

令和 2 年 7 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03179

研究課題名(和文) 高温高压環境下におけるアルコール系C3・C4混合バイオ燃料の乱流燃焼機構の解明

研究課題名(英文) Turbulent combustion characteristics of C3 and C4 mixed alcohol biofuel isomers in a high-pressure and high-temperature environment

研究代表者

小林 秀昭 (Kobayashi, Hideaki)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：30170343

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：高温高压下におけるC3、C4アルコール系燃料の異性体とその燃焼特性に及ぼす影響を明らかにした。はじめに、熱発生経路解析により発熱に支配的な中間化学種が異性体によらずCH<sub>2</sub>Oであることを明らかにした。またOH-PLIFにより乱流火炎の火炎面密度はn-プロパノールの方がiso-プロパノールより小さいことを見出した。さらに、高温高压下のCH<sub>2</sub>O-PLIFにより、負の曲率領域でn-プロパノールの方がCH<sub>2</sub>O半値幅が大きいことがわかった。中間化学種半値幅の増大は固有不安定性を抑制することから、理論的に予測されていた中間化学種の拡散効果が固有不安定性に及ぼす影響が実験的に証明された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

異性体燃料は熱物性値が概ね等しいが化学反応機構が異なるため乱流火炎に影響を及ぼす固有不安定性が変化する。特に大きなエンタルピーを有する中間化学種の拡散が重要な役割を果たすことが理論的に予測されており、反応機構の中でその中間化学種が何かを明らかにすることが重要である。本研究は数値解析によりその中間化学種としてCH<sub>2</sub>Oを特定し、レーザー分光計測によって乱流火炎中のCH<sub>2</sub>O分布計測から拡散に起因すると推定されるCH<sub>2</sub>O分布の広がりを明らかにした。本研究は、バイオ燃料の燃焼特性解明のみならず、燃焼化学反応と乱流中の中間化学種拡散の相互作用を明らかにする可能性を示した学術的意義を有する。

研究成果の概要(英文)：Combustion characteristics of C3 and C4 alcohol isomer were elucidated in a high-pressure and high-temperature environment. First, a heat release path analysis was performed and it was found that CH<sub>2</sub>O is the predominant intermediate species with high enthalpy in flame structure. By using OH-PLIF, it was proven that flame surface density for n-propanol flame is smaller than that of iso-propanol flame, indicating suppression of intrinsic flame instability in n-propanol flame. Moreover, CH<sub>2</sub>O-PLIF in terms of relationship between local flame curvature and Full-Width-Half-Maximum of CH<sub>2</sub>O profiles in a high-pressure and high-temperature environment shows that for FWHM for n-propanol flame is larger than that of iso-propanol flame in negative curvature region. The increase in FWHM of the CH<sub>2</sub>O profile suppresses the intrinsic flame instability, meaning that the theoretical prediction in terms of the effect of diffusion of intermediate species with high enthalpy was proven in this study.

研究分野：工学

キーワード：高压燃焼 乱流燃焼 バイオ燃料 異性体燃料 レーザー誘起蛍光法

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高温高压環下の燃焼現象とりわけ乱流燃焼は燃焼科学における先端研究分野であり、極限環境燃焼科学の代表的課題である。直面する地球環境問題から自動車エンジンのみならず航空エンジンにもバイオ燃料利用が検討されている。第1世代バイオ燃料として異性体の無いC1 エタノールが知られるが、C3 (炭素数3)・C4 (炭素数4) アルコール系燃料を非食料バイオマスから発酵製造する技術開発が進み、エンジン燃料への利用が検討されつつある。アルコール系 C3・C4 バイオ燃料はエネルギー密度が高く、含酸素燃料であるためにすす生成が少ないという特徴を有しているが、高炭素数であるほど異性体種が増え、製造時の異性体割合の変化、異性体によるオクタン価・セタン価の違いなど、混合燃料としての燃焼特性解明が必要である。

