

学術論文

## 酸素／窒素混合プラズマジェットの高圧における着火促進性と安定性

### Ignition Enhancement and Stability of O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> Mixed Plasma Jet under High Pressure

滝田 謙一<sup>\*1</sup> (正員), 和田 壮太郎, 松原 慶典, 廣田 光智<sup>\*2</sup>, Xiao Qin<sup>\*3</sup>, Yiguang Ju<sup>\*3</sup>

Kenichi TAKITA, Sotaro WADA, Yoshinori MATSUBARA, Mitsutomo HIROTA, Xiao QIN, Yiguang JU

An effectiveness of the O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixed plasma jet (PJ) igniter which can supply NO and NO<sub>2</sub> to combustion region was investigated. It was demonstrated in numerical analysis of ignition delay time that NO and NO<sub>2</sub> had strong catalytic effects on combustion reactions of hydrogen and methane fuels in high pressure condition where active radicals such as O, N radicals were quickly quenched by recombination. The stable O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> PJ could be obtained by increasing the input power to the torch under high pressure up to 0.5 MPa. Moreover, existence of NO and NO<sub>2</sub> in the PJ was confirmed by a spectroscopic measurement and the intensity emitted from them depended on atmospheric pressure and the mixing ratio of the feedstock.

*Keywords:* plasma jet, radical, combustion, ignition, NO<sub>x</sub>.

### 1 緒言

著者らは長年、スクラムジェットエンジンの強制点火器としてプラズマジェット(PJ)トーチを研究[1-9]してきた。PJの利点は大量の活性ラジカルの燃焼場への直接注入による着火・燃焼の促進であると考えられている。着火遅れ時間の解析により微量のラジカル添加が着火遅れ時間を劇的に短縮することが報告[1,5]されている。しかし、ラジカルの存在寿命は極めて短く、その存在領域はPJ中心部の限られた高温領域のみであり、ラジカルの効果のみを陽的に抽出するのは困難である。また、ラジカルの存在寿命は高圧になるほど短くなるため、高圧雰囲気でのPJの着火性には関心が持たれていなかった。一方、酸素／窒素混合気を作動ガスに用いた場合やPJのような熱(高温)プラズマが周囲空気と反応した場合にはNO<sub>x</sub>(NO, NO<sub>2</sub>)が生成される。NO<sub>x</sub>は一旦生成されると安定であり、さらに近年、高圧雰囲気下においてNO<sub>x</sub>に水素やメタンの燃焼反応に対する強い触媒効果があることが報告[10-12]されている。従って、酸素／窒素混合作動ガスを用いたPJを用いて着火促進に最適量のNO<sub>x</sub>を燃焼場に供給できれば、高圧雰囲気でも着火促進性の高いPJ点火器を開発できる。本報告では広い圧力範囲でNO<sub>x</sub>の添加効果を調べるとともに、酸素／窒素混合作動ガスを用いたPJを試作、高圧雰囲気で作動させ、その安定性を調べ、PJの組成分析を行った。

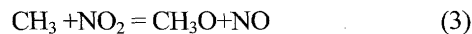
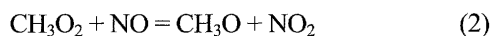
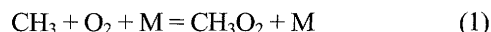
### 2 着火遅れ時間の計算方法

#### 2.1 計算に使用した解析コード

NO, NO<sub>2</sub>が微量添加された予混合気の着火遅れ時間を計算することにより、それらの添加効果を調べた。計算にはCHEMKNライブラリ[13]に含まれるSENKIN計算コードを用いた。着火時間の定義は初期温度から200K上昇した時点とした。

#### 2.2 化学反応機構

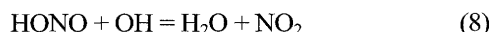
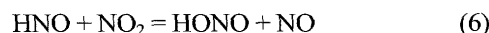
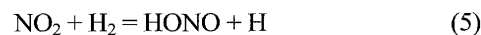
化学反応機構にはGRI Mech. Ver.3.0[14]を用い、NO, NO<sub>2</sub>の低温反応を考慮するため以下の反応式[11,12]を加えた。



Tan et al.[12]はNOの添加量が多い場合、次の反応により生成されるHONOによる反応抑制機構が顕著となることを報告している。



本報においても、NOの着火促進効果に最適な添加量が存在するかを調べるため、HONOが関わる以下の反応を加えて計算を行った。従って、本報告における総化学種数は55、総反応式は333である。



