ディーゼル機関からのすす濃度の自動測定器の開発*

西 田 修 身** 藤 田 浩 嗣**
原 野 亘*** 岡 本 卓 也**
足 立 裕 一**** 長 瀬 要*****

Research Development of Automatic Measuring Instrument for Soot Concentration from Diesel Engines

By Osami Nishida, Hirotsugu Fujita, Wataru Harano, Takuya Okamoto, Yuuichi Adachi, Kaname Nagase

Key Words

Soot Mass Concentration, Optical Methods, G. Mie's theory, Diesel Engine, Air pollution

Abstract

The control of soot emission from the diesel engine have been one of the important subjects because the soot plays an important role in relation to air pollution.

The measuring of soot concentration on real time is not well established. Considerable understanding of soot concentration have been achieved by the measurements of mass concentration of soot from diesel engines by means of probe sampling methods (JIS type etc.). Developments of the optical measuring system, in order to get a more detailed understanding of soot concentration in exhaust tube on real time, come up as an important problem.

The form of soot particles in the exhaust tube seems to be monodispersive and spherical or clusterlike, such as long chain polymer molecules. It assume that the form and number density of soot particles become a state of volume mean diameter.

This system have been made using the laser-light scattering and attenuation techniques by the G. Mie's theory to make clear the diameter and number density of soot particles. A50 (mW) helium-neon laser emitting monochromatic radiation at a wavelength of 632.8 (nm) is used as the light source. An incident light beam from the light source is composite beam of the vertical (i_1) and horizontal (i_2) polarization components.

The diameter of soot particle can be determined from the intensities ratio of both integral scattered light from soot particles.

i is the intensity of the scattered light. It's value is defined as

$$\left[\int_{40^\circ}^{60^\circ} (i_1 + i_2) d\theta / \int_{120^\circ}^{140^\circ} (i_1 + i_2) d\theta \right], \quad \theta \text{ is the scattering angle. The soot refractive index of } m =$$

1.85 - $i \cdot 0.475$ proposed by Lee and Tien is selected, mass per unit volume of soot is assumed $\rho_s = 2.0 \text{ (g/m}^3\text{)}$.

The results are as follows. At fuel flow is 0.75 (L_N/min), The volume mean diameter (D_s) of soot particles in the exhaust tube lie between 200 and 230 (nm). The total mean diameter is

about 214 (nm) .

The number density and mass concentration of soot particles are estimated to be about 1.90×10^6 (particles/cm³) and 0.02 (g / m³), respectively. The mass concentration is no significant difference between the results of optical method and filter system.

1. まえがき

ディーゼル機関から排出されるすすは大気汚染上極めて重要な問題であり、低減策を講じることは重要な課題となっている。そのためには、排出される

図1 すず濃度の自動測定器の概要

図2 散乱角度 θ の定義

*原稿受付 平成8年5月23日

平成8年春季学術講演（平成8年5月15日）

正会員 神戸商船大学（神戸市東灘区深江南町5丁目1-1）

***神戸商船大学(神戸市東灘区深江南町5丁目1-1)

* * * * NISSHO IWAI

*****ABB Corporation

すすの量をリアルタイムで正確に把握することが重要である。しかしながら、今日、このような装置が構築されていないのが現状である。

本報告では、レーザーによる光散乱法と透過法を結合した測定法を提案し、すすの粒子径および濃度（数密度、体積濃度、重量濃度）を時間的分解能をあげ、同時測定をすることを目的とした。

今回は、実機への適用の前段階として、定常火炎バーナー並びに非定常火炎バーナーをすす発生器として用い、排出されるすすに関する諸量の測定を行った。

また、装置の検討のため、定常火炎から排出されるすす粒子をフィルターに付着させ、電子顕微鏡に

図3 散乱光分割図 (数値理論)

図4 すすの光学定数

よるすす粒子径測定、並びに電子天秤によるすす重量濃度測定を試みた。

2. 測定法の原理

まず最初に、すす濃度の自動測定器の将来的な構

想として、その構成図を図1に示す。Soot-ConverterはSOF（溶解性すす状物質）をDry-Sootに変換する役割を果たすものであり、本研究室で開発中の段階である。

図2は散乱光角度 θ の定義を、図3は数値理論上でのすす粒子による散乱分割図を示す。一般に散乱

図5 すす粒子径と散乱光強度比の関係（理論計算）

図6 すす粒子と減衰係数の関係（理論計算）

図7 自動測定器の系統図

図8 すず発生器

光強度 (i) は波長 (λ), 粒子径 (D) および散乱角度 (θ) の関数である. 散乱角度と波長を変えた場合, 散乱光強度の比率が粒径に依存していることが西田教授によって明らかにされており¹⁾, すず粒子凝集体の代表等価粒子径測定に適用した. 本報告においてもその原理を利用した.

