

令和 3 年 6 月 2 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03966

研究課題名（和文）潤滑油成分添加時の炭化水素燃料の自着火タイミングを予測する化学反応モデルの構築

研究課題名（英文）Development of chemical kinetic model for estimating the ignition timing of fuels with lubricant oil

研究代表者

田中 光太郎（Tanaka, Kotaro）

茨城大学・理工学研究科（工学野）・教授

研究者番号：10455470

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：潤滑油が起因で、燃料予混合気が早期着火し、直噴ガソリンエンジン筒内で異常燃焼が起き運転が困難になる問題があることから、潤滑油が燃料予混合気の早期着火を引き起こすメカニズムを明らかにすることを目的として研究を行った。その結果、潤滑油を構成する基油が燃料予混合気の早期着火を引き起こす主たる要因になっており、潤滑油に含まれる添加剤はわずかしが予混合気の自着火に影響を及ぼさないことが明らかになった。これらの結果に基づき、潤滑油が燃料予混合気に混合した場合の着火タイミングを予測する化学反応モデルを構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

潤滑油の燃焼がエンジンの機関性能に悪影響を及ぼす事例は、これまでにほとんどなく、二酸化炭素の削減に向けた熱効率向上を狙う直噴火花点火機関で特有に起きてきた問題である。潤滑油の混合による自着火促進のメカニズムを明らかにし、その予測に貢献する化学反応モデルを提案したことは、高効率熱機関の持続的活用に貢献している点で社会的意義が大きい。学術的にも潤滑油を混合した場合に燃料予混合気の着火特性が変化する反応論的メカニズムや、潤滑油に含まれる添加剤の燃焼生成物を明確化し、潤滑油の燃焼過程を明らかにした点で燃焼化学の発展に貢献している。

研究成果の概要（英文）：The downsizing direct injection spark ignition (DISI) engines are one of the most effective and practical ways to achieve good fuel economy. Abnormal combustion, known as pre-ignition, is an obstacle in enhancing the effectiveness of DISI engines. Specifically, abnormal combustion is due to the ignition of lubricant oil droplets diluted by fuel. In this study, the influence of lubricant oil and its components on the ignition characteristics of fuel was investigated.

It was found that lubricant base oil addition, irrespective of the fuel used, is a contributing factor in enhancing ignition. Based on the mechanism of the ignition enhancement by lubricant base oil addition, a chemical kinetic model for estimating ignition delay times of fuel/lubricant oil/oxidizer mixtures was constructed.

研究分野：燃焼工学

キーワード：潤滑油 自着火 着火遅れ時間 LSPi 急速圧縮装置 混合燃料 アッシュ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

計算機の高速化と小型化に伴い、エンジン設計やエンジン制御に、シミュレーションを活用することが考えられている。しかし、エンジン燃焼場のような非定常乱流燃焼場を直接数値計算しようとする膨大な計算量となることから、現実的な計算時間で行うための、物理化学に基づいたモデルの構築が求められている。従来、エンジン燃焼場のモデルには、大きく分けて流動を予測するモデルと燃料の燃焼を予測する化学反応モデルが考えられてきた。しかし、高効率エンジンとして近年開発された、筒内に燃料を直接噴射する方式のガソリンエンジンや天然ガスエンジンにおいては、火花点火前に燃料が自着火してしまう低速プレイグニッション(Low speed pre-ignition, LSPI)が問題となっているが、この現象を予測するモデルは存在しない。

LSPI の発生メカニズムについては、いくつか研究が進められており、エンジン筒内に堆積したデポジットが熱源になり燃料予混合気自着火する説⁽¹⁾や、エンジン燃焼室内に直接噴射した燃料がシリンダ壁面に当たり、潤滑油と燃料の混合液滴がエンジン燃焼室内に飛散し、それらの発熱が熱源となって、燃料予混合気自着火するという説が示されている⁽²⁾[Kassai et al., 2016]。LSPI は一度起きると1サイクルおきに数回繰り返され、前者は2回目以降のLSPIの発生メカニズムであり、1回目の発生メカニズムは後者であるとされている。しかし、後者の潤滑油が燃料予混合気の自着火を促進するメカニズムについては、工業的な用途もなかったことから、ほとんど検討されておらず、潤滑油が混合した場合の燃料の自着火を予測可能な化学反応モデルは存在しない。潤滑油には、金属成分が含まれており、火薬の燃焼分野で金属成分単体の燃焼に関して知見があるが、金属成分が燃料の自着火に及ぼす影響はほとんどわかっていない。

