軽油の層流拡散火炎から生成するナノPMの研究*

迫 利 浩^{*1}, 古 畑 朋 彦^{*2}
天 谷 賢 児^{*2}, 新 井 雅 隆^{*2}Study on Nano-PM Formed from
Laminar Diffusion Flame of Diesel FuelToshihiro SAKO, Tomohiko FURUHATA,
Kenji AMAGAI and Masataka ARAI^{*3}^{*3} Department of Mechanical System Engineering, Gunma University,
1-5-1 Tenjin-cho, Kiryu-shi, Gunma, 376-8515 Japan

Particulate Matter (PM) formation is still one of the most significant problems of diesel engines. PM having a diameter of less than 100 nm is usually called nano-PM which is considered being serious hazardous for human health. The objective of this paper was to obtain knowledge of PM from diffusion flame which was a base of diesel combustion process. For the purpose of it, a fundamental pool combustion flame was used to clarify the nano-PM exhaust behavior from the flame. Diesel fuel and lubricant added diesel fuel were used to clarify the formation process of nano-PM. Number concentration of the PM was measured using a scanning mobility particle sizer (SMPS-3034 TSI), and PM composition was quantitatively analyzed using a combustion type exhaust gas analyzer (MEXA-1370 PM HORIBA). As the result, the number concentration measurement showed that nano-PM number concentration in a diffusion flame increased with increasing lubricant content. The PM component analysis clarified that the nano-PM constituent substances were consist of soot, soluble organic fraction (SOF) and sulfate. The main component of nano-PM exhausted from a small pool flame which had closed flame tail was SOF, however dry soot was the main component of a large flame with sooty flame tail.

Key Words: Diffusion Combustion, Combustion Products, Liquid Fuel, Particulate Matter, Nano-PM, Diesel Fuel, Lubricant

1. 緒 言

ディーゼル機関から微粒子として排出される粒子状物質 (Particulate Matter, 以降PMと略記する) を起因とした大気汚染およびこれを吸引することによる呼吸器系への有害性が指摘されている⁽¹⁾⁻⁽³⁾。ディーゼル燃焼では燃焼過程が不均一な非定常噴霧燃焼場が存在し、その中の不完全燃焼場からPMが生成されているといわれている。また、PMの成分にはSOFやDry sootが含まれていることが明らかにされている⁽⁴⁾⁻⁽⁵⁾。

近年、機関内の燃焼状態の改善により排出されるPMの重量濃度は大幅に減少しつつある。また、燃料性状の改善により燃料中の硫黄分が生成原因であるSulfateの排出量も減少傾向にある。一方、重量濃度にはほとんど寄与してい

ない粒径が100nm以下の微小なPMが多数、ディーゼル機関の排気ガス中に含まれていることが新たな問題として指摘されている⁽⁶⁾。微小なPMは呼吸過程において肺の深部まで到達しやすく、呼吸器系に及ぼす健康被害が粗大なPMに比べて大きいことが危惧されている。そのため、ディーゼル機関内におけるPMの生成機構の解明が進められているが、生成要因としてディーゼル燃焼に特有の原因があるのか燃料や潤滑油成分に原因があるのかなど未解明な点は未だ多く存在する。

実際のディーゼル機関では、高温かつ高圧下の非定常噴霧燃焼場で燃焼が行われているため、燃焼場で生成するPMに与える燃焼形態の影響を詳細に調査することが困難になっている。そこで本研究では、火炎構造が単純な層流拡散火炎を対象とし、火炎から排出されるナノPMの成分分析および個数計測を行った。この層流拡散火炎は、ディーゼル機関内で形成される乱流拡散火炎と火炎形態は異なる。しかし、乱流拡散火炎における火炎面は瞬間的、局所的には層流拡散火炎と同様の構造を有していると考えられる。したがって、層流拡散火炎の火炎構造とPM生成の関係を

* 原稿受付 2006年3月27日。

^{*1} 学生員、群馬大学大学院工学研究科(☎376-8515 桐生市天神町1-5-1)。^{*2} 正員、群馬大学工学部。

E-mail: arai@me.gunma-u.ac.jp

把握することは、乱流拡散燃焼における PM の生成機構を解明するための基礎となると考えている。また、軽油に潤滑油を混入した液体燃料も燃焼させ、潤滑油に代表される高沸点成分の影響を調べた。潤滑油を添加した理由には上述した以外にディーゼル機関の燃焼過程においてシリンダライナに付着した潤滑油の混入が PM の生成に与える影響に焦点を置く意味もある⁽⁹⁾。