連絡先: 滝田 謙一, 〒980-8579 仙台市青葉区荒巻青葉6-6-01, 東北大学工学研究科航空宇宙工学専攻,  
e-mail: takita@scrj.mech.tohoku.ac.jp

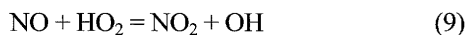
<sup>\*1</sup>東北大学 <sup>\*2</sup>室蘭工業大学 <sup>\*3</sup>プリンストン大学

### 3 計算結果

#### 3.1 水素/空気混合気

水素/空気混合気に対するNO, NO<sub>2</sub>の添加効果を調べた。量論混合比の水素/空気混合気にもル分率で0.1%のNOまたはNO<sub>2</sub>を添加した。ラジカルが失活し、NO<sub>x</sub>のみが存在するPJ下流での着火実験に対応する。比較のため、Oラジカルを同量添加した場合についても計算を行った。Fig.1, Fig.2には雰囲気圧力が0.1MPa, 1.0MPaの場合のNO<sub>x</sub>添加効果の初期温度依存性を示す。図中のE.R.は当量比(Equivalence Ratio)を示す。初期温度が低い場合にNO<sub>x</sub>の添加による着火遅れの短縮が見られる。雰囲気圧力が大きくなると、それらの効果が現れる初期温度の範囲が拡大する。Fig.3, Fig.4には混合気初期温度が1000Kおよび1200Kの場合のNO<sub>x</sub>添加効果の圧力依存性を示す。初期温度が1000Kの場合、雰囲気圧力0.3MPa以上では、NO<sub>x</sub>の添加はOラジカルの添加よりも効果的である。Fig.4からも、低圧雰囲気ではNOの添加効果が現れないが、圧力の上昇に伴い着火遅れの短縮効果が現れているのがわかる。

水素の燃焼反応においてNO<sub>x</sub>の触媒効果は次のような反応を介して現れることが知られている。



上記の反応にはHO<sub>2</sub>が関与しており、HO<sub>2</sub>が多く生成される第2爆発限界よりも高圧側(低温側)でNO<sub>x</sub>による触媒効果が大きくなる。第2爆発限界は以下の競合反応においてHO<sub>2</sub>の生成反応(12)が支配的となる境界を示す。

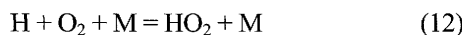


Fig.4においてNO<sub>x</sub>添加なしの場合の着火遅れ時間が圧力の増加に伴い、減少から増加に転じている0.3MPa付近が第2爆発限界であり、これ以上の圧力では触媒効果が現れている。

次にNO<sub>x</sub>の着火促進効果を最大にする添加割合が存在するのかを調べた。Fig.5, Fig.6はそれぞれNOおよびNO<sub>2</sub>の添加割合を変えた場合の着火遅れ時間を異なる雰囲気圧力で計算した結果である。混合気初期温度は1000Kである。また平衡計算からPJ中のNO濃度の最大値は5%程度であることが報告[8]されている。Fig.5からNOに関しては着火遅れ時間が最短となる添加量が存在し、その値は雰囲気圧力が増大すると小さくなる。例えば雰囲気圧力0.3MPaの時に2.0%、雰囲気

気圧力1.0MPaの時に1.0%のNOの添加が最も効果が大きい。一方、Fig.6においてNO<sub>2</sub>の場合は着火遅れの短縮効果はNO<sub>2</sub>の添加量が増加するほど大きくなる結果となった。また、NO, NO<sub>2</sub>両者において、0.1%以下のわずかな添加量で着火遅れが大幅に短縮することがわかる。

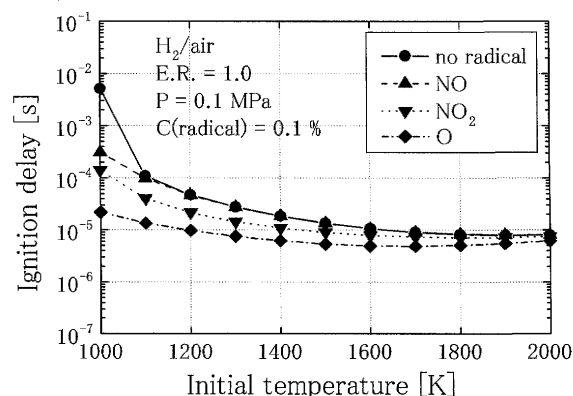


Fig. 1 Effects of NO<sub>x</sub> addition on ignition delay time of H<sub>2</sub>/air mixture at p=0.1 MPa.

