

燃焼化学反応論による自動車排出ガス生成物の予測について

秦 寛夫・陸田雅彦

【要約】

素反応シミュレーションを用いて、自動車から排出される燃焼由来 VOC の組成の予測を行えるか検討した。素反応速度方程式計算には専用ソフトウェアを用い、各素反応速度定数データベースを活用して計算環境を構築した。それらの計算環境を用いて、空気-燃料当量比の違いによる燃焼生成物の比較を行い、当量比が高くなることで不完全燃焼生成物が増加することを確認した。また、燃料組成に芳香族化合物を添加した場合の燃焼由来生成物の発生挙動を調べ、芳香族化合物の増加と共に、生成物のオゾン生成能が減少することを示した。

【目的】

当研究所ではシャシダイナモメーターを用いた自動車の排出ガス計測を行っている。これらの調査結果は東京都の移動発生源に関わるインベントリ等に利用されてきた。しかし排出ガス計測は時間、コスト共に大きいことから、実験を行う回数に限りがある。一方で排出ガスは内燃機関の燃焼化学反応由来生成物であることから、燃焼の素反応速度定数データベースが揃えば、反応速度論に基づく計算により、理論的に生成物を予測することが可能となる。その結果、時間、コスト面の制約から実験を行うことが難しい現象観測を理論計算により行えることが期待される。本研究では、素反応速度方程式計算ソフトウェアを用いて、ガソリン燃焼反応に関する計算環境の構築を行った。また構築した条件の下、①空気-燃料当量比の違いによる燃焼生成物の比較、②ガソリン中の芳香族化合物の比率が増加することによる、排出ガスへの影響評価を行った。

【方法】

専用ソフトウェアを用いて素反応速度方程式、エネルギー移動方程式、質量保存則に基づく 0 次元連成計算を行った。素反応速度定数、及びその他計算に必要な熱力学データベース等は LLNL のガソリンサロゲート燃料 679 種を用いた¹⁾。ガソリン燃料の組成は市販燃料の委託分析結果を元に、ノルマルパラフィン 16%、イソパラフィン 40%、オレフィン 17%、芳香族 27%とした（詳細は表 1 参照）。ナフテンは素反応データベースに定義されていないことから、本計算では考慮しなかった。内燃機関の燃焼方式は火花点火エンジンを想定し、着火後の燃焼生成物の濃度値を算出した。

【結果の概要】

・当量比 $\phi = 1.3$ と 1.0 (燃料/ 空気) における燃焼生成物のオキシダント生成能換算値 OFP の比較の結果、 $\phi = 1.3$ では不完全燃焼生成物の絶対量が多くなり、また MIR 値の高いアルデヒドの生成量が増加する (図 1 参照)。シャシダイナモメーターの試験結果では、当量比が高くなる状況 (冷始動時など) では、排出ガス内におけるアルカンの構成比率がアルケンよりも低くなることがわかっており、本計算では再現できなかった。今後原因を検討していく。

・ガソリン内の芳香族成分の割合を増やすと、排出ガスのオキシダント生成能が減少する (図 2 参照)。芳香族成分の反応性が高いことから、完全燃焼が促進されたと考えられ、先行研究の実験結果とも一致する²⁾。一方で芳香族成分の素反応機構は未解明な部分が多々あることから、芳香族の燃焼素反応の数を過小評価していることにより不完全燃焼の寄与が減り、見かけ上オキシダント生成能が減少した可能性もある。これらの課題は今後、詳細を検討していく。

【参考文献】

1. Lawrence Livermore National Laboratory, Reaction mechanism database. <https://combustion.llnl.gov/mechanisms>
2. Dennis Schuetzle et al. The Relationship between Gasoline Composition and Vehicle Hydrocarbon Emissions. The presented paper at the Symposium on Risk Assessment of Urban Air held June 1992 in Stockholm, Sweden.

表 1 燃焼化学反応計算で用いたガソリンの組成 (%)

Carbon number	4	5	6	7	8
n-Parafin	2.29	6.98	4.31	2.32	-
iso-Parafin	1.40	15.77	16.41	-	6.65
Orefin	1.64	7.17	4.65	3.20	-
Aromatic	-	-	0.98	18.21	8.01

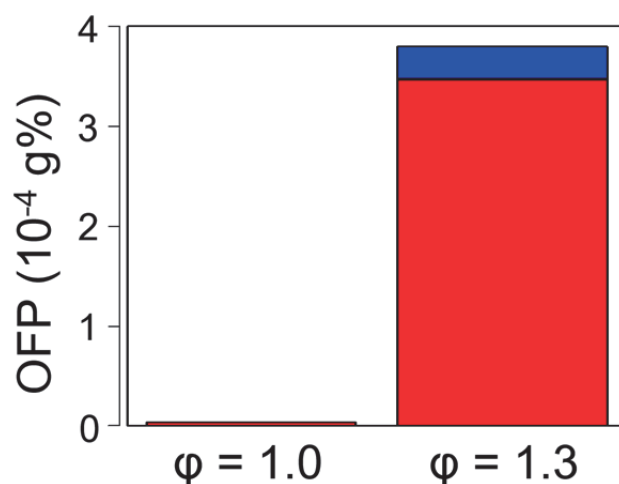


図 1 空気-燃料当量比とオキシダント生成能 OFP の関係(■:アルカン、■:アルケン、■:芳香族、■:アルデヒド)
当量比 φ を上げることで燃焼に必要な空気量が確保されず、アルデヒドなどの不完全燃焼生成物が発生することを再現した。

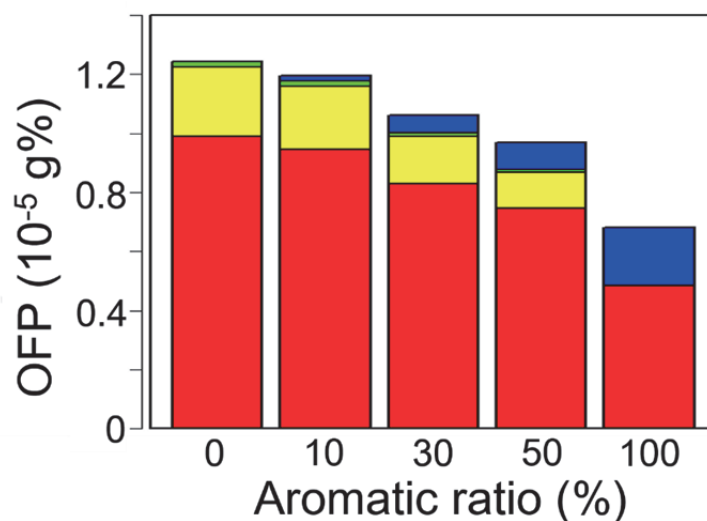


図 2 燃料中の芳香族の比率と排出ガス中の各成分種別オキシダント生成能 OFP との関係(■:アルカン、■:アルケン、■:芳香族、■:アルデヒド)
芳香族類の比率が増えることで、排出ガス中の不完全燃焼化合物の割合が減少する。本計算結果は先行研究で行われた排出ガス試験の結果とも一致する。