希薄燃焼ガス機関の窒素酸化物生成に及ぼす 混合気濃度不均一の影響*

塩 路 昌 宏^{*1}, 朱 啓 明^{*2}
佐 藤 謙 一 郎^{*3}, 池 上 詢^{*1}

Effect of Mixture Heterogeneity on the Formation of Nitrogen Oxides in Lean-Burn Gas Engines

Masahiro SHIOJI, Qi-Ming ZHU,
Ken'ichiro SATO and Makoto IKEGAMI

This study reveals that the mixture heterogeneity significantly affects the formation of nitrogen oxides in spark-ignition engines. The experimental results for a variety of engine types and sizes under lean-burning operation show that a homogeneous lean mixture permits much greater reduction of the exhaust NO_x concentration than a heterogeneous mixture. In addition, the histories of temperature distribution and NO concentration are calculated using a thermodynamic model based on the measured rates of heat release for the mixture conditions having different degrees of heterogeneity. It is shown that a higher NO concentration results from the hot burnt gas ignited initially. Thus, lean burning of spark-ignition engines with a more homogenous mixture is desirable. It is also suggested that a significant reduction of NO concentration may be achieved once the burnt gases are mixed during combustion so as to make the burnt zone more uniform.

Key Words: Internal Combustion Engine, Pollutant, Gaseous Fuel, Chemical Reaction, Combustion Product, Lean Burning, Nitrogen Oxides, Thermodynamic Model, Mixture Heterogeneity, Stratified Charge

1. ま え が き

内燃機関から排出される窒素酸化物 NO_x の低減には、三元触媒による排気浄化方式と希薄燃焼の低い火炎温度を利用して生成量を抑制する方式とが有効であり、前者はすでに火花点火機関に広く用いられている。しかし、近年火花点火機関では部分負荷の効率改善を目指して後者の希薄燃焼方式が注目され、乗用車用ガソリン機関⁽¹⁾⁽²⁾ならびにコゼネレーション用天然ガス機関⁽³⁾⁽⁴⁾などですでに実用に供されている。この方式で NO_x 排出濃度を許容値以下に低減するためには希薄燃焼限界付近で運転する必要があり、燃焼変動の増加を如何に抑えるかが鍵となる。そのため、これまでの希薄燃焼では層状給気方式が多く試みられ、点火プラグ近傍に量論比近くの混合気を分布することにより点火の安定化を図るものが多い。しかし、その場合初期に燃焼する部分が高温になるため高い濃度の NO_x を生じや

すく、必ずしも NO_x 低減に有効とはいえない。言い換えれば、燃焼変動を許し得る範囲でできるだけ希薄な均一混合気として燃焼させることが望ましい。

この立場から、既報⁽⁵⁾では均一混合気吸気天然ガス火花点火機関の実験を行い、強スワール深皿形燃焼室を用いれば希薄運転時の燃焼変動を抑制でき、広範囲の運転条件において NO_x 排出濃度を 100 ppm 以下に低減できることを示した。しかし、混合気に濃度不均一がある場合と比較していないため、均一混合気の方が NO_x 低減に有利かどうかはわからない。そこで本研究では、まず種々の機関および燃焼方式における実験結果を比べることによって NO_x 排出濃度に及ぼす混合気濃度不均一の影響を検討する。さらに、実測熱発生率に基づく熱力学モデル⁽⁶⁾⁽⁷⁾により NO 生成量の時間変化を計算して排出濃度を求め、濃度不均一の観点から希薄燃焼のさいの NO_x 低減およびその限界を示す。

2. 天然ガス機関の実測 NO_x 排出濃度による考察

まず、吸入混合気濃度不均一に差があればどの程度 NO_x 排出濃度が異なるかを調べるために、天然ガス燃

* 1994年3月21日 関西支部第69期定期総会講演会において講演、原稿受付 1995年1月17日。

^{*1} 正員、京都大学工学部 (〒606-01 京都市左京区吉田本町)。

^{*2} 京都大学大学院。

^{*3} 正員、トヨタ自動車(株) (〒471 豊田市トヨタ町1)。

図1 均一混合気吸気機関と直接噴射式機関におけるNOx排出濃度 (ϵ : 圧縮比, r_s : スワール比, n : 機関回転数, MBT: 最大トルク点火時期)