光源にはHe-Neレーザー ($\lambda = 632.8\text{nm}$) を使用し, 垂直偏光成分 (i_1) と水平偏光成分 (i_2) の合成入射光を用いた. すず粒子径 (D_s) は, 実験により入射光と散乱光との間の角度 (θ) が $40^\circ \sim 60^\circ$ と $120^\circ \sim 140^\circ$ の積分散乱光強度の強度比を算出し, G. Mieの理論計算による上記と同様の強度比とすず粒子径の関係から決定した. 理論計算に用いるすずの光学定数 (複素屈折率) には, LeeとTienらの値²⁾ (図4) より $m = 1.85 - i \cdot 0.475$ を

用いた.

G. Mieの理論計算の結果を図5に示す. 図より, 粒子径が大きくなるほど散乱光強度比の値が単調に増加しているが, 300 (nm) をこえるあたりから振動が始まる為, 粒子径は 300 (nm) まで測定できることになる.

すず粒子の数密度 (N_s : particles/cm³) は以下に示すLambert-beerの式より求めた.

$$\tau = \frac{I_R}{I_0} = \exp \left\{ -\frac{\pi D_s^2}{4} \times N_s \times L \times Q_{\text{ext}} \right\}$$

D_s は2方向散乱法により求めたすず粒子径, L は光路長, Q_{ext} はG. Mieの理論による, 粒子径と減衰係数の関係 (図6) により求まる D_s に対応する減衰係数である. また, I_0 , I_R は入射および透過光強度で, τ_R は減衰率である.

すず体積濃度 (V_s : cm³/cm³) は次式より求めた.

$$V_s = \frac{\pi D_s^3}{6} \times N_s \times 10^{-21}$$

また, すず粒子の真密度 (ρ_s : g/cm³) を 2.0 とし, すず重量濃度 (W_s : g/m³) を次式によって求めた.

$$W_s = 1.047 \times 10^{-15} \times D_s^3 \times N_s$$

3. 自動測定器の構成

図7は自動測定器の系統図を示す^{3), 5)}. 光源にはHe-Neレーザー ($\lambda = 632.8\text{nm}$, 出力 50mW , NEC製) を用い, 光線はハーフミラーで2本の光線に分割した. 直進光は水平偏光成分として, 他の1本は偏波面回転器で 90° 偏光した垂直偏光成分として, ビームスピリッターにより再び直進光と合成し, すず粒子群へ入射した. すず粒子により全周囲に散乱された光のうち, 入射光となす角度が $40^\circ \sim 60^\circ$ および $120^\circ \sim 140^\circ$ 方向のみの散乱光をレンズにて集光し, ピンホールで外乱をカットして光電子増倍管 (サイドオン型, 浜松製) で受光した. また, 透過光法測定⁴⁾ は, 入射光となす角度が 0° 方向の散乱光 (透過光) を外乱をカットするため干渉フィルターを通過させ, 光ファイバーで受光した後, 光電子増倍管へ導いた. 透過光, 散乱光の受光部は自然光の影響を少なくするため暗箱で覆った. 散乱光および透過光の光量は, 光電子増倍管により電気信号に変換されA/D変換 (AD12-16D (98), CONTEC製) された後, コンピュータに導きデー

図9 非定常火炎構成の系統図

Solenoid
Valve

図10 電磁弁詳細図

タ処理を行った。装置の周囲は測定精度を上げるため暗幕で覆った。

A/D変換器のサンプリング周期は定常火炎では100 (msec)，非定常火炎では10 (msec) に設定した。

4. すず発生器の構成

図8は、定常火炎によるすす発生器の断面図および平面図を示す。燃料には C_3H_8 を用い周囲流として空気を供給した。燃料流量は0.75, 1.25, 1.75, 2.25 (L_N/min) の4段階に変化させ、空気流量は230 (L_N/min) 一定とした。火炎の周囲は直径110 (mm)，長さ400 (mm) のパイレックスガラスで覆いすす粒子群の流れの安定化を行った。なお、火炎長はそれぞれ約250, 300, 350, 400 (mm)，散乱光、透過光の受光高さはノズル中心軸上600 (mm) の位置に固定した。

