

報 文 1

ガソリン型予混合圧縮自己着火(HCCI) 燃焼研究に みる次世代自動車用燃料の研究開発

中央技術研究所 燃料研究所 燃料油・プロセスグループ

しばた げん
柴田 元

1. 予混合圧縮自己着火燃焼

燃料と空気の混合気を圧縮して自己着火させる燃焼方式を「予混合圧縮自己着火」といい、英語では Homogeneous Charge Compression Ignition を略して HCCI と呼ばれている。この燃焼技術をエンジンに適用すると、ディーゼルエンジン並みの高い熱効率と超低 NO_x 排出を実現できることから、次世代の内燃機関として世界中の自動車会社や大学・研究機関を中心に 2000 年頃より盛んに研究開発が行われてきた。HCCI 燃焼では着火が燃料の自己着火特性に委ねられることから、燃料の組成がエンジン性能に与える影響について詳細な研究を必要とする。新日本石油(株)中央技術研究所では 2002 年より日産自動車(株)総合研究所と共同で本研究に取り組みはじめ、燃料の組成が HCCI エンジンの運転性能に与える影響について様々な観点から研究をおこなってきた。ここではその一部を紹介する。

2. 炭化水素の自己着火プロセス

HCCI 燃焼について語るには、まず炭化水素の酸化分解による自己着火プロセスを理解する必要がある。ガソリンは約 250 から 300 種類に及ぶ炭化水素の混合物であるが、その構造によりノルマルパラフィン系炭化水素、イソパラフィン系炭化水素、オレフィン系炭化水素、ナフテン系炭化水素、芳香族系炭化水素、含酸素系炭化水素に分類することができる。炭化水素が自己着火に至るプロセスは、大まかには分類されるこれらの炭化水素のタイプで決まると考えてよい。HCCI エンジンではピストンの圧縮により空気とガソリンの混合気の温度及び圧力が上昇すると、図 1 に示すように 750K-900K の温度領域でノルマルパラフィン系炭化水素を主体とした冷炎反応 (Cool flame) が起こる。さらに混合気の温度が 900K に達すると、イソパラフィン系、オレフィン系、ナフテン系、含酸素系の炭化水素の分解が始まる。この過程を青炎反応 (Blue flame) と呼ぶ(ただし、これらの炭化水素も冷炎反応領域で或る割合で酸化分解反応は起こっている)。混合気の温度が 1100K 以上になると芳香族系炭化水素やメタンのような分子構造の固い炭化水素の酸化分解が始まり、熱炎反

応 (Hot flame) へ移行する。燃焼ガスの温度が 1450K 以上に到達すると、CO と THC (Total hydrocarbon) が著しく酸化される。HCCI エンジンを実際に運転して筒内圧力より熱発生率を計算すると、冷炎反応は低温酸化反応 (LTHR) として、また青炎反応から CO の酸化に至るプロセスは高温酸化反応 (HTHR) と呼ばれる二つの熱発生として確認することができる。HCCI 燃焼では燃料を構成する個々の炭化水素の酸化分解が、続く反応プロセスに大きく影響を与えるために、燃料の組成面からの燃焼の解明を必要とする。

