

Time-Resolved LII による噴霧火炎内のすす体積濃度・粒子径計測

米虫 祐介 *1, 千田 二郎 *2
藤本 元 *2

Measurement of Soot Volume Fraction and Particle Size in Diesel Jet Flame by Time-Resolved Laser Induced Incandescence

Yusuke KOMEMUSHI, Jiro SENDA,
Hajime FUJIMOTO

Soot volume fraction and particle diameter distribution in diesel jet flame was investigated using Time-Resolved Laser-induced incandescence. Besides, the effect on soot formation of characteristics combustion conditions, such as ambient gas temperature ($T_{amb}=800\text{K}, 900\text{K}, 1200\text{K}$) and ambient oxygen concentration ($X_{O_2}=13\%, 17\%, 21\%$), was demonstrated. The experiments were conducted using constant combustion vessel, which simulate diesel engine conditions. The experimental results showed that the small soot particles generated at upstream of the jet were carried to downstream and grew to the large soot particles by aggregation or surface growth. Moreover, soot volume fraction was reduced by a decrease in ambient gas temperature and oxygen concentration, and small soot particles were increased by a decrease in ambient oxygen concentration.

Key Words : Diesel engine, Combustion, Soot formation, Laser-induced incandescence

1. 緒 論

近年、ディーゼル機関から排出される微粒子に対する規制が段階的に強化されている。これまでの微粒子低減技術として、高圧燃料噴射、小噴孔ノズルの適用、大量 EGR と燃料噴射時期の遅延により NO_x も同時に低減する MK (Modulated Kinetics) 燃焼法¹⁾などが挙げられる。また、代替燃料として燃料分子構造中に酸素原子を含有する含酸素燃料のすす抑制効果が実証されている^{2),3)}。このように、微粒子の重量濃度の大幅な低減が図られてきた。

これに対し、新たな問題として、これまでの重量濃度規制に寄与しない粒子径が 50nm 以下のナノ粒子が注目されている。このナノ粒子は体内に侵入し、呼吸器や肺胞の最深部に沈着するため、気管支喘息や腫瘍の発生を助長させると懸念されている。よって、今後更なる微粒子の低減にはすすの重量濃度だけでなく、すす粒子の粒子径や数密度に着目し、燃焼段階から排気過程までの一連の微粒子生成特性を把握する必要がある。現在、エンジン排気中における粒径・数密度に関しては、SMPS などを用いて盛んに計測が行われている⁴⁾。しかし、燃焼過程における詳細な微粒子の生成特性については未だ十分な知見が得られていないのが現状である。

そこで本研究では、Time-Resolved LII (Laser-induced incandescence) を適用し、ディーゼル噴霧火炎内のすす体積濃度および粒子径の時系列変化を調べた。さらに、雰囲気温度および雰囲気酸素濃度がすす生成特性に及ぼす影響を調べた。

2. 計測原理

LII は高強度のレーザー光をすす粒子に照射し、すすを瞬時に蒸発温度付近まで加熱させ、その際にすすが放射する赤熱光 (LII シグナル) を検出する計測法である。LII は LII シグナル強度がすす体積濃度にはほぼ比例するなど、他のすす計測法に比べ有利な点が多い。

また、レーザー光により熱せられたすす粒子は数十から数百 ns で元の温度まで冷却されるが、その履歴は粒子径に依存し、大粒子径のものほど冷却が緩慢となる。これを利用し、異なる 2 時期での LII シグナルの比から粒子径を算出する手法が Time-Resolved LII である⁵⁾。本研究では、この計測手法をディーゼル噴霧火炎に適用し、粒子径の計測を行なった。

ここで、ディーゼル燃焼場は高温高圧であるため粒子径が既知のすす粒子を用いた検定実験が困難となる。そのため、本研究では数値シミュレーションにより予測される LII シグナルの減衰履歴を基に、異なる 2 時期での LII シグナル比から粒子径を算出する手法をとった。