図9は、非定常火炎構成の系統図を示す。燃料には1, 3- C_4H_6 を用い、サージタンクにて背圧を約20 (mmHg) に調整し電磁弁に供給した。バルブ開放周期および開放時間は、電磁弁付属のタイマーにより、それぞれ3 (sec) と0.1 (msec) に設定した。パイロットバーナーには、燃料として都市ガスを供給した。図10は、電磁弁の詳細図を示す。

また、測定法の原理に掲載した、Lambert-beerの式の構成要素である光路長 (L) は、電磁弁上部に直径110 (mm) のパイレックスガラスを固定する

図11 すず捕集の系統図

ことにより決定し、ガラス中を一樣にすすが分布し通過している状態の測定を行った。

5. 自動測定器の検討方法（サンプリング法）

自動測定器の検討は定常火炎を使用し、排出されるすす粒子をフィルターに付着させ電子顕微鏡によりそれを撮影するすす粒子径測定、並びに電子天秤によりその重量を測定するすす重量濃度測定にて行った。

図11は、フィルター法によるすす捕集の系統図を示す。

5.1 検証実験 1

（電子顕微鏡によるすす粒子径測定法）

燃料流量が0.75 (L_N/min) のすす発生器より排出されるすすをフィルターにより捕集し、すす粒子径が300 (nm) より小さい値（図5）であるか、また、光学系測定によるすす粒子径測定値と実際のすす粒子径との比較を行うため電子顕微鏡撮影を行った。

光学的手法による測定位置と同位置（ノズル中心軸上約600mm）から、先端内径8 (mm) のプローブで真空ポンプ（1.1m³/h, ULVAC製）を用いて、ガスろ過用のフィルターホルダー（日本ミリポア・リミテッド製）にサンプリング時間2～3 (sec) ですず粒子を導き捕集した。ホルダー内のフィル

ター（直径25mm, 日本ミリポア・リミテッド製）に付着したすす粒子は、本大学原子力システム工学講座熱工学研究室にて蒸着を行った後に、高分解能走査顕微鏡（JXA-8600, JEOL製）にて写真撮影を行った。フィルムは富士インスタントB&WフィルムFP-500B45SUPERを用いた。撮影時の倍率は1万倍から4万倍に設定した。

5.2 検証実験 2

（電子天秤によるすす重量濃度測定法）

光学系測定によるすす重量濃度測定値との比較のために、燃料流量が0.75, 1.25, 1.75, 2.25 (L_N/min) において、各々排出されるすす粒子の重量測定を行った。前述と同様の位置から先端内径8 (mm) のプローブで真空ポンプを用いて、フィルターホルダーに吸引流量0.1 (m³) ですず粒子を導き捕集した。ホルダー内のフィルター（直径47mm, Toyo製）に付着したすす粒子はセミクロ電子分析天秤（島津製）にて重量測定を行った。

6. 実験結果

6.1 定常流場の結果 図12は燃料流量が0.75 (L_N/min) におけるすす粒子径 (Ds), すず粒子の数密度 (Ns), すず体積濃度 (Vs) およびすす重量濃度 (Ws) の経過時間に対する変化を示す。粒子径は190～230 (nm), 数密度, 体積濃

図12 時間経過に対するすす諸量の変化

度はそれぞれ、 $1.5 \times 10^6 \sim 3.0 \times 10^6$ (particles/cm³), $9.5 \times 10^{-9} \sim 1.1 \times 10^{-8}$ (cm³/cm³), 重量濃度は0.018 ~ 0.025 (g/m³) の範囲に分布している。

図13は、燃料流量の変化に対するすす粒子径、すす粒子の数密度、すす体積濃度およびすす重量濃度の変化を示す。粒子径は燃料流量が2.25(LN/min)の時に、やや小さい粒径が測定されているが、

G. Mieの理論計算の結果を考慮し、全体としては一定と見なすことができる。

数密度、体積濃度、質量濃度はいずれも燃料の増加(当量比の増加)に伴い増加している。

6.2 非定常流場の結果 図14は透過光強度(I_R)、すす粒子径(D_s)、すす粒子の数密度(N_s)、すす体積濃度(V_s)およびすす重量濃度

図13 燃料流量の変化に対するすす諸量の変化

(W_s) の経過時間に対する変化を示す。

図中の電磁弁解放時期を示す2本の直線を参考にすることにより、透過光強度の電圧値低下部はすす粒子群の測定点通過を示している。

粒子径変化は、透過光強度電圧値の低下時期と対応し分布している。本報では、火炎を2回形成することにより測定点を通るすすの諸量を測定した

が、粒子径分布は、それぞれほぼ同様の分布形状を示している。

数密度、体積濃度においても、透過光強度電圧値の低下時期と対応し分布しており、火炎形成2回それぞれの分布形状は、似通ったものとなっている。

重量濃度分布においても同様の傾向が見られる。それぞれの測定値においては、過去の実験デー

図14 時間経過に対するすす諸量の変化

タ³⁾・⁵⁾から判断することにより、ほぼ妥当な値と考えられる。

6.3 検証実験 1

(電子顕微鏡によるすす粒子径測定結果)

