水素-空気混合気熱面点火における点火遅れに及ぼす直流電界の影響*

瀬川大資^{*1}, 永田晴紀^{*2}, 岸 武行^{*3}
角田敏一^{*1}, 津江光洋^{*4}, 河野通方^{*4}

The Effects of DC Electric Fields on Ignition Delay of a Hydrogen-Air Mixture in Hot Surface Ignition

Daisuke SEGAWA, Harunori NAGATA, Takeyuki KISHI,
Toshikazu KADOTA, Mitsuhiro TSUE, Michikata KONO

The present study was carried out to reveal the possibility of controlling the ignition delay of hydrogen-air mixtures by applying electric fields. A quiescent stoichiometric hydrogen-air mixture was ignited by a suddenly heated thin wire of nickel or tungsten. DC electric fields were applied between the wire and outer electrode plates parallel with the wire. The mean ignition delay was calculated stochastically from the measured ignition delays which scattered considerably. Both with the nickel wire and with the tungsten wire, positive voltages applied to the outer electrode plates resulted in almost the same change of the mean ignition delay; The mean ignition delay showed a slight increase at the lower applied voltages, while it became very short at the highest applied voltage. When the nickel wire was used and negative voltages were applied, the mean ignition delay decreased even at the lower voltages. However, it showed little change with the tungsten wire and the negative applied voltages.

Key Words: Combustion, Ignition, Gaseous Fuel, Hydrogen, Electric Field, Ignition Delay, Hot Surface Ignition

1. 結 言

水素は、各種内燃機関の代替燃料の候補の一つとして考えられており、水素を燃料とするさまざまな内燃機関の開発が長年にわたってなされてきている。さらに、それらの機関を実用化するにあたっての問題点を解決するため、水素の点火特性に関する研究が行われてきている⁽¹⁾⁽²⁾。その中でも水素の熱面点火に関しては、内燃機関との関連ばかりでなく防災などの面からも、その機構解明と制御法の開発が必要であると考えられる。

一方、火炎に電界が影響を及ぼすことは古くから知られており、この性質を利用して、さまざまな燃焼現象を電界で制御しようと試みられてきている。しかしながら、これまでの研究においては、燃焼速度や火炎の輝度変化など、火炎に及ぼす電界の影響に着目点が置かれており⁽³⁾⁽⁴⁾、点火に及ぼす電界の影響について

研究された例はない。

そこで、本研究では電界による水素の熱面点火制御の可能性を明らかにすることを目的として、水素-空気混合気の熱面点火における点火遅れに及ぼす直流電界の影響について調べた。その結果、点火遅れへの直流電界の影響が確認されたので、ここに報告する。

2. 実験装置および実験方法

本実験では、定容容器に充てんされた水素-空気混合気を、ジュール加熱された金属細線(熱線)によって点火した。直流電界は熱線と電極板との間に印加した。

2.1 熱面点火回路 熱線の加熱には、図1に示

Fig. 1 Electric circuit for hot surface-ignition

* 原稿受付 1997年7月30日。

*¹ 正員, 大阪府立大学工学部(☎ 599-8531 堺市学園町1-1)。*² 正員, 北海道大学工学系研究科(☎ 060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)。*³ 正員, 東京大学大学院(☎ 113-8656 東京都文京区本郷7-3-1)。*⁴ 正員, 東京大学工学系研究科。

される熱面点火回路を用いた。本回路は、定温度型熱線風速計で用いられている回路と同じくホイートストンブリッジと電力増幅回路で構成されており、熱線の電気抵抗値を一定に制御する。したがって、熱線は短時間で加熱され、加熱後の熱線温度はほぼ一定に保たれる。なお、本回路の時定数は $100\ \mu\text{s}$ 未満である。