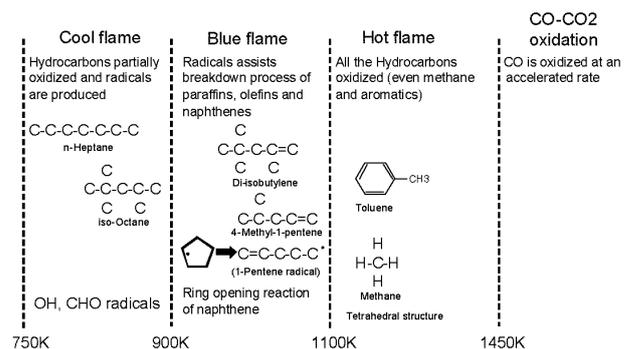


図 1 炭化水素の酸化分解反応プロセス

3. 低温酸化反応でのラジカル生成

図 2 に低温酸化反応での反応プロセスを示す¹⁾。低温酸化反応では主にノルマルパラフィンの水素引き抜き反応をきっかけに、第一酸素付加反応、第二酸素付加反応が起こり、850-900K の領域で過酸化水素が蓄積される。この反応の進行には OH ラジカルが中心的な働きをするが、例えばオレフィン系炭化水素やナフテン系炭化水素は脱水素反応を起こし易く、引き抜かれた H ラジカルが OH ラジカルと反応をして水となり、低温酸化反応の進行を阻害する働きをする。また芳香族系炭化水素はベンゼン環構造が固いため、図 2 の (a) 式で反応が止まり (b) 式以降に進行しない。こういった低温酸化反応の進行を遅らせたり弱めたりする働きをインヒビター作用と呼ぶ。低温酸化反応ではノルマルパラフィン系炭化水素の酸化分解とそれを阻害するインヒビター作用の駆け引きにより進行する。

図2の(b)式は可逆反応であり、温度が低いときは反応は左から右へ進行するが、温度が高くなると反応は右から左へ進行し、ついには低温酸化反応は停止する(この時の温度を天井温度と呼ぶ)。この温度上昇に伴う反応の遅れは、横軸に温度の逆数、縦軸に着火遅れ期間をとったアレニウスプロット上においてNTC領域(Negative temperature coefficient)として表現される。

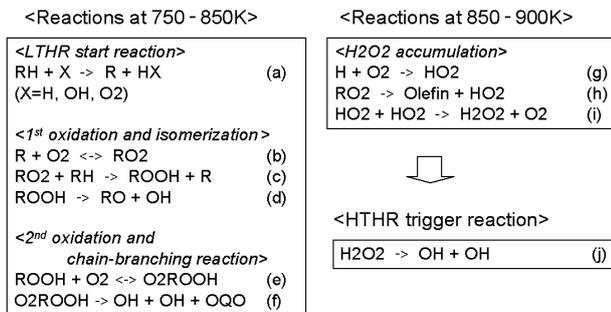


図2 ノルマルパラフィン系炭化水素の低温酸化反応プロセス

低温酸化反応は続く高温酸化反応を進めるための重要なプロセスである。式(1)は筆者らがHCCIエンジン実験より求めた高温酸化反応の発現位置(HTHR CA50)を予測する式である²⁾。この式によれば、高温酸化反応の発現時期(HTHR CA50)は低温酸化反応の発現時期(LTHR CA50)とその発熱量(LTHR QJ)の関数として表わすことができる。低温酸化反応の発熱量及び発現時期は燃料により異なり、物理的にはこういった現象は熱や温度のクランク角度履歴として表現することができる。

$$\begin{aligned} <1000rpm\ IMEP530kPa> \quad (R^2 = 0.967) \\ HTHR\ CA50 = 2.12 \times (LTHR\ CA50) - 0.366 \\ \quad \times (LTHR\ QJ) + 39.82 \quad (1) \end{aligned}$$

HTHR CA50: Statistically calculated HTHR CA50

LTHR CA50: LTHR CA50 (engine data)

LTHR QJ: LTHR heating value (engine data)

一方、化学的には低温酸化反応は「ラジカル(反応活性をもつ中間物質)の生成と続く高温酸化反応を立ち上げるための準備期間」として定義される。すなわち低温酸化反応の発熱が大きい場合は化学的には低温酸化反応中に多くのラジカルが生成されており、これらのラジカルが続く高温酸化反応を加速させる働きをしている。高温酸化反応は一度進行するとその反応を制御することが難しいことから、HCCI燃焼研究においては低温酸化反応における炭化水素の酸化分解に多くの研究が注力している。また、従来HCCI燃焼研究はこうしたエンジンの燃焼観察による解析が主流であったが、最近では化学動力学計算を用いた燃焼予測シミュレーションの開発も盛んに行われるようになってきた³⁾。