図2 均一予混合気吸気および層状給気火花点火機関のNOx排出濃度 (θ_i : 点火時期)

表1 比較に供した機関の形式および寸法

Engine	Combustion System	Bore x Stroke
A Yanmar TR15	SI Open chamber	ϕ 102 x 106 mm
B Kubota ER75	CI Open chamber	ϕ 90 x 105 mm
C Yanmar	SI Open chamber	ϕ 150 x 165 mm
D Yanmar	SI Pre-chamber	ϕ 150 x 165 mm
E Niigata Engr.	SI Open chamber	ϕ 260 x 275 mm
F Niigata Engr.	SI Pre-chamber	ϕ 260 x 275 mm

料を用いる火花点火機関および直接噴射式グロープラグ点火機関における実験結果を比較する。天然ガスはガソリンに比べて可燃範囲が広いので、希薄燃焼方式の実験が比較的多く試みられている。図1は、絞りなしの条件において均一混合気吸気火花点火機関⁽⁹⁾と天然ガス直接噴射式機関⁽⁹⁾の実験で得られたNOx濃度の平均当量比 ϕ_0 (空気比の逆数) による変化であり、供試機関の形式および寸法を表1に、運転条件を図中にそれぞれ示す。火花点火機関AのNOx濃度は、 $\phi_0=0.9$ 近傍で極大となり、 ϕ_0 の減少とともに急激に低下する。これに対し、直接噴射式機関Bでは ϕ_0 によるNOx濃度の低下は比較的緩やかであり、 $\phi_0=0.3$ の条件でも100 ppm以上のNOxが排出される。両機関の寸法および運転条件はほぼ等しいので、このNOx濃度の差は主として混合気濃度の均一度に依ると考えられる。すなわち、Aの均一混合気吸気に対し、Bでは過濃および希薄状態が共存する不均一な状態にあって、局所的に存在する量論比近傍の高温部からNOxが多量に生成したといえる。

つぎに、種々の形式および寸法の天然ガス火花点火機関AおよびC～Fにおいて、 ϕ_0 によるNOx濃度の変化を既発表のデータ⁽⁹⁾⁽⁴⁾に基づいて調べた。図2に、それぞれの条件で正味平均有効圧 p_e が一定となるよう

に絞りを調節した場合の結果を示す。DおよびFは容積比 $\beta_v=4\%$ の小さい副室が設けられており、その内部に量論比近くの混合気を供給してプラグ近傍の点火を確保している。そのため、主室のみの場合に比べて大幅に希薄限界が広がっている。しかし、均一混合気に比べてNOx濃度は必ずしも低いとはいえない。これは燃焼室内に局部的に存在する量論比近くの部分が高温に達するからで、NOxの生成がある温度以上になると急増することに起因する。したがって、NOx低減の限界を調べるには混合気濃度不均一の影響を明らかにする必要がある。

3. NO生成量の計算

以上の実測結果によると、平均当量比が等しくても燃料-空気の混合状態によってNOx排出量は大きく変化することがわかる。そこで以下では、この混合気濃度不均一の影響について理論的に検討を加える。

機関から排出されるNOxは主に火炎中の高温部から発生するサーマルNOが凍結したものと考えられ、その生成・分解の反応経路をZeldovich機構によって記述すれば、断熱的に燃焼するさいのNO生成速度を計算できる。機関内燃焼過程では温度と圧力が急速に変化するので、燃焼室内に生じる高温領域の分布を記述する必要がある。ここでは実測の熱発生率に基づく熱力学モデルによって温度分布を推定し、それらよりNOの生成経過を計算した。

