

令和 3 年 6 月 14 日現在

機関番号：82627

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04588

研究課題名(和文) 低着火性燃料に対応した物理的手法に基づく蒸発性・着火遅れ評価モデルの構築

研究課題名(英文) Droplet Evaporation and Ignition Delay Model based on Physical Properties for Low Ignitability Fuel

研究代表者

高木 正英 (Takagi, Masahide)

国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：50371092

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、アルカンと芳香族炭化水素の混合によりモデル化された船用燃料を対象に、液滴蒸発モデルと着火性評価モデルを作成した。本研究の目的は、これらのモデルによって、燃料特性と着火性指標との関係を明らかにすることである。

液滴蒸発モデルの結果から、モデル燃料は単峰性、二峰性の蒸発特性になり、これらの違いが着火性に直接影響しないことを示した。

また、着火性評価モデルとして、船用残渣油の指標であるCCAI値をアルカン、芳香族炭化水素のそれぞれに対して修正を施し体積平均する手法を提案し、高精度に着火性を再現することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液滴蒸発モデルについては、物質の非理想性と物質輸送と熱輸送のそれぞれに異なるグラスホフ数を用いて重力の効果を検討するモデルの修正、追加を行った。これにより、通常の重力場での液滴蒸発実験との比較検証が可能になった。

セタン値推定モデルについては、アルカン、芳香族の各成分ごとに修正を行うことで、これまでの着火性指標よりも高精度の定式化を行うことができた。これは、船用燃料の着火性をより正確に表せる手法に資する結果になっている。

研究成果の概要(英文)：In this study, a droplet evaporation model and an ignitability evaluation model were developed for a marine fuel modeled as a mixture of alkanes and aromatic hydrocarbons. The purpose of this study is to clarify the relationship between various fuel properties and ignitability index by these models.

The results showed that the model fuels had unimodal and bimodal evaporation characteristics. These differences in evaporation characteristics did not directly affect the ignitability of the model fuels.

A more accurate ignitability evaluation model was developed by modifying the CCAI (Calculated Carbon Aromaticity Index) constants for alkanes and aromatic hydrocarbons, respectively.

研究分野：噴霧燃焼工学

キーワード：蒸発モデル 着火性評価 船用燃料

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

燃料規格におけるディーゼル留出油燃料の着火性評価は、セタン価が基準であり、その代替としてセタン指数が用いられる。CFR (Cooperative Fuel Research Committee) エンジンでの燃料噴射から着火・熱発生までの時間と定義される「着火遅れ」の実測値であるセタン価と相関のあるセタン指数は、ISO 4264 で規格化され、燃料の密度と蒸留温度から求められる。セタン指数はエンジン試験が必要なセタン価と異なり、容易に算出できるため、市場で流通するディーゼル燃料の大半はセタン指数で管理されている。

しかし、セタン価とセタン指数の関係は、これまでの燃料をベースに着火遅れ計測実験と統計処理によって得られたものであるため、現象面からの検討などは行われておらず、将来の燃料については当然考慮されない。このような手法は、既存燃料に対応する上では問題を生じないが、バイオ燃料、セタン価向上剤のような考慮外の燃料があると評価指標として使えず、新たな燃料出現のたびに一からの構築を余儀なくされる。これまで、2020年の船用燃料硫黄規制に対応した燃料研究を行ってきた結果、セタン指数 35 以下の燃料になるとセタン指数相当の着火性を持たない燃料も存在することが明らかになっている。そのため、燃料性状の違いが考慮された着火に関する統一的な知見が必要であり、現象論からの検討が非常に重要となる。ディーゼルエンジンの着火遅れ期間中には、燃料液体の微粒化・蒸発、雰囲気との混合気形成、高温高圧場での酸化反応といった現象が同時に進行し、最終的に着火・熱発生となる。燃料評価の観点から燃料依存の高い現象を抽出すると「着火遅れ(セタン価) 蒸発特性+化学(酸化)反応」となる。このような現象に対して課題は、数十、百種類の成分が含まれている多成分燃料における蒸発と着火現象をどのようにモデル化するか、になる。このモデルではセタン価 5 程度の違いを再現したい。これは、船用燃料の規格である ISO8217 では、セタン指数 5 でグレードが分けられているからである。

