目次

E	次			1
第	; —	章	序論	3
-	l.1	研究(の背景	3
-	1.2	HCC	21 エンジン ······	4
-	L.3	HCC	◯I エンジンに関するこれまでの研究 ⋯⋯⋯⋯⋯⋯	5
-	1.4	本研究	究の目的	6
第	5_	章	実験装置および実験方法	7
6	2.1	急速	圧縮機	7
	2.1	l.1 1	急速圧縮機の概要	7
	2.1	L.2 倉	急速圧縮機の作動	8
4	2.2	制御	系および測定系	9
	2.2	2.1 A	A/D 変換ボード	10
	2.2	2.2 E	圧電圧力センサー	10
	2.2	2.3 (CCD カメラ	11
	2.2	2.4 パ.	゚ルスジェネレータ	
	2.2	2.5 7	オシロスコープ	
4	2.3	レー	ザ	12
	2.3	3.1 N	ND:YAG レーザ	12
	2.3	B.2 C	OPO レーザ	12
4	2.4	光学	系	13
	2.4	4.1)	光学フィルタ	13
	2.4	4.2 7	アルミ平面ミラー	13
-	2.5	可燃	性混合気	14

2	.6 実	€験の概略 ⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯	14
	2.6.1	1 実験条件および装置概要	
	2.6.2	2 燃焼室形状	
	2.6.3	3 実験手順	
第	三重	章 LIF 法の原理および解析方法 .	
3	.1 L	.IF 法の概要 ⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯	
3	.2 L	.IF 法の原理 ⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯⋯	
	3.2.1	1	
	3.2.2	2 Boltzmann Fraction	
	3.2.8	3 Spectral Overlap Integral	
第	四章	章 実験結果および考察	25
4	.1 日	E力履歴 ······	25
4	.2 L	JF 法による NO 濃度計測	25
	4.2.1	1 励起波長の選択	
	4.2.2	2 NO 濃度と蛍光強度の関係	
	4.2.1	1 HCCI 燃焼における NO 濃度	
第	五貢	章 結論	
謝	辞.	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	
参	考	文献	30

第一章 序論

1.1 研究の背景

内燃機関の発明により,20世紀,人類は目覚しい発展を遂げ,快適 かつ便利な生活を手に入れた.その一方でわれわれはエネルギー消費 量や廃棄物の増大など,環境に対する負荷を高めつづけた.

内燃機関による NO_x(窒素酸化物), SO_x(硫黄酸化物)排出量の増 大は森林破壊,酸性雨の原因となっている.また CO₂濃度の増加は地 球温暖化の原因となる.

このような問題の解決のため,電気自動車やハイブリッド自動車な どの未来型自動車の研究が行われている.しかし,電気自動車はバッ テリーの蓄積量にまだまだ限界があり,電気エネルギーを生む発電所 でも,有害排出物の削減が必要であるなどの問題がある.ハイブリッ ド自動車に関しても,従来型の自動車に比べれば有害排出物は少ない が,コスト面で割高になる.このように,未来型自動車が幅広く普及 するためには依然として様々な課題が残されており,当分の間は従来 から用いられている火花点火機関や圧縮点火機関などの内燃機関が動 力源の中心になると考えられる.実際,米国のエネルギー省が 2001 年に発表した世界の長期エネルギー需要見通しにおいても,現在から 2020年までエネルギー需要の構成比は,石油は40%で横ばいである. そのため,自動車がクリーンな次世代推進システムに移行するために は,内燃機関そのもののさらなる改善が必要である.以上述べてきた ことから,人類の今後の生活および発展のためには内燃機関は不可欠 であるが,それは環境にやさしいものでなければならない.理論熱効

3

率だけを考えるならば、内燃機関においては圧縮比などを上げること によって効率の増加は可能である.しかし、燃焼温度が上昇するなど の影響で、NOx 濃度は増加してしまう上、ガソリンエンジンにおいて は、ノッキングの影響もあり、圧縮比には上限がある.熱効率の高い ディーゼルエンジンにおいても、NOx と未燃炭化水素の排出レベルは 低くない.触媒による排気後処理システムも有効であるがコスト面で 問題がある.つまり、従来のレシプロエンジンでは熱効率向上と排ガ スのクリーン化を同時に実現化するのは困難である.そこで、近年、 熱効率向上と低 NOx 化を同時に実現する新しいレシプロエンジンと して、HCCI(予混合圧縮自着火)エンジンが注目されている.

1.2 HCCI エンジン

HCCI と は Homogeneous-Charge Compression-Ignition combustion であり, つまり, 予混合圧縮自着火燃焼のことである.こ の燃焼方式は, ガソリンエンジンの均質混合気をディーゼルエンジン の圧縮着火燃焼を取り入れた,低公害かつ高効率化を実現できる内燃 機関として分類される.HCCIエンジンの始まりは古く,1970年後半 には,大西繁が「活性熱雰囲気燃焼」と呼ぶ燃焼現象を報告している. また,1980年代には先駆的な研究者によって研究が進められ,平尾収 (東大名誉教授)が ATAC と命名している.ヨーロッパでは,「制御 された自己着火」(controlled auto-ignition)と呼称され注目を浴びて いた.

HCCI 燃焼は,火炎伝播限界を超えた超希薄領域でも燃焼することが可能である.そのため,燃焼温度は低くなり,NOxの生成量を低減

4

することができる.また,燃料と空気は完全に混合され,酸素不足が 起きないので燃焼時にすすがほとんど生じない.その他,ディーゼル エンジン並みの高い圧縮比で運転できるため,熱効率が高く,吸入す る空気を絞らずに混合気を供給するために,「ポンピングロス」がない といった特徴が挙げられる.

このように,多くの利点を持った HCCI 燃焼だが,依然として問題 点もかかえている.第一に,燃焼の開始時期となる着火の制御である. HCCI 燃焼では,火花放電や燃料噴射のような着火手段が無く,混合 気の圧縮による自然着火に依存するため,着火制御には反応動力学な 視点からの操作が必要となる.第二に,燃焼反応の完結性である.未 燃炭化水素と CO の排出量が多く,燃焼室内のガス温度が一定以上に 到達しないと燃焼効率が上がらず,未燃炭化水素と CO の排出量も減 らない.第三に,燃焼の進行が速すぎるという問題点である.圧縮に より燃焼室内温度が十分高くなると混合気の大部分が同時に着火,燃 焼してしまう.熱効率の観点からすると熱発生率に幅を持たせ,ある 程度燃焼を継続させる必要がある.その他,HCCI エンジンは作動領 域が狭く,この問題を解決しない限り,実用化は困難であると考えら れる.