C3, C4 それぞれの異性体は分子量が等しく分子構造の違いも小さいため生成エンタルピーや熱物性値がほとんど等しいにもかかわらず、燃焼反応機構が異なっている。その結果、反応帯内の重要な中間化学種である CH<sub>2</sub>O や HCO 分布に顕著な違いが生じ火炎構造や火炎特性に明確な違いが現れることが指摘されている。異性体は選択拡散やルイス数効果の差異が小さい一方で、化学反応機構が異なるため、従来ほとんど議論できなかった燃焼反応と乱流との相互作用が観測できる可能性を有している。異性体燃料を用いることにより、燃焼反応と乱流の相互作用に踏み込む研究が可能になり、高温高压乱流燃焼の研究として行えば、燃焼学的に吟味されたバイオ燃料燃焼技術の道を開くものである。

### 2. 研究の目的

本研究は、燃焼科学の先端研究分野である高温高压乱流燃焼において、非食料バイオマスから生産されるアルコール系 C3, C4 バイオ燃料およびその混合燃料の乱流燃焼機構を明らかにし、極限環境乱流燃焼の学理構築を図り CO<sub>2</sub> 排出削減燃焼技術へ寄与することを目的とする。具体的にはエンジン燃料として有望なプロパノール異性体、ブタノール異性体の乱流予混合火炎を高温高压下で安定化させ、1) 乱流燃焼速度および乱流火炎構造、2) 中間化学種 CH<sub>2</sub>O, OH 等のレーザー計測による局所濃度分布、3) 燃焼排出ガス組成を明らかにし、アルコール系 C3・C4 バイオ燃焼に対する乱流燃焼の異性体効果、温度圧力依存性に対し、反応動力学と局所火炎不安定性原理に基づくメカニズム解明を行う。

### 3. 研究の方法

実験は東北大学流体科学研究所に設置された高压燃焼試験設備を用いて行った。バーナは現有の出口直径 20 mm のノズル型バーナであり、ノズル出口上流には乱れ発生用多孔板が内蔵されている。高压燃焼容器は、空気供給系、700 K まで昇温可能な空気加熱装置が内蔵されている。

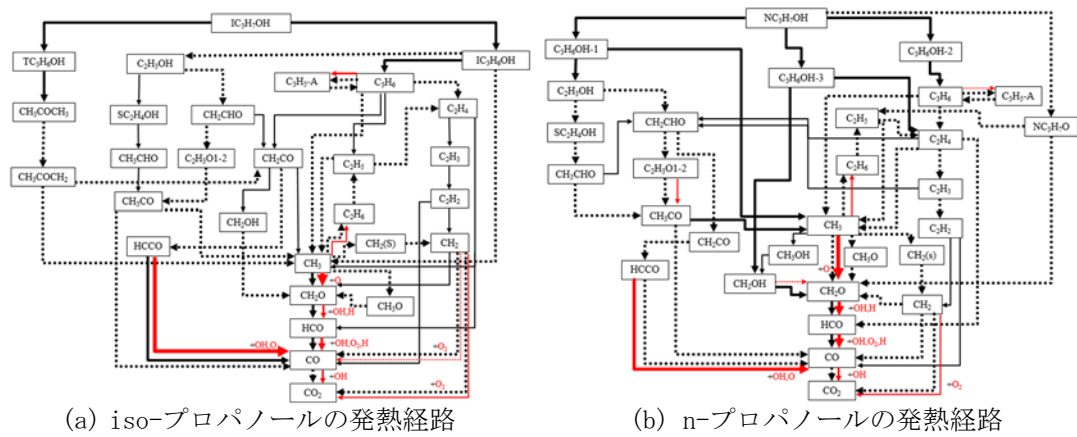
本高压燃焼試験設備には OH-PLIF, CH<sub>2</sub>O-PLIF 同時計測系が装備されている。2 台の波長可変色素レーザー、2 台の ICCD カメラによって同時計測が可能であり、OH-PLIF, CH<sub>2</sub>O-PLIF オーバーラップ強度分布によって発熱帯厚さの厚みを計測できる。また、OH ラジカルは予混合火炎の火炎前面近傍に存在するため、OH-PLIF 分布から瞬時火炎面位置を特定し、乱流燃焼速度や局所火炎面密度を定めることができる。本研究では、これらのレーザー計測技術を多用して C3 アルコール異性体 (iso-プロパノール, no-プロパノール), C4 アルコール異性体 (iso-ブタノール, n-ブタノール) の燃焼特性を明らかにした。

