

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560219

研究課題名(和文)石油代替合成燃料としてのジメチルエーテルの利用技術に関する基礎研究

研究課題名(英文)Basic research on utilizing dimethyl ether as an alternative synfuel to oil

研究代表者

金野 満 (Konno, Mitsuru)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号：90205576

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、エンジンへの展開を念頭に置き、実機相当の雰囲気温度圧力におけるDME噴霧のマクロおよびミクロ特性を実験により把握するとともに、得られた知見を基に実機の開発に適用できるDME噴霧燃焼モデルを開発することを目的とした。観察・計測結果を基に、分裂・液相長さ・蒸発特性を再現する物理モデルを構築する一方、酸化反応に関してはBurke等の詳細素反応モデルをベースに簡略化を試み、着火遅れや主要中間生成物の濃度履歴を再現しつつ計算負荷を大幅に軽減するモデル開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, high-speed observation of DME sprays at injection pressures up to 100 MPa with a latest common rail DME injection system was conducted in a constant volume combustion vessel, under ambient temperature and pressure of 6 MPa-920 K. The spray penetration, evaporation, liquid length and ignition delay were investigated and compared with those of diesel sprays. Based on the observed results, the spray model of DME was developed. A reduced chemical kinetic model for the oxidation of DME, that included 27 species and 52 reactions, was made and coupled with the spray model. Calculated results showed good overall agreement with experimental data, such as spray tip penetration, faster evaporation, and short liquid length. Ignition delay time was slightly longer compared with experiment. Using this model, engine simulation was performed. The results showed a reasonable agreement with the experiments.

研究分野：機械工学

キーワード：新エネルギー 燃料 燃焼 噴霧 化学反応 石油代替 モデル化 ジメチルエーテル

### 1. 研究開始当初の背景

人口増加や新興国の経済発展に伴い、エネルギー需要は急増する一方、主要エネルギー資源である石油の生産量は頭打ちとなっている。エネルギー需給ギャップを埋めるものとして原子力が期待されていたが、東日本大震災に伴う原発事故の影響で見通しが不透明となった。化石資源を持たないわが国において、石油以後のエネルギー源を確保することは極めて重要である。

ジメチルエーテル (DME:  $C_2H_6O$ ) は、燃焼しても煙を全く排出せず、天然ガス、石炭、バイオマス等の多様な資源から安価で大量に製造でき、ライフサイクルの温暖化ガス排出量およびエネルギー消費量が他代替燃料に比べて少ないことから最も現実的な石油代替燃料として注目されている。

DME の発熱量は石油系燃料に比べてやや低く、同等の出力を得るには約 1.8 倍の燃料量が必要である。一方で、DME は圧縮性が高く、粘度が極めて低いため高圧噴射が容易ではない。したがって噴射圧は 60MPa 程度と低く、噴孔を拡大することで噴射量を確保してきたが、高負荷高回転域で機関性能が低下する問題が指摘されている。今後、どのような方向に技術開発を進めるか、設計指針も確立していない。その原因は、物性が石油系燃料と異なるにもかかわらず、試行錯誤的な開発研究に留まり、DME 利用技術の基盤となる噴射・燃焼特性が十分に把握されていない点にある。

### 2. 研究の目的

本研究では、DME を燃料としてエンジンに適用することを念頭に、実機相当の雰囲気温度圧力における DME 噴霧のマクロおよびミクロ特性を実験により把握するとともに、得られた知見を基に DME 噴霧モデルを構築し、燃焼反応モデルを組み合わせ、実機の開発に使用できる DME 噴霧燃焼モデルを開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

研究目的を達成するため、以下の 3 項目を実施した。

#### (1) 定容容器を用いた高速度噴霧観察

実機相当の高温高圧場における DME 噴霧および燃焼噴霧の挙動を把握するため、ステンレス製の耐熱耐圧の定容容器内に 2.5 ~ 6.0MPa、400 ~ 920K の雰囲気を作成し、観察視野 80mm の合成石英窓を通して DME 噴霧の高速度観察を行った。

予め容器内に充填した水素、一酸化炭素、酸素および窒素から成る可燃混合気を点火プラグにより着火させることで高温高圧場を形成した。非燃焼噴霧を撮影する際には、可燃混合気が燃焼した後の酸素濃度が 0% となるように、また燃焼噴霧を撮影する際には EGR を想定して酸素濃度が 16% となるように可燃混合気の初期組成を調整した。

DME の噴射には噴孔径 0.25 ~ 0.35mm の単噴孔ノズルを用い、噴射圧力は 60 ~ 100MPa とした。比較のために、軽油噴霧の高速度観察も実施した。軽油の噴射では、現在のディーゼルエンジンで用いられる代表的な噴射条件である噴孔径 0.173mm、噴射圧力 200MPa とした。この噴射条件は、エネルギーベースでの噴射率が DME 噴射圧力 60MPa とほぼ同等である。