1.3 HCCI エンジンに関するこれまでの研究

上記で述べた問題点を解決するため,研究者は様々なアプローチに よって問題解決を試みてきた.^{[1]-[6]}ここでは,そのような研究をいく つか記述する.

山崎らは, EGR による希釈および空気による希釈によって,反応速

度の制御や高効率燃焼の確保,HC,COの排出量低減を行なった.金 子らは,水またはメタノール噴射により着火時期制御と運転領域の拡 大を試みた.平谷らは圧縮比,吸気温度,吸気組成,空燃比を変化さ せることで,燃焼時期と燃焼期間を制御した.田らは,メタン 正ブ タン予混合気の正ブタンの混合割合を変化させ,熱発生量,モル分率 履歴,着火時期等に及ぼす影響を調べた.佐古らは,天然ガスのHCCI 燃焼において,吸気温度,圧縮比など初期条件を変化させた時の機関 性能や排気特性を調べた.この研究における排気ガス中のNO濃度は, 当量比 0.5 では 250ppm とやや高く,それより低い当量比では 40ppm 前後,条件によっては 10ppm 以下であった.

1.4 本研究の目的

上述のように, HCCI 燃焼の過去の研究では, 燃焼制御等を行なう ため,当量比, 圧縮比, 吸気温度, その他燃料成分などの作動条件を 変化させるというアプローチが主だったものであった.しかしながら, 燃焼室内の NO 濃度計測はほとんど行なわれておらず, 作動条件等が NOx 排出特性に及ぼす影響などはまだ未解明な点が多く残されてい る.そこで,本研究においては, n-butane-Air HCCI 燃焼中における NO 濃度計測に LIF 法(レーザ誘起蛍光法)を適用することを目的とす る.

第二章 実験装置および実験方法

本研究においては急速圧縮機を用いて正ブタン 空気混合気を圧縮 し,自着火させることで,HCCI エンジンの燃焼場を模擬した.本研 究で用いた急速圧縮機は,燃焼ピストンに潤滑油を使用する必要がな いこと,また連続作動ではなく単作動であるために残留ガスがないこ となど,通常の連続作動する火花点火機関に比べて燃焼に影響を及ぼ す因子が少なく,現象がより単純化されるため,本研究の目的に適し ていると考えられる.

2.1 急速圧縮機

2.1.1 急速圧縮機の概要

本研究においては急速圧縮機を用いて正ブタン 空気混合気を圧縮 し、自着火させることで HCCI エンジンの燃焼場を模擬している.本 研究において用いた急速圧縮機のを図 2.1 に示す.図中の番号で1が 燃焼室,2が圧縮ピストン,3が圧縮シリンダ,4が固定用リンク,5 が連結棒,6が駆動ピストン,7が駆動シリンダ,8が隔膜,9が貯気 タンク,10が針駆動用ソレノイドである.燃焼室の内径は51mmであ る.圧縮後の燃焼室高さは変更可能であり,本研究においては 36mm としている.燃焼ピストンの行程は下死点位置を変更することで決定 することができる.駆動シリンダ内径は250mm,貯気タンクの容量は およそ 3.83×10⁷mm³である.燃焼室シリンダはSUS440C製,駆動シ リンダはS45C製で内面はホーミング加工なされている.連結棒は SUS440C 製で 2 つのリニアボールベアリングによって支持されてい る.固定用リンクは A7075 製であり,連結棒と接触する部分にはテフ ロンのブロックがシリコンゴムで固定されている.圧縮ピストンは A2024 製,駆動ピストンは A5056 製であり,両ピストンはシリンダ 内径より小さく設計されとおり,シリンダとは直接接触してはいない. また,圧縮ピストンのシールにテフロン製のピストンリング(NOK 製 SPG 50)を用いることによって,燃焼に影響を及ぼす潤滑油を圧縮 シリンダ内面に使用することなく無潤滑での駆動を可能にした.駆動 ピストンのシールにはゴム製 O リングを用い,テフロン系潤滑剤 (Thompson&Formby 製 TRI-FLOWTM)によって潤滑されている. 貯気タンクと駆動シリンダを隔てる隔膜には,厚さ 0.125 mmのアセテ ートフィルムを用いた.

2.1.2 急速圧縮機の作動

今回使用する急速圧縮機は,駆動力として圧縮された空気,制動に はゴムシートを重ね張り合わせたものを用い,固定にはリンクを用い ている.

燃焼ピストンを下死点位置に置き,燃焼室内を真空ポンプを用いて 真空にし,十分攪拌された正ブタン 空気混合気を燃焼室に 0.1MPa 入れる.その後,貯気タンクに空気を入れ実験を開始する.ただし貯 気タンクの作動開始圧力(ゲージ圧)は,圧縮比15においては0.25MPa, 圧縮比16においては0.26MPa,圧縮比17においては0.28MPa,圧 縮比18においては0.30MPaとする.プログラムの起動後,ソレノイ ド内に電流が流れ磁場が生じ,磁石についている針が磁力により駆動 され隔膜を破る.隔膜が破られると貯気タンクに貯められた空気が駆 動シリンダに流入し,駆動ピストンとそれに連結された圧縮ピストン が動かされ,燃焼室内の混合気はほぼ断熱的に圧縮される.圧縮ピス トンが上死点付近に近づくと,駆動ピストンはゴムシートとの衝突と 空気ダンパによって減速される.駆動部は減速されながら上死点に到 着し,リンクによって位置が固定される.

