

平成 30 年 5 月 18 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14168

研究課題名(和文) 可燃限界外および難燃性予混合気における高精度燃焼化学反応機構の構築と検証

研究課題名(英文) Construction and validation of high-fidelity chemical kinetics for combustion outside of flammability limit and for flame retardance mixture

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) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：可燃限界外のメタン空気混合気、および難燃性とされ利用が進んでいる、ハイドロフルオロカーボン(HFC)冷媒を対象に、それらの着火・燃焼特性を表現できる、詳細化学反応機構の構築や検証を目的に研究を行った。研究グループが独自に開発した、温度分布制御型マイクロフローリアクタを用いて、および を用いて実験および数値計算を実施した。では、燃焼限界の微小重力実験結果の分析のために用いる化学反応機構の検証を達成し、では、ほとんど解明されていなかった、ハイドロフルオロカーボン冷媒の化学反応特性の理解を達成している。は研究継続中であり、さらにフッ化物の計測へ進める。

研究成果の概要(英文)：Validations of detailed chemical kinetics are attempted for 1) CH<sub>4</sub>/oxidizer mixtures outside of its flammability limit and 2) flame retardant HFC refrigerants which are capable for reproducing their ignition and combustion characteristics. Original inhouse method termed “micro flow reactor with controlled temperature profile” was applied for 1) and 2) and experimental and computational investigations were conducted. For 1), validation of the methane kinetics with Xe and Kr dilutions which were used for analyzing microgravity experiments on combustion limits were achieved. For 2), understandings of reaction process of HFC refrigerants were achieved. Continuous research on 2) is aiming for the measurements of Fluoride intermediates and products.

研究分野：燃焼工学

キーワード：微燃性冷媒 可燃限界

### 1. 研究開始当初の背景

燃焼現象を正確に予測したり、リーンバーンエンジンなどの高効率燃焼機器を開発するためには広範な条件下で燃焼や着火を定量予測できる、高精度な詳細化学反応機構が必要である。広く普及した詳細化学反応機構は、通常、層流火炎や衝撃波管による着火遅れなどのデータをベースに調整されている。しかしその適用範囲は広くなく、可燃限界近傍や、もともと反応しにくい物質に対しても定量予測が必要であった。

可燃限界や消炎現象は、熱的ロスが一因となって引き起こされることが知られている。これを逆用し、可燃限界外や難燃性を有する混合気を、予め温度分布を外部熱源で与えるタイプの「温度分布制御型マイクロリアクタ装置」を導入することで、通常は非常に困難とされる混合気の化学反応特性を解明できる可能性があることに着目した。

### 2. 研究の目的

ここでは上述したように、リーンバーン特性や可燃限界機構を調べる微小重力実験における解析、また普及が進みつつある難燃性冷媒の化学反応特性の解明の二点を具体的なターゲットとして、①可燃限界外のメタン・酸化剤混合気、および②微燃性とされているHFC冷媒の燃焼性を定量的に明らかにすることを目的に研究を行った。

### 3. 研究の方法

可燃限界近傍や難燃性物質においては、もともとそれ自身の反応性単独で火炎を維持することが難しいか、あるいは不可能であるとされている。このためそのような物質を安定に反応させ、しかも条件を厳密に規定したうえで実験を実施することは通常は非常に困難である。そこでここでは本研究グループが独自に開発した、温度分布制御型マイクロリアクタを用いることとした。同リアクタは通常の消炎距離以下の内径を有する石英チャンネルを外部熱源により加熱することで、供試混合気による発熱によらない温度分布を形成し、それを用いて反応維持および規定された実験条件の実現を可能にしている。

ここでは管内径 2 mm 外径 4 mm の石英管をリアクタとして用い、水素バーナ火炎を用いてリアクタ内壁に最高温度 1300 K となるように定常な温度分布を与えている。①に対しては、可燃限界となる当量比 0.3~0.7 の範囲のメタン・酸素・不活性ガス混合気（不活性ガスには Xe および Kr を用いた。）を用いた。一方の②に対しては、CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> (R32 冷媒) および C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>F (R125 冷媒) 空気予混合気を用いた。図 1 に①で用いた装置の概略を示している。なお②では、横型のリアクタを用いている（図は省略）。

