

水素エンジンにおける EGR ガス成分中の窒素酸化物が 着火遅れ時間に及ぼす影響

—素反応計算による検討—

日大生産工 ○齋藤 郁 日大生産工 今村 幸

1. まえがき

カーボンニュートラルの実現に向けて、燃料としての水素利用が期待されている。水素エンジンの研究は古くから行われており、近年では直噴水素エンジンの研究開発が一層盛んにおこなわれている⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾。水素は、燃焼速度が炭化水素系の燃料と比較して5倍程度早く、最小点火エネルギーも1/10程度であるため、希薄混合気での安定した燃焼が期待できる一方、自着火などの異常燃焼が生じやすい⁽⁶⁾。基礎研究を含めて多くの研究が行われている水素燃焼であるが、未だ詳細な異常燃焼メカニズムは解明されておらず、高効率水素エンジンの実用化に向けて、現象解明と技術開発が必要不可欠である。

そこで本研究では、異常燃焼の要因の一つとされる加熱壁面による自着火現象について、その基礎的特性を実験的に調べることを目的としている。壁面における熱面点火について、雰囲気条件やガス組成などが及ぼす影響について、定容容器を用いた基礎試験を行う予定であるが、本報では燃焼実験の前段階として、素反応計算を用いて水素エンジンEGRガス成分である一酸化窒素や二酸化窒素、水蒸気が自着火温度、着火遅れ時間に及ぼす影響を調べた。

2. 素反応計算モデル

本報では気相計算のみを対象とし、0次元の計算を行った。素反応計算には、ANSYS社のChemkin-proを用い、素反応モデルには、GRI-Mech3.0⁽⁷⁾を用いた。詳細な計算条件を表1に示す。反応器には0次元Closed Homogeneousモデルを用い、圧力一定でエネルギー方程式を解くことで、着火遅れ時間等を求めた。また計算時間は100 msとし、初期温度、圧力、当量比を主なパラメータとし計算した。EGRガス成分中の窒素酸化物として、一酸化窒素、二酸化窒素を添加し、それ以外として水蒸気とアンモニアを添加し、計算を行った。

図1に当量比1.0、初期温度1000 K、圧力0.1 MPaにおける計算結果を時系列で示す。縦軸は熱発生率と温度、横軸は時間である。およそ0.3 ms後に熱発生率のピークを迎え、温度も急上昇していることが見て取れる。本研究においては着火遅れ時間 τ_{ign} を、熱発生率が 1.0×10^4 J/cm³ sec以上で、最大値となった時刻と定義した。

Table.1 Calculation conditions and reaction model.

Type		0D Closed Homogeneous Constrain pressure and solve energy equation
Time	msec	100
Initial Temperature	K	500 ~ 1000
Equivalence ratio		0.4 ~ 1.4
Pressure	MPa	0.1 ~ 2.0
Volume	cm ³	1
Reaction model		GRI-Mech 3.0 325 elementary chemical reactions 53 species

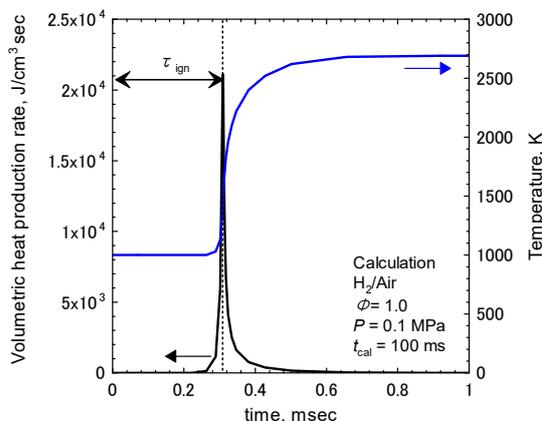
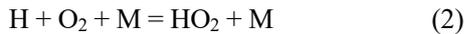


Fig.1 Definition of ignition delay time.