2.2 制御系および測定系

本研究に用いた急速圧縮機,制御系および測定系の概略図を図 2.2 に示す.この系は A/D 変換ボード(CONTEC 製 AD12-16U(98) EH)が挿入された PC9801RA を中心に構築されており,大きく分け て,急速圧縮機,測定系(PCB 社製電圧出力型圧力センサーH102A04 型,ANDOR 社製 ICCD カメラ),制御系(ソレノイド制御装置,パル スジェネレータおよびパワートランジスタ(power transistor)),動 作の確認をするためのメモリオシロスコープ(Tektronix 製 TDS410A)によって構成される.

図 2.2 中のソレノイド制御装置の回路図を図 2.3 に示す.駆動の信号が駆動装置より送られてくると,サイリスタ(NEC 製 5P4M)が 導通しコンデンサーに蓄えられた電荷が放電する.この電流をソレノ イドに流すことで,磁界を作り出し,磁石についている角膜破壊用針 を電磁力により駆動する.

貯気タンクに圧縮された空気をため,燃焼室にブタン-空気混合気 をいれた後,パソコンの実験開始信号で急速圧縮機を駆動して燃焼室 内の混合気をほぼ断熱的に圧縮する.以上が本実験の一連の流れであ り,この結果,燃焼室内の圧力の時間履歴データが得られる.

9

2.2.1 A/D 変換ボード

本研究において,0~+10Vの電圧として出力される燃焼室内の圧 力を測定する.電圧はアナログ・デジタル変換ボード(A/D 変換ボー ド)を用いて測定される.本研究ではA/D 変換ボードとして CONTEC 製 AD12-16U(98)Eを使用しており,これはアナログ入力16点,アナ ログ出力1点,デジタル入力4点,デジタル出力4点,カウンタ1点 を備える多機能拡張ボードである.アナログ入力の分解能は12bit, 最大変換速度は1µs/1chである.アナログ入力レンジの設定は非絶縁 ユニポーラ0~+10V となっている.本研究ではアナログ入力信号と のグラウンド間電位差やノイズ成分を考慮して,アナログ入力信号を A/D 変換ボードへ接続する際,差動入力を用いている.

2.2.2 圧電圧力センサー

燃焼室内圧力は圧電型圧力センサー(PCB Piezotronics 製 HS102A04型)を用いて測定を行った.この圧力センサーの出力電圧 を測定することによって燃焼室内圧力の指圧線図が得られる.この圧 電型圧力センサーはピエゾ素子を用いており,素子に力が加わること で素子が変形し,素子に電荷が生じる.この電荷を電界効果トランジ スタ(FET)によってインピーダンスを低めて出力する.圧力変換素 子の主要諸元を表 2.1 に示す.出力される信号のインピーダンスが大 きいためノイズによる影響をほとんど受けない.急速圧縮機先端の燃 焼室に取り付けられている圧力センサーの位置を図 2.4 に示す.この 変換素子の駆動および測定には 2mA~20mAの低電流型電源が必要で あり,電源には PCB 製 MODEL 482A06を用いた.

2.2.3 CCD カメラ

LIF法による蛍光を撮影するために,強制冷却されたCCDを持つイ メージインテンシファイア搭載のCCDカメラ(ANDOR社製, DU412-BV)によって撮影を行う.CCDカメラは,レーザーからの信 号をパルスジェネレーターを介して同期することができる.このCCD カメラにはイメージインテンシファイアが搭載されており,微弱光を 捕らえることができる.

CCD素子面はペルチェ冷却によって冷却される.これはパソコンに よって制御する事が可能であり,-100 から20 の範囲でCCD 素子 を冷却できる.CCD素子の解像度は512pixel×512pixelで撮影が可能 である.

2.2.4 パルスジェネレータ

本研究においてはレーザ,カメラ,急速圧縮機等を精度よく同期す る必要がある.本実験ではパルスジェネレータ(Berkeley Nucleonics Corporation,555)を使用した.入力1チャンネルに対し,出力4チャ ンネルを持つ.トリガーモードとして,Single,continuous,burst, dutyが選べる.Rateは1ms-99.99999999 (.01Hz to 1MHz),分解能 は1ns,精度は1ns+.0001x period,ジッタは1ns(RMS)である.

また,Delayは0-99.999999999sで,パルス幅は10-99.999999999 で調節可能であり,その分解能は1ns,精度は2ns+.0001x delayであ る.タイムベースは80MHz,ジッタは1ns(RMS)である.

2.2.5 オシロスコープ

本研究において、制御系の動作確認、あるいはタイミングを同期さ

せる際の補助機器として,メモリオシロスコープ(Tektronix 製 TDS410A)を使用した.

2.3 レーザ

2.3.1 ND:YAG レーザ

本研究において,ND:YAG(Spectra-Physics 社製,PRO230)レーザ を使用した.ND:YAG レーザーの主要諸元を表 2.2 に示す.

この ND:YAG レーザは 1064nm で約 1250mJ でパルス幅 8-12ns の 光を照射することができる.また,SHG,THG,FHG 結晶が内蔵さ れており,アームのポジションを変更することにより 1064nm の光, 約 650mJ の第二高調波である,532nm,約 375mJ の第三高調波であ る 355nm,約 130mJ の第四高調波である 266nm の光を照射すること ができる.

1064nm における 99%のパルスに対するレーザのエネルギー安定性 は±2%である.パルスの周波数は 10Hz である.本実験では,THG 結晶を使用することで約 375mJ の第三高調波である 355nm の光を照 射させる.また ND:YAG レーザは比較的安価で高出力のため本研究に おける実験に適切であると思われる.

2.3.2 OPO レーザ

HCCI 燃焼場での NO-LIF 計測を行うためのレーザ光源として, ND:YAG レーザを励起源とする OPO(Spectra-Physics 社製, MOPO-SL)レーザを使用した.OPO レーザーの主要諸元を表 2.3 に示 す.このレーザは BBO (Beta Barium Borate)結晶を使用すること により,355nm のポンプビームを受け,400~700nm の信号波及び 700 ~ 2000nm の ア イ ド ラ ー 波 を 得 る . さ ら に FDO(Frequency-Doubler Option)を使用することで,NO-LIF 計測に 必要な 220~440nm の光を得ることができる.

