

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2014

課題番号：23246035

研究課題名(和文)革新的火炎クロマトグラフィと微量化学種吸収分光による分子レベル燃焼反応制御

研究課題名(英文)Precise reaction control by novel flame chromatography and absorption diagnosis of minor species

研究代表者

丸田 薫 (MARUTA, Kaoru)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：50260451

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 28,300,000円

研究成果の概要(和文)：従来大型特殊装置によってのみ可能だった燃料着火特性の取得が、本火炎クロマトグラフィにより小型卓上規模で可能になった。本研究は多段酸化反応が空間的に分離される微弱火炎現象に、初めて光学計測(レーザー誘起蛍光法)を適用したもので、反応の比較的初期に生じるアルデヒド、代表的なラジカルであるOHの検知を達成した。これらと化学発光画像とを組み合わせることで、炭化水素燃料の反応過程に沿った着火特性を把握出来た。オクタン価などの着火特性指標を、微弱火炎の光学計測による化学種分布から導く応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：The present flame chromatography enabled desktop-scale experiments for various ignition properties of fuels which were not possible before. The present study applied optical measurements (laser-induced fluorescence) to weak flames where multi-stage oxidation process could be stabilized as spatially separated stable reaction zones. Results showed that Aldehyde and OH radicals were clearly captured in addition to CH chemiluminescence. By combining these images, multistage ignition process in hydrocarbon fuel was reproduced as spatially separated multiple weak flames. It is expected that ignition property index such as Octane number could be introduced from the appearance of the multiple weak flames.

研究分野：燃焼工学

キーワード：炭化水素燃料 着火 低温酸化反応

1. 研究開始当初の背景

通常の消炎直径より小径の石英チャンネルに常温から高温へ至る温度分布を外部熱源により与える手法で、微小領域の燃焼現象を調べる研究を行った結果、予熱された予混合間に相当する通常火炎の他に、着火と消炎を自動的に繰り返す振動火炎、さらには着火現象に相当する微かな化学反応が「微弱火炎」として安定化されることを初めて見いだした。この定在微弱火炎を利用することで、通常は時間的に非定常な着火現象、特に高級炭化水素に対してはその低温酸化反応を、定常的に空間分離して観察できることを明らかにした(火炎クロマトグラフィ)。この手法により、従来は原理的に困難とされてきた、単一実験手法による多種多様な燃料の詳細化学反応機構の高精度検証や改良を行うことができる。そのためには、こうした系における化学種の計測や実験条件の範囲拡大、さらなる現象の解明などが期待される。このような成果を通じて、各種の新燃焼器開発に資することが期待される。

2. 研究の目的

独自手法である、温度分布制御マイクロフローリアクタによる「火炎クロマトグラフィ」を基盤技術とし、非接触計測である光学計測に基づく中間化学種・ラジカルの検知を試みる。これによってバイオ燃料や合成燃料を多用する燃料多様化時代に対応する、圧力・温度域毎の高精度実験により検証された、革新的詳細化学反応機構の構築および、素反応レベルでの燃焼反応制御の基礎学理構築を目的とする。

3. 研究の方法

一般に着火特性は衝撃波管や急速圧縮装置を用いて取得される。衝撃波管では衝撃波による可燃性混合気の高速度圧縮から着火の過程を、急速圧縮装置ではピストンによる圧縮により励起される着火過程を記録し、燃料の着火特性を取得する。両者とも大型の装置で取り扱いに専門的な知識が必要であり、本手法のように簡便で高精度なデータを取得する方法はこれまで無かった。そこでここでは、温度分布制御マイクロフローリアクタによる「火炎クロマトグラフィ」を用い、気体燃料や常温常圧で液体の燃料の双方に対して均一な可燃混合気を作成する手法を確立すると共に、光学計測系を構築し、リアクタ内の化学種分布の取得を試みる。さらにこれを、詳細化学反応機構を考慮した数値計算と比較することで、反応機構の改良や検証を試みる。なお実験は常圧・昇圧条件の双方に対して行うため、常圧下で行う装置と、容器内にリアクタを設置する複数の実験装置を使い分けた。

4. 研究成果

多段酸化反応が空間的に分離される微弱火炎現象に、初めて光学計測(レーザー誘起蛍光法)を適用し、反応の比較的初期に生じるアルデヒド、代表的なラジカルである OH の分離検知を初めて達成した。これらと化学発光画像とを組み合わせ、炭化水素燃料の反応過程に沿った着火特性を把握出来た。(画像省略。)

