

# Feature Article

特集論文

## ディーゼル噴霧火炎内すす生成過程のレーザ計測

相澤 哲哉

排気微粒子の排出が少ないクリーンなディーゼルエンジンの開発には、エンジン燃焼室内の噴霧火炎中におけるすす生成過程の詳細な理解が必要となる。筆者らはレーザ画像計測法を用い、火炎内ですす前駆物質と呼ばれる物質が生成しすす粒子に成長する領域と時期を明らかにした上で、すす前駆物質の成分や成長過程に関するより詳しい情報を得るため、新たに多波長レーザを光源とする励起発光マトリクス(EEM)法という計測法を開発した。EEM法による計測の結果、エンジンの運転条件の違い(雰囲気温度や酸素濃度の低下)により、ディーゼル噴霧火炎中でのすす前駆物質の生成や成長が、遅延あるいは停滞することなどが明らかになってきた。

### はじめに

ディーゼルエンジンは熱効率に優れ、地球温暖化抑制に貢献できるパワートレインとして期待されているが、排気規制は年々厳しくなっており、燃費を悪化させずに排気微粒子を極限まで低減させるためには、燃焼形態や運転条件に対してすすの排出傾向を予測しつつ、エンジンシステム全体をリアルタイムで統合制御することが求められるようになってきている。

ディーゼルエンジンからのすすの排出傾向を精度良く予測するにはエンジン燃焼室内におけるすす生成過程の詳細な理解が必要であり、そのためにはディーゼル噴霧火炎内におけるすす生成過程を実験によって調べることが重要である。ディーゼル噴霧火炎内すす生成過程については過去にもさまざまな光学計測の例があるが、その多くは炭素固体粒子にまで成長したすすを対象としたもので、すす前駆物質からすす粒子に至るまでの初期生成過程について調べたものはなかった。最近、著者らは特に初期すす生成過程に着目し、レーザ誘起蛍光法(LIF法)及びレーザ誘起赤熱法(LII法)という画像計測手法を用いて、ディーゼル火炎内のすす前駆物質とすす粒子の同時2次元可視化を行った<sup>[1,2,3,4]</sup>。その結果、**図1**の例に示すように、すす前駆物質が噴霧火炎の中心部で観察され、

すす粒子がその周辺および下流域で観察されることを明らかにした。これによりディーゼル火炎内におけるすす前駆物質の生成領域と時期、それがすす粒子に成長する領域と時期が捉えられた。更に筆者らは、すす前駆物質の成分や成長過程に関する情報を得るため、またすす生成に大きな影響を与えるエンジンの運転条件(雰囲気や燃料、噴射条件など)がすす前駆物質の生成過程に与える影響を調べるため、多波長レーザを光源とする励起発光マトリクス(Excitation- Emission Matrix : EEM)法という計測法を新たに開発し、これをディーゼル噴霧火炎に適用した。本稿では、このEEM法の測定原理、EEM法によるディーゼル火炎内すす生成過程の測定方法及び測定結果の一例を紹介する。

### 励起発光マトリクス(EEM)法

EEM法は、1970年代にChristianらによって考案された多波長励起蛍光分析の手法であり、測定装置及び測定原理については参考文献[5]及び[6]に詳述されている。多くの化学物質は、光を吸収すると励起状態となり、続いて光を放出することで基底状態に戻るという性質を持つ。この時、光を吸収する波長と光を放出する波長には、物質毎に固有の特徴がある。**図2**はすす前駆物質と考え