2.4 光学系

2.4.1 光学フィルタ

LIF蛍光を撮影するにあたって,光学フィルタを使用する必要がある.本研究では光学フィルタとして,UG5(Schott,UG5)を使用した. UG5は200nm~500nmの領域の光を透過し,透過率のピークは約 300nm付近に位置する.このピーク付近の透過率は約0.92である.こ れらの波長領域はNOの蛍光の波長領域に一致しており,透過率も大 きく適しているといえる.

2.4.2 アルミ平面ミラー

本研究においては,レーザの光を反射させるにあたってアルミ平面 ミラー(シグマ光機,TFAN60C 10-1)を用いた.このアルミ平面ミラ ーは,直径が 60mm の円形のミラーであり,可視域から近赤外域まで の高い反射特性をもち,角度依存性もほとんど無いという特徴を持っ ている.基板面積度は /10 である.本研究で使用する 226nm 付近での 反射率は 90 パーセント以上である.

13

2.5 可燃性混合気

本研究においては、後々の解析や数値計算のことを視野に入れると、 その燃焼機構ができるだけ単純で、現在ある程度解明されている燃料、 つまり炭化水素系燃料を使用するのが望ましいと考えられる.パラフ ィン系炭化水素のうち常温常圧で気体であるものはメタン(CH₄),エ (C_2H_6) , プロパン(C_3H_8), 正ブタン(C_4H_{10}) などが挙げられ る.これらの自発点火温度はそれぞれ,810K,788K,766K,678K であり,正ブタンはその中で著しく低い.本研究のように,急速圧縮 機を用いて混合気を自己着火させる場合、自発点火温度が高いと、圧 縮比を十分あげる必要がある.圧縮時間の短縮のために駆動圧力を上 げる必要が生じる上,圧縮機にかかる負担も大きくなってしまい好ま しくない、そのため、自発点火温度の低い正ブタンは本実験に使用す るのに向いているといえる.特に正ブタンは市販のガソリン燃料の中 に含まれている主成分の一つである、以上のことから、本研究では正 ブタンを燃料として用いることにした.実験においては,混合気の当 量比を一定にし、実験の再現性を高めるため、あらかじめ別のタンク で混合,攪拌し,同条件の実験ではタンクにある同じ燃料を使用した. 本研究で用いた混合気供給系の概略図を図 2.5 に示す。

2.6 実験の概略

2.6.1 実験条件および装置概要

実験装置の概略図を図 2.2 に,実験条件を表 2.4 に示す.NO 分子 を励起する光源として,Nd:YAG レーザをポンプレーザとする OPO レーザを使用した.励起波長は 225.5nm ~ 226.5nm を選択した.^[20] レーザ強度は 1~2mJ である.レーザからの光が燃焼室内に照射され ると,レーザの経路上にある NO 分子が励起され,蛍光を発する.こ の蛍光は,イメージインテンシファイア搭載の強制冷却された CCD カメラによって撮影される.LIF による蛍光と弾性散乱光を区別する ために光学フィルタを使用した.レーザは 0.1sec 間隔で照射され,レ ーザが照射されると,それがトリガー信号としてパルスジェネレータ に送られる.そして,このパルスジェネレータによって CCD カメラ による撮影,急速圧縮機または火花点火装置の作動タイミングが同期 される.

また実験開始信号は PC2 により行われる . PC2 の実験開始ボタン を押すと PC2 はレーザからの信号待ち状態となり ,レーザからの信号 を受けると ,ソレノイドに信号を送り ,急速圧縮機を作動させる .(火 花点火燃焼の実験をする時は急速圧縮機ではなく ,火花点火装置に信 号を送り ,火花点火させる .)CCD カメラにより撮影された画像は PC1 に燃焼室内圧力データは PC2 に取り込まれる . また , CCD カメラの 代わりにデジタルハイスピードカメラを設置することで燃焼の直接画 像を撮影することも可能である .

2.6.2 燃焼室形状

HCCI 燃焼の実験に用いた燃焼室形状を図 2.4 に示す.燃焼室は 30×36mmの円柱形状である.右方からのピストンにより圧縮される. レーザ光が上方から照射され,左方にある CCD カメラにより,蛍光 画像が撮影される.

2.6.3 実験手順

まず実験の準備段階として電気系の電源およびレーザの電源を入れ、 実験装置を安定させる.次に、貯気タンクを分離し、駆動系を下死点 位置まで移動させた後、リンク部分に下死点位置固定用の棒を設置、 真空ポンプを作動させ、燃焼シリンダ内の気体を排出する、その間に 隔膜を貯気タンクと駆動シリンダの間に取り付けておく.燃焼シリン ダ内圧力が絶対圧力で2 Torr 以下になったら真空ポンプを停止させ、 あらかじめ十分に攪拌した混合気を燃焼室内へ導入した後、下死点位 置固定用棒を取り外す、その後、貯気タンク内に圧縮空気を充填し、 貯気タンク内の圧力が圧縮比ごとに決めておいた作動開始圧力になっ たことを確認した後、パソコンの実験開始信号で隔膜を破壊する、駆 動シリンダに流れ込んだ圧縮空気によりピストンが駆動,燃焼室内の 混合気をほぼ断熱的に圧縮し、自己着火させる.また火花点火の実験 を行う時は、パソコンからの信号をトリガー信号として用いるパルス 発生装置によって,混合気を火花点火させ実験を行う.実験ごとに 0 ~ + 10Vの電圧信号として出力される燃焼室内圧力を A/D 変換ボ - ド を介してパソコンにより測定する.点火後,燃焼室の排気弁を大気解 放し,実験を終了する.

第三章 LIF 法の原理および解析方法

3.1 LIF 法の概要

LIF 法,つまりレーザ誘起蛍光法(Laser Induced Fluorescence)は,レー ザにより原子・分子を電子励起させ,それらが基底準位に落ちる際に発する 蛍光を観測する手法である.LIF 法によって,分子やラジカルの濃度あるい は温度を計測することができ,過去の研究においても,燃焼場での計測など で用いられてきた.^{[7]-[12]}

LIF 法を行うには,対象分子が蛍光を発する必要があり,吸収帯となる系 が分光学的によく分かっている必要があるのに加え,分子の吸収帯が利用で きるレーザで接近可能である必要がある.この要求を満たす分子は限られる が,LIF 法は蛍光が0のバックグラウンドに対して計測されるので,蛍光強 度は照射光の入力強度に比例する.しかし,実際のところは散乱光と飽和の 問題がある.LIF 法によって計測できるとしては,Br₂,Cl₂,NO,NO₂, OH,I₂,CN,CF₂,CH₃O などがある.LIF 法はラジカルのような活性種 を計測するといた目的に有用であり,高感度 CCD カメラを使用することで ppm レベルでの計測が可能である.