3. 結果および考察

3.1. 圧力および当量比の影響

図2に水素/空気混合気における初期温度および圧力が、着火遅れ時間に及ぼす影響について計算した結果を示す。縦軸は圧力、横軸は当量比、カラーコンターは着火遅れ時間 τ_{ign} である。初期温度は1000 Kとした。この条件下においては、圧力が0.1~0.2 MPaと低い条件で着火遅れ時間が短くなっていることがわかるが、これは連鎖分岐反応(1)式と再結合反応(2)式で説明することができる⁽⁸⁾。



(1)(2)式ともに反応物は同じであるが、(1)式では反応性が高いラジカルが2個できるのに対し、(2)式ではO, OHに対して反応性の低いHO₂ラジカルが1個生成される。(2)式の反応速度は第三体Mの濃度、すなわち圧力に比例するため、圧力が高いほど(2)式の割合が高くなり、ラジカル数が減少する(連鎖停止反応)。そのため圧力が低い条件ほど、着火遅れ時間が短くなっていると考えられる。一方、圧力が0.1~0.2 MPa程度では着火遅れ時間は当量比のほぼ依存していないが、圧力が高いと当量比が低いほど着火遅れ時間が長くなっている。これは当量比が低いとすなわち燃料である水素の濃度が低くなっているためであると考えられる。

3.2. 圧力および初期温度、添加成分の影響

前項の結果より、0.1~0.2 MPaと比較的低い圧力条件では当量比が着火遅れ時間に及ぼす影響は小さく、高压条件でも圧力ほどの依存度はないことが示された。またNO_x排出等の観点から、低当量比で水素エンジンを稼働させることが望ましいと考えられるが、筒内直噴を考えた場合、当量比1.0付近の領域が生まれる可能性は高い。そこで本項では、当量比を1.0に固定し、圧力および初期温度、添加成分の影響を調べた。図3に初期温度を1000 Kとした場合の計算結果を示す。縦軸は着火遅れ時間 τ_{ign} 、横軸は圧力である。○は水素/空気混合気、□は一酸化窒素を1000 ppm添加した場合、△は二酸化窒素を1000 ppm添加した場合、▽はアンモニアを10%添加した場合、◇は水蒸気を10%添加した場合の結果である。いずれも感度を高くするために、濃度を高めに設定した。またアンモニアはEGRガス中に含まれないが、水素やNO_xから改質することを想定して、今回は計算対象

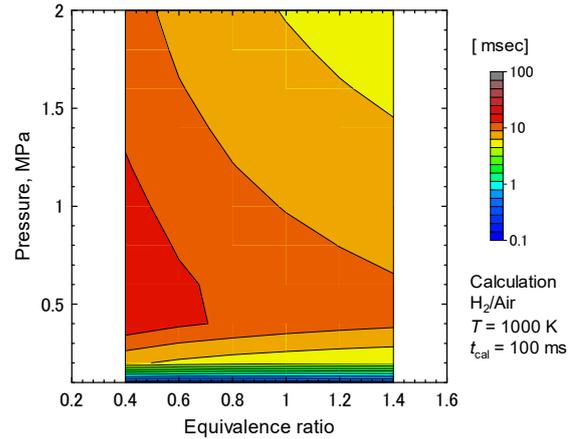


Fig.2 Effect of pressure and equivalence ratio on ignition delay time in H₂/air mixtures.

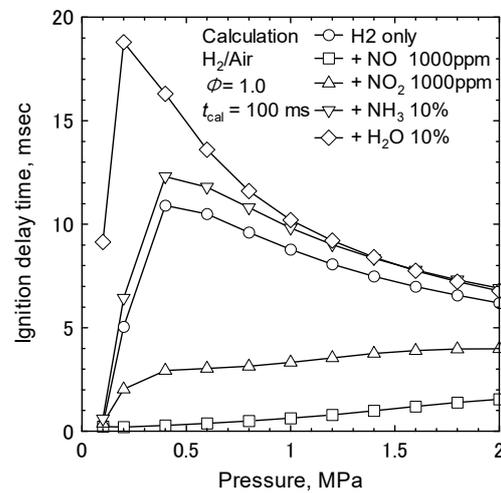


Fig.3 Effect of pressure and added components on ignition delay time.

