

水素添加による高級炭化水素系燃料の希薄燃焼の改善*

酒井 幸夫*¹, 石塚 悟*²An Improvement of Lean Combustion Characteristics
of Heavy-Hydrocarbon Fuels with Hydrogen AdditionYukio SAKAI*³ and Satoru ISHIZUKA^{*3} Department of Mechanical Engineering Saitama Institute of Technology
1690 Fusaiji, Okabe, Saitama, 369-0293 Japan

The Lewis numbers of lean heavy-hydrocarbon fuels are larger than unity, and hence, their flames are prone to extinction in a shear flow, which occurs in a turbulent combustion. Here, propane is used as a representative fuel of heavy-hydrocarbon fuels because the Lewis number of lean propane/air mixtures is larger than unity, and an attempt to improve its combustion characteristics by hydrogen addition has been made. A tubular flame burner is used to evaluate its improvement, since a rotating, stretched vortex flow is established in the burner. The results show that with hydrogen addition, the fuel concentration, the flame diameter and the flame temperature at extinction are reduced and its combustion characteristics are improved. However, it is found that the effective equivalence ratio at extinction cannot become so small as that of lean methane/air mixture, which has a Lewis number less than unity.

Key Words: Lean Combustion, Hydrogen Addition, Flame Temperature, Extinction, Effective Equivalence Ratio, Tubular Flame

1. ま え が き

希薄燃焼は、エネルギーの有効利用および大気汚染排出物低減のうえから、エンジンなどの実用燃焼器で重要視されている。しかし、ガソリンや灯油などの高級炭化水素系燃料の希薄混合気では、不足成分である燃料のルイス数 ($Le = \kappa/D$; κ : 温度伝導度, D : 拡散係数) が 1 より大きい場合伸長に対して火炎が消炎しやすく、事実、二重火炎、管状火炎等の伸長を受けた希薄火炎では、ルイス数の 1 より小さい水素やメタンの火炎ではよどみ面(線)にごく接近するまで消炎しないが、ルイス数の 1 より大きいプロパン火炎では、よどみ面からかなり離れたところで、しかもわずかな伸長により消炎することが知られている^{(1)~(4)}。しかし、拡散が非常に速い水素を添加することによってよどみ面に接近して(細くなってから)消炎するように改善できるなら、希薄可燃範囲を広げ、かつ窒素酸化物等の大気汚染物質の排出低減をはかれることになり、その意義は大きい。

そこでここでは、回転伸長流れ場に形成され、火炎伸長と同時に火炎曲率の影響も受ける管状火炎を用いて、高級炭化水素系燃料の代表としてプロパンと比較にメタンを使用して、少量の水素添加により希薄燃焼の改善が行える様子を確かめることにした。本研究で得られた結果は、大きさや強さの違ったさまざまな渦を含む実際の乱流燃焼に対して、有用である⁽⁵⁾と思われる。なお最近、メタンに水素を添加した希薄燃焼技術の改善が同種の管状火炎を用いて行われている⁽⁶⁾。

2. 実験装置および実験方法

図 1 に、本実験で使用した回転管状火炎バーナの概略を示す。今回の実験では、希薄なプロパン火炎のように火炎直径の大きな火炎にもバーナが熱的に十分に耐えるように、バーナ管のみならずスリット部も石英でできた総石英製のバーナを採用した。バーナ管の内径は 19 mm, 長さ 120 mm, スリットの幅は 3 mm, 長さ 120 mm である。混合気をバーナ管接線方向にスリットから吹き出すと、管内では回転した軸対称伸長流れ場が形成され、バーナ長手方向にほぼ一樣な円形断面をもった管状火炎が形成される。

本実験では、スリットから吹き出す混合気の流速をつねに 3 m/s (したがってバーナ中心に向かっての半

* 原稿受付 1999年3月19日。

^{*1} 正員, 埼玉工業大学 (☎ 369-0293 埼玉県大里郡岡部町普濟寺 1690)。^{*2} 正員, 広島大学工学部 (☎ 739-8527 広島市鏡山 1-4-1)。

