

氏 名	むはんまど あどにん びん はみでい MOHD ADNIN BIN HAMIDI
学 位 の 種 類	博 士 (工学)
学 位 記 番 号	富理工博甲第 102 号
学位授与年月日	平成 28 年 3 月 23 日
専 攻 名	理工学教育部 (新エネルギー科学専攻)
学位授与の要件	富山大学学位規則第 3 条第 3 項該当
学 位 論 文 題 目	Ignition Mechanism Analyzed through Transient Species Measurements and its Correlation with 0-D and 3-D Simulations for PRF and Toluene/ n-Heptane Mixture (オクタン価基準燃料とトルエン/ノルマルヘプタン混合燃料における、過渡的成分計測および、0次元と3次元のシミュレーションとの相関による、着火機構の検討)
論 文 審 査 委 員 (主査)	平澤 良男 手崎 衆 松島 紀佐

Research Abstract

Ignition Mechanism Analyzed through Transient Species Measurements and its Correlation with 0-D and 3-D Simulations for PRF and Toluene/ n-Heptane Mixture

MOHD ADNIN BIN HAMIDI

HCCI mode engine has characteristics of the two most popular forms of combustion used in SI (spark ignition) engines- homogeneous charge spark ignition (gasoline engines) and CI engines: stratified charge compression ignition (diesel engines). As in homogeneous charge spark ignition, the fuel and oxidizer are mixed together. However, rather than using an electric discharge to ignite a portion of the mixture, the density and temperature of the mixture are raised by compression until the entire mixture reacts spontaneously. Stratified charge compression ignition also relies on temperature and density increase resulting from compression, but combustion occurs at the boundary of fuel-air mixing, caused by an injection event, to initiate combustion.

There is no direct initiator of combustion in HCCI mode engine. This makes the process inherently challenging to control. The oxidation of normal heptane (nC_7H_{16}) has already been the subject of many experimental and modeling studies. Nonetheless, most of the studies were carried out under high-temperature oxidation (typically above 800K), and relatively little attention was paid to the low-temperature oxidation of n-heptane, especially regarding the characterization of oxygenated reaction products. In HCCI mode engine, it is found that generally there are two-stage of heat generation from ignition mechanism of hydrocarbons. Relatively, around 700K there is small heat generation called “Cool Ignition” while around 1000K, there is a large heat generation as main combustion flame called “Hot Ignition”. This Hot ignition is dominated and influenced by the Cool Ignition. Heat generation for low temperature oxidation and thermal ignition preparation period has significant influence to the time when the temperature reached for the occurrence of hot flame. In addition, by supplying OH reactant into H_2O_2 presence reaction can accelerate the generation of hot flame. Therefore, to understand and control low temperature oxidation reaction that has dominated cool flame that cause the hot flame as the main combustion becoming important task in realizing HCCI engine.

In controlling the hot ignition inside Homogenous Charge Compression Ignition HCCI, early temperature rise or known as Cool Ignition needs to be understand. Cool Ignition that leads to low temperature oxidation LTO is known to be highly depending on chemical reaction between the fuel and oxygen as the condition at the moment are low in temperature ($<1000\text{K}$), and low in pressure. Because of that, various experiment parameter was set up to analyze the phenomenon. Parameter that includes in this study can be listed as below;

1. Fuel Composition Dependency
2. Equivalence Ratio Dependency

Research Abstract

3. Engine Speed Dependency
4. Compression Ratio Dependency
5. Intake Temperature Dependency

All these parameter is discussed consequently based on the use of four kinds of analysis method;

1. Exhaust gas analysis by FT-IR of least square method
2. 0-Dimensional simulation calculation by CHEMKIN PRO
3. 3-Dimensional simulation calculation by FORTE
4. Simplified model calculation.