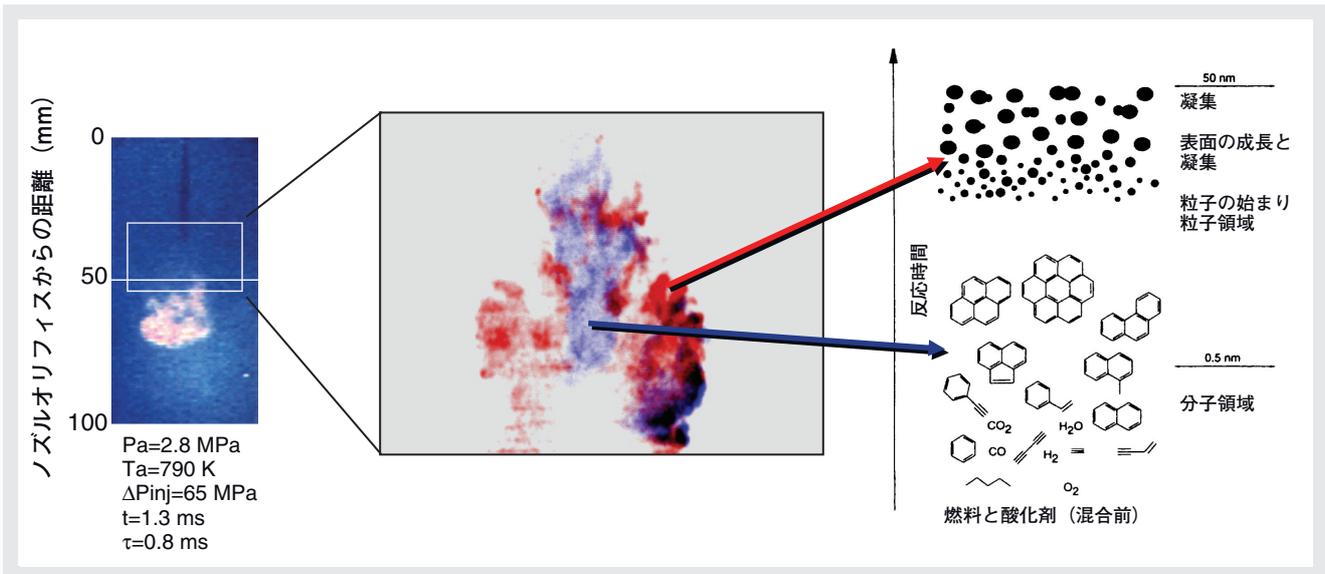


図1 レーザ誘起蛍光法(LIF法)及びレーザー誘起赤熱法(LII法)によるディーゼル火炎内のすす前駆物質(中央画像中の青色)とすす粒子(赤色)の同時2次元可視化

られているPAH(Poly-cyclic Aromatic Hydrocarbon : 多環状芳香族炭化水素)の一つであるピレンという物質について、光を吸収する波長(=Excitation : 励起波長)と光を放出する波長(=Emission : 発光波長)をそれぞれ水平軸に、また発光(蛍光)の強度を垂直軸にとって3次元プロットしたもので、これを励起発光マトリクス(Excitation-Emission Matrix : EEM)と呼ぶ。図2より、ピレンは330 nm周辺の波長の光を吸収し、390 nm周辺の波長の光を放出することがわかる。次に、ここで例に挙げたピレンを含むさまざまな種類のPAHのうち、代表的な成分について吸収・蛍光波長域の文献値<sup>[7]</sup>をEEM上に模式的に示したのが図3右のEEM参照マップである。この図から、異なる物質がそれぞれ固有の吸収・蛍光波長を持つことがわかるのに加え、一般的な傾向として分