2. 実験装置および実験方法

2・1 層流拡散火炎装置 本研究で用いたプール燃焼の実験装置を図 1 に示す。火炎を形成させるための簡単なプール燃焼の装置を本研究では製作した。この装置は燃料供給装置および火炎形成部から構成されている。燃料供給装置はフロートにより火炎形成部の燃料液面を一定に維持する働きがある。また、火炎形成部の円筒容器は高さ調節が可能である。この燃焼装置では液面位置で火炎形成部に供給される燃料流量の調節を行うことで燃焼量を制御する。さらに、装置全体を電子天秤に載せて、燃焼前後の質量減少から燃料消費率の計測を行う。

Fig.1 Experimental setup

火炎形成部の構造を図 2 に示す。燃料は内径 16mm の円筒容器に供給される。容器の中心には燃料の蒸発

Fig.2 Fuel pool with wick and diffusion flame

を促進させるために直径 8mm の焼結金属製の灯芯を置いた。この灯芯により保持されたプール火炎によって液体燃料の層流拡散燃焼を行わせるようにした。また、火炎長さ (L_f) は焼結金属の先端を基点として目視で測定した。

今回の実験では液体燃料にディーゼル軽油 (JIS2 号軽油、硫黄分: 10ppm 以下) を用いた。また、これに潤滑油 (エンジンオイル 10W-30/CD) を重量比で $\alpha_L = 1, 2, 4, 8\text{wt}\%$ の割合で添加した液体燃料も用いた。ここで α_L は軽油と潤滑油を混合した試料燃料中の潤滑油の重量分率を示す。

2・2 PM の計測 PM を含む燃焼ガスはダクト内で周囲の伴流と共に混合された後、サンプリングプローブにより採取される。採取後は希釈器 (PALAS, VKL-100S) で空気により 100 倍に希釈後、Scanning Mobility Particle Sizer (TSI, SMPS3034, 計測粒径: 10 ~ 487nm, 以降 SMPS と略記する) に導入し、粒子個数濃度分布を計測した。SMPS で計測される粒子個数濃度はサンプリングライン内で冷却されて収縮した燃焼ガス中の単位体積当り ($1/\text{cm}^3$) の粒子個数濃度を示している⁽¹¹⁾。ここでの粒子個数濃度は測定時の粒径チャンネル幅で規格化され、 $dN/d\log(dp)$ [$1/\text{cm}^3$] で表される値であるが、ここではこれを単に個数濃度と呼ぶことにする。

個数濃度から単位燃料当りの粒子数を図 3 に示した方法により求めた。まず、Duct 内の流速をトレーサー法によって測定し、平均流速 V とダクトの断面積からダクト内の流量 Q_i を求めた。次に、ダクト出口の燃焼ガス温度 T_{exit} と SMPS の入り口温度 T_{measured} の計測を行い、体積補正を行ったダクト内流量と燃料消費率 M_f を用いて単位燃料当り (1mg) の粒子数を式 (1) より換算した。

Fig.3 Concept of PM sampling

以後, SMPS で計測された粒子個数濃度と区別するため
に単位燃料当りの粒子個数にはアスタリスク (*) を付けた

$$\frac{dN^*}{d\log(dp)} = \frac{dN}{d\log(dp)} \alpha \frac{Q_1}{M_f} \frac{T_{measured}}{T_{exit}} \quad (1)$$

$dN^*/d\log(dp)$:	単位燃料当りの粒子個数 [1/mg · Fuel]
$dN/d\log(dp)$:	SMPS で計測された粒子個数濃度 [1/cm ³]
α :	希釈率 [cm ³ /cm ³]
M_f :	燃料消費率 [mg/s]
Q_1 :	燃焼ガス体積流量 [cm ³ /s]
T_{exit} :	ダクト出口温度 [K]
$T_{measured}$:	SMPS 入り口温度 [K]

PM の成分分析については石英フィルター (Toyo Roshi Kaisha, Ltd. QR-100) を保持したホルダーの後方にポンプを配置して燃焼ガス中の PM の全量を直接, 吸引捕集した。この石英フィルター上に捕集された微量の PM の成分分析に MEXA-1370PM (HORIBA) を用いた。この分析装置では電気炉において PM を気化および酸化させ, 発生するガス濃度から PM を構成している成分の内, Dry soot, SOF および Sulfate の微量分析 (測定範囲: 0~1mg) を行い, 各成分量の合計を Total PM として求めている。本研究では SMPS による分析の場合と同じように火炎から排出される単位燃料当りの PM の排出量として分析結果を評価した。