NOの励起に関しては OH と同様に電子励起のみならず,振動励起を伴う. A²Σ⁺ X² 遷移における(0,0)バンド吸収線,波長にして 226nm 付近で遷 移が起こる.^[20] LIF の蛍光は概ね 230nm ~ 280nm の光が観測されるが, 上記の光学フィルタを使用することで,レイリー散乱やミー散乱などの弾性 散乱光を取り除くことができる.

17

3.2 LIF 法の原理

LIF 法の原理を図 3.1 に示す単純な 2 準位系モデルを用いて説明する. ^{[13]-[16]}このモデルによって,以下のレート方程式が導かれる.ただし,この 式においては,レーザのライン幅や吸収スペクトルの広がりの影響は無視し ている.

変数

- A:アインシュタインのA係数
- B:アインシュタインのB係数
- I:レーザ強度
- Q: 無放射速度定数
- c:光速度
- N:測定化学種の数密度

添え字

1: 基底状態

2: 励起状態

上式より,N₂に関して方程式を解くと以下の式が得られる.

ただし,b=BI/c,r=b12+b21+A+Qとし,N2(t=0)=0とした.よって,定常状態においては,以下のようになる.

つまり,

また, 蛍光強度 Iflは N₂A に比例するので, 以下の式が導かれる.

ここで,本研究においては,I Isat,Iが一定,A Q,B12および B21が定 数であることを用いて変形すると,

となる.さらに,基底状態にある分子の全分子に対する割合,つまり Boltzmann fraction fB(T)影響および,上記では考慮しなかった Spectral overlap integral (吸収遷移とレーザ間のスペクトル的相互作用)の影響 を付け加えると,最終的に以下の式が得られる.

N₀は全 NO 分子の数密度である.は以上により,NO 濃度の分かっている基準ガスの蛍光強度と燃焼ガスの蛍光強度を比較することにより,燃焼ガスの NO 濃度を次式のより計算することができる.

ここで,添え字 C は基準ガスの値であることを示す.

また,測定時のガス温度は,圧力データと気体の状態方程式 PV=mRT に

より簡易的に求めた.

測定時のガス組成は,正ブタンと空気の総括反応で簡易計算した.

3.2.1 無放射遷移

無放射遷移とは,励起された分子が CO2 分子や H2O 分子などの他分子と 衝突し,蛍光を発することなく基底状態に戻る現象のことであり,通常クエ ンチングあるいはクエンチと呼ばれるものである.つまり,励起分子以外の 他分子が存在するために蛍光強度が弱まる.式(10)における変数 Q がこの現 象を表すパラメータとなっている.無放射遷移速度定数は次式により計算す ることができる.^{[13],[17]}

$$\mathbf{Q} = \mathbf{n}_{i} \mathbf{v}_{i} \mathbf{v$$

n:化学種iの数密度

- : 励起分子と化学種iとの衝突断面積
- v:励起分子と化学種iとの相対速度

相対速度 v は下式により定義される.

k:ボルツマン定数

T:温度

µ:励起分子と化学種iとの換算質量

また,衝突断面積 は温度の関数であるが,過去の研究により次式の実験 式が導かれている.^[19]

$$= C_0 \left\{ (1 +) \exp(-) + C_1^{1/3} \int_0^{1/3} \exp(-t) t^{2/3} dt \right\} \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot (15)$$

ここで, C₀~C₃ は化学種 i によって定まる定数である.T_r は標準状態での温度である.本研究において,化学種 i は CO₂分子と H₂O 分子だけを考慮した.それ以外の分子あるいは原子による影響は,CO₂分子と H₂O 分子による影響に比べて小さく,無視できるからである.ただし,N₂の衝突断面積は上式では無く以下の式により求まる.^[19]

= C₀ + C₁ exp(-C₂T_r / T) + C₃ exp(-C₄T_r / T) ・ ・ ・ ・ ・ (17) 以上の式により求めた衝突断面積と温度の関係を図 3.3 に示す .

3.2.2 Boltzmann Fraction

Boltzmann Fraction とは,ある量子数の回転準位のエネルギーを持つ測 定対象分子ぼ全分子における割合のことである.Boltzmann Fraction は次 式により求まる.^[13]

$$f_{B}(T) = \frac{h^{2}}{8^{-2}kTI} (2J+1)exp\left(-J(J+1)\frac{h^{2}}{8^{-2}kTI}\right) \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot (18)$$
$$I = \mu r_{e}^{-2} \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot (19)$$

- k:ボルツマン定数
- T:温度
- J:回転の量子数
- I:励起対象分子の慣性モーメント

µ:換算質量

r: 励起分子の原子間距離

3.2.3 Spectral Overlap Integral

[22]-[29]LIF法において,励起分子は基底準位と励起準位のエネルギー差に 相当する波長の光しか吸収しないはずである.しかし,実際の吸収プロファ イルは様々な要因によって,ある程度の広がりを持つことになる.その要因 とは励起準位から基底準位に落ちる際の寿命の長さであったり,中性粒子や 電子との衝突あるいは励起分子の熱運動であったりする.この広がりには, ドップラー広がり,圧力広がり,自然広がりなどがある.これらは二つのタ イプに分けられ,1つ目は均一広がりと呼ばれるローレンツ型の広がり,2つ 目は不均一広がりと呼ばれるガウス型の広がりである.また,レーザにおいて も同様のことが言え,レーザ波長もある程度の広がりを持っている.実際の プロファイル形状はガウス型とローレンツ型のコンボリューションであるフォ ークト関数となる.そのため,蛍光強度は励起分子の吸収プロファイル形状と レーザのプロファイル形状の重なり,つまり Spectral Overlap Integral に比例する.ここでは の計算方法について説明する.先に変数の意味を以 下に記述しておく.