また、本研究の主題のひとつである中間化学種の拡散効果が局所火炎構造、ならびに火炎の固有不安定性に及ぼす影響を明らかにするため、詳細反応機構を考慮した数値解析を行った。数値解析コードには Chemkin-Pro を用い、層流燃焼速度、反応経路解析、熱発生経路解析を行って、固有不安定性に対する大きな影響を有する高エンタルピー化学種を特定し、後述するように CH<sub>2</sub>O が最も有望な中間化学種であることを突き止めた。そこで、CH<sub>2</sub>O-PLIF によりその分布厚さを求め、以前に理論的に予測した中間化学種の分布と拡散が固有不安定性に及ぼす影響を検証した。

### 4. 研究成果

#### (1) C3 および C4 アルコール異性体の発熱経路解析

異性体間で生成量に差異がある中間化学種、特に発熱に大きく寄与する中間化学種の上流拡散が火炎の固有不安定性に影響を及ぼすというモデル数値解析結果から、実燃料の火炎構造における中間化学種を特定するため、プロパノール異性体およびブタノール異性体に対して発熱経路解析を行った。解析条件は当量比 0.9、圧力 0.1 MPa とした。プロパノール異性体の発熱速度の解析結果を図 1 に示す。



(a) iso-プロパノールの発熱経路 (b) n-プロパノールの発熱経路  
 図1 iso-プロパノールおよびn-プロパノールおよびの発熱経路解析結果

図1より、CH<sub>3</sub>、CH<sub>2</sub>O、HCO、HCCO、COといった中間化学種の消費反応に大きな発熱速度をもつことが分かる。こうした化学種は熱分解過程の下流側で生成される化学種であり、熱分解過程の上流で生成される化学種は発熱に大きく寄与しないことが明らかになった。これらの中間化学種の消費反応における発熱速度の総和を求めたところ、CH<sub>3</sub>に次いでCH<sub>2</sub>O、HCO、HCCO、COが大きいことが分かった。すなわち、発熱速度解析結果から、CH<sub>3</sub>、CH<sub>2</sub>O、HCO、HCCO、COの上流拡散が火炎の安定性に寄与する可能性が示された。さらに異性体間でこれらの化学種の濃度差を調べた結果、プロパノール異性体間では、CH<sub>2</sub>Oのモル分率に最も大きな差異があり、n-プロパノールの方が大きいことが分かった。これらのことからプロパノール異性体間ではCH<sub>2</sub>Oの上流拡散が火炎の固有不安定性に寄与している可能性が強く示唆され、本研究ではCH<sub>2</sub>Oを異性体間において高いエンタルピーを有する中間化学種としてレーザー計測の計測対象と決定した。なお、C<sub>4</sub>アルコールでは発熱経路解析の結果、iso-ブタノールおよびn-ブタノール間でCH<sub>2</sub>O濃度分布に大きな違いがみられないことから、本研究ではC<sub>3</sub>アルコールを中心に火炎の固有不安定性と中間化学種拡散効果の相関を求めることとした。