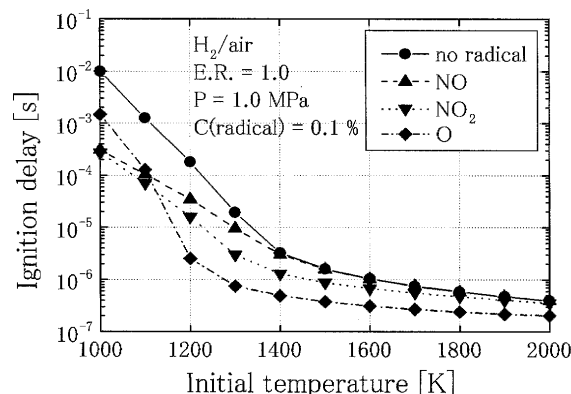


Fig. 2 Effects of NO<sub>x</sub> addition on ignition delay time of H<sub>2</sub>/air mixture at p=1.0 MPa.

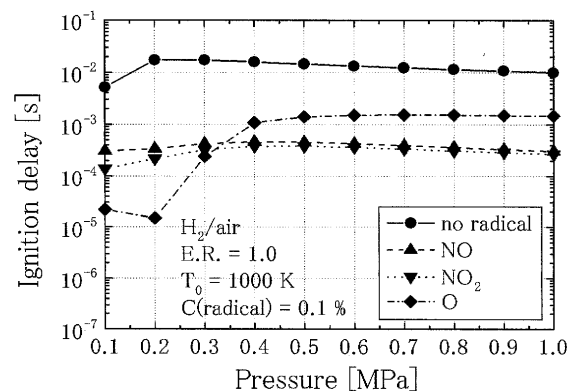


Fig. 3 Dependence of effects of NO<sub>x</sub> addition to H<sub>2</sub>/air mixture on ambient pressure at T<sub>0</sub>=1000K.

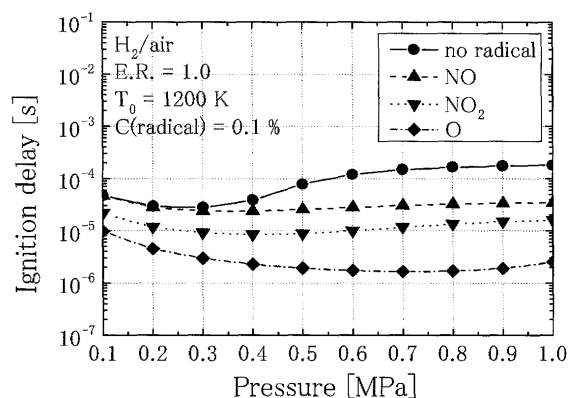


Fig.4 Dependence of effects of  $\text{NO}_x$  addition to  $\text{H}_2/\text{air}$  mixture on ambient pressure at  $T_0=1200\text{K}$ .

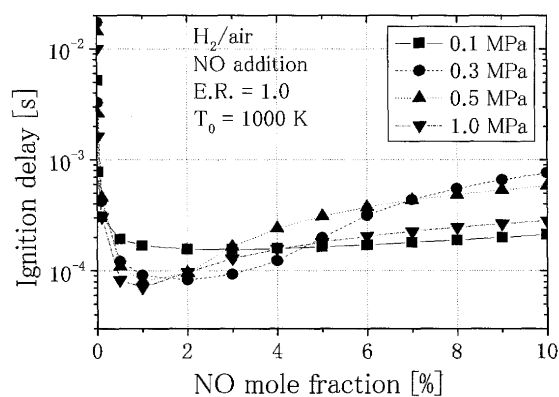


Fig.5 Dependence of effect of  $\text{NO}$  addition to  $\text{H}_2/\text{air}$  mixture on  $\text{NO}$  mole fraction at  $T_0=1000\text{K}$ .