変数

- c:光速度
- m_f: 励起分子の質量
- △ : プロファイル形状の半値全幅
- :振動数
- (_,): 振動数 _を中心とするプロファイル形状を表す関数

添え字

- D:ドップラー
- G:ガウス
- L: ローレンツ
- 0: レーザの特性
- lu:l→uの遷移

上記の説明より は以下の式で求まることが分かる.

$$\begin{pmatrix} u & 0 \end{pmatrix} = \int_0^\infty u \begin{pmatrix} u & 0 \end{pmatrix}_0 \begin{pmatrix} u & 0 \end{pmatrix}_0 \begin{pmatrix} u & 0 \end{pmatrix}_0 + \cdots + \cdots + (20)$$

ドップラー広がりによるガウス型プロファイルの半値全幅は次式で記述 される.

もし,レーザのスペクトル分布がガウス型の広がりΔ^(G)を持つとすると, ガウス型の広がりの重ね合わせは次式となる.

同様にローレンツ型の広がりの重ね合わせは次式で表される.

また,レーザのパルス幅を とすると, $\Delta \ _{0}^{(G)}$, $\Delta \ _{0}^{(L)}$ はそれぞれ以下の 式で求めることができる.

今,レーザおよび遷移のスペクトル分布関数が共にフォークト関数で記述 される場合,次式で置き換えられる.

$$=\frac{\sqrt{4\ln 2/}}{\Delta_{\rm G}}V(\mathbf{d},\mathbf{p})\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot\cdot(26)$$

V(d, p)は以下のパラメータ d, p で表されるフォークト関数である.

ここで, ul= ul - oである.

以上より, Spectral overlap Integral を温度の関数として求めたグラフを 図 3.4 に示す.

第四章 実験結果および考察

4.1 圧力履歴

急速圧縮機を用いて,当量比 =0.3 の正ブタン-空気予混合気を HCCI 燃焼させたときの圧力履歴を図 4.1 に示す. PC2 から信号が送 られる時点を 0msec としている.

15msec 付近から圧縮が開始され,40msec 付近で圧縮が完了し,その後,ある点火遅れ期間を持って自着火に至っている.

点火遅れは,圧縮比が高くなると短くなっていることがわかる.また,圧縮後に圧力波形が波打っているが,これは圧縮比が高いために 振動が生じていると考えられる.

4.2 LIF 法による NO 濃度計測

励起波長 226.1nm として,LIF 法を用いて式(11)により導いた NO 濃度を図 4.2 に示す.当量比 0.4,圧縮比 15 のときの NO 濃度は 約 50ppm となり,圧縮比 18 のときの NO 濃度は約 150ppm であるこ とが分かる.これより圧縮比が高くなるにつれて,NO 濃度も高くな ることが分かる.

燃焼後のガスを採取し,ガスクロマトグラフにより NO 濃度を計測 した結果,NO 濃度は 10ppm 以下となった.LIF による計測は燃焼室 内圧力が最大となる時点で行われているものの,LIF の計測結果は排 出ガス中における NO 濃度に比べ非常に高い値を示している.式(6) で示される定量化にも問題があるものと思われるが,この誤差の最大 の原因の一つとしては,励起波長 226.1nm においては,NO 以外の分 子の蛍光,またはクエンチが考えられる.

4.2.1 励起波長の選択

励起波長を 225.5 から 226.5nm の間で 0.1nm 間隔でスキャンさせ, Ar で希釈した当量比 0.3 の n-ブタン-酸素混合気を燃焼させた際に計 測された蛍光強度を図 4.3(a)に示す.この場合混合気中に窒素が存在 しないため NO は存在しないと考えられる、計測された蛍光は主とし て燃焼ガス中の酸素分子からの蛍光であると予想されるが,酸素分子 以外の化学種が寄与している可能性も考えられる.希薄混合気を用い る HCCI 燃焼においては燃焼ガス中に酸素が多く存在することが考え られるため,酸素分子の蛍光が NO 計測に大きな影響を及ぼすことが 示唆される.また同様の混合気を N2 で希釈し, 200ppm の NO を混合 させた際の蛍光強度を図 4.3(b)に示す.上述のように当量比 0.3 の n-ブタン・空気混合気を HCCI 燃焼された場合,NO 濃度は 10ppm 以下 と微量であったため,NO からの蛍光を計測しやすいように予め混合 気に NO を混合させた.これにより, HCCI 燃焼下において NO によ る蛍光が計測できるものと思われる.図 4.3(a), (b)を比較すると,励 起波長が 225.5nm のときに(a)の蛍光強度が弱く (b)の蛍光強度が強 いことが分かる.これは、同波長では NO 以外の化学種からの蛍光の 影響は小さく,かつ NO からの蛍光を高感度で検出することが可能で あることを示している.このような観点から,本実験の範囲内におい て NO 濃度計測に適した励起波長は 225.5nm であると考えられ,以下 の実験では励起波長として 225.5nm を選択した.

26

4.2.2 NO 濃度と蛍光強度の関係

励起波長を 22.5nm としたとき,雰囲気圧力 6MPa の高圧下における NO 濃度と蛍光強度の関係を図 4.4 に示す.この条件において,NO 分子以外の分子の濃度は一定であるため式(10)より,蛍光強度は NO 濃度に比例するはずである.図 4.4 より,蛍光強度は NO 濃度に比例 していることが確認された.

次に励起波長 225.5nm において,当量比 0.3 の n-ブタン-空気混合 気に NO を 0ppm,100ppm,200ppm 混合させ,燃焼させた際の蛍光 強度を図 4.4 に示す.同図より NO 濃度が高くなるにつれて蛍光強度 が大きくなることがわかる.

以上より,励起波長 225.5nm において,NO 濃度を計測することが 可能であることを確認した.

4.2.3 HCCI 燃焼における NO 濃度

急速圧縮機により正ブタン-空気予混合気を HCCI 燃焼させ,LIF 法 により NO 濃度を計測した結果を図 4.5 に示す.ただし,励起波長は 225.5nm とした.校正用の基準ガスとして,NO100ppm,CO₂3%, 温度 295K,圧力 100kPa の NO/N₂/CO₂ガスを用いた.横軸が圧縮比 で,縦軸が NO 濃度である.当量比 は =0.3 とした.