E-mail: mecsakai@sit.ac.jp

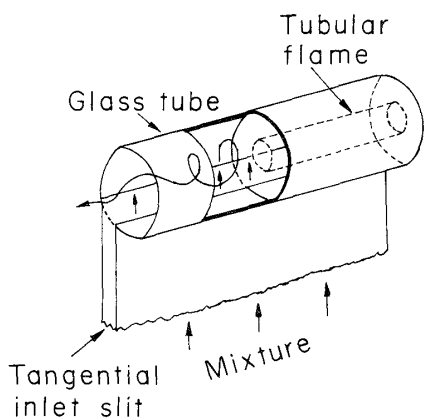


Fig. 1 Tubular flame burner

径方向速度は 15.1 cm/s となる)一定で行った。また、添加する水素濃度は、全混合気(水素・プロパン・空気混合気、または、水素・メタン・空気混合気)の体積流量に対する水素流量の割合とし、この濃度を段階的に 1, 2, 3%と変えて実験を行った。火炎直径は、側面からの直接写真撮影で発光火炎帯の中心間距離で定義したが、火炎直径が大きく、また、火炎面がしわ状となるような一部の火炎に対しては、長手方向から撮影した火炎写真と併用して火炎直径を決定した。一方、温度の測定には、二酸化けい素で被覆した素線径 0.1 mm の R 熱電対(白金-白金 13%ロジウム)を用いたが、今回は対象としている燃焼ガスの温度が 1400°C 以下と低いので、ふく射による熱損失の補正は行っていない。

3. 実験結果および考察

3.1 火炎形状 まずはじめに、水素濃度 $\Omega(\text{H}_2)$ (モル%)を 1, 2, 3%とほぼ一定に保ちつつ、メタンあるいはプロパンの流量を減少させ、火炎形状の変化を観察した。その結果、いずれの場合も火炎直径は燃料流量の減少とともに減少し、消炎に至った。図 2 は、消炎限界のごく近傍の状態における典型的な火炎形状の直接写真である。図 2(a)~(c)がメタン火炎の、また図 2(d)~(f)がプロパン火炎の、それぞれ添加する水素濃度が 0% (無添加), 1, 2%のときの様子である。ここで、 $\Omega(\text{CH}_4)$, $\Omega(\text{C}_3\text{H}_8)$ は、それぞれメタン、プロパンの燃料濃度(モル%)である。燃料がメタンの場合、いずれの水素濃度においても火炎直径は小さく、水素濃度が大きくなるほど消炎時の火炎直径は小さくなっている。一方、燃料がプロパンの場合、水素を添加しない場合 [$\Omega(\text{H}_2)=0\%$], および $\Omega(\text{H}_2)=1\%$ の場合、火炎直径も大きく、また、火炎帯も厚く写っているが [図 2(d), (e)], これは火炎直径が大き

