

マイクロフローリアクタで生成したすす粒子の粒径分布と計算

日大生産工(院) ○黒川 麟太郎
日大生産工 秋濱 一弘 高橋 栄一 齋藤 郁
大分大 橋本 淳

1. 諸言

近年、二酸化炭素排出量削減のため、内燃機関に対しては飛躍的な熱効率の向上が求められている。熱効率を向上させるために高過給化、高圧縮比化が進められ、燃料の筒内直接噴射型(直噴)ガソリンエンジンの普及が進んでいるが、直噴ガソリンエンジンはポート噴射型ガソリンエンジンと比べ粒子状物質(PM)の排出量が多い事が問題視されている。このような背景から各国では乗用車から排出されている排ガスのPM規制が厳格化されており、さらに粒子数(PN)規制も導入され自動車メーカーは排ガス規制がに先行して新たなPMとPN排出低減法を確立していく必要がある。そこで3次元数値流体計算(3D-CFD)を活用し、予測結果をエンジン開発に反映させることが重要である。従来行われてきた実機ベースよりも開発効率を高めることができる手法の開発を進めており¹⁻⁹⁾、最近では粒径分布の予測も可能になりつつある¹⁰⁾。粒径分布の予測モデル精度向上には様々な検証データが必要となる。そこで本研究ではマイクロフローリアクタという単純な反応場にてすす生成実験を行い排出微粒子を計測することで、粒子数や粒径分布が予測できるPN予測モデル構築に必要な検証データの収集を目的としている。マイクロフローリアクタを用いた先行研究¹¹⁾ではプロパンを燃料とした検討を行ったが、ガ

ソリンなど実際の燃料に近い液体燃料での検討が望ましい。そこで今回は液体燃料としてイソオクタンを新たに追加した。本報では実験方法及び実験装置・結果ならびにセクショナル法による粒径分布の計算、さらに実測値との比較を試みた結果について報告する。

2. 実験

2.1. 方法・装置

図1に実験装置概略図を示す。電気炉で加熱される内径2mm外径4mmの石英ガラス管をマイクロフローリアクタとして用い、燃料の熱分解により流れ方向にほぼ一次元とみなせるすす生成反応場を形成する(加熱は約300mm)。液体燃料のイソオクタンを用いる場合は、⑥のマイクロシリンジによって所定の流量を⑧の加熱気化部まで連続的に液送し、窒素ガスと混合した。その後、混合ガスをマイクロフローリアクタに流通・加熱し、熱分解によってすす粒子を生成させた。生成したすす粒子を含んだ排出ガスは⑪の希釈部にて空気で希釈を行う。希釈倍率は500倍に設定した。空気希釈をされたガス中の粒子に付着した揮発成分を除去するため⑭の揮発性粒子除去装置(東京ダイレック)を通した後、⑮のPAMS(ポータブル・エアロゾル・モビリティ・スペクトロメータ, Kanomax)にてサンプリングを行うことですす粒子径分布を計測し

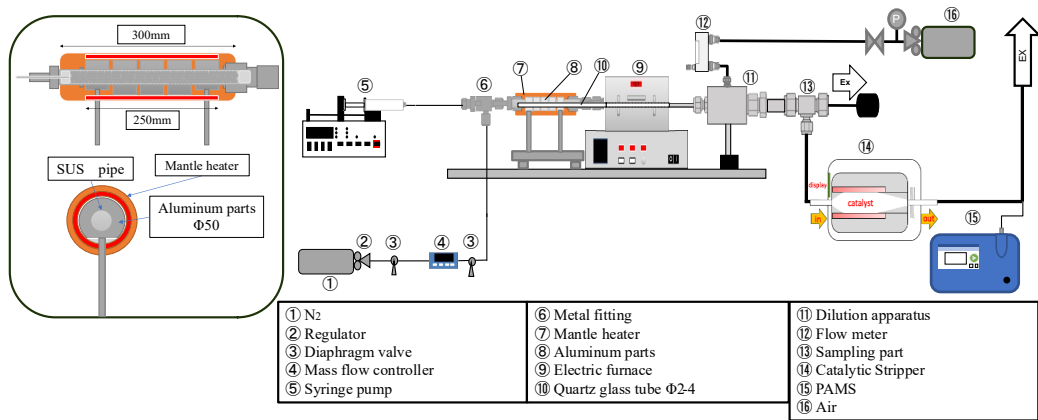


図1 装置図

Measurement and Calculation of Soot Particle Size Distribution
from Micro-Flow Reactor