図2に、熱線両端の電位差(以下、加熱電圧と呼ぶ)の時間履歴の例を示す。加熱電圧は回路の作動開始直後に急速に上昇し、その後、急速に低下してほぼ一定となり、そのあと再度、急速に低下することがわかる。回路の作動原理より、加熱電圧が最初に急速に低下する時点で熱線の加熱は完了し、それ以降の熱線の温度はほぼ一定になっていると考えられる。さらに、加熱電圧が二度めに急速に低下するのは、混合気が点火したときの燃焼熱によって熱線の温度が上昇し、それを補正するように回路が加熱電圧を低下させたためであると考えられる。そこで本実験では、加熱電圧が最初に急速に低下してから二度めに急速に低下するまでの時間を点火遅れと定義した。

本実験では、長さ $40\ \text{mm}$ 、直径 $0.10\ \text{mm}$ のニッケル線またはタングステン線を熱線として使い、1回の点火実験ごとに熱線を新しいものに取り替えた。熱線表面の温度測定には光高温計を利用した。輝度温度から温度を算出するのに必要な、波長 $650\ \text{nm}$ におけるニッケルおよびタングステンの放射率は、それぞれ 0.37 および 0.43 とした⁽⁵⁾。

2.2 燃焼容器 燃焼容器の概略を図3に示す。燃焼容器は円筒形で、内径 $120\ \text{mm}$ 、長さ $19\ \text{mm}$ である。容器の円筒部はジュラルミン製、底部はベークライト樹脂製である。容器内部の両底面には厚さ $1.0\ \text{mm}$ の銅製の電極板が取付けられており、この2枚の電極板と平行かつ等距離に位置するように、熱線が支

Fig. 2 An example of time history of heating voltage to igniting wire

柱に取付けられている。

本実験では、燃焼容器円筒部および熱線の一端を接地し、2枚の電極板に同じ極性の直流高電圧を、正負ともに $2.0\ \text{kV}$ まで印加した(以下、印加電圧と呼ぶ)。したがって、熱線の近傍には軸対称の直流電界が印加され、その電界強度は印加電圧とともに大きくなると考えられる。なお、熱線両端の電位差は最大で $10\ \text{V}$ 程度であり、印加電圧よりも十分小さいため、その電位差が直流電界の分布に及ぼす影響は無視できると考えられる。

2.3 実験方法 本実験には、あらかじめ調製した当量比 $\phi=1.0$ の水素-空気混合気を使用した。混合気タンク内を真空にしたのちに、U字管水銀圧力計を用いて所定の割合で実験用乾燥空気および純度 99% の水素を混合気タンクに導入し、混合気を調整した。混合気タンクの容量は $0.06\ \text{m}^3$ であり、混合気を一度調製すると 40 回程度の点火実験が行える。混合気が均質に保たれるように、混合気タンク内のファンにより常時かくはんを行った。

実験手順は以下のとおりである。エタノールとアセトンによって洗浄した新しいニッケル線またはタングステン線を熱線として燃焼容器に取付け、熱線に付着した洗浄液を取り除くために容器内を $130\ \text{Pa}$ 以下の真空にして熱線を $3\ \text{s}$ 間加熱した。そのあと大気圧、室温の混合気を燃焼容器に充てんし、その $60\ \text{s}$ 後に熱面点火回路を作動させて混合気を点火した。直流電界は、回路作動の $5\ \text{s}$ 前から印加した。

点火遅れは、前述のように、デジタルストレージオシロスコープに記録された加熱電圧の時間履歴より測定した。また、熱線と電極板との両電極の間に流れる電流、つまり電極間電流の測定は、電流-電圧変換回路とデジタルストレージオシロスコープとを用いて行った。

2.4 点火遅れの評価法 急速加熱される直径 $3\ \text{mm}$ 程度のニクロム棒を点火源として、水素-空気混

Fig. 3 Schematic diagram of combustion chamber

混合気の熱面点火に関する実験を行った Adomeit は、点火遅れが著しく変動したと報告している⁽⁶⁾。彼は、その原因は不明として、点火遅れの変動についての検討を行っていない。しかしながら、各種の点火過程において点火遅れが変動する(測定値がばらつく)のは広く知られたことであり、熱面点火もその例外ではないと考えられる。熊谷および寺尾は、点火遅れの変動を火花放電や固体の破壊などにおいて現れる遅れ時間の変動と同様に、発生機構に起因する必然的なものであるととらえ、それを解析するための確率論的な手法を提案している⁽⁷⁾⁽⁸⁾。この手法は、例えば燃料噴霧の点火に関する研究に適用されているが⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、混合気の熱面点火はこれまでその適用対象となっていない。