*原稿受付 2005 年 6 月 20 日。

*1 同志社大学大学院

*2 同志社大学 (610-0321 京都府京田辺市多々羅都谷 1-3)。

2.1. 支配方程式

Melton⁶⁾と同様に本研究では、すす粒子を単一球形粒子と仮定し、エネルギー保存式と質量保存式を数値的に解き、得られた粒子温度と粒子径の時間履歴から Planck の放射則により LII シグナルの減衰履歴を求めた。直径 d_p のすす粒子について、エネルギー保存式は、次式で表わされる。

$$\frac{K_{abs} \pi d_p^2 q(t)}{4} - 2\pi d_p^2 \frac{K_a (T - T_{flame})}{d_p (1 + GK_n)} - \frac{\Delta H_v}{W_s} \cdot \frac{dM}{dt} - \pi d_p^2 \varepsilon \sigma (T^4 - T_0^4) - \frac{\pi}{6} d_p^3 \rho_s C_s \frac{dT}{dt} = 0 \quad (1)$$

ここで、 K_{abs} : 粒子の吸収係数、 $q(t)$: レーザ強度の時系列分布(Gaussian 分布、半値幅: 7ns)、 K_a : 周囲気体の熱伝導率、 T_{flame} : 火炎温度、 G : 幾何学因子、 K_n : クヌーゼン数、 ΔH_v : すすの蒸発潜熱、 W_s : 炭素の分子量、 ε : 放射率、 σ : ステファン・ボルツマン定数、 ρ_s : すすの密度、 C_s : 炭素の比熱、である。また、各項は順に、レーザ吸収、周囲ガスへの熱伝達、蒸発による熱損失、熱放射、内部エネルギーの変化を表わす。さらに質量保存式は、次式で表わされる。

$$\frac{dM}{dt} = \pi d_p^2 \rho_s \frac{dd_p}{dt} = \pi d_p^2 \rho_s \sqrt{\frac{RT}{2W_v}} \quad (2)$$

ここで、 ρ_v : 炭素蒸気密度、 R : 気体定数、 W_v : 炭素蒸気モル重量、である。最終的に LII シグナルは Planck の放射則に基づき、次式より算出した。

$$S_{LII} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \zeta(\lambda) \frac{2\pi^2 h}{\lambda^5 [\exp(hc/\lambda kT) - 1]} N_p 4\pi a^2 \varepsilon d\lambda \quad (3)$$

ここで、 λ_1 , λ_2 : 検出する波長の範囲、 $\zeta(\lambda)$: バンドパスフィルタの透過率およびイメージインテンシファイア(IL)の感度特性、 c : 真空中の光速、 h : Planck

定数、 λ : 波長、 k : Boltzmann 定数である。

2.2. 数値シミュレーション結果

図1に、最大値で正規化した LII シグナルの時間履歴を示す。ここで、LII シグナルの時間履歴は、大気圧バーナを対象とした数値予測⁹⁾とは大きく異なり、LII シグナルの減衰が極端に早いものとなっている。これは雰囲気圧力の高圧化によるクヌーゼン数の低下に伴う熱伝達項の増大に起因している。

レーザ入射後 15ns までは粒子径に関わらず LII シグナル強度の時間履歴は同様であるが、その後は粒子径に依存した減衰履歴を辿り、大粒子径のものほど LII シグナルの減衰は緩慢になる。これはすす粒子の温度降下履歴に起因しており、すす粒子の冷却速度がその体積に対する表面積の比($\propto d_p^2/d_p^3$)に依存し、粒子径が大きいほどその比が小さくなり、冷却速度が低下するためである。

したがって、Time-Resolved LII で重要となる2つの LII シグナル検出時期としては、レーザ入射からの 20ns 間(*first gate*)とレーザ入射後 15ns からの 20ns 間(*second gate*)が最適であると判断し、この2時期における各粒子径に対する LII シグナルの比 r を求めた。ここで、 r は次式で表される。

$$r = \frac{S_{second}}{S_{first}} \quad (4)$$

S_{first} , S_{second} は *first*, *second gate* で得られたそれぞれの LII シグナルである。図2に、粒子径と LII シグナル比 r との関係を示す。2時期で得られた画像を演算することで LII シグナル比 r を求め、図2の関係を利用して粒子径分布の画像へと変換する。なお、図からも分かるように大粒子となるに従い、算出される粒子径の誤差が大きくなるため、本研究では 100nm 以上の粒子に関しては同定を行っていない。