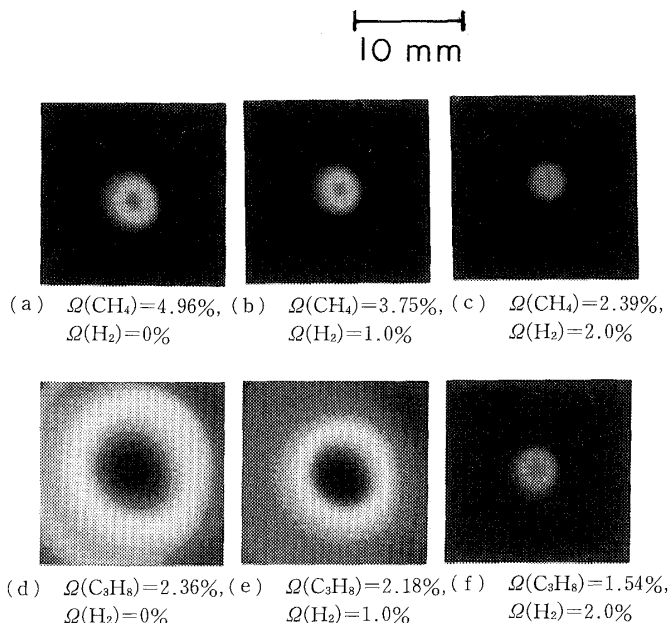


Fig. 2 Configurations of the tubular flame close to extinction

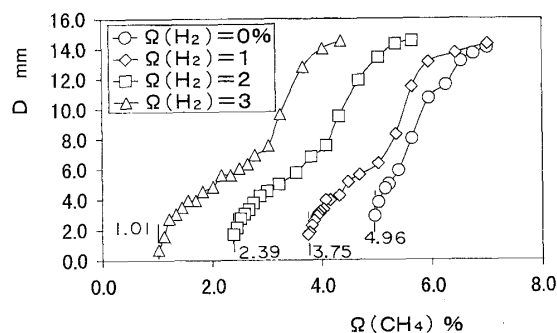


Fig. 3 Variation of the flame diameter with the methane concentration

い場合、火炎面が凸凹でしわ状であるためである。しかし、水素濃度が 2%と増えると、消炎限界近くでは火炎直径は非常に小さくなる [図 2(f)]。

3.2 火炎直径および消炎限界 図 3 は、添加する水素濃度 $\Omega(\text{H}_2)$ を 0, 1, 2, 3%とほぼ一定に保ちつつ、メタンの流量を減らしていったときの、火炎直径 D [mm] の変化を示す。図 3 中の数字は消炎のメタン濃度を示す。水素濃度 0%, すなわち無添加の場合、燃料希薄(メタンの量論混合比濃度は 9.5%)状態からメタン濃度を減らしていくと、火炎直径も単調に減少し、メタン濃度 4.96%, 火炎直径約 2.9 mm で消炎する [図 2(a)]。水素を添加し、水素濃度が 1%の場合、やはりメタン濃度の減少とともに火炎直径は減少するが、約 6.0 mm 以下では、その減少の仕方が緩くなり、

その後、メタン濃度 3.75%、火炎直径 1.7 mm で消炎する。水素濃度が、2、3%と増えると、火炎直径は全体的に増えるが、やはり、火炎直径が 6.0 mm あたりでその変化の仕方が緩くなり、 $\Omega(\text{H}_2)=2\%$ ではメタン濃度 2.39%、火炎直径 1.7 mm、 $\Omega(\text{H}_2)=3\%$ では、メタン濃度 1.01%、火炎直径 0.7 mm で消炎する。なお、火炎直径は、半径方向混合気流速と局所的な燃焼速度の釣合いによって決定されるので⁽⁶⁾、同じメタン濃度では、添加する水素が大きいほど燃焼速度の増大のため火炎直径は増大する。

一方、図 4 はプロパンについての結果を示す。添加水素濃度が 0% の場合、プロパン希薄(プロパンの量論混合化濃度は 4.02%) の状態から燃料濃度を減少させると、火炎直径はわずかに小さくなったところ、大きな直径のまま消炎する。このときのプロパン濃度は 2.36%、火炎直径は約 10 mm である。プロパン希薄火炎は火炎直径も大きく、火炎面がしわ状で乱れやすく、消炎のごく近傍になってはじめて、火炎面がかなり滑らかとなるが、図 2(d) のように写真では火炎面が厚く撮影される。添加する水素濃度を 1% とすると、火炎直径はプロパン濃度の減少とともにはじめは緩やかに、しかし、急激に小さくなって消炎した。添加水素濃度が 2% のときも、やはり、燃料濃度の減少とともに火炎直径は急激に減少し、しかし、非常に小さな火炎直径となって消炎した。水素濃度が 3% の場合は、燃料濃度の減少に対して、いくらか緩やかに減少し、その後、プロパン濃度 0.76%、火炎直径約 2.3 mm 近傍で消炎した。

