

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13878

研究課題名(和文) Oxy-fuel 燃焼におけるすす生成条件Mapの提示とその拡大手法の検討

研究課題名(英文) Study on soot formation map and its extension method in oxy-fuel combustion system

研究代表者

藤田 修 (Fujita, Osamu)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10183930

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：Oxy-fuel燃焼で想定される雰囲気条件(CO₂、高温度)におけるすす生成条件とその生成量を増加させる機構を検討した。その結果以下のような成果が得られた。(1) O₂/CO₂雰囲気においてエチレン噴流拡散火炎のすす生成特性を観察した。その結果、周囲雰囲気温度の増加はすすの生成を増大させるがCO₂希釈を行うとN₂希釈の場合に比べすす生成が大きく減少する。しかし、微小重力場においてはCO₂希釈の場合でもすす生成量が増加し、火炎基部からの空気流入制御がすす生成制御に重要な要素であることを示した。(2) 液体燃料に対するすす生成特性を調べ、すす生成に対して燃料供給量と燃料組成に対する生成条件を提示した。

研究成果の概要(英文)：Soot formation condition and its increase method have been studied in a gas mixture simulating to oxy-fuel combustion gas (CO₂ rich, high temperature). The results obtained in the research are summarized as below. (1) Soot formation in ethylene jet diffusion flame is observed in O₂/CO₂ atmosphere. Soot increases with increase in surrounding temperature while it decreases with CO₂ dilution rather than with N₂ dilution. However, soot increases with elimination of buoyancy induced flow under microgravity, which implies the air entrainment from the flame base is a key to control the soot formation. (2) Soot formation characteristics with liquid fuels has also been investigated. Then soot formation condition in terms of fuel supply rate and fuel composition have been given.

研究分野：熱工学

キーワード：燃焼 すす 拡散火炎 酸素燃焼 二酸化炭素 微小重力

1. 研究開始当初の背景

Oxy-fuel 燃焼においては炉内の不活性ガス成分のほとんどが CO_2 および H_2O である。これらのうち CO_2 の存在は、 $\text{CO}_2 + \text{H} \rightarrow \text{CO} + \text{OH}$ の反応により OH の生成を促進し、この OH がすす前駆物質を酸化することですす生成が抑制される[1]。 H_2O についても類似の効果によりすす生成が抑制される[2]。内燃機関などではすす生成が抑制されることはむしろ好ましい効果であるが、加熱炉においては輻射伝熱を低減させ熱効率を悪化させる。産業においてはこの点が大きな課題になっているが、そもそも CO_2 や H_2O 雰囲気での燃焼自体が研究の歴史が浅く、すす生成範囲を明示した例は極めて少ない。一方で産業においては天然ガスなどを利用した際の温度と酸素濃度に関するすす生成マップは極めて重要な情報である。

2. 研究の目的

Oxy-fuel 燃焼は、 CO_2 削減の抜本的技術となりうるものである。この手法を加熱炉へ導入しようとする、火炎におけるすす生成が極めて少なくなり熱放射強度の不足が問題となる。とくに燃料として天然ガスを使用する場合はこの問題が顕著となる。これを克服するための手段として、 O_2/CO_2 雰囲気中で高温条件におけるすす生成機構を検討し、 O_2/CO_2 /高温雰囲気におけるすす生成条件マップを提示することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、雰囲気不活性ガス成分および温度条件、酸素濃度条件を変化させたいうで、噴流拡散火炎のすす生成特性を把握することが基本的な研究内容である。特に、能動的にすす生成を促進できる条件を探索する。また、燃焼場を安定した構造としたうで火炎中のすす生成挙動を観察するため、微小重力場を利用した研究を行う。主な項目としては、以下の5点を実施した。

- (1) O_2/CO_2 雰囲気と O_2/N_2 雰囲気でのすす生成特性の比較
- (2) O_2/CO_2 雰囲気でのすす生成特性におよぼす温度の影響
- (3) O_2/CO_2 雰囲気でのすす生成特性に及ぼす酸素濃度の影響
- (4) O_2/CO_2 雰囲気でのすす生成特性に及ぼす重力環境の影響
- (5) 液体燃料のすす生成特性に対する燃料流量および燃料組成の影響

