急速圧縮機による単一噴霧燃焼の すす粒子の計測に関する研究*

菅原長英**・岡田 博***・内海 博***

Measurements of Soot Particles in Single Spray Combustion
by a Rapid Compression Machine

By Choei Sugawara, Hiroshi Okada, Hiroshi Utsumi

The size distribution of single soot particles (the fuel was gas oil) in single fuel spray combustion by a rapid compression machine was measured with electron micrographs and calculated by the small angle scattering method of X-rays. It was studied in relation to the compression ratio of a combustion chamber and the volume of fuel injection. The size of crystallites in a single soot particle was measured with an X-ray diffractometer.

The results of this experiment are summarized as follows:

- (1) The size distribution of single soot particles is not affected by the compression ratio and the volume of fuel injection. It is the same as the distribution of single soot particles in a wick flame.
- (2) A single soot particle is a sphere of $300\text{\AA}$ in diameter in the maximum distribution.
- (3) The size of crystallites in a single soot particle is $13.96\text{\AA}$. It is $1/15\sim 1/25$ the size of a single soot particle in the maximum distribution examined by the electron micrographs ($\times 12300$).
- (4) The size distribution of single soot particles in this experiment shows much the same tendency as the one calculated by Guinier plot method.

The results of this experiment indicate that a soot is composed of many spherical single soot particles and that it is formed by a great many microscopic crystallites. As described above, the essential structure of soot particles is one of the important factors in the investigation of soot formation in combustion processes.

1. ま え が き

石油や石炭などの炭化水素系燃料の燃焼は、そのほとんどの場合が気体の燃料と気体の酸化剤(空気中の酸素を用いるときが多い)との光と熱を伴った気相状態での酸化反応である。その反応において、十分に反応しきれない化学種どうしが集まって、炭素を主成分とする固体のすす粒子が生成する現象は、燃焼の研究においても興味のある分野の一つである。また、省エネルギー対策や大気汚染防止の面からも、重要な問題である。

従って、今日までに多くの研究者達によって、すす生成の化学的な機構^{1,2,3)}や物理的な機構⁴⁾を解明するための実験的な研究がなされてきた。しかし、すす生成の機

構の複雑さと計測技術の困難さのために十分には明らかにされていない。特に、すすを構成している多くの粒子の本質についてはまだほとんど調べられていないようである。

従来より、すす粒子の大きさや形および数濃度について調べてきた^{5,6)}が、ここでは、すすを構成している単一粒子内の結晶子の大きさに注目し、それを求めるためにX線ディフラクトメータを用いて、すす粒子の回折を行い、その値と電子顕微鏡写真から観察されるすす粒子の大きさとを比較検討した。

本研究のために、ディーゼル機関の燃焼室内の燃焼状態をできるだけ模擬できるように、単行程の急速圧縮機を用いた単一噴霧燃焼装置を試作した。つまり、シリンダとピストンで構成されている燃焼室内の空気を急速なピストン運動によって、圧縮し、高温高圧になっている空気中に燃料油を1回だけ噴射し、その噴霧の自発点火に自続して燃焼を行わせるものである。これまでに急速圧縮燃焼装置を試作し、燃焼過程を研究する試みは数多

* 原稿受付 昭和55年7月21日

昭和55年春季学術講演(昭和55年5月29日)

** 正会員 運輸省航海訓練所(東京都千代田区霞が関2-1-3)

*** 正会員 東京商船大学(東京都江東区越中島2-1-6)

くなされている^{7,8,9,10,11}). しかし, その多くは予混合気を扱ったものであるが, ディーゼル機関のような間欠噴霧燃焼を対象としたものは, その技術的な困難さのために少ない^{12,13}). 本研究のために試作した急速圧縮燃焼装置は, シリンダカバーにガラスをはめこんで燃焼状態を外から観察できるようにしてあり, これを高速度写真に撮るとともに圧縮比をかえることができるようにしてあり, この圧縮比の違いや1回の燃料噴射量の違いによって, すす粒子の大きさがどのようになるかということも研究の目的とした。

2. 実 験

2.1 実験装置 本実験のために試作した急速圧縮機を用いた単一噴霧燃焼装置の全体図を図1に, その全体の写真を図2にそれぞれ示す。図および写真のように圧縮空気により空気シリンダ用ピストンを駆動し, それに連結されている燃焼用シリンダのピストンを急速に動かして, 上死点位置で固定し, 高温高压になっている燃焼室の空气中に1回だけ燃料の噴射を行って, その噴霧の自発点火に続いて, 燃焼させる装置である。

図3には, 燃焼室の断面図を示す。燃焼用シリンダは内径100 mm ϕ , 最大行程長さ360 mm, 厚さ20 mmの軟鋼製で, シリンダ上部のフランジ部には燃料弁用孔およびシリンダ内圧力検出孔, 温度検出孔, 排気孔, イオン電流検出孔(今回は検出せず)など5個の孔を, シリンダ下部には, 掃気用の孔を1個設けてある。

シリンダカバーには厚さ30 mmの強化パイレックスガ

図1 急速圧縮燃焼機の全体図

図2 急速圧縮燃焼機の全体図の写真

図3 燃焼室

ラス(有効径, 70 mm ϕ)をはめこんで, 外部から燃焼状態が観察できる構造になっている。燃焼室側のピストンは外径95 mm ϕ のアルミ合金製でピストンヘッドに厚さ25 mmの強化パイレックスガラスをはめこみ, 内部からの照明も可能なようにしてある。ピストン胴部には深さ2.5 mm, 幅5 mmの溝を4個設けてあり, ここにピストンリングとして耐熱性のOリング(ゴム製, 径5 mm ϕ)を4本使用してある。

ピストンロッド端は接続金物にねじこんであり, このねじこみ量を調整することによって, 圧縮比をかえることができる機構になっている。圧縮比の調整を容易にするために, ピストンロッドに円盤状の分度器を取りつけ, ねじのピッチから, これに指示をつけて, 各圧縮比の位置が読みとれるようにしてある。