図15は1万倍および3万倍の電子顕微鏡撮影結果を示す。図より、すすは単一粒子のもの、あるいはこれらが融合して凝集体となったもの、さらにこの

凝集体が鎖状につながって鎖状凝集体となったものが存在している。すすは燃焼時に単一球形粒子として生成され、これらが火炎後流域あるいは捕集時にいくつか融合して凝集体となり、さらに大きな鎖状凝集体となる。

これらのすす粒子径のデータ処理を行う方法として Medalia-Heckman, Chippet-Gray, 西田教

$C_3H_8=0.75$ (LN/min)
 $Air=230$ (LN/min)

図15 すず粒子の電子顕微鏡写真

授、水谷教授らによって提唱されている半実験式^{6)~9)}を用いた。凝集体の投影面積はプランメータ (PLANIX5000) で測定した。

図16はデータ整理を行った結果をヒストグラムにしたものを示す。図より粒子径約100~200 (nm) 付近の大きさのすすが、多量に発生していると考えられる。分散度の対数値 ($1n\sigma g$) は0.51である。

6.4 検証実験2

(電子天秤によるすす重量濃度測定結果)

図17は、フィルターを用いた燃料流量の違いによるすす重量濃度の変化を示す。燃料流量0.75, 1.25, 1.75, 2.25 (LN/min) のとき、それぞれ0.0152, 0.0176, 0.0243, 0.0284 (g/m^3) の測定値を示し、燃料の増加に伴い増加している。

図16 すず粒子径分布

7. 考 察

図18は光学系測定による測定値と電子天秤測定による測定値の比較を示す。

理論的には光学系測定値と電子天秤測定値の結果が一致することが妥当であるが、本結果では捕集法の値が小さく測定されているため、直線は $Y=0.7X$ を示している。

この原因は、捕集法では、流れ場にフィルターを挿入することにより、すす粒子のうち小さな粒子は流れに乗って散逸し、極めて大きな粒子はフィルター捕集面に衝突し落下していることが考えられる。

また、本測定装置では、レーザーによる測定法自体は理論上確かな方法であるが、粒子径決定のための数値計算結果 (図5) の上限値は310 (nm) であり、それを越える大きな粒子は測定不可能であることが影響すると考えられ、今後の課題とも言える。

改善のための方策として、散乱光受光系を現在の2個から4個に増やすことで、上限値を約1.3 (μm) まで大きくすることが出来るため、測定装置構成のためのコストは増加するが修正は可能である。

図17 燃料流量の変化に対するすす重量濃度の変化

8. ま と め

レーザーを駆使したすす濃度の自動測定器の開発研究を行った結果、要約すると次のようなことが言える。

- (1)すす重量濃度の変化は、粒子径の影響よりは、体積濃度値に依存している。
- (2)自動測定器の結果とフィルター法による結果の比較において、かなりよい相関がある。
- (3)リアルタイムですすに関する種々の情報が得られた。

図18 すす重量濃度の比較

9. 参 考 文 献

- 1) 西田, 神戸商船大学紀要商船・理工学篇第二類第35号 (1987年7月) P. 55~70.
- 2) Lee, S. C. and Tien, C. L., 18th Symp. (Int.) on Comb., The Comb. Instit., (1981), 1159~1174.
- 3) 西田・向原・藤田, 神戸商船大学紀要商船・理工学篇第二類第33号 (1985年7月) P. 15~25.
- 4) 西田, 日本船用機関学会誌第21巻, 第6号 (1986年6月) P. 11~19.
- 5) 西田・向原, 第21回燃焼シンポジウム前刷集 (昭和58年11月) P. 91~93.
- 6) 西田・向原, 日本船用機関学会誌, 第18巻, 第5号 (1983年5月) P. 41~50.
- 7) Medalia, A. I. and Heckman, F. A., Carbon, 7 (1969), 567
- 8) Chippet, S. and Gray, W. A., Combustion and Flame, 31-2 (1978), 149.
- 9) 中原・水谷, 日本機械学会講演論文集, No.794-6 (昭54), 15.