本研究は、主に実験に基づいて実施した。

本研究で使用した装置の概念を図1に示す。燃焼室は、内径 80mm のガラス管で下方から酸化剤となる空気 (O_2/CO_2 混合気) が供給されこれが管の中間部に設置されたヒータを通過するとき任意の温度に予熱される。さらにこの加熱された混合ガスは整流部を通過したのち燃焼部へ供給される。一方燃料は、ヒータ部より下流側から供給され内径 7mm の燃料管より燃焼部へ供給される。燃料としてはエチレンガスを用いる。本研究では燃料流量はすべて 2mL/s に固定した。燃焼室に形成された噴流拡散火炎は背景光像および直接像をビデオカメラで同時に撮影する。両者の画像は直交する方向から取得する。

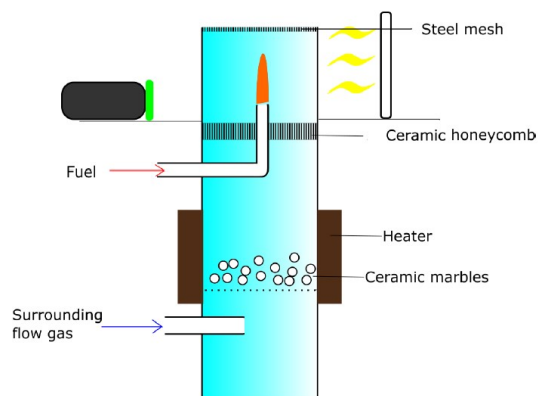


図1 燃焼部概念図

本研究では、すす生成に及ぼす周囲流動の影響を調べるため、自然対流の抑制できる微小重力場での実験も行っている。図2は実験装置全体を落下カプセルに挿入した状態で、このカプセル正面のふたを閉じたのち図3に示す落下塔最上部まで吊り上げ、その後カプセルを落下させる。施設の微小重力継続時間は約3秒で $10^{-3}G_0$ (G_0 は地上の重力レベル) 程度の微小重力環境が得られる。



図2 実験装置外観写真(落下カプセル搭載時)



図 3 微小重力実験を行った落下塔

4. 研究成果

(1) O₂/CO₂ 雰囲気と O₂/N₂ 雰囲気の比較

まず、すす生成に及ぼす CO₂ 希釈と N₂ 希釈の違いについて観察する。図 4 は雰囲気酸素濃度を 21% に固定したうえで不活性ガス成分を N₂ と O₂ とした場合の比較を通常重力場で行った結果である。周囲温度は常温のままである。図の左側は直接写真であるが、N₂ 希釈の方が火炎が明るく短いことがわかる。一方、CO₂ 希釈の場合火炎の発光が弱くなり、また火炎全体が長くなっている様子がわかる。基本的に拡散火炎の輝度は火炎中に生成されるすすの量によって大きく変化することから、この結果は CO₂ 希釈が大幅にすす生成を抑制していることを示唆している。次にこの火炎でのすす生成量を背景光の減衰に基づいて定量化した結果を図 5 に示す。すすが存在する火炎の背景に光源を置くと、図 4 右図に示すような透過光減衰像が得られる(図 4 にはすすの生成量の多い微小重力火炎の背景光像を示している)。火炎が同心円状の形状を持つ場合、火炎中のすす濃度分布を透過光画像から与えることができる[3]。この考え方をういて火炎の高さ方向の 5mm 幅毎に含まれるすす体積の総量を求め、プロットした結果が図 5 である(条件は、図 4 左の写真と同じ)。この結果から、CO₂ による希釈を行うことは大幅なすす生成量の低下につながる事がわかる。また、すすが生成される火炎においては、火炎の特定の高さですす生成量が極大値になることもわかる。