(2) レーザ計測による瞬時火炎構造ならびに火炎面密度の計測

図2に0.3 MPa、403 Kという高温高圧下におけるプロパノール異性体のOH-PLIF画像を示す。

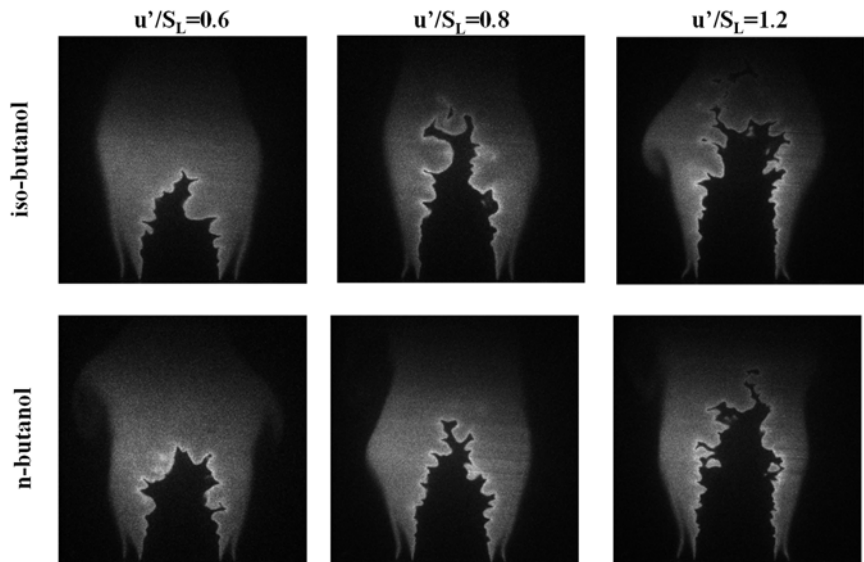


図2 プロパノール異性体のOH-PLIF画像(圧力0.3 MPa、当量比0.9)

画像解析では画像から火炎面を抽出し平均反応変数 $\langle c \rangle$ を求め、さらに異性体間の火炎面の凹凸スケール、つまり固有不安定性の差異を明らかにするために局所火炎面密度 $\Sigma_{local}$ を算出した。検査領域を設け検査領域内に含まれる火炎面のpixel数から領域内の火炎面長さを算出したのち、等方性を仮定し検査領域内に含まれる火炎面長さを検査領域面積と解析画像枚数で除することで各座標点での $\Sigma_{local}$ を算出することができる。図3にその結果を示す。

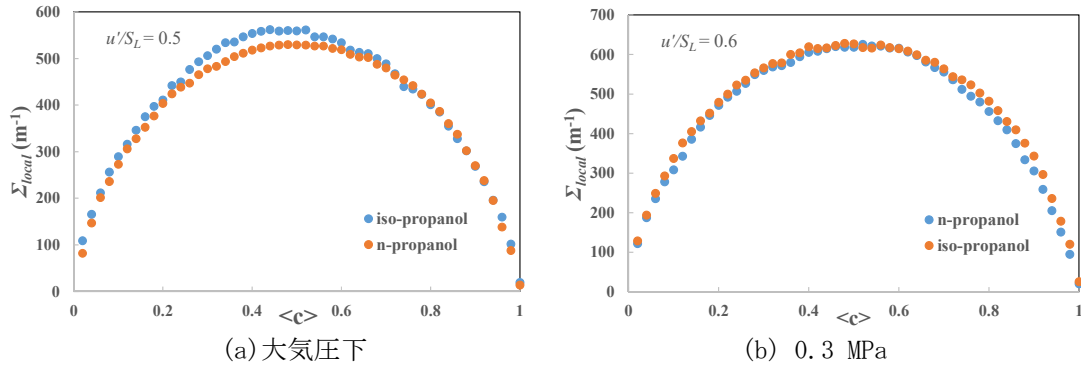


図3 プロパノール異性体の $\langle c \rangle$ と $\Sigma_{local}$ の関係

プロパノール異性体間では比較すると大気圧条件下において、n-プロパノールより iso-プロパノールの方が局所火炎面密度が大きくなるのが分かる。これは iso-プロパノールの方が火炎面がより微細化し、局所的に密に存在することを意味している。つまり大気圧条件下では iso-プロパノールの方が固有不安定性が大きい。また雰囲気圧力が 0.3 MPa ではプロパノール異性体間で大きな差異が無いことが明らかになった。C4 アルコールでは iso-ブタノールおよび n-ブタノール間で大気圧下でも高圧下でも $\langle c \rangle$ と $\Sigma_{local}$ の関係に大きな差異が見られず、CH<sub>2</sub>O 濃度分布に違いがみられないことと一致する結果となった。