光学手法には、液相と軌道を同時に撮影可能なシャドウグラフ法および液相のみを撮影可能な背景散乱光法を用い、両者の比較から噴霧の発達や蒸発特性を判断した。撮影速度は、観察目的に応じて変化させた。噴霧全体の形状や貫徹力を見る場合には光源にメタルハライドライトを用いて 20,000 コマ/秒、またノズル出口の縮流の様子や分裂過程を観察する場合にはフラッシュライトをシャッターに同期させて 1,000,000 コマ/秒の撮影速度で撮影した。

#### (2) レーザー吸収分光法による DME 噴霧内当量比計測

DME は 3.3  $\mu\text{m}$  帯に強い吸収帯を持つことがわかっており、近年開発された 3  $\mu\text{m}$  帯の分布帰還型 (DFB, Distributed Feedback) 半導体レーザーを用いることにより、気化しやすい DME 噴霧の当量比計測を行うことができる可能性がある。

最初に、DME 噴霧の当量比計測を行う波長を決定するため、3.3  $\mu\text{m}$  帯における DME の直接吸収スペクトルを計測し、スペクトル強度の圧力依存性など基礎分光特性を取得した。光源には本資金で導入した 3356 nm を中心波長とする DFB 半導体レーザーを用いた。

DME 混合気を封入した有効光路長 0.4 m、体積 0.2 L のシングルパスセルにレーザー光を入射し、セル透過後の光の強度をプリアンプ付赤外検出モジュールにより検出した。レーザーの波長掃引周波数は 1.0 Hz とし、得られたシグナルは AD 変換ボードにより PC に取得した。DME の濃度計測を行うための吸収線の選択は、計測セル内に 0.25 kPa の DME を導入し、その直接吸収スペクトルを計測することにより行った。計測温度は 298 K で、得られたシグナルは 10 回積算して取得し、DME は希釈せずにセル内に導入した。

次に、決定した波長を用いて DME 噴霧の当量比計測を行うための定容容器を用いた分光計測装置を構築した。レーザー光は有効光路長 0.11 m、体積 1.96 L の定容容器に入射し、容器透過後の光の強度をプリアンプ付赤外検出モジュールにより検出した。DME 噴霧の当量比計測は観測窓の最下端から 15 ~ 50 mm、噴射弁中央から左右に 6 mm の範囲で行った。DME 濃度を計測するため、濃度が既知の DME サンプルを用い、計測温度、圧力条件において、スペクトル強度の濃度較正を行った。雰囲気は定容容器内を  $N_2$  により 2 MPa まで加圧した。同じ定容容器を用

い、当量比計測と同様の条件の噴霧を、高速度カメラを用いて撮影した。

### (3) 酸化反応メカニズムを含む噴霧モデルの開発

上記の実験観察結果を基に噴霧モデルおよび酸化反応モデルの構築を試みた。

#### 噴霧モデル(非燃焼)

噴霧モデルの構成は基本的には軽油噴霧と同様にDDMモデルをベースに、分裂・蒸発・液相長さの各サブモデルをカップリングさせた。分裂モデルにはKH-RTモデルを用いた。超高速度の分裂観察結果を基にモデル定数を調整した。液相長さはLevichらのモデルをベースに、噴霧観察結果を基に定数を調整した。また、DMEの圧縮性を考慮して、噴射圧力による補正項を加えた。

#### DME酸化に関する簡略化モデル

DMEの酸化に関する最新の詳細素反応モデルとしてBurke等のモデルがあるが、化学種数55、素反応式数290であって噴霧モデルにカップリングするには計算負荷が大きすぎる。そこで簡略化モデルの構築に取り組んだ。Burke等の反応スキームを解析して、主要な反応群を抽出し、これらを代表する素反応式を基に簡略化を図った。

Burke等の詳細反応モデル<sup>(1)</sup>によると、DMEの酸化は、以下の3段階; 1) 酸素付加と異性化による低温度域におけるOHラジカル生成(低温酸化反応機構)、2) 低温酸化反応の終わりから高温酸化反応に至る間のCH<sub>2</sub>OとH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の蓄積過程を中心とする負の温度領域(NTC反応群)、3) H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の解離反応をトリガーとした高温酸化反応で進行する。

感度解析の結果、低温酸化反応機構について19式、NTC反応群について19式、高温酸化反応機構について14式の素反応式を選定した。反応速度に関わる諸定数については基本的にBurke等の値をそのまま使用したが、低温酸化反応の抑制反応 $2\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2 \Rightarrow \text{O}_2 + 2\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}$ 、およびH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の生成に関わる $2\text{HO}_2 \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2$ については、それぞれ感度が強すぎたため頻度因子を1/2にした。また、NTC領域において着火遅れに感度の高いホルムアルデヒドの生成反応式 $\text{CH}_3\text{O} (+\text{M}) \rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{H} (+\text{M})$ については、頻度因子をHerrmann等の提示する値<sup>(2)</sup>に変更した。