熱力学モデルでは混合気を多くの微小な要素に分割し、火炎伝播によって微小要素がつぎつぎに燃えとときの各要素の熱力学状態およびNO生成速度の時間履歴を求める。すなわち、燃焼開始からの時刻 t における質量燃焼速度 $\dot{x}(t)$ を与えて各要素の着火時刻 $t = \tau$ を定め、さらに混合気を未燃と既燃とに分けることによ

て、それぞれの領域に含まれる要素の温度変化を計算する。そのさい、Lavoieらは燃焼による圧力上昇に伴って各要素が断熱圧縮されるとし、未燃および既燃ガスの比熱比を用いて個々の要素の温度変化を計算する方法を示した⁽⁶⁾。ここでは、不均一混合気を含む種々の燃焼場の記述にこのモデルを適用するために、状態変化を微積分形で定式化して一般化した理論を導いたので、それを示しておく。

時刻 τ で着火した既燃要素の時刻 t における比容積を $v(t, \tau)$ 、未燃混合気の比容積および質量をそれぞれ $v_u(t)$ 、 $x_u(t)$ とすると、燃焼室全容積 $V(t)$ は次式のように表される。

$$V(t) = \int_0^t v(t, \tau) \dot{x}(\tau) d\tau + v_u(t) x_u(t) \quad (1)$$

ここで、各微小要素は相互に断熱的であって圧力の変化を通じてのみ比エンタルピー h の変化がもたらされ、未燃および既燃に対応した化学平衡状態になるとすると、次式が成り立つ。

$$dh = \left(\frac{\partial h}{\partial p} \right)_v dp + \left(\frac{\partial h}{\partial v} \right)_p dv = v dp \quad (2)$$

上式より、圧力上昇 dp と比容積変化 dv の関係が規定され、さらに圧力 p が燃焼室内にわたって一様で t のみの関数とすると、各要素について比容積変化率は

$$\frac{\partial v(t, \tau)}{\partial t} = \frac{v - (\partial h / \partial p)_v}{(\partial h / \partial v)_p} \frac{dp}{dt} \quad (3)$$

また、微小時間 Δt 後の燃焼室全容積 $V(t + \Delta t)$ を求めると、

$$V(t + \Delta t) = \int_0^t v(t, \tau) \dot{x}(\tau) d\tau + \Delta t \int_t^{t+\Delta t} \frac{\partial v(t, \tau)}{\partial t} \dot{x}(\tau) d\tau + \Delta t v(t, \tau) \dot{x}(\tau) + v_u(t) x_u(t) + \Delta t \left\{ v_u(t) \frac{d}{dt} x_u(t) \right\} \quad (4)$$

したがって、容積変化速度 $\dot{V}(t)$ は次式のようになる。

$$\dot{V}(t) = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{V(t + \Delta t) - V(t)}{\Delta t}$$

$$= \frac{dp}{dt} \left[\int_0^t \frac{v - (\partial h / \partial p)_v}{(\partial h / \partial v)_p} \dot{x}(\tau) d\tau + \frac{v_u - (\partial h_u / \partial p)_v}{(\partial h_u / \partial v)_p} x_u(t) \right] + \{v(t, t) - v_u(t)\} \dot{x}(t) \quad (5)$$

上式右辺第一項は圧力上昇によって圧縮を受けるさいの容積変化率であり、第二項は燃焼による容積膨張を表す。 $\dot{V}(t)$ は機関のクランク運動によって指定されているので、式(5)より (dp/dt) が計算できる。さらに、既燃および未燃要素の比エンタルピーの増加は、

$$\frac{\partial h(t, \tau)}{\partial t} = v(t, \tau) \frac{dp}{dt}, \quad \frac{dh_u(t)}{dt} = v_u(t) \frac{dp}{dt} \quad (6) (7)$$

