ディーゼルすす生成過程の多次元シミュレーション*

中北清己^{*1}, 永岡真^{*1}, 大沢克幸^{*1}

Multidimensional Simulation of the Diesel Soot Formation Process

Kiyomi NAKAKITA, Makoto NAGAOKA, and Katsuyuki OHSAWA

Diesel soot formation processes were simulated, using several models previously proposed for soot formation and oxidation. The models were assessed and improved by comparing the results with the experiments. Consequently, the model which represented qualitatively the total mass history, the formation position and the spacial distribution of soot was established. The outline and characteristics of the model are as follows. (1) The soot formation model consists of both the Tesner and Farmer models. The soot oxidation model consists of both the Nagle and Magnussen models. The model giving a smaller rate was selected for both models (formation and oxidation). (2) Some of the coefficients in the Tesner model were corrected depending on the in-cylinder volume change. (3) The Farmer model was used only to cover the deficiency of the Tesner model which must be improved due to temperature dependence.

Key Words: Internal Combustion Engine, Diesel Engine, Multidimensional Modelling, Soot Formation Model, Soot Oxidation Model

1. 緒 言

ディーゼル機関から排出されるすすの低減は大きな課題であり、機関本来の性能を損なうことなくその排出量を低減することが望まれている。そのためには筒内における燃焼過程およびすすの生成・酸化過程の詳細で正確な理解が不可欠であり、可視化による筒内観察、レーザ計測、ガスサンプリングなど種々の計測手法を用いた研究が行われている。しかし、現象が空間的、時間的に極めて複雑に変化するため、実験のみによりその詳細を解明することは困難と思われ、数値シミュレーションによるバックアップが要望されている。

ディーゼル機関におけるすす排出量の計算としては、現象論的燃焼モデルに基づく報告例⁽¹⁾⁽²⁾があり、すすの排出傾向が予測されている。しかしこれらは、筒内での詳細な現象を表現するまでには至っていない。一方近年では、数値流体力学の手法を用いて、筒内空気流動に噴霧と燃焼を含めたディーゼル燃焼過程の多次元シミュレーションが試みられ^{(3)~(5)}、筒内での詳

細な混合気形成、燃焼過程の理解に役立っている。したがって、多次元計算による筒内すすの生成・酸化過程の予測が可能となれば極めて有用であろうと考えられるが、いまだそのような報告は見当たらないようである。

そこで本研究では、著者の一名らによる多次元筒内現象解析プログラム⁽⁵⁾⁽⁶⁾にすす生成・酸化モデルを組み込み、ディーゼル筒内におけるすす生成・酸化現象の多次元シミュレーションを試みた。実施内容としては、まず軸対称二次元計算による筒内でのすす濃度経過とすす排出量を実験結果⁽²⁾⁽⁵⁾と比較して、既存のすす生成・酸化モデルを個々に評価、改良し、それらを組合せて現象を表現できるモデルとした。次で、三次元計算による筒内でのすす生成状況およびその分布を可視化実験⁽⁷⁾と比較した。

2. モデルの構成

2.1 記号の説明

d_p : すす粒子の平均直径 m

E : 活性化エネルギー J/kg

k : 乱流エネルギー m^2/s^2

m_p : すす粒子の質量 kg/Part

N : すす粒子の粒子数濃度 Part/ m^3

* 平成元年 10 月 14 日 第 67 期全国大会講演会において講演、原稿受付 昭和 63 年 12 月 15 日。

^{*1} 正員、(株)豊田中央研究所 (〒480-11 愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道 41-1)。

n : ラジカル核の粒子数濃度 Part/ m^3

n_0 : 燃料から生じるラジカル核の一次生成速度
Part/($m^3 \cdot s$)

P_{O_2} : 酸素分圧 MPa

R : 一般ガス定数 J/($kg \cdot K$)

$R_{n,f}$: ラジカル核の生成速度 Part/($m^3 \cdot s$)

$R_{n,c}$: ラジカル核の消滅速度 Part/($m^3 \cdot s$)