圧縮比 15 における NO 濃度は 7.5[ppm], 圧縮比 16 における NO 濃度は 8.3[ppm], 圧縮比 17 における NO 濃度は 8.6[ppm], 圧縮比 18 における NO 濃度は 10.7[ppm]となった.これより圧縮比が大きく なるほど, NO 濃度は高くなることが確認された.

第五章 結論

本研究では,高圧下における NO 分子の LIF 蛍光の性質について調 べ,急速圧縮機を用いた HCCI 燃焼に NO-LIF 法を適応した.その結 果,以下のことがわかった.

- 本研究における実験装置を用いて、高温高圧化で無放射遷移の影響が大きい燃焼ガス中においても LIF 法により NO 計測することは可能である。
- HCCI 燃焼下における LIF 法による NO 濃度計測には, NO 以外の化学種からの蛍光が大きな影響を及ぼす.
- 3. 上記の影響が小さい励起波長として 225.5nm を選択し, NO からの蛍光強度を計測した結果, NO 濃度計測の可能性が示唆された.

謝辞

本研究を進めるにあたり,多大なご指導,ご協力を頂きました,東京大学 工学部航空宇宙工学科河野通方先生,津江光洋先生に深く感謝の意を表しま す.

実験に必要なものを買い揃える際にお世話になった蛇口早哉子さん,そし て実験装置を製作してください,また適切なアドバイスをしてくださった内 海正文技術職員に深く御礼申し上げます.

また,東京理科大学から東京大学大学院に進学した私に研究についてーか ら教えてくれた中村明彦君,豊富な知識と経験で支えてくれた市瀬寛之君を はじめとする河野・津江研究室のメンバーの皆さん全員に感謝いたします.

最後に,事故で傷つきながらがんばってくれたマツダ RX-7 さん,新しく 仲間に加わったホンダ CB400 さん,RX-7 にかわるニューマイカー レクサ ス IS さんにはストレスがたまったときによくお世話になりました.ありが とう.

参考文献

- [1] 山崎由大,飯田訓正,"圧縮自己着火機関における n-Butane 空気予混
 合気の素反応数値計算 反応速度の制御,高効率燃焼の確保およびHC,
 CO排出量低減",自動車技術会論文集,Vol. 33,No.4,pp. 69-75,2002
- [2] 金子真也,安藤博和,小川英之,宮本登,"DMEを吸入する予混合圧 縮着火機関の燃焼制御-反応抑制物質の直接噴射による運転領域の拡大",
 自動車技術会論文集,Vol. 33, No.4, pp. 77-83, 2002
- [3] 平谷康治,長谷川和也,漆原友則,飯山明裕,伊東輝行,"ガソリン圧縮自己着火エンジンの研究 運転成立範囲の拡大の可能性",自動車技術会論文集,Vol. 33, No.4, pp. 21-26, 2002
- [4] 田大秀,石井和明,飯田訓正,"予混合圧縮自己着火機関における Methane/n-Butane 混合燃料の燃焼実験および素反応数値解析",自動車 技術会論文集, Vol. 34, No.4, pp. 69-74, 2003
- [5] 山崎由大,高橋晋也,飯田訓正,"ラジカル発光計測による DME 空気予
 混合圧縮自己着火機関の燃焼解析",自動車技術会論文集,Vol. 34,No.4,
 pp. 75-80, 2003
- [6] 佐古孝弘,中井俊作,守家浩二,飯田訓正,"天然ガス予混合圧縮自己着火機関の性能および排気特性",日本機械学会論文集(B編),vol. 70, no. 694, pp. 1583-1589, 2004

[7] R.V.RAVIKRISHNA

NORMAD.M.LAURENDEAU , "Laser-Induced Fluorescence Measurements and Modeling of Nitric Oxide in Counterflow Partially Premixed Flames" Combustion and flame 122:474-482(2000)

30

- [8] JOHN R.REISEL , NORMAD.M.LAURENDEAU , "Quantative LIF Measurements and Modeling of Nitric Oxide in High-Pressure $C_2H_4/O_2/N_2$ Flames" Combustion and flame 101:141-152(1995)
- [9] R.V.RAVIKRISHNA , CLAYTON S.COOPER , NORMAD.M.LAURENDEAU ," Comparison of Saturated and Linear Laser-Induced Fluorescence Measurements of Nitric Oxide in Counterflow Diffusion Flames" Combustion and flame 1172:810-820(1999)
- [10] W.G.BESSLER, C.SCHULZ, T.LEE, D.-I.SHIN, M.HOFMANN, J.B.JEFFRIES, J.WOLFRUM, R.K.HANSON, "Quantative NO-LIF imaging in high-pressure flames" Apple.Phys.B 75, 97-102(2002)
- [11]A.Gulati, R.E.Warren Jr, "NO₂-Based Laser-Induced Fluorescence Technique to Measure Cold-Flow MIxing", Journal of Propulsion and Power Vol.10, NO.-, Jan.-Feb.1994
- [12] Ulf.Westblom, Marcus.Alden, "Simultaneous multiple specis detection in a flame using laser-induced fluorecsence", Applied Optics Vol.28, NO13, 1 July 1989
- [13] E c k b r e t h , A.C , Laser Diagnostics for Combustion , Temperature and Species Energy and Engineering Science Series Abacus Press , Cambridge , 1998
- [14]野田松平,出口祥啓,"レーザ誘起蛍光法の燃焼解析への応用",三菱重 工技法, Vol.30, No.2, pp. 129-133, 1993
- [15]秋濱一弘,久保修一,山崎哲,"気相反応解析のためのレーザ分光",豊 田中央研究所R&Dレビュー,Vol.27,No.3,pp.1-11,1992

