ディーゼル機関の微粒子状排出物質の低減に関する研究*
(第2報, 酸素富化給気と微粒子状排出物質の性状)

飯田 訓正**, 澤田 隆***, 佐藤 豪**

Study of the Reduction of Particulate Emission from a Direct Diesel Engine
(2nd Report, Oxygen-Enriched Charging and Characteristics of Particulates)

by Norimasa IIDA, Takashi SAWADA, and G. Takeshi SATO

The effect of oxygen-enriched charging (OEC) of particulate emissions was investigated by using a direct injection engine. The total mass of particulate emission was measured, using a dilution tunnel sampling system, and the mass fraction of SOF and dry soot were measured. The Shape, structure and the distributions of particulates obtained with a freezing sampling method just behind the exhaust valve were measured. Both SOF and dry soot were reduced by OEC under broad operating conditions. At high load condition, dry soot was remarkably suppressed by OEC, but OEC had little effect on particulate size distribution.

Key Words: Internal Combustion Engine, Combustion, Diesel Engine, Diesel Particulate, Oxygen-Enriched Charging, Soot, SOF

1. ま え が き

1.1 研究の背景と関連研究 近年, ディーゼル機関より排出される微粒子状排出物質(以下微粒子と呼ぶ)の人体, 環境への影響が懸念されており, 微粒子の低減は重要な研究課題となっている。微粒子の排出量を低減するための方策として, 生成した微粒子を捕え処理する方法, および燃焼改善により微粒子の生成そのものを抑制する方法とが考えられる。

前者の場合, 例えば触媒作用のあるフィルタを用いて微粒子を捕集する方法⁽¹⁾⁽²⁾, セラミックフィルタに再生用バーナを併用して微粒子を再燃焼する方法⁽³⁾などが挙げられるが, 燃焼温度制御, フィルタの耐久性などに問題が残されている。

燃焼改善による方法には, 吸気ポートの改良で燃焼室内の空気流動に乱れを与えたり⁽⁴⁾, 燃焼室を四角形とし, その角部に渦を生じさせることにより燃焼を改善する方法⁽⁵⁾などがある。また, 燃料系や空気系に水添加を行って微粒子の生成を抑える方法⁽⁶⁾や, 燃料に

触媒を添加して微粒子生成を抑制し, 酸化を促進させる試み⁽⁷⁾もある。しかしながら, こうした燃焼改善は必ずしも燃費の低減や窒素酸化物の抑制に良い影響を与えず, 触媒も消耗やそれ自体が大気汚染物質として排出されるなど問題がある。

1.2 本研究の目的 本研究は, 直接噴射式ディーゼル機関の微粒子低減の方向性を得るための基礎的情報を提供することを目的としている。燃焼改善による微粒子の低減策を見いだすため, 著者らは吸気に酸素を加えて機関を運転することを試みた。この酸素富化給気は著者らの「現象を基にした熱発生モデル⁽⁹⁾」によりその微粒子低減効果を予測したものであり, 一応その効果は認められた⁽⁸⁾。

本報では, 吸気中に含まれる酸素濃度を21%から29%まで変化させて機関の運転を行い, 希釈トンネル法による微粒子の採取, 走査電子顕微鏡による微粒子性状の観察, ソックスレ抽出法による微粒子中の可溶性有機物(いわゆるSOF)の分離を行い, 酸素富化給気と排出微粒子の性状との関係を調べたので報告する。

2. 実験装置および方法

2.1 供試機関および運転条件 自動車用機関に

* 昭和60年6月10日 第5回内燃機関合同シンポジウムにおいて講演, 原稿受付 昭和60年7月11日。

** 正員, 慶応義塾大学理工学部 (〒223 横浜市港北区日吉3-14-1)。

*** 学生員, 慶応義塾大学大学院。

近い条件で運転できる比較的高速の小形単気筒四サイクル直接噴射式ディーゼル機関を供試機関とした。前報と同一の機関であり、本報では図1に燃焼室形状の概略を示すにとどめる。機関の運転条件は回転速度 N を 2400 rpm, 冷却水温度を 80°C 一定とし、噴射時期は本機関の標準動的燃料噴射時期である $\theta_{inj}=16^{\circ}$ BTDC (全負荷時) とした。排気は全量を次に述べる希釈トンネルに導くとともに各成分の分析を行った。

