

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：17501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K00584

研究課題名(和文) 高圧燃焼器より生じる微粒子の生成予測モデルと抑制手法の構築

研究課題名(英文) Development of a prediction model of soot particles generated from high pressure combustors

研究代表者

橋本 淳 (Hashimoto, Jun)

大分大学・理工学部・准教授

研究者番号：00342551

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：近年、健康へ与える影響が大きい大気汚染物質として、微小粒子が注目を集めている。生活を支える各種燃焼機器は、効率向上の観点から高圧下での運転が求められている。そのような条件下においては、実験の困難さ故、微小粒子の生成メカニズムについて不明な部分も多い。本研究では、高圧下における微小粒子状物質の計測を行うと共に、生成機構解明と予測モデルの開発を目的として研究を行った。その結果、高圧条件に対応した予測モデルの開発指針を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：Due to the harmful influence of fine particles on human health, the particulate mass and number regulations are included in the European emission standards for passenger cars, indicating that further understanding of soot particle formation under high pressure conditions and construction of a prediction model are required. In this study, measurements of the particle volume fraction and soot pre-cursors were carried out for counter flow non-premixed propane flames at elevated pressure. Experimental results were compared with numerical results calculated by using existing soot particle prediction models. As a result, we have obtained development guidelines for a soot prediction model applicable to high pressure conditions.

研究分野：燃焼工学

キーワード：すす 粒子状物質 多環芳香族炭化水素 拡散火炎 燃焼

1. 研究開始当初の背景

近年、PM_{2.5}という言葉が浸透したように、大気汚染物質として微小粒子状物質 (PM) が注目を集めている。PM とは、固体、液体を含め大気中に浮遊する粒子を大気汚染の原因として考えた場合の総称である。その中でも PM_{2.5} は、浮遊する粒子のうちその直径が概ね 2.5 μm 以下のものである。数 μm 以下の粒子は気管支、肺と深く到達し、健康へ与える影響が大きいとされる。そのため、例えば内燃機関では、欧州においてガソリンエンジンに対する PM 規制が 2014 年、2017 年と段階的に強化された。そこでは PM 排出個数について基準が示されている。前述のとおり微小粒子が健康へ与える影響を考慮しての基準であり、規制は厳しく、対応の手段によって熱効率が 5% 程度低下することが懸念されている。一方で、生活を支える各種燃焼機器は、高压下、つまりは微小粒子が生成しやすい条件での運転が求められるつつある。そのような条件下においては、実験の困難さ故、微小粒子の生成メカニズムについて不明な部分も多い。そのため、微粒子生成特性の解明とモデル化が望まれている。

2. 研究の目的

本研究は、工場・自動車等の燃焼機器によってもたらされる PM に着目し、圧力がすす生成特性に及ぼす影響を明らかにすることを目的としている。図 1 に、大気中に浮遊する粒子状物質の個数分布とその成長過程の様子を示す。図中、2.5 μm 程度以下が微小粒子、0.1 μm 程度以下が超微粒子とされる。燃焼過程では、生成物のうち一部は環状物質 (PAH) として成長する。PAH は 4 環以上で複数の分子が結合し、数 nm 程度の粒子核を形成する。その後、粒子が小さい間は粒子表面への気相分子の表面反応を中心に、ある程度成長した粒子は相互に衝突して凝集を繰り返す、成長してゆくと考えられている。本研究では、このような過程について圧力が及ぼす影響を調べるために、PAH およびすす生成量の計測実験、さらには数値解析によるモデル分析を行った。

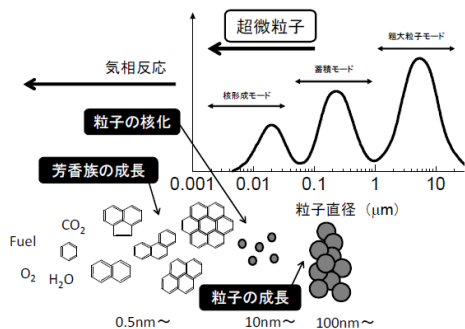


図 1 粒子状物質の成長過程

3. 研究の方法

実験には定容器内に配置された対向流燃

焼器を用いた。図 2 に実験システムの概略を示す。対向流燃焼器では、向かい合った 2 つのダクトから酸化剤流および燃料流を供給することによって、中心軸上に 1 次元定常火炎が形成可能である。各ガスの流量調整にはマスフローコントローラーを用いた。燃焼実験時には、まず真空ポンプを用いて容器内の気体を除去し、その後、窒素を充填しながら圧力調整を行った。次に、酸化剤流および燃料流を指定条件で流入させた上で点火を行い、最終的な圧力調整を行った。なお、高压下で安定した実験を行うために、燃料は気体燃料であるプロパンとした。

