

希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果*

山本和弘^{*1}, 丸山昌幸^{*2}, 小沼義昭^{*1}

Effects of Hydrogen Addition on Lean Combustion

Kazuhiro YAMAMOTO, Masayuki MARUYAMA and Yoshiaki ONUMA

Lean combustion has the advantage of low pollutant emission levels, but its combustion rate is very low and the lean mixtures are difficult to ignite and form stable flames. To improve these disadvantages, we have added hydrogen to a methane/air mixture, because the hydrogen has a very large reaction rate and high burning velocity. In this study, we have focused on a tubular flame which is formed in a stretched, rotating flow field. With this flame, effects of hydrogen addition on lean combustion have been investigated. We have measured the flame diameter, temperature distribution, burning velocity, and extinction limit. Results show that, as the concentration of added hydrogen is increased, (1) the flame diameter monotonically increases, (2) the fuel concentration at the extinction linearly decreases, and effective equivalence ratio decreases, and (3) burning velocity increases. These may be explained by the fact that the heat release rate determined in front of the preheat zone increases with the hydrogen addition. Although the details of the mechanism are unclear, the present results provide the first, basic idea on the practically important lean combustion.

Key Words: Premixed Combustion, Burning Velocity, Extinction, Swirling Flow, Lean Combustion, Hydrogen Addition, Tubular Flame

1. 緒 論

環境問題やエネルギー有効利用の観点から希薄燃焼が近年注目され、自動車のエンジンなどに応用されている。この希薄燃焼は、(1)混合比で最高温度が規定されるのでサーマルNO_xの生成量を制御できる、(2)拡散燃焼や過濃燃焼に比べ、プロンプトNO_xの生成量が低減される、(3)COや未燃炭火水素の生成量が低減され、熱効率が増加する、などの利点をもつ⁽¹⁾⁽²⁾。

しかし、希薄燃焼は燃焼速度が小さく、火炎安定性が悪いため、不完全燃焼や火炎の吹消えが起こり、また、燃焼負荷を高くすることができないなどの欠点をもつ。実際の内燃機関でも、低負荷時は燃焼期間が長いため壁面近くに残留した混合気が未燃のまま排出されたり、希薄になりすぎて燃焼が維持できなくなるなどの問題が報告されている⁽³⁾⁽⁴⁾。したがって、希薄燃焼には何らかの対策が必要となる。

管状火炎は伸長・回転流中に形成される火炎であ

り、いわゆる Rayleigh の条件⁽⁵⁾ から空気力学的に安定である。また、温度分布の対称性から火炎背後の熱損失がなく、非常に安定な火炎であることが知られている⁽⁶⁾⁻⁽¹³⁾。これまでの研究により、燃料が水素もしくはメタンの場合は、希薄可燃限界値以下でも安定な燃焼が可能であり、特に回転が強いものほど可燃範囲が広がることが明らかとなっている⁽⁷⁾⁽¹²⁾⁽¹³⁾。水素は反応性が高いため燃焼速度が大きく、また、拡散速度も大きい。したがってこの水素を用いれば希薄燃焼の欠点が改善され、安定な燃焼領域が大幅に拡大する可能性がある。

そこで本研究では、回転流を利用したこの管状火炎を対象に、混合気に水素を添加して実験を行い、火炎直径、消炎限界、温度分布を測定した。さらに、燃焼速度と熱放出速度を求め、希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果について検討を行った。

2. おもな記号

- a : 比例定数
- C : 1 m³ あたりの混合気の本数
- D_L : 発光帯中心間距離から求めた火炎直径
- F : 混合気の体積流量
- L : 可燃性混合気吹出し部のスリット長さ

* 原稿受付 1997年10月20日。

^{*1} 正員, 豊橋技術科学大学(☎441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1)。^{*2} 豊橋技術科学大学大学院。

