

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月21日現在

機関番号：32407

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05839

研究課題名(和文) 排気ガス組成制御による大量EGRガソリンエンジンの研究

研究課題名(英文) Study of a large amount EGR gasoline engine by the exhaust gas composition control

研究代表者

中野 道王 (Nakano, Michio)

日本工業大学・基幹工学部・教授

研究者番号：90394692

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)：本研究では、EGR(排ガス再循環)を用いて燃費を改善しようとするガソリンエンジンを対象として、大量EGRの導入による燃焼の悪化を抑制し、熱効率改善を可能とする燃焼技術の実現を目的とした。包括的2次元ガスクロマトグラフを用いて排ガスを詳細に分析した結果、これまで着目されなかった含酸素炭化水素に加え、燃料の骨格にニトロ基が付加した化合物を発見した。ニトロ基が付加した化合物は反応促進効果を有すると考えられ、EGRによる燃焼促進技術に向けた新たな知見が得られた。今後は、ニトロ基が付加した化合物の生成メカニズムの解明と制御手法の構築に加え、エンジン実験による実証が必要である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で新たに発見された排ガス中の成分は、現在広く用いられている詳細な化学反応モデルでは考慮されていない。この成果は、今後のエンジン燃焼や排ガス性状の研究において、新たな反応メカニズムを考慮することの必要性を示すものであり、学術的に重要な発見である。また、発見された成分は新たな燃焼制御物質として利用できる可能性が高く、このことはガソリンエンジンの熱効率改善に向けた重要な知見である。さらに、本研究で確立された排気ガス分析技術やデータは、他の内燃機関にも応用可能であり、燃焼解析のための基盤技術としても大きな意義を有する。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to realize the combustion technology that can improve the thermal efficiency by suppressing the deterioration of combustion by the introduction of a large amount of EGR for gasoline engines that aim to improve the fuel efficiency using EGR (exhaust gas recirculation). As a result of exhaust gas analysis using a comprehensive two-dimensional gas chromatograph, in addition to oxygenated hydrocarbons that have not been noticed in previous studies, compounds in which a nitro group is added to the fuel skeleton were found. It is thought that compounds with nitro group had the reaction promotion effect, and new knowledge for combustion promotion technology by EGR was obtained. In the future, in addition to elucidation of the formation mechanism of nitro group-added compounds and the construction of control method, it is necessary to demonstrate by engine experiments.

研究分野：エンジン燃焼

キーワード：エンジン燃焼 排ガス再循環 燃焼生成物 含酸素炭化水素 ニトロ化合物 燃焼制御 包括的2次元ガスクロマトグラフ

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

自動車用の内燃機関において、EGR (排ガス再循環) は、熱効率向上や排気有害物質の低減のために利用されてきた。しかし、シリンダー内に投入できる EGR の体積割合は、およそ全体の 20%程度が限界であり、これ以上 EGR を投入すると失火により正常な運転ができなくなる。しかし、ガソリンエンジンに大量の EGR を導入できれば、吸入空気を制限することで生じていたポンプ損失 (運転条件によって投入熱量の 20%以上を無駄に消費する) を大幅に低減することが可能となる。

これまでに申請者らは、予混合圧縮自着火燃焼 (HCCI 燃焼) を対象に、次に示す結果を得た。HCCI 燃焼エンジンでは、失火限界に近い運転条件において既燃ガスに含まれる数千 ppm の H₂O₂ が失火を抑制する。しかし、燃焼反応を抑制する成分として HCHO も共存しており、この作用も無視できない (引用文献)。詳細な化学反応モデルで考慮されている成分 (化学種) が自着火燃焼に及ぼす影響を網羅的に検討した結果、燃料分子の酸化過程で生成される含酸素炭化水素の多くはラジカルであり、これらは大きな自着火促進効果を有するが、安定な含酸素炭化水素の多くは自着火促進効果が小さいか僅かに抑制効果を有する (引用文献)。