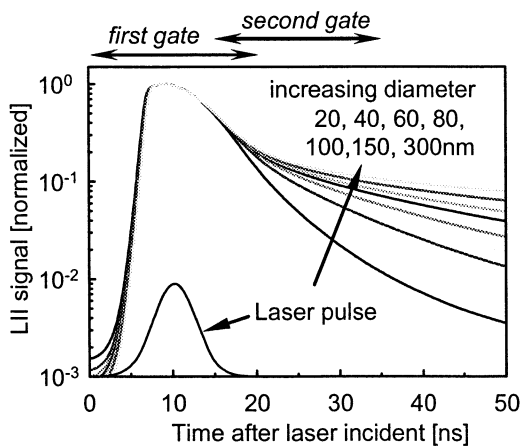


Fig.1 LII signal decay for various particle sizes ($P_{amb}=4.1\text{MPa}$, Laser fluence= $0.67\text{J}/\text{cm}^2$, $T_{flame}=2200\text{K}$)

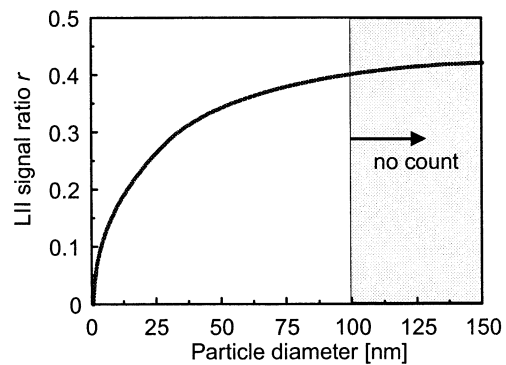


Fig.2 LII signal ratio of *second gate* to *first gate* ($P_{amb}=4.1\text{MPa}$, Laser fluence= $0.67\text{J}/\text{cm}^2$, $T_{flame}=2200\text{K}$)

3. 実験装置, 条件および方法

3.1. 実験装置

本実験では, 1)装置が簡便, 2)自由度の高い実験条件を設定できるという観点から, 実験装置には定容燃焼容器を用いた。容器の燃焼室容積は 1141cc であり, 直径 85mm の観測窓取り付け穴を上・下, 側面に合計 6 面有している。なお, 容器には攪拌機を設置し, 約 10000rpm で駆動させた。これは乱れにより予混合燃焼の燃焼速度を増加させ, 既燃ガス温度分布の均一化を図るためである。さらに, 可視化の際, 石英ガラスへの水蒸気の付着を防止するため燃焼室内壁をヒータにより加熱し, 373K で一定とした。また, 燃料噴射装置には電子制御式燃料噴射装置(ECD-U2)を使用した。

3.2. 実験条件

表 1 に, 実験条件を示す。供試燃料にはディーゼル燃料である軽油とほぼ同等のセタン価を有する n-heptane を使用した。雰囲気密度は $\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3$ で一定とした。雰囲気温度 $T_{amb}=900\text{K}$, 雰囲気酸素濃度 $X_{O_2}=21\%$ を基本条件に設定し, 雰囲気温度を

Table 1 Experimental conditions

| Fuel | | n-Heptane |
|------------------------------|-----------------------------------|----------------|
| Ambient gas temperature | T_{amb} [K] | 800, 900, 1200 |
| Ambient gas density | ρ_{amb} [kg/m ³] | 16.2 |
| Ambient oxygen concentration | X_{O_2} [%] | 13, 17, 21 |
| Nozzle orifice diameter | d [mm] | 0.2 |
| Injection pressure drop | ΔP_{inj} [MPa] | 70 |
| Injection duration | Δt_{inj} [ms] | 2.5 |
| Injection quantity | Q_{inj} [mg] | 18.3 |

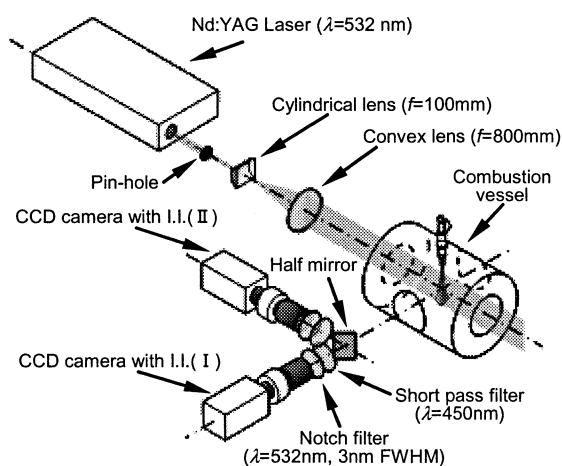


Fig.3 Optical measurement system for Time-Resolved LII

$T_{amb}=800\text{K}$, 1200K , 酸素濃度を $X_{O_2}=13\%$, 17% とそれぞれ変化させた。また, 燃料噴射差圧を $\Delta P_{inj}=70\text{MPa}$ とし, 噴射ノズルには噴孔径 $d=0.2\text{mm}$, 噴孔長さ $l=0.8\text{mm}$ の単噴孔ホールノズルを用いた。