駆動用の空気シリンダは内径250 mm ϕ でピストンロッドがシリンダの前後部を貫通したものである。その一方の端は, 燃焼室側ロッドとの接続金物にねじこみ, 他方は先端にテーパ部をもったピースをねじこみ, 固定用安全装置で固縛できるようにしている。

固定用安全装置はハンドルを回すことによって, 3本のピンが動き, 空気シリンダロッド先端のピースをはさみつけ, テーパ部分で接触して固縛するようになっており, この位置がピストンの始動位置となる。

両ピストンロッドの接続金物と空気シリンダ間には, 燃焼室側のピストンを上死点で固定させるためのリンク機構(図1)を設けてある。リンク腕は幅45 mmで厚さ16 mmが1本と8 mmが2本のものを1組とし, 外径25 mm ϕ のピンによって連結され, 左右2組装備してある。リンクの腕が直線よりわずかに内側にはいりこんだときに停止するようになっている。

燃料噴射の機構はピストンロッドに取りつけられた金属板がロッドの動きによって, リミットスイッチを作動した際に燃料ポンプレバーのソレノイドが通電し, 燃料ポンプをつき, 燃料弁の開弁圧160 kg/cm²で燃料が1回だけ噴射される。その噴射時期は針弁の動きを燃料弁上部より取り出して, ひずみ計で検出した。また, 燃料噴射量の調整は燃料ポンプの行程終わりを決める調整スクリューのねじこみ量を加減することによって行われる。

なお, 装備した燃料弁は穴径1 mm ϕ の単孔ピントルノズルである。その噴霧特性として, 噴霧円すい角と噴霧の粒径分布を測定した(3.1燃料弁の噴霧特性において述べる)。

ピストンの始動位置および上死点位置は, それぞれリ

図4 計測装置の系統図

図5 空気系統図

ミットスイッチでその信号をビジグラフに記録させ、記録紙の送り速度から、圧縮時間および平均ピストン速度を求めた。シリンダ内の圧力変化はシリンダ上部のすき間部にひずみ形式の圧力検出器を入れ、同じビジグラフに記録した。シリンダ内のガス温度を検出するために、シース外径 1.6 mm ϕ (素線径 0.25 mm ϕ) の非接地型 C.A 熱電対を使用したが高応答性が遅いため不十分であった。以上の計測装置の系統図をまとめて図 4 に示す。

駆動用圧縮空気は、空気圧縮機から容量 140 l の空気槽にため、そこからフィルター、圧力調整弁、オイルを経、始動弁に至る(図 5)。始動弁はボールバルブで閉鎖状態から全開まで、ハンドルの角度でわずか 90 度であり、ほとんど瞬時に作動させることができる。始動弁とエアシリンダの間には、残圧を排除するための排出弁を設けてある。

燃焼後のすすの採取は、内径 60 mm ϕ 、長さ 300 mm の中空円筒内に上部より下部に燃焼ガスを通し、下部の出口に挿入してある濾紙(化学濾紙 5A)上に付着させる装置¹⁴⁾を用いた。

2.2 実験方法 実験の手順は次のようにして行った。駆動用空気シリンダのピストンロッドを引きもどし、固定用安全装置でロッド先端のピースをはきみつけ、テーパー部が接触する位置まで押し込んで、ピストンの始動位置におく、その行程は 360 mm とした。燃焼室の掃気コックを開けて、排気弁から真空ポンプで吸気して、内部の換気を十分行った後、排気弁および掃気コックを閉じる。従って、圧縮始めのシリンダ内の空気条件は、

図6 空気槽の残圧と平均ピストン速度との関係

大気圧、室温である。

駆動用圧縮空気は空気槽で 14.5~16.0 kg/cm² に保つ。図 6 に示すように、この圧力範囲では平均ピストン速度にはほとんど影響を及ぼさない。また、圧力調整弁は 10 kg/cm² まで調整可能であるが、実験の結果 5 kg/cm² で約 3.1 m/sec. の平均ピストン速度が得られ、良好な燃焼が行われたので、今回は 5 kg/cm² の圧縮空気を使用した。

燃料ポンプのつき始め圧力を 20 kg/cm² として、レバーを上を持ち上げた状態で実験を行った。使用燃料は市販の灯油と軽油の 2 種類とした。

固定用安全装置の固縛を解除した後、始動弁を瞬時に開けるとピストンが急速圧縮を開始する。ピストンが上死点に達する途中で燃料ポンプレバーのソレノイドが作動し、燃料弁が開き、燃料が噴射される。燃料ポンプ作動のタイミングは、噴射おくれと点火おくれを考慮して始動後、100 mm の位置でリミットスイッチが作動するように調整した。

ピストンが上死点に達してリンク機構により固定され作動を停止する。シリンダ内の圧力変化を加えたこれらのビジグラフの記録例を図 7 に示す。ピストンの慣性力の影響が大きいため、圧縮比 19 で約 33.3 kg/cm² の圧縮圧が得られた。

すすの採取方法は、燃焼終了後、排気弁を開いて、排気ガス採取装置に導き、排圧が低下後、真空ポンプで約 3 分間ガスを吸引して、濾紙上に採取した。また、すす粒子の大きさと形を電子顕微鏡で観察するために、同様に濾紙上に銅製シートメッシュをおいて、その微小孔にすすを付着させ、その試料とした。なお、急速に圧縮

図7 計測例

された燃焼室内の単一燃料噴霧の燃焼状態を 16 mm 高速度カメラ (HYCAM) で撮影した。

3. 実験結果および考察

3.1 燃料弁の噴霧特性 燃料弁の選定に当ってはシリンダ容積から適当な噴射量の範囲の単孔ピントルノズルのものを採用したが、この燃料弁の噴霧特性を求めておく必要がある。ここでは分散度を示す噴霧円すい

