

熱交換器のある場合の触媒フラットバーナの基礎特性*

坪内 修^{*1}, 中村佳朗^{*2}, Mohamed RAMEEZ^{*3}

Characteristics of Catalytic Plate Burner and Heat Exchanger

Osamu TSUBOUCHI, Yoshiaki NAKAMURA^{*4} and Mohamed RAMEEZ^{*4} Nagoya University, Dept. of Aerospace Engineering,
Chikusa-ku, Nagoya, Aichi, 464-8603 Japan

The characteristics of a plate burner and a heat exchanger are experimentally investigated in this paper. The present burner consists of a stack of ceramic filaments catalyzed with Pd, which is featured by low concentrations of NO_x and CO. Furthermore, the burner surface emits light and thermal radiation in a high activity region of catalyst. Therefore, the thermal efficiency, that is, heat input to the heat exchanger with regard to combustion load, is expected to increase. In this study the combustion characteristics of this burner and the efficiency of the heat exchanger have been examined to see the efficiency of the system. Two major results were obtained; one is that the thermal efficiency has been improved by about 5%, and the other is that unburned combustion gas after the heat exchanger was reduced because combustion starts on the burner surface. Thus it is confirmed that the catalytic burner is useful for energy saving and downsizing of a combustor.

Key Words: Burner, Catalyzer, Heat Exchanger, Premixed Combustion, Catalytic Combustion, Thermal Radiation

1 はじめに

大気汚染の防止、省エネルギー、二酸化炭素低減、また装置の安定運転のために、ボイラや外燃機関、燃料電池用改質器など被加熱物(熱交換器)に熱を供給するための燃焼器の性能として、有害な燃焼排気成分の低減、高い熱効率、また広い安定燃焼範囲が要求される。さらにサイズとして燃焼器の小型化が要求される。しかし、小型化すると、燃焼ガスの滞留時間減少や、熱交換器による反応凍結による燃焼完結性悪化、伝熱面積減少による熱効率低下および未燃混合気流路断面積減少による火炎吹き飛びが予想され、要求性能を満たす事が困難となる。このため設計時に、バーナと熱交換器を含めた燃焼器全体の燃焼完結性と、熱効率の向上を考慮することが重要となる。バーナ単体については燃焼完結性の向上と、輻射を利用したり、熱交換器温度を均一化することなどにより、従来使用されている都市ガスを燃料とした不輝炎ガンタイプバーナなどに対して、熱効率を向上させることが課題となる。

燃焼完結性を向上し、有害燃焼排気成分を低減する一つ的手段として触媒燃焼がある¹⁾²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾。また、触媒燃焼は触媒担体表面で燃焼するため、担体の輻射による熱効率向上が期待される。反面、触媒担体に対する予熱機構や、触媒を耐熱温度以下に維持する温度管理が必要となる。触媒担体は熱容量が大きく温度管理は困難で、担体の熱衝撃による破損も生じやすい。

* 原稿受付 1999年3月11日。

^{*1} 正員, 名古屋大学大学院 (〒464-8603 名古屋市千種区不老町)。^{*2} 正員, 名古屋大学工学研究科。^{*3} 名古屋大学工学部。

E-mail: nakamura@nuae.nagoya-u.ac.jp

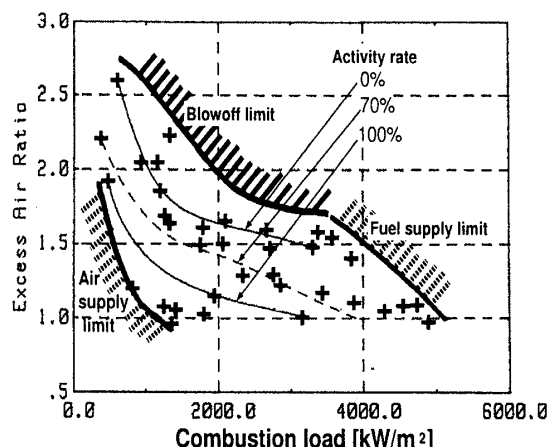
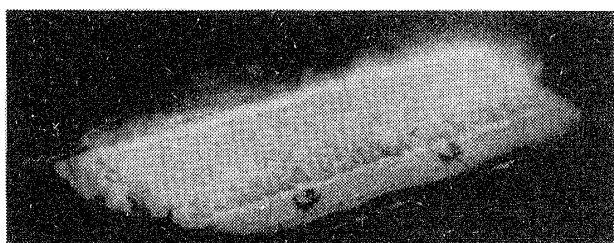


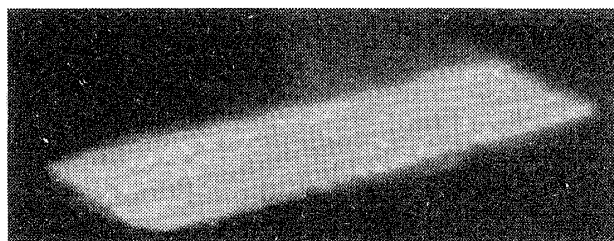
Fig.1 Activity rate of catalyst in flame stability range