3. 実験結果および考察

3・1 燃料条件と火炎形状の関係 本実験で使用したプール燃焼装置にて形成される火炎の形状変化を図4の写真に示す。燃料消費率 M_f を 1.50mg/s に調整

すると火炎長さ L_f は 25mm 程度であった。燃料消費率の増加と共に火炎は長くなり, 火炎形状は火炎末端が

閉じた状態から開いた状態に移行する。また, 火炎末端が開いた状態になると, そこからすす (黒煙) の排出が観察できた。以下, 火炎末端が閉じた状態を Closed flame と呼び, 火炎末端が開いた状態を Open flame と呼ぶことにする。

軽油に潤滑油を混合した燃料を燃焼させた場合における火炎形状に与える影響を図5の写真で示す。すべての条件において燃料消費率は 1.50mg/s である。結果として, 火炎長さは 25mm 程度であり, 火炎形状や火炎輝度に潤滑油の影響と見られる顕著な差はなかった。

次に, 軽油と潤滑油を 8wt% 添加した混合燃料を用いて火炎を形成させ, その時の燃料消費率と火炎長さの関係調べた。その結果を図6に示す。燃料消費率の増加と共に火炎長さは若干の変動はあるものの直線的に大きくなる。また, 燃料の相異による火炎長さの変化は計測時の変動幅と同程度であった。一方, 火炎形状について言えばどちらの燃料の場合でも燃料消費率を増やしていくと, 1.80mg/s 付近で形状が Closed flame から Open flame に移行した。

Fig.6 Effect of fuel flow rate on flame length

図中の結果から明らかな通り、流量と火炎長さの関係には微小流量の計測誤差と火炎の長さの目視による決定誤差の双方が含まれている。そこで以下の実験では Closed flame や Open flame という火炎挙動が火炎長さと密接に関連していることを考慮し、火炎長さを基準とした測定条件の設定を行った。

3・2 PM 成分分析 軽油 ($\alpha_L=0\text{wt}\%$) の燃料消費率の変化に対応した PM を構成する各成分の関係を図 7 に示す。縦軸は成分毎の生成量 (M_i) を燃料消費率 (M_f) で規格化した値である。排出される Total PM の絶対量は Closed flame の場合には燃料消費率の 0.01% 程度であったが、Open flame の状態に変化するとそれが 1% 程度にまで増加した。さらに燃料消費率が 1.50 mg/s と低く Closed flame の状態では SOF や Sulfate の生成量が多く、一方、Dry soot は微量であった。燃料消費率を高めると火炎形状は Open flame に移行し、それに伴い PM を構成する主成分が SOF や Sulfate から Dry soot に変わった。言い換えると燃料消費率の低い Closed flame の火炎では凝縮性の PM が生成しており、燃料消費率の高い Open flame の火炎では固体粒子となった PM が主な構成成分であった。

Fig.7 Effect of fuel flow rate on PM components (diesel fuel)

潤滑油を 8wt% 添加した燃料の場合における PM を構成する成分の関係を図 8 に示す。軽油の場合では Open flame に移行する辺りから急激に Dry soot の絶対量が多くなったのに対して、潤滑油を添加した場合には Open flame に移行する手前から Dry soot の絶対量が多くなった。しかし、SOF や Sulfate については両図の

間に差が見られなかった。このことは潤滑油の添加が Dry soot の生成には影響を与えるが、SOF には影響を与えないことを示している。

Fig.8 Effect of fuel flow rate on PM components (diesel fuel with lubricant)

図 7 および図 8 の結果をもとに、軽油と潤滑油を 8wt% 添加した混合燃料について Total PM に占める Dry soot, SOF および Sulfate の絶対量とその構成割合を比較した。その結果を図 9 に示す。左側の縦軸は幅広の棒グラフに対応した単位燃料当りの絶対量、右側は幅狭の棒グラフに対応した構成割合を示している。Closed flame で火炎長さが 25mm の場合では Total PM

Fig.9 Effect of lubricant on PM

の絶対量は微量であるが、それは潤滑油の添加により若干増加した。一方、Total PM 中の各成分を生成割合で比較すると SOF の割合が Total PM の大部分を占め、次いで Sulfate, Dry soot の順であった。しかし、潤滑油を添加すると SOF の割合は減少し、Dry soot および Sulfate は増加した。

Open flame で火炎長さが 62mm の場合では Total PM の絶対量は火炎長さが 25mm の場合に比べて増大し、潤滑油の添加によりそれがさらに増加した。しかし、SOF の絶対量に与える潤滑油の影響は微小であった。生成割合で見ると、この Open flame の条件では Dry soot が Total PM の大部分を占めるようになり、潤滑油の添加で Dry soot の割合は若干増加し、SOF の割合は減少した。