$R_{s,f}$: すすの生成速度 $kg/(m^3 \cdot s)$

$R_{s,c}$: すすの酸化速度 $kg/(m^3 \cdot s)$

r_f : 燃料の単位質量当たりの量論酸素質量値

r_s : すすの単位質量当たりの量論酸素質量値

T : 温度 K

u : 気流速度 m/s

W_c : 炭素の原子量

ϵ : 乱流エネルギーの散逸速度 m^2/s^3

ρ_f : 燃料濃度 kg/m^3

ρ_{O_2} : 酸素濃度 kg/m^3

ρ_p : すす粒子の密度 kg/m^3

ρ_s : すす濃度 kg/m^3

ω : すす粒子の表面反応速度 $kg/(m^2 \cdot s)$

$\cdot$: 時間微分

2.2 すす生成・酸化モデル 現在までに提案されたすすの生成・酸化を記述するモデルは、現象論的モデル、平衡論的モデル、反応動力学的モデルの3種類に大別されることが考えられる。

現象論的モデルは、バーナ等による基礎的な実験結果に基づき、関連する因子を含む数式としてすす生成・酸化の各速度を表現するものである。平衡論的モデルは、反応性多成分系の化学平衡計算に際し、固相炭素の析出あるいはすす前駆物質、燃焼中間生成物を考慮するものである⁽⁸⁾⁽⁹⁾。反応動力学的モデルは、炭化水素の熱分解、核の生成・成長の各過程を、多数の化学種による数百の素反応群により計算するものである⁽¹⁰⁾。

このうち、平衡論的モデルはおよそのすす生成傾向を表現できる段階であり、反応動力学的モデルも、すす生成経路自身が未解明なこともあって応用段階には至っていないと思われる。一方現象論的モデルは、実験で確認される事実とモデルとのバランスが良く、研究者間で比較的良く相互検証されている。また、多次元計算を行うに要する時間が実用範囲にある。以上の理由により、本研究では現象論的モデルを用いた。

2.2.1 すす生成モデル すすの生成は、炭化水素燃料からのすす前駆物質の生成とその後のすす粒子の生成という過程を経て進行すると考えられる。

a. Tesner モデル⁽¹¹⁾ 上記過程を以下に示す二段階の反応でモデル化したもので、Magnussen に

より一般化された⁽¹²⁾。ラジカル核をすすの前駆物質と考えて、その生成を次式により表現した。

$$R_{n,f} = \dot{n} = n_0 + (f - g) \cdot n - g_0 \cdot n \cdot N \quad \cdots \cdots (1)$$

右辺第1項は燃料からの一次生成を、第2項は連鎖分岐による増加を、第3項はすす粒子上でのラジカル核の破壊をそれぞれ示しており、第1項は次式による。

$$n_0 = a_0 \cdot \rho_f \cdot \exp\left(-\frac{E_f}{R \cdot T}\right) \quad \cdots \cdots (2)$$

次に、すすの生成速度は、

$$R_{s,f} = m_p \cdot \dot{N} = m_p \cdot (a - b \cdot N) \cdot n \quad \cdots \cdots (3)$$

$$m_p = \frac{\pi}{6} \cdot d_p^3 \cdot \rho_p \quad \cdots \cdots (4)$$

以上(1)式～(3)式において、 f , g , g_0 , a_0 , a および b は係数で、 E_f は活性化エネルギーであり、大気圧下のバーナ拡散火炎を用いた実験より決定されたものである。したがって、本モデルを温度、圧力の変化が大きいディーゼル筒内に適用する際には、上記係数の中で体積に依存する係数 g_0 および b を体積変化に応じて刻々修正する必要があると考えられる。そこで本研究では、下式により g_0 および b を刻々修正した。

$$g_0 = g_{0,ref} \cdot \left(\frac{T_j}{T_{ref}}\right) \cdot \left(\frac{P_{ref}}{P_j}\right) \quad \cdots \cdots (5)$$

$$b = b_{ref} \cdot \left(\frac{T_j}{T_{ref}}\right) \cdot \left(\frac{P_{ref}}{P_j}\right) \quad \cdots \cdots (6)$$

