

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360090

研究課題名(和文)高温高圧環境下における異性体バイオ燃料の乱流燃焼メカニズムの解明

研究課題名(英文)Turbulent combustion mechanism of isomer bio-fuels in a high-pressure, 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) 14,100,000円、(間接経費) 4,230,000円

研究成果の概要(和文)：高温高圧環境における異性体バイオ燃料の乱流燃焼メカニズムを明らかにするため、1-プロパノール、2-プロパノール、プロパン/空気乱流予混合火炎のOH-PLIF計測を行って、火炎面密度および平均領域体積の乱れ強さ依存性を調べた。火炎面密度は2-プロパノール、1-プロパノール、プロパンの順に大きく、従来の反応物質のルイス数効果では説明できない結果を得た。そこで中間生成物質を考慮した2段反応モデルによる固有不安定性解析ならびに詳細反応機構による1次元予混合火炎の数値解析を行い、高圧乱流火炎構造に影響を及ぼす固有不安定性にはC2中間生成物質の熱・物質拡散相互作用の効果が大きいことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：For the fundamental combustion research of isomer biofuels, experiments of propanol isomers and propane turbulent premixed flame using OH-PLIF were performed in a high pressure environment. The local flame surface density for each fuel was analyzed from instantaneous turbulent flame images of cross-section. The results of the flame surface density analysis indicated differences of intrinsic flame instability for 1-propanol, 2-propanol and propane. Numerical simulations of intrinsic flame instability using a two-step reaction model as well as 1-D laminar flames using detail chemistry for propanol and propane/air mixtures were carried out to clarify the relationship between chemical reaction and flame instability. It was clarified that turbulent flame structure is highly affected by the diffusive thermal effects of C2 intermediate species, which depends on the isomer fuels and differences in dissociation reaction pathway.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：高圧燃焼 乱流燃焼 バイオ燃料 異性体 化学反応機構

1. 研究開始当初の背景

近年の地球環境問題によって航空用エンジンにもバイオ燃料の利用が検討される状況になると、バイオエタノールよりエネルギー密度の高い、炭素数3以上のアルコール系バイオ燃料の利用を想定した燃焼基礎特性研究が重要となっている。アルコール系バイオ燃料の特徴として種々の異性体が存在する。異性体は分子量が等しく分子構造の違いが小さいため等しい炭素数では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り、火炎構造や火炎伝播特性に顕著な影響が現れることが指摘されている。従来、燃料種の影響に関する反応論的研究には混合燃料が用いられてきたが要素燃料の選択拡散やルイス数効果の影響が避けられず、反応動力学と分離して議論する困難さがあった。異性体では反応物質の熱・物質拡散相互作用を除きながら化学反応と乱流による流体要素運動の相互作用が直接表れるため、異性体燃料を用いる乱流燃焼の研究は、実用バイオ燃料の研究としてのみならず、従来の火炎片理論の制約を超えて、反応動力学と乱流の相互作用に踏み込む研究を可能にする。特に、高温高压下の乱流燃焼の研究としてこれを行うことは、燃焼学的に深く吟味されたバイオ燃料利用技術の道を開くものである。

2. 研究の目的

本研究は、燃焼学的に未だ知られていない高温高压環境における異性体バイオ燃料の予混合乱流燃焼メカニズムを明らかにし高压反応動力学と乱流の相互作用に基づく極限環境乱流燃焼の学理構築を図ると共に、環境・エネルギー問題解決に有効な多様なバイオ燃料燃焼システム的设计と制御に対する燃焼学的根拠に基づく指針を提示することを目的とする。