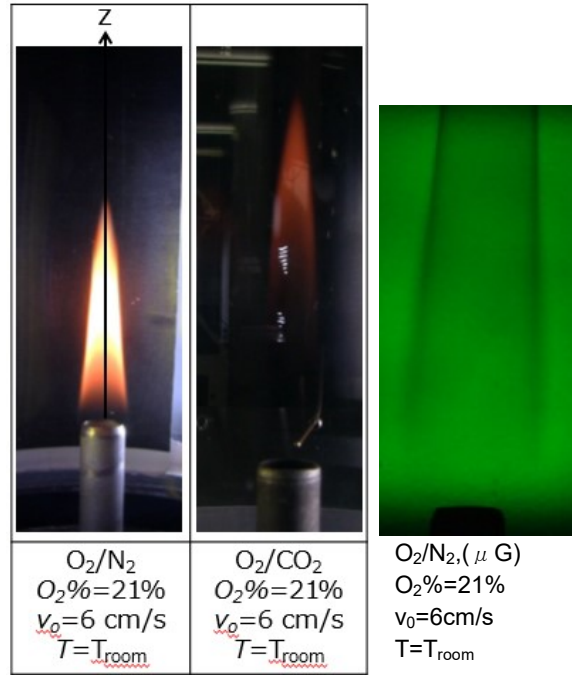


図 4 O₂/N₂ と O₂/CO₂ の火炎の比較 (燃料流量: 2mL/s, 直接像: 1G, 背景光像: μG)

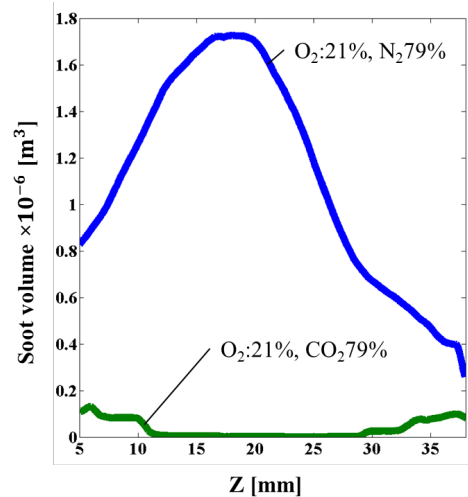


図 5 すす生成量の火炎軸方向分布による O₂/N₂ と O₂/CO₂ 雰囲気の比較

(2) O₂/CO₂ 雰囲気での温度の影響

次に、CO₂ 希釈の元で雰囲気温度を変化させた場合について観察する。実験はいずれも通常重力場で実施している。ここでは、雰囲気酸素濃度を 30% と高めている。火炎は、CO₂ 希釈であるにもかかわらず酸素濃度を上昇させると輝炎へと変化し、酸素濃度の増加がすす生成量の増加につながっていることがわかる。また、雰囲気ガス温度の変化に対しては図 6 に示すように、火炎長さはあまり変化しないが、火炎の輝度は上昇する。

前節と同様な処理を行い、火炎の透過光画像からすす生成量を測定したところ、火炎中

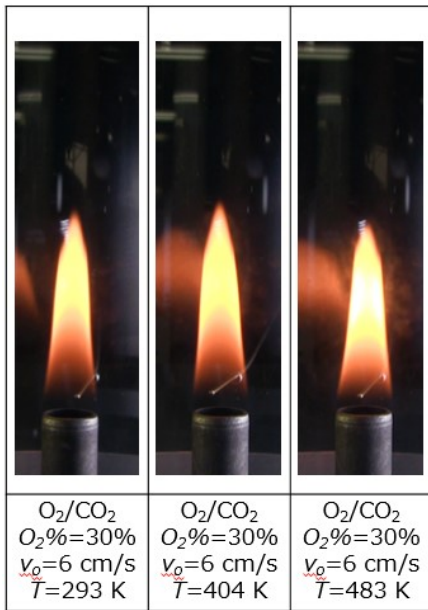


図 6 CO₂ 希釈時の雰囲気温度影響画像

のすす濃度は周囲ガスの温度が上昇すると明らかに増加することがわかる。図 7 は図 6 に対応した火炎について火炎の軸方向のすす体積分布（高さ方向の幅 5mm に含まれるすす体積、以下の節も同様）を異なる温度条件に対し求めたものである。雰囲気ガス温度が 293K の場合、直接像では輝炎になっている

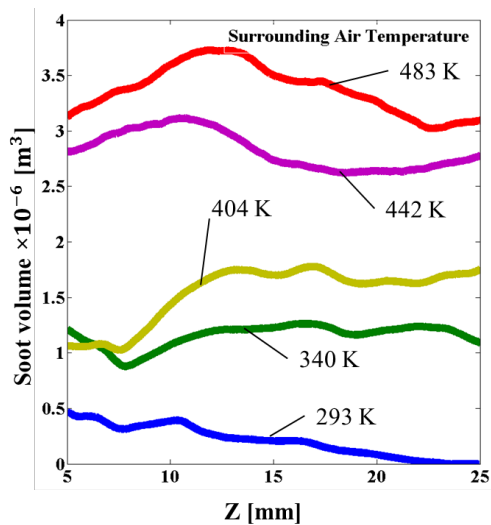


図 7 O₂/CO₂ 雰囲気でのすす生成量軸方向分布とすすの生成温度条件の提示

るものの実際の生成量はかなり少ない。一方、雰囲気温度が 483K まで上昇するとすす生成量は大幅に増加し、293K の場合の 7 倍以上の量となっている。このように、すす生成に対しては、雰囲気温度の上昇が極めて効果的であり、すす生成マップという視点で表現すれば雰囲気ガス温度の高い側にすす生成領域が広がっていると言える。