- Q : 熱放出速度
 q_{CH_4} : メタン 1 mol あたりの反応熱
 q_{H_2} : 水素 1 mol あたりの反応熱
 r : 半径方向距離
 r^* : 半径方向温度分布における温度の立上り位置
 R : 石英管半径
 S_L : 燃焼速度
 T : 温度
 V_a : 軸方向速度
 V_r : 半径方向速度
 V_θ : 回転方向速度
 W : 可燃性混合気吹出し部のスリット幅
 z : パーナ中心からの軸方向距離
 Ω_{CH_4} : 混合気メタンの濃度
 Ω_{H_2} : 混合気水素の濃度
 ϕ_{CH_4} : メタンの有効当量比

3. 実験装置

本研究で用いたスワール形伸長火炎バーナの概略を図1に示す。混合気を一様な速度で接線方向にスリット全体から吹き出すと、バーナ内には回転してかつ軸方向に伸長する流れ場が形成される。可燃性混合気吹出し部のスリット長さ L は 80 mm、窒素の吹出し部は両端各 20 mm、石英管内径は 19 mm である。これまでの実験では、回転強さの影響を調べるため、回転強さのみを変えられることができるよう、スリット幅 W が 4.5, 3.0, 1.5 mm の三つのバーナ(それぞれ WEAK, MODERATE, STRONG バーナとする)を用いたが⁽¹²⁾、今回の実験では水素添加の影響を調べるため、回転が最も強いスリット幅 W が 1.5 mm の STRONG バーナのみを用いた。

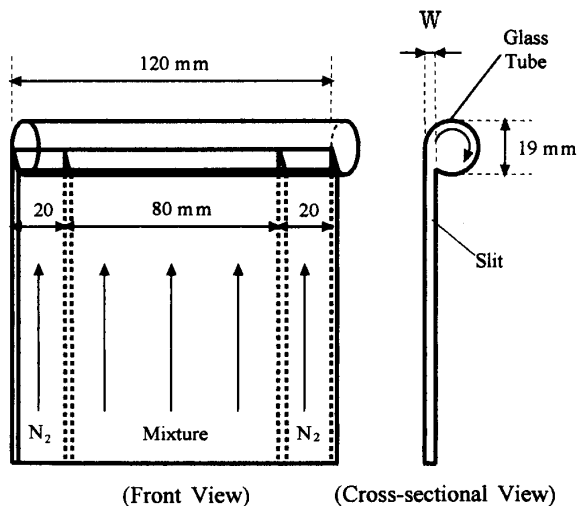


Fig. 1 Swirl-type burner

燃料にはメタンを用い、混合気水素を添加した。なお、火炎直径の測定には直接写真法を用い、火炎温度の測定には、触媒反応を防ぐため二酸化けい素で被覆した Pt/Pt-13%Rh(素線径 100 μm)の熱電対を用いた。ただし、ふく射による熱損失の補正は行っていない。

4. 実験結果

4.1 火炎外観 可燃性混合気を適当な軸方向速度 V_a (=混合気体積流量/石英管断面積)、メタン濃度 Ω_{CH_4} (=メタン流量/[メタン流量+空気流量])で吹き出すと、バーナ内には円形の断面をもち、軸方向に直径がほぼ一定の管状火炎が形成される⁽⁶⁾⁽⁸⁾。ちなみに、スリット全体から吹き出された可燃性混合気は回転しながら中心に向かい、反応帯で反応して高温の燃焼ガスとなってバーナ両端から排出される。軸方向速度を一定のまま燃料濃度を減少させると、火炎直径は徐々に減少し、やがて消炎する。 $V_a=1.0$ m/s、メタン濃度 $\Omega_{\text{CH}_4}=4.7\%$ の場合に、水素濃度 Ω_{H_2} をそれぞれ 0, 0.3, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9% 添加したときの管状火炎の側面写真を図2に示す。これによると、 Ω_{H_2} が増加するにつれて、発光帯が外側、すなわち未燃ガス側に移動し、火炎直径が大きくなることがわかる。ただし、水素濃度が 0.7% 以上では、火炎直径はあまり変化していない。