3. 研究の方法

実験には、東北大学流体科学研究所の高圧燃焼試験設備を用いた。燃料には、C3 異性体アルコール燃料である 1-プロパノールと 2-プロパノール、ならびに異性体のないアルカン燃料であるプロパンを用いた。燃料は蒸発装置により高温化して気化させ、高温空気と混合して高温状態を維持したままバーナーへ供給した。火炎の形成には出口径 20 mm の円形ノズルバーナーを用いた。雰囲気圧力は空気予熱の確実性を重視して 0.5 MPa に固定し、予混合気温度 343 K、当量比は 0.9 とした。また、詳細な火炎構造を解明するため、OH 平面レーザー誘起蛍光計測(OH-PLIF)を行った。UV レーザー光により OH ラジカルを励起させ、新たに導入した ICCD カメラでその蛍光を撮影して瞬時火炎断面像を得た。火炎帯内の化学種分布は、Chemkin-PRO による数値計算から求めた。詳細反応機構として Johnson らのメカニズム[Johnson, M.V., et al,

Energy Fuels 23: 5886 (2009)] を用いた。

NO_x および CO 計測には NO_x 分析計(島津 NOA-7000)および CO 分析計(testo 350XL)を用いた。

4. 研究成果

(1) OH-PLIF による火炎観測

図 1 に、乱れ強さと層流燃焼速度との比 u' / SL の値が 1.40 ならびに 2.0 における 3 種類の燃料の OH-PLIF 画像(瞬時火炎断面像)を示す。プロパン/空気火炎と比較して、プロパノール/空気火炎の火炎面は両異性体共に微細な凹凸を有していることがわかる。プロパノール/空気混合気のルイス数は 2.12 であるのに対し、プロパン/空気混合気のルイス数は 1.82 であるから、これまでに知られている乱流火炎構造に対するルイス数の影響からはプロパノール/空気予混合火炎構造の方がプロパン/空気予混合火炎よりも微細化している原因を説明できない。火炎構造の微細化を定量的に表す方法として火炎面密度がある。そこで、次節では火炎面密度を求めた。

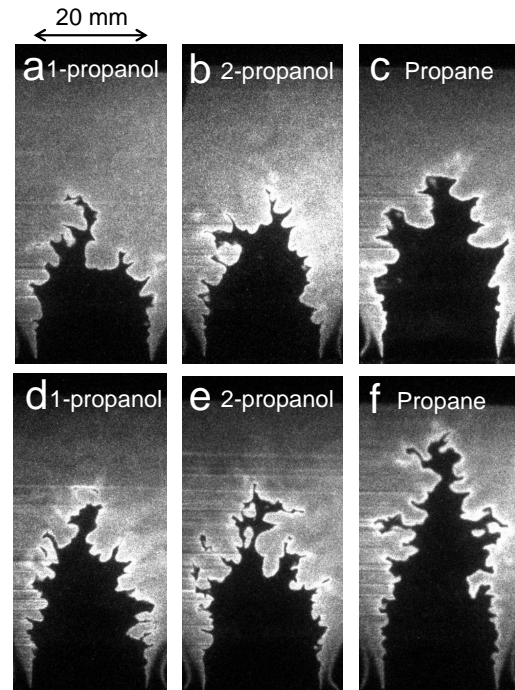


図 1 高压下における OH-PLIF 画像 (a,b,c : $u' / SL = 1.4$, d,e,f : $u' / SL = 2.0$)

(2) 乱流燃焼特性の解明

火炎面密度と平均反応進行変数との関係

図 2 に $u' / SL = 1.4$ および 2.0 の場合に対する火炎面密度と平均反応進行変数 $\langle c \rangle$ との関係を示す。 $u' / SL = 1.4$ の場合、の大きさには混合気種の影響が見られ、その順序は 2-プロパノール/空気火炎、1-プロパノール/空気火炎、プロパン/空気火炎である。これは、2-プロパノール/空気火炎の火炎構造の微細化が最も進んでいることを意味している。しかし、 $u' / SL = 2$ では、プロパン/空気火炎のは最も小さいものの、2-プロパノール/空気火炎と 1-