3.3. 実験方法

まず, アセチレン, 酸素および窒素で構成される可燃混合気を作成し, 定容燃焼容器内に充填する。次に, 充填した予混合気を火花点火し, 高温・高圧場を作成する。その後, 燃焼室壁面への放熱により圧力が低下し, 目的の圧力に到達した際に, 燃料を単発噴射する。

図 3 に, 本研究で用いた光学系を示す。パルス光源には Nd:YAG レーザの第 2 高調波($\lambda=532\text{nm}$)を用い, シリンドリカルレンズ($f=100\text{mm}$)およびコンベックスレンズ($f=800\text{mm}$)により, 高さ 80mm, 厚さ 0.3mm の平行シート光を成形した。シート光はノズル噴孔から 20mm-100mm の噴霧中心軸を含む断面に照射した。2 時期の LII シグナルはハーフミラーを介した 2 台の LI(浜松フォトニクス: C4078-01)付き CCD カメラ(浜松フォトニクス: C4742-95-10NR)により, 時間差を設けて検出した。なお, 輝炎に対する S/N 比を向上させるため 2 台のカメラにショートパスフィルタ(カットオフ波長 450nm)を取付けた。また, 弾性散乱光を除去するために, 2 台のカメラにノッチフィルタ(中心波長 532nm, 半値幅 3nm)を取付けた。

4. 実験結果および考察

4.1. 熱発生率線図による燃焼解析

図 4 に, 基本条件($T_{amb}=900\text{K}$, $X_{O_2}=21\%$, $\Delta P_{inj}=70\text{MPa}$)と雰囲気温度($T_{amb}=800\text{K}$, 1200K), 酸素濃度($X_{O_2}=13\%$)を変化させた際の熱発生率線図を示す。

まず, 基本条件に着目すると, 約 0.8ms の着火遅れの後, 急激な熱発生を示す予混合的燃焼が確認できる。その後, 熱発生率は緩やかに上昇し, 拡散的燃焼

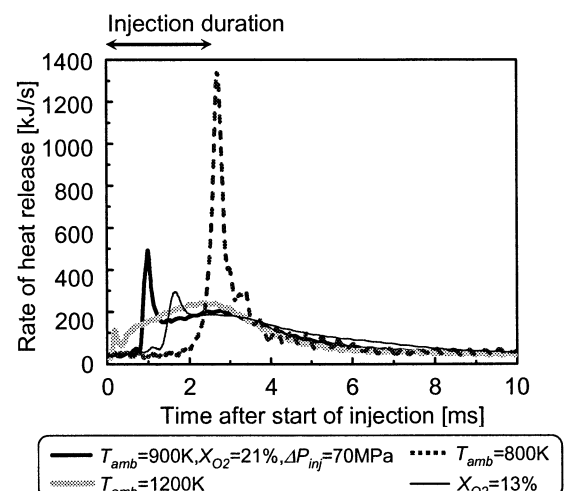


Fig.4 Rate of heat release

期間に移行したことが確認できる。燃料噴射終了後、熱発生率は低下し、燃料噴射開始から約 7.0ms で燃焼が終了する。

雰囲気温度を $T_{amb}=800\text{K}$ と低下させると、着火遅れ期間が約 2.0ms と長期化し、予混合的燃焼が終了する時期には燃料噴射はすでに終了しており、予混合的燃焼が支配的となる。着火遅れ期間が長期化した要因としては、温度が低いこと、燃料の蒸発および熱分解が緩慢となり可燃混合気の形成が遅延したことが挙げられる。一方、 $T_{amb}=1200\text{K}$ の条件では、着火遅れ期間が約 0.1ms と短く、拡散的燃焼が支配的となる。

$X_{O_2}=13\%$ の条件では、基本条件に比べ着火遅れ期間が約 1.2ms と長期化しているにも拘わらず、予混合的燃焼に起因した熱発生は緩慢である。これは、酸素濃度の低下に伴い、可燃混合気を形成するまでの物理的遅れにより着火遅れが長期化するが、燃焼が緩慢となるために予混合的燃焼による熱発生が抑制されたと類推できる。また、その後の拡散的燃焼は緩やかに進行し燃焼期間が長期化している。