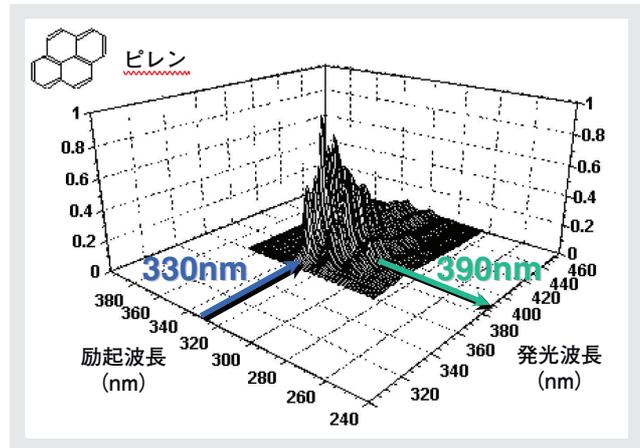


図2 ピレンの励起発光マトリクス(EEM)の例

子量の大きなPAHがより長波長域(図の右上の領域)に吸収及び蛍光波長を有することがわかる。図3左図は、こ

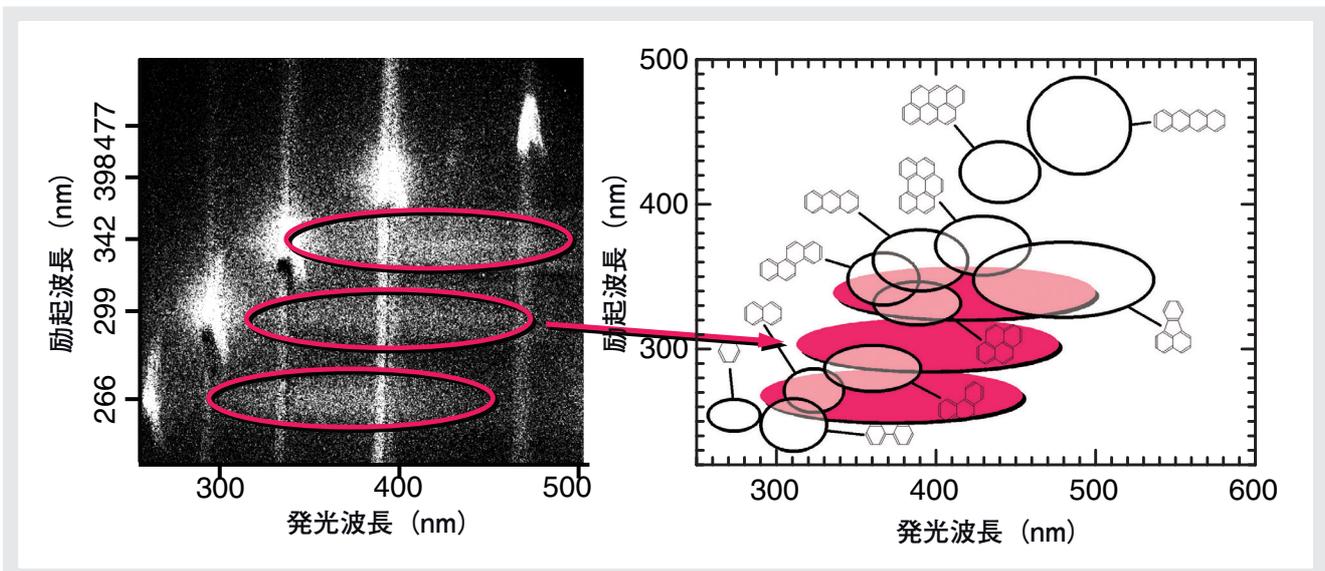


図3 ディーゼル噴霧火炎中で計測されたEEM画像の例(左)と代表的なPAHのEEM参照マップ(右)

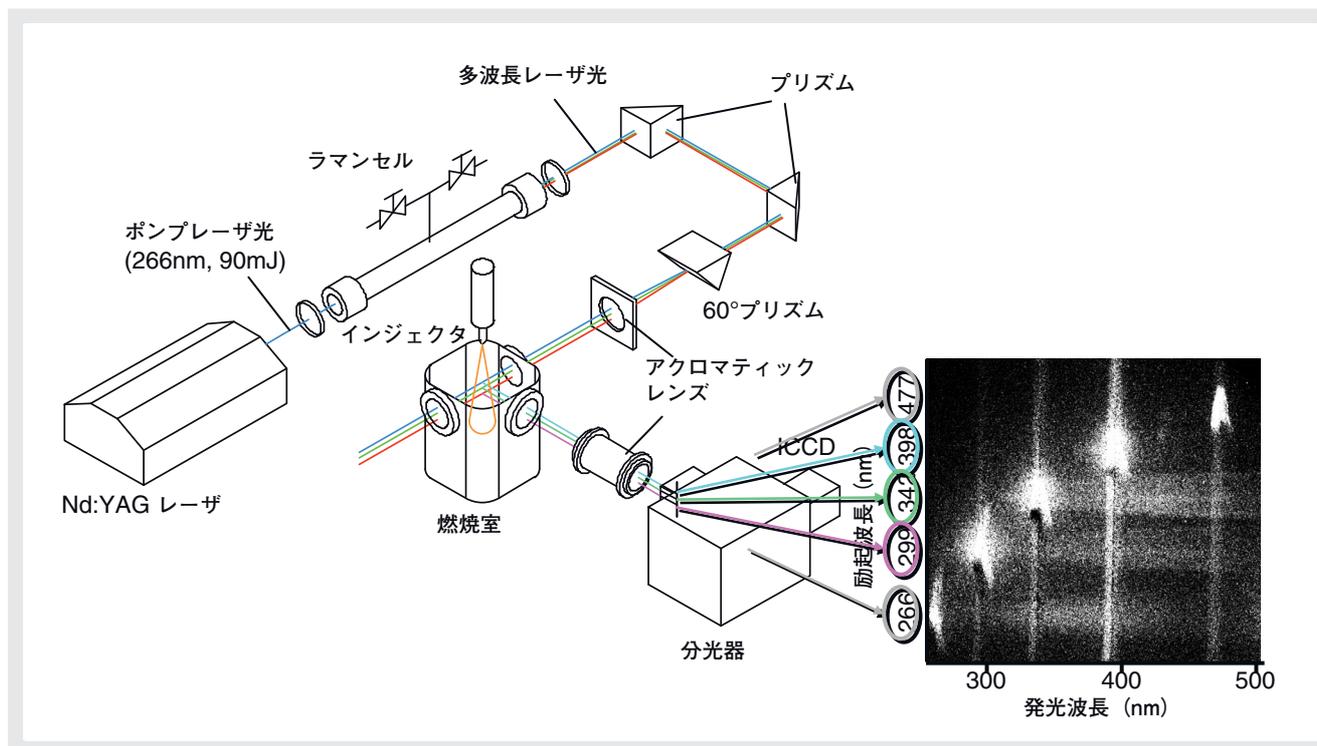


図4 ディーゼル噴霧火炎内すす生成過程のEEM計測光学系

のEEMを後述する方法によってディーゼル噴霧火炎中で実験的に計測したEEM画像である。実験によって計測されたEEM画像中の赤丸で囲った光の観測される位置をEEM参照マップと比較すると、ディーゼル火炎中でのどのような種類のPAHが生成しているかを調べることができる。