一方、熱効率を向上させるには、伝熱面積全体を有効利用するために、均一な温度分布を形成させるような燃焼器と熱交換器のマッチングが重要となる。熱交換器の形状に沿ってセラミックプレート近傍で面燃焼¹¹⁾¹²⁾¹³⁾できれば温度分布は均一化できる。さらにセラミックの輻射熱伝達が利用できれば、熱効率の向上が期待できる。しかし、保炎が困難であったり、負荷によって大幅に火炎長さが増えるなどの問題がある。流れに垂直方向において温度が均一化できても、火炎長さが負荷によらず一定でないと、熱交換器表面位置と火炎面の距離が大きくなった場合、熱効率が低下する。

著者らは、触媒燃焼とセラミック面燃焼を同時に実現



(a) Non-catalytic burner (Combustion load $2585(kw/m^2)$ and excess air ratio of 1.06)



(b) Catalytic burner (Combustion load $2570(kw/m^2)$ and excess air ratio of 1.07)

Fig.2 Combustion state comparison between no catalytic and catalytic burner

するために、触媒燃焼における温度管理の簡単化と、セラミック面燃焼における保炎性の向上を目指し、触媒フラットバーナを開発した。線状のセラミックを積層したプレート表面に触媒を担持し、複雑に交錯したプレート部を、大気温の予混合気が通過する際に発生する強い乱れを利用して保炎効果を高め、表面で気相火炎を形成させる。さらに気相火炎の熱により表面上に担持した触媒を活性化させる。このため前述したような予熱機構は必要とされず、大気温の予混合気によるバーナ体の冷却効果で触媒担体や触媒の耐久性が向上し、またターンドウンの拡大も期待できる。

バーナ単体燃焼実験¹⁴⁾¹⁵⁾の結果、着火時には気相燃焼しその熱で触媒が活性化し、触媒燃焼することを確認した。図1に触媒フラットバーナの安定燃焼範囲と、表面燃焼率(バーナ全表面積に対して表面燃焼し、放射している部分の割合(%))を示す。燃焼条件(燃焼負荷、空気比)によっては、バーナにおいて触媒燃焼と気相燃焼が同時に生じた。また表面燃焼率が高い触媒燃焼が支配的な燃焼条件下では、燃焼完結性が向上した。さらにバーナ体で強い放射が確認され、熱効率の向上も期待できることが分かった。図2に触媒非担持、および担持の場合のバーナの燃焼状態の比較を示す。

本研究では、前述したような従来に無い特徴をもつ触媒フラットバーナの、熱交換器に対する基礎特性を明ら

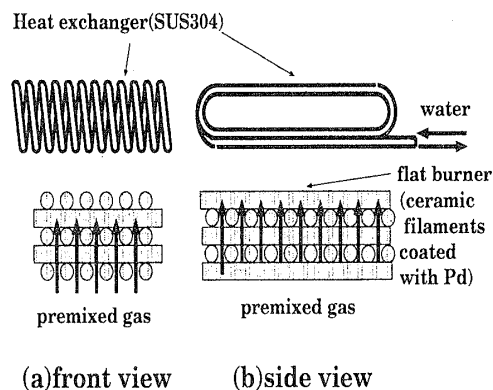


Fig.3 Schematic of burner and heat exchanger

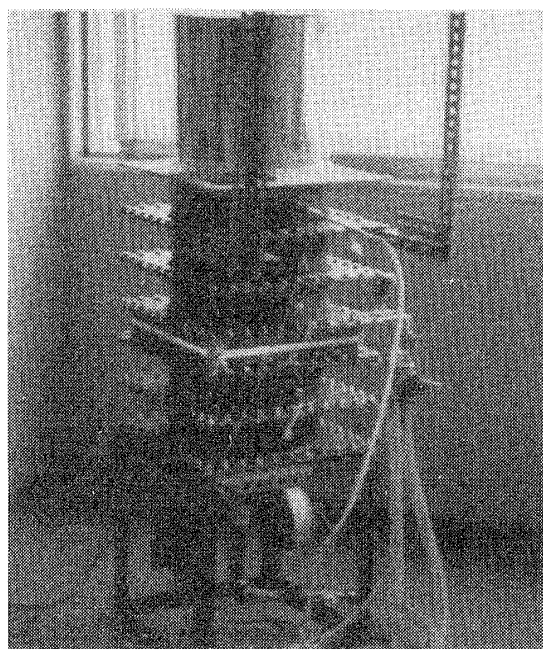


Fig.4 Photograph of experimental equipment

かにすることを目的としている。滞留時間短縮および熱交換器での反応凍結による燃焼完結性の低下に対する効果や、熱交換器への熱効率向上効果を実験により確認する。さらに燃焼完結性と熱効率を向上するために、触媒フラットバーナに適した燃焼条件や、熱交換器の総括熱通過率を調べる。これらは、将来、触媒フラットバーナを用いた実機熱交換器システムを設計する時に、技術的に有用な資料となりうると考えられる。