### 2. 研究の目的

本研究では燃料の蒸発特性とディーゼル噴霧の着火遅れ(セタン価推定)を対象にするが、両者について、以下の課題がある。

- ・ 蒸発モデル

- アルカン系、芳香族系などの分子構造影響を考慮できる実用燃料に対応した蒸発モデルがなく、現実の非理想的な条件に対する検討がされていない

- ・ セタン価推定モデル

- 現象に即した物理モデルベースでの評価手法がない

これまで多成分系燃料の蒸発性、着火性評価手法は種々の方法によって検討、提案されている。蒸発モデルは直鎖のアルカンを対象にした燃料モデルが多く、理想状態を仮定している。また、非理想系のモデルも提案されているが、複数の非理想状態を考慮している例はなく、成分も単一、もしくは二元燃料で検討されている。セタン価(着火遅れ)推定に対するアプローチは、実験計画的手法に基づく実験値との相関を統計的に求める手法か、非常に詳細な成分同定を二次元ガスクロマトグラフィや NMR(核磁気共鳴)を用いて行い、モデル化する例も見られる。統計的手法は、物理化学的な裏付けが弱く、かつ現在存在しているものにしか適用検討できない。詳細手法によるモデル化は、モデル変数が詳細計測値に基づくため全燃料での詳細計測を前提にするのは現実的には不可能である。従って、ここでは船用燃料の特徴として芳香族成分に着目し、アルカンとの混合によりモデル化された船用燃料を用いて、蒸発、セタン価推定モデルを作成し、現象面からの特性と着火性指標との関係を明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

船用燃料では直鎖系の分子構造を持つ燃料だけではなく、一環、二三環の芳香族成分もほぼ同等に含まれている。また、燃料の蒸留特性において中間の留出成分がほとんど含まれていない燃料(いわゆるダンベル燃料)が問題になったことがあることから、沸点の異なる燃料を用いて燃料のモデル化を行った。沸点を低、中、高沸点成分に分け、沸点の近いアルカンと芳香族のそれぞれを選択した。低沸点成分はノナン(図などでは No.1)とエチルベンゼン(No.4)、中沸点成分はトリデカン(No.2)、ヘプチルベンゼン(No.5)、1-メチルナフタレン(No.7)、高沸点成分はオクタデカン(No.3)とドデシルベンゼン(No.6)である。これら 7 種類をベース燃料と呼ぶ。液滴蒸発モデルについては、組み合わせた燃料において非理想性とグラスホフ数をを用いて重力の効果を考慮し、液滴径、温度の変化を調べた。モデルの検証は、既往研究における実験結果と比較を行い、実験結果を再現できることを確認している。

着火性実験については、英国エネルギー協会の IP541/06 に則した装置である Fuel Tech 社製

の FIA-100/FCA (Fuel Combustion Analyzer)を用いた。この装置は船用燃料試験の基準として用いられることが多い。雰囲気圧力、温度はこれまで急速圧縮装置と呼ばれる別の装置にて行ってきた条件を参考に 4.5MPa, 810K とした。噴射圧力は 40MPa, 噴射期間は 2.6ms である。まず主燃焼遅れ(main combustion delay MCD)と呼ばれる噴射開始から燃焼時の最大圧力の 10%に達するまでの時間とセタン価に関する検量線を求め、単成分のベース燃料のセタン価を求めた。検量線のための燃料には、セタン価 0 の 1-メチルナフタレンとセタン価 100 のヘキサデカンの混合燃料によるセタン価 100, 80, 60, 40, 30, 25, 20 の 7 種類と、IP541/06 における参照燃料であるメチルシクロヘキサン(MCH セタン価 20)を用いた。ここでは FCA による主燃焼遅れの検量線から求めたセタン価を、セタン価評価値  $CN_E$  と記す。