ここに、 T_j , P_j は j 番めセルの温度、圧力をそれぞれ示し、添字 ref は基準状態を示す。ここでは、Tesner らの実験⁽¹¹⁾に基づき、1900 K, 1 気圧を基準状態とした。なお、本モデルで用いた定数を表1に示す。

b. Farmer モデル⁽¹³⁾ 温度依存性をよく表現した実験式であり、次式に示す。

$$R_{s,f} = C \cdot T^a \cdot \rho_f^b \cdot \rho_{O_2}^c \cdot \exp\left(-\frac{E_f}{R \cdot T}\right) \quad \cdots \cdots (7)$$

本研究では、Tesner モデルの欠点を補う目的で式(7)を使用した。この詳細は4.1節に述べる。なお、用いた定数を表2に示す。

2.2.2 すす酸化モデル すすの酸化速度は、温度、酸素濃度に主に依存することが知られている。

a. Nagle モデル⁽¹⁴⁾ 空気噴流を衝突させた高温炭素棒の酸化による消耗量を測定して導かれた。すす表面での酸化反応速度を次式で与えている。

表1 Tesner モデルで用いた定数

	a	a_0	b_{ref}	f-g	$g_{0,ref}$	E_f/R
Unit	1/s	Part/($kg \cdot s$)	$m^3/(Part \cdot s)$	1/s	$m^3/(Part \cdot s)$	K
Value	10^5	12.5×10^{36}	8×10^{-14}	10^2	10^{-15}	9×10^4

$$\omega = W_c \cdot \left[\frac{K_1 \cdot P_{O_2}}{(1 + K_4 \cdot P_{O_2})} \cdot X + K_2 P_{O_2} \cdot (1 - X) \right] \quad \dots\dots\dots (8)$$

ここに,

$$X = \left(1 + \frac{K_3}{K_2 \cdot P_{O_2}^2} \right)^{-1} \quad \dots\dots\dots (9)$$

$$K_i = C_i \cdot \exp \left(-\frac{E_i}{R \cdot T} \right), \quad i = 1, 2, 3, 4 \quad \dots\dots\dots (10)$$

よって, すすの酸化速度は,

$$R_{s,c} = \pi \cdot d_p^2 \cdot N \cdot \omega \quad \dots\dots\dots (11)$$

本モデルは, 係数がすべて温度依存性を有しており, 化学反応による律速を良く表現するものと考えられる. 本モデルで用いた定数を表3に示す.

b. Magnussen モデル⁽¹²⁾ すすと酸素を含むガス塊とが乱れによってかくはんされ, 微視的に混合して反応が進むと考えて, すす酸化速度を次式で示した.

$$R_{s,c} = A \cdot \rho_s \cdot \left(\frac{\varepsilon}{k} \right) \cdot \min \left\{ 1, \frac{\rho_{O_2}}{\rho_s \cdot r_s + \rho_f \cdot r_f} \right\} \quad \dots\dots\dots (12)$$

ここに A は定数であり, Magnussen らにならい $A=4$ をそのまま用いた. 本モデルでは, すす酸化の化学反応は十分に速く, 混合により律速されるとしている.

c. ラジカル核の酸化モデル すす生成に Tesner モデルを用いるため, すす酸化速度に加えてラジカル核の酸化速度を与える必要がある. 本研究では Magnussen ら⁽¹²⁾にならい次式を用いた.

$$R_{n,c} = R_{s,c} \cdot \left(\frac{n}{\rho_s} \right) \quad \dots\dots\dots (13)$$

2.3 計算方法

2.3.1 多次元筒内現象解析プログラム すす生成・酸化モデルを組込むベースには, 既報⁽⁵⁾⁽⁶⁾の計算コードを用いた. 筒内気流については, 化学種の質量, 運動量, エネルギーの各保存式と k - ε 乱流モデル式を解

いている. 噴霧の挙動は DDM (Discrete Droplet Model) により, また燃焼はアレニウス速度式と渦消散モデルを混合速度の大小により使い分ける方法により, それぞれ計算している. 各セル内の燃料濃度およびガス温度については, 燃料液滴からの蒸発燃料および燃焼モデルから与えられる発熱量を求めてセル内のソース項とし, これに隣接するセルから対流により運ばれる燃料蒸気および内部エネルギーの増分をそれぞれ考慮し算出している. なお, 差分解法は ALE 法 (Arbitrary Lagrangian-Eulerian) を用いた.