## 実験装置及び実験方法

図4に本研究でディーゼル噴霧火炎内すす生成過程のEEM計測に用いた実験装置の概略を示す。パルスNd:YAGレーザーの第4高調波(266 nm, 90 mJ)を後述するラマンセルを用いて240 nm~500 nmに及ぶ多波長レーザー光に波長変換する。本実験では主に266, 299, 342, 398 nmの4波長をEEM測定用の励起光として用いた。60°三角プリズムによりこの多波長レーザー光を分散させつつレーザー集光用レンズ(紫外アクロマティックレンズ)で燃焼室内のディーゼル噴霧火炎中心軸上の焦点に集光する。焦点位置は各励起波長毎に1 mm程度ずつ異なり、複数の焦点がディーゼル噴霧火炎の中心軸上に縦一列に並ぶ。レーザーパルスエネルギーは燃焼室入射直前ですべての波長を合わせて約20 mJである。異なる励起

波長に対応する各焦点での火炎内PAHからの蛍光は、入射レーザーと直角の方向から蛍光集光用レンズを用いて分光器の入射スリットに集光される。この時入射スリット上の異なる縦位置にはそれぞれ異なる波長によって励起された蛍光が集光される。分光器出射ポートに設置されたICCDカメラにより、異なる励起波長に対応する複数の蛍光スペクトルを1枚のEEM画像として同時に測定する。多波長励起光源はEEM計測に不可欠な要素である。従来、EEMの計測にはキセノンランプなど広波長帯域の光源が用いられてきているが、これらの光源ではエンジン燃焼室内でのすす生成過程といった非定常現象の瞬時計測に十分な光量が得られない。そこで本研究では高出力Nd:YAGパルスレーザーからのポンプレーザー光を、ラマンセルと呼ばれる高圧ガスセルを用いて多波長レーザー光に変換し、光源として用いた。ラマンセルは紫外ポンプレーザーを真空紫外光に波長変換する手段として広く用いられてきているが、火炎を対象としたEEM計測用の多波長光源としての利用は本研究が初めてである。ラマンセルを用いた多波長レーザー光源の特性については参考文献[8]に詳述されている。

本研究ではエンジン内でのディーゼル燃焼を模擬できる定容燃焼器と呼ばれる燃焼実験装置を用いて計測を

行った。この定容燃焼器ではディーゼル燃料を噴霧燃焼させる直前に、アセチレン・酸素・窒素の予混合気をスパークプラグを用いて点火、燃焼させることにより、エンジン相当の高温高压模擬空気を生成できる。定容燃焼器の容積は560 cm<sup>3</sup>、噴霧軸と直行する断面の形状は一辺56 mmの正方形で、3枚の光学計測用石英窓を備える。EEMの計測の他にも高速度ビデオカメラを用いたディーゼル噴霧火炎の撮影などが可能である。

## ディーゼル火炎内すす生成過程のEEM計測

図5に基準条件(雰囲気温度940 K, 雰囲気酸素濃度21%)におけるディーゼル噴霧火炎の高速度写真とEEM画像の計測例を示す。高速度写真は火炎の背面側から青色のレーザー光を照射し、火炎中で生成したすす粒子の分布を影として撮影することができるレーザーシャドウグラフィという方法を用いて撮影したものである。図中に示したEEM画像はすべて、噴霧燃焼の現象のばらつきとS/N比改善のため、10回の燃焼実験で得られた画像を積算したものである。ここに示した基準条件においては、高温高压雰囲気中に噴射された液体燃料が蒸発し、周囲気体と混合し、着火に至るまでに要する時間(着火遅れ)は0.8 ms