図8 噴霧液滴のすす膜上のこん跡の写真

図9 噴霧の粒径分布

角と霧化状態を示す噴霧の粒径分布を求めた。

噴霧円すい角は噴霧状態を写真撮影し、写真上で計測して 16° を得た。

噴霧の粒径分布の測定には、こん跡法¹⁶⁾を採用した。ガラス板上にすす膜を附着させて、これに噴霧液滴を受けて、そのこん跡の大きさから粒径を求めた。その写真例を図8に示す。実験は燃料の噴射量をパラメータとして大気圧下で行った。粒径の計測は各噴射量ごとに 300~400 点を取り、図9の粒径分布曲線を得た。図からも明らかなように、20~25 μm の粒径の液滴のひん度が最も高く、噴射量を増すにつれて、粒径の大きいところのひん度が上がっている。今回、実験した噴射量の範囲は 0.02~0.18 ml で、この範囲では、ほとんどの粒径が 70 μm 以下となっていた。

3.2 単一噴霧の点火おくれ 今回の実験のように、噴霧の圧縮着火およびその燃焼において、点火おくれは点火後の燃焼に大きな影響をおよぼす因子の一つであるから調べておく必要がある。

3.2.1 圧縮比の影響 燃焼室の圧縮比をかえて、点火おくれを測定した結果を図10に示す。この点火おくれは、ビジグラフの記録紙上で、燃料弁が開き始めたときから圧力線図が急激に上昇し始めるまでの時間をとったものである(図7)。図10からもわかるように、圧縮比を上げると点火おくれは短くなっている。これは圧縮比を上げるにより、燃料の噴射前の燃焼室内の空気温度が上昇するためによるものであろう。圧縮前の空気温度を 20℃ としたときの圧縮圧から計算した圧縮空気温度は、圧縮比 15 のとき約 380℃、圧縮比 19 のとき約 415℃ となっている。点火おくれには、かなりの変動がみられるが、これは点火おくれの特性上やむを得ないものである¹⁶⁾。

図10 圧縮比と点火おくれの関係

3.2.2 噴射量の影響 燃料油として軽油を用いて、1回の噴射量をかえた場合の点火おくれについて図11に示す。この実験における噴射量の範囲においては、噴射量を増すと点火おくれは少し減少する傾向が得られた。これは噴射量が増加すると、その気化潜熱によって燃焼室内の空気温度の低下が大きくなるために点火おくれを長くする傾向と噴射量を多くすると噴霧液滴間の相互干渉が多くなって、混合気の形成が速められることにより点火おくれが短くなるという二つの相反する影響が同時に起こった結果であろう¹⁶⁾。後者の影響が少し大きいようである。

図11 噴射量と点火おくれの関係

3.3 高速度カメラによる噴霧火炎の直接写真

急速に圧縮された燃焼室内に1回だけ噴射された噴霧の燃焼過程をシリンダカバーのガラスを通して高速度カメラで直接写真に撮影した。撮影はシリンダヘッド前に、反射鏡を置いてこれに反射させた影像を急速圧縮燃焼機側から高速度カメラで撮った。図12はその一例で毎秒3500コマの場合である。写真のように、火炎核が噴霧中の上部と中央部の2か所(この例では)に生じ、約1ms

後には幅広く噴霧形状の火炎に広がっている。その後、下部から跳返った噴霧が燃焼し、燃焼室の下半分に広がり、その間も続いている噴霧に火炎が生じている。次第に、火炎が小さくなり、噴霧が終わったあとも燃焼室下部に残っている液滴群が燃えつづけ、次第に消失していく。火炎の広がりも速くて大きく、燃焼時間も相当に長かった。本実験では、点火おくれを図7の記録例で示すように、燃料噴射弁が開き始めてから燃焼室内の圧力が急激に立ち上がるまでとして計測したが、厳密には噴射弁が開いてから火炎核が発生するまでが点火おくれということになろう。今回の撮影法からは、噴霧の開始が見いだせなかったが、火炎核の発生が起こったあとで急激な圧力上昇が起こることを考慮すれば、実際の点火おくれはもっと短いものとなることが推定される。ちなみに、この写真例の場合の点火おくれは7msであった。

3.4 すすおよびすす粒子の大きさの計測

3.4.1 光学顕微鏡による方法 単一噴霧の燃焼後の排気ガス中に含まれているすすを濾紙上に採取して、光学顕微鏡で400倍に撮影したところ、個々のすすはひも状に長くつながったものは少なく、それぞれ不定形の粒状に分散されており、その一つのすすの大きさは相当に小さいものとなっていた。

3.4.2 電子顕微鏡による方法 燃焼室の圧縮比および噴射量をかえて、シートメッシュ上に採取したすすを電子顕微鏡で12,300倍の倍率に拡大したすす粒子の写真を図13(a~g)に示す。また、同じ燃料(軽油)を用いて、芯火炎から同様に採取したすす粒子の写真(h)も示す。

光学顕微鏡で観察される一つのすすを電子顕微鏡で拡大してみると写真のように、一つのすすは球に近い形をした単一の粒子が立体的にというか、テトラポット状につながって構成されている様子がわかった。これらの写真を拡大して、それぞれ100~200個の単一粒子の大きさを測定した結果を図14と図15とに粒径分布曲線として示す。

図14は燃料噴射量をかえた場合のすすの単一粒子の粒径分布曲線である。噴射量をかえると、全体の燃空比がかわるので、すすの生成量も変化するであろうが、図

図12 高速度カメラによる噴霧火炎の直接写真の例(燃料: 軽油, 3500 コマ/sec.)