Two kind of fuel mixtures that consisting PRF (Primary Reference Fuel), and NTF (n-heptane and toluene) were used throughout this study. PRF (Primary Reference Fuel) is a fuel that has been referred when evaluating octane number. While octane number is a value indicating knock resistance of the fuel in the engine. With higher octane number, knocking is less likely to occur. In high-performance engine, high compression ratio is used to increase thermal efficiency. Thus, to avoid knocking event, gasoline as the fuel that has less prone to knocking is needed and this is called anti-knock properties. Within PRF fuel, iso-octane (iC_8H_{18}) and Toluene ($C_6H_5CH_3$) has high knocking resistance with octane number 100 and 110 respectively, while n-heptane (nC_7H_{16}) with low knocking resistance has 0 octane number.

It is discussed that for PRF fuel, Consumption of both fuel components decrease with increasing Octane Number. HCHO yield tend to increase with increasing ON, whereas those of HCOOH and CH₃OH are almost independent of Octane Number. In the case of NTF, n-heptane consumption decreases when toluene content is over 40%, but the extent is less than that of PRF. Toluene consumption does not decrease until the maximum toluene content of the current experiments. On C₆H₅CHO, the product yield increases with increasing toluene content in a quadratic manner. The production pathways of C₆H₅CHO extracted from the model are also discussed briefly.

Moreover, temperature rise in HCCI mode engine that is depending on the ignition delay is also discussed in this study. It is confirmed that attempt to express ignition delay time as a function of temperature and fuel mixture composition in the manner of simple calculation was partly successful.

In the case of 3-dimensional simulation, Low temperature heat release (LTHR) of cool ignition stage occur in the lower range of toluene content. Temperature and species distribution inside cylinder was also obtained in the event of Low Temperature Oxidation (LTO) and homogeneity was confirmed. Flow Effect does not gives big impact in LTO event as piston speed is considered low for this study (600 rpm).

Review on reaction mechanism model between LLNL and SAKAI model was also done as LLNL

Research Abstract

model has stronger toluene effect in NTF fuel mixture. Modification was also done and toluene effect can be reduced at some extent.

Last but not least, relevant chemical kinetic mechanisms are discussed with a simplified model constructed with a consideration of the property of chain reaction happens in n-heptane (base fuel) added with toluene/ iso-octane (sub fuel) in which OH reproduction and fuel + OH reaction plays important role.

(別紙) Mohd Adnin Bin Hamidi 博士学位論文審査結果要旨

予混合圧縮着火(HCCI)は、内燃機関の混合気形成と着火の様式において、従来の火花点火機関と同じ予混合均一化とディーゼル機関と同じ圧縮着火を組み合わせるものである。窒素酸化物、粒子状物質を出さない排気特性と高効率とを両立する特性で、二酸化炭素排出抑制に貢献する燃焼方式として期待されている。ところが着火時期について、スパークプラグの様な直接的に決める機能を持たず、混合気の自着火特性に受動的に頼らざるを得ず、それを如何に動的に最適制御するかが実用化を阻む課題となっている。

炭化水素の圧縮自着火は、物理過程よりは化学反応が支配すること、燃料の分子構造に強く依存し、例えば物理特性が変わらない異性体間で大きく着火性が異なるような特徴を持つ。典型的な着火過程では、完全燃焼により 2000K を越える最高温に達する熱炎着火に先立って、700-800K 程度で生じる冷炎と呼ばれる小さな熱発生が存在する 2 段着火となり、熱炎・冷炎間には休止期間がある。この冷炎は燃料種別依存が大きく、冷炎熱発生の大きな燃料は着火性が高い関係にある。冷炎発生時にはホルムアルデヒド、過酸化水素等の冷炎反応過程を反映した中間生成物が生じる。従ってこの中間生成物を検出、計測し、燃料成分、組成によって異なる着火の反応機構を論じてこの現象の知見を深めることが、着火制御をより高度・精緻にすることにつながる意義を持つと考えることが申請者の立場である。