4. HCCI 燃焼研究から垣間見えるオクタン価の意味

燃料を構成する炭化水素の組成はHCCI燃焼に大きな影響を与える。例えば同じリサーチ法オクタン価(RO)の燃料であっても、その組成が異なっていればHCCIエンジンの性能は異なってくる。図3は同一RO90.5を持つPRF燃料(正標準燃料)とレギュラーガソリン(RO90.5、MON81.5)の着火性が吸気温度によりどのように変化するかをエンジン実験結果より模式化したものである⁴⁾。この図によれば、吸気温度が150℃未満のときはPRF燃料の方が着火性に優れるが、吸気温度が150℃を超えた領域ではレギュラーガソリンの方が着火性に優れていることがわかる。実際のHCCI燃焼においては吸気温度以外にも酸素濃度、当量比など着火に影響を与える様々な因子があり、従来のROのような単純な指標は着火条件の広いHCCI燃焼の着火指標にはなりえないのである。(ここでいう吸気温度150℃というのは我々の研究用エンジンにおける実験条件においてのみ当てはまるものであり、一般化したものではない)

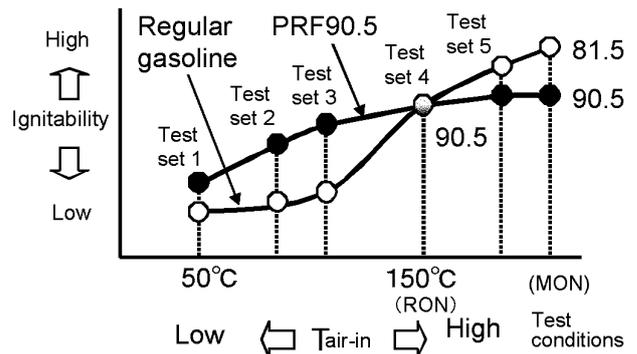


図3 レギュラーガソリンと正標準燃料の吸気温度に対する着火性

HCCIでは様々な着火条件があることから、研究の中でROやMON(モーター法オクタン価)がどのような意味を持つのかを筆者らは調べたことがある。HCCI燃焼もCFRエンジンで計測されるノッキングも同じ自己着火現象であることから、HCCIエンジンの燃焼からその条件におけるオクタン価を計算することができる。図4は吸気温度を変化させたときの各炭化水素のオクタン価を示したものである⁴⁾。このように炭化水素のオクタン価は着火する条件により大きく変化している。オクタン価というのはあくまでも相対的な指標であり、絶対的な指標ではない。本研究の結論としては、ROは低温酸化反応性を加味した炭化水素の自己着火指標で、MONは低温酸化反応性のない高温酸化反応特性の着火指標であることが分かっている。

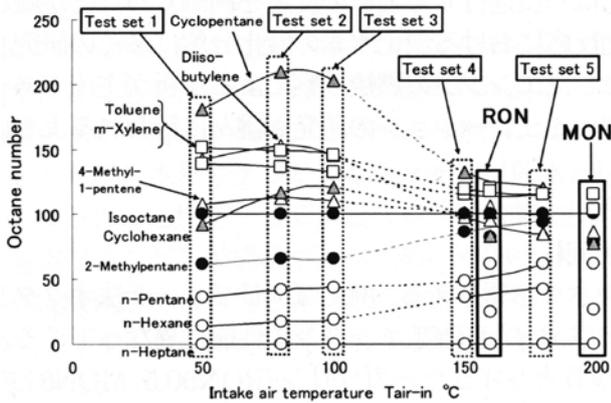


図4 各条件における炭化水素のオクタン価

5. 高温酸化反応の個性

高温酸化反応に個性があるか否かについては様々な意見がある。一般には高温酸化反応には個性がなく、低温酸化反応が同じであれば高温酸化反応は同じになると考えられている。実験より得られた式(1)もそのことを示唆している。しかし、実際には図5に示すように吸気温度が十分に高くして低温酸化反応が存在しないようなケースでも高温酸化反応に差は見られる。これは吸気温度の高いMON計測条件において炭化水素の着火性に序列があることと一致する。すなわち、もしも高温酸化反応に炭化水素の個性が存在しないのなら、MONそのものに炭化水素の差があってはならないことになる。しかし、実際にはMONに炭化水素の差が存在することから、高温酸化反応に炭化水素の個性は存在すると我々は考えている。低温酸化反応が十分に大きい場合には低温酸化反応やインヒビター作用が高温酸化反応の発現に与える影響の方が強く現れるため式(1)で表現されるが、正確に言えば高温酸化反応自体の炭化水素の個性を無視することはできない。このことは次章に示すように高温酸化反応の進行を炭化水素の種類である程度制御することができることを示唆している。