一方、実際のエンジンの排ガス成分には、詳細な化学反応モデルで考慮されていない化学種も含まれている可能性がある。しかし、その成分の分離と同定は容易ではなく、一般的なガスクロマトグラフでは、排ガスの成分を詳細に解明するほどの分離能力がない。

そこで、排ガス成分を詳細に明らかに、その中の燃焼促進物質を増加させる条件が見いだせれば、ガソリンエンジンに大量の EGR を投入した際の燃焼悪化を抑制することができ、EGR の使用限界を拡大することができると考えられる。その結果、ガソリンエンジンの熱効率を改善できる新たな燃焼制御手法の構築が期待できる。

この研究は、ガソリンエンジンの効率改善により地球温暖化の抑制やエネルギー使用量の削減に寄与するだけでなく、排ガスに含まれる化合物の詳細な解明や、分析技術の確立という点においても意義がある。

2. 研究の目的

本研究では、EGR を用いて燃費を改善しようとするガソリンエンジンに対して、EGR を導入した場合に問題となる燃焼の悪化を抑制し、大量 EGR の導入を可能とする燃焼技術の実現を目的とする。そのために、EGR 中に十分な燃焼促進物質を残存させることが可能な燃焼条件を、包括的 2 次元ガスクロマトグラフィーによる分析から明らかにし、エンジン実験で実証することを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、単気筒エンジンと GC×GC-TOFMS (飛行時間型質量分析計を備えた包括的 2 次元ガスクロマトグラフ) を用いて排ガスの詳細な分析を行い、その知見を基にガソリンエンジンの熱効率を改善できる新たな燃焼制御手法の構築を目指す。具体的な手法を以下に記す。

- (1) 吸着材による排ガス成分の捕集と TDU (加熱脱着装置) による試料導入を用い、GC×GC-TOFMS によるガソリンエンジンの排ガス成分を分析する技術を確立する。
- (2) ガソリンに含まれる代表的な炭化水素を単成分燃料として供給し、これを燃料とするエンジンの排ガスから、酸素原子を含む化合物を検出する。
- (3) 排ガスに含まれる酸素原子を含む化合物から、燃焼を促進する可能性のある化合物を見出す。
- (4) 20%を越える大量 EGR 供給条件でも燃焼悪化を抑制できることを実証する。

4. 研究成果

(1) 本研究で採用する手法で排ガスの分析が可能であることを明らかにした。

排ガスを N₂ ガスで希釈し、管壁を 50 に保つことで、水分や高沸点成分の凝縮を抑制するサンプリングラインを構築した。

構築したサンプリングラインから Tenax TA を充填した TDU チューブ (加熱脱着装置に用い

るサンプリング管) に排ガスを捕集し、これを GC×GC-TOFMS で分析したところ、炭化水素だけでなく、燃料の骨格に酸素や窒素が付加した様々な化合物が存在することが明らか

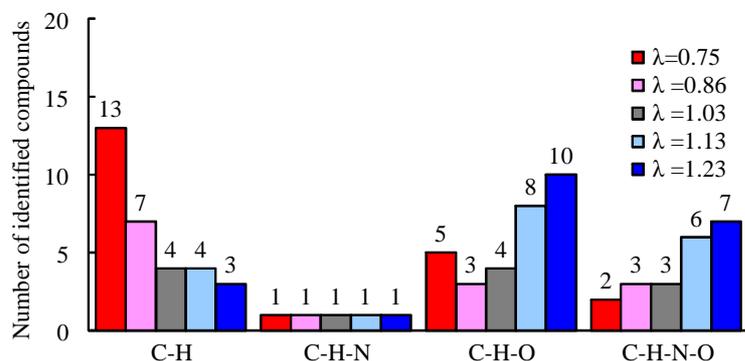


図1 同定された芳香族化合物の数 (燃料: n-heptane)
(λ : 空気過剰率, C-H: 炭化水素, C-H-N: 含窒素炭化水素, C-H-O: 含酸素炭化水素, C-H-N-O: 含窒素酸素炭化水素)