Rintaro KUROKAWA, Kazuhiro AKIHAMA, Eiichi TAKAHASHI,
Iku SAITO and Jun Hashimoto

た。PAMSの測定粒径レンジを10~433nmのハイレゾリューションモードに設定して測定を行った。実験手順は、電気炉内に石英ガラスを設置し、最初に窒素をガラス管内に流した状態で電気炉を所定の温度まで加熱した。その後、ガラス管内の流体をイソオクタン/窒素混合ガスに切り替えてすすを生成させ、粒径分布を計測した。

2.2. 実験条件

表1に実験条件を示す。反応時間は電気炉加熱部(～300mm)のガス流速から見積もった値である。

表1 実験条件

Gas Composition	$C_8H_{18} : N_2$			
	0.5 : 99.5	1.0 : 99.0	1.5 : 98.5	2.0 : 98.0
Temperature(K)	1333			
Reaction Time(s)	0.28			

3. セクショナル法による粒径分布計算

すす粒子計算には主に二つの方法がある。一つはモーメント法で、計算負荷は少ないがすす粒子の質量や平均粒径など平均的な特性しか計算できない。もう一つの方法はセクショナル法で、より多くの計算時間を要するが、粒径分布を計算することができる。本研究ではAnsys Chemkin-Proに実装されているセクショナル計算を用いた¹²⁾。セクショナル法では粒径サイズ領域を有限数のセクション(またはBin)に分割する。セクション内の粒子サイズ分布、つまり粒子の個数密度をデルタ関数で近似し、これをノード(node)と呼ぶ。その定式化は、離散化ポピュレーションバランスと呼ばれ、ノードを用いた離散モデルによって過度の計算要求を回避し、

モーメント法による過度の単純化を回避している。ノード k で代表する粒径サイズクラス k における粒子のポピュレーションバランスすなわち General Dynamic Equation (GDE)は以下で与えられる。なお N_k はノード k における粒子の数密度である。

$$\left. \frac{dN}{dt} \right| = \left. \frac{dN}{dt} \right|_{\text{nucleation}} + \left. \frac{dN}{dt} \right|_{\text{coagulation}} + \left. \frac{dN}{dt} \right|_{\text{surface}} \quad (1)$$

3.1. 反応モデルと核形成及び表面反応

気相反応及び核形成は、モーメント法の検討を通じて開発した「GSFモデル」[4]を用いた。ガソリンサロゲート燃料用に開発したモデルであり、本研究で用いる燃料のイソオクタンにも適用可能なモデルである。化学種数233、気相反応1375が考慮されている。核形成モデルは、燃料の気相反応プロセスで生じたPAHを前駆体とし、PAHどうしの二体衝突によって生成した二量体をすすり粒子核として扱う。本研究では4環のpyreneから7環のcoroneneまで8つのPAHをすすり前駆体として考慮することによって8種のPAH同士の二体衝突による36通りの核形成反応を考慮している。表面成長モデルはmodified HACA メカニズムを用いた。すすり前駆体のpyreneからcoroneneまでの計8種のPAHの凝集反応も考慮している。

3.2. 凝集

式(1)の GDE 中の凝集項は以下で与えられる。

$$\left. \frac{dN_k}{dt} \right|_{\text{coagulation}} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \chi_{ijk} \beta_{i,j} N_i N_j - N_k \sum_i \beta_{i,k} N_i \quad (2)$$