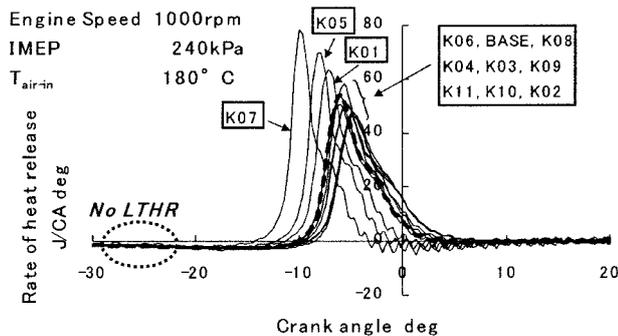


図5 低温酸化反応がない条件における高温酸化反応比較

6. 高温酸化反応の進行と二段階高温酸化反応

図5の低温酸化反応が存在しない条件において、単一燃料75容積%にノルマルヘプタン、ノルマルヘキサン、イソオクタン、トルエンをそれぞれ25容積%混合した4種類の燃料で実験した時に高温酸化反応が開始する温度圧力の関係を示したものが図6である。この図によれば最も酸化分解を起こしやすいノルマルヘプタンを混合した燃料が最も低温低圧で高温酸化反応が開始し、最も酸化分解しにくいトルエンを混合した燃料が最も高温高圧で高温酸化反応が開始している。すなわち、単一燃料に追添した炭化水素により高温酸化反応が開始する温度圧力に序列ができることがわかる。このことは高温酸化反応の進行は、燃料を構成する個々の炭化水素が酸化分解する温度圧力に到達すると個別に反応しながら進行していることを意味している。つまりうまく炭化水素の酸化分解反応温度を利用して燃料を設計すれば、通常のHCCI燃焼とは異なる狙った熱発生率を示す燃焼をさせることができるのである。その一例として、近年筆者らが着目しているのが二段階高温酸化反応燃焼である⁵⁾。

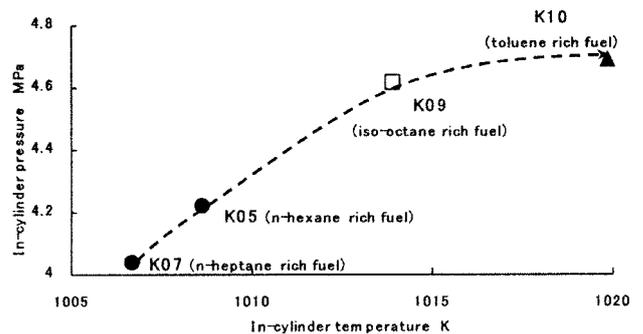


図6 各燃料の高温酸化反応が開始する温度圧力の関係

図7にノルマルヘプタンとトルエンを混合した燃料(NTL系燃料と呼ぶ)でHCCI燃焼をさせた場合の熱発生率を示す。燃料中のノルマルヘプタンの一部が冷炎発熱(低温酸化反応)を起こし分解してラジカル類を形成する。青炎反応に至ると先に生成されたラジカルが残ったノルマルヘプタンおよび一部のトルエンを助燃しながら反応が進むが、この時大部分のトルエンはそのベンゼン環構造が強固であるために青炎反応の温度帯では側鎖のメチル基がラジカル化する程度でそのベンゼン環構造は保持される。トルエン及びベンゼン環構造を持つラジカルは熱炎反応に入ってから分解が始まる。この結果NTL系燃料では図7に示すように高温酸化反応が二段に分かれた段付き燃焼をする。このような燃焼を「二段階高温酸化反応」(DP-HTHR: Dual phase high temperature heat release)と呼ぶ。二段階高温酸化反応をする燃料は高温酸化反応初期の急激な圧力上昇を抑制した燃焼を実現できることから、運転領域を高負荷側に大幅に拡大することができる。