そこで、本研究では彼らの確率論的な手法を拡張して熱面点火に適用するとともに、それを用いて直流電界の点火遅れに及ぼす影響を評価することを試みた。

可燃性混合気の点火遅れが t よりも大きくなる確率を $p(t)$ 、時間 t から $t+dt$ の間に点火する確率を $q(t)dt$ とすると、次の関係が成り立つ⁽⁷⁾。

$$p(t) = \int_t^{\infty} q(t) dt \quad \dots\dots\dots (1)$$

$p(t)$ と $q(t)$ は、それぞれ点火遅れの分布関数と密度関数に相当する。

ここで、各種の点火過程を対象として検討を行った寺尾の研究⁽⁸⁾を参考にして、

$$\ln p(t) = -\alpha(t-\tau)^\beta, t \geq \tau \quad \dots\dots\dots (2)$$

と表されると仮定する。このとき、式(1)、(2)より、

$$q(t) = \alpha\beta(t-\tau)^{\beta-1} \exp[-\alpha(t-\tau)^\beta] \quad \dots\dots\dots (3)$$

となるので、点火遅れの平均値 $\bar{t}$ と分散 σ^2 は、それぞれ次式のように表される。

$$\begin{aligned} \bar{t} &= \int_0^{\infty} tq(t)dt \\ &= \tau + (1/\alpha)^{1/\beta} (1/\beta) \Gamma(1/\beta) \quad \dots\dots\dots (4) \\ \sigma^2 &= \int_0^{\infty} (t-\bar{t})^2 q(t)dt \\ &= (1/\alpha)^{2/\beta} [(2/\beta) \Gamma(2/\beta) - (1/\beta)^2 \{\Gamma(1/\beta)\}^2] \quad \dots\dots\dots (5) \end{aligned}$$

一方、時間 t において 1 モルの混合気が単位時間内に点火する確率を $\mu(t)$ 、点火可能な状態となっている混合気の実数 $n(t)$ とすると、時間 t までは点火せずその後の dt 間に点火する確率 $-dp$ は、次のように表される⁽⁸⁾。

$$-dp(t) = p(t) \cdot n(t) \mu(t) dt \quad \dots\dots\dots (6)$$

熱面点火の過程において、熱伝導に要する遅れ期間以外は無視できる程度に小さく、熱面周囲の混合気の実数分布は熱伝導で決定され⁽⁶⁾⁽¹¹⁾、さらに、ある温度

以上の混合気はすべて点火可能な状態にあると仮定する。このとき、熱面に接する点火可能な混合気層の厚さは時間 t の平方根に比例して増大すると近似される⁽¹²⁾。したがって、 $n(t)$ はその混合気層内の実数に相当するので、

$$n(t) = Ct^{0.5} \quad \dots\dots\dots (7)$$

と近似される。さらに、 $\mu(t)$ は時間によらず一定であると仮定すると、式(6)、(7)より、式(2)の係数 β は 1.5 となるのがわかる。つまり、点火遅れの分布関数 $p(t)$ は次のように近似される。

$$\ln p(t) = -\alpha(t-\tau)^{3/2}, t \geq \tau \quad \dots\dots\dots (8)$$

そして、式(4)、(5)、(8)より、点火遅れの平均値 $\bar{t}$ および標準偏差 σ は、それぞれ次式のように表される。

$$\bar{t} = \tau + (1/\alpha)^{2/3} (2/3) \Gamma(2/3) \quad \dots\dots\dots (9)$$

$$\sigma = (1/\alpha)^{2/3} [(4/3) \Gamma(4/3) - (2/3)^2 \{\Gamma(2/3)\}^2]^{1/2} \quad \dots\dots\dots (10)$$