4.2 火炎直径 水素を添加すると火炎直径は大きくなることがわかったので、メタン濃度 Ω_{CH_4} を 4.7% と一定にし、水素濃度 Ω_{H_2} を変化させて火炎直径を定量的に求めた。測定には直接写真法を用い、火

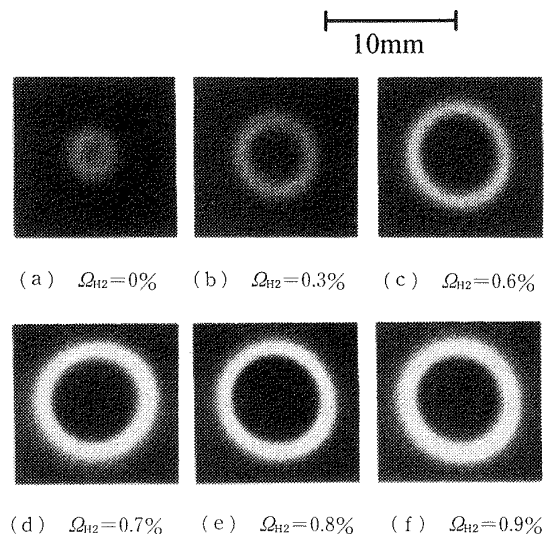


Fig. 2 Configurations of the tubular flames ($V_a=1.0$ m/s, $\Omega_{\text{CH}_4}=4.7\%$)

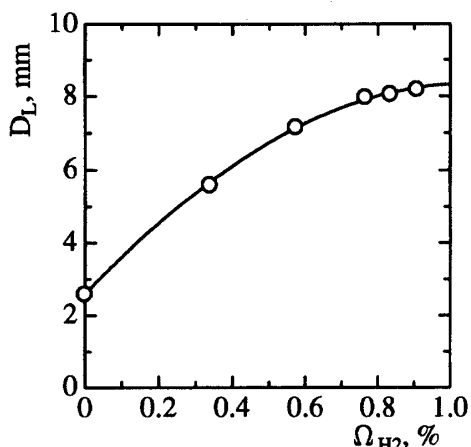


Fig. 3 Variations of flame diameter with the hydrogen concentration ($V_a=1.0$ m/s, $\Omega_{CH_4}=4.7\%$)

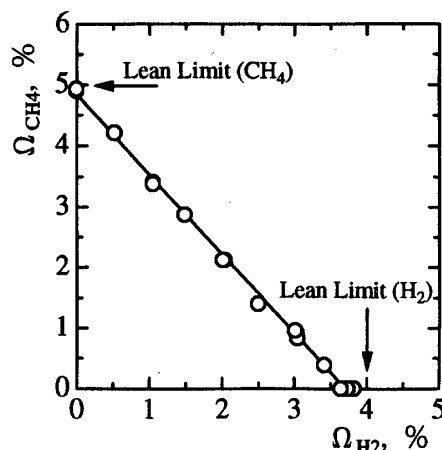


Fig. 5 Extinction limit ($V_a=1.0$ m/s)

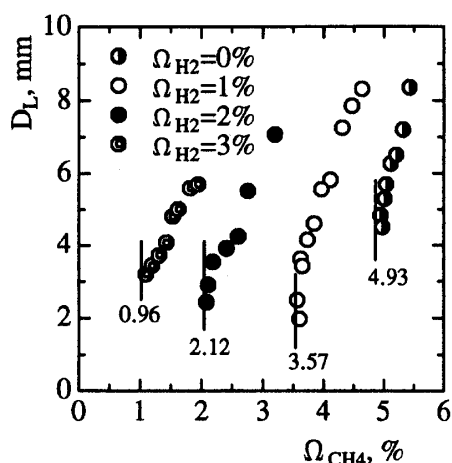


Fig. 4 Variations of flame diameter with the methane concentration ($V_a=1.0$ m/s)