図 1 に MCD と  $CN_E$  の関係を示す。なお、エチルベンゼンとメチルナフタレンは本雰囲気圧力、温度条件では着火しなかったため、参考文献での値を用いた。ベース燃料を混合した二成分燃料はテスト燃料と呼び、テスト燃料は異なる沸点成分同士で混合した。各テスト燃料の混合割合は、密度が 750, 800, 830, 860, 900, 950kg/m<sup>3</sup> になるようにした。この中から 800kg/m<sup>3</sup> になる 8 条件, 860kg/m<sup>3</sup> の 2 条件, 950kg/m<sup>3</sup> の 1 条件で着火性試験を行った。

図 2 に図 1 に示した各成分の  $CN_E$  の体積平均で表したセタン価評価値  $CN_{E,cal}$  と FCA から実測された MCD から求めたセタン価評価値  $CN_{E,exp}$  の関係を示す。両者の値が大きなテスト燃料では差が開く結果も得られるが、実験条件内でセタン価評価値が逆転しないため、今回用いたベース燃料の混合において、テスト燃料のセタン価評価値  $CN_E$  は加成性があるとして、ベース燃料の体積平均で求められるとした。

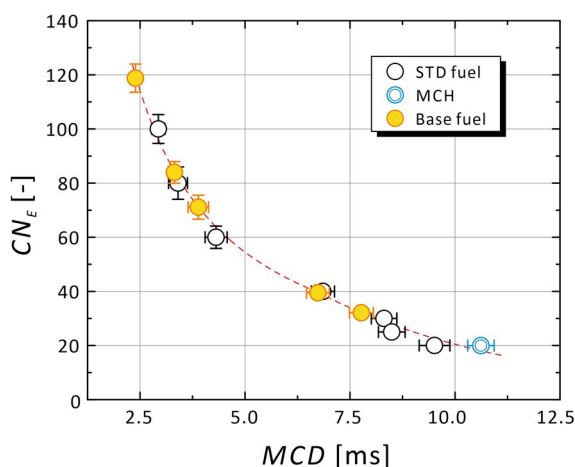


図 1 標準燃料による検量線とベース燃料のセタン価評価値

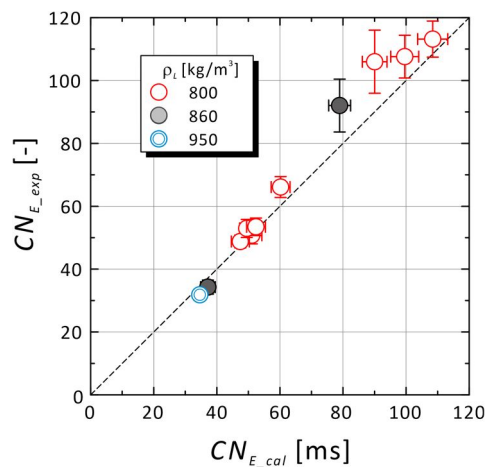


図 2 二成分テスト燃料の加成性検証

#### 4. 研究成果

最初に、各テスト燃料の蒸発特性を、静止雰囲気場での単一液滴の蒸発によって検証した。図 3 に密度 860kg/m<sup>3</sup> での液滴径( $d/d_0$ )<sup>2</sup>、液滴温度  $T_1$ 、質量変化率  $dm_1/dt$  の計算結果を例として示す。ベース燃料の混合によって密度 860kg/m<sup>3</sup> になる組み合わせは 4 条件で、Fuel No. (1,7)は、ノナンとメチルナフタレン、(2,4)はトリデカンとエチルベンゼン、(3,4)はオクタデカンとエチルベンゼン、(3,7)はオクタデカンとメチルナフタレンの混合物である。図内に各テスト燃料のベース燃料体積分率を示す。雰囲気圧力、温度は FCA と同じ 4.5MPa, 810K, 初期液滴直径  $d_0$  は 25 $\mu$ m, 初期液滴温度は 300K とした。中、右図は初期質量  $m_{i0}$  を用いて蒸発質量比として表している。