本実験では、同一条件で 16 回以上実験して得られたデータより、式(8)の係数 α 、 τ を最小二乗法を用いて算出し、その係数と式(9)、(10)より、その条件における点火遅れの平均値 $\bar{t}$ と標準偏差 σ を求めた。

3. 実験結果および考察

3.1 点火遅れの変動 本実験においても、点火遅れの測定値は著しく変動することが確かめられた。

Fig. 4 Probability distribution of ignition delay of a stoichiometric hydrogen-air mixture in hot surface ignition. Without electric fields

直流電界を印加しない場合の実験データを図4に示す。図4の横軸は点火遅れ t_{ig} を、縦軸は点火遅れが t_{ig} よりも大きくなる確率 $p(t_{ig})$ を、それぞれ表している。ニッケル線およびタングステン線の加熱時の表面温度 T_s は、それぞれ1380 Kおよび1400 Kである。図4に示されるように、いずれの熱線の場合にも点火遅れのデータ点は非常に広い範囲にばらついていることがわかる。しかしながら、点火遅れが t_{ig} よりも大きくなる確率により実験データを整理しグラフに表すと、それぞれの熱線に対するデータ点は1本の曲線上に並ぶことがわかる。このことから、水素-空気混合気の熱面点火における点火遅れの確率分布は t_{ig} の関数で近似されることが考えられる。

また、図4の2本の曲線は、ニッケル線とタングステン線それぞれの場合の実験データより最小二乗法を用いて式(8)の係数を算出し、その結果を描画したものである。図4に示されるように、データ点と式(8)で表される曲線は、いずれの熱線の場合にも非常によく一致していることがわかる。つまり、水素-空気混合気の熱面点火における点火遅れの確率分布は、式(8)で近似できることがわかる。したがって、前述の確率論的な手法を用いて点火遅れの平均値 $\bar{t}$ と標準偏差 σ を算出することは、妥当であると考えられる。

しかしながら、実験条件が完全に同一でないことも、点火遅れが変動する原因として考えられる。例えば、混合気の当量比や熱線の性状などのわずかな差異が影響している可能性がある。そこで、それらの影響をできる限り小さくするため、前述のように40回程度に限られた同一の混合気を用いた点火実験においては、印加電圧を一定として、電界を印加した実験としない実験とを1回ずつ交互に行った。そして、得られた実験データより式(8)~(10)を用いてそれぞれの場合の点火遅れの平均値と標準偏差を算出したうえで、電界を印加した場合の点火遅れの平均値と標準偏差とを、電界を印加しない場合の点火遅れの平均値によって無次元化し、それらを用いて点火遅れに及ぼす電界の影響を定性的に評価した。

3・2 直流電界の影響 ニッケル線とタングステン線のいずれを熱線として用いた場合においても、直流電界は水素-空気混合気を熱面点火させたときの点火遅れに影響を及ぼすことが確かめられた。さらに、その直流電界の影響は、印加電圧の極性や熱線の種類によって異なることが明らかになった。

熱線にニッケル線を用い、熱面温度 $T_s=1380$ Kとして混合気を熱面点火したときの、点火遅れと印加電圧 V_a の関係を、図5に示す。図5中の白丸と誤差線

Fig. 5 DC electric field effect on normalized mean ignition delay. Igniting wire: nickel

は、それぞれ前述の方法により無次元化された点火遅れの平均値と標準偏差とを表している。また、横軸に平行な2本の直線は、電界を印加しない場合の標準偏差(平均値で無次元化しているので、変動係数に相当する)を明示したものである。印加電圧 V_a を正としたとき、+0.5 kV から +1.5 kV までの範囲では、電界のない場合よりも点火遅れは大きな値となったのに対し、+2.0 kV まで高くなると逆に、点火遅れは半分近くまで小さくなった。一方、印加電圧 V_a を負としたときは、-0.5 kV から -2.0 kV までのすべての場合において、点火遅れは電界のない場合の半分程度の値となり、印加電圧による影響の違いは明確には現れなかった。このように、直流電界の影響の強さは、印加電圧の絶対値が同じであってもその極性によって異なることがわかる。