とした。水素のみの場合、前述の通り低圧ほど着火遅れ時間が短く、今回の条件では0.4 MPaを変曲点として、高压側でまた着火遅れ時間が短くなっている。アンモニアを添加した場合も、トレンドはほぼ同じで、どの圧力域でも若干着火遅れ時間が長くなる程度であった。水蒸気を添加した場合は、特に低圧側で大きく着火遅れ時間が長くなることがわかった。これは水蒸気を添加することによって混合気が希釈され、水素と酸素の濃度が相対的に低くなり、低圧ほどその影響が強くなるためと考えられる。一方、一酸化窒素と二酸化窒素を添加した場合、0.1 MPaでは着火遅れ時間はほとんど変わらないものの、0.2 MPa以上では着火遅れ時間が大幅に短くなることがわかった。特に一酸化窒素を添加した場合は顕著に短くなり、水素/空気混合気でみられた圧力依存性も変わってきてい

る。これは一酸化窒素および二酸化窒素が触媒効果となり、(3)~(5)に示す連鎖分岐反応を進行させ、相対的にラジカルが増加したからだと考えられる⁽⁹⁾。

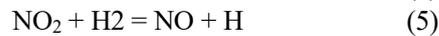
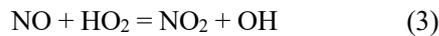


図 4~6 に圧力と初期温度が着火温度および着火遅れ時間に及ぼす影響を計算した結果を示す。図 4 は水素/空気混合気、図 5 は一酸化窒素を 1000 ppm 添加した場合、図 6 は水蒸気を 10% 添加した場合である。当量比は 1.0 で、カラーコンターは着火遅れ時間である。なお、灰色の領域は計算時間 100 ms で着火しなかった領域である。水素/空気混合気の場合、圧力が高くなるほどに若干着火温度も低くなるが、およそ 900~950 K が着火温度であった。一方、一酸化窒素を添加した場合、同じ圧力・温度での着火遅れ時間が短くなるだけでなく、着火温度が大幅に低くなることがわかった。特に 0.1~0.2 MPa では 650 K 程度でも 100 ms 以内に着火している。低圧条件で着火温度が下がったのは、3.1 節で述べたように連鎖分岐反応が支配的になり、なおかつ一酸化窒素が触媒的な役割をしたことで、さらに連鎖分岐反応を助長したからだと考えられる。水蒸気を添加した場合、低圧条件では若干着火温度が高くなるものの、大きくは変わらず、高圧ではほとんど変わらないことがわかった。

4. まとめ

素反応計算を用いて、窒素酸化物などの EGR ガス成分が水素/空気混合気の着火遅れ時間・着火温度に及ぼす影響を調べた。得られた結果を以下に示す。

- (1) アンモニアや水蒸気を添加することにより、着火遅れ時間は長くなる。特に水蒸気を添加した場合は、0.1~0.6 MPa 程度で大きく着火遅れ時間が延びる。
- (2) 窒素酸化物を添加した場合、一酸化窒素、二酸化窒素によらず着火遅れ時間が大幅に短くなる。特に一酸化窒素の場合は 0.2 MPa 以上で大幅に着火遅れ時間が短くなり、1/4~1/40 程度であった。
- (3) 一酸化窒素を添加した場合、自着火温度も大幅に下がり、650 K 程度でも 100 ms 以内に自着火する可能性がある。

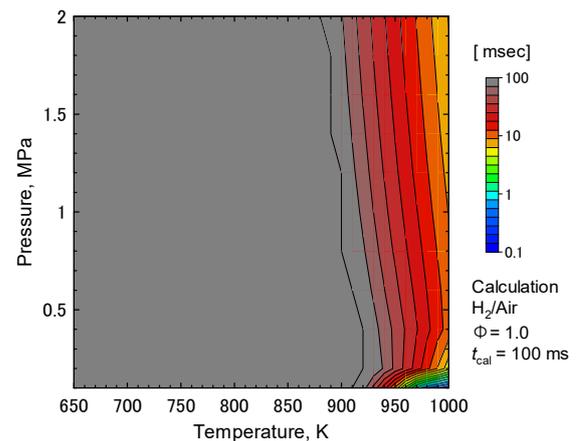


Fig.4 Effect of pressure and initial temperature on ignition temperature and ignition delay time (H_2/Air).