炎直径は発光帯の中心間距離により求めた。軸方向速度 V_a が 1.0 m/s の場合にバーナ中心からの距離 $z=30$ mm (バーナ端から 30 mm) で得られた結果を図 3 に示す。これによると、わずかに水素を添加するだけで炎直径は急激に増加すること、水素を約 1% 添加すると炎直径は約 3 倍となること、また、水素濃度が 0.7% 以上では炎直径はほとんど変化しなくなることがわかった。

次に、添加する水素濃度 Ω_{H_2} を $0, 1, 2, 3\%$ と一定にし、メタン濃度 Ω_{CH_4} を変えて炎直径を測定した。この結果を図 4 に示す。いずれの場合も、炎直径はメタン濃度を減少させると徐々に小さくなる。図 4 中の数字は消炎時のメタン濃度を示すが、添加する水素濃度が大きいほど、消炎するときのメタン濃度が小さくなることがわかった。また、消炎時の炎直径は、メタン濃度が小さいにもかかわらず、添加する水素濃度が大きいものほど大きくなった。

4.3 消炎限界 次に、炎の安定性を調べる目的で、添加する水素濃度 Ω_{H_2} を変化させ、消炎時のメタン濃度(消炎限界)を求めた。この結果を図 5 に示す。その結果、 Ω_{H_2} が増加するにつれ、消炎時のメタン濃度がほぼ直線的に減少することがわかる。ちなみに、メタンと水素の希薄可燃限界値(体積濃度)はそれぞれ、 5.0% と 4.0% ⁽¹⁴⁾ であり、したがって、わずかではあるが希薄可燃限界以下でも燃焼が可能であることがわかった。

ただし、メタンと水素の 2 種類の燃料を混合しているため、実際に水素を混合することで燃焼が改善されているかどうかを判断するのは難しい。Yu らによれば⁽¹⁵⁾、メタンの有効当量比 ϕ_{CH_4} は以下のような式で与えられる。

$$\phi_{CH_4} = \frac{\text{メタン濃度}/(\text{空気濃度}-\text{水素と反応する空気濃度})}{(\text{メタン濃度}/\text{空気濃度})_{st}} = \frac{\Omega_{CH_4}/(100-\Omega_{CH_4}-\Omega_{H_2}-\Omega_{H_2}/0.42)}{0.105}$$

この有効当量比は、混合気中の空気濃度から水素と完全に反応する空気濃度をあらかじめ除き、この空気濃度とメタン濃度との比を求めたものである。そこでこの式をもとに、消炎時の有効当量比を求めた。その結果を図 6 に示す。これによると、添加する水素濃度と消炎時の有効当量比はほぼ直線関係となり、水素濃度を増加させると単調に減少することがわかった。この有効当量比の減少から、燃焼可能なメタン濃度が減少したことになり、したがって、メタン・空気混合気の可燃範囲は水素添加により広がることがわかった。

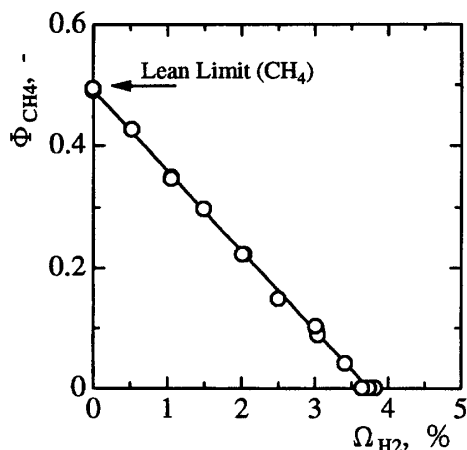


Fig. 6 Effective fuel/air equivalence ratio at extinction ($V_a=1.0$ m/s)