2.3.2 すす生成・酸化モデルの扱い すす生成モデルとしては, Tesner と Farmer の両モデルを組合せた. 理由は 4.1 節に述べる. またすす酸化モデルとしては, Nagle と Magnussen の両モデルを組合せた. 理由は, 前者は化学反応律速の表現に優れる反面混合律速の表現が困難であり, 後者はその逆であるため, 両者の組合せによって現象を表現せざるを得ないからである. ここでモデルの組合せとは, 各時刻で両モデルの与える反応速度の小さいほうの値を採るものである.

すすの計算に際しては, 以下の仮定を用いた

- (1) すす粒子の粒径, 密度は一定とする. 本研究ではすす排出濃度の計算値が実験値とほぼ合致するよう $d_p = 1.7 \times 10^{-8} \text{ m}$, $\rho_p = 2 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ を選択した.
- (2) すす粒子の合体, 凝集は考えない.
- (3) すすの生成・燃焼による吸, 発熱および化学種の増減は無視する.

(4) すすの輸送は対流によってのみ生じ, 拡散は無視できるものとする.

以上の仮定より, すすの輸送方程式は次式となる.

$$m_p \cdot \frac{\partial N}{\partial t} + \text{div} (m_p \cdot N \cdot \underline{u}) = \dot{\rho}_s \quad \dots\dots\dots (14)$$

ここで $\dot{\rho}_s$ はすすの正味生成速度であり,

$$\dot{\rho}_s = R_{s,f} - R_{s,c} \quad \dots\dots\dots (15)$$

なお, ラジカル核についても同様に扱った.

3. 実験と計算条件

3.1 軸対称燃焼室仕様 軸対称二次元の計算は, シリンダ軸に対称に燃焼室と渦巻噴射弁を配置した直接噴射式単筒ディーゼル機関(豊田中研製 TRE-2 形)を用いた実験⁽⁵⁾を対象に行った. 実験条件を表4に, 燃焼室概略と計算格子を図1にそれぞれ示す. 計算は, 圧力 0.11 MPa, 温度 370 K を初期値とし, 壁温度 425 K 一定として, 圧縮開始時より実施した.

3.2 可視化渦流室仕様 三次元での計算は, 透過的に可視化できる渦流室を有する単発燃焼ディーゼ

表 2 Farmer モデルで用いた定数

C	α	β	γ	E_F/R
5.475×10^{13}	-1.94	1.81	-0.5	1.611×10^4

表 3 Nagle モデルで用いた定数

i	C_i	E_i/R
1	1.974 kg/(m ² ·s·MPa)	$1.510 \times 10^4 \text{ K}$
2	0.4402 kg/(m ² ·s·MPa)	$7.652 \times 10^3 \text{ K}$
3	$1.510 \times 10^6 \text{ kg/(m}^2\text{·s)}$	$4.883 \times 10^4 \text{ K}$
4	$2.102 \times 10^2 \text{ 1/MPa}$	$-2.064 \times 10^3 \text{ K}$

ル機関を用いた実験⁽⁷⁾を対象とした。実験条件を表5に、燃焼室概要と計算格子を図2にそれぞれ示す。計算は、圧力 0.098 MPa、温度 373 K を初期値とし、壁温度は主室側 373 K、渦流室側 443 K でそれぞれ一定として実施した。

4. 結果と考察

4.1 モデルの評価と改良 2.2節で挙げたすす生成・酸化モデルを個々に、または組合せて、3.1節の軸対称燃焼室仕様の計算に適用することにより、モデルを評価、改良した。

a. ケース1 すす生成モデルには Tesner モデルをそのまま、つまり係数 g_0 , b に体積変化による修正を加えずに使用し、すす酸化モデルには Nagle と Magnussen の両モデルを組合せた場合である。結果を図3の一点鎖線で示す。実験によるすす排出濃度は約 4.0 BSU (230~280 mg/Nm³) であり、図中に記してある。また、Kittelson らの筒内ガス全量サンプリングによる実験結果⁽²⁾によれば、本実験の場合に筒内に生成するすすの総質量は 10⁻¹ mg のオーダーである。したがって本計算結果は、すすのピーク値、排出量ともひとけた小さい値となっている。

b. ケース2 Tesner モデル中の係数 g_0 , b を体積変化に応じて刻々修正するように改良して(以後この改良モデルに*印を付す)すす生成モデルとし、

表4 軸対称仕様の実験条件

Bore	83 mm
Stroke	85 mm
Compression Ratio	17.0
Fuel Amount	5.29 mm ³ /st
Injection Period	-2.5~6.5 °ATDC
Initial Swirl Ratio	1.5
Engine Speed	750 rpm