2. 研究の目的

本研究の最終的な目的は、潤滑油が燃料予混合気の自着火を促進するメカニズムを明らかにし、その予測モデルを構築することであり、本助成期間では、潤滑油が燃料の化学反応メカニズムに与える影響を明らかにし、潤滑油が混合した場合の燃料の自着火を予測可能な化学反応モデルを構築することを目的とする。

3. 研究の方法

潤滑油が燃料予混合気の自着火に及ぼす影響を明らかにするため、急速圧縮装置を用いた潤滑油と燃料の混合気の自着火実験と、潤滑油の燃焼によって生成する生成物を明らかにする流通反応管を用いた実験を行った。さらに潤滑油の燃焼で生成する生成物が燃料予混合気の自着火に及ぼす影響を明らかにするため、燃焼生成物を添加した自着火実験も実施した。得られた実験結果を基に、潤滑油を添加した場合の燃料予混合気の自着火を予測する化学反応モデルを構築した。

(1)急速圧縮装置を用いた潤滑油/燃料、潤滑油成分/燃料混合物の自着火実験方法

急速圧縮装置(RCM)を用い、燃料予混合気及び燃料予混合気に潤滑油及び潤滑油成分を添加した場合の着火遅れ時間を取得した。Fig. 1 に装置の概要図を示す。本装置はピストンにより、燃料予混合気を約 33 ms で急速圧縮する。ピストンの直径は 100 mm、ストロークは 130 mm であり、圧縮比は 14.1 である。シリンダ上部に取り付けたインジェクタより、潤滑油及び潤滑油成分を上死点前 30 ° で燃焼室内に添加し、本実験での潤滑油及び潤滑油成分の添加量は約 4 μ l とした。シリンダ上部に取り付けた圧力変換器により燃焼室内の圧力履歴を取得し、着火遅れ時間を決定した。燃焼室シリンダ及びシリンダヘッドはヒーターを用いて加熱した。燃料予混合気の初期温度、圧力を変化させることで圧縮後の圧力、温度を、プレイグニッション発生報告のある⁽³⁾圧縮後圧力 3 MPa、圧縮後温度 700 K に調整した。圧縮後の燃焼室内温度は、燃焼室中心部が断熱で変化すると仮定し、(1)式により算出した。ここで、 T_0, P_0, P_c はそれぞれ初期温度、初期圧力、圧縮後圧力、燃焼室内ガスの比熱比である。

$$\ln\left(\frac{P_c}{T_0}\right) = \int_{T_0}^{T_c} \frac{\gamma}{\gamma - 1} \frac{dT}{T} \quad (1)$$

本研究では、当量比は $\phi = 1.0$ とし、燃料は、低温酸化反応を持つイソペンタン、イソオクタン、エチルターシャリーブチルエーテル(ETBE)、PRF92 及び低温酸化反応を持たないトルエン、2,5-ジメチルフラン(DMF)の炭化水素燃料を用いた。それぞれの燃料予混合気中に潤滑油単体、潤滑油の基油の1つであるエイコサン、添加剤として潤滑油に含まれているカルシウムスルホネートと燃料を体積割合 1:1 で混合した成分を添加し、自着火実験を行った。実験で使用した燃料のオクタン価を Table 1 に示す。

次節で示す流通反応管を用いて明らかになった酸化カルシウム(CaO)を添加した自着火実験も本 RCM を用いて行った。粒径が約 100 nm の CaO を 1 mg 添加し、イソオクタン予混合気の自着火に及ぼす影響を確かめた。

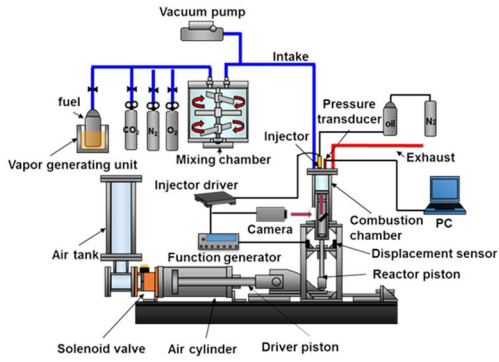


Fig. 1 Schematic of rapid compression machine.