4.2. 微粒子生成特性に及ぼす諸因子の影響

図 5 に、雰囲気温度 $T_{amb}=900\text{K}$ 、密度 $\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3$ 、酸素濃度 $X_{O_2}=21\%$ 、燃料噴射圧力 $\Delta P_{inj}=70\text{MPa}$ におけるすす体積濃度分布 (f_v) およびすす粒子径分布 (d_p) の時系列画像を示す。画像下の TASI は燃料噴射開始からの時間である。また、すす体積濃度の画像内の数字は本実験で最もすす濃度が高くなった条件 ($T_{amb}=1200\text{K}$) を基準とした校正倍率であり、数字が高くなるほどすす濃度が低い。なお、画像は 8 回の実験で得られた最も平均的なものを選定した。

まず、予混合的燃焼期間終盤 (TASF=1.2ms) にノズル

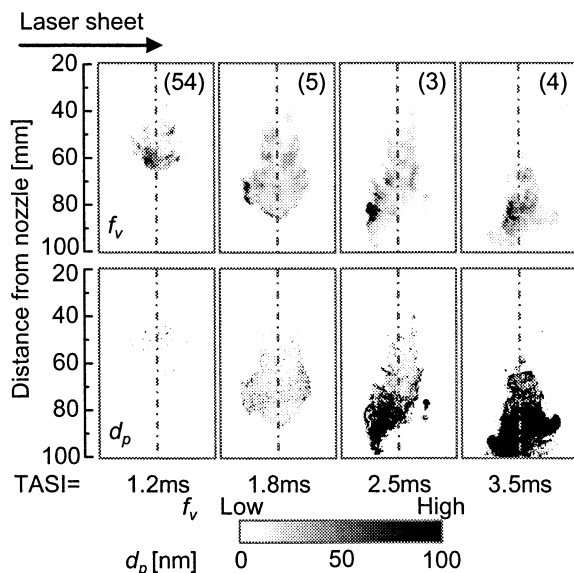


Fig.5 Distribution of soot volume fraction and soot particle diameter

(fuel: n-heptane, $T_{amb}=900\text{K}$, $X_{O_2}=21\%$, $\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3$)

噴孔から約 40mm 下流域で初めて LII シグナルが確認できる。噴霧全体ですす体積濃度は低く、粒子径は 10nm 以下の微小なすす粒子で占められる。拡散的燃焼期間に移行すると、すす生成領域は下流へと拡大し、噴霧先端部および外縁部で高濃度領域が現れる。また、すす粒子径は噴霧外縁部から成長が開始し、拡散燃焼期間中盤 (TASF=2.0ms) で粒子径 100nm 以上の大粒子径のすすが生成し始める。これは、噴霧火炎上流部で生成した微小なすす粒子が高速噴流によって噴霧下流へ流され、凝集・表面成長を繰り返しながら粒子径が成長するためと推測される。また、噴霧先端部では下流部へと流されたすす粒子が滞留するために、大粒子径のすすが高濃度で分布すると考えられる。最も燃焼が活発であると予想される燃料噴射終了時 (TASF=2.5ms) では、噴霧先端部の中心部からレーザー射出側でシグナルが消滅していることが確認できる。これは、レーザーが高濃度のすす粒子群により減衰し、LII シグナルがシート光と CCD カメラとの間のすす粒子によって減衰しているためと考えられる。

燃料噴射終了後 (TASF=3.5ms) は、噴霧全域において大粒子径のすすが高濃度で分布するようになる。これは、噴霧運動量がなくなるために、噴霧への空気導入が抑制されすす濃度が著しく高くなったと推測される。

4.2.1 雰囲気温度が微粒子生成過程に及ぼす影響

図 6 に、雰囲気温度 $T_{amb}=800\text{K}$ 、 1200K におけるすす体積濃度分布および粒子径分布の時系列画像を示す。また図 7 に、 $T_{amb}=800\text{K}$ 、 900K 、 1200K の各 TASI での面積積算 LII シグナル I_{LII} と代表粒子径 D_{LII} の時間履歴を示す。ここで、 I_{LII} は次式で表される。

$$I_{LII} = \sum_i (S_{first})_i A_i \quad (5)$$

A_i ピクセル i の面積を示す。また、 D_{LII} は次式で表す *first gate* および *second gate* での LII シグナル画像の積算値の比から得られた粒子径である。

$$r = \sum_i (S_{second})_i / \sum_i (S_{first})_i \quad (6)$$

$T_{amb}=800\text{K}$ では、LII シグナルが明確に確認できる時期は予混合的燃焼期間の終盤 (TASF=3.4ms) 付近に限定され、すす体積濃度は非常に低く、粒子径も 10nm 以下となり微小である。これは、温度低下に伴い、着火遅れが長期化し、予混合的燃焼が支配的となり、すすの生成・成長が活発な拡散的燃焼がほとんど起こらなかったためと考えられる。