総じて、プロパン火炎では添加水素濃度が 2% 以上になると、燃料濃度を減少するにつれてすぐに火炎面は滑らかとなり、かつ火炎は滑らかに回転しているように見え、火炎直径がかなり小さくなるまで消炎しなくなる。したがって、ある程度水素を添加することにより、火炎は伸長に対して消炎しにくくなったといえる。

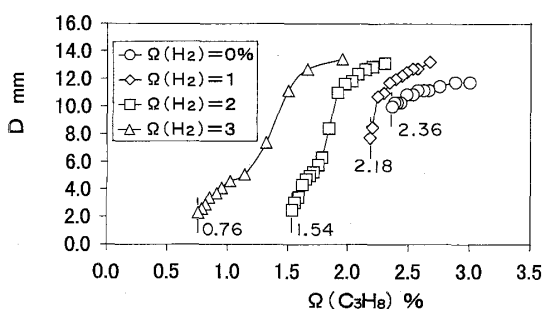


Fig. 4 Variation of the flame diameter with the propane concentration

さて、図 5 は、図 3 および図 4 の結果を含めて、消炎時の火炎直径の変化を添加する水素濃度に対してプロットしたものである。添加する水素濃度を増すにつれ燃料濃度は減少し、ついにはこのバーナにおける水素のみの消炎限界 $\Omega(\text{H}_2)=4.12\%$ (燃料濃度 0%) に至る。メタン火炎では、水素添加濃度の増大とともに消炎時の火炎直径は小さくなり、最終的には水素のみの火炎の直径 0.4 mm までほぼ単調に減少する。一方、プロパン火炎では、消炎限界時の火炎直径は水素添加濃度を増すと、水素添加量が 1.5% 付近でやや急激に低下し、その後は緩やかに低下し、水素のみの消炎直径 0.4 mm に至る。したがってプロパン火炎では、添加水素濃度が 2% 程度以上になると、消炎限界での火炎直径がメタン火炎の値に接近し、ほぼ同等の火炎直径で消炎するようになる。

なお、添加水素濃度が 0% のときのメタン、プロパンの火炎直径および水素のみのときの火炎直径は、本実験と同様のバーナを用いて得られた結果とほぼ一致した⁽⁷⁾。

3.3 燃焼ガス温度 管状火炎は、その温度分布の対称性から火炎背後に熱損失がなく、非常に安定な火炎であることが知られている⁽²⁾⁽⁶⁾⁽⁸⁾。ここでは円形断面の火炎中心(燃焼ガス中心)に熱電対を挿入して、燃焼ガス温度の測定を行った。図 6 はメタン火炎の、また図 7 はプロパン火炎の結果である。3.2 節の火炎直径を測定したときと同様に、添加する水素濃度をパラメータとし、燃料濃度を減少していったときの燃焼ガス温度 T [°C] の変化を示した。なお、参考として、図 6、7 には添加水素濃度が 3% の場合について、平衡計算で求めた断熱火炎温度の結果が破線で示されている。

メタン火炎では(図 6)、添加する水素濃度が一定の場合、メタン濃度の減少とともに燃焼ガス温度はほぼ直線的に低下している。水素濃度が 3% の場合、平衡計算値の減少の仕方は、メタン濃度に対して急で、そ