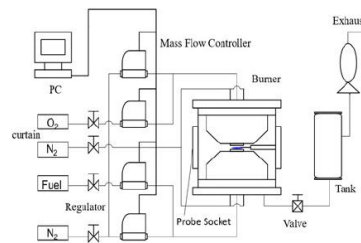


図 2 対向流燃焼実験システム

化学種分析には、加熱脱着装置付ガスクロマトグラフおよび質量検出器 (TD-GC/MS) を用いた。図 3 に本研究で制作した採取装置の概略を示す。燃焼ガスはプローブ、シリンジを用いて採取した。プローブから吸引された試料はフィルターにて粒子が除去された後、ガラス管内に充填された吸着剤を通過する。試料採取後、吸着管は加熱脱着装置に挿入され、昇温プログラムに基づいて試料を脱着させた後、ガスクロマトグラフで分離し、質量検出器を用いて検出した。本研究では PAH として、3 環のフェナントレン (A3) および 4 環のピレン (A4) を計測対象とした。すす体積濃度 (Particle Volume Fraction, 以下 PVF) の計測にはレーザー透過光減衰法を用いた。光源には He-Ne レーザーを用い、分光器で分光された光強度をフォトマルで検出した。PAH, PVF いずれも、予備的な数値解析結果で最大値を示した、燃料ダクト出口から 3 mm を計測座標とした。

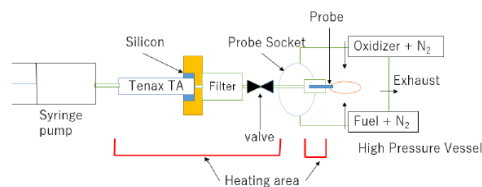


図 3 試料ガス採取装置

数値計算には Chemkin-Pro⁽¹⁾ の Opposed Flow モデルを用いた。気相反応およびすす成長モデルには Saggese らの機構⁽²⁾ (297 化学種, 16,797 素反応, 以降 CRECK) を用いた。なお、すす成長過程はセクション法で記述されている。

4. 研究成果

本研究ではまず、常圧ではすす生成量が少なく、圧力によってすす生成量が大きく変化する条件を特定した。圧力は、0.1, 0.15, 0.2 MPa とした。図4に特定した拡散火炎の直接写真を数例示す。図から、圧力上昇に伴い輝炎強度が増加していることがわかる。なお、これらの条件において、燃料流は窒素およびプロパンで構成され、そのモル分率は0.8および0.2、流速は14.6 cm/s、酸化剤流は窒素および酸素で構成され、モル分率は0.693および0.307、流速は14.9 cm/sである。



図4 拡散火炎の直接写真

図5にPAHの検出結果と数値解析結果を示す。実験結果はMSによる検出カウント値、数値解析結果は2章で述べた通りプローブによる吸引領域に存在する物質質量を示しており、圧力(投入燃料量に対応)で除した上で、0.1 MPaを基準とした変化率を表している。図から、数値解析結果は圧力の上昇に伴いA3, A4いずれも増加することがわかる。一方、実験結果はA3は概ね一定であるのに対してA4が大きく増加することがわかる。

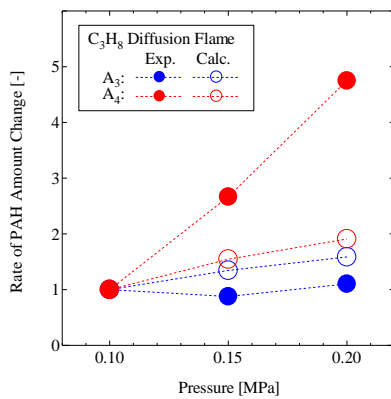


図5 PAHの圧力に対する変化率

図6に、すす体積濃度の圧力による変化率を示す。数値解析値は、レーザー直径である2 mmに対応した区間を積分して示してある。また、各圧力による結果は圧力で除した上で、0.1 MPaを基準とした変化率を表している。図から、圧力の増加に伴い、すす体積濃度が大きく増加することがわかる。また、数値計算結果は実験値の傾向を定性的には良く再現することがわかる。一方、計算値は実験値に対して増加率が大きい。また、図5および図6から、すす生成量は圧力に対して、すす前駆体の増加率以上に増加している。このような傾向について、数値モデルを分析することによって調べた。