3.3 粒子径分布 図 10 に燃料消費率が小さく火炎長さが 23mm の Closed flame の火炎から生成する PM の個数計測を行った結果を示す。この火炎条件では個数のピークが粒径 10nm 付近に現れた。このピーク付近に注目してみると潤滑油の添加量の増加に伴い PM の個数が増加した。しかし、粒径が 30nm 付近では添加量の増加と共に個数が減少した。また、50nm 以上の領域では全体的に個数が少なく潤滑油の明瞭な影響が現れなかった。

Fig.10 Effect of lubricant on PM size distribution (closed flame, $L_f=23\text{mm}$)

Closed flame という図 10 の場合と同様の火炎形状を持ち、火炎長さが 25mm の火炎から生成する PM の個数計測の結果を図 11 に示す。個数の多い粒径が 30nm 以下の粒子群に注目してみると潤滑油の添加量の増加

に伴い個数が増加した。また粒径が 30nm 以上の粒子群でも、前述した図 10 の結果とは異なり PM の個数が増加する傾向が見られた。

Fig.11 Effect of lubricant on PM size distribution (closed flame, $L_f=25\text{mm}$)

Fig.12 Effect of lubricant on PM size distribution (closed flame, $L_f=30\text{mm}$)

燃料消費率が若干高い、火炎長さが 30mm の火炎から排出される PM の個数計測の結果を図 12 に示す。この条件は Open flame に移行する直前の Closed flame の火炎状態に対応している。粒径が 30nm 以下の個数の多い粒子群に注目してみると、潤滑油の添加量の増加に伴い PM の個数がこれまでの結果と比較して顕著に増加した。しかし、見方を変えると潤滑油が未添加の軽油の火炎から生成する PM の個数が火炎長さが

23mm および 25mm の結果と比較して大幅に減少したと見ることもできる。

図 10～図 12 の結果から潤滑油の添加により 30nm 以下のピーク粒径の粒子数は増加しているが、粒径が小さいため、この増加は図 7～図 9 での PM の質量には現れなかったものと考えられる。すすの排出がない火炎の末端が閉じた Closed flame では、PM 成分の分析結果から類推すると、SOF や Sulfate を主成分とした凝縮性のガスが火炎末端から放出され、この一部が 30nm 以下の粒子として検出されたものと思われる。また、高沸点成分である潤滑油の添加によりこの排出量が増えたものと思われる。しかし、同じ Closed flame でも火炎長さが 30mm と大きくなると、火炎内部での予熱効果の分だけ火炎先端の温度も上昇する。そのため、火炎長さが 23mm および 25mm の場合では未燃の状態では排出されていたガス成分の燃焼が火炎内で進んだ結果、図 12 に示したように粒径が 30nm 以下の凝縮性粒子の個数が減少したものと考えられる。

図 13 に燃料消費率が高く火炎長さが 60mm の Open flame の火炎から排出される PM の個数計測の結果を示す。この火炎条件になると PM はピーク粒径が 200nm 以上となる分布形状を示す。ピーク付近の粒子群に注目してみると潤滑油の添加量の増加に伴い個数が若干増加した。一方、粒径が 100nm 以下の粒子群については添加量の増加と共に個数が減少する傾向が見られた。また、全ての燃料条件において火炎末端からすすの排出が観察できたことから、Open flame の状態では燃料の不完全燃焼が生じていると考えられる。

Fig.13 Effect of lubricant on PM size distribution (open flame, $L_f=60\text{mm}$)

3・4 全粒子数とその質量 潤滑油の添加量が PM の全個数に与える影響を Closed flame である火炎長さ 23, 25, 30mm および Open flame である 60mm について調査した。さらに、ピーク粒径に及ぼす潤滑油の影響も合わせて調査した。その結果を図 14 に示す。ピーク粒径の変化については Closed flame および Open flame 共にわずかながら潤滑油の影響と思われる差異が見られたが全個数と比べてその影響は微小であった。

Fig.14 Effect of lubricant on total number of PM and peak particle diameter

軽油の場合の全個数は火炎長さが 23mm から 30mm と大きくなるにつれ減少した。しかし、潤滑油を添加すると火炎長さが 23mm については添加量の増加と共に全個数は減少する傾向があったのに対して火炎長さが 25mm および 30mm の場合には全個数は増加した。特に、火炎長さが 30mm の場合には潤滑油を 1wt% 添加すると全個数は大きく増加し、その後は添加量に対して緩やかに増加する傾向がみられた。一方、Open flame となる火炎長さが 60mm の場合には、Closed flame の条件と比較して PM の全個数は著しく増加したが、添加量の影響は顕著でなかった。