図13 すず粒子の電子顕微鏡写真(燃料:軽油, ϵ :圧縮比, FO :噴射量)

からも明らかなように, 粒径分布は噴射量に影響されないことがわかった。

図15は圧縮比を $\epsilon=15\sim19$ までかえた場合のすず粒子の分布曲線である。図のように, 圧縮比をかえても, すずの単一粒子の粒径分布はほとんどかわらないことがわかった。また, 芯火炎から採取したすずもほぼ同じ傾向となった。この図からもわかるように, 単一粒子の粒径は $200\sim350\text{Å}$ のものが全体の約85%をしめた正規分布に近い曲線となっており, 約 300Å の大きさが最大ひん度となった。

3.4.3 X線ディフラクトメータによるすずの単一粒子内の結晶子の大きさの計測¹⁷⁾ すずの単一粒子を形成している粒子内の結晶子の大きさを求める方法として, 粉末X線回折法を用いた。つまり, 回折線の広がりより, 結晶子の大きさを求めるのに, P.Scherrer¹⁸⁾によって提案された次式を用いて算出した。

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (1)$$

ここで, D : C 軸方向の結晶子の大きさ(Å), k :形状因子($=0.9$), λ :X線の波長($\text{CuK}\alpha_1=1.5405\text{Å}$), β :純粋に結晶子の大きさに基づく回折線の広がり(半幅), θ :回折角をそれぞれ示す。

図14 噴射量をかえた場合のすずの単一粒子の粒径分布

図15 圧縮比をかえた場合のすずの単一粒子の粒径分布

X線ディフラクトメータによる回折には相当量のすす量を必要とするが、急速圧縮燃焼機を用いた単一噴霧の燃焼における、今回の実験範囲ではその量を採取するのが極めて困難なため、3.4.2の結果を引用して、同じ軽油を燃料とした芯火炎からのすすを濾紙上に採取して、X線ディフラクトメータ用の試料とした。その回折図を図16に示す。横軸に回折角、縦軸にX線の回折強度をとってある。この図において、回折線の強度の分布曲線より見かけ上の回折線幅(半幅幅 B_0)は、回折角(2θ) 24.2° において、 B_0 は 5.88° となる。

図17より、その位置における K_{α_1} と K_{α_2} の2重線の間隔 Δ を読みとり、 $\Delta=0.04^\circ$ を得る。また、標準試料として石英($\alpha\text{-SiO}_2$)の回折線を計測(図18)し、それぞれの回折線幅より得た補正用の直線(図19)から、すす粒子の回折角と同位置における回折線幅 b_0 は、 $b_0=0.1683^\circ$ となる。従って、 $\Delta/B_0=0.0068$ 、 $\Delta/b_0=0.2377$ となり、図20の K_{α_1} と K_{α_2} の2重線による回折線の広がりに対する補正曲線より、 $B/B_0=1.000$ 、 $b/b_0=0.935$ が求まり、すすおよび石英の回折線幅 B および b は、 $B=5.880^\circ$ 、 $b=0.157^\circ$ となる。

純粋な結晶子の大きさに基づくところの幅 B を知るために、図21のX線ディフラクトメータにおける b に対

図16 すす粒子のX線ディフラクトメータによる回折線図

図17 K_{α_1} と K_{α_2} の2重線の間隔¹⁹⁾

図18 石英($\alpha\text{-SiO}_2$)のX線回折図

図19 石英($\alpha\text{-SiO}_2$)のX線回折幅

図20 K_{α_1} と K_{α_2} の2重線による回折線の広がりに対する補正曲線

する補正曲線を用いると、 $b/B=0.0268$ から、 $\beta/B=0.99$ 、 $\beta=5.821^\circ=0.1016$ rad. が得られる。これらを式(1)に代入して、すす粒子のC軸方向の結晶子の大きさは $13.96 \text{ \AA}$ となる。この値は、電子顕微鏡で観察されるすすの単一粒子のうち、その大多数をしめるものの大きさの約15～25分の1程度である。

赤松ら²⁰⁾によって、カーボンブラックの加熱処理による黒鉛化過程における結晶子の大きさの変化について調

図 21 X線ディフракトメータにおける b に対する β の補正曲線¹⁹⁾

べられており、約1500℃位の処理温度までは、その大きさにほとんど影響を与えず、13.5Åであるとしている。今回、用いた芯火炎の最高温度は1500℃以下であったので、前述の値は妥当な値といえる。

3.4.4 X線小角散乱法によるす粒子の粒径分布の計測 X線ディフракトメータによる小角散乱の回折線図(図22)よりギニエプロット(Guinier Plot)法¹⁹⁾により、X線の実測散乱強度 I と回折角 (2θ) の関係を $\log I - (2\theta)^2$ 曲線にプロットし、その曲線の最下端に接線をひいて、そのこう配 α_1 から慣性半径 R_{01} を求めると、 R_{01} は最小径となる。

$$R_{01} = \sqrt{\frac{3\lambda^2}{4\pi^2} (-\alpha_1)} \quad (2)$$

図 23-(a) ギニエプロット(1)

図 22 X線小角散乱の回折線図

次に、この接線に相当する強度を最初の曲線から引去って得た曲線にまた接線をひいて、第2の成分の径 R_{02} を得る。この操作を繰返すことにより、順次 R_{01} , R_{02} , R_{03} , ... を得る。

更に、各接線と縦軸との交点 K_1 , K_2 , K_3 , ... の比から、それぞれの粒径の重量比 W_{01} , W_{02} , W_{03} , ... を求める。

$$W_{01} = \frac{K_1}{R_{01}^2} \quad (3)$$

また、粒子の形状を球(半径 R_1)とすると、

$$R_1 = \sqrt{\frac{5}{3}} R_{01} \quad (4)$$

となる。

試料は3.4.3に用いたものと同じす粒子とした。小角散乱の回折線図およびバックグラウンドを差し引いたものを図23-(a)のように、ギニエプロット法によって①

図 23-(e) ギニエプロット(5)

の曲線を得る。この①の曲線の最下端に接線②を引き、 K_1 を求める。次に曲線①から接線②の強度を引去った値から曲線③および接線④、 K_2 を得る。順次、図 23-(a)の操作を図 23-(e)まで繰返し、直線⑥を得る。 $K_1 \sim K_6$ の直線の勾配 $\alpha_1 \sim \alpha_6$ から慣性半径 $R_{01} \sim R_{06}$ および球と仮定した場合の半径 $R_1 \sim R_6$ 、重量比 $W_{01} \sim W_{06}$ を算出する。