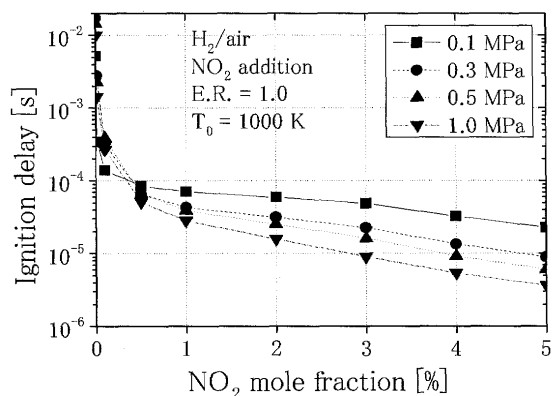


Fig.6 Dependence of effect of  $\text{NO}_2$  addition to  $\text{H}_2/\text{air}$  mixture on  $\text{NO}_2$  mole fraction at  $T_0=1000\text{K}$ .

また、従来の解析[8]では考慮されなかった化学種  $\text{HONO}$  及びそれに関わる反応式の追加の影響であるが、水素/空気混合気に対しては  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  それぞれの着火促進効果を大きくすることがわかった。特に  $\text{NO}_2$  に対しては強く影響し、従来の報告[8]における

$\text{NO}$  と  $\text{NO}_2$  の効果の度合いが逆転する結果となった。

### 3.2 メタン/空気混合気

メタン/空気混合気に対する  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$  の添加効果を調べた。量論混合比のメタン/空気混合気にモル分率で 0.1% の  $\text{NO}$  または  $\text{NO}_2$  を添加した。比較のため、 $\text{O}$  ラジカルを同量添加した場合についても計算を行った。Fig.7, Fig.8 には雰囲気圧力が 0.1MPa および 1.0MPa の場合の  $\text{NO}_x$  添加効果の初期温度依存性を示す。水素/空気混合気同様、初期温度が低い場合に  $\text{NO}_x$  の添加による着火遅れの大幅な短縮が見られる。雰囲気圧力が大きくなると、それらの効果が現れる初期温度の範囲が拡大する結果も水素/空気混合気と同じである。初期温度が低い場合、活性な  $\text{O}$  ラジカルよりも  $\text{NO}_x$  の添加のほうが着火遅れの短縮効果が大きいことは特筆すべきであろう。Fig.9, Fig.10 には混合気初期温度が 1000K および 1200K の場合の  $\text{NO}_x$  添加効果の圧力依存性を示す。図から、雰囲気圧力によらず  $\text{NO}_x$  の添加効果が現れていること、初期温度 1200K においては、 $\text{NO}$  の添加効果が圧力の増加と共に大きくなる傾向であることがわかる。メタンの燃焼反応に対する  $\text{NO}_x$  の触媒効果は低温反応(1)-(3)を介してであり、反応(1)が 3 体反応であるため  $\text{NO}$  の添加効果に圧力依存性が現れたと考える。一方、 $\text{NO}_2$  が関わる反応(3)は 2 体反応であるため、 $\text{NO}_2$  の添加効果には圧力依存性が現れない。

次に  $\text{NO}_x$  の着火促進効果を最大にする添加割合が存在するのかを調べた。Fig.11, Fig.12 はそれぞれ  $\text{NO}$  および  $\text{NO}_2$  の添加割合を変えた場合の着火遅れ時間を異なる雰囲気圧力で計算した結果である。混合気初期温度は 1000K である。Fig.11 より  $\text{NO}$  の添加に対しては着火遅れ時間に極小値が存在する傾向が顕著に現れている。着火遅れ時間が最小となる  $\text{NO}$  の添加割合は雰囲気圧力が増大すると小さくなる。例えば雰囲気圧力 0.1MPa においては 2.0% の添加が最も着火遅れを短縮するが、雰囲気圧力 0.3MPa 以上になると、 $\text{NO}$  を 0.5% 添加した場合が最も効果が大きい。これらの傾向は水素/空気混合気の場合とほぼ同様である。一方、 $\text{NO}_2$  の添加に対しても、明確ではないものの最適値が存在しており、 $\text{NO}_2$  を約 1% 以上添加した場合、着火遅れ時間は緩やかな増加傾向を示している。圧力の上昇と共に最短の着火遅れ時間となる添加量が小さくなるのは触媒反応に含まれる 3 体反応の反応速度が増加し、

より少ない NO<sub>x</sub> で効果が現れるためである。

メタン/空気混合気に対する HONO 種に関連した反応の追加の影響を調べたが、水素/空気混合気の場合とは異なり、初期温度が低い場合にわずかに着火遅れを短縮する程度であった。

