ガスの燃焼速度(II)

——都市ガス、メタン、プロパン、ブタン—空—
気の燃焼速度に対する予熱温度の影響——

—昭和 37 年 11 月 21 日 受理—

東京瓦斯株式会社 飯 田 弘 文

I. 緒 言

近年、石炭ガスを主にしてきた都市ガスは油ガス、天然ガス、L. P. G. などの混入量の増加により、その供給組成が著しく変り、それに伴いその燃焼性も変りつつある。燃料ガスの燃焼性の大小は、その燃焼速度の大小にほぼ比例している。そこで、石炭ガスに比べて燃焼速度の小さい天然ガスや L. P. G. を燃料ガスとする場合に、その燃焼装置の燃焼能力を低下せず燃焼を行なう方法としてはつぎの3点が考えられる。

- ① 燃料ガスの燃焼方式を換える。
- ② 燃焼に必要な空気に酸素を加える。
- ③ 燃料ガス-空気混合気を予熱する。

①については、たとえば層流燃焼を乱流燃焼に、また赤火燃焼をブンゼン燃焼にするなどが考えられる。その他に高負荷燃焼を行なうためにしばしば用いられる Bluffbody,^{1) 2) 3) 4)} wall recess⁵⁾ を一般燃焼装置に応用するなどが考えられる。この点については追って詳しく報告する予定である。②については、前報文⁶⁾ および G. L. Dugger^{7) 8)} らに述べてあるので本稿の IV で簡単に述べるにとどめたい。③の燃料ガスの燃焼速度に対する予熱温度の影響については、G. L. Dugger らが、その著書⁹⁾ に、Semenov, Pease & Tanford や Manson らの理論的解析を引用し、彼ら自身の実験と比較考察を加えている。理論的解析とは燃焼速度と予熱温度や助燃焼ガス中の酸素量との関係を燃焼火炎面においておのおの燃焼機構の Model を仮定して解析を行なっている。すなわち Semenov は火炎面での化学反応速度を考えた熱伝導の状態を Model として考え、Pease & Tanford は火炎面における連鎖反応の carrier が拡散してゆく状態を Model に考え、また Manson は化学反応は考慮せず、火炎面での momentum pressure drop に着目して解析を行なっている。

一方、燃焼波の簡単化した Model から出発して Mallard & Le Chatelier の燃焼速度の式⁹⁾ がある

が、これはつぎの式で与えられている。

$$S_b = \frac{\lambda (T_b - T_i)}{(T_i - T_0) \cdot \rho C_p (x_b - x_i)}$$

ここで、 S_b : 燃焼速度 (cm/sec), λ : 熱伝導率 (cal/cm·sec°C) T_b, T_i, T_0 : おのおの最高火炎温度, 着火温度, 混合気の予熱温度 (°K), ρ : 密度 (g/cm³), C_p : 定圧比熱 (cal/g·°C), x_b, x_i : 火炎面のうち温度 T_b, T_i を示す位置 (cm)

この式からも予熱による燃焼速度の変化を求めることができる。

なぜ、燃料ガスを予熱すると燃焼速度が著しく増大するのであろう。

これはつぎのように説明される。化学的に燃焼反応は free radicals を中間生成物とする一種の連鎖反応である。

燃焼速度は主にその励起原子や radical 物質などの中間生成物の拡散速度や火炎面における伝導などによる熱エネルギーの移動速度によつて支配される。

燃料ガスの温度が高くなると速度のより大きい分子の数が増加し、いわゆる励起状態になつてゆくと同時により多くの分子が高速で動きまわるので衝突の回数も増加する。その結果、反応速度が増進される。

本稿では、シュリーレン写真-角度法によつて都市ガス (5,000kcal/m³), メタン, プロパン, ブタン-空気混合気の予熱温度を 300~600°K の範囲でかえて燃焼速度の測定を行ない、その結果から、各ガスの燃焼速度におよぼす予熱温度の影響を調べ、その実験式を導き出すとともに、これらを用いて高負荷燃焼に対する考察を最後に書き添える。

II. 実験装置と方法

1. 燃焼装置

燃焼速度の測定に用いた実験装置の略図を Fig. 1 に示す。バーナは Fig. 2 に示すように長さ 100cm, 内径 25cmφ の鑄鉄製円管が本体となり、炎孔部分にノズル型バーナポートを用いた。バーナ本体は助走部

1. Air 2. Fuel gas 3. Wet flow meter
4. Needle valve. 5. Heated quartz tube
(packing with rashigrings) 6. Seal pot
7. Electric furnace 8. Packed bearings
9. Thermocouple 10. Nozzle type-burner
port.

Fig. 1 Block diagram of apparatus

Fig. 2 Diagram of burner tube

が十分にあるので噴出する流体の流速分布は管壁にごく近い部分を除いて一様と考えられる⁹⁾。

本体の中には熱交換をよくし、混合気を整流するため底部より高さ 70cm 位まで直径 4.7mmφ のベアリングを約 4,000 個充填してある。実験に用いた空気をバーナ本体に入る手前で、アスベストで保温されたヒーターが巻いてある石英管（内径 2.0cm 長さ 20cm、内部にラッシュリングが充填してある）に通じ適当に電圧を調節しながら予熱を行なう。

予熱された空気と燃料ガスはバーナ底部で完全に混合され、さらに混合気は電気炉で加熱された本体内で目的の予熱温度まで加熱される。用いた各燃料ガスおよび空気は圧力の変動を少なくするためガスホルダーに入れてある。各燃料ガスおよび空気の流量測定は湿式メーターによつて定量されているため、混合気の湿度は常に常温の飽和蒸気圧状態にあつたと考えられる。