であった。着火遅れは図中の高速度写真の下縁にも赤三角マークで示してある。図中に示したEEM画像の計測タイミングは、ディーゼル火炎の着火前(0.6 ms), 着火直後(1.0 ms), 着火後(2.0 ms)にそれぞれ相当する。ここで、各画像中で斜めに並んでいるスポット状の光や縦筋状の光は計測上は意味のない散乱光であるので無視する。これに対し、各スポットの右側に見られる横筋状の光が、それぞれ異なる励起波長により励起された火炎内物質からの発光である。これらの励起発光は励起レーザー波長によらず観察されており、また発光波長域が広く振動バンド等によるスペクトル構造が見られないなど、分子量が大きく内部エネルギー自由度の大きなPAHに典型的な特徴を示している。また、この励起発光は酸素を含まない不活性高温高压雰囲気中に噴射された非燃焼の蒸発噴霧中では観察されなかったため、本実験で使用した燃料に最初から含まれる微量の芳香族不純物等によるものではないことが確認された。よってこれらの励起発光は噴霧火炎内で生成したPAHからの蛍光と考えられる。

図5より、PAHからの蛍光は着火前のt=0.6 msで既に観察されていることがわかる。計測タイミングが着火前、着火時、着火後と進むに従い、全体に火炎内PAHからの蛍光強度は大きくなると共に、蛍光波長が400 nm以下の領域から次第に長波長側へ広がっていく様子が観察され