これらの結果から、重量比の最も大きい W_{06} を 100とした粒径分布の曲線を図 24 に示す。図からも明らかなように慣性半径 167.3 Å のものを 100% (重量) とすると、径が小さくなるにつれて、量が少なくなり、非常に小さい径のものが少し増えている。このように小さいものがどのような形(状態)で存在しているのか、極めて興味のあるところであるが今回は調べるまでに至っていない。これらの粒子を球とした場合には、最大重量比をとるものが半径で 216.0 Å (直径で 432.0 Å) となり、3.4.2 の電子顕微鏡写真から得られた単一粒子の直径は、約 300 Å のものの類が最も大きくなっており、これを最大重量比をもつ直径に直し、電子顕微鏡写真において、粒子が重なって、黒く観察される部分の粒径(図 13 の写真に示すように、他の部分より大きく観察できるが、径は求められない)を求めて加えたとしても、両者は相似かよった傾向を示すことになるであろう。

図 24 小角散乱法による慣性半径と重量比との関係

4. 結 論

以上の実験結果および考察から次のようなことがわかった。

(1) 燃焼室の圧縮比を上げるにつれ、また、燃料の噴射量を増すに従って、この実験における範囲においては、点火おくれは少し減少する。

(2) 単一噴霧の燃焼における火炎核の発生は、噴霧期間中の初期に起こり、やがて噴霧形状の火炎となる。また、火炎核の発生場所は一定ではないが、燃焼室の壁面から離れたところで発生している。

(3) 電子顕微鏡写真から観察されるすすの単一粒子の粒径分布は、同一燃料を使用した場合、圧縮比および噴射量をかえても、差はなく同じような傾向を示した。ま

た、芯火炎から採取したすすについても同様であり、200 ~ 350 Å のものが全体の約 85% をしめた正規分布に近い形となり、約 300 Å の大きさが最大ひん度となっている。

(4) すすを構成している単一粒子内の C 軸方向の結晶子の大きさは、13.96 Å となっていたが、この値は電子顕微鏡写真から観察される単一粒子のうち、そのほとんどをしめている粒子の大きさの約 15 ~ 25 分の 1 程度に相当する。

(5) X 線小角散乱法によって、すすの単一粒子の粒径分布を求めたところ、慣性半径で 167.3 Å (粒子を球とした場合の直径は 432 Å) のものが重量比で最大値をとっている。このことは電子顕微鏡写真から求められる粒径分布と同じ傾向を示している。

これらのことから、一つのすすを構成している単一粒子の大きさや粒径分布および単一粒子を形成している結晶子の大きさを求めることは、すす粒子の生成の過程や機構を明らかにする上からも、X 線ディフラクトメータによる手法は極めて精度が高く、有効な方法であることがわかった。

終わりに、本実験の電子顕微鏡写真の撮影については本学の理化学教室の安中正一教授の御指導を得ました。また、X 線ディフラクトメータによる回折線図の解析は理学電機(株)の中山正雄氏の御援助を受けた。それぞれの方々に厚くお礼申し上げる。

文 献

- 1) Gadon, A. G. and Wolfhard, H. G., "Flames" third edition (1970).
- 2) Macfarlane, J. J., Combustion and Flame, 6, 56 (1962).
- 3) Porter, G., 4th Symposium on Combustion, 248 (1953).
- 4) Street, J. C. and Thomas, A., Fuel, 34, 41 (1955).
- 5) 上利・岡田・内海, 日本船舶機関学会誌, 14, 1 (1979).
- 6) 岡田・佐藤, 第 16 回燃焼シンポジウム前刷集 (1978, 12).
- 7) Tizard, H. T. and Pye, D. R., Phil. Mag., 6, 44 (1922), 7, 1 (1926).
- 8) Rögner, H., Z. Elektrochem., 53, 389 (1949).
- 9) Taylor, C. F. and Taylor, Z. S. etc., SAE Quart. Trans. 4, 232 (1950).
- 10) 熊谷, "燃焼", 岩波全書 (1976, 12).
- 11) 宮武・岡島・山口, 第 17 回燃焼シンポジウム前刷集 (1979, 12).
- 12) 小笠原・徳永ら, 内燃機関, 15, 180 (1976).
- 13) Wong, V. W., Rife, J. M. and Martin, K. M., SAE Paper 780638 (1978).
- 14) 岡田, 日本船舶機関学会誌, 12, 12 (1977).
- 15) 倉林, 内燃機関, 15, 183 (1976).
- 16) 青木・岡田・内海, 日本船舶機関学会誌, 13, 8 (1978).
- 17) Watson, J. H. L., J. Appl. Phys., 17, 121 (1946).
- 18) Scherrer, P., Göttinger Nachrichten, 2, 2g (1918).
- 19) 日本化学会編, 実験化学講座 4, 丸善 (1956).
- 20) Akamatsu, H. etc., Bull. Chem. Soc. Japan, 29, 574 (1956).

〔質 疑 応 答〕

質問者 北海道工業大学 藤原康博

〔質問〕 次の3点について質問させていただきます。

1. 電顕の観察倍率は12,300倍とのことですが、電顕の加速電圧は何kVでしょうか。また粒径を測定する場合、何倍に拡大して測定したのでしょうか。

2. 電顕写真から粒径分布を求める場合、試料の分散が悪ければ、正確な粒径分布は得られないと考えられます。試料の分散状態は、試料の採取方法により異なると思いますが、電顕試料の採取方法についてご教示下さい。

3. 圧縮比、燃料噴射量は粒径分布に影響をおよぼさないとの事ですが、燃料性状は粒径分布にどのような影響をおよぼすのでしょうか。

〔回答〕 1. すず粒子の観察に用いた電子顕微鏡の加速電圧は60kVである。また、すず粒子の粒径は電子顕微鏡で撮影した写真のネガを約6.7倍に拡大して測定した。

2. すず粒子の電子顕微鏡写真撮影用の試料の採取は次のように行った^{5,6)}。

(1) 急速圧縮機による単一噴霧の燃焼後、直ちに、徐々に燃焼室内の燃焼ガスを排出し、表面にあらかじめ銅製シートメッシュ(150#)をつけてある化学炉紙(5A)を挿入した採取装置内を通し、すずをシートメッシュ上に採取した。