(3) O₂/CO₂ 雰囲気での酸素濃度の影響

図 8 は、雰囲気を常温のまま酸素濃度を変化させたときの画像である。この結果より、酸素濃度上昇とともに火炎が短くなり、また火炎の輝度が高くなることわかる。図 9 はこのときの各酸素濃度条件に対するすす生成量の比較を行ったものである。この結果をみると、すす生成量はいずれも火炎下流に進む程低下すること、また生成の絶対量の増加は前節で観察した雰囲気温度を上昇させた場合に比べ小さいことがわかる。また、異なる酸素濃度間で比較したところ、すす生成量は 25~27% で最大となることわかり、酸素濃度が上昇するほど単調に増加するというものではないことがわかる。すす生成マップ

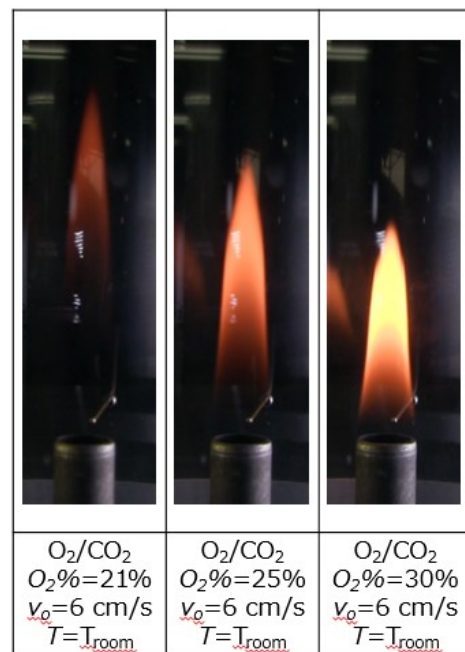


図 8 CO₂ 希釈時の雰囲気酸素濃度影響画像

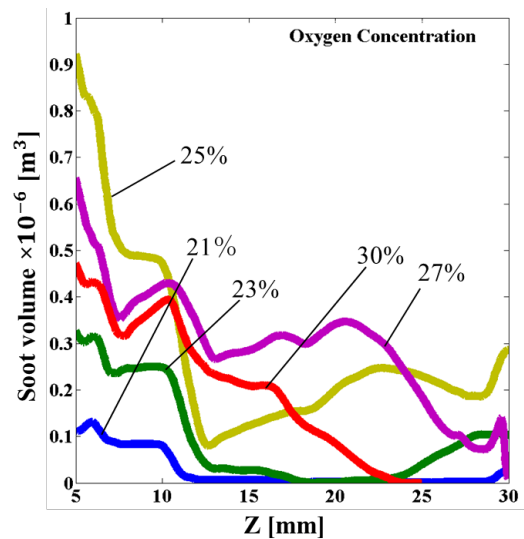


図 9 O₂/CO₂ 雰囲気火炎のすす生成量火炎軸方向分布に基づく生成酸素濃度領域提示

としては、特定の酸素濃度条件にすすの生成領域が存在していることを示していると言える。

ここで興味深い点は、酸素濃度が上昇すると火炎温度が上昇するが、この温度上昇は前節で観察した雰囲気温度上昇の効果とは異なるという点である。雰囲気温度を上げた場合は、生成量が常温の場合の7倍にも達していたが、ここでは酸素濃度によるすす生成量の差は比較的小さい。この点は、火炎のすす生成量を能動的に増加させようとしたときに重要な意味をもつ考えられることから、次節でさらに考察を行う。