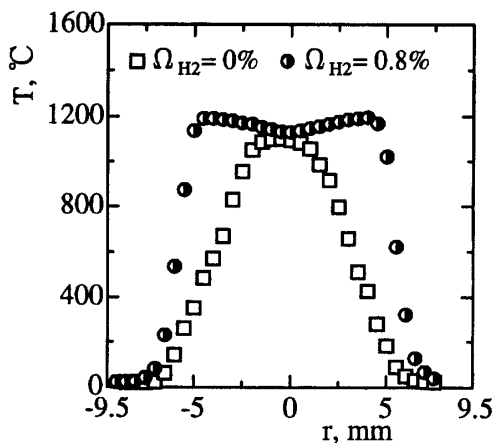


Fig. 7 Radial temperature distribution ($V_a=1.0$ m/s, $\Omega_{CH_4}=4.9\%$, $z=30$ mm; $\Omega_{H_2}=0\%$ or 0.8%)

4.4 半径方向温度分布 次に、火炎まわりの半径方向温度分布を求め、水素添加による温度分布の変化を調べた。メタン濃度 $\Omega_{CH_4}=4.9\%$ 、軸方向速度 $V_a=1.0$ m/s、バーナ中心から軸方向距離 $z=30$ mm において、水素濃度 $\Omega_{H_2}=0, 0.8\%$ で得られた結果を図7に示す。ここで r は中心軸からの半径方向距離で、 $r=-9.5$ mm と 9.5 mm がバーナ壁にあたる。これによると温度場は対称であり、中心位置は約 0 mm の位置、すなわちバーナ中心にある。まず、水素を添加しない場合であるが、温度場が高温の内部領域と低温の外部領域に分かれていることがわかる。水素を添加すると、この高温の内部領域が広がるのに伴い、発光帯付近の極大値と中心付近の極小値が現れる。ちなみに、この M 形の温度分布は、すでに測定を行ったメタン・空気混合気の実験でも、比較的高い燃料濃度で火炎直径が大きい場合に観測されている。また、水素の添加により最高温度が高くなること、発光帯付近の温

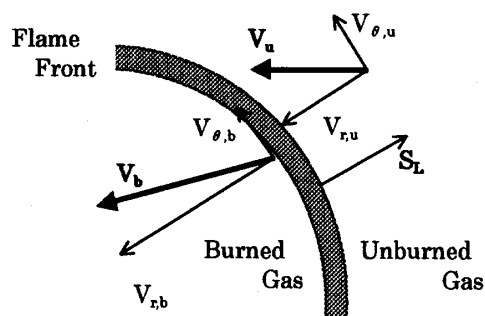


Fig. 8 Flow field near the flame front in the radial/circumferential plane

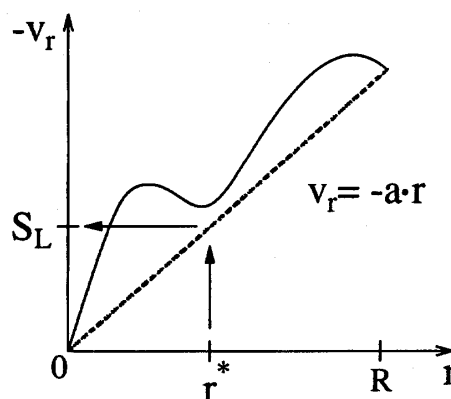


Fig. 9 Radial velocity distribution and burning velocity

度こう配が大きくなることがわかった。

4.5 燃焼速度 管状火炎の火炎直径は、燃料濃度を減少させると単調に減少することが知られている^{(5)~(7)}。これは図8に示すように、火炎面における、未燃ガスの火炎面に対する法線成分 $V_{r,u}$ と燃焼速度 S_L の釣合いから説明される。すなわち、伸長流れ場では、未燃ガスの流速はよどみ点から離れるほど速くなる。一般に混合気が希薄の場合は、燃料濃度を減少させると S_L は小さくなるので、流入する未燃ガスの流速に釣合う位置まで反応帯が移動することになり、その結果、燃料濃度を減少させると火炎直径は減少する。