実験は触媒フラットバーナの下流に熱交換器を設けた実験装置を用いて行った。同一のセラミックプレートを用いて触媒担持、非担持それぞれの場合について熱効率、燃焼完結性を比較検討し、触媒の効果を調べた。

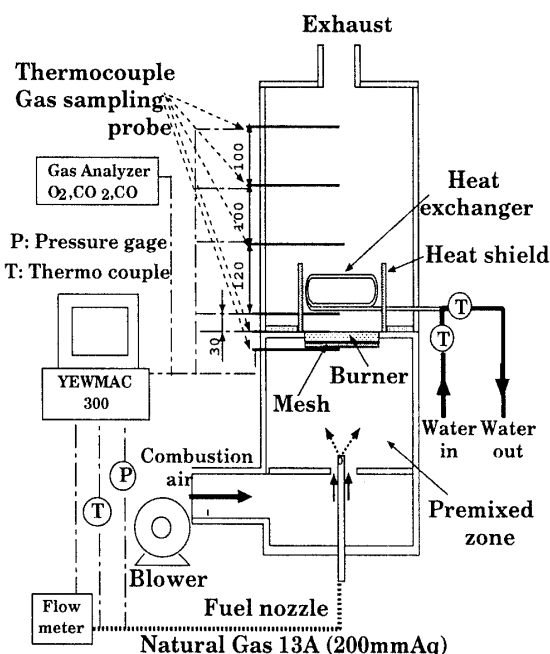


Fig.5 Schematic of experimental equipment

2 バーナおよび熱交換器形状

図3にバーナ形状を示す。図のように直径約1mmの線状セラミックを積層した縦×横×板厚が140×45×15mmのプレートを用いた。表面に Al_2O_3 をウオッシュコートしPdを担持している。熱交換器は外径 $\phi 6$ のステンレスパイプ2mを図のようにループ状に曲げて製作した。

3 実験装置および方法

実験に用いた装置の外観と概略を図4、図5に示す。ブローア(最大静圧180mmAq)にて大気温の空気を予混合空間に送風する。燃料は都市ガス13A(圧力約200mmAq)を用い、燃料ノズルより予混合室へ供給されるが、エジェクタ部で空気により吸引される構造となっている。混合空間の体積は6l以上とり、十分混合できるよう配慮した。予混合気は逆火防止のためのメッシュ層を通過して、バーナに供給され表面で燃焼する。バーナ下流は長さ400mmの円筒で覆われ、燃焼ガスはダクトより排出される。水を作動流体とする熱交換器はバーナ表面から30mmの位置に設置し、バーナ表面から熱交換器上部までは断熱壁で覆い熱損失を小さくするよう考慮した。

熱交換器入口部温度、熱交換器後方での温度およびガス成分濃度は、円筒に設けた4点の計測ポートにR熱電対、水冷プローブを挿入して計測した。バーナ表面温度は表面2点に直径0.5mmの熱電対を取り付けて計測し、逆火検知のためバーナ裏側にもK熱電対により温度を監視した。酸素濃度は磁気式(島津 POT-101)、一酸化炭

素、二酸化炭素はNDIR(島津 FGA-106C)で燃焼ガス成分を分析した。熱交換器流入口、流出口での水温度は $\phi 1.6$ のシースK熱電対で計測した。燃料流量、温度、ガス成分などの計測データはデータロガーで連続的に取り込み、計測コンピュータ(横河電機 YEWMAC300)で燃焼負荷、空気比、交換熱量などを計算した。表示されたデータの時間変化を見て、十分に燃焼が定常状態に達し、熱的に平衡になった事を確認した後、サンプリングを開始した。

実験の燃焼条件は、単体燃焼実験で得られた図1より決定した。燃焼負荷は低圧空気と燃料で安定燃焼が可能である2000、3000、4000[kW/m²]とした。空気比はバーナの吹き消え限界や、表面燃焼率の変化による性能への影響を調べるために、各燃焼負荷について1、1.5、2とした。また熱交換器への供給水の流量は燃焼条件に依らず一定とした。なお熱交換器内で水が相変化しないように予備実験を行い、燃焼条件範囲内で沸騰しなく、また燃焼ガス中の水分が熱交換器表面で凝縮しない流量とした。実験は触媒効果を確認するため、同一バーナにて触媒担持と非担持の場合について行い、燃焼ガス成分、温度分布、熱効率を比較検討した。

4 実験結果

4.1 燃焼完結性 図6、図7にバーナからの距離 $L=350mm$ で計測した燃焼ガス分析結果を示す。図6は空気比に対する燃焼ガス CO_2 濃度を示す。 CO_{2max} の曲線は空気比に対する都市ガス13Aの理論上の最大値を表している。図より得られたデータは触媒担持、非担持にかかわらず CO_2 の排出量は最大値に近く(最大値の90%以上)、燃焼がほぼ完結していることがわかる。この結果から本実験装置を用いて燃焼完結性の確認実験が可能であると判断した。