プロパノール/空気火炎の Σ の差はほとんどなくなっている。これは、乱れ強さ u' が大きくなることによって、高圧下における火炎面の固有不安定性の効果よりも乱れ強さの効果が大きくなったことを意味している。すなわち、 u'/S_L が 1 に近い比較的乱れの弱い乱流条件では、固有不安定性の影響が顕著に表れると共に、その効果は 2-プロパノール/空気火炎が最も大きい。

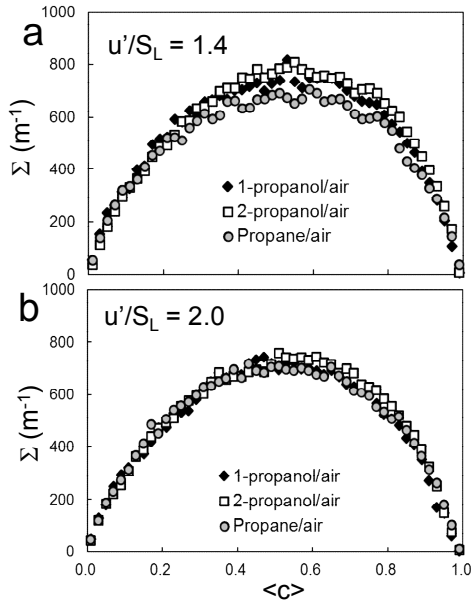


図2 火炎面密度 Σ と平均反応進行変数 $\langle c \rangle$ との関係

平均火炎領域体積

図3に平均領域体積 V_f の u'/S_L による変化と燃料種の影響を示す。 V_f は $\langle c \rangle = 0.1$ から 0.9 の領域体積を積分して求めた。プロパン/空気火炎の V_f が最も大きく、これはスケールの大きい火炎変動が乱流火炎領域に支配的であること、また、2-プロパノール/空気火炎と 1-プロパノール/空気火炎の V_f は概ね等しく、大スケールの火炎変動が表れにくいことを意味しており、火炎面密度 Σ が小スケールの火炎変動から生じていることを証明している。

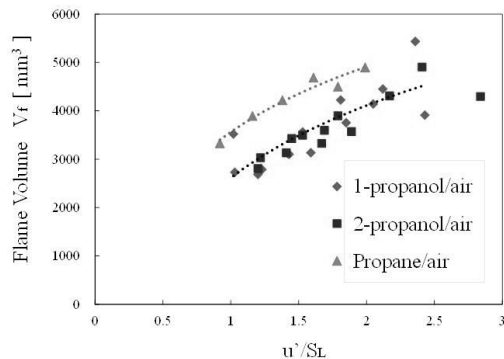


図3 平均領域体積 V_f の u'/S_L による変化と燃料種の影響

(3)異性体における中間生成物質の役割の解

明

異性体間の化学反応過程の違いは主に熱分解過程の違いであって、主発熱帯上流側の拡散・対流領域の化学種分布に違いを生ずると考えられる。この領域はルイス数効果、すなわち熱・物質拡散相互作用が生じる領域であるが、ルイス数効果に関する従来の解釈は、未燃化学種のルイス数効果であった。しかし、熱分解反応が拡散・対流領域で生じていることを考えれば、熱分解過程の違いによって生じる高エンタルピー中間生成物質がルイス数効果に参与する可能性がある。そこで、共同研究者が提案したモデル2段反応による固有不安定性の数値解析結果を用いてこの現象の解明を試みた。

図4にモデル2段反応による固有不安定性の分散関係を示す。本モデル2段反応は、燃料のルイス数が本実験条件に近い2と仮定し、熱分解によって生じる中間生成物質のルイス数が0.5または1.0であり、また、中間生成物質が発熱を担う高エンタルピー物質と仮定している。これによって熱分解過程をモデル化できる。図中の Ψ は2段目の反応と1段目の反応の速さの比を表し、 Ψ が小さいほど2段目の反応が律速となり、拡散・対流領域の中間生成物質濃度が増大する。図4より Ψ が小さい方が分散関係の擾乱成長率が小さくなっており、これは濃度が高い高エンタルピー中間生成物質が火炎上流側に拡散し、火炎近傍の全エンタルピーが低下したためである。すなわち、ルイス数が1より大きい反応物質が熱分解によってルイス数の小さい中間生成物質を生じるとき、その中間化学種の濃度が大きいほど擾乱成長が抑制されることを意味している。