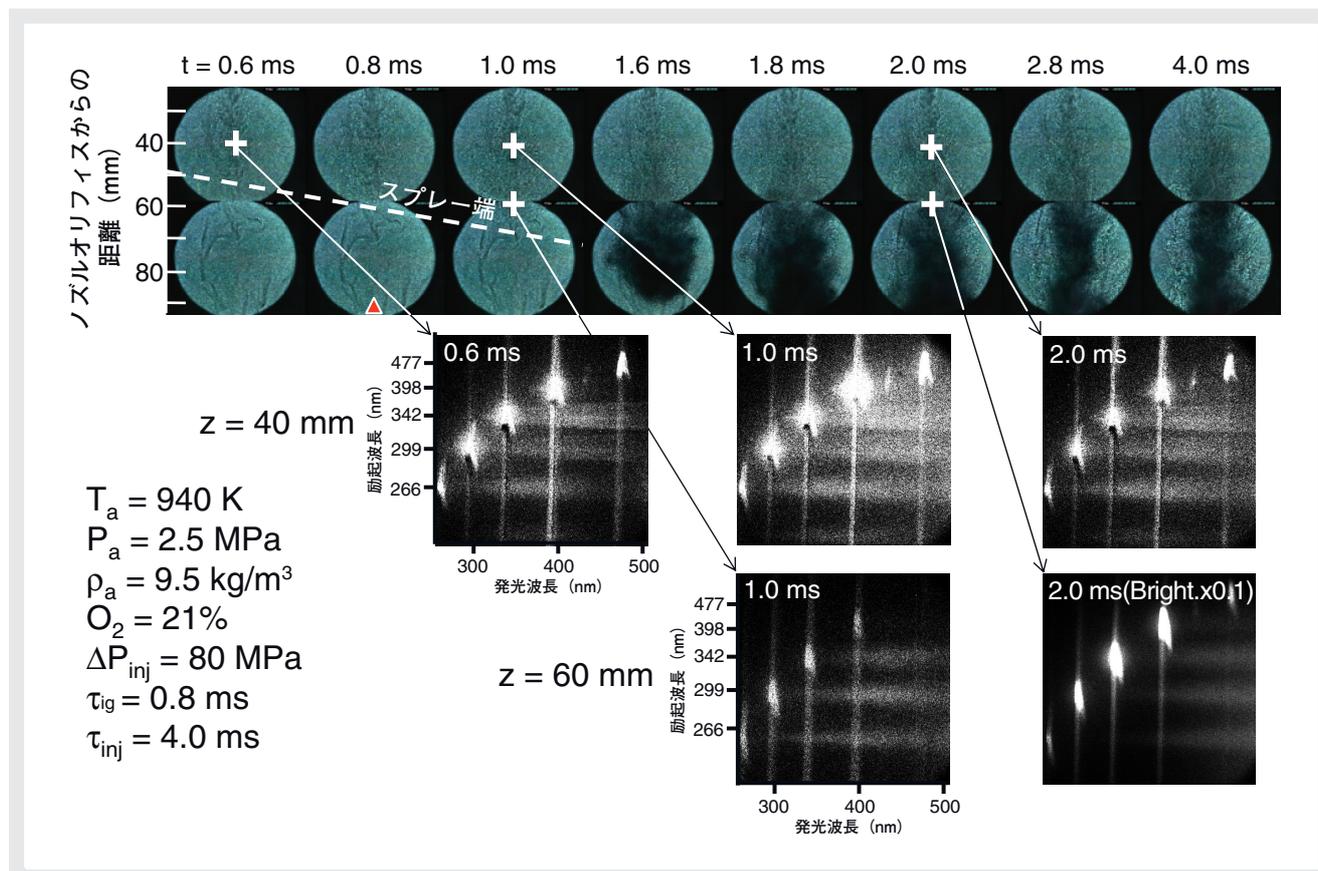


図5 基準条件におけるディーゼル噴霧火炎の高速度写真とEEM画像

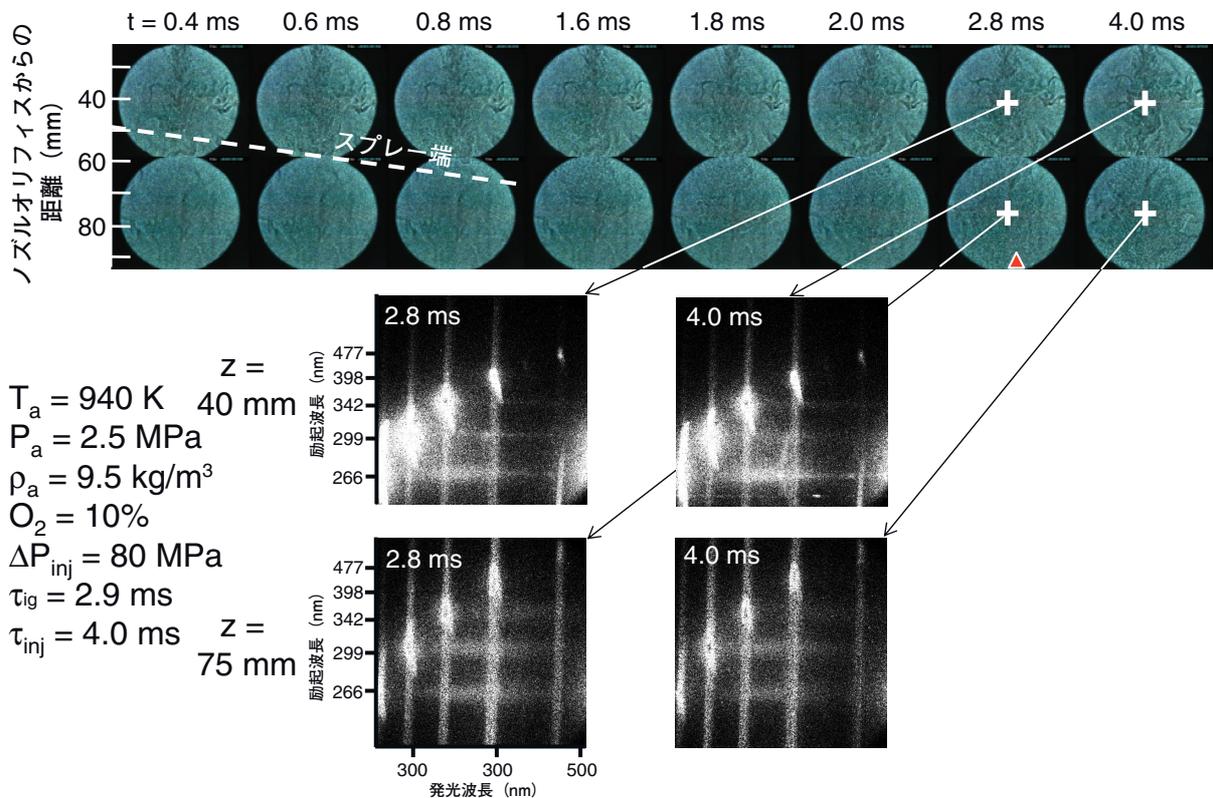


図6 雰囲気酸素濃度10%におけるディーゼル噴霧火炎の高速度写真とEEM画像

る。時間経過後の下流域に相当する $z=60$  mm,  $t=2.0$  msに至ると、これらのブロードなLIF光に比べて非常に明るい光( $z=60$  mm,  $t=2.0$  msのEEM画像の表示輝度レンジはその他の画像の10倍)がEEM画像の右端部(長波長域)に観察されるようになる。この光は噴霧火炎中のすす粒子によるレーザ誘起赤熱光(LII光)である。LII光はいずれの励起波長においても400 nm以上の全く同じ波長域に発光が観察されるという特徴を持つ。これはLII光が火炎内PAHのLIF光とは異なるすす粒子の輻射光であり、発光波長に励起波長依存性がないためであるが、図5の $z=60$  mm,  $t=2.0$  msの画像右端の光はこのLII光の特徴を明確に示している。