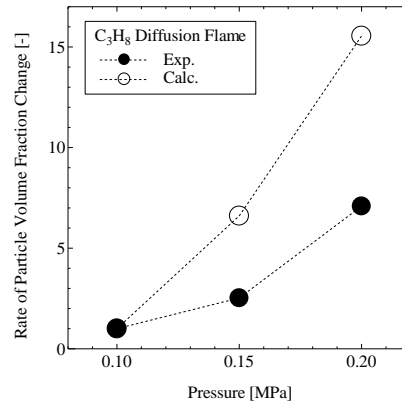


図6 すす体積分率の圧力に対する変化率

本研究では粒子成長に関わる因子をモデル分析によって調査した。評価はCRECKモデルで行った。以降、BIN_{xx}はあるサイズの粒子を表す。計算された粒子直径を整理した結果、本研究の範囲では10 - 50 nm程度が主な粒子サイズであった。そこで、BIN₁₂ (10.14 nm) からBIN₁₃ (13.27 nm) への成長過程、およびBIN₁₅ (28.63 nm) からBIN₁₆ (42.98 nm) への成長過程について調べた。それぞれの成長速度が最も大きくなる座標において、図7にはBIN_{12A}からBIN_{13A}への、図8にはBIN_{15A}からBIN_{16A}への上位の反応(物理現象)とその反応速度を示す。各反応は反応物として2化学種が関与していることから、密度の影響を除去するため、各速度は圧力の2乗で除した値を示している。なお、他の粒子サイズにおいても概ね同様の傾向であった。これらの反応はいずれも、1環から7環程度の比較的小さな芳香族炭化水素が粒子表面に付着する現象を表している。図から、これらの反応が圧力に対して大きく増加しており、図6に

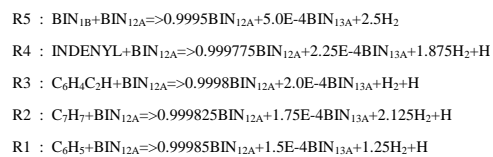
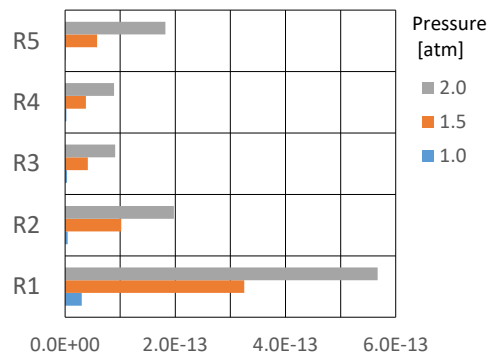


図7 粒子成長に影響が大きい反応の速度 (BIN_{12A} → BIN_{13A})

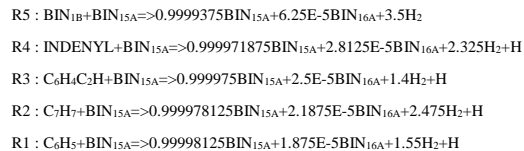
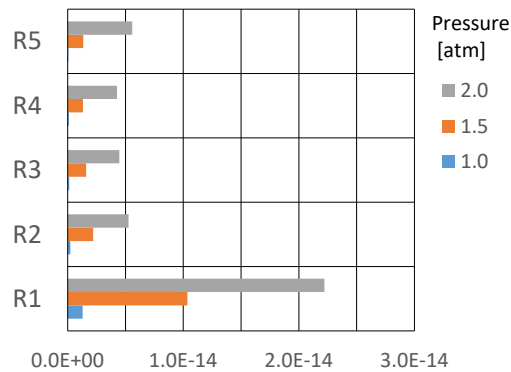


図8 粒子成長に影響が大きい反応の速度を示すPVFの傾向と整合性があると考えられる。以上から、このような現象の最適化が、モデル開発のポイントの一つと言える。現在、常圧ではモデル最適化を進めており⁽³⁾、今後、圧力に対する傾向の最適化を進める指針が得られた。

<引用文献>

(1) ANSYS Chemkin-Pro, ANSYS, Inc., San Diego, 2016.
(2) Saggese, C., Ferrario, S., Camacho, J., Cuoci, A., Frassoldati, A., Ranzi, E., Wang, H. and Faravelli, T., Kinetic modeling of particle size distribution of soot in a premixed burner-stabilized stagnation ethylene flame, *Combustion and Flame*, Vol. 162, pp. 3356-3369, 2015.
(3) 由井寛久, 生井裕樹, 岩田和也, 今村宰, 秋濱一弘, 橋本淳, すず粒子生成モデルにおける表面反応および核形成反応がすず生成特性に及ぼす影響, 自動車技術会論文集, Vol. 48, No. 6, pp. 1207-1212, 2017.