図7は負荷に対するCO濃度である。空気比2の近傍において、低負荷時では触媒の有無にかかわらずCO濃度が高く触媒による有意差は見られない。この場合、負荷に対して熱損失が大きく、触媒担持の場合でも火炎はリフトし、触媒が活性化しにくいとめと考えられる。しかし、負荷が増大すると、触媒担持の場合CO濃度が低減する。これは剥離渦によりバーナ端部近傍の流速低下によって僅かに触媒活性するためと思われる。しかし、それ以外の条件では触媒担持の場合に排出レベルが減少し、触媒による燃焼完結性向上の効果がみられる。

図8に触媒担持、非担持のバーナ表面温度を示す。触媒担持の場合、負荷による影響は小さいが、空気比が低くなる程温度は上昇し、触媒による表面反応の割合が増大する。触媒非担持の場合は全ての燃焼条件で100℃以下であり、触媒によるバーナ表面反応の効果が大きいことが分かる。ただし空気比が2あたりでは、触媒担

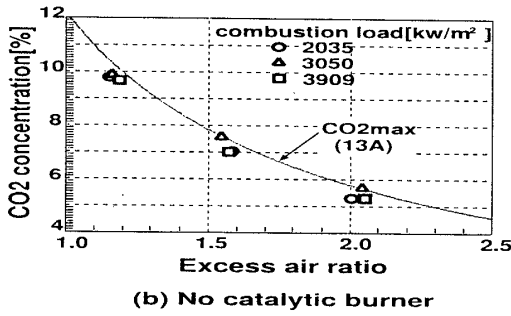
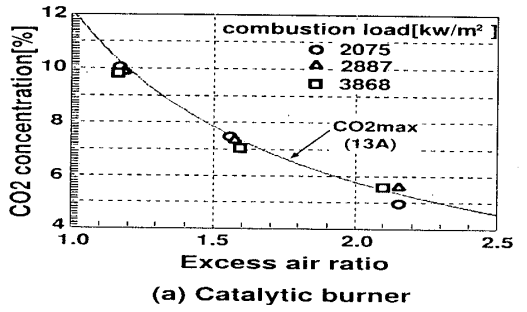


Fig.6 CO₂ concentration of exhaust gas

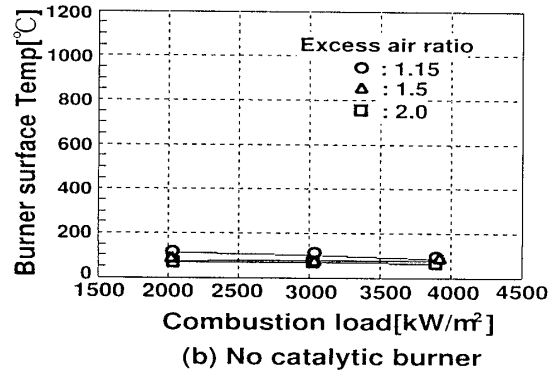
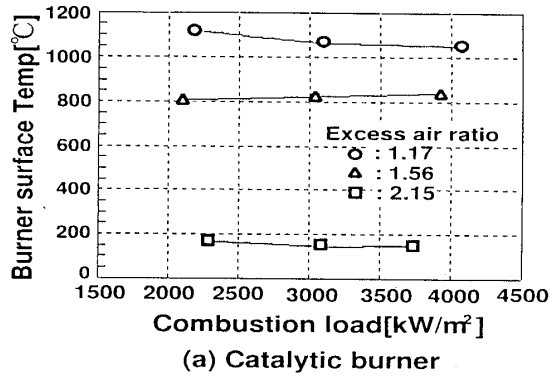


Fig.8 Burner surface temperature comparison between catalytic and no catalytic burner

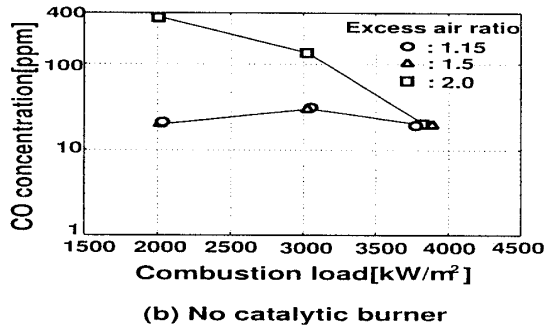
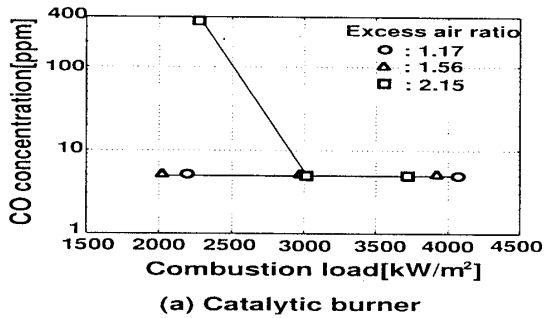