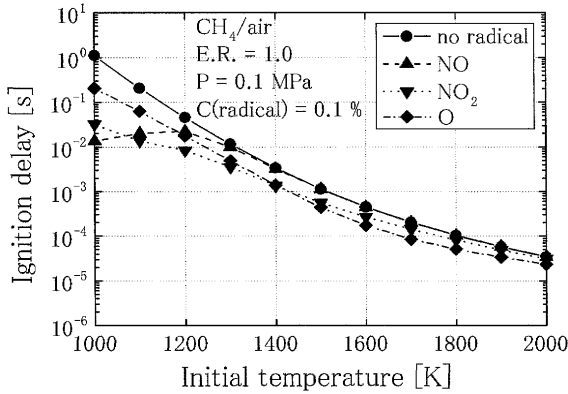


Fig. 7 Effects of NO<sub>x</sub> addition on ignition delay time of CH<sub>4</sub>/air mixture at p=0.1MPa.

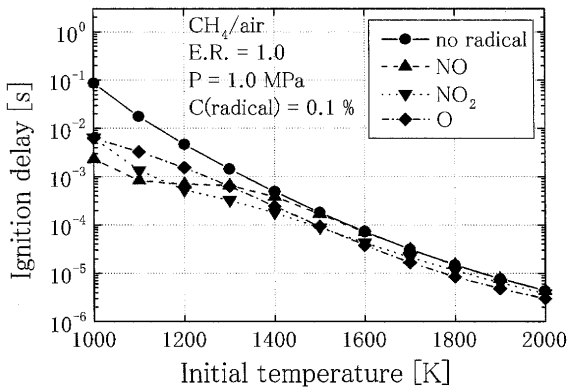


Fig. 8 Effects of NO<sub>x</sub> addition on ignition delay time of CH<sub>4</sub>/air mixture at p=1.0MPa.

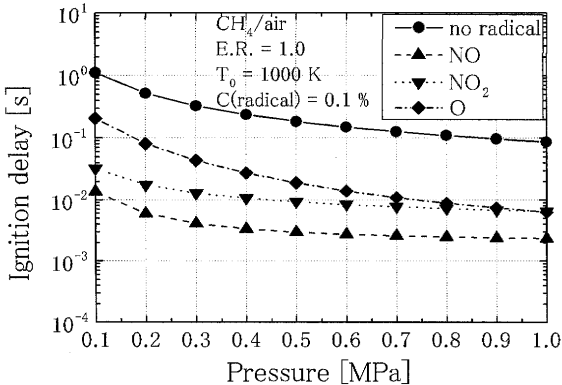


Fig. 9 Dependence of effects of NO<sub>x</sub> addition to CH<sub>4</sub>/air mixture on ambient pressure at T<sub>0</sub>=1000K.

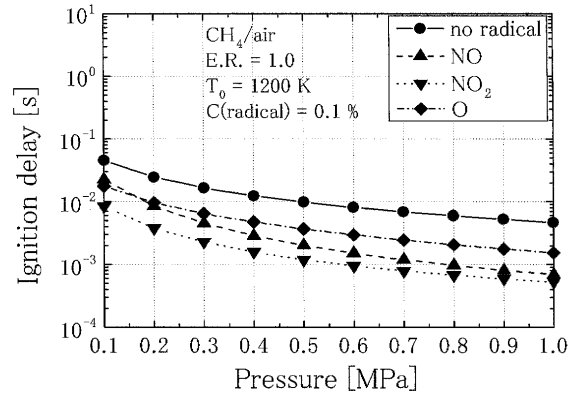


Fig. 10 Dependence of effects of NO<sub>x</sub> addition to CH<sub>4</sub>/air mixture on ambient pressure at T<sub>0</sub>=1200K.

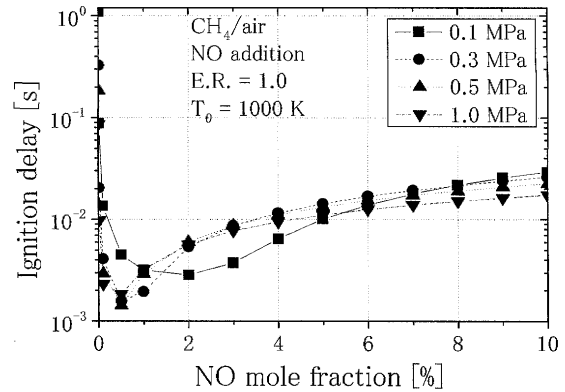


Fig. 11 Dependence of effect of NO addition to CH<sub>4</sub>/air mixture on NO mole fraction at T<sub>0</sub>=1000K.