より求められるので、各要素の熱力学状態を定めることができる。

4. 均一混合気におけるNO生成

4・1 定圧断熱燃焼 まず最初に、均一混合気が定圧断熱燃焼する場合 ($dp/dt = 0$) について計算を行って、当量比と反応時間がNOの生成に及ぼす影響を調べる。図3は、メタンおよびプロパン-空気混合気が定圧のもとで混合気が瞬間的に燃焼した場合の計算結果であり、機関の圧縮終りの状態を想定して圧力を2.5 MPa、初期温度を800 Kとし、反応開始後の時刻 t におけるNO濃度を当量比 ϕ に対して示す。図中の破線はそれぞれの ϕ に対する平衡NO濃度であり、いずれの混合気も $\phi = 0.8$ で極大となる。NOはこの平衡濃度まで時間とともに徐々に増加するが、早い時期においては $\phi = 1.0$ 近傍で極大となり、比較的短時間で平衡濃度に達する。これは、温度が反応開始後直ちに平衡値まで上昇し、かつ $\phi = 1.0$ 近傍で極大となるためであり、逆に $\phi = 0.7$ より希薄な混合気ではNO生成速度が低く、 $t = 100$ ms でもまだ平衡濃度の半分にも達しない。したがって、機関内のように温度が急速に低下する場合において希薄混合気でのNO濃度は、平衡濃度より大幅に

図3 メタンおよびプロパン均一混合気の定圧断熱燃焼におけるNO生成濃度の時間変化

図4 代表的な5個の要素における温度およびNO濃度のクランク角経過

低い。また、同じ時刻について比較すると、プロパン混合気の方がメタン混合気より若干NO生成量は多いが、定圧条件では燃料による差はほとんどない。

4・2 火花点火機関内燃焼 つぎに、均一混合気吸気火花点火機関の燃焼過程におけるNO生成経過を、前述の熱力学モデルによって計算した。図4は、図1Aの圧縮比 $\varepsilon = 11.5$ 、MBT点火の条件で平均当量比 $\phi = 1.0$ および0.68における実測圧力経過を用いて計算した結果であり、それぞれシリンダ内圧力 p 、熱発生率 $\dot{q}$ 、燃焼質量割合 x 、5個の代表要素についての温度 T およびNO濃度のクランク角経過を示す。なお、添字 c は非燃焼の場合の値、 $\langle \rangle$ は混合気要素全体のアンサンブル平均を表す。いずれの当量比においても、初期に燃焼した要素はその後最高圧力に達するまで断熱圧縮され、ホプキンソン効果のため一層高温となってNOを多量に生成し、膨張時の温度低下に伴い高濃度で凍結する。とくに $\phi = 1.0$ では圧力上昇が大きいので、初期燃焼要素の温度ならびにNOは著しく増加し、その結果NO排出濃度は極めて高い。このことから、全体的には希薄であっても初期に高温部が生じれば、NOx濃度は高くなることわかる。

つぎに天然ガス(メタン88%、エタン6%、プロパン4%、ブタン2%)のほかメタン、プロパンならびにオクタンを燃料として同様の計算を行った。図5にNO排出濃度を当量比 ϕ に対して示す。ただし、実験を行わ

図5 種々の燃料における排気NO濃度の計算

なかった条件についてもNO排出傾向を調べるために、熱発生率経過を次のWiebe関数で近似した。

$$\dot{x}(\theta) = 1 - \exp \left\{ -6.9 \left(\frac{\theta - \theta_f}{\theta_z} \right)^{m+1} \right\} \quad (8)$$

ここに、 m は燃焼特性値、 θ_f 、 θ_z はそれぞれ着火時期および燃焼期間である。なお、同一の運転条件では燃料が異なっても熱発生率経過は等しいとした。これは火炎伝播が燃料の性状よりも燃焼室内の乱れによって事実上律速されると仮定したことに相当する。Wiebe関数に含まれる定数の m 、 θ_f 、 θ_z には種々の運転条件における実測熱発生率に最も適合する形状を算出し、当量比と点火時期の関数として与えた。図中の○