そこで、火炎面付近の S_L と $V_{r,u}$ の釣合いから燃焼速度を求めた(図9)。図9中の実線は、圧縮性を考慮して行った数値計算⁽¹⁶⁾により得られた半径方向速度分布である。今回は詳細な速度分布を測定していないため、点線のように半径方向速度を半径方向距離 r に比例すると仮定し ($V_r = -a \cdot r$)⁽⁷⁾⁽¹¹⁾、燃焼速度を半径方向温度分布における温度の立上り位置 r^* で決定した⁽¹⁶⁾。ここで、正の比例定数 a は、バーナ壁 $r=R$ (R は石英管半径)の位置での半径方向速度から求められ、 $a = F / (2\pi R^2 L)$ により与えられる。 F は混合気の体積流量 (m^3/s)、 L は可燃性混合気吹出し部のスリット

長さ(m)である。ただし今回の燃焼速度は、レーザドップラー流速計などで速度分布を得ることにより求めているので、実際の値と異なることが考えられるが、図9のようにその差は小さく、したがって、水素添加による燃焼速度の変化の定性的な議論はできるものと思われる。

軸方向速度を1.0 m/s、メタンの燃料濃度 Ω_{CH_4} を4.9%と一定にし、水素濃度 Ω_{H_2} を変化させ、燃焼速度を求めた結果を図10に示す。これによると、水素濃度とともに燃焼速度は増加することがわかった。

また、同じ軸方向速度において、添加する水素濃度 Ω_{H_2} を0, 1, 2, 3%と変化させた場合のメタン濃度 Ω_{CH_4} に対する燃焼速度を図11に示す。これによっても、 Ω_{CH_4} を減少させると単調に燃焼速度は減少することがわかる。また、水素を添加すると燃焼速度が大きくなること、加えて燃焼速度が8 cm/s程度という非常に小さな値まで燃焼が維持されることがわか

った。図11中の数字は消炎時のメタン濃度を示すが、このときの燃焼速度を比較すると、添加する水素が多くなるほど燃焼速度が小さくなることがわかった。

5. 考 察

伸長・回転流中に形成される管状火炎を対象に、水素をメタン・空気混合気に添加して実験を行った。その結果、水素を添加することにより、(1)火炎直径は大きくなる、(2)消炎時のメタン濃度が減少する、すなわち可燃範囲が広がる、(3)燃焼速度は大きくなる、ということがわかった。

そこで、この水素添加の効果について考察を行う。混合気に水素を添加した場合、反応が促進され熱放出速度が増加して燃焼効率が上がること⁽¹⁷⁾、また、燃焼速度が増加すること⁽¹⁸⁾は、これまでに行われた研究において報告されている。ただし今回の燃料濃度範囲は、いわゆる希薄可燃限界値付近のものであり、通常では燃焼できないような領域であるため、燃焼速度の測定例はほとんどない。したがって、今回得られた燃焼速度の結果を、これまでの結果と直接比較することはできないが、水素添加による火炎直径の増加は、燃焼速度の増加によるものと考えられる。

また、水素を添加することにより、可燃範囲が広がり、火炎安定性が増すことがわかった。参考までに、Le Chatelierらによって提案されている式⁽¹⁹⁾に基づいて混合燃料の希薄可燃限界値を求めた結果、今回の条件下では、わずかではあるが希薄可燃限界以下でも、安定な燃焼が行われていることがわかった。

この理由を調べるため、温度の立上りの位置において、混合気の流速とガス組成をもとに、単位時間あたりの発熱量(熱放出速度)を計算した。ただし、反応帯に流入するガス組成は、各種ガスの拡散速度の違いによりスリット出口直後の混合気と異なっていることが考えられる。しかし本実験では詳細な化学種の濃度測定を行っていないので、今回は便宜上、温度の立上り位置である $r=r^*$ における体積流量をもとに、予熱帯に入る混合気の組成がスリット出口直後の未燃ガスと等しいと仮定して、この熱放出速度 Q [kJ/s] を以下のように計算した。

$$Q = C \cdot (\Omega_{CH_4} q_{CH_4} + \Omega_{H_2} q_{H_2}) \cdot F \cdot (r^*)^2 / R^2$$