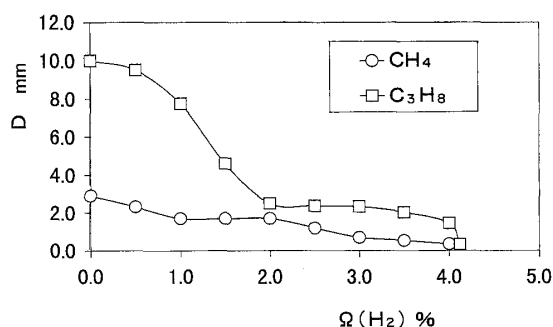


Fig. 5 Flame diameter at extinction

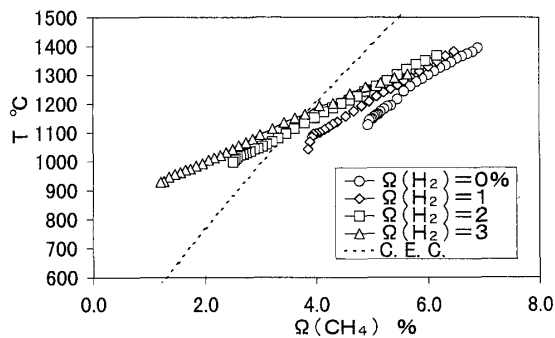


Fig. 6 Variations of burned gas temperature with the methane concentration, broken line; chemical equilibrium calculation

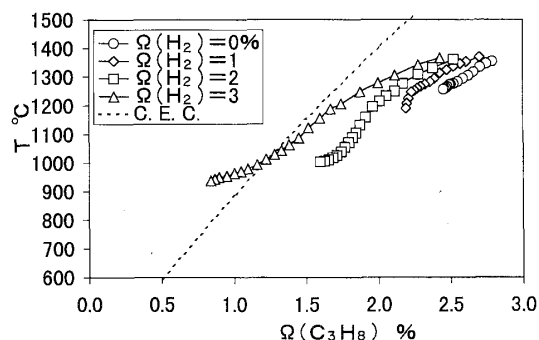


Fig. 7 Variations of burned gas temperature with the propane concentration, broken line; chemical equilibrium calculation

の結果、測定値が計算値を超えることになるが、レイス数が1より小さい場合、流管を通して水素が拡散して化学エンタルピーが供給されるために燃焼ガス温度が計算値以上となったものと考えられる。なお、消炎限界時の燃焼ガス温度は、 $\Omega(\text{H}_2)=0\%$ のとき 1127°C 、 $\Omega(\text{H}_2)=3\%$ のとき 929°C であり、添加水素濃度の増大とともに低下した。

一方、プロパン火炎では(図7)、メタン火炎と同様に燃焼ガス温度は燃料濃度の減少とともに減少するが、水素濃度が1%の場合、急激に低下して消炎に至り、一方、2%および3%添加の場合は、一度急激に低下した後に緩やかとなり、消炎に至っている。これに対して水素濃度が3%の場合、平衡計算で求めた断熱火炎温度はプロパン濃度とともに単調に減少し、途中から測定温度が、計算値以上となっている。したがって、燃焼ガス温度の測定値がプロパン濃度の減少とともに、一度急激に減少した後緩やかになるという複雑な変化をするのは、熱化学的のものではなく、水素の選択拡散効果という輸送過程の影響によるものと思われる。なお、消炎限界での燃焼ガス温度は $\Omega(\text{H}_2)=0\%$ のとき 1257°C 、 $\Omega(\text{H}_2)=3\%$ のとき 938°C であった。