申請者の実験手法としては、単気筒の実験エンジンを電気モーター駆動で出力に関わらず一定回転させ、フーリエ変換赤外分光器(FT-IR)を用いて排気分析を行う。その際圧縮着火条件を熱炎に至らない設定にすることによって、冷炎中間生成物を検出し、また冷炎での燃料消費率を測定するものである。燃料にはオクタン価基準燃料であるノルマルヘプタンとイソオクタンの混合物(PRF)と、ノルマルヘプタンとトルエンの混合物(NTF)を用いた。実験パラメータとしては燃料の混合割合、空気との混合比である当量比、圧縮開始温度となる吸気温度がある。

実験結果として、冷炎反応を起こした燃料条件に共通して検出された生成物が、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、蟻酸、メタノール、エチレン等であり、PRF ではイソオクタン由来のイソブテン、NTF ではトルエン由来のベンズアルデヒドがある。イソブテンの生成は、イソオクタンの枝構造では C2 以下の低分子に分解しにくく C4 で留まる割合が多いと言う理論的予測を確かめたことになる。

混合割合依存に関して、PRF のイソオクタン、NTF のトルエンの割合を増やしていくと、ノルマルヘプタンも含めた冷炎での燃料消費率が減少するが、イソオクタンではその率が 0 から 100%まで変化は直線的であるのに対し、トルエンではその率が少ない間は変化が少なく、あるところから急激になって、例えばある条件ではトルエン 80%で燃料消費 0%となる。この差異を生じるメカニズムとしては、先ず冷炎反応が OH ラジカルを担体とする連鎖反応であり、OH と燃料成分の反応に始まって一連の反応過程で 1 を超える OH の再生があることで連鎖が持続増殖する

ことである。OH を競争的に消費するアルデヒド等の蓄積によって、燃料・酸素共に残存するのに冷炎反応は停止する。イソオクタンは OH との反応速度定数がノルマルヘプタンと同等であり、OH 再生係数は小さいが 0 ではない。一方トルエンは OH との反応速度がノルマルヘプタンの 1/5 と小さく、OH 再生係数は 0 と見做せるほど小さい。これらの関係が上記燃料消費率変化の特性を決めていると説明することが出来た。この傾向を半定量的に再現するものとして簡易反応モデルを提案した。

実験と対応させるためのシミュレーション計算として、詳細反応機構を含んだ燃焼関連応用では世界中で最も使われているリアクションデザイン社の、CHEMKIN-PRO を用いた空間 0 次元のエンジン圧縮模擬計算と、FORTE を用いた 3 次元数値流体計算を、いずれも米国ローレンスリバモア国立研究所で開発されたガソリンサロゲート燃焼詳細反応機構モデルを主要に用いて行った。基本的には CHEMKIN-PRO で得られる、反応による混合気組成変化が実験的観測と対応する。空間均一性の違いが実エンジンと 0 次元計算との時間変化率の違いとなるので、それを補うものとして 3 次元計算がある。

熱炎抑制条件で混合気圧縮を行う、本研究の特殊設定のもとで、熱炎着火に至らないが 2 段の熱発生を生じる場合があることを発見した。シミュレーションと対応させた検討によると、2 段目熱発生では過酸化水素 H_2O_2 を重要な中間体とし、ホルムアルデヒドを酸化的に消費して熱発生を生じる過程であり、福井大安東らが理論的に提唱していた H_2O_2 ループ反応が 900K を越えて活性化し、熱発生が顕在化したものであると推定された。そして実験的には 2 段目熱発生量が増加するとホルムアルデヒド排出量が減少することが確認された。これは H_2O_2 ループ反応の存在を実験的に示す初めての成果となる。

以上の様に、本研究は炭化水素の圧縮着火の反応機構をより詳細に理解する知見を与えたものであり、HCCI 機関の精緻な制御など今後の内燃機関の効率・性能向上にも大いに資するものと考えられる。よって、学術的価値は高く博士(工学)として合格と判断した。