となった。

これらの化合物は、空気過剰率によってそれらの割合が変化することから、排ガス性状を運転条件で制御できる可能性が示された。(図1)

- (2) n-heptane を燃料とした燃焼から、従来着目されていなかった含酸素炭化水素が検出された。排ガスの捕集で用いる捕集剤について、Tenax TA と Carboxpack B/Carboxpack X を比較し、Tenax TA を用いることとした。

n-heptane を燃料とした燃焼から、heptanone および heptanedione が存在することを明らかにした。これらは、n-heptane の低温酸化反応の過程で生成された化合物と考えられるが、いずれも従来は着目されてこなかった化合物であり、特に heptanedione のように酸素原子が二つ付加した化合物の存在が明らかになったことは、排ガスの反応性への観点にとどまらず、化学反応モデルの新たな反応経路の発見につながる成果と言える。(図2)

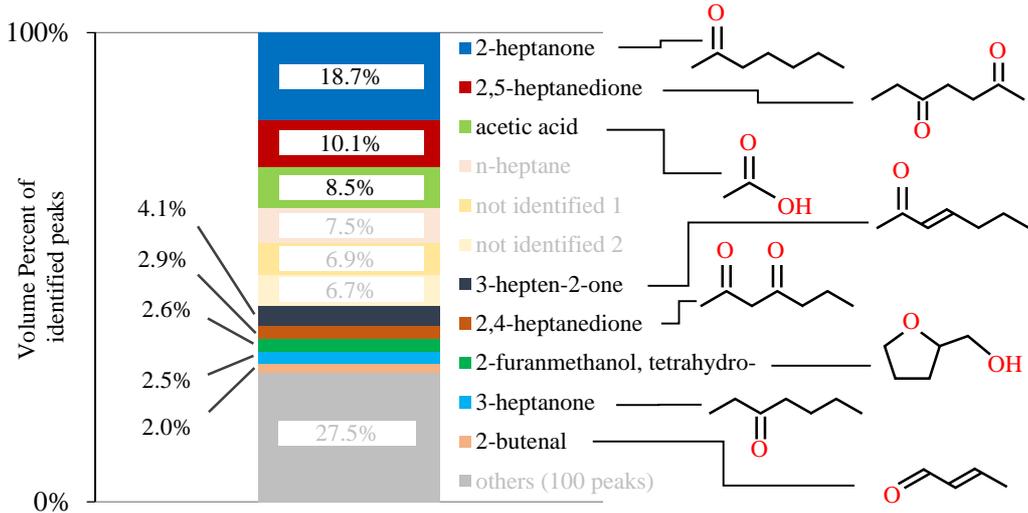


図2 検出強度の大きい化合物 (燃料: n-heptane, $\lambda=1.0$)

- (3) ガソリンに含まれる主要な炭化水素 (n-heptane, isooctane, cyclohexane, methylcyclohexane, toluene) から生成される排ガス成分を明らかにした。(図3)

リサーチオクタン価 (RON) が 0 であり反応性の高い n-heptane を燃料とした場合、排ガス中には heptanone や heptanedione など燃料分子の骨格を有する含酸素炭化水素が存在した。これらは、低温酸化反応メカニズムを経て安定化した化合物と考えられる。

RON が 100 であり反応性が低い isooctane を燃料とした場合には、燃料分子の骨格を有する含酸素炭化水素は検出されず、高温反応場を経て生成されたと考えられる低級な含酸素化合物の検出強度が大きかった。