#### DME噴霧モデルの評価とエンジン燃焼への応用

最初に、噴霧モデルに酸化反応の簡略化モデルを組み込んで、定容容器における噴霧燃焼を想定した計算を行ない、次いで実際のエンジンの燃焼シミュレーションを行った。想定した供試エンジンは、シンリング径×ストローク11.5×12.5mm、圧縮比17.5の過給機関である。エンジン実験に合わせて、エンジン回転速度は1000および1600rpm、燃料噴射圧は40MPaとした。噴射量、噴射期間、噴射時期、EGR率等のその他の運転パラメ

ータについても実験条件に合わせた。

## 4. 研究成果

- (1) DME噴霧の超高速度光学観察に取組み、実機相当の高温高圧におけるDME噴霧を~1,000,000コマ/秒の高時間分解能で撮影することに成功した。取得した噴霧画像の解析から、実機相当の雰囲気温度では、DMEの蒸発速度が分裂速度を上回るために、軽油噴霧のような分裂・液滴形成・蒸発の過程を辿らずに蒸発することを明らかにした。
- (2) 従来の軽油噴霧燃焼の観察を行って両者の違いを明らかにした。DMEの蒸発は軽油に比べて圧倒的に速いこと、火炎保持位置が上流側に位置すること、火炎輝度が低く、燃焼過程で煤を全く生成しないことなどがわかった。
- (3) レーザー吸収分光法によるDME噴霧内当量比計測のための3.3 μm帯におけるDMEの分光特性を調べた。DMEの信号強度は、N<sub>2</sub>の場合に比べ、全波長域で小さく、この出力波長の全域にわたり吸収があった。その中でも、2980.07 cm<sup>-1</sup>付近に比較的大きな吸収が見られた。本吸収線には、水の吸収の干渉もないことから、DMEの計測に適していると考えられた。
- (4) 中赤外域のレーザー吸収分光法により、2980.07 cm<sup>-1</sup>の吸収線を用いてDME噴霧の当量比計測に成功した。定容容器を用いて、雰囲気圧力・温度2 MPa、373 Kの条件でDME噴霧の当量比計測を行った。その結果、噴霧中央に当量比10以上の濃い領域が存在するものの、その領域から噴霧外縁に向かって当量比が減少し、また噴霧先端部にも低当量比領域が見られた。
- (5) 観察結果を基に調整した噴霧モデルエンジンシミュレーションコードFORTEに組み込んで、定容容器を用いた観察と同様の条件で計算を行い、観察結果との比較を行った。計算結果は、噴霧形状、噴霧到達距離、液相長さについて、実験の雰囲気温度・圧力、燃料噴射圧力において、実際のDME噴霧を良好に模擬できた。すなわち、開発したDME噴霧モデルは、実機相当の高温高圧場における噴霧発達挙動、燃料噴射圧力の影響、軽油噴霧に比べて圧倒的に速い蒸発過程等、DME噴霧の特徴を表現することができる。
- (6) 化学式数27、反応式数52式から成るDME酸化に関する簡略化モデルを作成した。作成したモデルは、実用的にCFDに用いることが可能である。
- (7) 作成した簡略化モデルを用いて着火遅れを計算したところ、当量比0.5~1.5、温度700~1500Kにおいて、ベースとしたBurke等の詳細素反応モデルと良好に一

致した。また、反応過程中の主要中間生成物の濃度履歴についても、ベースモデルと良い一致を示した。

- (8) 噴霧モデルによる解析により、DME 噴霧燃焼の詳細な反応過程を明らかにした。噴射後、DME 噴霧は急速に蒸発しながら発達するが、噴射後 0.3ms 位から噴霧外周部で低温酸化反応が生じて、温度がわずかに上昇するとともにホルムアルデヒド等の中間生成物が生成し始める。その後、高温酸化反応が生じると(着火)、温度が急上昇するとともに、膨張により噴霧が横方向に広がる。着火後、火炎は液相長さよりわずかに下流の、噴射ノズルから 20mm の位置に保持された。
- (9) 以上の噴霧特性は、観察結果と大変良好に一致していた。ただし、着火時期は、代表的な雰囲気および噴射条件において、観察結果に比べて 0.1ms 程度遅れる結果となった。
- (10) 開発した DME の噴霧燃焼モデルを用いて、実 DME エンジンの燃焼シミュレーションを行った。計算結果は、回転速度条件の違いに関わらず、実験の筒内圧変化をおよそ模擬することができ、開発した DME 噴霧モデルは実エンジンの開発に用いる目的を得た。