SMPS では図 10～図 13 に示した粒径分布だけでなく測定した粒子の総体積も求めることが可能である。そこで、粒子の密度を 1.0 g/cm^3 と仮定して⁽⁴⁾⁽¹²⁾、排出される PM の質量 (M_{PM}) を SMPS の結果から求めた。その結果を図 15 に示す。フィルターで捕集した PM の質量と粒径分布から推定した PM の質量は本来同一となるべきであるが、SOF 成分の多い Closed flame ではフィルター捕集の値より小さく、また Dry soot の多い Open flame ではフィルター捕集より大きな値となっている。

SOF 成分の多い Closed flame ではフィルター捕集ではガス成分のフィルターへの吸着があるため、フィルター捕集の値が SMPS から求めた値より大きくなったものと思われる。一方、Open flame では SMPS から質量を求める際に空力直径に対応する球体粒子を仮定して凝集粒子の質量を求めているため、計測範囲外となる 500nm 以上の粒子を無視した以上にその影響が大きく、結果として、フィルター捕集の数倍の値となったものと考えられる。いずれにせよ、SMPS の測定値をもとに粒子の総質量を求める場合では今後多くの検討が必要と思われる。

Fig.15 Effect of lubricant on total mass of PM

4. 結 言

液体燃料を用いて層流拡散火炎を形成し、この火炎から生成される PM を調査した。得られた結果を以下に示す。

(1) 火炎末端からすすの排出のない Closed flame の場合では SOF や Sulfate で構成された凝縮性の PM が生成される。

(2) 火炎末端からすすの排出がある Open flame の場合では PM の大部分は固体粒子の Dry soot になる。

(3) 軽油に潤滑油を添加すると Dry soot が増加し、それに伴い Total PM の排出量も増加する。

(4) PM のピーク粒径が 10nm 付近となる Closed flame の場合では潤滑油の添加量の増加に伴い PM の個数が増加する。

(5) Open flame の場合では粒径が 200nm 以上の PM が生成されるようになり、潤滑油の添加による個数の増加はわずかである。

謝 辞

本研究の一部は鉄道建設・運輸施設整備支援機構「運輸分野における基礎的研究推進制度」における「排気ガス中ナノ PM を構成する揮発性有機物質の解明」として、また一部は(財)日本自動車研究所からの受託研究「ナノ粒子の前駆物質の同定と液体燃料の性状の関連」として行った。ここに記して謝意を表す。

文 献

- (1) Furuyama, A., *Measurement and health effect of Diesel Exhaust Particulate and Nano-PM* (in Japanese) (2005), p. 159, NTS.
- (2) Morawska, L. et al., Experimental study of the deposition of combustion aerosols in the human respiratory tract, *Journal of Aerosol Science*, Vol.36 (2005), pp. 939-957.
- (3) WHO, *Diesel Fuel and Exhaust Emissions*, translated by Kobayashi (in Japanese) (1999), p. 111, MARUZEN.
- (4) Kittelson, D.B., ENGINES AND NANOPARTICLES: A REVIEW, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 29, No.5/6 (1998), pp. 575-588.
- (5) Bartscher, H., Physical characterization of particulate emissions from diesel engines: a review, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 36 (2005), pp. 896-932.
- (6) Kittelson, D. et al., Diesel Aerosol Sampling in the Atmosphere, *SAE TECHNICAL PAPER SERIES*, 2000-01-2212.
- (7) Kahandawala, M.S.P. et al., Impact of lubricating oil on particulates formed during combustion of diesel fuel-a shock tube study, *Fuel*, Vol. 83 (2004), pp. 1829-1835.
- (8) Andersson, J. et al., Fuel and Lubricant Effects on Nucleation Mode Particle Emissions From a Euro III Light Duty Diesel Vehicle, *SAE TECHNICAL PAPER SERIES*, 2004-01-1989.
- (9) Nemoto, et al., Effect of engine oil properties on Particulate Matter, *Japan Clean Air Program Technical Report* (in Japanese) (2000), pp. 1-13.
- (10) Dowling, M., The Impact of Oil Formulation on Emissions from Diesel Engines, *SAE TECHNICAL PAPER SERIES*, 922198.
- (11) Model 3034 Scanning Mobility Particle Sizer, Operation and Service Manual, TSI.
- (12) Shi, J.P. et al., Particle size distribution from a modern heavy duty diesel engine, *The Science of the Total Environment*, Vol. 235 (1999), pp. 305-317.