(2) シートメッシュ上に採取したすずをそのままの状態、つまりカーボン蒸着やコロジオン膜などによる保護および分散剤による前処理は行わずに電子顕微鏡写真に撮影した。

(3) すず粒子が平面に、かつ均一に分散している状態が最も望ましいが、すず粒子自体の特性上、前処理しても困難であり、処理剤の影響も逆に考えられるので、できるだけ粒子が重なっていない薄い場所に注目して、撮影し、写真に拡大するように心がけた。

3. 今回の実験では、ほとんどの場合に1種類の軽油(一部灯油も使用)しか用いておりませんので、燃料油の性状によるすず粒子の粒径分布におよぼす影響についてはわかりません。

質問者 広島大学 広安博之

〔質問〕 1. 噴射量と着火おくれの関係を調べられているが、図9から噴射量を多くすると、着火おくれが短くなるとは判断しがたい。一般に、ある程度温度が高くなると、噴射量の影響はないと考えられる^{1,2)}。

2. すず粒子の生成過程や機構を明らかにする手段として、X線回折法を用いることが有効な方法であることはわかりました。そして、それを行っておられることに敬意を表します。しかし、なぜ結晶子の大きさに注目されたのか、炭素-炭素原子間距離に注目すると何か不都合なことがありますか。結晶子の大きさがわかって、何がわかるのか御教示下さい。原子間距離の測定をした方

が、生成機構がわかるのではないかと思います。

3. すず粒子の大きさが、条件をかえても、また芯火炎の場合も同じだとされていますが、写真5からみると(計測してなくて、ぱっとみて)大きさが変化しているようにみうけられますが、いかがでしょう。

文 献

- 1) T.W.Biddulph and W-T.Lyn "Engine Starting and Ignition Delay", Proc. Instn. Mech. Engrs. 1966-67, Vol.181, pt.2A, No.1(1966).
- 2) 居倉・角田・広安, "定容燃焼における燃料噴霧の着火おくれ", 日本機械学会論文集41巻, 345号(昭50-5)。

〔回答〕 1. 燃料噴射量と点火おくれ(または着火おくれ)との関係は、空気温度と噴射量および噴射率などに影響されるようである。今回の実験条件は試作した急速圧縮機の特長上、定容容器を用いた実験と比較して、空気圧(圧縮圧)は高いが空気温度は低く、噴射量も少ない(文献1)の図12と図13)ので、5ページの8~9行のような理由^{付1)}によって、この実験における範囲では図9のような結果が得られたと考える。もう少し高温の空気温度が得られれば御指摘のようになろうと思われる。なお、実験点が少ないことも考慮して「この実験における噴射量の範囲においては、噴射量を増すと点火おくれは少し減少する傾向が得られた」と付記する。

2. 先の報告⁶⁾において、すずを試料にして電子線による回折図を観察したところ、そのリングの数と大きさおよび濃淡の傾向から、その微細構造は平面はグラファイトと同じように格子状になっており、縦方向にはその面がずれていたり不ぞろいになっており、単結晶のように正確な構造になっていないことがわかった。そこで、単一のすず粒子を形成していると考えられる粒子内の結晶子(最小の単位)の大きさを求め、その結晶子が核となって生長し^{付2)}、単一のすず粒子(電子顕微鏡で観察される球状の一つの粒子)ができるのではないかと考え、それを推定する方法としてX線回折法を試みた。御指摘のように、原子間距離を求めるまでに考えがおよびませんでした。

3. 写真5のように、すずは単一のすず粒子が立体的につながって構成されていることから、平面に、均一に分散させられないので、電子顕微鏡写真に撮ってみると、部分的には焦点が合わないことや重なっている部分などがあり、写真上ではかわっているように観察されるが、輪郭の鮮明な粒子の長径と短径の平均直径を求めた結果が図10と図11である。

文 献

- 付1) 酒井・小竹, "燃料噴霧の点火おくれ" 機械の研究, 10, 3(1958).
- 付2) Street, J.C. and Thomas, A., Fuel, 34, 4(1955).

質問者 三重大学 藤本 元

〔質問〕 近頃非常に問題になっているディーゼル機関

のすすに関し、急速圧縮機による基礎的な実験を試みられた事に、敬意を表します。下記の各項につき御教示頂ければと思います。

(1) ピストンが上死点に達したときの燃焼室の厚みはどれくらいでしょうか。噴霧円錐角 16 度のとき、噴霧が燃焼室側面のガラスに触れ、すす生成を助長する事が考えられます¹⁾。貴研究の高速度写真のこの点に関する所見は如何でしょうか。

(2) 供試燃料の灯油、軽油の比重、組成(C, Hなど)、粘度、セタン価などの性状をお示し下さい。

(3) p.3, 144で、噴射時期は「噴射遅れ」と「着火遅れ(貴論文の点火遅れ)」を考慮したとありますが、噴射遅れの定義とそのオーダをお示し下さい。また測定しておられるならば、噴射率または噴射圧の経過をお示し下さい。

(4) こゝで噴霧の液滴径を測定する場合、採取位置によっては滴径が小になります。採取位置をお示し下さい。

(5) ディーゼル噴霧の燃焼を取り扱う場合、燃焼室の温度、圧力、酸素濃度(いずれも噴射開始時の)が重要な要因になります。図8、図9から判断すると、室温また噴射時期のばらつきの影響が表われているように思われますので、貴研究のピストン移動開始と噴射時期の関係の再現性をできればお示し下さい。

(6) 従来の研究では、着火遅れは噴射開始時の燃焼室の温度、圧力、酸素濃度で整理されます^{1~4)}。図8では着火遅れを圧縮比に対して整理しておられますが、p.4, 146に述べられているように、温度が約380~415℃で変化しております。この温度の差は、着火遅れ、火炎の状態にかなり大きな影響をおよぼすと考えられます^{2,5)}。それ故図8は、噴射開始時の圧力、および温度を補助変数として書き換えられたら如何でしょうか。従って結論(1)も同様に考える可きであると思われま