液滴径は蒸発初期に液滴温度の上昇による膨張効果によって増加し、その後減少に転ずる。この液滴径が増加する期間は、燃料によって異なっている。Fuel No. (1,7)は液滴表面積が半分になる付近で、液滴径変化の勾配が変わり、右図の液滴質量変化率でも二峰性の変化が見られ、本研究ではこのような特徴になるテスト燃料をダンベル燃料と定義する。一方、Fuel No. (2,4), (3,4)はほとんどがエチルベンゼンのため、単成分と変わらない蒸発特性になるが、蒸発の最終盤で液滴径、温度勾配に変化が見られ、特に液滴温度が急上昇する。Fuel No. (3,7)ではオクタデカン、メチルナフタレンが 2:1 で混合されているにも関わらず、単成分のような蒸発特性を示し、質量変化率は単峰性になる。これは、高沸点成分であるオクタデカンが、蒸発初期からある程度の蒸発を生じているからである。今回蒸発計算において質量変化率が単峰性になったのは、Fuel No. (3,7), (6,7), (3,5)の中-高沸点燃料の組合せの時であるが、同じ中-高沸点の組み合わせである(2,6)の時には二峰性の蒸発になった。また、同一成分の混合比によって単峰性、二峰性の両者が現れた組み合わせはないことから、沸点や混合比ではなく、成分組み合わせによって蒸発特性が変わることがわかった。

セタン価推定モデルとして、船用残渣油に用いられている CCAI(Calculated Carbon Aromaticity Index)を修正、改良することを試みた。まず、残渣油の指標である CCAI が留出油でも適用でき

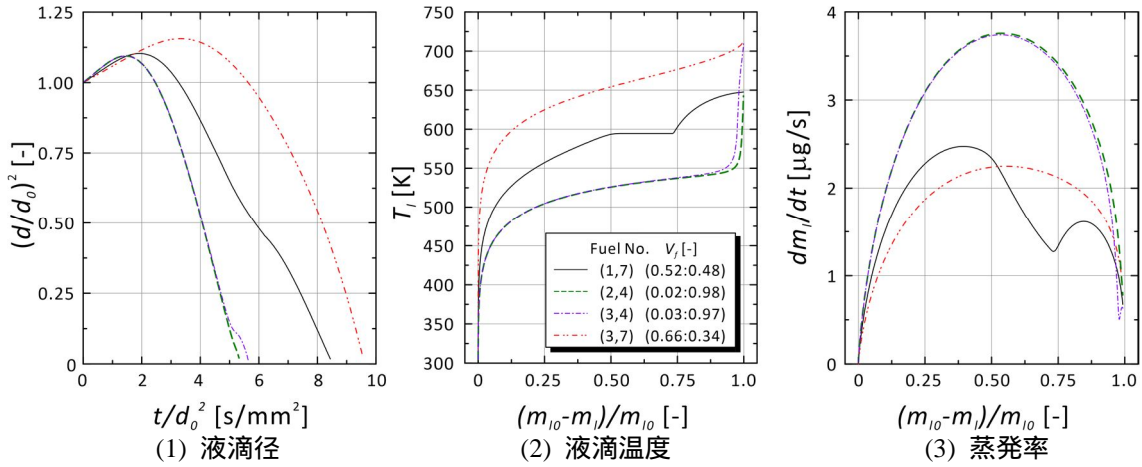


図3 二成分テスト燃料の蒸発特性

るか確認した。CCAI は 15°Cでの密度 $\rho_L$ [kg/m<sup>3</sup>]と 50°Cでの動粘度 $\nu_L$ [mm<sup>2</sup>/s]から以下の式で計算できる。