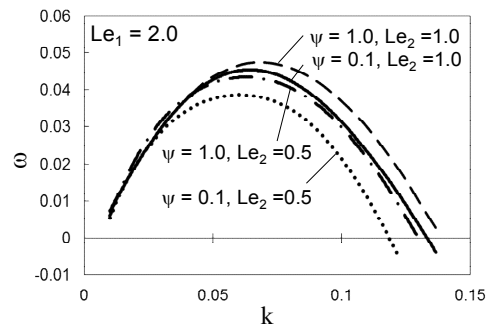


図4 モデル2段反応による固有不安定性の分散関係

このような観点から、本研究の対象とする 2-プロパノール/空気火炎、1-プロパノール/空気火炎、プロパン/空気火炎において熱分解により生じるような中間生成物質が固有不安定性の抑制に参与しているかを、1次元予混合火炎の数値解析によって推定することを試みた。

図5に1次元数値解析によって求めた3

種の子混合火炎の拡散・対流領域における C2 化学種と C3 化学種の見かけの発熱量分布を示す。詳細反応機構による 1 次元数値解析の結果、反応物質（燃料）からの水素引き抜きによって、拡散・対流領域においてエンタルピーの大きい C2 および C3 化学種が生成されることが示されたが、モル分率に標準生成エンタルピーを掛けた見かけの発熱量 H_c は C2 化学種が大きく、そのピーク濃度の順はプロパン/空気火炎、1-プロパノール/空気火炎、2-プロパノール/空気火炎であることが判明した。これは、図 2 a に示した火炎面密度の大きさの順序と逆であり、 H_c ピーク値が小さいほど、固有不安定性抑制が弱いことになり、2-プロパノール/空気火炎の H_c が最も大きいことを支持する結果である。すなわち、高エンタルピーを有する中間生成物質濃度が、 u^*/SL が比較的小さい領域における H_c の大きさを支配していること、これが重要な異性体効果であることが判明した。