(4) O₂/CO₂ 雰囲気での重力環境の影響

図 10 は雰囲気気を常温のまま重力条件を変化させたときの画像の比較である。微小重力場では自然対流に起因する周囲流動が抑制されるため、火炎が短くなるほか火炎の輝度が低下する。周囲流動が抑制されると火炎へ流入する酸化剤の量が減少し、単位体積あたりの発熱量が減少し(その代わりに火炎体積が大きくなる)、相対的に熱損失が増加することから火炎温度が低下すると考えられ、これが火炎輝度低下の要因と考えられる。ここで火炎の軸方向のすす生成量の比較を図 11 に示す。驚くべきことに、常温の CO₂ 希釈火炎であるにも関わらず火炎中のすす生成量が大幅に増加していることがわかる。このような結果が現れた要因について考察する。先にも述べたように微小重力場では自然対流による流動が抑制される。この結果、火炎と周囲流の密度差に起因する流れが消失する。この結果、図 12(a) に示すような火炎基部から火炎内部への酸化剤の流入が抑制される。この結果火炎内部がすす生成に有利な条件となり、すす生成量の大幅な増大につながったと解釈できる。

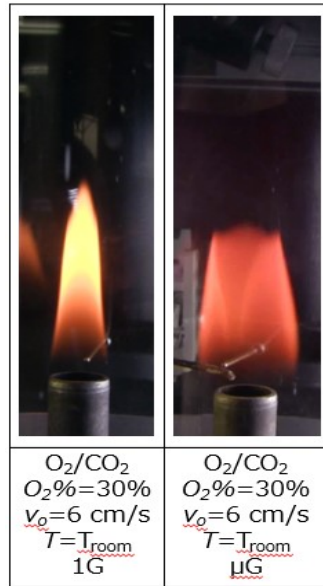


図 10 CO₂ 希釈時の重力環境影響画像

このように理解したとき、(2)節で示したすす生成に対し、雰囲気ガス温度の上昇が効果

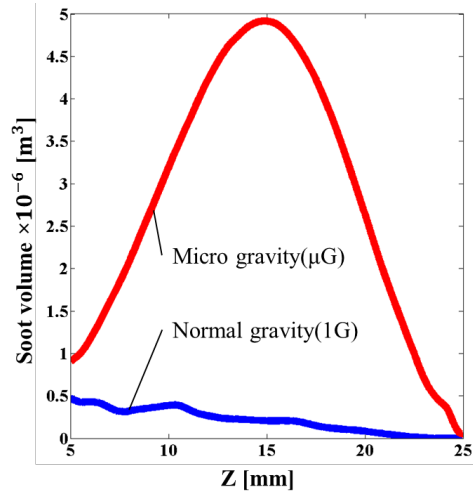


図 11 O₂/CO₂ 雰囲気火炎すす生成量の火炎軸方向分布の重力条件による比較

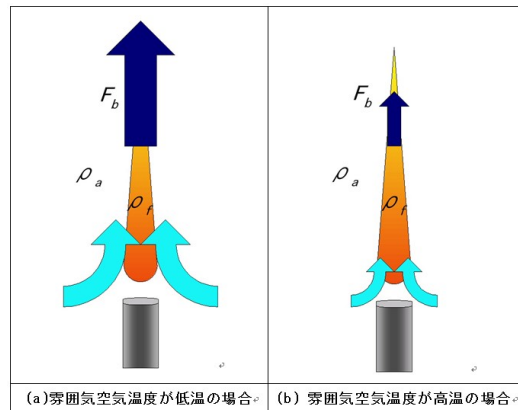


図 12 浮力の影響を受けた火炎周囲の流動状態の概念図

的であることの原因が理解できる。すなわち、火炎に生じる浮力 F_b は単位体積あたりでは以下の式で表現できる。

$$F_b = g(\rho_a - \rho_f) \quad (g: \text{重力加速度}) \quad (1)$$

このとき、周囲温度を上昇させると周囲ガスの密度が小さくなり、火炎部の密度 ρ_f と周囲ガスの密度 ρ_a の差が小さくなることから、相対的に浮力による火炎基部の流れが抑制される(図 12(b))。このことにより、周囲空気温度を上昇させると微小重力場と同様な効果が生じ、すす生成量が増大するものと考えられる。

図 13 は、実験室内の小型落下等によりパーシャルグラビティの条件で実験を行ったものと、周囲温度を上昇させた実験を、比較したものである。周囲温度を上昇させた場合、(1)式の密度の項が変化することにより、相当するパーシャルグラビティ条件を定義することができる。また、図の縦軸 (η_{soot}) は通