2.2 微粒子の測定方法

2.2.1 希釈トンネル 本研究に用いた希釈トンネル⁽¹⁰⁾は、EPA (米国環境保護局) の規定⁽¹¹⁾を考慮して設計されており、他の研究結果と一応比較することができる。

2.2.2 冷却式小形希釈トンネル ディーゼル機関より排出される微粒子は、その捕集条件が変わるとその性状が変化することが知られている⁽¹⁰⁾。機関の燃焼状態と微粒子性状とを正しく対応付けるためには、希釈トンネル装置のフィルタ上の微粒子を観察するだけでは不十分で、あわせて、微粒子を機関で生成された状態にできるだけ近い状態で採取・観察する必要がある。そこで、排気弁直後の排気を著者らが開発した冷却式小形希釈トンネル⁽¹²⁾に導入し、凍結法によりコロジオン膜付メッシュ上に微粒子を採取した。

これら微粒子の性状観察には、走査電子顕微鏡 (日本電子 JFSM-3) を用い、粒子径測定にはパーティクルアナライザ (CARL ZEISS 製 TGZ 3) を使用した。なおサンプル粒子数は 500 以上とした⁽¹³⁾。

2.3 可溶性有機物の分離法 微粒子中の可溶性有機物 (SOF) と不可溶性成分 (Dry soot) との分離にはソックスレ抽出法を用いた。溶媒にはジクロロメタンを使用し、湯浴 ($67\sim 70^{\circ}\text{C}$) 中にて 6 h の還流抽出を行った。抽出後フィルタ上の溶媒を真空中で揮発さ

せ、抽出前後のフィルタ重量差を SOF 成分量とした。

3. 実験結果および考察

3.1 吸気酸素濃度を変化させた場合の微粒子の排出特性 負荷 L を変化させた場合の排気特性を、吸気酸素濃度 $C_o=21, 23, 25, 29\%$ の各場合について図2に示す。

まず、本機関を空気 (吸気酸素濃度 C_o が 21%, 図2中○印) で運転した時の排気特性について述べる。希釈トンネル法により測定された排出微粒子質量濃度 PE は、負荷 $L=3/4$ 付近を境に高負荷側での増加が著しく、ボッシュ式スモークメータによる煙濃度 Smoke も高い値を示す。低負荷側においても微粒子は排出されているが、煙濃度 Smoke は極めて小さな値となる。負荷 L の増加に伴い、窒素酸化物 NO_x は増加する。逆に未燃炭化水素 HC は、負荷の増加に対し減少する傾向にある。

吸気酸素濃度 C_o を 21, 23, 25, 29% と増すと、そ

図1 供試機関燃焼室

図2 各排気成分の排出特性

れに伴って排出微粒子質量濃度 PE は、負荷の全域にわたり減少する。特に高負荷 $L=4/4$ 時の減少が著しく、同時に煙濃度 Smoke も大幅に減少する。しかし、低負荷側での酸素富化給気による排出微粒子質量濃度 PE の低下は、高負荷側ほど顕著でない。

未燃炭化水素 HC の排出量も、吸気酸素濃度 C_o の増加に比例して、負荷 L の全域にわたり減少する。

窒素酸化物 NO_x は、明らかに、負荷全域にわたり増加する。大幅な酸素富化は窒素酸化物の著しい増加をもたらす。これは燃焼ガス中の酸素分圧の増加が直接作用したものと考えられる。しかし、少量の酸素富化は窒素酸化物の排出量を増加させない。

燃料消費率 b_e は、吸気酸素濃度を高めるとわずかに向上する。排気温度 T_{ex} は、吸気酸素濃度 C_o を高めるとわずかながら低下する。これは燃料消費率 b_e が吸気酸素濃度を高めるとわずかに向上するため、同一負荷 L における燃料噴射量が低下したためである。

3・2 微粒子の粒子径分布

3・2・1 排気弁直後の場合 吸気酸素濃度 C_o が 21 % と 25 % の各場合について、排気弁直後で冷却式小形希釈トンネルを用いて凍結法により採取した微粒子の粒子径分布を図 3 に示す。