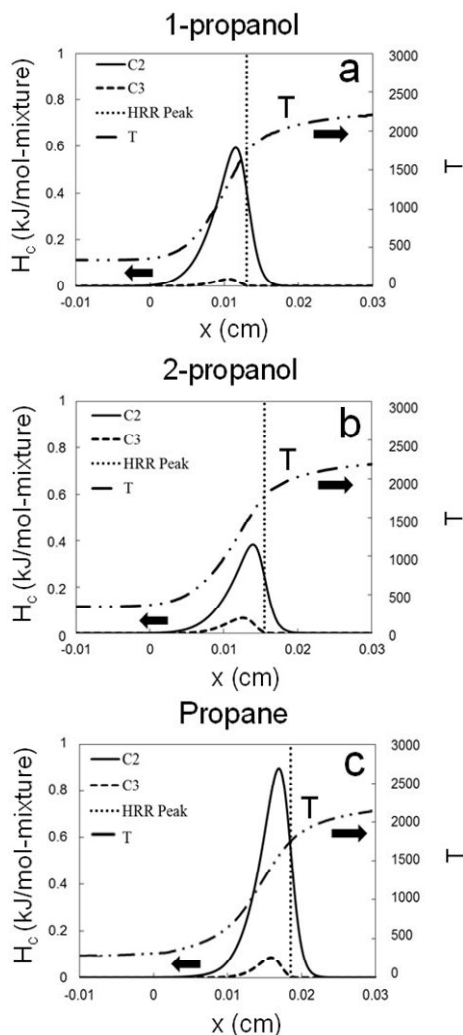


図 5 1 次元数値解析によって求めた 3 種の子混合火炎の拡散・対流領域における C2 化学種と C3 化学種の見かけの発熱量分布

(4)プロパノール異性体における排出ガス特性

図 6 に 3 種の子混合火炎における NO_x および CO のエミッションインデックスと当量比の関係を示す。乱流火炎直上で計測した CO および NO_x エミッションインデックスは、CO については 3 種の燃料では概ね等しいが、NO_x はプロパン火炎が最も大きくプロパノール火炎はいずれの異性体も小さいという結果が得られた。CO 濃度に対しては含酸素燃焼であるプロパノールの CO 濃度が低下するとの予想に反した。プロパノール火炎の NO_x 濃度が低いことは有限反応時間における反応経路の影響と思われる、アルコール系燃料の特徴であろう。これらの濃度に対して異性体の影響が見られなかったのは、CO や NO が主発熱帯下流で生成されるためと考えられ、乱流火炎構造が主発熱帯上流の拡散・対流領域における熱・物質移動と反応の相互作用の影響が大きいのと対比して考えるべきであることが明らかとなった。

よび CO のエミッションインデックスと当量比の関係を示す。乱流火炎直上で計測した CO および NO_x エミッションインデックスは、CO については 3 種の燃料では概ね等しいが、NO_x はプロパン火炎が最も大きくプロパノール火炎はいずれの異性体も小さいという結果が得られた。CO 濃度に対しては含酸素燃焼であるプロパノールの CO 濃度が低下するとの予想に反した。プロパノール火炎の NO_x 濃度が低いことは有限反応時間における反応経路の影響と思われる、アルコール系燃料の特徴であろう。これらの濃度に対して異性体の影響が見られなかったのは、CO や NO が主発熱帯下流で生成されるためと考えられ、乱流火炎構造が主発熱帯上流の拡散・対流領域における熱・物質移動と反応の相互作用の影響が大きいのと対比して考えるべきであることが明らかとなった。

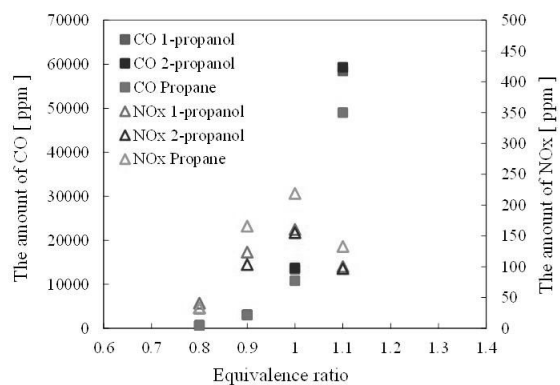


図 6 3 種の子混合火炎における NO_x および CO のエミッションインデックスと当量比の関係

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 4 件)

H. Kobayashi, Y. Otawara, Jinhua Wang, F. Matsuno, Y. Ogami, M. Okuyama, T. Kudo, S. Kadowaki, Turbulent premixed flame characteristics of a CO/H₂/O₂ mixture highly diluted with CO₂ in a high-pressure environment, Proceedings of the Combustion Institute, 査読有, Vol.34 (2013), pp.1437-1445

Jinhua Wang, F. Matsuno, M. Okuyama, Y. Ogami, H. Kobayashi, Zuohua Huang, Flame front characteristics of turbulent premixed flames diluted with CO₂ and H₂O at high pressure and high temperature, Proceedings of the Combustion Institute, 査読有, Vol.34 (2013), pp.1429-1436

Jinhua Wang, Zuohua Huang, H. Kobayashi, Y. Ogami, Laminar burning velocities and flame characteristics of CO/H₂/CO₂/O₂ mixtures, International Journal of Hydrogen Energ, 査読有, Vol.37 (2012), pp.19158-19167