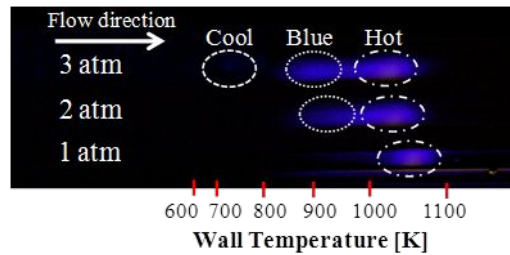


図1 正ブタンを対象に取得された常圧から3気圧までの微弱火炎のようす

図1に、正ブタンに対して取得された常圧~3気圧までの微弱火炎のようすを示す。3気圧では冷炎、青炎、熱炎の3種の微弱火炎が観察されている。圧力が上昇すると、青炎、熱炎とともに低温側にシフトするようすが観察される。

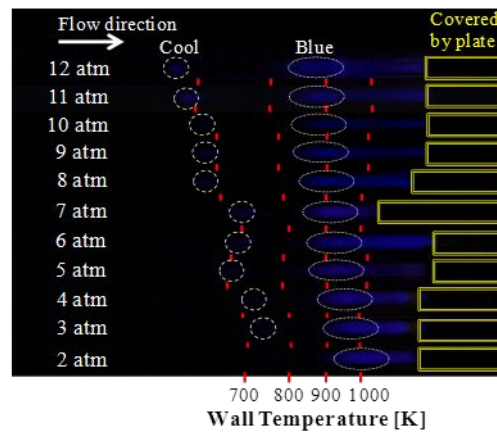


図2 正ブタンに対する2~12気圧の範囲の冷炎、青炎のようす

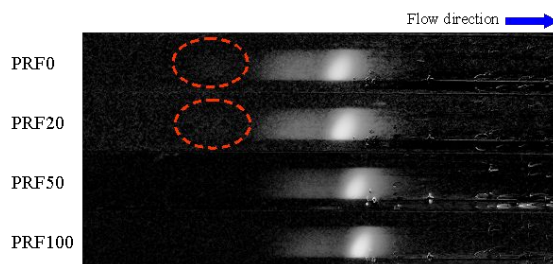


図3 正ヘプタンとイソオクタン混合燃料(Primary reference fuel)による異なるオクタン価における微弱火炎のようす

さらに図2に2~12気圧における正ブタンの冷炎および青炎の微弱火炎を示す。この図は圧力容器内に設置した装置で取得した画像のため、熱炎位置は加熱用の熱線の影響で観察が出来ず、冷炎と青炎のみが観察できる。圧力12気圧までの範囲で安定にデータが取得されており、これによって一般的なレシプロエンジンの圧縮後、着火開始程度の圧力までの範囲でデータ取得出来ることが確認されたことになる。

続いて図3には、正ヘプタンとイソオクタンの混合燃料 (Primary reference fuel) によって、オクタン価基準燃料に対して取得した微弱火炎のようすを示す。低オクタン価 (例えば0, 20) では冷炎が観察され低温条件から着火しやすいのに対して、高オクタン価 (例えば100) では冷炎は全く見られず、着火しにくい、すなわちノッキングなどが起きにくい特性であることが明確に示されている。

また化学反応機構の検証に本手法を用いた場合の一例として、エタノールの微弱火炎を取得した例を図4に示す。

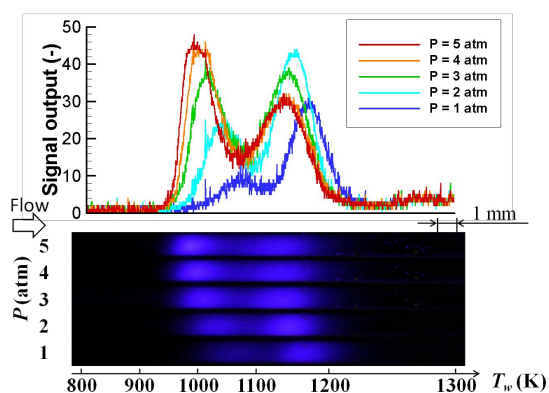


図4 エタノールの微弱火炎の輝度分布 (常圧~5気圧)