負荷 $L=1/4$ の場合 [図 3 (a)], 空気による運転では液状で排出したと思われる微粒子⁽¹⁴⁾ (以下液状微粒子という) と固体微粒子とが観察される。固体微粒子のザウタ平均粒子径 d_{32} は 40 nm 程度である。吸気酸素濃度を高めるとザウタ平均粒子径は減少し、30 nm 程度となる。同時に、液状排出微粒子も観察されなくなる。

一方、負荷 $L=4/4$ の場合 [図 3 (b)] には、吸気酸素濃度 C_o によらず液状微粒子は観察されない。また、固体微粒子のザウタ平均粒子径は吸気酸素濃度を高めても減少せず、粒子径分布の変化はほとんどみられない。このことは、吸気酸素濃度 C_o を高めることにより

(a) 負荷 $L=1/4$ の場合

(a) 負荷 $L=1/4$ の場合

(b) 負荷 $L=4/4$ の場合

(b) 負荷 $L=4/4$ の場合

図 3 微粒子の粒子径分布 (排気弁直後で凍結法により捕集した場合)

図 4 微粒子の粒子径分布 (希釈トンネル装置のフィルタにより捕集した場合)

排出微粒子質量濃度 PE が減少するのは、酸化により微粒子の粒子径が減少するためではなく、微粒子の粒子数そのものが低下するためであることを示唆する。

3・2・2 フィルタ面上の場合 希釈トンネル装置のフィルタに捕集された微粒子を同様に走査電子顕微鏡で観察し、その粒子径分布を図4に示す。

負荷 $L=1/4$ の場合 [図4(a)], 空気による運転では、フィルタに捕集される微粒子のザウタ平均粒子径はほぼ 85 nm である。排気弁直後のものと比較して2倍程度に肥大している。また、テフロンコーティングを施したフィルタ繊維が肥大する現象⁽¹⁴⁾が観察される。吸気酸素濃度を高めると、ザウタ平均粒子径は減少し、フィルタ繊維の肥大は観察されなくなる。これ

は、排気弁直後でやはり液状排出微粒子が観察されなくなることに対応している。

負荷 $L=4/4$ の場合 [図4(b)] には、吸気酸素濃度の粒子径への影響は明らかでなく、ザウタ平均粒子径は 21 % で 36 nm, 25 % で 40 nm 程度である。ただし排気弁直後で凍結法で採取した微粒子と比較すると、ほぼ同程度ないしは、わずかながら減少する傾向にある。

3・3 可溶性有機物 (SOF) の排出特性 希釈トンネル装置のフィルタに捕集した微粒子状排出物質中の可溶性有機物 (SOF) と不可溶性成分 (Dry soot) との割合を、吸気酸素濃度 $C_o=21, 23, 25, 29\%$ の各場合について図5に示す。

空気 ($C_o=21\%$) で機関を運転した場合、微粒子に含まれる可溶性有機物 (SOF) の割合は、負荷により大きく変化する。高負荷時 $L=4/4$ では不可溶性成分 (Dry soot) が 95 % 程度を占める。負荷 L が $3/4, 2/4, 1/4, 0/4$ と低下するに伴い、この Dry soot の占め

図5 可溶性有機物 (SOF) の排出割合

(a) 負荷 $L=1/4$ の場合 (b) 負荷 $L=4/4$ の場合

図6 微粒子の電子顕微鏡写真 (排気弁直後で凍結法により捕集した場合)

(a) 負荷 $L=1/4$ の場合 (b) 負荷 $L=4/4$ の場合

図7 微粒子の電子顕微鏡写真 (希釈トンネル装置のフィルタにより捕集した場合)

る割合も 93, 65, 11, 1%と減少する。すなわち無負荷時には、ほぼ 100%近くを SOF が占める。

吸気酸素濃度を 21, 23, 25, 29%と順に増加させると、SOF は、まず 4/4~3/4 負荷域で排出されなくなり、続いて中負荷域でも排出されなくなる。しかし、低負荷域における SOF の減少割合は小さい。