Table 1 RON and MON of the fuel used in this study.

	RON	MON
イソペンタン	92.3	90.3
イソオクタン	100	100
ETBE	118	102
PRF92	92	92
トルエン	124	112
DMF	106	98

(2) 流通反応管を用いた実験方法

潤滑油の燃焼により生成する固体燃焼生成物を明らかにするため、エンジンオイルに含まれるアッシュの添加剤を、温度制御が可能な流通反応管を用いて酸化させ、生成する燃焼生成物を分析した。カルシウム系添加剤を含む潤滑油で異常燃焼が起きることが報告されていることから⁽³⁾、エンジンオイルに含まれる代表的なCa系添加剤であるCaスルホネート(TBN300)を燃焼させた。Fig. 2に流通反応装置の概要を示す。反応管には石英を用い、反応管の温度は電気炉で制御した。Caスルホネートは液体であることから、それらをセラミック容器に入れ、その容器を反応管内に設置して反応させた。添加剤は、セラミック容器から流出しないように、反応開始前の添加剤の量は500 mgとした。窒素と酸素で構成された合成空気を流通して添加剤を酸化させて燃焼生成物を生成させた。反応場の温度は、電気炉の最高設定温度を超えないよう973から1373 Kの間で変化させた。反応時間は、アッシュ成分が十分に平衡に達するまでとし、2時間とした。得られた生成物は液体クロマトグラフィーで分析した。

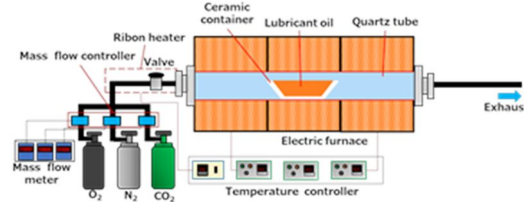


Fig. 2 Schematic of flow reactor.

4. 研究成果

Fig. 3, 4にイソオクタン、トルエンの燃料予混合気潤滑油、エイコサン、カルシウムスルホネートをそれぞれ燃料と1:1で混合したものを予混合気中に噴射した際の圧力履歴を示す。イソオクタンの結果では、燃料と潤滑油を混合したものを噴射した場合、燃料予混合気の場合に比べて着火遅れ時間が短くなった。潤滑油成分の効果について調べるため、燃料と潤滑油の基油であるエイコサンを混合したものを噴射したところ、燃料と潤滑油を混合したものを噴射した場合と比べて着火遅れ時間が短くなった。一方、燃料と潤滑油の添加剤であるカルシウムスルホネートを混合したものを噴射した場合は、燃料と潤滑油を混合したものと比べて着火遅れ時間が長くなったが、予混合気の場合より着火遅れ時間は短くなった。トルエンの結果では、トルエン予混合気のみで着火は起きなかったが、潤滑油と燃料を混合したものを噴射

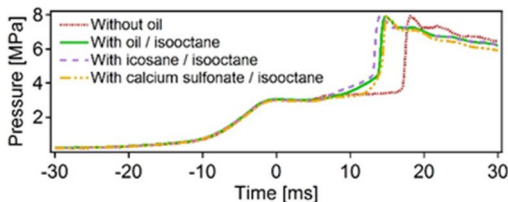


Fig. 3 Pressure profiles of isooctane, isooctane with isooctane / lubricant oil, isooctane with isooctane / icosane, and isooctane with isooctane / calcium sulfonate mixtures.

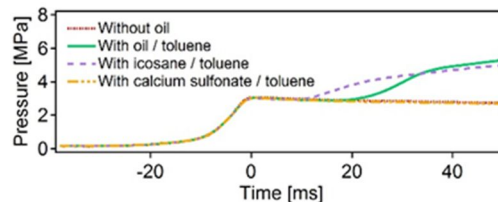


Fig. 4 Pressure profiles of toluene, toluene with toluene / lubricant oil, toluene with toluene / icosane, and toluene with toluene / calcium sulfonate mixtures.

