

東京大学大学院工学系研究科航空宇宙工学
専攻津江・中谷研究室

http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/kono-tsue_lab/jp/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

津江 光洋 (TSUE MITSUHIRO)

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：50227360

(2) 連携研究者

中谷 辰爾 (NAKAYA SHINJI)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：00382234