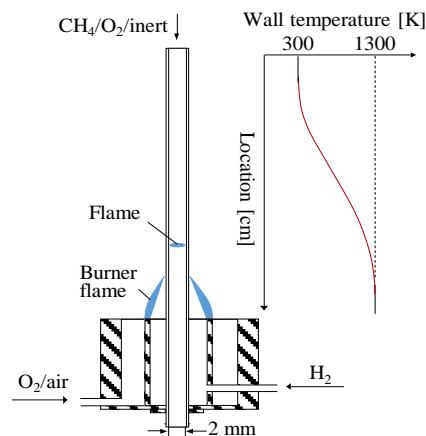


図 1 縦型の温度分布制御型マイクロリアクタの概略図

数値計算には、一次元定常計算コード PREMIX をベースとし、リアクタの系を模擬するためエネルギー方程式に気相と壁面との熱伝達項を追加した計算コードを使用した。壁面の温度分布には、実験で与えた温度分布と同様のものを与えた。使用した詳細反応機構は、①では、GRI-Mech 3.0 から N に関する反応を除いたもの、San Diego mechanism、AramcoMech 1.3 を用いた。一方②では、USC Mech version II をベースに Linteris らが開発した C1 および C2 のフッ化炭化水素の素反応を考慮したメカニズムである Linteris mech. を用いた。

### 4. 研究成果

はじめに①について実施した火炎の可視化画像により壁面温度位置との関係を図 2 に示す。微小重力実験は低レイス数（混合気中の不足成分の物質拡散係数が熱拡散係数より大きい場合）条件にて実施されるため、メタン燃料と、Xe や Kr といった質量数の大きな不活性ガスを利用している。ここでは不活性ガスが窒素の場合とキセノンの場合を比較している。図 2 より、不活性ガスをキセノンとした場合の方が、窒素とした場合に比べて大幅に低温側に火炎が位置している。このことはキセノン希釈の方が、反応性が顕著に高いことを示している。

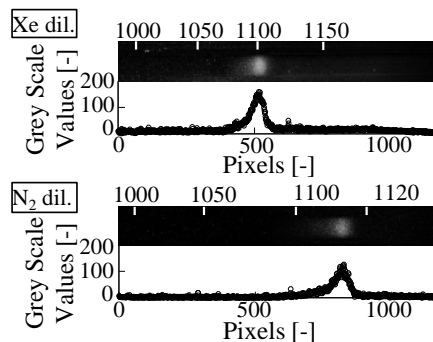


図 2 実験による weak flame の可視化画像と

その輝度分布 (当量比 0.3、キセノンおよび窒素希釈の場合)

可視化実験と比較するため前述の三種の反応機構を用いた詳細化学反応計算も実施し、San Diego mechanism を用いた数値計算が最もよく可視化実験による火炎位置を再現することが明らかになっている。さらに火炎位置に対する感度解析を行い、OH に関連する反応の重要性や、窒素とキセノンの三体衝突径数の違いによって、促進・抑制される反応が異なり、それによって窒素希釈の場合の反応性が大きく低下することなどを明らかにしている。

続いて、CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> (R32 冷媒) に対して実施した可視化実験および数値計算による熱発生率の分布を比較した結果を図 3 に示す。ここでは省略するが、比較のために CH<sub>4</sub> を用いた場合についても可視化および数値計算を実施しており、weak flame の定在位置は、メタンの場合よりも CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> の場合の方がはるかに高温側であることがわかった。このことは CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> の難燃性を端的に表している。

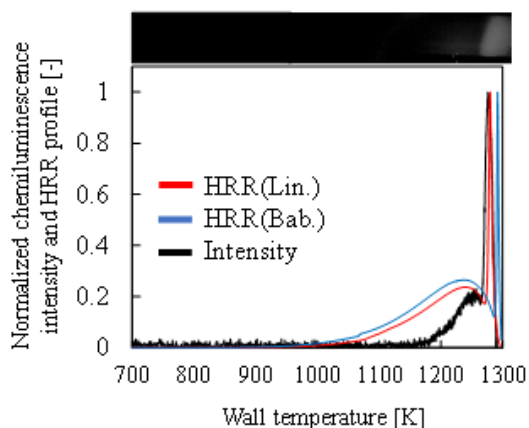


図 3 CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 空気混合気における火炎画像と数値計算による発熱速度の分布 (値はそれ自身の最大値で正規化した値を示した。)