RON が 83.0 の cyclohexane を燃料とした場合は 5-hexanal や 7-oxabicyclo[2.2.1]heptane

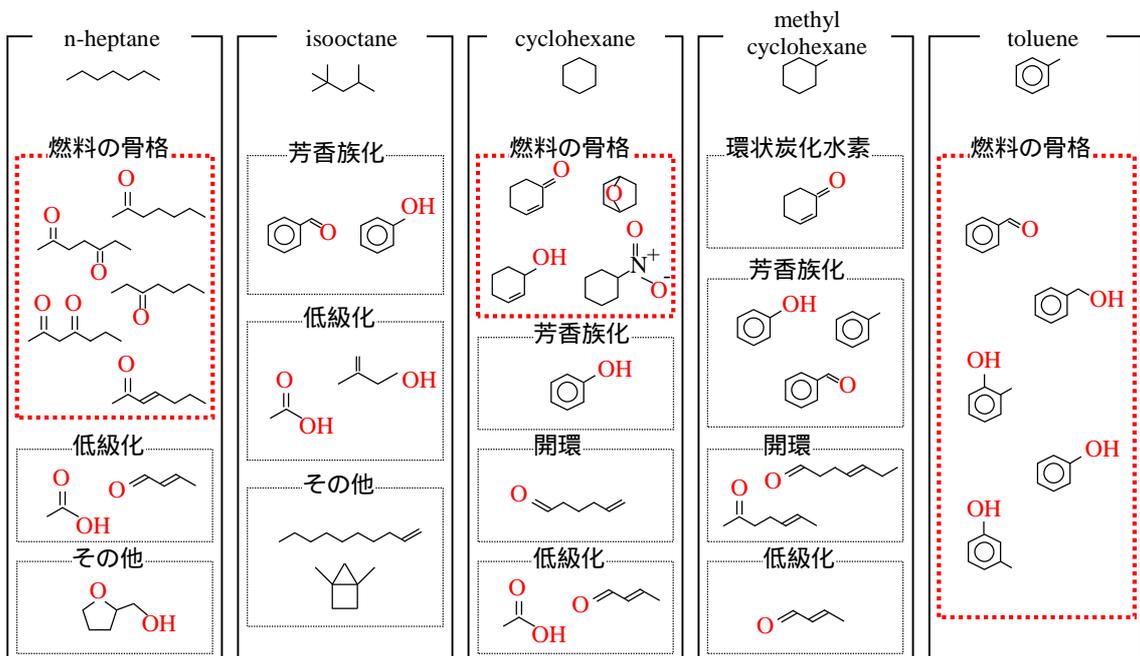


図3 各種炭化水素を燃料とした場合に検出強度の大きかった化合物 ($\lambda=1.0$)

など低温酸化反応メカニズムの途中で安定化した化合物や、芳香族化合物である phenol が検出された。

cyclohexane にメチル基が付加した methylcyclohexane を燃料とした場合も、cyclohexane と同様に低温酸化反応メカニズムを経て生成された化合物が存在したが、toluene を燃料とした場合に検出強度が大きかった排ガス成分は、全て芳香族化合物であった。

- (4) 排ガス中の含酸素炭化水素は、希薄燃焼や低負荷条件で濃度が增大することが明らかになった。従来の研究（引用文献）に基づけば、これらは反応抑制物質として作用するものが多いと考えられる。（図4）