図6 層状給気の場合における種々の点火時期によるNO濃度の変化

図7 層状吸気の場合における種々の β による排気NO濃度の変化（破線は燃焼ガスの均一混合を仮定）

図8 層状燃焼における燃焼ガス非混合と均一混合の比較

印は実測NOx排出濃度であり計算値はこれより若干高いものの、 ϕ に対する傾向は一致している。燃料による相違についてみると、天然ガスではNO濃度はメタンとほぼ等しく、他の炭化水素燃料の約半分となる。これは炭素数の多い燃料ほど燃焼後のモル数の増加が大きく、それに応じて炎温度が高くなるためである。

5. 混合気濃度不均一の影響

つぎに、NO生成に及ぼす混合気濃度不均一の影響について検討するために、点火プラグ付近に量論混合気が片寄って層状に分布する場合と、燃焼室内一様に濃

度の不均一が存在する場合とについてNO排出濃度の変化を調べた。まず、希薄燃焼で一般に採用されている副室式を対象として、質量比率 β の混合気要素が量論比で初期に燃焼するとした場合の計算を行った。図6に、メタン-空気混合気での平均当量比 ϕ による変化を種々の点火時期 θ_i に対して示す。ここで、 β は表1の機関DとFなどで一般に使用されている副室容積比を参考に4%とした。 θ_i を進めるにつれて燃焼が急激となってNO排出濃度は高くなり、とくに $\theta_i = 40^\circ$ BTDCでは $\phi = 0.6$ まで希薄にしてもNOはさほど低下しない。破線はそれぞれの ϕ についてMBT点火時期を推定し

た場合の結果であり、希薄時にはMBTの θ_i が早くなるためNO低減率はさらに小さくなる。

つぎに、図7に $\theta_i = 20^\circ$ BTDCとして β を変化した場合の結果を示す。 β を増すとともに希薄時のNO低減率は急速に減少しており、このことから β は燃焼変動が許す限り小さくし、できれば均一混合気($\beta = 0\%$)とすることが望ましい。また、図中の破線は $\beta = 4\%$ において各瞬間の全燃焼領域での物質および熱が均一に混合するとした場合であり、希薄混合気のNO排出濃度が大幅に低下する。この燃焼ガス中の混合の作用を明らかにするために、代表的な混合気要素の温度およびNO濃度のクランク角経過を調べた。図8は $\beta = 4\%$ 、 $\phi_o = 0.6$ の条件において、(a)各要素が混合しないとした場合と、(b)燃焼領域では熱および物質が均一に混合するとした場合とを比較した結果である。(a)では初期に燃焼する量論混合気の要素から多量のNOが生成するのに対し、(b)では高温の要素からのNO生成速度が低下する。したがって、火炎領域を攪拌して温度上昇を抑制することができれば、NOx低減に極めて有効であろう。このため無渦流ディスク形燃焼室よりも深皿形を使う方が低NOx化の点で得策である可能性が高い。

図9 種々の混合度における当量比 ϕ の確率密度分布

図10 一様不均一混合気における排気NO濃度

吸気ポート近くで燃料を噴射する場合や燃焼室内に直接燃料を噴射すると、燃料は圧縮終わりまでに十分に空気と混合されず、予混合気になき不均一性があると考えられる。そこで、混合気にこのような一様濃度不均一がある場合のNO生成を同様の熱力学モデルによって推定した。ここでは、濃度の不均一分布を燃料質量分率 y の確率密度関数 $f(y)$ で表し、各混合気要素は同一の $f(y)$ をもって順次熱発生すると仮定する。さらに、前項までの計算で明らかのようにNOの大部分は初期の燃焼で生じるので、NO生成傾向は燃焼始めの濃度不均一によってほぼ表されると考えられる。そこで、ここでは簡単のため $f(y)$ は燃焼過程中一定とする。また、 $f(y)$ は2体衝突・再分散モデル⁹⁾を用いて推定し、不均一性は燃料($y = 1$)と空気($y = 0$)の流体塊に分離した状態からの平均衝突回数 η によって表す。図9に、 $\phi_o = 0.6$ の条件で $\eta = 3, 6$ および12としたときに予測される $f(y)$ を示す。 $\eta = 3$ ではまだ濃度が広い範囲に分布しているのに対し、 $\eta = 6$ ではかなりガウス分布に近づいており、 $\eta = 12$ ではほぼ均一な濃度となる。