$T_{amb}=1200\text{K}$ においては、 $T_{amb}=900\text{K}$ と同様に予混合的燃焼期間から拡散的燃焼期間に移行する時期にすすの生成が開始する。しかし、その位置はノズル噴孔から 20mm 下流域であり、 $T_{amb}=900\text{K}$ の条件に比べ 20mm 上流で確認でき、生成開始時期も TASF=0.4ms

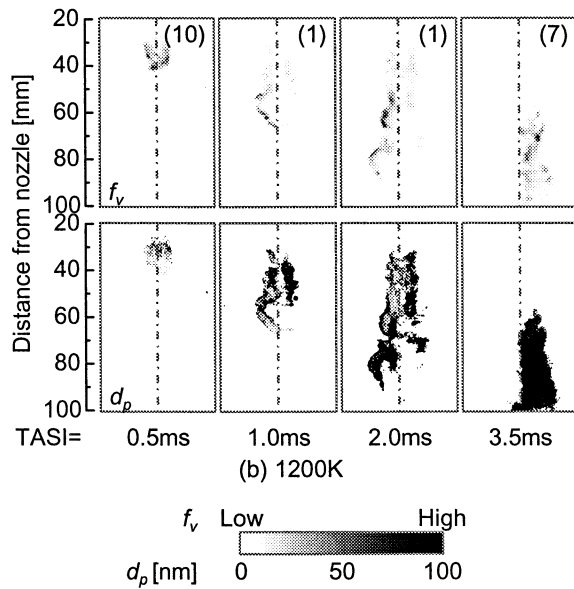
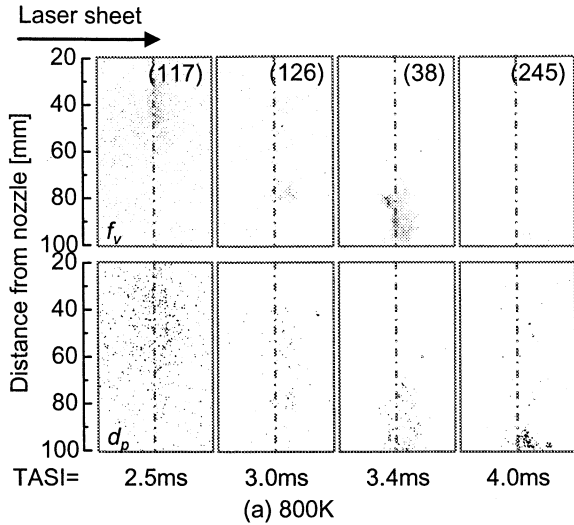


Fig.6 Distribution of soot volume fraction and soot particle diameter ($\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3, X_{O_2}=21\%, \Delta P_{ij}=70\text{MPa}$)

と早期化される。高温度条件では、燃料の蒸発および熱分解が迅速に行われるために、上流部からすすの生成が開始されると考えられる。その後、拡散的燃焼期間の初期($TASI=0.8\text{--}1.0\text{ms}$)で大粒子径のすす粒子が生成し、やがて噴霧全域で大粒子径のすすが高濃度で分布するようになる。これは、燃焼初期からすす粒子が高濃度で存在し、凝集および表面成長が活発に起こったためと推測できる。

4.2.2 雰囲気酸素濃度が微粒子生成過程に及ぼす影響

図8に、雰囲気酸素濃度 $X_{O_2}=13\%$ におけるすす体積濃度分布および粒子径分布の時系列変化を示す。図9には、 $X_{O_2}=13\%, 17\%, 21\%$ の各 $TASI$ での面積積算 LII シグナル I_{LII} と代表粒子径 D_{LII} の時間履歴を示す。まず、すすの生成が開始される時期は予混合的燃焼期