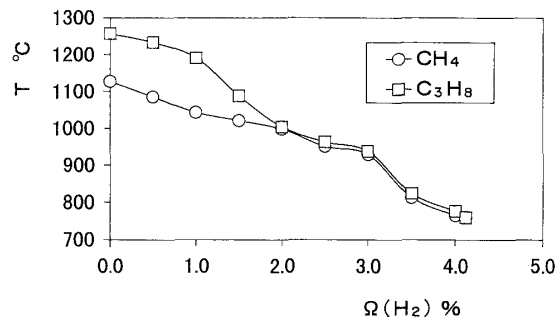


Fig. 8 Burned gas temperature at extinction

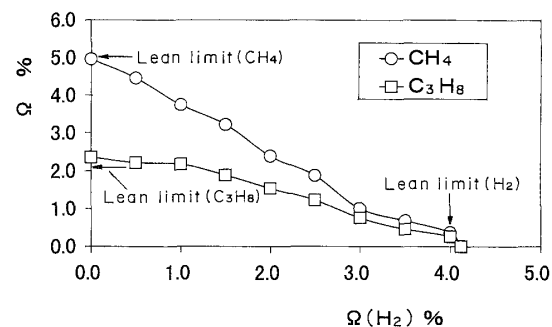


Fig. 9 Extinction limit

図8は、図6、7の結果を含めて、消炎限界時における燃焼ガス温度を水素濃度に対してプロットしたものである。メタン火炎では、添加する水素濃度の増加(メタン濃度の減少)とともに、燃焼ガス温度はほぼ単調に低下し、上記の $\Omega(\text{H}_2)=0\%$ のときの 1127°C から $\Omega(\text{H}_2)=4.12\%$ [したがって $\Omega(\text{CH}_4)=0\%$]のときの 759°C へと変化した。一方、プロパン火炎では燃焼ガス温度は $\Omega(\text{H}_2)=1.5\%$ 付近でやや急激に低下し、その後は 10°C 程度高いものの、メタン火炎と同様に燃焼ガス温度は低下し、水素のみの燃焼ガス温度になる。

以上、図5および図8をまとめてみると、 $\Omega(\text{H}_2) < 2\%$ では、メタンとプロパンの差は大きく、消炎時の火炎直径はメタンで小さく、プロパンで大きい。 $\Omega(\text{H}_2) > 2\%$ では、メタンとプロパンの差はほとんどなくなり、消炎限界での火炎直径も燃焼ガス温度とほぼ同じような値をとることがわかる。

3・4 消炎限界における燃料濃度 図9は、図5および図8の消炎限界時の燃料濃度と添加する水素濃度との関係を示したものである。メタンの場合、 $\Omega(\text{H}_2)=0\%$ のときの $\Omega(\text{CH}_4)=4.96\%$ から $\Omega(\text{H}_2)=4.12\%$ のときの $\Omega(\text{CH}_4)=0\%$ へ、水素濃度の増加につれ消炎限界でのメタン濃度はほぼ直線的に減少する。一方、プロパンの場合、水素濃度が0~1.5%では、あまり減少せず、その後、プロパン濃度の減少とともにほぼ直線的に減少して水素のみの希薄可燃限界値

$\Omega(\text{H}_2)=4.12\%$ になる。

4. 考 察

水素添加による燃焼の改善を評価するには、有効当量比が使われる。ここで有効当量比 Φ とは、混合気中の水素は完全燃焼するとして全混合気から水素とこの水素と完全に反応する空気量をあらかじめ除き、残りの空気と燃料の混合気に対して求めた当量比のことで、次式で与えられる。

$$\Phi = \Omega(\text{Fuel}) / [1 - \Omega(\text{H}_2) - 2.38\Omega(\text{H}_2)] / (F/A)_{st}$$

$$(F/A)_{st} = 0.105(\text{CH}_4), 0.042(\text{C}_3\text{H}_8)$$

図10は、図9の結果を有効当量比 $\Phi^{(6)}$ に換算して示したものである。添加した水素濃度の全範囲にわたって、プロパンの有効当量比は、メタンの有効当量比より大きくなる。メタンの有効当量比は、水素濃度に対してほぼ直線的に減少するのに対し、プロパンの有効当量比は $\Omega(\text{H}_2)=1\%$ 程度まではほとんど変わらず、その後はメタンの有効当量比と同様に減少した。

以上から、ルイス数の1より大きいプロパンの希薄混合気でも、水素添加により火炎形成濃度範囲が増し、また、消炎時の火炎直径や燃焼ガス温度も減少して、より希薄な燃焼が可能になることがわかった。