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 6件)

(1) 由井寛久, 生井裕樹, 岩田和也, 今村宰, 秋濱一弘, 橋本淳, すず粒子生成モデルにおける表面反応および核形成反応がすず生成特性に及ぼす影響, 自動車技術会論文集, 査読有, Vol. 48, No. 6, pp. 1207-1212, 2017.
(2) 橋本淳, 足立久也, 伊東朋晃, 高橋美紗紀, 田上公俊, Toluene Reference Fuel 火炎における芳香族炭化水素の生成特性, 自動車技術会論文集, 査読有, Vol. 48, No. 6, pp. 1201-1206, 2017.

(3) 秋濱一弘, 橋本淳, モーメント法を用いたすず粒子生成計算, 日本燃焼学会誌, 査読無, Vol. 59, No. 189, pp. 200-208, 2017.

(4) Jun Hashimoto, Jun Hosono, Keisuke Shimizu, Ryota Urakawa, Kimitoshi Tanoue, Extinction limits and flame structures of ETBE, DIPE and TAME non-premixed flames, *Proceedings of the Combustion Institute*, 査読有, Vol. 36, Issue 1, pp. 1439-1446, 2017.

<https://doi.org/10.1016/j.proci.2016.05.010>

(5) Akira Miyamoto, Kenji Inaba, Yukiko Obara, Yukie Ishizawa, Emi Sato, Mai Sase, Patrick Bonnaud, Ryuji Miura, Ai Suzuki, Naoto Miyamoto, Nozomu Hatakeyama, Jun Hashimoto, Kazuhiro Akihama, Particulate Matter Formation Dynamics as Investigated by Ultra-Accelerated Quantum Chemical Molecular Dynamics Coupled with Canonical Monte Carlo Method, *SAE Technical Paper*, 査読有, 2016-01-0553, 2016, doi:10.4271/2016-01-0553.

<https://doi.org/10.4271/2016-01-0553>

(6) 田上公俊, 藤本祐一郎, 細野淳, 高橋大樹, 清水慶祐, 橋本淳, 高圧下での炭化水素燃料の消炎特性に関する研究, 自動車技術会論文集, 査読有, Vol. 46, No. 6, pp. 1039-1044, 2015.

[学会発表] (計 23件)

(1) 橋本淳, 足立久也, 伊東朋晃, 高橋美紗紀, 田上公俊, 模擬筒内プール燃焼場における粒子状物質の成長に関する研究, 第28回内燃機関シンポジウム (福岡リーセントホテル・福岡), 平成29年12月
(2) 生井裕樹, 由井寛久, 岩田和也, 今村宰, 小橋好充, 橋本淳, 石井一洋, 秋濱一弘, ガソリンサロゲート燃料のすず粒子生成モデルに関する研究, 第55回燃焼シンポジウム (富山国際会議場・富山), 平成29年11月
(3) 伊東朋晃, 高橋美紗紀, 足立久也, 橋本淳, 田上公俊, プロパン拡散火炎の芳香族炭化水素生成特性に圧力が及ぼす影響, 第55回燃焼シンポジウム (富山国際会議場・富山), 平成29年11月
(4) 足立久也, 高橋美紗紀, 伊東朋晃, 橋本淳, 田上公俊, プール燃焼を模擬した反応帯における芳香族炭化水素の成長に関する研究, 第55回燃焼シンポジウム (富山国際会議場・富山), 平成29年11月
(5) 由井寛久, 生井裕樹, 岩田和也, 今村宰, 秋濱一弘, 橋本淳, すず粒子生成モデルにおける表面反応および核形成反応がすず生成特性に及ぼす影響, 自動車技術会2017年春季大会 (パシフィコ横浜・横浜), 平成29年5月
(6) 橋本淳, 足立久也, 伊東朋晃, 高橋美紗紀, 田上公俊, Toluene Reference Fuel 火

炎における芳香族炭化水素の生成特性，自動車技術会 2017 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 29 年 5 月

(7) 足立久也，伊東朋晃，高橋美沙紀，橋本淳，田上公俊，対向流拡散火炎における芳香族炭化水素の生成特性に関する研究，九州支部第 70 期総会・講演会（佐賀大学理工学部・佐賀），平成 29 年 3 月

(8) 由井寛久，高月基博，生井裕樹，今村宰，橋本淳，秋濱一弘，アセチレン表面付加反応がすす生成量に及ぼす影響，第 27 回内燃機関シンポジウム（東京工業大学・蔵前会館・東京都目黒区），平成 28 年 12 月