した場合着火した。燃料にエイコサンを混合したものを噴射した場合は、燃料と潤滑油を混合した場合と比べ着火遅れ時間が短くなった。しかし、燃料とカルシウムスルホネートを混合したものを噴射した場合は着火しなかった。潤滑油成分の中でも、基油成分であるエイコサンは、燃料の着火性によらず、燃料の着火を促進させた。また、カルシウムスルホネートが燃料の着火を促進する効果は、燃料の種類に依存し、低温酸化反応を持たない燃料に対しては着火を促進しないが、低温酸化反応を持つ燃料に対しては着火を促進することが確認された。

潤滑油の添加剤は、燃料予混合気の自着火を促進する場合としない場合があることから、潤滑油の燃焼生成物が燃料予混合気の自着火に及ぼす影響を検討するため、潤滑油の添加剤を流通反応管で十分燃焼させ、その生成物を分析した。ガス成分として生成する成分は主に二酸化炭素、一酸化炭素、二酸化硫黄で、これらの添加が燃焼に及ぼす影響はほとんどないことを確認した。固体燃焼生成物として生成した成分を分析した結果を Fig. 5 に示す。973, 1173, 1373 K の各温度で生成した生成物中の各成分の分析結果を示している。973 K では炭酸カルシウム(CaCO₃)と硫化カルシウム(CaS)が主成分であるが、温度が上昇すると、1173 K 以上では CaO が主成分になることがわかった。硫酸カルシウム(CaSO₄)は温度が高い条件で生成するものの、主たる成分にはならないことも確認された。これらから Ca 系潤滑油の添加剤が燃焼した場合、ガス成分以外の主成分は CaO であることが明らかになった。そこで、CaO が燃料予混合気の自着火に影響を及ぼすことを確認するため、CaO を 1 mg 添加した自着火実験を行った。実験条件は、潤滑油を添加した場合と同様である。その結果を Fig. 6 に示す。CaO を添加しても自着火にほとんど影響を及ぼさなかった。

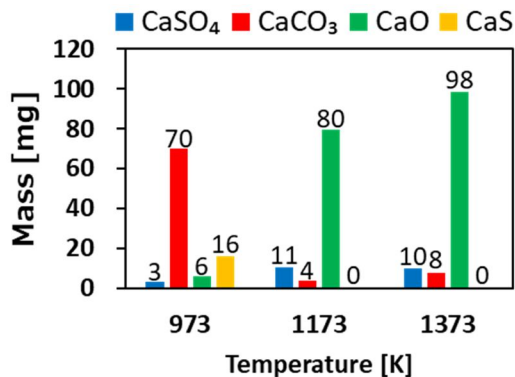


Fig. 5 Mass of the components in ash formed in the oxidation of Ca-sulfonate at 973, 1173, 1373 K.

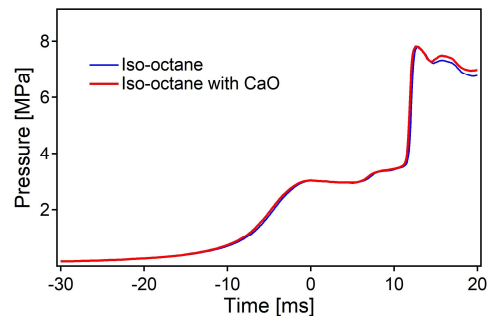


Fig. 6 Pressure profiles of iso-octane, iso-octane with CaO mixtures.

以上の実験結果から、潤滑油を添加した場合に、燃料予混合気に最も影響を及ぼすのは基油であり、潤滑油の添加剤に含まれる金属成分は主たる着火促進の原因にはなっていないことが確認された。この結果を基に、潤滑油の添加時の燃料予混合気の着火特性を模擬する化学反応モデルとして、基油成分であるエイコサンを含む反応モデルを構築した。構築には、反応モデル自動生成プログラムである KUCRS⁽⁴⁾を活用した。得られた結果を Fig. 7 に示す。基油であるエイコサンは実験条件と同様に 4 μl 混合した条件でシミュレーションを行った。Fig. 3 で示した実験結果と同様に、潤滑油を添加することにより自着火が促進される傾向を再現できている。

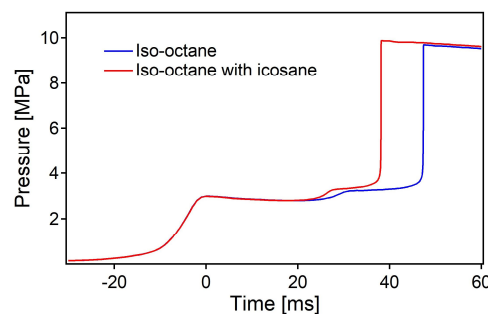


Fig. 7 Simulated pressure profiles of iso-octane, iso-octane with icosane mixtures.