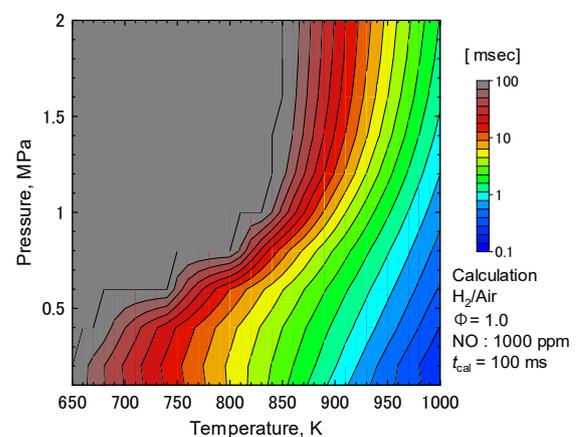


Fig.5 Effect of pressure and initial temperature on ignition temperature and ignition delay time. (NO : 1000 ppm)

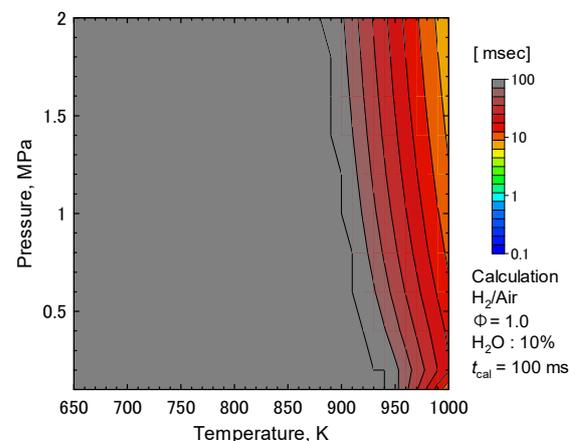


Fig.6 Effect of pressure and initial temperature on ignition temperature and ignition delay time. ($\text{H}_2\text{O} : 10\%$)

以上より、水素エンジンEGRガス成分中に含まれる窒素酸化物は着火遅れ時間を短くするだけでなく、自着火温度を低くすることが示された。また水やアンモニアの着火遅れ遅延効果は少ない。次の段階として定容容器を用いた燃焼実験を行っていく予定である。

参考文献

- 1) Eichlseder, H., et al., The Potential of Hydrogen Internal Combustion Engines in a Future Mobility Scenario, SAE Technical Paper (2003), 2003-01-2267.
- 2) Kiesgen, G., et al., The New 12-Cylinder Hydrogen Engine in the 7 Series: The H2 ICE Age Has Begun, SAE Technical Paper (2006) 2006-01-0431.
- 3) 川村淳浩 他, トラック用水素エンジンシステムの開発, 自動車技術会論文集, Vol.12 NO.4 (2011), p.909-914
- 4) S. Verhelst, T. Wallner, Hydrogen-fueled internal combustion engines, Progress in Energy and Combustion Science, NO.35 (2009), p.490-527
- 5) N. Villenave, et al., Experimental investigation of NOx impact on ignition delay times for lean H2/air mixtures using a rapid compression machine under internal combustion engine conditions, Fuel, Vol. 374 (2024) 132482.
- 6) 松原直義 他, 水素エンジンにおける異常燃焼の発生メカニズムの解析, 自動車技術会論文集, Vol.54, No.1 (2023)
- 7) The Gas Research Institute, "GRI-Mech", <http://combustion.berkeley.edu/gri-mech/releases.html>
- 8) 越光男, 水素安全の基礎:水素の燃焼・爆発の化学反応機構, 水素エネルギーシステム, Vol.36, No.3(2011)
- 9) W. Ray Laster, Paul E. Sojka, Autoignition of H2-air - The effect of NOx addition, Journal of Propulsion and Power, Vol.5, No.4 (1989), p.385-390.