(9) 橋本淳，植田拓巳，鶴留直之，足立久也，田上公俊，拡散火炎における芳香族炭化水素の生成特性に関する研究，第 27 回内燃機関シンポジウム（東京工業大学・蔵前会館・東京都目黒区），平成 28 年 12 月

(10) 由井寛久，高月基博，今村宰，橋本淳，秋濱一弘，すす粒子生成モデルにおける表面反応がすす生成に及ぼす影響，第 54 回燃焼シンポジウム（仙台国際センター・仙台），平成 28 年 11 月

(11) 植田拓巳，鶴留直之，足立久也，橋本淳，田上公俊，プール燃焼場における酸化剤温度が PAHs に及ぼす影響，第 54 回燃焼シンポジウム（仙台国際センター・仙台），平成 28 年 11 月

(12) 清水慶祐，松葉貴洋，橋本淳，嶋田不美生，田上公俊，高圧対向流火炎の消炎特性に及ぼす火炎形態の影響，第 54 回燃焼シンポジウム（仙台国際センター・仙台），平成 28 年 11 月

(13) 鶴留直之，植田拓巳，足立久也，橋本淳，田上公俊，イソオクタン拡散火炎における芳香族炭化水素の生成特性に関する研究，熱工学コンファレンス 2016（愛媛大学城北キャンパス・松山），平成 28 年 10 月

(14) 佐瀬舞，佐藤亮，佐藤絵美，稲葉賢二，パトリック・ボノー，三浦隆治，鈴木愛，宮本直人，畠山望，橋本淳，秋濱一弘，宮本明，自動車エンジン燃焼中における煤粒子成長過程のマルチスケール解析，第 118 回触媒討論会（岩手大学理工学部・盛岡），平成 28 年 9 月

(15) 佐瀬舞，佐藤絵美，稲葉賢二，石澤由紀江，鈴木愛，三浦隆治，Patrick Alain Bonnaud，畠山望，橋本淳，秋濱一弘，宮本明，自動車エンジン燃焼中の煤粒子成長過程のマルチスケール解析，自動車技術会 2016 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 28 年 5 月

(16) 佐藤絵美，小原幸子，石澤由紀江，稲葉賢二，佐藤愛美，小室怜，宮本直人，畠山望，橋本淳，秋濱一弘，宮本明，量子論からの積上げによるスス粒子の吸着挙動シミュレーション - 化学吸着を考慮したスス粒子の吸着挙動 -，自動車技術会 2016 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 28 年 5 月

(17) 橋本淳，井上達朗，中村健，鶴留直

之，植田拓巳，田上公俊，プール燃焼場における多環芳香族炭化水素の生成特性に関する研究，自動車技術会 2016 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 28 年 5 月

(18) 植田拓巳，鶴留直之，橋本淳，田上公俊，プール燃焼場に生成されるすす前駆体の計測，日本機械学会九州支部第 69 期総会・講演会（熊本大学・熊本），平成 28 年 3 月

(19) 鶴留直之，高橋大樹，植田拓巳，橋本淳，田上公俊，窪山達也，森吉泰生，壁面付着燃料の蒸発と燃焼により生じる PM に関する数値解析，第 53 回燃焼シンポジウム（つくば国際会議場・つくば），平成 27 年 11 月

(20) 細野淳，浦川涼太，田上公俊，橋本淳，ETBE および DIPE 拡散火炎の着火・消炎特性に関する研究，第 53 回燃焼シンポジウム（つくば国際会議場・つくば），平成 27 年 11 月

(21) 藤本祐一郎，田上公俊，橋本淳，清水慶祐，嶋田不美生，各種条件下における炭化水素火炎の消炎特性に関する研究，日本機械学会熱工学コンファレンス 2015（大阪大学・大阪），平成 27 年 10 月

(22) 田上公俊，藤本祐一郎，細野淳，高橋大樹，橋本淳，高圧下での炭化水素燃料の消炎特性に関する研究，自動車技術会 2015 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 27 年 5 月

(23) 橋本淳，南野由登，高橋大樹，田上公俊，窪山達也，森吉泰生，壁面に付着した模擬ガソリン燃料の燃焼により生じる PM に関する研究，自動車技術会 2015 年春季大会（パシフィコ横浜・横浜），平成 27 年 5 月

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕（計 0 件）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

橋本 淳 (HASHIMOTO, Jun)
大分大学・理工学部・准教授
研究者番号：00342551

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

田上 公俊 (TANOUE, Kimitoshi)
大分大学・理工学部・教授
研究者番号：60284783

森吉 泰生 (MORIYOSHI, Yasuo)
千葉大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：40230172

(4)研究協力者

なし