Fig.7 CO concentration of exhaust gas

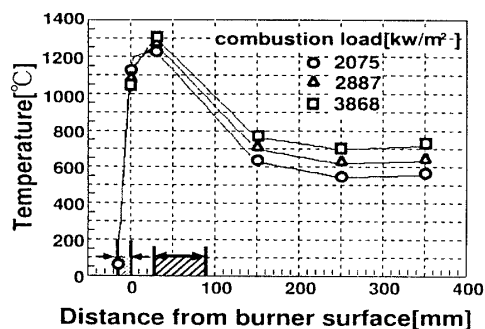
持しても、非担持の場合と同程度となる。図7と図8より、負荷によらず空気比2近傍では触媒による効果は低減することが予想される。

実験装置内部での燃焼状態を調べるために、触媒担持、非担持バーナの表面から実験装置出口部 ($L = 350\text{mm}$)

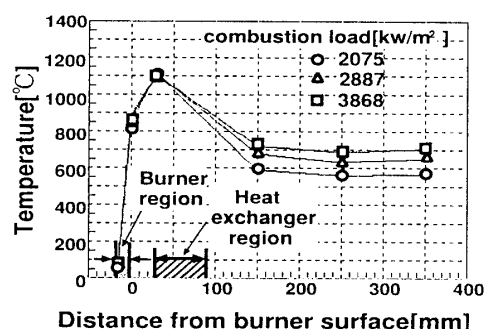
までの温度分布を図9、図10に示す。触媒担持の場合(図9)、空気比約1ではバーナ表面で、 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 程度まで昇温する。熱交換器により吸熱され、その結果、熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) の温度が低下し、実験装置出口部 ($L \geq 250\text{mm}$) までは温度が一定あるいは多少低下する。空気比約1.5ではバーナ表面温度が $850\text{ }^\circ\text{C}$ 程度になり、やや触媒表面反応は低下するが、その他は空気比約1と同様の傾向を示す。空気比が約2では熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) で温度上昇している。このことから、火炎はバーナ表面でなく熱交換器によって保持されているものと思われる。

一方、触媒非担持の場合(図10)、空気比1あるいは1.5程度ではバーナ後方から温度上昇し、熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) で温度低下した後、実験装置出口部 ($L \geq 250\text{mm}$) までの間に温度が再び上昇している。この傾向は負荷の増大により顕著になっている。空気比約2では触媒担持の場合と同様の傾向を示した。

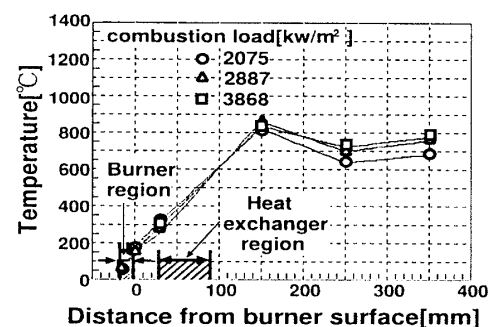
熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) から実験装置出口部 ($L = 350\text{mm}$) までのCO濃度の分布の一例として空気比約1.5の場合を図11に示す。CO濃度は触媒担持の場合には熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) から実験装置出口



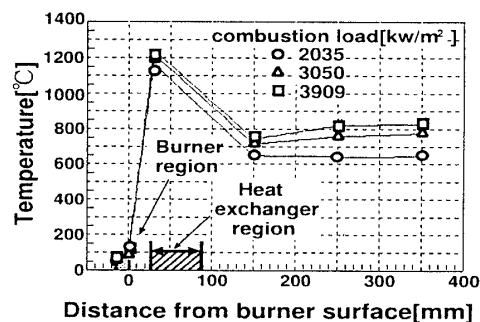
(a) Excess air ratio 1.17



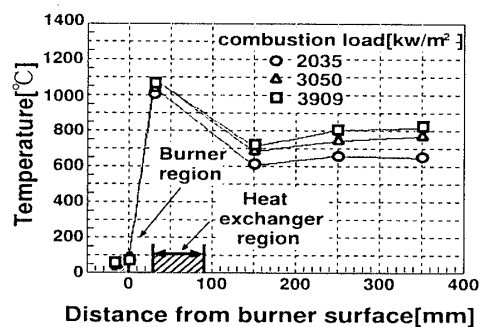
(b) Excess air ratio 1.56



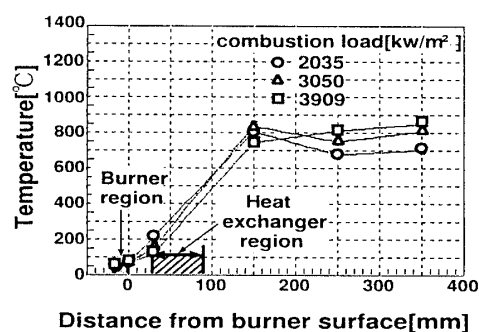
(c) Excess air ratio 2.15



(a) Excess air ratio 1.15



(b) Excess air ratio 1.50



(c) Excess air ratio 2.0

Fig.9 Distributions of temperature in the direction normal to catalytic burner surface

部 ($L = 350\text{mm}$) まで負荷に依らずほぼ一定であるが、触媒非担持の場合は熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) で最も濃度が高く、実験装置出口部付近で低下する。この傾向は負荷が増大すると顕著になっている。