図6は、ディーゼルエンジンにおける排気再循環(EGR)運転条件を想定し、雰囲気酸素濃度を10%に低下させたときのディーゼル噴霧火炎内で測定された高速度写真とEEM画像の例である。雰囲気温度は940 Kで上述の基準条件と同じだが、着火遅れは2.9 msと基準条件に比べ大幅に長くなっている。高速度写真からわかるように、この雰囲気酸素濃度10%の条件ではすす粒子の生成は確

認されない。基準条件の場合と比べると、図6のEEM画像ではPAHからの蛍光が全体に400 nm以下の短波長側で観察されている。400 nm以下の領域で観察されるこれらの蛍光は、着火前に生成された分子量の小さなPAHによるものと考えられる。 $t=2.8$  msは着火とほぼ同時、 $t=4.0$  msは着火後に相当するが、これらの蛍光波長域には時間の経過や噴霧火炎中の上流、下流による大きな変化は見られない。これらの結果は、雰囲気酸素濃度10%条件下のディーゼル噴霧火炎内では、着火前に生成された分子量の小さなPAHが拡散燃焼期に入っても分子量の大きなPAHに成長せず、またすす粒子へも転化しないことを示していると考えられる。

以上に例示したようなディーゼル噴霧火炎のEEM計測を、雰囲気酸素濃度だけでなく雰囲気温度等も変化させながら実施した結果<sup>19)</sup>、雰囲気温度や雰囲気酸素濃度の低下に伴い、噴霧火炎中のPAHの多環化及びすす粒子への転化が遅延あるいは停滞することが明らかになった。図7は雰囲気温度がすす生成に与える影響を俯瞰できるよう、EEM法及び高速度写真により噴霧火炎中で観