一般に(1)の解析解を求めることは難しく、数値的な手法が用いられる。具体的にはセク

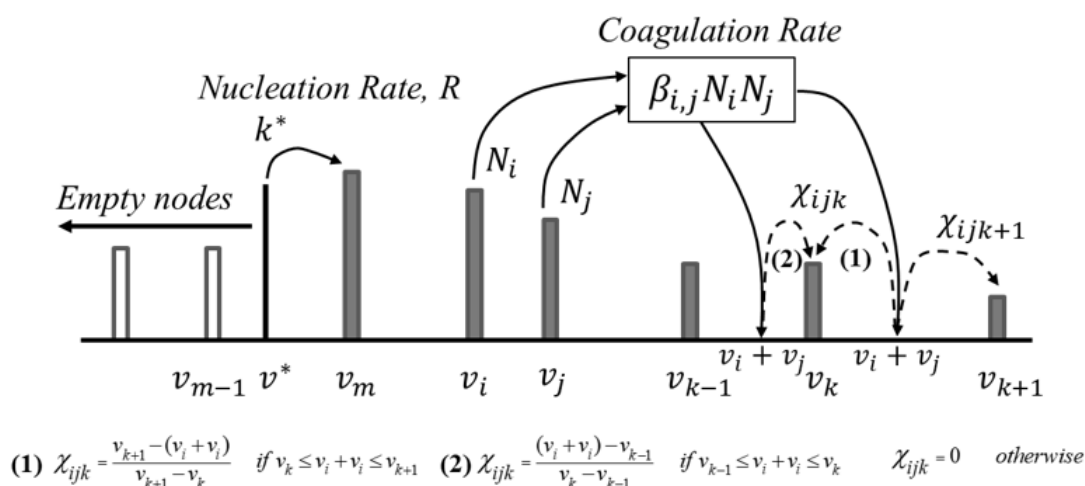


図2 セクショナルモデルの概要

ション内の粒子サイズ分布つまり粒子の個数密度をデルタ関数で近似したnodeを用いた離散化ポピュレーションバランスによって計算している。右辺の第一項はサイズ*i*と*j*の粒子の衝突によるサイズ*k*の粒子の生成率で、第二項はサイズ*k*の粒子が他のすべての粒子との衝突によって失われる速度である。図2はセクショナル法のアルゴリズムの模式図である。核生成は臨界クラスター径より少し大きいノードで発生する。凝集では体積*v_i*と*v_j*の粒子が衝突し、体積*v_i+v_j*の粒子が生成される。この体積が2つのノード間にある場合、質量保存の制約のもと、新しい粒子は隣接するノードにサイズ分割演算子 χ_{ijk} によって分割される。なお本研究ではnodeの間隔を2とし、セクション数を35と設定した。また式(2)中の衝突頻度関数($\beta_{i,j}$)は以下で与えた。

$$\beta_{i,j} = \gamma C_a \sqrt{\frac{\pi k_B T}{2\rho_p}} \sqrt{\frac{1}{v_i} + \frac{1}{v_j}} (D_i + D_j)^2 \quad (3)$$

ここでここで k_B はボルツマン定数、 ρ_p はすす密度 (1800kg/m³)、 D は粒子直径である。 C_a は van der Waals 強調因子であり、通常 2.2 が与えられる。ここで今回、計算において衝突頻度を変化させるため、式(3)中に補正係数 γ を設定した。なお実測値と計算値との比較においては、粒子数の絶対値は対象としない。この理由はマイクロフローリアクタから PAMS に導入されるまでの流路での粒子付着の度合いを見積もることが難しいためである。したがって粒径分布の形のみを検討対象とした。