したがって、触媒非担持の場合、熱交換器出口部 ($L = 150\text{mm}$) から試験装置出口部 ($L = 350\text{mm}$) までの間において未燃ガスが残存し再び反応するため、図 10 の温度分布のように温度が上昇したと考えられる。また負荷の増大に伴って、未燃ガス量が増大したため温度がさらに上昇したと思われる。これらは滞留時間の短縮と、

Fig.10 Distributions of temperature in the direction normal to no catalytic burner surface

熱交換器による反応凍結の影響と予想される。

これに対し、触媒担持の場合は、空気比 1.5 程度以下では図 8 のようにバーナ表面温度が高く、バーナ表面において反応がかなり進行しているため、滞留時間や、熱交換器の影響が小さかったと考えられる。この結果から触媒担持することで燃焼空間を縮小しても、燃焼完結性の低下を抑制できることが分かる。

触媒担持バーナにおけるバーナ部での反応の度合を推測するために、燃料メタンの場合の触媒担持バーナの 1 次元数値計算を行った。基礎式として、辻川¹⁶⁾ 17)

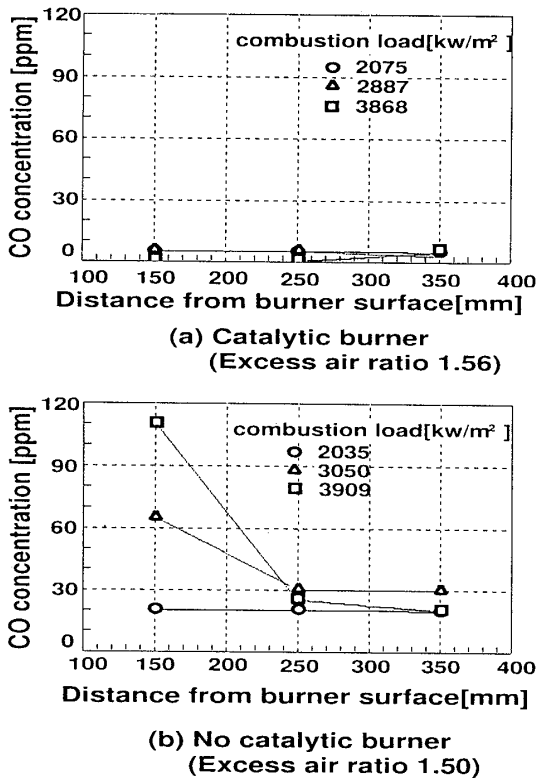


Fig.11 Distribution of CO concentration along the longitudinal line from the burner surface

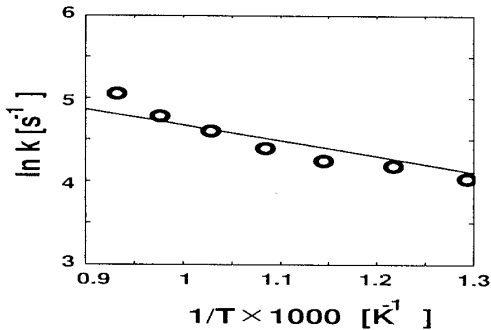


Fig.12 Arrhenius plot for the Pd catalyst

のように触媒相と気相それぞれについてエネルギー式と化学種保存式を用いた。Pd触媒によるメタンの反応速度 γ [mol/m³s]は、反応速度定数 k [s⁻¹]を用いて、メタンのモル濃度 $[CH_4]$ [mol/m³]について、式(1)のように1次の式として仮定した。反応速度定数は、触媒の予熱温度を変化させて実験から求めた。図12に反応速度定数と予熱温度 T [K]の関係を表すアレニウスプロットを、また、式(2)に図から求めた反応速度定数を示す(気体定数 R [J/molK])。図13に燃料メタンの場合の負荷2075[kW/m²]における計算結果を示す。図は空気比に対して、バーナ表面の温度と、バーナ表面での

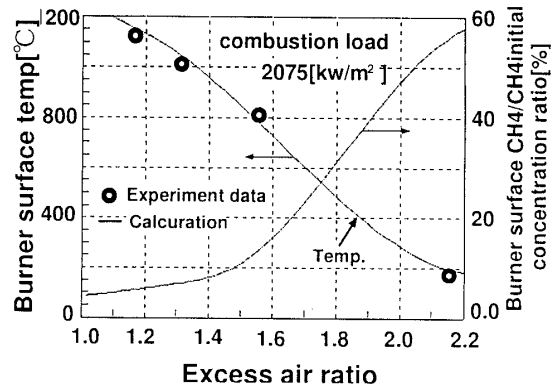


Fig.13 Calculation results of the burner surface temperature and CH_4 concentration

メタンモル濃度のバーナ入口モル濃度に対する割合を示している。

$$\gamma = -k[CH_4] \quad (1)$$

$$k = 747.6 \exp\left(-\frac{16129}{RT}\right) \quad (2)$$

計算結果を見ると、バーナ表面温度が実験値と同程度の場合、バーナ表面でのメタンの濃度はバーナ入口濃度に対して空気比1.56では15%、空気比1.17では5%程度まで減少している。つまり、ほとんど燃焼の完結に近い状態にある。都市ガス13A($CH_4 =$ 約88%)においても、バーナ部での反応は同様の傾向を示すと思われる。