図1 軸対称燃焼室の計算格子

すす酸化モデルはケース1と同じにした場合である。結果を図3に破線で示す。すす生成量のオーダが実験と合致するレベルとなり、妥当な値となっている。ところが、18° ATDC でピークになった総質量が、その後徐々に減少しかけた後再び急速に増加する結果となり、これは実験事実と合致しない。

この原因は、20° ATDC 付近以降ですすの生成速度が酸化速度に対し過大となるためと考えられる。仮に酸化モデルに問題があり酸化速度が過小であるとする、ピーク後のすす総質量の低下が緩慢とはなろうが、このような急速な上昇は考えにくい。そこで Tesner 生成モデルについて考えると、式(1)において係数 f , g , および g_0 が基本的に定数となっていることが問題といえる。つまり、膨張過程でピストン下降に伴い温度が低下したとき、実際の現象ではラジカル核の生成速度は急速に低下し零に近づくと考えられるが、本式では上記係数が一定であるため、ラジカル核が存在する限りその生成が続くことになってしまう。

この対策としては、係数 f , g および g_0 に少なくとも温度依存性を与えることが必要と考えられるが、そ

表5 可視化仕様の実験条件

Bore	90 mm
Stroke	110 mm
Compression Ratio	19.0
Fuel	Cetane
Fuel Amount	33.0 mm ³ /st
Inj. Timing	-5 °ATDC
Inj. Nozzle	Single Hole Type
Engine Speed	400 rpm

図2 可視化渦流室仕様の燃焼室概要と計算格子

のモデル化は基礎的な実験によらねばならず、現状では難しい。

c. ケース3 上記 Tesner* モデルの欠点を補うために、Farmer モデルを組合せてすす生成モデルとした。すす酸化モデルはケース1と同じである。結果を図3の実線で示す。すす総質量のピーク値、排出量ともに実際のオーダと合致する。また Kittelson ら⁽²⁾によれば、筒内におけるすすの生成は着火後約5°CA 以内に始まり、その後10~15°CA でピーク値となった後減少してゆくことが示されているが、本計算結果はこのすす生成経過とも良く合致している。以上のモデル評価により、最適モデルとしてケース3の組合せを選択した。

4.2 組合せモデルの妥当性の確認 選択したケース3のモデルがどのように機能しているかを調べるために、各モデルによる筒内全体としてのすす生成、酸化速度を図4に示した。生成速度はA-B-C-D、酸化速度はa-b-c-d という経過をそれぞれたどる。つまり、点Cおよび点cで各モデルが切り換わっている。

Tesner* モデルの問題点は4.1節で述べたが、このモデルによる生成速度は40°ATDC になっても零とならず一定の値をとっている。この時点では、図5の熱発生率よりわかるように、燃焼は終了して温度も低下しているので、すす生成速度が上記のような値をとることは妥当ではない。そこでC点以降の生成速度を抑える役割を Farmer モデルが果たしている。

すす酸化モデルに関しても同様に、高温となる主燃焼期には拡散(Magnussen モデル)により律速され、その後は温度(Nagle モデル)により律速されている。

	Formation Model	Oxidation Model
Case 1	Tesner	min Magnussen, Nagle
Case 2	Tesner*	↑
Case 3	min Tesner*, Farmer	↑

* ; Improved Model

図3 筒内でのすす総質量の経過

このモデルの切り換わりは、物理、化学的にも合理的と考えられる。

なお、すす生成初期から中期において Farmer モデルの生成速度は桁はずれに大きい値を示しており、この実験式の一般性、妥当性には疑問も残る。したがって、本研究では暫定的に Farmer モデルを組合せて Tesner* モデルの欠点を補ったが、本質的には Tesner モデル自身の改良が望ましい。