S. Kadowaki, M. Yahata, H. Kobayashi, Effects of the Unburned-Gas Temperature and Lewis Number on the Intrinsic Instability of High-Temperature Premixed Flames, Journal of Thermal Science and Technology, 査読有, Vol.6 (2011), pp.376-390

〔学会発表〕(計 13 件)

内田朋洋, 宗吉俊吾, 工藤琢, 早川晃弘, 小林秀昭, 門脇敏, 高圧下におけるプロパノール異性体乱流予混合火炎の火炎構造及び不安定性に関する研究, 第 51 回燃焼シンポジウム, 2013 年 12 月 4 日, 東京

内田朋洋, 宗吉俊吾, 工藤琢, 早川晃弘, 小林秀昭, 門脇敏, 高圧環境におけるプロパノール異性体乱流予混合火炎の構造に関する研究, 日本機械学会熱工学コンファレンス, 2013 年 10 月 19 日, 弘前市

鈴木拓朗, 宗吉俊吾, 工藤琢, 小林秀昭, 高圧環境におけるアルコール系バイオ燃料の乱流燃焼メカニズムに関する研究, 第50回燃焼シンポジウム, 2012年12月5日, 名古屋市

S. Souyoshi, T. Suzuki, T. Kudo, H. Kobayashi, Combustion Characteristics of Propanol / Air Turbulent Premixed Flames at High Pressure, Ninth International Conference on Flow Dynamics (9th ICFD), 2012 年 9 月 19 日, 仙台市

H. Kobayashi, Y. Otawara, Jinhua Wang, F. Matsuno, Y. Ogami, M. Okuyama, T. Kudo, S.Kadowaki, Turbulent premixed flame characteristics of a CO/H₂/O₂ mixture highly diluted with CO₂ in a high-pressure environment, 34th International Symposium on Combustion, 2012年7月30日, ワルシャワ

S. Souyoshi, T. Suzuki, T. Kudo, H. Kobayashi, Turbulent Combustion Characteristics of Propanol Isomers in a High-Pressure Environment, 34th

International Symposium on Combustion, 2012年7月30日, ワルシャワ

宗吉俊吾, 鈴木拓朗, 工藤琢, 小林秀昭, アルコール系バイオ燃料の高圧乱流燃焼特性に関する研究, 第49回日本伝熱シンポジウム, 2012年5月30日, 富山市

大田原佑樹, Jinhua Wang, 松野太, 工藤琢, 大上泰寛, 奥山昌紀, 小林秀昭, 高圧下における石炭改質模擬ガスに対する純酸素予混合乱流燃焼特性, 第49回燃焼シンポジウム, 2011年12月6日, 横浜市

門脇敏, 大島卓也, 小林秀昭, 高温予混合火炎の数値解析: 未燃ガス密度一定条件下における火炎面の不安定性, 49回燃焼シンポジウム, 2011年12月5日, 横浜市

H. Kobayashi, Y. Ogami, Turbulent Combustion of Model Coal-gasification Syngas at High Pressure, The Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI-2011), 2011年11月9日仙台市

S. Kadowaki, T. Oshima, H. Kobayashi, Instability of High-Temperature Premixed Flames, The Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI-2011), 2011年11月9日, 仙台市

Jinhua Wang, 大田原佑樹, 松野太, 小林秀昭, 大上泰寛, 工藤琢, 奥山昌紀, 高圧下における石炭改質模擬ガスの純酸素乱流燃焼特性に関する研究, 日本機械学会熱工学コンファレンス, 2011年10月29日, 浜松市

門脇敏, 小林秀昭, 大島卓也, 高温予混合火炎の固有不安定性に関する数値解

析：未燃ガス密度一定条件下における温度の影響，第48回日本伝熱シンポジウム，2011年6月1日，岡山市

6．研究組織

(1)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

(2)研究分担者

早川 晃弘 (HAYAKAWA, Akihiro)
東北大学・流体科学研究所・助教
研究者番号：90709156