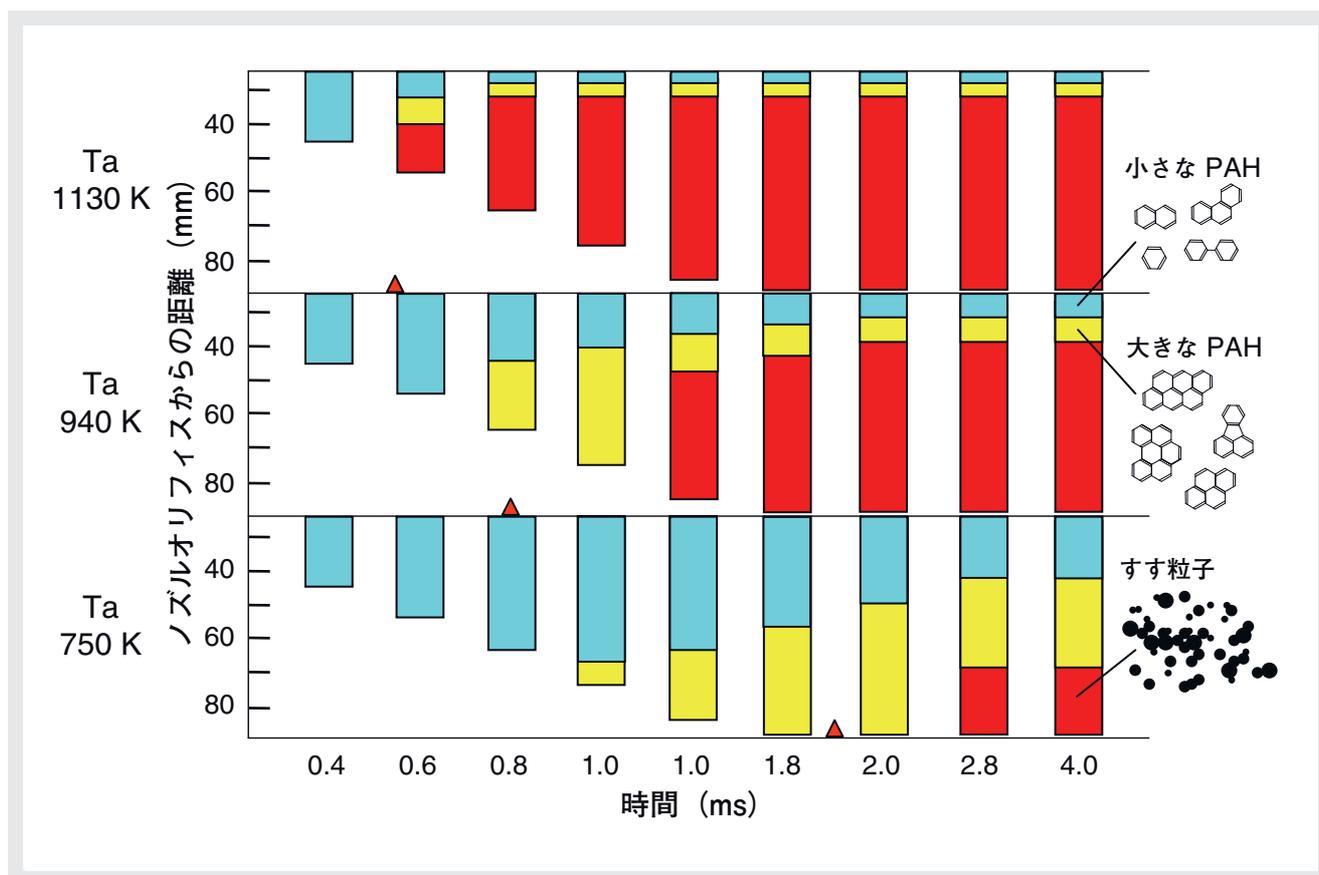


図7 雰囲気温度がディーゼル噴霧火炎内すす生成過程に与える影響

測されたすす生成過程を、分子量の小さなPAH、分子量の大きなPAH、すす粒子の3段階に分けて概念的に示したものである。雰囲気温度の低下に伴い、噴霧火炎中でPAHが多環化及びすすに転化する領域と時期はより下流へ移り遅延してゆくことがわかる。

## おわりに

火炎内のすす前駆物質の成分や成長過程を瞬時に計測するため、多波長レーザを光源とする励起発光マトリクス(EEM)法を新たに開発し、これをディーゼル噴霧火炎に適用した。EEM法による計測の結果、雰囲気温度や酸素濃度の低下に伴い、ディーゼル噴霧火炎中におけるすす前駆物質の生成や成長が、遅延あるいは停滞することなどが明らかになった。今後はこれまでに得られた情報に加え、ディーゼル噴霧火炎内のすす生成領域における温度及び当量比分布、すす粒子の酸化過程についてもさまざまな光学計測法を駆使して詳細に調査したうえで、その結果を高速・簡便なすす排出予測モデルとして定式化することを目標とする。このようなモデルをディーゼルエンジンシステムのリアルタイム統合制御に応用すれば、

ハードウェアのポテンシャルを最大限に活かした高効率・低エミッションエンジンシステムを実現でき、地球温暖化・エネルギー問題の克服に貢献できると期待される。

## 参考文献

- [1] Aizawa, T., Kosaka, H. and Matsui, Y., 2-D Imaging of Soot Formation Process in a Transient Spray Flame by Laser-induced Fluorescence and Incandescence Techniques, *Trans. JSME*, 69-680(B), 2003, pp.981-987.
- [2] Kosaka, H., Aizawa, T. and Kamimoto, T., Two-dimensional Imaging of Ignition and Soot Formation Processes in a Diesel Flame, *Intl. J. Engine Research* 6(1), 2005, pp.21-42.
- [3] Aizawa, T., Kosaka, H. and Matsui, Y., Laser Spectroscopy of Early Soot Formation Process in a Transient Spray Flame (Imaging and Spectral Measurements of Laser-induced Emission at Two Different Excitation Wavelengths), *Trans. JSME*, 71-706(B), 2005, pp.1708-1714.
- [4] Aizawa, T., and Kosaka, H., Investigation of the Early Soot Formation Process in a Transient Spray Flame via Spectral Measurements of Laser-induced Emissions, *Int. J. Engine Research* 7(2), 2006, pp.93-101.
- [5] Johnson, D.W., Callis, J.B., Christian, G.D., Rapid Scanning Fluorescence Spectroscopy, *Anal. Chem.* 49, 1977, pp.747A-757A.
- [6] Aizawa, T., Kosaka, H. and Matsui, Y., Measurements of Excitation-Emission Matrix of PAHs in a Flame Using a Multi-Wavelength Laser Source, *Trans. JSME*, 70-690(B), 2004, pp.496-502.
- [7] Berlman, I., *Handbook of Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules*, 2nd edition, Academic Press, New York, 1971.
- [8] Aizawa, T., Imaichi, K., Kosaka, H., Matsui, Y., Measurement of Excitation-Emission Matrix of Shock-heated PAHs using a Multi-wavelength Laser Source, *Proc. of 2003 SAE/JSME Fuels and Lubricants Meeting (2003-5)*, Paper No. SAE 2003-01-1785 / JSME 20030147.
- [9] Aizawa, T., Kosaka, H., Investigation of Early Soot Formation Process in a Diesel Spray Flame via Excitation-Emission Matrix (EEM) using a Multi-Wavelength Laser Source, *Int. J. Engine Research* 9(1), 2008, pp.79-97.



**相澤 哲哉**

Tetsuya Aizawa

明治大学工学部  
機械情報工学科  
専任講師  
博士（工学）