続いて数値計算によって得られた CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 空気混合気による weak flame の構造を図 4 に、またメタン空気混合気による weak flame の構造を図 5 に示す。CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 火炎が通常の炭化水素燃料と顕著に異なる点は、フッ化水素 HF が大量に生成すること、また CO や CF<sub>2</sub>O が 1300K においても大量に存在していることにある。図 5 で示すようにメタンの場合には 1300K よりも低い温度で完全酸化が完了し、最終生成物である CO<sub>2</sub> と H<sub>2</sub>O が生成していることがわかる。なおここでは省略するが、この冷媒を平衡濃度にまで到達させるには 1300K よりも遙かに高温の環境が必要であることも明らかとなった。冷媒の反応特性については現在も研究を継続しており、実際にフッ化物を含む中間生成物を計測したうえで数値計算結果と比較、具体的な化学反応機構の修正にも踏み込みたい考えである。新たに FTIR を導

入した計測を実施しており、現在までのところ、計測によって定性的には数値計算結果が反応プロセスを表現できていることが確認されている。

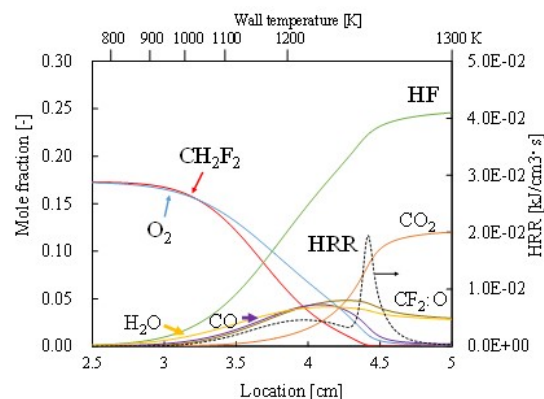


図 4 数値計算によって得られた CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 空気混合気による weak flame の構造

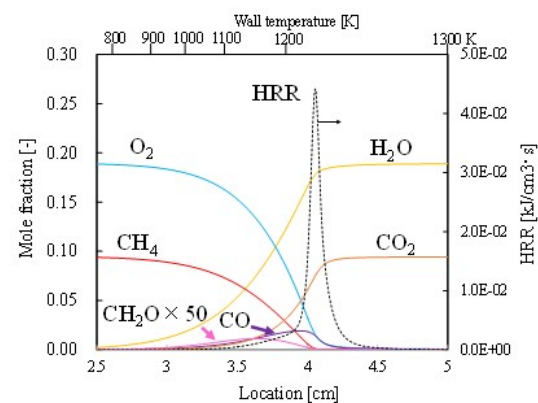


図 5 数値計算によって得られた CH<sub>4</sub> 空気混合気による weak flame の構造

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① Tomoya Okuno, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Ultra-lean combustion characteristics of premixed methane flames in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, Proceedings of the Combustion Institute, Vol.36, Issue 3:4227-4233 (2017).査読有

[学会発表] (計 5 件)

- ① Shintaro Takahashi, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Study on ignition characteristics of CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub>/Air flame in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, The Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering

Conference (TFEC9), 2017, 1375.

- ② Shintaro Takahashi, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Multi-stage oxidation of refrigerant CH<sub>2</sub>F<sub>2</sub>/Air weak flames in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, 14th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2017), 2017, OS2-33, pp. 236-237.
- ③ Shintaro Takahashi, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta, Study on combustion and ignition characteristic of weakly flammable refrigerant R125 using a micro flow reactor with a controlled temperature profile, 11th Asia-Pacific Conference on Combustion ASPACC2017, 2017, 349.
- ④ 高橋 伸太郎, 中村 寿, 長谷川 進, 手塚 卓也, 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微燃性冷媒 R32 の着火・燃焼特性, 日本伝熱学会第 54 回日本伝熱シンポジウム, 2017, A233.
- ⑤ 高橋 伸太郎, 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冷媒 R125 の weak flame に関する研究, 日本燃焼学会第 55 回燃焼シンポジウム, 2017, E313.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

該当なし

## 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：5 0 2 6 0 4 5 1

### (2) 研究分担者

中村 寿 (NAKAMURA, Hisashi)  
東北大学・流体科学研究所・准教授  
研究者番号：4 0 4 4 4 0 2 0

### (4) 研究協力者

奥野 友哉 (OKUNO Tomoya)  
高橋 伸太郎 (TAKAHASHI Shintaro)