$$CCAI = \rho_L - 81 - 141 \log_{10} [\log_{10} (\nu_L + 0.85)]$$

図4に様々な留出油(低粘度燃料)のFCAによる着火遅れとCCAIの関係を示す。供試燃料は、セタン指数が19.8から58.4の18種類とした。着火遅れは、噴射開始から燃焼最大圧力の1%になるまでの時間とした。CCAIが増加すると着火遅れも増加し、両者にはおおよその相関がある。この実測された結果のみならず、Zeelenbergによって示されたCCAIに関する原著論文で指標作成に使用されている燃料は19種類、そのうち留出油に分類されると考えられる燃料が8種類あることや、Soudersによって求められた液体粘度の推算式と同形であることから、CCAIは残渣油専用の指標ではないと解釈することができるため、ここでの評価モデルの原型として採用した。

図5にCCAIとセタン価評価値との関係を示す。ベース燃料である単成分燃料7種類は×印で示している。白抜き記号は蒸発特性が単峰性になった燃料、色付き記号は二峰性(ダンベル燃料)になった燃料である。3種類のアルカン Fuel No. 1, 2, 3のCCAIは、740でほぼ一定になるため、炭素数が増え $CN_E$ が変わってもCCAIが変わらないことが確認できる。また、芳香族のベース燃料である一環芳香族の3燃料 Fuel No. 4, 5, 6と、二環芳香族のメチルナフタレン Fuel No. 7はCCAIと $CN_E$ が同一線上にあるとは言い難い。これら二点が、同一CCAIでのセタン価の違いを生じている要因と考えられる。

CCAIと $CN_E$ との関係において、密度ごとのCCAI- $CN_E$ の相関性は高くない。一方、同一CCAIでも $CN_E$ は異なっている。また単峰性になったベース燃料同士を直線で結ぶと、この直線上にはベース燃料の混合比を変更したテスト燃料があり、両者は線形関係になっている。二成分系のテスト燃料でも、実際の燃料油で観察された同一CCAIでの $CN_E$ の差異と混合比変更時のCCAIと $CN_E$ の線形性の二点の特徴が得られている。単峰性の蒸発になるテスト燃料は、前述の通り Fuel No. (3,7), (6,7), (3,5)の3種類である。オクタデカン( $CN_E$ :119)とメチルナフタレン( $CN_E$ :0)を混合した Fuel No. (3,7)はCCAI- $CN_E$ の関係において同一CCAIで最も着火性の良い組み合わせになっている。しかし、その他の2種類のテスト燃料は同一CCAIで $CN_E$ が高い値になっておらず、二峰性になった燃料の方が着火性の良い結果もある。これより、必ずしも二峰性燃料であれば着火性が悪くならないことが予測された。