なお、標準偏差を考慮すると、印加電圧が +0.5 kV から +1.5 kV までのときに点火遅れが大きくなった結果の有意性は、高くはないと考えられる。それに対して、印加電圧が +2.0 kV の場合および印加電圧が負の場合には、明らかに点火遅れは小さくなったと判断される。

熱面にタングステン線を用い、熱面温度 $T_s=1400$ Kとして混合気を熱面点火したときの、点火遅れと印加電圧 V_a の関係を、図6に示す。図6中の記号等の意味は図5と同様である。印加電圧が正の場合、点火遅れと印加電圧との関係はニッケル線を用いたときとほぼ同様であった。それに対して、印加電圧が負の場合には点火遅れに有意な変化が現れず、ニッケル線を

Fig. 6 DC electric field effect on normalized mean ignition delay. Igniting wire: tungsten

用いたときの結果とは大きく異なっていた。

以上の実験結果をまとめると、次のようになる。印加電圧が正の場合、つまり熱線が陰極の場合には、印加した直流電界の強度が十分強くなると熱面点火が促進され、その効果は熱線がニッケル線とタングステン線のいずれの場合も同じであった。それに対し、印加電圧が負の場合、つまり熱線が陽極の場合における直流電界の効果は、熱線の種類によって大きく異なっていた。

3.3 電極間電流 直流電界を印加して混合気を熱面点火したときに得られた電極間電流の時間履歴の例として、ニッケル線を熱線に用い、印加電圧 $V_a = +2.0$ kV としたときの測定結果を図7に示す。図7の横軸は、熱面点火回路の作動開始からの経過時間を表している。電極間電流はニッケル線が加熱されると徐々に増加し、ニッケル線が一定温度となり加熱電圧が急速に低下した約 30 ms 後に、ほぼ一定の値となった。そして、混合気が点火すると電極間電流は急速に増加した。本実験では、加熱電圧が最初に急速に低下してから 30 ms 後の電極間電流と、熱線加熱前の電極間電流との差、つまり熱線の加熱により生じた電極間電流の変化量を放電電流と定義した。なお、熱線を加熱しない状態で +2.0 kV および -2.0 kV まで印加電圧を上げ、暗室中で線を目視した限りでは、ニッケル線とタングステン線のいずれを用いた場合も、放電現象特有の発光は確認されなかった。したがって、図7に示されるような熱線加熱前の電極間電流は、暗流

Fig. 7 Time histories of current between electrodes and heating voltage of igniting wire. Igniting wire: nickel; Applied voltage to outer electrodes: +2.0 kV

Fig. 8 Discharge current

に相当すると考えられる。

放電電流と印加電圧との関係を、図8に示す。印加電圧が正のとき、ニッケル線とタングステン線のいずれを用いた場合も、放電電流は $V_a = +1.5$ kV までは微小であったのに対して、 $V_a = +2.0$ kV で急増した。図3からわかるように、本実験において印加された直流電界は不平等であり、熱線近傍の電界強度が大きくなっている。このような場合、印加電圧がある程度以上に高くなると、熱線近傍でコロナ放電が発生することが知られている。コロナ放電が発生すると、活性化学種が生成されるとともに放電発生部の気体が局所的に加熱され、点火反応は促進されと考えられる。例えば、大気中でコロナ放電が発生するとオゾンが生成されるが、オゾンは点火反応を促進することが明らかにされている⁽¹³⁾。図8に示されるように $V_a = +2.0$ kV で放電電流は急増し、図5および図6に示されるように、同じく $V_a = +2.0$ kV で点火遅れは大幅に小

さくなくなった。このことから、ニッケル線とタングステン線のいずれを用いた場合も、 $V_a = +2.0 \text{ kV}$ のときには熱線が加熱されることでコロナ放電が発生し、その効果により点火遅れが小さくなった可能性があると推測される。