しかし、その程度は、ルイス数が1よりわずかに小さいメタンの希薄混合気ほどではなく、例えば3%水素添加の場合、メタンでは有効当量比で0.1まで燃焼可能なのに対し、プロパンでは、0.2までしか燃焼させられない。したがって、ルイス数がプロパンよりさらに1より大きくなるガソリンや灯油などの高級炭化水素系燃料では、水素添加による燃焼改善の程度を実験的に調べる必要があると思われる。

5. ま と め

火炎伸長と火炎面曲率の影響を同時に受ける回転管状火炎において、メタンおよびプロパンに少量の水素を添加することによって希薄燃焼が改善される様子を調べる実験を行い、次のような結論をえた。

(1) 消炎限界時の火炎直径および燃焼ガス温度は、添加水素濃度を増大するにつれ、メタン火炎ではほぼ単調に低下し、一方プロパン火炎では添加水素濃度1.5%付近で、メタン火炎より急激に、その後はメタン火炎と同様に低下し、どちらの火炎も最終的にはこれらの値は水素の希薄燃焼限界の値になった。プロパン火炎では添加水素濃度が2%程度以上になると、火炎直径、燃焼ガス温度ともにメタン火炎の値に接近し、メタン火炎とほぼ同等の火炎伸長のもとで消炎す

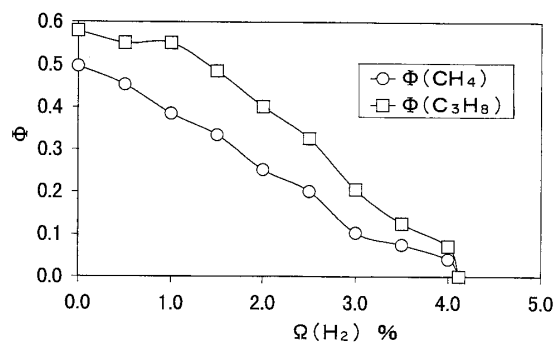


Fig. 10 Effective fuel/air equivalence ratio at extinction

る。

(2) 消炎限界時の燃料濃度(あるいは有効当量比 Φ)は、添加水素濃度0%のときの、メタンの希薄可燃限界4.96% ($\Phi=0.498$), プロパンの希薄可燃限界2.36% ($\Phi=0.577$) から水素濃度の増大につれ、メタン火炎では直線的に減少し、プロパン火炎では添加水素濃度2%程度まではメタン火炎よりやや緩やかに減少して、その後はメタン火炎と同様に減少し、どちらの火炎も最終的には燃料濃度0%, 水素希薄可燃限界4.12% ($\Phi=0.103$) になった。

(3) したがって、ルイス数の1より大きいプロパンの希薄混合気でも、水素添加により火炎形成濃度範囲が増し、また、消炎時の火炎直径や燃焼ガス温度も減少して、より希薄な燃焼が可能になることがわかった。

(4) ただし、その程度はルイス数の1よりわずかに小さいメタンの希薄混合気ほどではなく、したがって、ルイス数がプロパンよりさらに大きくなるガソリンや灯油などの高級炭化水素系燃料では、プロパンほど燃焼改善が行われぬおそれがあり、実験的に調べる必要がある。

文 献

- (1) Ishizuka, S. and Law, C.K., *Proc. 19th Symp. (Int.) Combust.*, (1982), 327-335.
- (2) Ishizuka, S., *Proc. 20th Symp. (Int.) Combust.*, (1984), 287-294.
- (3) Yamaoka, I. and Tsuji, H., *Proc. 22th Symp. (Int.) Combust.*, (1988), 1565-1572.
- (4) 酒井幸夫・ほか2名, 機論, **60**-571, B(1994), 1041-1047.
- (5) 竹野忠夫・ほか2名, 航空宇宙学会誌, **36**-411(1988), 173-180.
- (6) 山本和弘・ほか2名, 機論, **64**-622, B(1998), 1919-1924.
- (7) Ishizuka, S., *Combust. Flame*, **75**-3 & 4(1989), 367-379.
- (8) 酒井幸夫・石塚悟, 機論, **56**-524, B(1990), 1178-1185.