4. 結果

4.1. イソオクタン熱分解のすす粒径分布

実験結果を図3に示す。温度を 1333K、反応時間を 0.28s で固定し、イソオクタンの濃度を 0.5%~2.0% で変化させ、各条件で生成された粒子の最大値を 1 として正規化したものである。同じ温度、反応時間でも濃度が 0.5% では粒径のピークが 30nm 程度であるのに対し、濃度 2% では 80nm 程度まで変化していることから、濃度が高くなるにつれて生成される粒子の成長が進行していることが分かる。

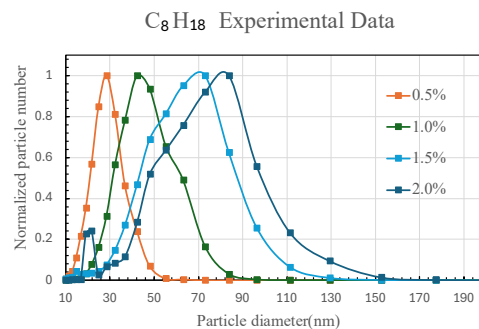


図3 各濃度でのイソオクタンのすすの粒径分布

4.2. 計算値との比較

図4は、各々のイソオクタン濃度における実測と計算で得られた分布を重ね合わせたものである。計算はマイクロフローリアクタでの実験値と比較するため、イソオクタン流量及び流速から電気炉内の通過時間を算出しこれを反応時間とした。0次元反応計算をマイクロフローリアクタの出口までの通過時間を 0.28s で計算を行い、リアクタ出口の粒径分布を計算し、PAMS で有効な計測結果を得られる 10nm 以上の範囲で粒子数の最大値を 1 として正規化した。衝突確率の補正係数 γ は 0.023, 0.045, 0.16, 0.45 および 1.0 で行った。図を見ると濃度によらず $\gamma=0.16$ が実測分布と良く一致することが分かる。特に濃度変化に伴う粒子の立ち上がり粒径や最大値の変化は良く一致している。適切な γ の値を与えればセクショナル法によって概ね妥当な計算が可能であることもわかる一方、 γ が 1 以下ということはイソオクタンの粒径分布計算では標準的な粒子化速度を抑制した計算が必要であることを示している。理由として、気相反応モデル自体の燃料依存性の精度やすすの表面状態・3次元高次構造（フラクタル次元）の燃料による違いが考えられる。計算では粒子を球で扱うため、単純な衝突モデルと実際のすすの衝突現象との差異が γ の値に集約された可能性がある。いずれにしても現時点では不明であり、実際のすすの形状の調査や燃料を変化させた場合などの詳細な検討が必要であると考えられる。

5. 結言

マイクロフローリアクタを用いたすす粒子の生成実験を行い、得られた実験結果と、Chemkin-Pro を用いた計算結果の比較を行い以

下の結論を得た。

- (1) マイクロフローリアクタを用いた実験において、計算と同様のピーク推移を得られ、濃度変化に伴う分布ピークの大粒径側へのシフトの様子を良く再現した。
- (2) 今回の計算においては粒子の凝集過程における衝突頻度関数中の van der Waals 強調因子に補正係数 γ をかけて凝集の度合いを変化させ燃料としてイソオクタンを用いた今回の結果では $\gamma=0.16$ において実験の結果を再現した。
- (3) セクショナル法の計算でも補正係数の値を適切に選べば実測の粒径分布やその生成条件による分布変化を捉えることができ、セクショナル法の妥当性が示された。