(3) 中間化学種分布による固有不安定性に対する異性体効果の検証

続いて、プロパノール異性体において CH<sub>2</sub>O-PLIF 計測を実施し、発熱反応経路解析結果から火炎面の固有不安定性に支配的と推定された CH<sub>2</sub>O の分布半値幅 (FWHM) と火炎曲率との関係を調べた。

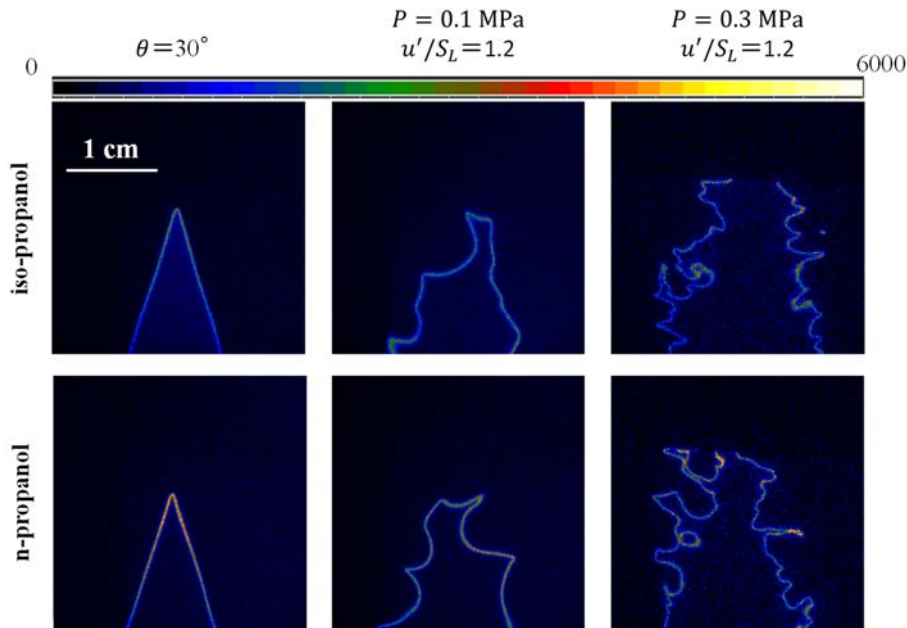


図4 プロパノール異性体における CH<sub>2</sub>O-PLIF 画像 (層流ブンゼン火炎および乱流火炎)

図4にプロパノール異性体における層流ブンゼン火炎と乱流火炎に対する CH<sub>2</sub>O-PLIF 画像を、更に図5に CH<sub>2</sub>O 半値幅と火炎曲率との関係を示す。本研究では、火炎曲率との関係を明らかにするため、負の伸長を受ける層流ブンゼン火炎先端部、ならびに曲率のないブンゼン稜線部に対する CH<sub>2</sub>O-PLIF も実施した。

図5に示されるように、乱流火炎では層流火炎先端部と同様に負の曲率を有する領域で、n-プロパノールの方が半値幅が大きくなるのが示された。こうした異性体間での差異は、CH<sub>2</sub>O の濃度差に起因すると考えられ、n-プロパノールの CH<sub>2</sub>O 濃度の方が高いため、n-プロパノールの半値幅が大きくなったと考えられる。またここには示していないが、0.3 MPa 条件下では、大気圧乱流火炎より半値幅が大幅に減少し、異性体間の差異は確認できなかった。このことは、3.0 MPa において局所火炎密度に異性体効果が表れていない結果と一致する。

以上より表1に示す結論が導かれる。すなわち、C3 アルコール燃料であるプロパノール異性体間では、OH-PLIF 計測により n-プロパノールの方が固有不安定性が小さいことが示され、さらに発熱経路解析ならびに CH<sub>2</sub>O-PLIF 結果から CH<sub>2</sub>O の生成量と CH<sub>2</sub>O の上流拡散量は n-プロパノ

ールの方が大きいことが確認された。このことは、大きなエンタルピーを有する中間化学種が C3 アルコール燃料異性体では CH<sub>2</sub>O であり、その拡散効果によって n-プロパノールでは固有不安定性が抑制され、局所火炎面密度  $\Sigma_{local}$  が減少する関係性をよく示している。理論的に予測されていた中間化学種の拡散効果が固有不安定性に及ぼす影響を実験的にはじめて証明したもので、本研究の大きな成果である。