常重力場でのすす生成を基準としてその何倍のすすが生成されているかを示している。この結果を見ると、両者の傾向は類似の変化となっており、火炎温度の効果は火炎基部の酸化剤流入を通しての影響が大きいことを示唆している。すなわち、 O_2/CO_2 雰囲気でのすす生成を増大させるには、温度条件による化学反応速度を通してではなく、火炎基部での空気流入量を制御することの効果が大いものと推測される。

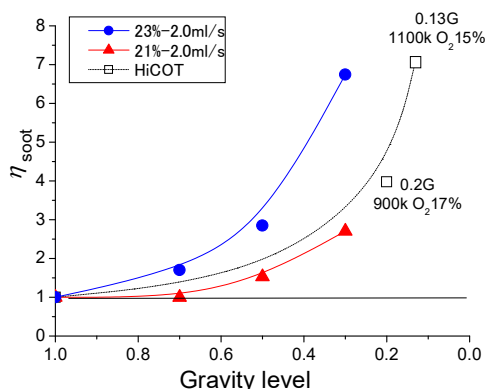


図 13 重力減少効果と周囲温度上昇の相似性

(5)液体燃料のすす生成特性に対する燃料流量および燃料組成の影響

本研究では、液体燃料を用いたすす生成特性の観察も行った。図 14 はその結果の一例である。図の横軸は火炎の高さを示している。火炎高さは燃料供給量と一意的に対応するため、横軸は燃料供給量とも理解することが

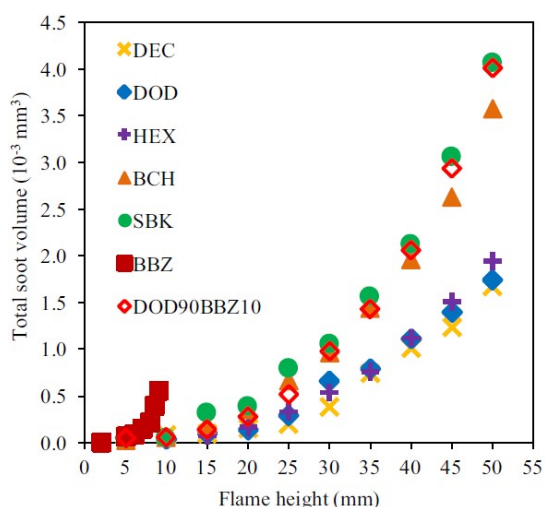


図 14 異なる燃料種および火炎高さ（燃料供給量）に対するすす生成特性(DEC:Decane, DOD:Dodecane, BCH:Butylcyclohexane, SBK:Biomass fuel mixed with Kerosene, HEX:Hexadecane, BBZ:Butylbenzene)

できる。この結果を見ると、芳香族化合物 (BBZ) がもっとも高い生成傾向を示しており、次いで単結合の管状化合物 (BCH)等が大きくなる傾向となっている。また、火炎長さが長くなると、いずれもすす生成量の増加が観察される。これらの結果から、すすの生成は、まずは燃料の種類、ついで燃料量が支配的影響を持つことがわかる。このような燃料本来のすす生成傾向に加えて、前節まで述べたように、周囲の流動条件、とくに火炎基部からの酸化剤流入が重要な因子となっていると言える。

<引用文献>

[1]Liu F., Guo, H, Samllwood G.J., Gulder, O.L., *Combustion and Flame*, 125:778-787 (2001)
 [2] Liu F., Consalvi, J.L., Fuentes, A., *Combustion and Flame*, 161:1724-1734 (2014)
 [3] Byoung-Ho Jeon, B.H., Fujita, O., Nakamura Y., Ito H., *Journal of Thermal Science and Technology*, Vol.2, No.2, pp.281- 290, (2007).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

Long H. Duong, Osamu Fujita, Iman K. Reksowardojo, Tatang H. Soerawidjaja, Godlief F. Neonufa, *Fuel*, Volume 185, 1 December 2016, Pages 855-862.

[その他]

ホームページ等

<http://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/lisu/>

6. 研究組織

(1) 研究代表

藤田 修 (FUJITA OSAMU)
 北海道大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：10183930

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

伊東弘行 (ITO HIROYUKI)
 佐藤賢一 (SATO KENICHI)
 山下晃弘 (YAMASHITA AKIHIRO)
 Long H. Duong
 Leo Sydney Boulard