4.3 すす生成状況とその分布の表現力 前節までは、筒内で生成するすすの総質量の経過を基にモデルの妥当性を評価した。そこで次に、3.2節の可視化実験を対象として、筒内におけるすすの生成状況および空間分布を、選択したケース3のモデルで表現できるかどうかを調べた。結果を図6に示す。下段の写真は、背景拡散照明法を用いて渦流室内を透過的に可視化したもので⁽⁷⁾、ガスの密度差による影の発生を防止して、噴霧とすす粒子群のみを影として示している。上段は計算結果で、実験と対比させるため、噴霧とすすによる光の減衰率(すす濃度に対応)を示す。主たるすす領域は、着火(上死点時)より2°CA 程度遅れて、着火位置より下流側の渦流室下部から発生し始める。そしてその後、すすはスワール下流側に移動すると同時に上流側でも生成し、副室内に広がってゆく。計算結果は、このようなすすの生成状況および空間分布を良く表現していることがわかる。なお、この実験との比較の詳細は続報に譲る。

以上の結果より、選択したケース3のモデルはすすの生成過程を定性的には十分表現できることが確認できた。

5. ま と め

既存のすす生成・酸化モデルを、多次元筒内現象解

図4 各モデルによるすす生成・酸化速度

図5 筒内圧と熱発生率

図6 渦流室内でのすす分布：計算と実験との比較

析プログラムに組み込み、ディーゼル筒内に適用した。その際、モデルを個々に評価、改良し、それらを組合せた結果、筒内でのすす総質量の経過およびすす生成場所、空間分布など、現象を定性的に良く表現できるモデルを得た。そのモデルの特徴は以下のとおりである。

(1) すす生成に対しては Tesner モデルと Farmer モデルとを、すす酸化に対しては Nagle モデルと Magnussen モデルとをそれぞれ組合せる。いずれの場合も、各モデルが与える反応速度の小さいほうの値を採る。

(2) Tesner モデルでは、筒内への適用に際し、体積に依存する係数 b , g_0 を体積変化に応じて刻々修正する。

(3) 組合されたモデルは以下のように機能する。すすの生成は主に Tesner モデルにより計算されるが、このモデルは燃焼終了後に温度が低下した場合にもすすを生成し続けるという問題点を持つため、この欠点を Farmer モデルが補う。すす酸化については、Nagle モデルは反応律速を、Magnussen モデルは混合律速をそれぞれ良く表現するが、筒内では両支配因子が時間的・空間的に変化するため、両モデルが互いに補完し合う。

なお、Tesner モデルの問題点を改善するには、ラジカル核の連鎖分岐、破壊に関する項の係数 f , g , g_0 に少なくとも温度依存性を与えることが必要と考えられる。

文 献

- (1) 広安・ほか2名, 機論, 48-432, B (1982), 1606.
- (2) Kittelson, D. B., ほか3名, SAE Paper, 861569, (1986).
- (3) Harvey, P. S., ほか1名, I. Mech. E., C 130/82 (1982), 247.
- (4) Amsden, A. A., ほか3名, SAE Paper, 850554, (1985).
- (5) 大沢・ほか2名, 自動車技術会論文集, 37 (1988), 32.
- (6) Fukumoto, A., ほか2名, Proc. Super Computers for Mech. Eng. '88, (1988), 27.
- (7) 中北・ほか2名, 機講論, No. 870-4 (1987-8), 396.
- (8) 塩路・池上, 機講論, No. 804-4 (1980-3), 41.
- (9) 池上・ほか2名, 機論, 52-476, B (1986), 1885.
- (10) Frenklach, M., ほか3名, Proc. 20th Symp. (Int.) on Combust., (1984), 887, The Combustion Institute.
- (11) Tesner, P. A., ほか2名, Combust. Flame, 17 (1971), 253.
- (12) Magnussen, B. F., ほか1名, Proc. 16th Symp. (Int.) on Combust., (1977), 719, The Combustion Institute.
- (13) Farmer, R., ほか2名, Particulate Carbon, (1981), 299, Plenum Press.
- (14) Nagle, J., ほか1名, Proc. 5th Carbon Conf., 1 (1962), 154.