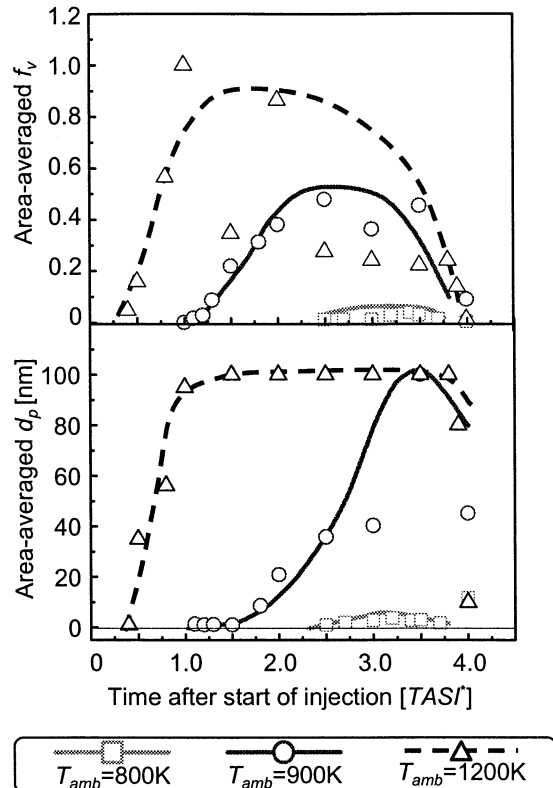


Fig.7 Integrated LII intensity characteristic particle diameter for ambient temperature ($\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3, X_{O_2}=21\%, \Delta P_{ij}=70\text{MPa}$)

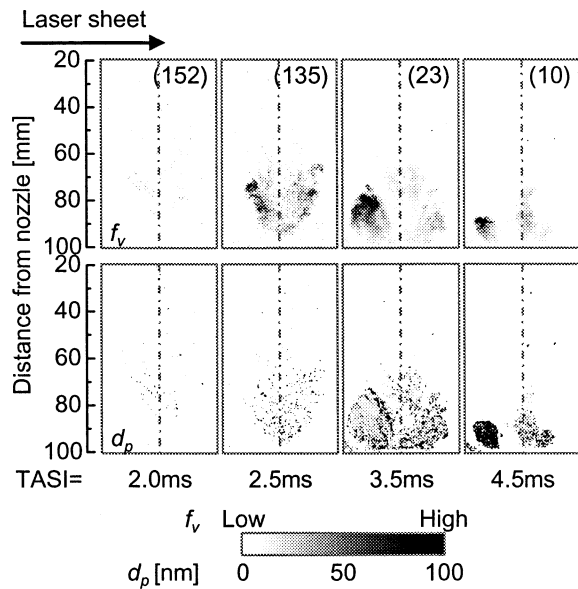


Fig.8 Distribution of soot volume fraction and soot particle diameter ($\rho_{amb}=16.2\text{kg/m}^3, T_{amb}=900\text{K}, X_{O_2}=13\%, \Delta P_{ij}=70\text{MPa}$)

間から拡散的燃焼期間へ移行する時期($TASI=2.0\text{ms}$)であり、他の条件と同様の傾向を示す。すすの生成が開始される位置は、ノズル噴孔から 60mm 下流域であり、 $X_{O_2}=21\%$ と比較すると 20mm 下流で生成が開始する。これに伴い、噴霧火炎全体が下流側へ移行し、更に噴