Dry soot は、吸気酸素濃度を増加させると、全負荷域にわたり大幅に減少するが、特に、中負荷域よりも高負荷 4/4 での減少が著しいのが特徴である。

このように、酸素富化給気による微粒子低減は、微粒子状排出物質のうち、高負荷側では主に不可溶な成分である Dry soot の排出量の減少が支配的で、低負荷側では可溶性有機物 (SOF) 排出量の減少が支配的である。中負荷域では、両者の減少が影響する。

3・4 微粒子状排出物質の捕集状況 負荷 1/4 と 4/4 の場合に、排気弁直後で凍結法を用いて採取された微粒子の電子顕微鏡写真の例を図 6 に示す。また同条件で希釈トンネル装置のフィルタに捕集した微粒子の電子顕微鏡写真の例を図 7 に示す。

先にも述べたように、低負荷 1/4 の場合、排気弁直後において固体微粒子とともに、捕集時に液状で存在していたと思われる微粒子状物質が観察される。高負荷 4/4 の場合には、この液状微粒子は観察されず、固体微粒子が多く観察される。

希釈トンネル装置のフィルタ面上では、低負荷では固体微粒子の粒子径は排気弁直後より大きくなり、フィルタ繊維には、液状で存在していたと思われる物質の付着が観察される。逆に高負荷側では、固体微粒子が排気弁直後とほぼ同じ径で多く観察されるが、フィルタ繊維には、この液状物質の付着は観察されない。

低負荷時には未燃炭化水素 HC の排出量が多く、しかも可溶性有機物 (SOF) の排出割合が大きい。この時液状微粒子が観察され、かつフィルタ繊維の肥大お

よび微粒子のザウタ平均粒子径の増加がみられる。

このことから、高温で排出される排気中に気相で存在する未燃炭化水素成分のうちの比較的高沸点のものがフィルタ繊維や固体微粒子に凝縮し、付着することが考えられる。したがって、これら付着物のほとんどは、ジクロロメタンに溶解され可溶性有機物として抽出されるものと思われる。また排気弁直後において観察される液状排出微粒子は、ほとんどが可溶性有機物であると思われる。

3・5 吸気酸素濃度と燃焼状態 機関の燃焼状態と微粒子の排出特性との関係を考察するために、指圧線図から熱発生率を算出し、その解析を行った。燃焼初期において、炭素状微粒子およびその前物質の生成が予測され⁽¹⁵⁾、また初期燃焼(予混合的燃焼)が次の主燃焼(拡散的燃焼)の初期条件を定めることになるので、熱発生率の解析は図 8 に示すように主として初期燃焼について行った。また、シリンダ内ガス平均温度を算出した。すなわち、着火から初期燃焼終了までの燃焼室内ガス平均温度 T_p 、および初期燃焼終了から排気弁が開くまでの燃焼室内ガス平均温度 T_d であ

図 8 熱発生率解析モデル

図 9 熱発生率解析結果

る。なお本研究では、着火遅れ $\theta_{ig} - \theta_{inj}$ を噴射開始から熱発生率が 5 J/degCA となるまでの期間と定義した。

熱発生率の解析結果を図9に示す。着火遅れ $\theta_{ig} - \theta_{inj}$ は、吸気酸素濃度の増加に伴い短縮する。しかしながら、吸気酸素濃度を 21, 23, 25, 29% と増加した場合、これに比例して短縮するわけではなく、少量の酸素富化 (2%) に対してはあまり効果なく、それ以上になると比較的大幅に短縮する。この吸気酸素濃度に対する着火遅れと図2に示した窒素酸化物 NO_x の排出量との関係は、全く逆の相関関係を示す。

中・高負荷域では、初期燃焼による熱発生 Q_p は吸気酸素濃度の増加に伴い着火遅れが短縮することに対応して減少する。

主燃焼期間の燃焼室内ガス平均温度 T_d は、負荷の増加につれて高くなる。一方、初期燃焼期間の燃焼室内ガス平均温度 T_p も、 T_d ほどではないが、負荷の増加につれて徐々に高くなる。しかし、 T_p , T_d は共に吸気酸素濃度変化の影響を受けない。

