

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560226

研究課題名(和文) シンクロアクチュエーションによる高感度時間分解燃焼過渡成分検出法の開発

研究課題名(英文) Detection of Transient Species in Ignition Process by using Sensitive and Fast Sampling Method

研究代表者

手崎 衆 (Tezaki, Atsumu)

富山大学・大学院理工学研究部(工学)・教授

研究者番号：50236965

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：内燃機関実験装置において高速開閉バルブによるガスサンプリングを行い、クランク角度の関数として成分分析を行う手法を開発した。差動排気系を用いて試料ガスを蓄積することなく質量分析計により直接検出することにより、過酸化水素の様な不安定で蒸気圧も低くこれまで観測されていない化学種が対象となった。本手法により、炭化水素燃料の二段階圧縮着火における一段目冷炎での部分燃料消費と中間生成物の生成、二段目熱炎での完全燃焼の過程が確認できた。ノルマルヘプタンの着火性を低下させる効果としてイソオクタンとトルエンとの相違を見出し、OHを再生する連鎖反応機構上の特性値の違いから説明できた。

研究成果の概要(英文)：A crank angle resolved gas sampling method has been developed in order to detect intermediate species produced during processes of compression ignition, as well as the two-step consumption of fuel components. The direct mass-spectrometric detection through the differential pumping system enabled to observe unstable and low vapor pressure species such as hydrogen peroxide. It was found that toluene has a non-linear effect to lower the ignitability of n-heptane in terms of mixing ratio, while the iso-octane effect is linear. This difference is accounted for by the chain reaction mechanism of low temperature oxidation, in which toluene has lower rate constant with OH and lower OH reproduction index than iso-octane.

研究分野：熱工学

キーワード：燃焼 着火 反応機構 成分計測 質量分析 内燃機関

1. 研究開始当初の背景

圧縮着火過程の典型は、冷炎と熱炎の二段熱発生である。冷炎は 700 K 付近で発生し、小さな熱発生の後一旦休止期間(縮退)となる。その後熱炎は 1000 K を越えて生じ、完全燃焼となる大きな発熱である。冷炎が縮退するのは、その連鎖反応機構が負温度特性を持ち、またアルデヒドのような中間生成物が連鎖停止剤として働くためである。以上はノルマルヘプタンのような低オクタン価燃料で顕著だが、イソオクタン等の高オクタン価燃料は熱発生履歴を見る限り冷炎過程をほとんど持たない。しかしその場合も、熱炎発生前には燃料成分の変化と緩やかな発熱があり、熱炎発生時期に影響する。これらの機構は詳細反応モデルに取り込まれ、熱発生履歴などマクロな観測事象を概ね再現するが、反応機構の正しさの検証には化学組成の変化、特に過渡的な成分変化が重要であり、その観点での検証は、特にエンジン内圧縮着火過程においては充分とは言えない。

2. 研究の目的

圧縮着火の過渡的成分検出を目的とし、本研究では高速開閉バルブを用いた筒内サンプリングにより熱炎発生前の成分を取り出す手法を開発した。本報告では燃料としてオクタン価基準燃料(PRF)、すなわちノルマルヘプタン/イソオクタン混合物を用い、より実用燃料に近い対象で詳細反応機構と比較検討することを目指した。さらに、燃料系としてノルマルヘプタン/トルエン混合物(NTF と略記する)にも適用し、両燃料系の着火における特性とそれに関わる反応機構の差異について検討を進めた。

3. 研究の方法

実験装置:

用いたベースエンジンは 4 ストロークサイドバルブの単気筒、ボア・ストロークが 84×70 [mm]である。改造後の圧縮比は 8.0 となっている。外部電気モータで駆動し、内部出力の有無に関わらず一定回転速度(標準 600RPM)を保った。燃料(ノルマルヘプタン)はインジェクターを用いて吸気ポートで供給した。吸気量はマスフローメータで計測し、吸気加熱を行うことで予混合圧縮着火条件を設定した。エンジンヘッドには圧力センサーと、次に述べるサンプリングポートを設けた。