(7) 図9も図8と同様な事が考えられます。また図9の実験点から右上りの直線を得る事は、冒険に過ぎましょ

う。なお図9の説明として「気化潜熱による燃焼室内温度の低下と液滴間の相互干渉」を挙げておられますが、従来の研究では噴射率の経過が同じ場合、噴射量と総空燃比(充てん空気重量と噴射量の比)は着火遅れおよび燃焼過程にほとんど影響をおよぼさないとされております^{2,6)}。何故ならば、貴研究では噴射量の変化は噴射終了時期を変える方法によったとありますので、矢張り噴射率の経過は噴射量によらず同じの筈であり、着火については噴射後の温度履歴によるからです。

(8) p.3, 136の「良好な燃焼」とは、どのような状態をいうのでしょうか。

(9) 写真3において、噴射終了はどこになるのでしょうか。また写真3の噴射開始時の充てんガスの温度、圧力等の諸条件をお示し下さい。

(10) 貴研究では、例えば p.5, 137~147 のように着

火遅れを二重の意味に使われていますが、これは、従来の研究の詳細な定義によられるべきと思われます^{2,4)}。なお質問者の研究では^{2,7)}、火炎発生後、燃焼による熱量が、蒸発による噴霧の吸収熱量が大になるところが、圧力上昇遅れになり、また、火炎発生後の火炎成長速度は充てんガスの酸素濃度のみによるので、p.5, 141~142のように、実際の着火遅れが短くなるということは起らないと思われま

(11) 結論(2)の前半は、上述の各項で再三指摘しました様に、噴射開始時の温度、圧力により火炎発生の時刻が決定されますので、表現が適当でないと思われま

(12) 芯火炎とは具体的には、どのような方法で得られたのでしょうか。

(13) すすの単一粒子の粒径は、球と仮定されたのでしょうか。

(14) 図10の説明で全体の燃空比の変化はすすの生成量を変化させるとありますが、(7)にも記しましたように、ディーゼル噴霧の燃焼過程には全体の燃空比ではなく、噴霧内へ流入する空気量、また噴霧内の時間的、場所的な燃空比および粒子数、また周囲の空気および火炎に噴霧が囲まれたことによる、燃料との熱交換の過程が影響します。従って図10では、噴射量に変化しても噴射率の経過は変らない為、噴射量のすす粒径分布に対する影響が殆ど無いのではないのでしょうか。

(15) 図11で、圧縮比のすす粒径分布にたいする影響がほとんど無い事の理由をお示し下さい。

尚、「点火遅れ」の語は、ガソリン機関に使われることが多く、ディーゼル燃焼の場合には「着火遅れ」「発火遅れ」の語が用いられる事が最近では多い様です。

文 献

- 1) 貴論文の参考文献12)。
- 2) 藤本・佐藤、舶機誌、12-12(昭52-12)、873。
- 3) 居倉・角田・広安、機論、41-345(昭50-5)、1559。
- 4) 稲田・三輪・池上、機論、794-6(昭54-3)、74。
- 5) 藤本・佐藤、舶機誌、12-7(昭52-7)、504。
- 6) Lyn, W-T., Valdmanis, E., PIME, 181, pt. 2A-1 (1966-67), 34。
- 7) 藤本・佐藤ほか、舶機誌、13-12(昭53-12)、896。

〔回答〕 本研究は、表題および「まえがき」にもありますように、急速圧縮機による1回だけの噴霧燃焼において生成したすすのうち、一つのすす(肉眼で観察できる程度の大きさ)を構成している球形に近いすす粒子の粒径分布およびその粒子を形成している結晶子の大きさなどを計測することを主目的にしたので、質問者(文献2), 5), 7))のように「噴霧燃焼」に関して(質問事項のほとんど)深く解析するに至っていないことを御承知下さい。

(1) 圧縮比19のときでトップクリアランスは20mmである。噴霧は確かにガラスに触れます。高速度写真上からは文献12)の図6の(a)のような黒い部分は見出し

せませんが、何回も実験を繰返すと肉眼でみてガラス面に少し付着していた。

(2) 今回は実験の目的からして燃料の性状は特に求めている。燃料油は市販の軽油(ほとんどの場合)と灯油である。

(3) 噴射おくれは燃料ポンプレバー作動のリミットスイッチがONになったときから燃料弁が開き始めるまでの時間とした。リミットスイッチの位置は、シリンダ内ガス圧力線図を見ながら理想的な位置になるように調整し固定した。噴射率と噴射圧の経過については計測していない。ただ、燃料ポンプ作動前の高圧管内の圧力は 20 kg/cm^2 一定として実験を行い、噴射弁は 160 kg/cm^2 で噴射を開始する。

(4) 今回の測定は急速圧縮機の燃焼室内で行ったものではなく、燃料弁を外に取り出して、逆にして大気中に噴霧し、浮遊しているものを採取したものである。この燃料弁を使用するについて平均的な粒径を求めてみたものである。

(5) 点火時期の計測については実験を集中して行いましたので室温のばらつきは $1\sim 2^\circ\text{C}$ 以内となっています。また、噴射時期のばらつきについては固定した装置で行っているのではほとんどないと思われます。ピストン移動開始は手で始動弁を開けることで行われるが、図6に示したように平均ピストン速度にあまり大きなばらつきがないことから、これも大きな影響がないと判断した。データが少し不足ではあったと思いますが、点火おくれそのものが霧化、加熱、蒸発、拡散、化学反応などの種々の複雑な現象が短時間の間に複合的に起こる現象ですから、実験条件をいかに厳密に整えようともある傾向をもったばらつきを生じます^{付1)}。今回は、本研究の主目的でなかったため、傾向がわかる程度でおさめました。

(6) 今回は急速圧縮機の性能という観点から圧縮始めの条件を一定として、圧縮比で整理した^{付2)}。

(7) (5)参照。燃料の噴射量についての影響については「酒井ら：燃料噴霧の点火おくれ、機械の研究、第10巻、第3号、(1958)」と同じ傾向を示したことから引用したものであり、噴射率については計測していない。