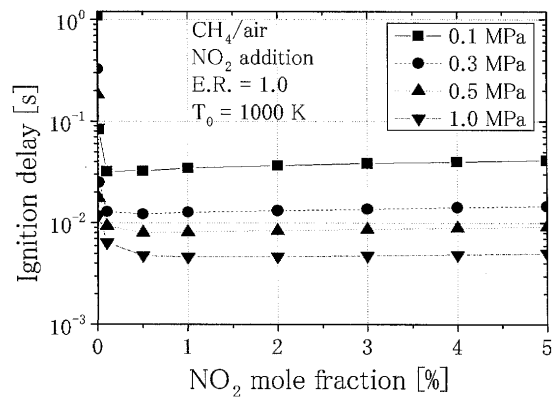


Fig. 12 Dependence of effect of NO<sub>2</sub> addition to CH<sub>4</sub>/air mixture on NO<sub>2</sub> mole fraction at T<sub>0</sub>=1000K.

#### 4 高圧雰囲気下での酸素/窒素 PJ の噴射実験

NO<sub>x</sub> の添加効果は高圧ほど顕著となる。NO<sub>x</sub> を燃焼場に供給できる酸素/窒素混合作動ガスを用いた PJ が高圧雰囲気でも高い着火促進性を有する可能性を示唆している。本節では、酸素/窒素混合 PJ の着火実験

に先立ち、高圧雰囲気でのPJ噴射実験を行い、その安定性、NO<sub>x</sub>量と作動ガスの混合割合の関係を調べる。

#### 4.1 実験装置および実験方法

##### 4.1.1 PJ トーチ

本実験で用いたプラズマトーチは過去の着火実験で用いてきたものである。詳細は文献[4-9]を参照されたい。トーチは水冷式で、PJ トーチを覆う外径 23 mm のアウターノズル内を冷却水が流れることで冷却を行う。陰極にはハフニウムを使用し、酸素を作動ガスとして用いる場合、作動時に表面に高融点酸化皮膜を形成させることにより陰極の酸化・消耗を極力抑えている。陽極は無酸素銅製でノズルも兼ねている。ノズルスロート直径は 1.5 mm である。放電における電流値は 10A~15A、電圧値は 140V~180V であった。

##### 4.1.2 高圧容器および噴射実験方法

Fig.13 に実験装置の概略図を示す。PJ の噴射は、耐圧 4.0MPa、内径 170mm のステンレス製円筒型高圧容器内で行った。PJ トーチは容器上蓋に取り付け、鉛直下向きに PJ を噴射する。また、容器には内部観測用の石英ガラス窓が対向して 2 枚設置されており、PJ の直接写真を撮影した。容器内を窒素またはアルゴンで充填した後、PJ トーチを作動させ、PJ を噴射した。本研究では、PJ 作動ガスとして、酸素、窒素および酸素/窒素混合ガスを用いた。PJ の分光計測には (株) 分光計器製 M25-T 型分光器を用いた。波長精度は 0.1nm、測定範囲は 300nm~1400nm である。

##### 4.2 高圧雰囲気で作動させた PJ の安定性

高圧雰囲気中ではプラズマアークが不安定になることも予想されたため、まず高圧雰囲気中に噴射された PJ の安定性を調べた。雰囲気圧力 0.5MPa までにおいては、作動ガスによらず、電流値、電圧値が一定値を示す安定な PJ を作動、噴射させることができた。Fig.14 に安定な PJ を形成するのに必要な最小投入電力の圧力依存性を示す。安定な PJ を噴射できる最低投入電力は圧力とともに上昇するが、その勾配は穏やかであり、投入電力が 3kW 以上であれば、雰囲気圧力 0.5MPa でも安定した PJ が観測され、特に振動現象等も起こらなかった。また、作動ガス組成への依存性も現れなかったが、酸素を作動ガスとした場合の陽極の損傷は高圧ほど激しかった。

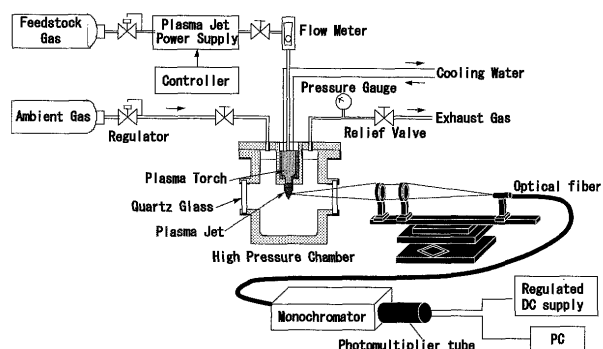


Fig.13 Schematic of experimental apparatus.