今後の課題は以下の通りである。

- (1) レーザー吸収分光法を用いて、DME 噴霧の当量比計測に成功したが、開発した噴霧モデルを用いた計算結果との比較ができていない。これを実施することによって、モデルの高精度化を図る必要がある。
- (2) 中赤外レーザーをシート状にする技術がまだ確立されていないため、今回は点計測による当量比計測となった。今後、その技術が発展すると2次元断面の噴霧当量比計測が容易に行えるようになり、DME 噴霧の空気導入特性の把握に繋がると考えられる。
- (3) 開発した噴霧モデルを用いた実エンジンの燃焼シミュレーションでは、機関回転速度の低い 1000rpm において着火時期が実験に比べてやや遅い傾向が見られた。酸化反応モデルは、詳細素反応モデルとの対応が良好であったことから、この着火時期が異なる原因は物理的な噴霧モデルにあると考えられる。噴霧内当量比分布の時間的変化をより正確に再現する必要があり、上記(2)のレーザー吸収分光法の改良により精度の高い当量比分布データを取得し、これをターゲットデータとしてモデルの調整を進める必要がある。

#### [参考文献]

Ultan Burke, Kieran P. Somers, Peter O'Toole, Chis M. Zinner, Nicolas

Marquet, Gilles Bourque, Eric L. Petersen, Wayne K. Metcalfe, Zeynep Serinyel, Henry J. Curran, "An ignition delay and kinetic modeling study of methane, dimethyl ether, and their mixtures at high pressures," Combustion and Flame 162 (2015) 315-330.

Friederike Herrmann, Bernhard Jochim, Patrick Oswald, Liming Cai, Heinz Pitsch, Katharina Kohse-Hoinghaus, "Experimental and numerical low-temperature oxidation study of ethanol and dimethyl ether," Combustion and Flame 161 (2014) 384-397.

#### 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3件)

Yuta Mitsugi, Daiki Wakabayashi, Kotaro Tanaka, Mitsuru Konno, High-Speed Observation and Modeling of Dimethyl Ether Spray Combustion at Engine-Like Conditions, SAE Int. J. Engines, 2015, 掲載確定, 査読有

Satoru Sasaki, Masaaki Kato, Takamasa Yokota, Mitsuru Konno, Denis Gill, An Experimental Study of Injection and Combustion with Dimethyl Ether, SAE Technical Paper, 2015-01-0932, 2015, 10.4271/2015-01-0932, 査読有

江口貴啓、木村優介、前島亨、金野満、『複合燃料 HCCI の運転限界に及ぼす主燃料の酸化特性の影響』、日本機械学会論文集(B編)、79巻、803、1269-1280、2013、10.1299/kikaib.79.1269、査読有

[学会発表](計7件)

Masaaki Kato, Takamasa Yokota, Jost Weber, Denis Gill, Mitsuru Konno, DME as Alternative to Diesel for Commercial Vehicles, International Commercial Powertrain Conference 2015, 2015.5.20, Graz(Austria)

若林大輝、三次勇太、田中光太郎、金野満、DME 噴霧燃焼の高速度観察と数値解析、第25回内燃機関シンポジウム、2014.11.26、産業技術総合研究所(茨城県・つくば市)

坂本明憲、金野満、田中光太郎、石井義範、中赤外レーザー吸収分光法を用いた DME の濃度計測、日本機械学会 2014 年度年次大会、2014.9.10、東京電機大学(東京都足立区)

三次勇太、三村昂、若林大輝、田中光太郎、金野満、石井義範、DME 噴霧の燃焼特性に関する研究(噴射条件が CO

および NO<sub>x</sub> の生成に及ぼす影響 )、日本機械学会 2014 年度年次大会、2014.9.9、東京電機大学(東京都足立区)

Masaaki Kato, Takamasa Yokota, Jost Weber, Mitsuru Konno, Ernst Winklhofer, Karl Wieser, Hrwig Ofner, Gill Denis Walter, An Investigation of Injection and Combustion of Dimethylether Using High Pressure Injection System, 248th American Chemical Society National Meeting & Exposition, 2014.8.10, San Fransisco (USA)

三村 昂、若林大輝、田中光太郎、金野満、石井義範、実機相当雰囲気における噴霧観察と 3 次元数値解析による DME 噴霧の総合的理解、第 24 回内燃機関シンポジウム、2013.11.26、神戸大学百年記念館(兵庫県・神戸市)

若林大輝、海老原秀樹、三村昂、孫敬、田中光太郎、金野満、実機相当の高温高圧場における DME 燃焼噴霧の高速度観察、日本機械学会 2013 年年度年次大会、2013.9.9、岡山大学(岡山県・岡山市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

金野 満 (KONNO MITSURU)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号：90205576

### (2) 研究分担者

田中 光太郎 (TANAKA KOTARO)

茨城大学・工学部・准教授

研究者番号：10455470