一方、ニッケル線を用いて印加電圧を負としたとき、点火遅れは変化して小さな値となったにもかかわらず、放電電流は微小であった。それに対して、タングステン線を用いて印加電圧を負としたときは、点火遅れはほとんど変化しなかったにもかかわらず、放電電流は印加電圧に比例して変化した。したがって、印加電圧が負のときの現象は、コロナ放電では説明できない。熱線の種類によって直流電界の影響に明らかな違いが見られたことから、熱線の材質に依存する何らかの機構、例えば二次電子放出⁽¹⁴⁾や表面反応⁽¹⁵⁾などが、印加電圧が負のときの現象に関与しているのではないかと推測される。

4. 結 論

当量比 1.0 の水素-空気混合気を熱面点火したときの点火遅れに及ぼす直流電界の影響について調べた。短時間で加熱されてその後は一定温度に保たれる、ニッケル線またはタングステン線の 2 種類の熱線により、混合気を点火した。直流電界は、熱線と熱線に平行に設置された電極板との間に印加した。実験結果より得られた知見を以下に示す。

(1) 測定される点火遅れは著しく変動するが、熊谷および寺尾の提案する確率論的な手法に基づいて導出された分布関数によって、点火遅れの確率分布はよく近似できる。

(2) 直流電界は、水素-空気混合気が熱面点火するときの点火遅れに影響を及ぼす。

(3) 電極板に正電圧を印加した場合、つまり熱線が陰極の場合、直流電界の電界強度が小さいときには点火遅れはわずかに大きくなる傾向が見られるが、電界強度が大きくなると点火遅れは小さくなる。これは、熱線がニッケル線とタングステン線のいずれの場

合においても同様である。

(4) 電極板に負電圧を印加した場合、つまり熱線が陽極の場合、ニッケル線を熱線として用いたときには、小さい電界強度で点火遅れは小さくなり、電界強度がそれ以上に大きくなっても点火遅れはそのままほぼ一定の値を示す。一方、タングステン線を用いたときには、点火遅れはほとんど変化しない。

(5) 熱線が陰極の場合、電界強度が大きくなると点火遅れは小さくなるが、このとき放電電流は大きな値を示す。この結果は、コロナ放電の発生を示しているものと考えられる。

本研究の一部には、文部省科学研究費補助が与えられた。ここに感謝の意を表す。さらに、本研究を行うにあたり多大なるご助力をいただいた、東京大学工学系研究科航空宇宙工学専攻の百々悟助手、和田佳之助手、内海正文技官、岩田梯次技官、および実験を行った当時、学部生であった片野剛司君に謝意を表す。

文 献

- (1) 大塚芳郎, 燃焼研究, **52**(1979), 21-26.
- (2) 榎本謙二郎, 自動車技術, **36-4**(1982), 378-383.
- (3) Weinberg, F. J., ed., *Advanced Combustion Methods*, (1986), 331, Academic Press.
- (4) 平野敏右, 機誌, **74**(1971), 1410-1417.
- (5) 眞島正市・磯部孝, 計測法通論, (1974), 363, 東京大学出版会.
- (6) Adomeit, G., *Proc. 10th Symp. (Int.) Combust.*, (1965), 237-243.
- (7) 熊谷清一郎, 燃焼, (1976), 64, 岩波書店.
- (8) 寺尾邦夫, 燃焼と気相デトネーション波, (1991), 39, アイビーシー.
- (9) 柄沢隆夫・川口暁生・志賀聖一・倉林俊雄, 機論, **54-503**, B(1988), 1848-1855.
- (10) 廖赤虹・寺尾邦夫, 機論, **58-553**, B(1992), 2912-2918.
- (11) Ashman, L. E. and Büchler, A., *Combust. Flame*, **5** (1961), 113-121.
- (12) Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N., *Transport Phenomena*, (1960), 354, John Wiley & Sons.
- (13) Nomaguchi, T. and Koda, S., *Proc. 22nd Symp. (Int.) Combust.*, (1988), 1677-1682.
- (14) 河野照哉, 高電圧工学, (1994), 17, 朝倉書店.
- (15) Bannister, W. W., Beladakere, N. and Patronick, J., *Proc. Central States Spring Meet. Combust. Inst.*, (1995), 323-328.