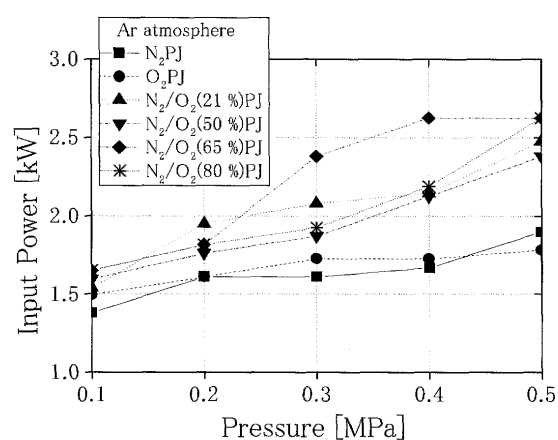


Fig.14 Dependence of minimum electric power input to obtain stable PJ on pressure.

##### 4.3 酸素/窒素 PJ の分光分析

分光分析により PJ の組成を調べた。Fig.15, Fig.16 には高圧容器中に噴射された異なる混合割合の酸素/窒素混合 PJ の噴射孔から 10mm の位置における分光結果を示す。投入電力を 3.0kW に固定している。雰囲気ガスの影響を排除するため、アルゴンガス雰囲気中への噴射とした。図から、NO<sub>x</sub> の帯スペクトルや N ラジカル、O ラジカルの線スペクトルを確認できる。また、それらの強度比や分布が混合割合や雰囲気圧力によって異なることがわかる。損傷した陽極が激しく飛散した場合には Fig.15 に見られるような Cu のスペクトルも計測された。

また、酸素雰囲気中への窒素 PJ の噴射や窒素雰囲気中への酸素 PJ の噴射における分光結果においても NO<sub>x</sub> からの発光を検出できた。これは、高温の PJ が周囲空気と反応して NO<sub>x</sub> を生成することを示しており、混合作動ガス PJ からの NO<sub>x</sub> 量を調整する場合、その点も考慮する必要がある。

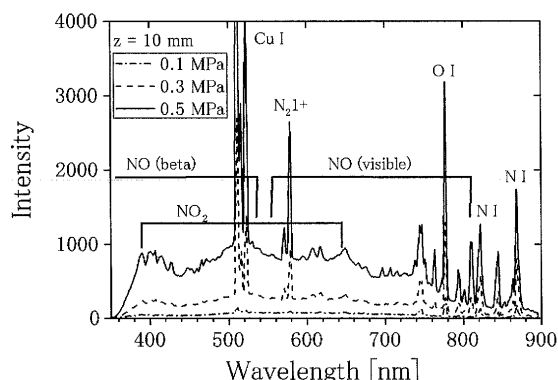


Fig.15 Emission spectra of  $N_2(79\%)/O_2(21\%)$  PJ at different pressure conditions ( $P_{IN}=3.0kW$ ).

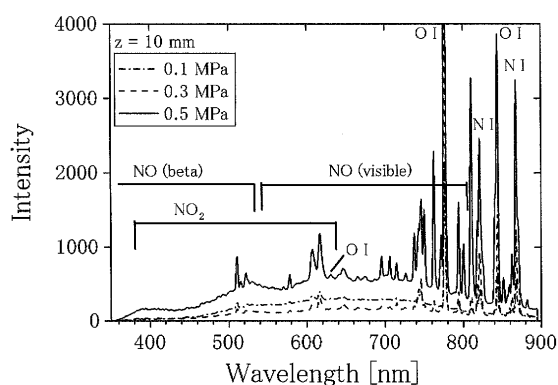


Fig.16 Emission spectra of  $N_2(50\%)/O_2(50\%)$  PJ at different pressure conditions ( $P_{IN}=3.0kW$ ).