ここで、 C は未燃混合気のコモル濃度 (mol/m^3)、 q_{CH_4} と q_{H_2} はそれぞれメタンと水素が完全に反応したときの反応熱 (kJ/mol) である。このようにして求めた熱放出速度を図12に示す。これによっても、メタン濃度を減少させると熱放出速度は単調に減少すること、水素の添加により熱放出速度が大きくなること

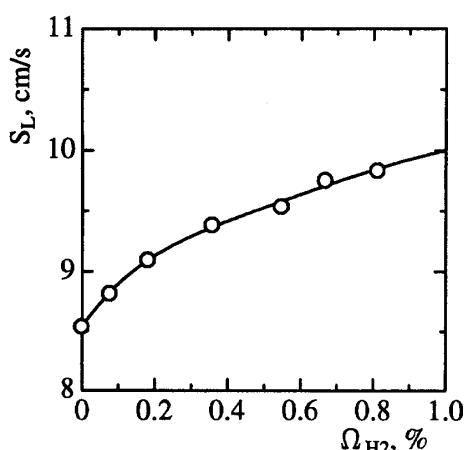


Fig. 10 Variations of Burning velocity with the hydrogen concentration ($V_a=1.0$ m/s, $\Omega_{CH_4}=4.9\%$)

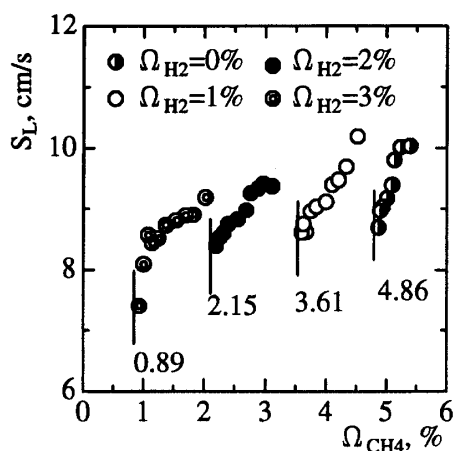


Fig. 11 Variations of Burning velocity with the methane concentration ($V_a=1.0$ m/s)

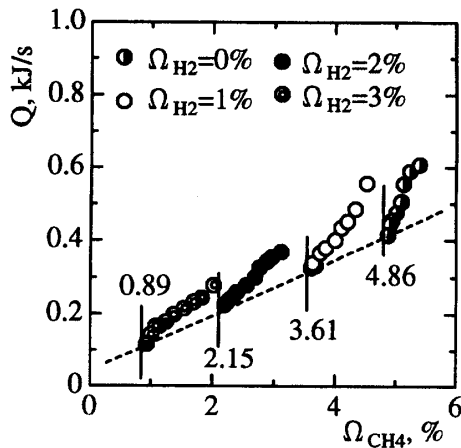
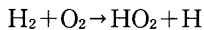


Fig. 12 Heat release rate with the methane concentration ($V_a=1.0$ m/s)

がわかる。また、消炎時の熱放出速度を点線で結ぶと、添加する水素濃度とともにほぼ直線的に減少することがわかった。この関係は図5の消炎限界の傾向と同じであり、したがって、水素の添加により燃焼が維持される熱放出速度が小さくなり、より希薄な燃焼が可能となったものと思われる。

この水素添加による火炎安定化の機構については、おそらく水素の高い反応性にあり、燃焼の早い段階で



などの化学反応によりHラジカルを作り出し、これが連鎖反応において重要な役割を果たしているものと思われる。しかしながら、メタンの燃焼に含まれる素反応の数は膨大であり、しかも反応特性は、気体の流れ、粘性、熱伝導、そして拡散などの気体力学的特性により大きく影響されるので、この問題を解析的に解くことは不可能である。したがって、水素添加の効果を考慮した燃焼機構の解明は容易ではない。