(8) 燃焼室内の圧力波形の変化と燃焼状態を肉眼でみて、ということです。

(9) ピストンの移動開始(記録紙の送り)と高速度カメラの送りとを連動して撮影していないので、高速度写真上からは噴射の開始も終了も見い出せていない。噴射開始から終了までの時間は点火おくれよりかなり長くなっていることから、噴射期間中に火炎核の発生することが容易にわかります。噴射量 0.10 ml 、噴射開始時の圧力は圧力線図上から約 10 kg/cm^2 、温度については計測していないので正確にはわかりません。

(10) 点火おくれについては、いろいろの定義があると思いますが、今回は図5の方法で行ったもので実験設

備などから違う取り方があっても良いのではないのでしょうか。また、急激な圧力上昇は火炎核が発生した後、爆発的な燃焼が起こった際に起こるであろうことから考慮したものです。

(11) 図5で示すように燃料噴射期間中に急激な圧力上昇が起こることから、今回のような急速圧縮装置における実験条件ではいえることです。

(12) 細糸を編んで作った約 $3 \text{ mm}\phi$ の束を芯とした火炎を用いた。

(13) 長径と短径から算術平均して、球と仮定した。

(14) 全体の燃空比をかえても、御指摘のような項目もかわり、それぞれにすすの生成量は影響されると考えた。ただ、冒頭にも述べたように、今回求めた粒径分布は、すすの大きさの分布を求めたものでなく、それを構成している単一粒子の大きさの分布を調べたもので、生成量については求めている。なお、御指摘の項目によって、すす粒子どうしのつながり方(凝集)がかわるのではないかと考えている。

(15) 今回の実験範囲では、圧力や温度に大きな差がないことから、(14)と同じように考えている。ディーゼル機関の燃焼の範囲を外れて極端な条件での燃焼におけるすすについて求めると、単一のすす粒子や結晶子の大きさにも影響されるのではないかと推定している。

なお、従来ディーゼル燃焼の場合でも「点火おくれ」、「着火おくれ」、「発火おくれ」など、人によっていろいろの使われ方をしているようです。今回は「点火おくれ」と統一して用いた。

文 献

- 付1) 熊谷、機械の研究、4、2(1952)。
付2) 酒井、機械の研究、12、4(1960)。

質問者 川崎重工 東 忠則

〔質問〕 大変めんどろうな実験と思いますが、根気よく実施されて貴重なデータを提供されたことに敬意を表します。

1. 圧縮比(ϵ)と着火遅れ(τ)について、

(1) 実験結果では ϵ が大きくなると、マクロにみてたしかに τ は小さくなっている。同時に ϵ が大きいと τ のばらつきが大きくなっている。実際の面からは、 ϵ が大きくなると τ のばらつきが大きくなるということは、high ϵ のエンジンでは運転中の最高圧力 p_{max} のばらつきが大きくなることを意味するので、困った現象である。 ϵ を大きくすると τ のばらつきが大きくなる原因についてお気づきの点があれば御教示願いたい。

(2) 実験がどのような時間間隔で行われたかということに関連するが、かりに短い時間間隔で行われたとすれば、実験回数が積み重ねられていくにつれて、燃焼室部材の温度が高くなり着火しやすくなることが考えられる。このような影響は ϵ が高くなるほど顕著であろうと思われる。 τ のばらつきにこのような要因が含まれ

ていることは考えられないか。

2. すすの粒径分布について(図10), 実験では燃料噴射量の範囲が0.07~0.14 ml, 空燃比 λ で2倍に変化している。

λ が変化してもすすの粒度分布には変化がなかったということであったが, これは λ が十分大きい範囲で変化しているため, 燃焼にあまり変化がなかった結果とは考えられないか, λ を変化させたときのすすの量の変化はどうであったか。若し計測されたのであれば御教示願いたい。

〔回答〕 1. (1) 燃料噴霧の点火おくれは相当にばらつく現象であるが¹⁰⁾, 圧縮比をかえた場合の各圧縮比におけるばらつきの程度を比較することを目的とした実験をしていないので, 圧縮比を高くするとばらつきが大きくなっているのか判定し難い。既報^{付1)}のように定容燃焼装置において, 同一実験条件で50~100点位の計測値を統計的に処理すればばらつきの比較はできるであろうが, 今回の急速圧縮燃焼装置においては困難であった。

ただ, 圧縮比を大きくすると, 燃料噴射前の急速に圧縮された燃焼室内の空気温度と圧力は上昇するので, 今回の実験条件の温度, 圧力の範囲では, 空気の粘性係数は大きくなり, 熱伝導率は小さくなる。従って, 燃焼室内の空気温度が一様になりにくいので, 噴霧の点火おく

れのばらつきは大きくなると推定される。また, 装置の特性として急速圧縮による振動の影響も考えられる。

(2) 実験方法の項にも述べてあるように, 1回(点)の計測には相当に手間のかかるものであり, 危険をともなうので慎重に実験を行った。多いときに1時間あたり1~2点である。また, 1回の計測後, ピストンを始動位置にして, シリンダ下部の掃気コックを開いて真空ポンプで排気弁から新気(室温)を吸気し, 燃焼室内の換気を十分に行ったので, 燃焼室部材の昇温による影響はないといえる。あるとすれば室温の変化による初期温度の変化による影響がばらつきに含まれるであろう。

2. 同じ温度, 圧力の条件下では, 1回の噴霧の燃焼によって生じるすすの量は空燃比によってかわると考えられるので, そのすす重量を測定すべく試みたが, 予想した以上に生成すす量が少なく, 微小直示天秤で計測できなかった。また, すすを構成している単一のすす粒子の粒径分布は今回の実験範囲位ではあまりかわらず, その集り方がかわっているようである。

文 献

- 付1) 青木・岡田・内海, 日本舶用機関学会誌, Vol.13, No. 8(1971, 8)。