ソレノイドバルブによって筒内ガス成分をサンプリングする。バルブ吐き出し口は真空チャンバーに接続され、差動排気系を介して質量分析器に到達する成分を検出する。単純にバルブ開弁時間を短くすると、バルブ内残留成分とシリンダ内壁近傍の境界層成分しか取り出せなくなる。そこで成分が切り替わる前後の二つの開弁時間でサンプリング

データを取得し、両者の差をとることでバルク成分のみを抽出する補正を行った。これによって実効時間分解能として 1 ms 以下の計測が可能となった。

元燃料成分の検出:

四重極質量分析器は質量数が同じものは区別ができないことと、親分子が分解して低質量のイオン(フラグメント)を作ることに注意が必要である。本研究のように多種の混合燃料を用いる場合単種の燃料を用いる場合と比べてフラグメントイオンの影響が複雑となる。イソオクタン C_8H_{18} はその質量数 114 では検出されない。ノルマルヘプタン C_7H_{16} は質量数 100 にフラグメントのピークがあるがイソオクタンは質量数 99 にフラグメントの比較的強いピークがある。ノルマルヘプタンとイソオクタンが共存する時も、質量数 99 のシグナルはすべてイソオクタンのシグナルであるとして良いが、質量数 100 ではイソオクタンもノルマルヘプタンの 1/15 程度の濃度当たりの信号強度を有する。これは炭素 ^{12}C の安定同位体 ^{13}C の寄与のためである。そこで質量数 100 のシグナルからイソオクタンの寄与を差し引き、ノルマルヘプタンのシグナルのみをとりだす補正を行った。トルエン $C_6H_5CH_3$ はその質量数 92 において単独で検出した。

過酸化水素の検出:

過酸化水素(H_2O_2)は、冷炎および熱炎までの縮退期間に生成し、その熱分解反応が熱炎発生の加速要因として重要である。しかし化学的不安定さと蒸気圧の低さから、蓄積型のサンプリングでは測定困難であり、本実験手法で以下の条件で検出可能となった。過酸化水素の質量数は 34 であり、燃料炭化水素由来の化学種ではフラグメントも含めてその質量数を示す物は見当たらないが、大気中の酸素原子には安定同位体の ^{18}O (存在率 0.2%)があり、 $^{16}O^{18}O$ が H_2O_2 と同質量数で重なる。その影響を排除するための信号処理を行った。質量数 32 と 34 の信号を同時に取得し、あらかじめ校正しておいた酸素分子における 32 と 34 の信号強度比を換算係数として用いて、34 の信号から酸素分子の寄与を差し引く。

4. 研究成果

二段階着火過程の組成変化の計測:

予混合圧縮着火運転を行うエンジン運転において、クランク角の関数として化学種濃度の計測が可能となった。元燃料成分であるノルマルヘプタン、イソオクタン、トルエンは着火第一段(冷炎)での部分消費と第二段(熱炎)での完全消費が観測され、中間生成物であるホルムアルデヒドと過酸化水素は冷炎での発生と熱炎での消費が観測された。特に過酸化水素の検出は従来の蓄積式サン

リング計測では観測されず、本研究の大きな成果である。

燃料混合比の影響:

PRF 燃料ではイソオクタン含有率, NTF 燃料ではトルエン含有率を変えて冷炎段階における燃料の消費率と HCHO の生成量を調べた。PRF ではイソオクタンの消費率はノルマルヘプタンと同程度だがやや少なく, イソオクタンの増加と共に燃料消費率はほぼ一定の割合で減少する。一方 NTF ではトルエンの消費率はノルマルヘプタンよりもかなり少なく, トルエン増加による燃料消費率の低下はトルエン 60%までは PRF の場合よりも緩やかであるが, それ以上で急速に減少して 80%で反応性を失う。

簡略モデルによる解析:

炭化水素の自着火における低温酸化反応は, 水素原子引き抜き, 酸素付加, 異性化による内部水素移動, 第二酸素付加, 以後数段階の分解過程等を含む一連の複雑な反応過程であるが, それらを包括的に表現し, ノルマルヘプタンの着火に与える混合相手としてイソオクタンとトルエンの効果の差異を与える反応機構を理解するためのモデルを構築した。

本モデルは OH ラジカルを連鎖担体とした冷炎反応の連鎖反応機構により燃料消費率を予想するもので, 各燃料成分毎に OH との反応速度定数, 連鎖反応による OH の再生率, アルデヒドの生成率をパラメーターとして設定している。初期の OH 再生係数が 1 を超えていれば, 連鎖循環によって OH 濃度は増加する。その後燃料成分の消費による濃度低下と, アルデヒドの蓄積により総合の OH 再生係数は次第に低下し, それが 1 を下回ると OH 濃度は減少に転じ, 連鎖反応は停止する。

本モデルにより PRF と NTF の圧縮着火におけるそれぞれの特性を再現することができ, また差異を生じる理由も分析することができた。イソオクタンに比べて OH との反応速度の小さいトルエンは, ヘプタンへの混合に関して単に希釈剤として働く要素が強い。イソオクタンはそれ自身からも連鎖停止材となるアルデヒドをトルエンより多く生成するので, その点でも連鎖反応を停止させる効果が強まるが, イソオクタン自身からも若干の OH 生成があるのである程度その効果は相殺される。

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 件)

〔学会発表〕(計 6 件)

1. Mohd Adnin bin Hamidi, Hiroyuki Kosaki,

Shingo Hinata, and Atsumu Tezaki, Comparison of PRF and Toluene/n-heptane Mixture in the Mechanism of Compression Ignition Using Transient Species Measurements and Simplified Model Analysis, Proc. Int. Conf. on Modeling and Diagnostics for Advanced Engine Systems (COMODIA2012), Fukuoka, July 2012, pp. 140-145.

2. Mohd Adnin bin Hamidi, Shingo Hinata, Atsumu Tezaki, Measurements of Transient Species and Analysis of Their Role in Low Temperature Heat Release in Compression Ignition, 第 23 回内燃機関シンポジウム講演論文集, 2012 年 10 月, 札幌, B2-07 (7 pages).

3. 林佑樹, Bin Rusli Muhammad Ikuwan, 手崎 衆, 爆発限界から探る圧縮着火の特性解明, 日本機械学会 2014 年度年次大会講演論文集 (CD-ROM), 講演番号 G0710106, (6 pages), 東京 (2014.09.7-10)

4. 林佑樹, 萩原真吾, MUHAMAD, Sharif, 手崎 衆, 圧縮着火における冷炎発生時の圧力依存と冷炎が着火に及ぼす影響, 第 25 回内燃機関シンポジウム講演論文集 (CD-ROM), 2014.11.26-28, つくば, 講演番号 45 (10 pages).

5. 林佑樹, 萩原真吾, MUHAMAD, Sharif, 手崎 衆, 爆発限界から探る圧縮着火の特性解明 - PRF 燃料と NTF 燃料の差異 -, 第 52 回燃焼シンポジウム講演論文集, 2014.12.3-5, 岡山, 講演番号 A231, p 216-217.

6. Mohd Adnin Bin Hamidi, Muhammad Faizzuddeen Bin Yunadi, and Atsumu Tezaki, Ignition Mechanism Analyzed through Transient Species Measurements and its Correlation with 0-D and 3-D Simulation for PRF and Toluene/n-heptane Mixture, 第 52 回燃焼シンポジウム講演論文集, 2014.12.3-5, 岡山, 講演番号 A232, p 218-219.

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

○取得状況 (計 件)

名称:

発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

手崎 衆 (Tezaki, Atsumu)

富山大学・大学院理工学研究部(工学)・教授

研究者番号：50236965

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：