今後、数値計算などの手法を用いてこの火炎安定化の機構を調べ、希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果を明らかにしていく。

6. 結 論

伸長・回転流中に形成される管状火炎を対象に、水素をメタン・空気混合気に添加して実験を行った。その結果、以下のような結論を得た。

(1) メタン濃度を一定にして、添加する水素濃度を増加させると、発光帯の中心間距離から求めた火炎直径は大きくなる。火炎直径の変化は、半径方向速度と燃焼速度の釣合いで決定されるので、水素添加による火炎直径の増加は燃焼速度の増加により説明される。

(2) 消炎限界測定を行った結果、水素の添加量を増加させると、消炎時のメタン濃度は直線的に減少し、

燃焼可能な燃料濃度の範囲は広がる。

(3) 水素と反応する混合気中の空気濃度を求めることにより、メタンの有効当量比を求めた。その結果、添加する水素濃度を増加させると、消炎時の有効当量比も直線的に減少する。

(4) 半径方向温度分布を測定した結果、水素を添加すると高温の内部領域が広がり、最高温度が上昇する。また、発光帯付近の温度こう配も大きくなる。

(5) 半径方向温度分布における温度の立上りの位置から燃焼速度を求めた。この結果、水素を添加することにより、燃焼速度は増加する。ただし、消炎時の燃焼速度は、添加する水素濃度が高いほど小さい。

(6) 未燃混合気の組成をもとに、熱放出速度を計算した結果、水素添加により熱放出速度は増加し、また、消炎時の熱放出速度は水素濃度とともにほぼ直線的に減少した。したがって、その機構は明らかではないものの、水素の添加により燃焼が維持される熱放出速度が小さくなり、より希薄な燃焼が可能となったものと思われる。

文 献

- (1) Chomiak, J., *Combustion*, (1990), 314-316.
- (2) 水谷幸夫, 燃焼工学, (1997), 214-219, 森北出版株式会社.
- (3) Balles, E. N., Ekchian, J. A. and Heywood, J. B., *SAE Paper*, No. 841379(1984).
- (4) Lewis, J. M., *SAE Paper*, No. 860067(1986).
- (5) Rayleigh, L., *Proc. R. Soc., London*, Ser. A, **93**(1916), 148-154.
- (6) Ishizuka, S., *Proc. 20th Symp. (Int.) Combust.*, (1984), 287-294.
- (7) Takeno, T. and Ishizuka, S., *Combust. Flame*, **64**(1986), 83-98.
- (8) Ishizuka, S., *Combust. Flame*, **75**(1989), 367-379.
- (9) 酒井幸夫・石塚悟, 機論, **56**-524, B(1990), 292-299.
- (10) Sakai, Y. and Ishizuka, S., *Proc. 24th Symp. (Int.) Combust.*, The Combustion Institute, (1992), 153-159.
- (11) Ishizuka, S., *Prog. Energy Combust. Sci.*, **19**(1993), 197-226.
- (12) Yamamoto, K., Ishizuka, S. and Hirano, T., *Proc. 25th Symp. (Int.) Combust.*, (1994), 1399-1406.
- (13) 山本和弘・石塚悟・平野敏右, 機論, 62-600, B(1996), 3185-3190.
- (14) Zabetakis, M. G., *Flammability Characteristics of Combustible Gases and Vapors*, *US Bureau Mines, Bulletin*, 627, (1965).
- (15) Yu, G., Law, C. K. and Wu, C. K., *Combust. Flame*, **63**(1986), 339-347.
- (16) Yamamoto, K., Ishizuka, S. and Hirano, T., *Proc. 26th Symp. (Int.) Combust.*, (1996), 1129-1135.
- (17) 田口秀之・ほか5名, 第32回航空原動機・宇宙推進講演会論文集, (1992), 232-237.
- (18) Strehlow, R. A., *Combust. Fundam.*, (1984), 253-262.
- (19) Le Chatelier, H. and Boudouard, O., *Comput. Rend.*, **126**(1899), 1344-1347.