リサーチ法オクタン価が同一の5種類の燃料で最大圧力上昇率 800kPa/deg のときの熱発生率を比較したものを図8に示すが、二段階高温酸化反応をする NTL75-800 の熱発生率だけが大きく、PRF75-800 に比べて 30% 以上の出力向上が確認された。

－ 引用文献 －

- 1) Tezaki, A., "Diesel Combustion: Chemical kinetics", JSAE Technical Paper, No. 20054246, 2005
- 2) Shibata, G., and Urushihara, T., "Correlation of Low Temperature Heat Release with Fuel Composition and HCCI Engine Combustion", SAE Technical Paper, No. 2005-01-0138, 2005
- 3) Westbrook, C., "Chemical Kinetics of Hydrocarbon Ignition in Practical Combustion Systems", Proceeding of the Combustion Institute, Vol. 28, pp1563-1577, 2000
- 4) 柴田元、漆原友則、「炭化水素の自己着火特性と燃料の HCCI インデックスの考え方 (第二報)」、自動車技術会論文集 Vol. 38, No. 6, 20074788, 2007年11月
- 5) 柴田元、漆原友則、「燃料による HCCI エンジンの運転性能改善に関する研究」、自動車技術会論文集 Vol. 39, No. 5, 20084909, 2008年9月

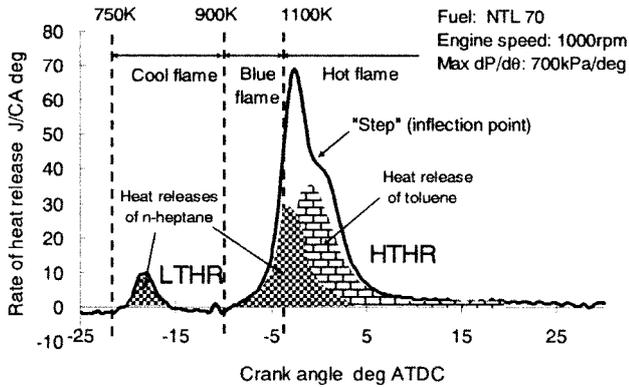


図7 二段階高温酸化反応 (DP-HTHR)

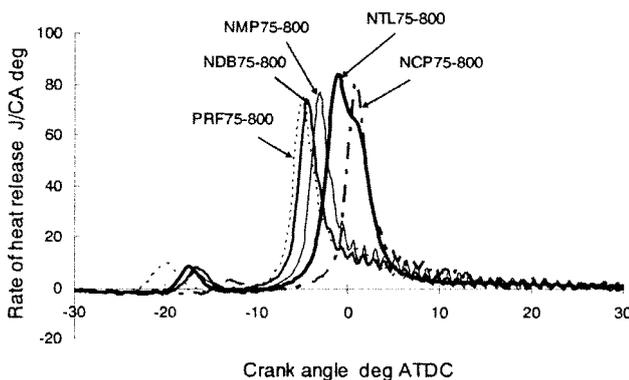


図8 二段階高温酸化反応 (NTL75-800) とそれ以外の燃焼の熱発生率比較

7. おわりに

ガソリンや軽油といった液体燃料は燃料の容積当たりの発熱量が高いことにより、自動車の航続距離が長く従来のインフラが活用できるという点で、今後数十年は自動車用燃料の主流であると考えられる。しかしながら、CO₂ 排出量の削減や石油資源のノーブルユースの観点からさらなる低燃費化が要望されている。このような背景の中、HCCI エンジンは現状では運転領域が限定されているものの、将来的には内燃機関の究極的な燃費向上のポテンシャルを有していると考えられる。また、HCCI 燃焼は幅広い燃料を対象としているため、得られた知見はガソリン燃焼やディーゼル燃焼へも応用することが可能である。本研究結果が将来の内燃機関の燃費向上と燃料多様化への一助となることを期待する。