燃焼室内ガス平均温度 T_d は、高負荷 4/4 においておよそ 1700 K となる。 T_d は初期燃焼終了から排気弁が開くまでの時間平均温度であり、主燃焼期間の燃焼室内ガス温度は 1700 K より高い。

Park ら⁽¹⁶⁾はショックチューブにより、微粒子酸化速度の測定を行っている。その結果、炭素状微粒子の酸化速度は、Nagle ら⁽¹⁷⁾の酸化速度式と良い一致を示し、 1700 K 以上の高温域では酸素分圧の影響が微粒子の酸化速度に著しく効くようになると報告している。

図5に示したように特に高負荷時において炭素状微粒子 (Dry soot) の低減が著しいのは、燃焼室内ガス温度が高温となる高負荷時において酸素分圧が高まることで炭素状微粒子 (Dry soot) の酸化がいつそう促進されるためであると考えられる。

4. ま と め

直接噴射式ディーゼル機関における微粒子状排出物質の低減の方向性を得るために、吸気に酸素を加えて運転を行い、性能を計測した。

微粒子は希釈トンネル装置を用いて採取し、その総排出量を測定する一方、ソックス抽出法により可溶性有機物 (SOF) の分離を行った。また、冷却式小形希釈トンネルにより排気弁直後の微粒子の凍結採取を行い、その性状を走査電子顕微鏡で観察した。

その結果は以下のように要約される。

(1) 直接噴射式ディーゼル機関の微粒子状排出物

質は可溶性有機物 (SOF) と炭素状微粒子 (Dry soot) から成る。低負荷時における排出微粒子成分は、ほぼ可溶性有機物に占められているが、高負荷時には大半が溶媒に対して不可溶な成分 (Dry soot) となる。

(2) 吸気酸素濃度を高めると全負荷領域にわたって微粒子状排出物質は減少する。これは主に低負荷側では可溶性有機物 (SOF) が、高負荷側では炭素状微粒子 (Dry soot) が減少することによる。高負荷側での炭素状微粒子 (Dry soot) の減少効果は特に著しい。

(3) 排気弁直後で凍結法により採取される固体微粒子のザウタ平均粒子径は、高負荷時には吸気の酸素濃度によって変化しない。しかしながら、低負荷時の固体微粒子のザウタ平均粒子径は、酸素濃度が高まると減少する。

(4) 希釈トンネルのフィルタで観察される微粒子のザウタ平均粒子径は、高負荷時には、排気弁直後で観察される固体微粒子のザウタ平均粒子径とほぼ同一である。しかし、低負荷時には微粒子の肥大化が生じ、排気弁直後より大きくなる。またフィルタ繊維の肥大化も観察される。ただし、これら低負荷時の肥大化は吸気酸素濃度を高めるとみられなくなる。

(5) 吸気酸素濃度を高めると、低負荷時に排出される未燃炭化水素が減少する。このとき同時に液状排出微粒子も、観察されなくなる。

このように、吸気中の酸素濃度を高めることは、微粒子状物質の排出量を低減させるばかりでなく、その性状や成分にも影響する。

本研究を進めるにあたり、実験に協力された本塾学生 鈴木靖俊、五十嵐浩の両君に謝意を表す。また、微粒子の成分分析に協力いただいた本塾応用化学科白井研究室に謝意を表す。なお本研究の研究費の一部は慶応義塾大学学事振興資金によっている。

文 献

- (1) Higuchi, N., ほか2名, *SAE Paper*, No. 830078 (1983).
- (2) Watabe, Y., ほか3名, *SAE Paper*, No. 830082 (1983).
- (3) Ludecke, O. A. and Dimick, D. L., *SAE Paper*, No. 830085 (1983).
- (4) Suzuki, T. and Shiozaki, T., *SAE 770674 Trans.*, Vol. 86 (1977).
- (5) Kihara, R., ほか2名, *SAE Paper*, No. 741126 (1974).
- (6) Greeves, G., *SAE 79037 Trans.*, 88 (1979).
- (7) Murphy, M. J., *PB Rep.*, PB-80-12869 (1979), 33.
- (8) 佐藤・ほか2名, 機論, 51-467, B (昭60), 2479.
- (9) 田邊・ほか3名, 機論, 49-437, B (昭58), 224.
- (10) 飯田・ほか2名, 機論, 51-464, B (昭60), 1355.
- (11) *Federal Register, Rules and Regulations*, 45-45 (1980).
- (12) 佐藤・ほか3名, 機論, 51-463, B (昭60), 1113.
- (13) 佐藤・ほか3名, 自動車技術会論文集, 23 (昭56), 3.
- (14) Iida, N., ほか2名, *SAE Paper*, No. 841077 (1984), 163.

