2405 層流拡散火炎内の PAHs および PM の生成挙動

Formation behaviors of PAHs and PM in laminar diffusion flames

Ο	中村	卓人	(群馬大・院)		小林	佳弘	(群馬大・院)
Æ	古畑	朋彦	(群馬大・工)	正	新井	雅隆	(群馬大・工)

Takuto NAKAMURA, Yoshihiro KOBAYASHI, Tomohiko FURUHATA, Masataka ARAI Gunma University, 1-5-1 Tenjin-cho, Kiryu, Gunma

Key Words : Diffusion Flame, Combustion, PAHs, PM

1. 緒

近年,ディーゼル排ガス中に含まれるナノメーターサイズ の浮遊粒子状物質(ナノ PM: nano Particulate Matter)やその前 駆物質である多環芳香族炭化水素(PAHs: Polycyclic Aromatic Hydrocarbons)が人体へ悪影響を及ぼすことが報告されてい る. このような有害排出物を抑制するために燃焼構造におけ る PAHs および PMの生成挙動を詳細に把握する必要がある.

そこで本研究では、ガスクロマトグラフィ(GC: Gas Chromatography)により層流拡散火炎内の PAHs 濃度分布の測 定を行った.また火炎内の PM の生成挙動を明らかにするた めに、SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer)を用いて PM の 粒径分布計測を行うとともに、超微量 PM 分析装置 (MEXA-1370PM)を用いた PM の成分分析も行った.

2. 実験装置および実験方法

2.1 火炎形成装置 本研究では気体燃料を用いた層流 拡散火炎を対象として PAHs およびすすの計測を行った. 図 1に火炎形成装置と火炎写真を示す.この装置では、シール ドガス(空気)を流すことにより、長時間安定した気体燃料 による拡散火炎が形成可能である.燃料には直鎖系炭化水素 燃料であるメタン(CH4)とプロパン(C3H8)を用いた.火炎の中 心軸をz軸、半径方向をr軸としノズル直上にその原点をと り、火炎高さをLfとした.

2.2 サンプリング装置 本研究では図 2 のような装置 を用いて火炎内の燃焼ガスおよび PM のサンプリングを行っ た.これは、外径 1.4mm、内径 0.9mm のステンレス製プロ ーブを火炎内に挿入し、シリンジを用いて火炎内のガスをサ ンプリングするものである.プローブ先端のガス吸引速度は 火炎形状に影響を与えないように火炎内のガス速度以下(お よそ 1m/s) とした.また、PAHs サンプリングの場合、すす が混入することを防ぐために流路中に石英フィルタを取り 付けた.このとき石英フィルタに付着した PM を MEXA-1370PM に導入し、成分分析を行った.一方、PM の 粒径分布を計測する場合、フィルタを装着せずにサンプリン グを行った.

2.3 分析装置 PAHs の定量分析には GC (GC-14BP+GC -14BPF タンデム型, SHIMADZU 社)を用いた. この GC では ベンゼン(C₆H₆), トルエン(C₇H₈), ナフタレン(C₁₀H₈), ブチ ルベンゼン(C₁₀H₁₄), ジフェニル(C₁₂H₁₀), フルオレン(C₁₃H₁₀) およびピレン(C₁₆H₁₀)を定量分析することが可能である. こ のとき, PAH 濃度が GC の測定レンジの上限あるいは下限を 超えてしまう場合には,希釈器(VKL100s, PaLaS 社)による 希釈(330 倍, 1650 倍)または, 試料の濃縮(4 倍)を行った.

PM の粒径および粒子数の測定には SMPS (Model 3034, TSI 社)を用いた.このとき,粒径および粒子数が SMPS の測定 レンジ内に収まるように希釈(165倍)を行い,試料を装置 内に導入した.

PM の成分分析には超微量 PM 分析装置 (MEXA-1370PM,

HORIBA 社)を用いた. この装置は SOF(未燃炭化水素分), Soot(すす分), Sulfate(硫化物)を分析することが可能である. ここで、本研究で用いた燃料中には硫黄分が入っていないこ とから Sulfate については測定対象としなかった.



3. 実験結果と考察

3.1 火炎内の PAHs 生成挙動 図 3、4 に L_f =30mm のメ タンおよびプロパン火炎の中心軸上において、GC によって 得られた PAHs の質量濃度および Pt-PtRh 熱電対により測定 された温度分布を示す.また斜線領域は、以前のレーザ計測 で得られた PAHs からすすへの遷移領域を表している.ここ で、本研究で用いた GC では 10⁻⁷g/m³以下の濃度は検出でき ないので、その測定下限を破線で示す.