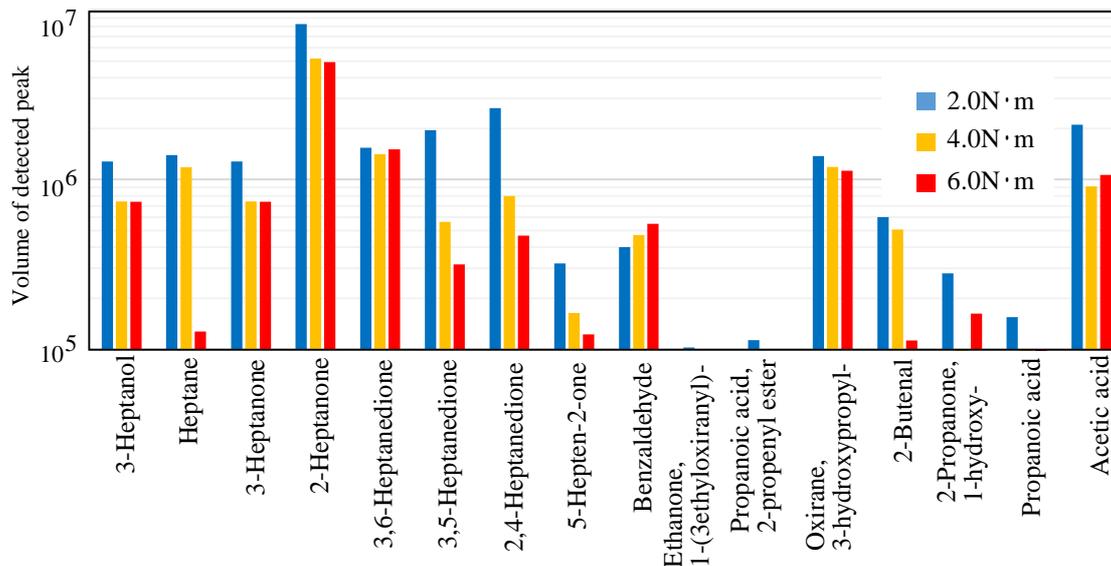


図4 排ガス成分の濃度に対する負荷（トルク）の影響（燃料：n-heptane, $\lambda=1.0$ ）

- (5) 排ガス中には、燃料の骨格にニトロ基が付加した化合物が存在することが明らかになった。これらは、従来にない発見である。ニトロ化合物が爆薬などに用いられることから、ニトロ基が付加した化合物は、反応促進物質として作用する可能性が高い。しかし、排ガス中のニトロ化合物の分析は前例がなく、また生成過程に関する知見も見当たらない。今後は、分析手法を確立し、生成されるニトロ化合物についてより詳細な分析を行うとともに、生成メカニズムについての研究が必要である。（図5）

- (6) 本研究で得られた結果は、燃焼反応による反応制御物質の生成手法を構築する上での重要な新たな基礎的知見と言える。当初予定したエンジン実験には至らなかったが、これらの知