- [16] 出口祥啓, "燃焼計測技術の進展 3 LIFによる温度,濃度計測(原 理・特徴)-",燃焼研究,114号,pp.1-10,1998
- [17] 近藤博是,朱学雷,竹野忠夫, "PLIF 法による同軸流二重火炎内の NO 分布の測定",第 36 回燃焼シンポジウム講演論文集,pp. 310-312,1998
- [18] 堀江竜太,安藤千博,朱学雷,西岡牧人,竹野忠夫,"PLIF法による同 軸流拡散火炎中の NO 分布の測定",日本機械学会論文集(B編),vol. 65, no. 629, pp. 62-70, 1999
- [19] Paul, P.H., Carter, C.D., Gray, J.A., Durant, Jr., J.L., Thoman, J.W., and Furlnetto, M.R., Correlations for the NO A₂Σ⁺ Electronic Quenching Cross-section, Sandia National Laboratories Rept.SAND94-8237, 1995
- [20] Reisel , J.R. , Carter , C.D. , Laurendau , N.M. , "EINSTEIN COEFFICIENTS FOR ROTATIONAL LINES OF THE (0, 0)BAND OF THE NO A²Σ⁺-X²Π SYSTEM", J.Q.Spectrosc.Radiat.Transf. , 47 (1992), 43-54
- [21] 中谷辰爾,"航空機排気成分の成層圏オゾンに及ぼす影響に関する基礎 研究"東京大学工学部航空宇宙工学科博士論文,2004
- [22]小川悟史,"吸収分光法によるアーク風洞プラズマの併進温度計測",東 京大学工学部航空宇宙工学科修士論文,2002
- [23] Wolfgang G.Bessler, Chrifstof Schulz, Tonghun Lee, Jay B.Jeffries, Ronald K.Hanson, "Strategies for laser-induced fluorescence detection of nitric oxide in high-pressure flames", Applied Optics, Vol41, NO18, 20 June 2002
- [24] D.Douglas Thomsen, F.Frank Kuligowski, Normand M.Laurendeau, "Background corrections for laser-induced-fluorescence

measurements of nitric oxide in lean, high-pressure, premixed methane flames", Applied Optics, Vol36NO15, 20 May 1997

- [25] Ingrid J.Wysong, Jay B.Jeffries, David R.Crosley, "Laser-induced fluorescence of O[3p³P], O₂, and NO near 226nm:photolytic interferences and simultaneous excitation in flames", Optics Letters, Vol.14, NO.15, 1 August 1989
- [26] Brian K.McMillin , Jennifer L.Palmer , Ronald K.Hanson , "Temporally resolved , two-line fluorescence imaging of NO temperature in a transverse jet in a supersonic cross flow", Applied Optics , Vol.32 , NO.36 , 20 December 1993
- [27] K.P.Gross , R.L.McKenzie , P.Logan , "Measurements of temoerature , density , pressure , and their fluctuations in supersonic turbulence using laser fluorescence", Experiments in Fluids 5, 372-380(1987)
- [28] William P.Partridge ,jr., Normand M.Laurendeau, "Formulation of a dimensionless overlap fraction to account for spectrally distributed interactions in fluorescence studies", Applied Optics, Vol.34, NO.15, 20 May 1995
- [29] Hirokazu Kobayashi , "Simple atmospheric transmittance calculation based on a Fourier-transformed Voigt profile", Applied Optics, Vol.41 NO.33, 20 November 2002
- [30] 畦津圭介・中谷辰爾・津江光洋・河野通方・浦田泰弘,第 42 回燃焼シ ンポジウム講演論文集 pp.299-300(2004)



- 1 combustion chamber
 - 3 combustion cylinder
- 5 connecting rod
- 7 driving cylinder
- 9 air tank

- 2 combustion piston
- 4 stopping link
- 6 driving piston
 - 8 diaphragm
- 10 electric solenoid

Fig.2.1 Rapid-Compression Machine



Fig.2.2 experiment device



Fig.2.3 Circuit chart of Solenoid Controller

Table.2.1 The main parameter of pressure transformation deviceCircuit

形式名		H102A04
感度	mV/kPa	0.7 ± 0.04
分解能	kPa	0.14
固有振動数	kHz	500
立ち上がり時間	s n	1
放電時定数	S	100
11/1/11/11/11/11/11/11	MPa	13.79
出力インピーダンス		100
加速度感度	kPa/m/s ²	0.0014
温度範囲		- 73 ~ +135
温度係数	/%	0.054
対瞬時温度		5400



Fig.2.4 Shape of Combustion Chamber

Table.2.2 The main parameter of ND:YAG Laser

	Er	iergy(mJ/j			Short	Long
Wavelength(nm)	10Hz	30 Hz	50 Hz	Pulse Width(ns)	Term Energy (%)	Term Power Drift (%)
1064	1250	920	650	8-12	± 2	<3
532	650	475	300	1-2<1064 nm	± 3	2 >
355	375	300	140	2-3<1064nm	± 4	9>
266	130	75	40	3-4<1064 nm	± 8	<10

Table.2.3 The main parameter of MOPO Laser

Horizontal>97%	5mm	Roung ± 20%	<1mrad	<200 µ rad	2ns less than pump	<1 × linewidth	<10 × linewidth	<1 × linewidth	± 8%	<2ns	<0.2 cm ⁻¹
Polarization	Beam Diameter	Beam Shape	Beam Divergence	Pointing Stability	Pulse Width	Resettability	Electronic Readout Accuracy	Long-Term Stability	Pulse-to-Pulse Stability	Timing Jitter	Linewidth



Fig.2.5 Outline chart of air-fuel mixture supply system

Table.2.3 The main parameter of MOPO Laser

燃焼方式	HCCI然焼
混合気	C_4H_{10} -Air
初期圧力	100kPa
压縮比CR	15 ~ 18
当量比	$0.3 \sim 0.4$
初期温度	約295K
レーザー	YAG-OPO Laser(約2mJ)
燃焼室形状	$30 \times 36 \mathrm{mm}$
レーザー波長	$225.55 \sim 226.10 \mathrm{nm}$
レーザー断面形状	$3 \mathrm{mm} \times 5 \mathrm{mm}$



Fig.3.1 Model of LIF



Fig.3.2 Collision Cross-Section













Fig.4.3 Excitation scan in premixed C4H10 flames with equivalence ratio of

0.3 with (a) Ar diluent, (b) N2 diluent with additional doped NO







Fig.4.5 Fluorescence signal of each NO concentration