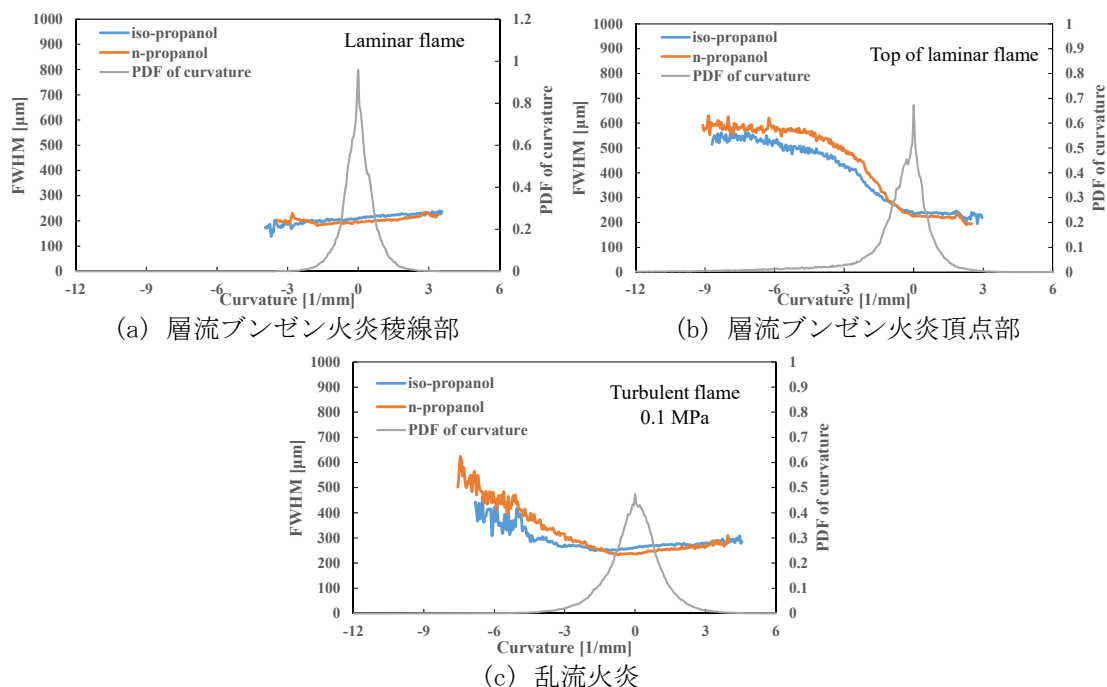


図5 プロパノール異性体における CH<sub>2</sub>O 半値幅と火炎曲率との関係 (大気圧)

表 4.4 プロパノール異性体の固有不安定性と CH<sub>2</sub>O 濃度および半値幅の関係

固有不安定性 (OH-PLIF)	iso-プロパノール > n-プロパノール
CH <sub>2</sub> O 濃度 (1次元数値計算)	iso-プロパノール < n-プロパノール
CH <sub>2</sub> O 半値幅 (CH <sub>2</sub> O-PLIF)	iso-プロパノール < n-プロパノール

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 T. Abe, K. Takahashi, T. Kudo, A. Hayakawa, H. Kobayashi
2. 発表標題 Exhaust Gas Characteristics of Bio-fuel Combustion
3. 学会等名 15th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Nishikawa, T. Abe, A. Hayakawa, T. Kudo, H. Kobayashi
2. 発表標題 Structure of Laminar and Turbulent Premixed Flames of Bio-Fuel Isomers
3. 学会等名 16th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

最大1000文字（2000バイト）。ただし、一時保存の際は1500文字（3000バイト）まで入力できます。（全角文字は2バイト、半角文字は1バイトと換算）

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	早川 晃弘  (Hayakawa Akihiro)  (90709156)	東北大学・流体科学研究所・助教    (11301)	