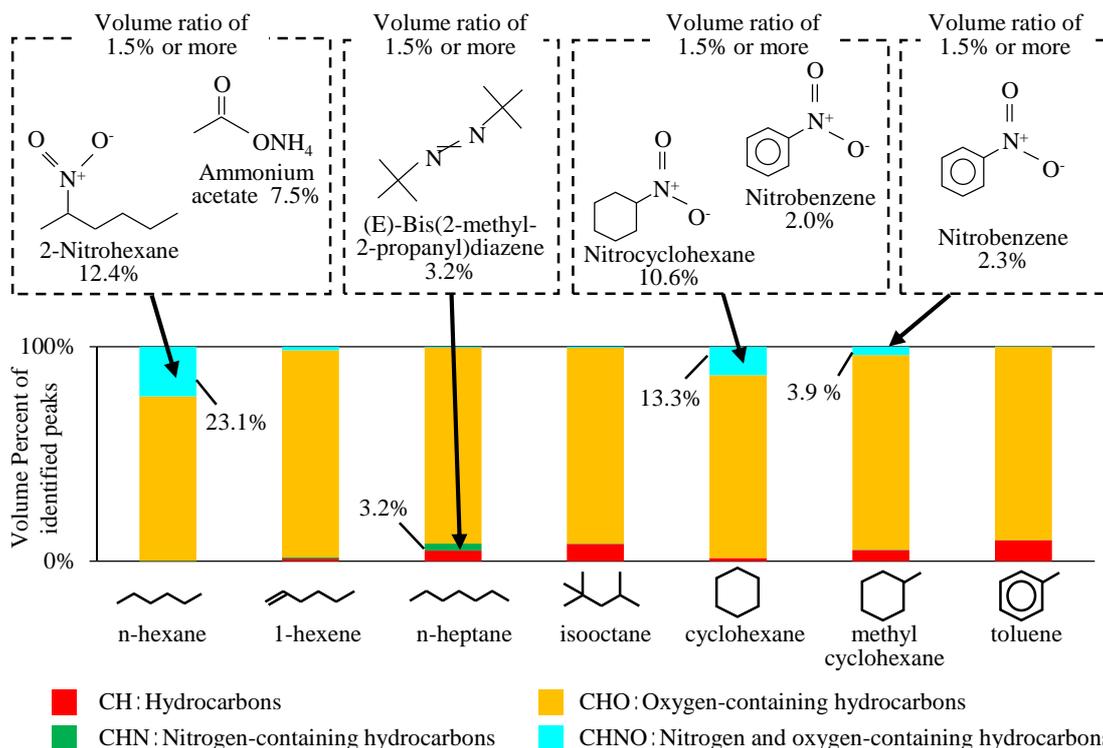


図5 各種炭化水素を燃料とした場合に検出された含窒素化合物 ($\lambda=1.0$)

見を基に、今後は燃焼制御手法の構築を目指す。

<引用文献>

中野 道王, 政所 良行, 大河原 文子, 山本 正美:「残留ガス制御による2ストローク・ガソリン HCCI 燃焼(第3報) 残留ガスによる自着火促進メカニズムの解明」自動車技術会論文集, Vol. 37, No. 3, pp. 97-102 (2006)

中野 道王:「自着火遅れに対する反応中間生成物の影響」自動車技術会論文集, Vol. 43, No. 2, pp. 345-350 (2012)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 2件)

中野 道王, 稲毛 基大, 高澤 悟:「飽和炭化水素の分子構造が予混合 SI エンジンの排気成分に及ぼす影響」自動車技術会論文集, 査読有, Vol. 50, No. 1, pp. 43-48 (2019)

<https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.50.43>

高澤 悟, 稲毛 基大, 中野 道王:「環状炭化水素の分子構造が予混合 SI エンジンの排気成分に及ぼす影響」自動車技術会論文集, 査読有 Vol. 50, No. 1, pp. 49-54 (2019)

<https://doi.org/10.11351/jsaeronbun.50.49>

[学会発表](計 17件)

中野 道王, 高澤 悟, 門前 光佑, 川島 史也:「SI 燃焼から排出される含窒素炭化水素に関する基礎的検討」自動車技術会 2019 年春季大会学術講演会講演予稿集 CD(講演 No. 020, 全 6 ページ) (2019 年 5 月)

門前 光佑, 高澤 悟, 中野 道王:「空気予混合 SI エンジンの燃焼生成物に対する負荷の検討」日本機械学会関東支部第 25 期総会・講演会講演論文集(講演 No. 19D03, 全 4 ページ) (2019 年 3 月)

高澤 悟, 中野 道王:「GC×GC-TOFMS による含窒素化合物の分析」日本機械学会関東支部第 25 期総会・講演会講演論文集(講演 No. 19D04, 全 4 ページ) (2019 年 3 月)

高澤 悟, 中野 道王:「ノルマルヘプタンとシクロヘキサンを燃料とする SI エンジンから排出される含窒素化合物の基礎的検討」日本機械学会北陸信越支部 第 56 期総会・講演会講演論文集 USB(講演 No. C013, 全 4 ページ) (2019 年 3 月)

中野 道王:「ノック - エンドガスの自着火と圧力波の発生 - 」第 29 回内燃機関シンポジウム, 講演予稿集 CD(講演 No. フォーラム - , 全 19 ページ)(2018 年 11 月)