図10にメタン-空気混合気のMBT点火の条件で図9の不均一濃度分布として計算したNO排出濃度を示す。 $\eta = 12$ の場合は図5の均一混合気とほとんど等しいNO濃度となるのに対し、 η の減少とともに ϕ_o に対する変化が小さくなって $\eta = 3$ では $\phi_o = 0.4$ でも100 ppmを超える。破線は $\eta = 3$ の不均一混合気の場合の熱発生率経過として既報⁹⁾の直接噴射式機関で得られた結果を用いたものであり、実測の排出濃度変化(○印)と定量的にも大きくは違わない。この場合、比較的クランク角後期まで熱発生が続くので全体的にNO濃度が ϕ_o による変化がさらに少なくなる。

6. 結 言

以上、ガス機関の予混合燃焼におけるNOx生成に及ぼす濃度不均一の影響について理論的に検討した。まず、希薄燃焼の場合について火花点火機関および直接噴射式機関の実験結果を比較し、濃度不均一によってNOx排出濃度に大きな差が生じることを示した。さらに、火花点火機関の燃焼の熱力学モデルを一般化した理論を導き、これによりNO生成量の時間変化を計算して混合気濃度不均一の影響を調べた結果、以下の事項が示された。

(1) 初期に燃焼した予混合部分はその後断熱圧縮されてさらに高温となり、多量のNOを生成することが示される。そのため、とくに希薄混合気において点火時期を早めると、燃焼後の圧力上昇が急激となって高温部を

強く圧縮するのでNO濃度は高くなる。

(2)天然ガスおよびメタン燃料は他の炭化水素燃料よりも燃焼後のモル数の増加が少ないので温度上昇が小さい。そのため、機関から排出されるNO濃度は低く、広い当量比にわたって約半分である。

(3)副室式機関において点火プラグ近傍に量論比近傍の高温の燃焼ガスがあれば、シリンダ内全体で混合気平均濃度が希薄であってもNO濃度は高い。そのため、排出NO濃度を極限まで低く抑えるには、副室容積比をなるべく小さくすることが望ましい。

(4)混合気の成層化により点火の安定化を図る場合、燃焼領域を攪拌して既燃領域内で熱および物質を混合すれば、燃焼ガスの温度上昇が抑えられてNO_xを低減できる。

(5)直接噴射式機関では燃焼室内の混合気濃度に空間的な変動が生じており、そのような濃度不均一があるときには混合気の希薄化によるNO生成量の減少が小さい。そのためNO_x排出濃度の低減には燃焼開始までに燃料-空気の乱流混合を促進することが必要である。

文 献

- (1) 秋篠, 日本機械学会第69期通常総会講演会資料集, D(1992), 220.
- (2) 堀江, 日本機械学会第69期通常総会講演会資料集, D(1992), 223.
- (3) 中國・夏目, 自技論, 23-3 (1992), 3.
- (4) 後藤・ほか2名, 第9回内燃合同シンポジウム講演論文集(1991), 325.
- (5) 池上・ほか4名, 機論, 59-562, B(1993), 2094..
- (6) Lavoie, G.A., ほか2名, *Combust. Science and Technology*, 1-1 (1970), 313.
- (7) Hiraki, H. and Rife, J.M., *SAE Trans.*, 89-1 (1980), 336, *Paper No.800050*.
- (8) 池上・ほか4名, 自技論, 24-4 (1993), 64.
- (9) Curl, R. L., *A. I. Ch. E. J.*, 9-2 (1963), 175.