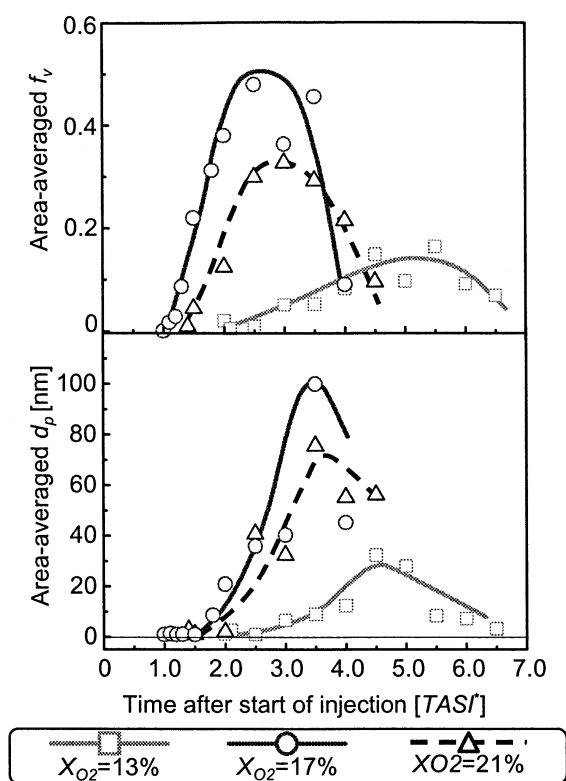


Fig.9 Integrated LII intensity characteristic particle diameter for ambient temperature ($\rho_{amb}=16.2[\text{kg/m}^3]$, $T_{amb}=900\text{K}$, $X_{O_2}=13\%$, $\Delta P_{ij}=70\text{MPa}$)

霧火炎の幅が拡大していることが確認できる。ここで、Siebers ら⁷⁾は、雰囲気酸素濃度に関わらず着火に至るまでの導入酸素量に変化がないことを示した。これより、酸素濃度の低下により着火位置が下流側へ移行し噴霧火炎が全体的に下流側へ移行したと考えられる。また、画像から酸素濃度の低下により燃焼領域が噴霧外縁に拡大していることが確認できる。これは、 $X_{O_2}=21\%$ に比べ雰囲気中の酸素が希薄となり燃料がより多くの酸素と反応しようとするために外縁に広がったと類推される。

すす体積濃度および粒子径を $X_{O_2}=21\%$ の条件と比較すると、噴霧外縁部で局所的に濃度が高くなるという同様の傾向を示すが、TASIに関わらず小粒子径のすすの分布する領域が拡大しており、噴射終了後においても小粒子径のすすが多数存在している。これは、酸素濃度の低下により火炎温度が低下することで、すすが迅速に成長する温度域に達せず、すす粒子の凝集や表面反応が緩慢になるためと考えられる。また、同時に酸化反応も緩慢となることから、噴射終了後において長期間に渡りすすが存在していると推測できる。本実験では、低酸素濃度場で噴霧火炎内のすす濃度は減少したが、実際のエンジンにおいては、膨張行程で更に燃焼が緩慢になると推測されるため、排出時まで存在するすすが増大することが懸念される。

5. 結 言

- (1) 予混合的燃焼期間の後半にすすの生成が開始され、燃焼の進行とともに噴霧火炎が拡大し、噴霧先端部および外縁部で大粒子径のすすが高濃度で分布する。
- (2) 低雰囲気温度場では、予混合的燃焼が支配的となるため、すす濃度は著しく減少する。
- (3) 高雰囲気温度場においては、拡散的燃焼が支配的となるため、すすは早期に噴霧上流部から生成し、噴霧全体において大粒子径のすすが高濃度で分布する。
- (4) 雰囲気酸素濃度の減少に伴い、すす体積濃度が減少するが、微小粒子の割合が増加する。しかし、燃焼が緩慢となるため、燃焼期間が長期化し、すすが長期間存在する。

謝 辞

本研究は、文部科学省学術フロンティア推進事業「次世代ゼロエミッション・エネルギー変換システム(同志社大学)」の支援を受けた。ここに記して謝意を表する。

参 考 文 献

- (1) Kimura, K., et al. : Ultra-Clean Combustion Technology Combining a Low-Temperature and Premixed Combustion Concept for Meeting Future Emission Standards, SAE paper 2001-01-0655
- (2) Md.NURUN Nabi, ほか: 高含酸素燃料による超低エミッション・高性能ディーゼル燃焼の実現と機構, 日本機械学会論文集(B編), 66巻, 642号, 2000
- (3) 北村高明, ほか: 含酸素燃料のすす生成抑制効果に関する化学反応論的解析(第1報), 自動車技術会論文集, Vol.32 No.1, p.41-46, 2001
- (4) 中野道王, ほか: ナノ粒子生成特性解析(第1報), 自動車技術会学術講演会前刷集, No. 43-03, 2003
- (5) Stefan Will, et al. : Performance characteristics of soot primary particle size measurement by time-resolved laser induced incandescence, Applied Optics, Vol. 37, No. 24, pp. 5647-5658, 1998
- (6) Lynn A. Melton, : Soot diagnostics based on laser heating, Applied Optics, Vol. 23, No. 13, pp. 2201-2208, 1984
- (7) Dennis Siebers, et al. : Flame Lift-Off on Direct-Injection Diesel Fuel Jets: Oxygen Concentration Effects, SAE paper 2002-01-0890, 2002