高澤 悟, 中野 道王:「ノルマルヘプタン-空気予混合 SI エンジンの空気過剰率が燃焼生成物に及ぼす影響」第 56 回燃焼シンポジウム(日本燃焼学会), 講演論文集 USB(講演 No. A112, 全 2 ページ)(2018 年 11 月)

高澤 悟, 中野 道王:「1-ヘキセンを燃料とする SI 燃焼から排出される排ガス成分の詳細分析」日本機械学会関東支部山梨講演会 2018 講演論文集 CD(講演 No. YC2018-036, 全 2 ページ) (2018 年 10 月)

高澤 悟, 中野 道王:「ノルマルヘキサンと 1-ヘキセンを燃料とする予混合 SI エンジンから排出される燃焼生成物の検討」日本機械学会関東支部第 26 回茨城講演会・講演会講演論文集 CD, 講演 No. 305(2018 年 8 月)

高澤 悟, 稲毛 基大, 中野 道王:「環状炭化水素の分子構造が予混合 SI エンジンの排気成分に及ぼす影響」自動車技術会 2018 年春季大会学術講演会講演予稿集 CD(講演 No. 350, 文献番号 20183550, 全 6 ページ) (2018 年 5 月)

中野 道王, 稲毛 基大, 高澤 悟:「飽和炭化水素の分子構造が予混合 SI エンジンの排気成分に及ぼす影響」自動車技術会 2018 年春季大会学術講演会講演予稿集 CD(講演 No. 349, 文献番号 20183549, 全 6 ページ) (2018 年 5 月)

稲毛 基大, 高澤 悟, 中野 道王:「シクロヘキサンとトルエンを燃料とする予混合 SI エンジンから排出される燃焼生成物の検討」日本機械学会関東支部第 24 期総会・講演会講演論文集 CD, 講演 No. GS0504 (2018 年 3 月)

高澤 悟, 稲毛 基大, 中野 道王:「イソオクタンとノルマルヘプタンを燃料とする予混合 SI エンジンから排出される芳香族炭化水素の検討」日本機械学会関東支部第 24 期総会・講演会講演論文集 CD, 講演 No. GS0503 (2018 年 3 月)

稲毛 基大, 高澤 悟, 中野 道王:「シクロヘキサンとノルマルヘプタンを燃料とする予混合 SI エンジンから排出される燃焼生成物の検討」第 28 回内燃機関シンポジウム講演論文集講演集 CD(講演 No. 19, 全 6 ページ) (2017 年 12 月)

稲毛 基大, 高澤 悟, 中野 道王:「燃料組成が火花点火エンジンから排出される燃焼生成物に及ぼす影響」自動車技術会 2017 年秋季大会学術講演会講演予稿集 CD(講演 No. 315, 文献番号 20176315, 全 6 ページ) (2017 年 10 月)

稲毛 基大, 中野 道王:「ノルマルヘプタンを燃料とする予混合 SI エンジンから排出される燃焼生成物の検討」日本機械学会 2017 年度年次大会講演論文集 CD(講演番号 G0700406, 全 3 ページ)(2017 年 9 月)

稲毛 基大, 中野 道王:「加熱脱着法を用いた排ガス分析手法の検討」日本機械学会関東支部第 23 期総会・講演会講演論文集 CD, 講演 No. GS1101-02 (2017 年 3 月)

中野 道王, 遠又 諒:「GC×GC-TOFMS を用いた SI 燃焼から排出される燃焼生成物の検討(第 2 報)」第 26 回内燃機関シンポジウム講演論文集(自動車技術会), 講演集 CD(講演 No.26, 全 6 ページ)(2015 年 12 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〕

ホームページ等

該当なし

6. 研究組織

(1) 研究分担者

該当なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 遠又 諒, 稲毛 基大, 高澤 悟, 門前 光佑, 川島 史也

ローマ字氏名: (TOMATA, ryo), (INAGE, motohiro), (TAKAZAWA, satoru), (MONZEN, kosuke), (KAWASHIMA, fumiya)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。