これに対し、触媒非担持の場合、バーナ部では反応がほとんど無いため、触媒担持の場合に比較して反応開始位置が遅れる。このためバーナ表面と熱交換器入口部($L = 30mm$)の間でも未燃ガスが存在し、さらに熱交換器が存在する低温領域では反応が凍結される。その結果、前述のように熱交換器出口部($L = 150mm$)においてCOが検出され、温度上昇したと考えられる。

本実験は触媒フラットバーナの熱交換器に対する基礎特性を調べるために、簡易的な熱交換器を用いている。したがって後述するように、熱交換器の吸熱量は負荷の25%程度である。このため熱交換器出口部($L \geq 150mm$)の温度は比較的高く600°C以上であり、未燃ガスは再び反応した。しかし、通常のシステム並の効率を達成できる十分な伝熱面積の熱交換器を用いれば、熱交換器出口部($L \geq 150mm$)の温度は低下し、未燃ガスの燃焼完結に必要な滞留時間が増える。このため未燃ガスは実験装置出口部においても残留することが予想される。したがって未燃ガスの排出を防ぐために必要な燃焼容積は増大することになる。しかし、この場合でも触媒担持すると、バーナ表面でほぼ燃焼が完結するため、熱交換器による反応凍結の影響は少なく、燃焼完結に必要な容積の

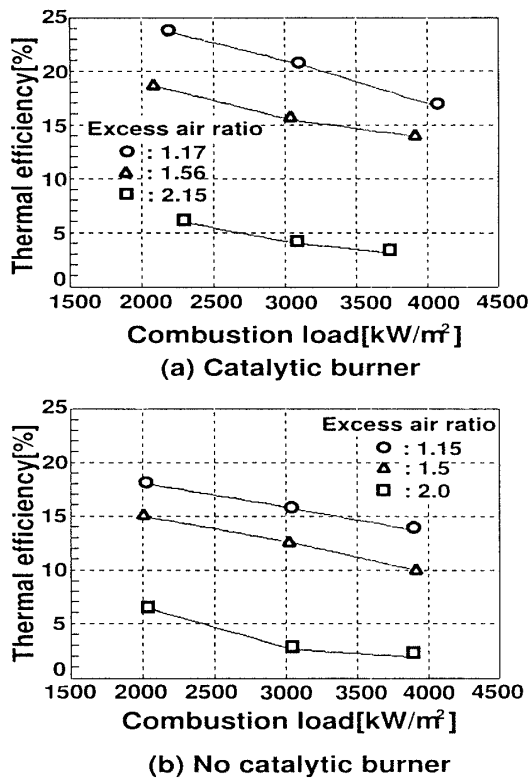


Fig.14 Thermal efficiency comparison of heat exchanger between catalytic and no catalytic burner

増大は抑制できる。よって燃焼器の小型化に有効であるといえる。

4.2 熱効率 図14に熱交換器での水による吸熱量の燃焼負荷に対する比率(熱効率)を示す。図において、触媒担持と非担持を比較すると、触媒担持の場合、非担持の熱効率に対し空気比約1では5~6%、空気比約1.5で約4%熱効率が向上した。また空気比2程度では熱効率は、ほぼ同程度であった。したがって2より低い空気比で触媒の有意差が得られ、空気比が低い程、触媒による熱効率の向上効果が得られることが分かる。図8のように、触媒非担持の場合、バーナ表面温度が低く、熱伝達はほとんどが対流によるものとなる。しかし、触媒担持の場合、空気比が小さい程バーナ表面温度が高い。したがって空気比が低い程、バーナ体の輻射による輻射熱伝達が促進される。このため、熱効率が向上したと考えられる。

また負荷の増大によって効率が低下するのは、図9、図10に示すように、試験装置出口温度(L=350mm)が上昇し、損失が増大するためである。これは対流熱伝達は Re 数の指数関数であり、本熱交換器の場合、指数は

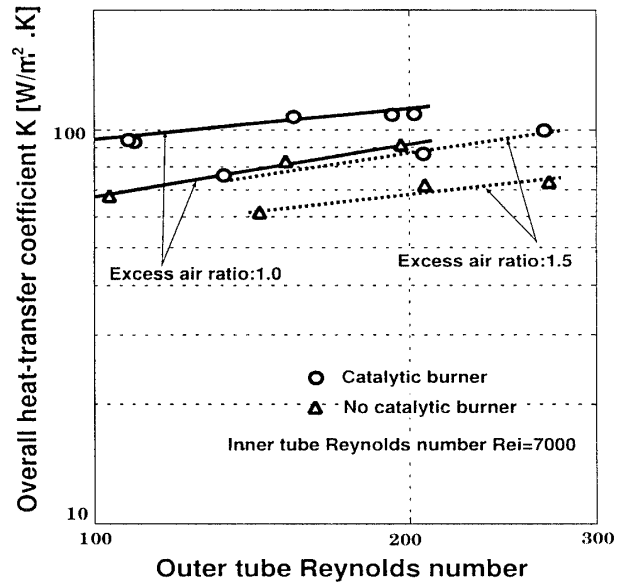


Fig.15 Overall heat transfer coefficient comparison between catalytic and no catalytic burner