## 5 結論

本論文では、着火遅れの数値計算により、微量の  $NO_x$  の存在が水素およびメタンの着火遅れを短縮し、さらに、その効果が高圧雰囲気ほど顕著となることや最適な添加割合が存在することを示した。さらに高圧雰囲気中への酸素/窒素混合 PJ の噴射実験を行い、雰囲気圧力 0.5MPa においても安定な PJ の作動を確認した。また、分光分析により  $NO$ 、 $NO_2$  の存在とそれらからのスペクトル強度が作動ガスの混合割合により変化することを確認した。従って、酸素/窒素混合気を作動ガスに用いることにより高圧雰囲気下でも高い着火促進性を有する点火器を開発できると予想され、今後、着火実験を行うことにより、その有用性を調べていく必要がある。

## 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:06D48501d) によりなされたもので

あり、謝意を表す。また、本研究の一部は東北大学飛躍・発展支援プログラムの成果でもあり、謝意を表す。

(2008 年 5 月 21 日受付, 2008 年 9 月 11 日再受付,  
2008 年 9 月 30 日再々受付)

## 参考文献

- [1] K.Takita, T.Uemoto, T.Sato, Y.Ju, G.Masuya, K.Ohwaki, Ignition Characteristics of Plasma Torch for Hydrogen Jet in an Airstream, *Journal of Propulsion and Power*, Vol.16, pp.227-233, 2000.
- [2] G.Masuya, K.Takita, K.Takahashi, F.Takatori, H.Ohzeki, Effect of Airstream Mach Number on  $H_2/N_2$  Plasma Igniter, *Journal of Propulsion and Power*, Vol.18, pp.679-685, 2002.
- [3] K.Takita, Ignition and Flame-holding by Oxygen, Nitrogen and Argon Plasma Torches in Supersonic Airflow, *Combustion and Flame*, Vol.128, pp.301-313, 2002.
- [4] K.Takita, A.Moriwaki, T.Kitagawa, G.Masuya, Ignition of  $H_2$  and  $CH_4$  in High Temperature Airflow by Plasma Torch, *Combustion and Flame*, Vol.132, pp.679-689, 2003.
- [5] K.Takita, Ignition by  $H_2/N_2$  Plasma Torch in Supersonic Airflow, *Combustion Science and Technology*, Vol.175, pp.743-758, 2003.
- [6] T.Kitagawa, A.Moriwaki, K.Murakami, K.Takita, G.Masuya, Ignition Characteristics of Methane and Hydrogen Using a Plasma Torch in Supersonic Flow, *Journal of Propulsion and Power*, Vol.19, pp.853-858, 2003.
- [7] K.Takita, K.Murakami, H.Nakane, G.Masuya, A Novel Design of a Plasma Jet Torch Igniter in a Scramjet Combustor, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.30, pp.2843-2849, 2005.
- [8] K.Takita, N.Abe, G.Masuya, Y.Ju, Ignition Enhancement by Addition of  $NO$  and  $NO_2$  from a  $N_2/O_2$  Plasma Torch in a Supersonic Flow, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.31, pp.2489-2496, 2007.
- [9] K.Takita, H.Nakane, G.Masuya, Optimization of Double Plasma Jet Torches in a Scramjet Combustor, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.31, pp.2513-2520, 2007.
- [10] B.Han, C.J.Sung, M.Nishioka, Effects of Vitiated Air on Hydrogen Ignition in High-Speed Laminar Mixing Layer, *Combustion Science and Technology*, Vol.176, pp.305-330, 2004.
- [11] T.Amano, F.L.Dryer, Effect of Dimethyl Ether,  $NO_x$ , and Ethane on  $CH_4$  Oxidation : High Pressure, Intermediate-Temperature Experiments and Modeling, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.27, pp.397-404, 1998.
- [12] Y.Tan, C.G.Fotache, C.K.Law, Effects of  $NO$  on the Ignition of Hydrogen and Hydrocarbons by Heated Counterflowing Air, *Combustion and Flame*, Vol.119, pp.346-355, 1999.
- [13] R.J.Kee, J.F.Grcar, M.D.Smooke, J.A.Miller, Sandia National Laboratories Report, SAND85-8240, 1985.
- [14] G.P.Smith, D.M.Golden, M.Frenklach, N.W.Moriarty, B.Eitener, M.Goldenberg, C.T.Bowman, R.K.Hanson, S.Song, W.C.Gardiner Jr, V.Lissianski, Z.Qin, GRI-Mech homepage, Gas Research Institute, 1999.