今後は燃料依存性を検討するため、他の液体燃料（トルエン、ノルマルヘプタン）やこれらの混合燃料の粒径分布計測と計算を進める予定である。

謝辞

本研究は文科省科研費 22K12431 の助成を受けたものです。また希釈方法は、群馬大学 荒木幹也教授にご指導頂いた。ここに記し、謝意を表す。

参考文献

1. 由井寛久・生井裕樹・今村宰・橋本淳・秋濱一弘, 自動車技術会論文集 48(6): 1207-1212(2017).
2. 秋濱一弘・由井寛久・生井裕樹・岩田和也・今村 宰・石井一洋・橋本 淳, 自動車技術会論文集 49(6): 1132-1137 (2018).
3. 熊仟・武田拓也・窪山達也・森吉泰生・秋濱一弘・橋本 淳・鈴木央一, 自動車技術会論文集 50(3): 711-716 (2019).
4. 秋濱一弘・門脇直哉・今村宰・石井一洋・橋本淳, 自動車技術会論文集 50(5): 1255-1260 (2019).
5. 橋本淳・石井一洋・秋濱一弘, 自動車技術会論文集 50(6): 1515-1522 (2019).
6. 橋本淳・渡邊竜之介・田上公俊・石井一洋・秋濱一弘, 自動車技術会論文集 51(6): 991-998 (2020).
7. 橋本淳・田上公俊・金尚明・窪山 達也・森吉 泰生・秋濱 一弘, 自動車技術会論文集 52(6): 1304-1310 (2021).
8. 渡邊竜之介・橋本淳・田上公俊・金尚明・窪山達也・森吉泰生・秋濱一弘, 自動車技術会論文集 52(2): 213-219 (2021).
9. 秋濱一弘・中村真菜・石井一洋・橋本淳,

自動車技術会論文集 53(2): 340-346 (2022).

10. 橋本 淳・窪山 達也・秋濱 一弘, 自動車技術会論文集 55(4): 785-791 (2024).
11. 黒川麟太郎・長谷川舜一・今村宰・高橋栄一・秋濱一弘, 日本機械学会 2023 年度年次大会 (2023).
12. Ansys Chemkin-Pro Theory Manual, 2022 R1, Chapter19(2022).

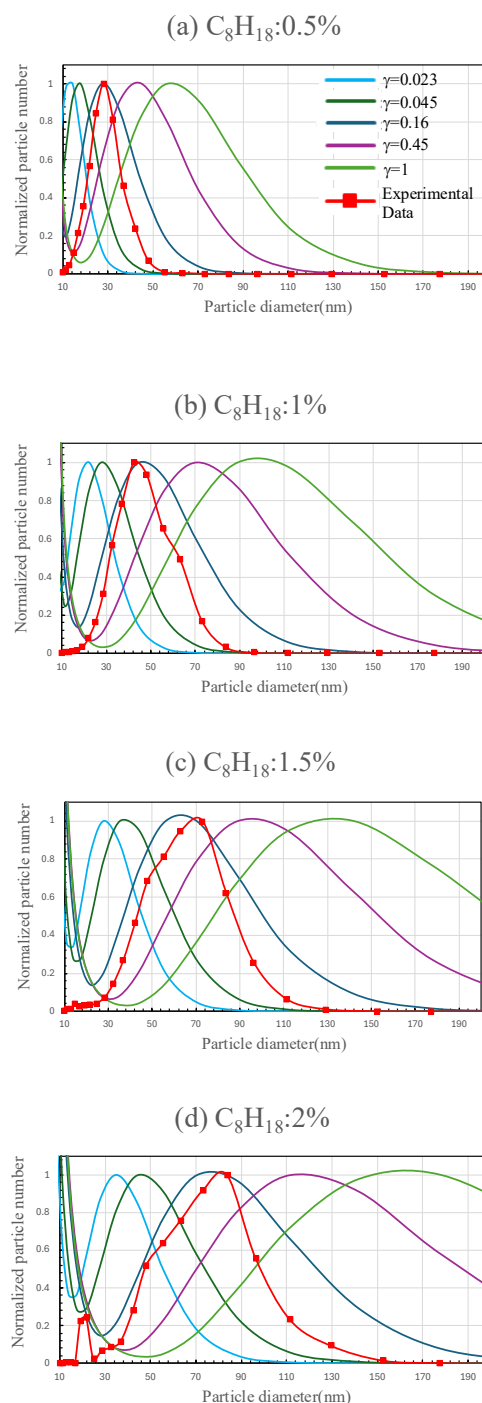


図4 各濃度における計算と実験結果の比較