0.4程度である¹⁸⁾。したがって燃焼負荷(流速)増大に対して熱伝達が正比例よりは小さくなるためである。さらに触媒担持の場合、図8(a)に示すようにバーナ表面の温度は負荷が増大しても上昇していない。このことから、輻射熱も負荷の増大に対し相対的に低下するためと考えられる。

熱交換器の設計時に参考にするため、図15のように、総括熱通過率 K を管外燃焼ガスのレイノルズ数で整理した。対数平均温度差は、熱交換器流入口、流出口での水温と熱交換器入口、および出口での温度で計算した。触媒担持、非担持にかかわらず、空気比約1では空気比約1.5に対し約2割、また各空気比で触媒担持の場合は非担持の約2割総括熱通過率が向上する。したがって触媒担持の場合、熱交換器の目標交換熱量を達成するのに必要な伝熱面積を低減できることになる。熱交換器の目標交換熱量に対して、今回得られた総括熱通過率を用いて熱交換器の必要伝熱面積を求めれば、触媒フラットバーナを用いた熱交換器システムにおける熱交換器の設計時の資料となりうる。と考える。

5 結論

触媒フラットバーナの下流に熱交換器を設けた実験装置で実験を行った結果、以下の結論を得た。

- 触媒によりバーナ表面で燃焼が開始するため、燃焼完結性が向上する。この結果、滞留時間が短縮したり、熱交換器によって反応が凍結されても未燃ガスの排出を抑制できることが確認された。したがって、燃焼器の小型化に有効であることが分かった。

- 触媒によって表面燃焼する燃焼条件において、輻射加熱を有効利用することで、熱交換器への熱効率が向上できることを確認した。これは熱交換器の伝熱面積の低減につながる。
- 触媒フラットバーナを用いる場合、触媒の効果を利用して、燃焼完結性や、熱効率を向上するためには、空気比を適当な値にすることが重要であることが分かった。触媒の効果は、空気比が1程度のとき最も大きく、空気比の増大とともに低下し、2付近ではほとんど効果が得られない。
- 燃焼ガスと水(相変化無し)の管式熱交換器の総括熱通過率は触媒担持による輻射の有効利用で約2割向上した。

謝辞

本実験を行うにあたり、アイシン精機(株)山口進氏、安藤正康氏に多大な御協力を頂きました。深く感謝致します。

文 献

- 1) H. Sadamori, T. Tanioka, and T. Matsushisa, Proc. Int. Workshop Catal. Combust, (1994), 158-165.
- 2) 小沢 靖, GTSJ, 16, 64(1989), 56-63.
- 3) R. A. Dalla Betta, J. C. Schlatter, D. K. Yee, D. G. Loffler, and T. Shoji, Catalysis Today, 26(1995), 329-335.
- 4) T. Furuya, K. Sasaki, Y. Hatanaka, K. Mitsuyasu, M. Yamada, T. Tsuchiya, and Y. Furuse, Proc. Int. Workshop Catal. Combust, (1994), 162-165.
- 5) 堀田, 米田, 萬代, 青山, 日本エネルギー学会誌, 76, 8(1997), 798-806.
- 6) T. Griffin, W. Weisenstein, A. Schlegel, S. Buser, P. Benz, H. Bockhorn and F. Mauss, Proc. Int. Workshop Catal. Combust, (1994), 138-139.
- 7) S. Hayashi, H. Yamada, and K. Shimodaira, Catalysis Today, 26(1995), 319-327.
- 8) 竹内, 相澤, 小谷野, 触媒燃焼に関するシンポジウム, 1994, 32-41.
- 9) J. Suzuki, M. Hosaka, Y. Kawasaki and A. Nishio, Proc. Int. Workshop Catal. Combust, (1994), 116-119.
- 10) T. Kubota, Y. Yoda, M. Sasaki, T. Saito, K. Kumazawa and K. Saito, Proc. Int. Workshop Catal. Combust, (1994), 124-127.
- 11) 片岡, 清水, 浅井, 伊藤, エネルギー・資源学会講演論文集, (1997), 53-57.
- 12) 越後, 吉澤, 機誌, 86-780, (1983), 1285.
- 13) 花村, 吉野, 吉澤, 越後, 機論, 54-504, B (1988), 2207.
- 14) 坪内, 中村, 第35回燃焼シンポジウム前刷集, (1997-11), 202.
- 15) 坪内, 中村, 機論, 65-632, B (1999), 1467.
- 16) 辻川, 第18回触媒燃焼に関するシンポジウム前刷集, (1994-10), 2.
- 17) A.E. Cerakanowicz, TRANS. ASME, J. Eng. Gas Turbines, 99-4, (1997) 159.
- 18) 日本機械学会編, 伝熱工学資料(改訂4版), (1991), 61, 日本機械学会.