本研究では、潤滑油の添加が燃料予混合気の自着火に及ぼす影響を実験的に明らかにし、潤滑油添加時の燃料予混合気の自着火特性を予測する化学反応モデルを提案した。今回の結果では、基油の効果が大きく、添加剤に含まれる金属成分の効果はほとんど自着火に影響しない結果と

なった。その結果に基づき基油を添加した燃料予混合気の自着火特性を予測可能なモデル構築を実施した。一方で、潤滑油に含まれる金属成分が変化した場合に着火特性が変化することも報告されており、金属成分が燃料予混合気に及ぼす影響については継続的に研究を推進していく必要がある。

参考文献

1. Y. Okada, S. Miyashita, Y. Izumi, Y. Hayakawa, SAE Int. J. Engines 7 (2) (2014) 584-594.
2. M. Kassai, K. Torii, T. Shiraishi, T. Noda, T. K. Goh, K. Wilbrand, S. Wakefield, A. Healy, D. Doyle, R. Cracknell, M. Shibuya, SAE Technical Paper 2016-01-2292.
3. Y. Moriyoshi, T. Kuboyama, K. Morikawa, T. Yamada, Y. Imai, K. Hatamura, M. Suzuki, SAE Technical Paper 2015-09-1865.
4. A. Miyoshi, KUCRS software library, revision 20170705, available at <<http://akmys.com/KUCRS/for update infomation>>. (Access 2021/5/31)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kotaro Tanaka, Shinya Sugano, Hiroya Nagata, Satoshi Sakaida, Mitsuru Konno	4. 巻 125
2. 論文標題 Quantitative measurements of formaldehyde in the low-temperature oxidation of iso-octane using mid-infrared absorption spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics B	6. 最初と最後の頁 191
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00340-019-7304-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kotaro Tanaka, Shinya Sugano, Naoya Yokota, Satoshi Sakaida, Mitsuru Konno, Hisashi Nakamura	4. 巻 -
2. 論文標題 Time-resolved mid-infrared measurements of hydrogen peroxide in the low-temperature oxidation of iso-octane in a rapid compression machine	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Combustion Science and Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00102202.2020.1855635	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 田中光太郎、横林佑亮、石井雄大、境田悟志、金野満、新居見絃、酒井康行	4. 巻 52
2. 論文標題 流通反応装置を用いたエンジンオイル添加剤の酸化によるアッシュ生成経路に関する研究	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 自動車技術会論文集	6. 最初と最後の頁 244-250
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11351/jsaeronbun.52.244	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Kotaro Tanaka
2. 発表標題 Sensitive measurements of trace gas of hydrocarbon in combustion emission using mid-infrared laser absorption spectroscopy
3. 学会等名 Analytix 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kotaro Tanaka
2. 発表標題 Time-resolved Quantitative Measurements of Intermediate Species in the Low-temperature Oxidation of Iso-octane using Mid-infrared Absorption Spectroscopy
3. 学会等名 16th International Conference on Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kotaro Tanaka, Tomoya Funabashi, Satoshi Sakaida, Mitsuru Konno
2. 発表標題 Experimental Study on Ignition Characteristics of Bi-blended Gasoline under Lean Burn Conditions
3. 学会等名 18th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 横林佑亮、石井雄大、境田悟志、金野満、新居見絃、酒井康行
2. 発表標題 流通反応装置を用いたエンジンオイル添加剤の酸化によるアッシュ生成経路に関する研究
3. 学会等名 自動車技術会秋季大会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kotaro Tanaka, Shinya Sugano, Naoya Yokota, Satoshi Sakaida, Mitsuru Konno, Hisashi Nakamura
2. 発表標題 Time-resolved mid-infrared measurements of hydrogen peroxide in the low-temperature oxidation of iso-octane in a rapid compression machine
3. 学会等名 38th International Symposium on Combustion (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------