図3よりメタン火炎内ではベンゼン、トルエン、ピレンの みが検出された.他の分析可能なPAHs も存在しているとも 考えられるが、GC の測定下限以下のため検出されなかった 可能性もある.ベンゼンとトルエンは、火炎内全体および火 炎外で検出された.濃度はベンゼン、トルエン、ピレンの順 で高い.ベンゼンとトルエンの濃度分布は遷移領域直前(約 z=18mm)と直後(約z=23mm)でピークをとる二山の分布と なった.また、火炎外ではほぼ一定の濃度となり、ベンゼン は約10²g/m³、トルエンは約10¹g/m³となった.これは、比 較的小さなPAHs は火炎内で消滅せず、火炎外に放出されて いることを示している.ピレンは遷移領域直後(約z=23mm) で検出され、その下流側でいったん検出されなくなった.そ の後、火炎内温度が上昇しピークとなる約z=27mmで再び検

日本機械学会関東支部 ブロック合同講演会―2008 おやま―講演論文集〔2008-9.19~20,小山〕



Fig.3 PAHs concentrations in methane flame (L_f =30mm)



Fig.4 PAHs concentrations in propane flame (L_f =30mm)

出され火炎先端まで検出された. これは,火炎上流でメタ ンの一部がベンゼンとなり,そしてピレンなどに成長する. このとき,ピレンなど比較的大きな PAHs は,遷移領域です すに遷移することでいったん検出されなくなることを示し ている.そして,PAHs になりきらなかった物質が火炎下流 で温度上昇に伴いベンゼンやトルエンに変化し,それらがピ レンなど比較的大きな PAHs に成長すると考えられる.

図4よりプロパン火炎ではベンゼン,トルエン,ナフタレン, ブチルベンゼン,ジフェニル,フルオレン,およびピレンが 検出された.メタンと同様にベンゼンとトルエンは火炎内全 体および火炎外で検出され,遷移領域直前(約 z=10mm)と 直後(約 z=25mm)でピークとなった.フルオレンとピレン は遷移領域付近と火炎先端部のみで検出され,ナフタレンと プチルベンゼンは遷移領域よりも上流側でのみ検出された.

図 3, 4 を比較するとメタン火炎では遷移領域よりも上流 側でペンゼンおよびトルエンの濃度が低く,大きな PAHs が 検出されていない.このことからメタン火炎ではプロパン火 炎に比べ,全体的に PAHs の生成量が少ないことがわかる. すなわち,炭素数の小さな燃料では遷移領域よりも上流側で PAHs の生成量が増すと考えられる. **3.2 火炎内の PM 生成挙動** 図 5 に *L_f* =30mm のメタン およびプロパン火炎内の中心軸上における *z*=24mm での SMPS による火炎内 PM の粒径分布結果を示す.

図 5 よりメタン火炎の PM の粒径分布は粒径 D_p =40nm 付 近まではほぼ一定の粒子数(約 10³ 個)が検出され、粒子数 は増加し、約 D_p =400nm で最大値となっている.プロパン火 炎では約 D_p =20nm から粒径が大きくなるにつれて粒子数が 増加し、 D_p =487nm でも増加し続けている.このことからプ ロパン火炎では D_p =487nm より大きな粒径で最大値となって いると考えられる.

図6に火炎内のPM成分分析結果を示す.メタン火炎では SOFとSootの割合が約60:40となっている.一方,プロパン 火炎ではSOFとSootの割合が約47:53となっている.以上 のことから,炭素数の大きな炭化水素燃料ではPAHsが生成 しやすく,さらにPAHsからSoot分への遷移が行われやすい と考えられる.そのため,PM構成成分においてSOFが減少 したと考えられる.これは,前述した炭素数の小さな燃料で は燃料などの未燃分が火炎下流に多く存在していることと 対応していると考えられる.



Fig.5 PM size distributions at SMPS (propane flame, z=24mm)



4. 結

- (1)炭素数の少ない燃料では PAHs が形成しにくく, すす領域 でも PAHs が生成されると考えられる.
- (2)ベンゼンやトルエンなど比較的小さな PAHs は火炎外に放 出される.
- (3)炭素数の多い燃料では火炎内に存在する PM の量が多く なり、D_p=20~40nm 程度のすすや D_p=487nm 以上の大きな PM が多くなる.
- (4)炭素数の多い燃料では火炎内に存在する PM 成分中の Sootの割合が多くなる