これらの結果は、同一CCAIでも様々な成分の燃料が作製できることを示している。また、

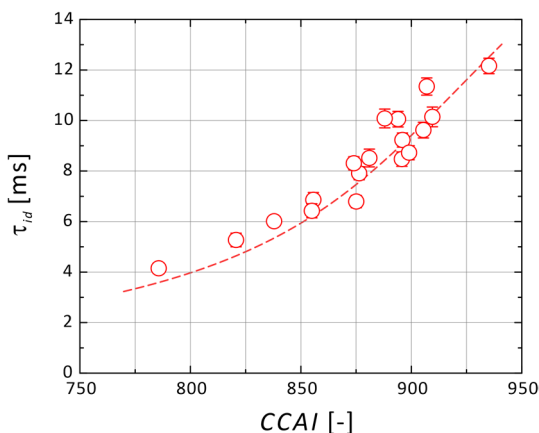


図4 様々な留出油による着火遅れとCCAIの関係

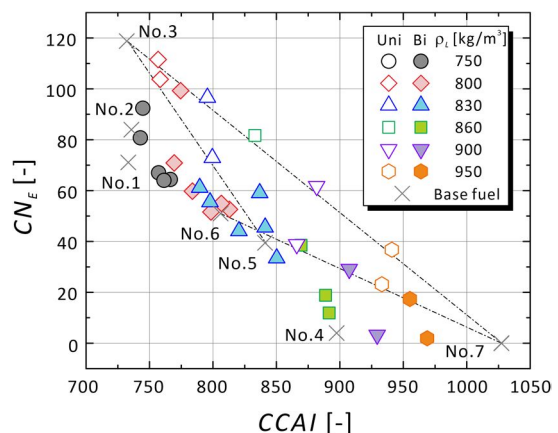


図5 CCAIとセタン価評価値の関係

単成分においてアルカン，一環，二環芳香族の CCAI-CN<sub>E</sub> 関係を同一線上に表すことができるのであれば，より高精度の着火性予測が可能になると予想した。ここまで検討した内容から，CCAI をアルカン，一環，二環芳香族の違いを考慮できるように修正，改良する。

ここでは，船用燃料に含まれている燃料成分として，アルカン，芳香族ごとに CCAI を修正，変更する。前述の同一 CCAI でのセタン価の違いを生じている要因を解消するため，アルカンはセタン価と線形性を得られるように，芳香族は環数の違いを補正するように修正している。アルカンと芳香族の修正した CCAI 式を以下に示す。

・アルカン

$$CCAI_s = 2.768\rho_L - 1861 - 807.6\log_{10}[\log_{10}(v_L + 0.85)]$$

・芳香族

$$CCAI_a = \rho_L - 81\{1 - 2.486\exp(-0.1603\alpha)\} - 141\log_{10}[\log_{10}(v_L + 0.85)]$$

$\alpha$  は芳香族の環状構造に使われる炭素原子数である。テスト燃料のセタン価推定モデルは，上記のアルカン，芳香族の修正 CCAI 式をセタン価評価値と同様に体積平均した。式を以下に示す。

$$CCAI_{imp} = V_{f-s} CCAI_s + V_{f-a} CCAI_a$$

$V_{f-s}$ ， $V_{f-a}$  はアルカン，芳香族の体積分率である。図 6 にテスト燃料の修正 CCAI と CN<sub>E</sub> の関係を示す。図 5 と比較して相関が高くなっていることが確認できる。成分，混合比が既知である場合には，アルカン，芳香族のそれぞれに値を求めることで CCAI とセタン価の高い相関性を得ることができた。このように船用モデル燃料において着火性評価式を得ることができたが，成分，混合比が不明である実際の燃料の適用に関して，成分，混合比の推定算出法などを検討することが今後の課題となる。

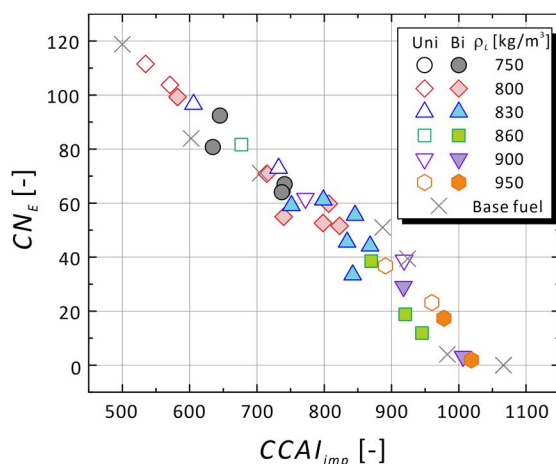


図 6 修正 CCAI とセタン価評価値の関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 高木正英	4. 巻 -
2. 論文標題 二成分系モデル燃料による船用重質油の着火性指標に関する評価	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本マリンエンジニアリング学会誌	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高木正英
2. 発表標題 船用低硫黄燃料の着火性指標
3. 学会等名 第21回海上技術安全研究所講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高木正英
2. 発表標題 船用重質油の着火性指標に関する検討
3. 学会等名 第91回マリンエンジニアリング学術講演会講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	今井 康雄  (Imai Yasuo)  (40426218)	国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員    (82627)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------