- (15) 青柳・ほか3名, 機論, 47-414, B (昭56), 392.
 (16) Park, C. and Appleton, J. P., *Combust and Flame*, 20-3 (1973), 369.
 (17) Nagle, J. and Strickland-Constable, R. F., *Proc. 5th*

Carbon Conf., (1961), 154.

討 論

〔質問〕 黒田 裕(日産自動車(株)中央研究所
動力機構研究所)

(1) 図2において、負荷が高くなると酸素富化により NO_x が増加しているが、燃料噴射時期リタードあるいは排気還流などの手段により NO_x レベルを同一にした場合の酸素富化による排出微粒子質量濃度の低減効果につきお考えをお聞かせ願いたい。

(2) 図3(b)に示されるように、微粒子の平均粒子径分布に大きな差がみられないが酸素富化により微粒子数が少なくなると考えておられるがその解釈をお聞かせいただきたい。

(3) 酸素富化により噴霧周囲の混合気の温度は影響を受けないと考えられるが、図9より着火おくれは、短縮の方向にあるとみられるので、ディーゼル機関の着火性の律則条件は、燃料混合気の当量比であると考えてもよろしいか。

〔回答〕 (1) 酸素富化給気は窒素酸化物 NO_x を増加させる方向に、噴射時期遅延は NO_x を減少させる方向に作用する。そこで、通常空気中、 NO_x を減少させるために、噴射時期を遅延させると、排出微粒子質量濃度PEが増加する。したがって、通常空気中噴射時期を遅延させることには限界がある。そこで、付図1に示すように、酸素富化給気を行うと、 NO_x 排出レベルを一定に保ちながら、排出微粒子質量濃度PEを減少させることが可能であることがわかる。

(2) 酸素富化給気により微粒子が低減される原因として、次の三つの効果が考えられる。すなわち、

a. 酸素分圧の増加で初期燃焼割合が減少し、燃焼の比較的初期の段階で生じる微粒子およびその前駆物質の生成が抑制される

b. 実質的な酸素過剰率が増すことにより、燃焼後半において、比較的

初期の段階で生じた微粒子およびその前駆物質の酸化が促進される。

c. 拡散燃焼期において生成する微粒子の酸化が促進される。

実際には三者の効果によるものと思われるが、機関の運転条件によりどれかの効果が支配的になることが考えられる。高負荷時には、燃焼室内ガス平均温度が高く、この時に微粒子が低減するのは主にb, cの効果によるものと考えている。

ご指摘のとおり吸気酸素濃度を高めても微粒子粒子径分布に顕著な差が見られない。この点については燃焼後半の微粒子の酸化の機構に関与していることが考えられ、今後さらに検討する必要がある。

付図 1

(3) 本研究の酸素富化給気は窒素の一部を酸素で置き換えて行っている。本実験の範囲では吸気の密度、比熱比、動粘度などの物性値の変化は極めて小さい。燃料噴射開始時のガス温度は吸気酸素濃度 29 % の場合で 21 % (空気) の場合に対したかだか 10°C 程度の

上昇と見積もられる。したがって噴霧の蒸発・混合気形成および温度場の形成などの条件は、ほとんど変化していないと考えられる。着火遅れの短縮は酸素分圧の増加により酸素分子との衝突確率が増し、反応速度が増加したためと思われる。

52 巻 477 号, B 編 (昭 61-5) 正誤表

執筆者名	ページ	欄	行	誤	正
丸山照雄ほか	2266	右	図説		図 7 理論値($\epsilon=1$)の実測値($\epsilon \rightarrow 1$)による検証