このデータを、現在、比較的定評のある二種の詳細化学反応と比較したが、いずれも反応機構も同データを正しく表現出来なかった。さらに詳細な検討の結果、適正な修正を化学反応機構に施すことによって、実験結果に近い結果を数値的にも得ることが出来ることが明らかとなった。なお従来から良く用いられている着火遅れ時間を基準にした場合、上記の二種の化学反応機構は、エタノールに対しほぼ同等の結果を示すことが確認でき、本手法では従来手法では得られない、低温から高温に至る過程の化学反応に関する情報が得られることが確認できた。

以上のように、本手法の特性を活かしてより広範な燃料に対して微弱火炎に対する計測を適用することで、オクタン価を始めとする着火特性指標を、微弱火炎のようすから導く応用へ展開していくこと、さらに光学計測と合わせることで、これまでに無い高精度の化学反応機構構築、およびそれによる高効率

な燃焼器設計への貢献が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計5件)

1. Taiki Kamada, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Study on combustion and ignition characteristics of natural gas components in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Combustion and Flame, Vol.161, Issue 1 : 37 - 48 (2014), 査読有, doi: 10.1016/j.combustflame.2013.08.013.
2. Hisashi Nakamura, Akira Yamamoto, Mikito Hori, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Study on pressure dependences of ethanol oxidation by separated weak flames in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Proceedings of the Combustion Institute, Vol.34, Issue 2:3435-3443 (2013), 査読有, doi: 10.1016/j.proci.2012.06.101.
3. Mikito Hori, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Characteristics of n-heptane and toluene weak flames in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Proceedings of the Combustion Institute, Vol.34, Issue 2:3419-3426 (2013), 査読有, doi: 10.1016/j.proci.2012.06.099.
4. Satoshi Suzuki, Mikito Hori, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa and Kaoru Maruta, Study on cetane number dependence of diesel surrogates/air weak flames in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Proceedings of the Combustion Institute, Vol.34, Issue 2:3411-3417 (2013), 査読有, doi:10.1016/j.proci.2012.06.162.
5. Mikito Hori, Akira Yamamoto, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa and Kaoru Maruta, Study on octane number dependence of PRF/air weak flames at 1-5 atm in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Combustion and Flame, Vol.159, Issue 3 : 959-967 (2012), 査読有, doi: 10.1016/j.combustflame.2011.09.020.

〔学会発表〕(計 6 件)

1. Kaoru Maruta, From microcombustion to micro flow reactor for chemical kinetics study, Clean Combustion Research Center (CCRC) Workshop at KAUST, 18 Feb. 2014, Thuwal, Saudi Arabia.
2. 菊井 涉悟, 中村 寿, 手塚 卓也, 長谷川 進, 丸田 薫, 温度分布制御型マイクロフローリアクタを用いた n-ブタンの高圧下における多段酸化反応, 第 51 回燃焼シンポジウム講演論文集, B343, 454-455, 2013.12.6, 第 51 回燃焼シンポジウム, 大田区産業プラザ Pio, 東京.
3. Hisashi Nakamura, Ryu Tanimoto, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Characteristics of Soot and PAH Formation in a Micro Flow Reactor with a Controlled Temperature Profile, The 9th Asia-Pacific Conference on Combustion, 21 May 2013, Gyeongju, Korea.
4. Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Possibility of kinetics study in tubes, 14th International conference on numerical combustion, 9 April 2013, Texas, USA.
5. 中村 寿, 堀 幹人, 手塚 卓也, 長谷川 進, 丸田 薫, 温度分布制御マイクロフローリアクタによるエタノール酸化反応の圧力依存性, 第 50 回燃焼シンポジウム講演論文集, A335, 438-439, 2012.12.7, 第 50 回燃焼シンポジウム, ウィンクあいち, 名古屋.
6. Kaoru Maruta, Micro reactor with prescribed temperature profile, The First International Workshop on Flame Chemistry, 28 July 2012, Warsaw, Poland.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

取得状況 (計 1 件)

名称: 燃焼実験装置
発明者: 丸田 薫, 中村 寿, 加藤 壮一郎, 及川 尚樹
権利者: 東北大学, IHI
種類: 特許
番号: 特許第 5453221 号
取得年月日: 2014(平成 26 年) 1 月 10 日

国内外の別: 国内および PCT にて米欧印韓中露に出願

〔その他〕
該当無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

丸田 薫 (MARUTA, Kaoru)
東北大学・流体科学研究所・教授
研究者番号: 50260451

(2) 研究分担者

中村 寿 (NAKAMURA, Hisashi)
東北大学・流体科学研究所・助教
研究者番号: 40444020