なお、都市ガス、プロパン、ブタンの組成は Table 1. 2. 3 に示す。メタンの純度は 98.0% で、残りは空気および炭酸ガスである。

Table 1 Composition of TOWN GAS
(5,000kcal/m³)

GAS	CO ₂	CmHn	O ₂	CO	CH ₄	H ₂	N ₂
Composition	2.7	3.7	2.8	8.2	28.2	43.6	10.8
Vol. %							

Table 2 Composition of PROPANE

GAS	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	C ₃ H ₆	iC ₄ H ₁₀	nC ₄ H ₁₀
Composition	trace	0.7	98.8	0.3	0.2	trace
Vol. %						

Table 3 Composition of BUTANE

GAS	C ₃ H ₈	iC ₄ H ₁₀	nC ₄ H ₁₀
Composition	3.2	24.0	72.8
Vol. %			

実験の方法はメタン—空気混合気については組成、流量を一定に保つたまま、温度を徐々に高めて所定の温度で写真撮影を行ない燃焼速度を測定した。

一方、都市ガス、プロパン、ブタン—空気については予熱温度を一定に保つたまま混合比、混合気流量を変えて測定を行なつた。2つのスライダックスの電圧を適当に調節することによつて予熱温度を $\pm 2 \sim 3^\circ\text{C}$ の範囲で一定に保持できた。なお燃焼速度の測定はシェリーレン—角度法によつて行なつた。

2. 予熱温度の測定

高温に加熱された円管内を流れるガス体の真の温度を正確に測定することは困難であるが、ここでは熱電対を用いてつぎのような簡単な実験より真の予熱温度を推定した。Fig. 3 のようにバーナポートに近い管壁に熔接された銅—コンスタンタン熱電対 A で円管の壁の温度を測り、さらにガス混合気の流れに直角にアルメル—クロメル熱電対 B を挿入して混合気の見掛けの温度を測定する。今ある温度に加熱された流体を流している状態より急に止めると熱電対 B の示度 $t^\circ\text{C}$

Fig. 3 Simplified heat flow for heat initial mixture temp. balance

が下がり、また逆の場合は示度が上がる。このことはガス混合気から熱電対 B の感熱部へ対流熱 Q_{cv} が移動するからと考えられる。また一番高温にある円管の壁から熱電対 B の感熱部へ輻射熱 Q_r が移動している。一方熱電対 B の補償加熱が十分でないため、この導体を通じて伝導熱 Q_{cd} が外へ逃がっている。すなわち、感温部でつぎの熱的平衡が成り立っている。

$$Q_r + Q_{cv} = Q_{cd}$$

したがって、管壁の温度 t_w °C、混合気の真の温度： t_i °C 熱電対 B の示度： t °C とすると、これらの間につぎの大小関係があると考えられる。 $t_w > t_i > t$

この関係を用いて混合気の予熱温度を推定した。

Table 4 は都市ガス空気の実験において測定した t_w , t の値である。 t_w と t の値は誤差の範囲で一致している。従つて、真の予熱温度は t と t_w との平均値をもつてしてもあまり異ならないと考えられる。

Table 4 Temperatures of wall of burner tube and readings of thermocouple B.

t °C	t_w °C
80	84
100	101
130	134
180	185
230	234
280	286
330	336

以下の測定には各燃料ガスともこの平均値をもつてガス混合気の予熱温度とする。

Ⅲ. 実験結果および考察

1. 燃焼速度に対する予熱温度の影響

Fig. 4 は 5.2% プロパン空気混合気について、予

flow rate 79.1cc/sec fuel gas composition 5.2 vol. %, burner dia. 10mmφ.

Fig. 4 Schlieren cone of propane-air flames showed the effect of initial mixture temp. on height of inner cone.

Fig. 5 Relation between burning velocities of methane-air mixtures at each composition and initial temp.

熱温度を 27°C, 177°C, 327°C と変えたときの内炎のシュリーレン写真である。バーナは 10mmφ のノズル型、混合気流量 79.1cc/sec である。写真によると予熱温度が高くなるにつれて内炎は小さくなっている。すなわち燃焼速度は大きくなっていることがわかる。この写真ではわからぬが外炎の長さも内炎にほぼ比例して小さくなることが観察された。Fig. 5 はメタン-空気の各混合割合の燃焼速度と予熱温度との関係を示している。この場合のバーナは 10mmφ ノズル型バーナである。各混合割合において同じような割合で燃焼速度が増加していることを示している。また温度に関係なくメタン 10.3% のとき最大燃焼速度となつている。Fig. 5 を書きかえると燃焼速度線図となる。これを Fig. 6 に示す。

Fig. 6 Effect of initial temp. on burning velocities of methane-air mixtures.

Fig. 7 Effect of initial temp. on burning velocities of Town Gas (5,000kcal/m³, $\rho=0.5$) —air mixtures.

同様に Fig. 7 は 6mmφ のノズル型バーナを用いて当社が供給するうちの最小の比重をもつた都市ガス

(5,000kcal/m³ $\rho=0.5$) —空気混合気について予熱温度を 30~300°C の範囲で測定した結果である。300°C に予熱した場合、最大燃焼速度 (S_b)_{max} は常温の約 3 倍の 200cm/sec となっている。

(S_b)_{max} となるときの都市ガス-空気の混合割合はやはり温度に関係なく 21% 位となっている。

Fig. 8, 9 は同様に 10mmφ のノズル型バーナを用いて測定したプロパン、ブタン-空気混合気の実験結果である。おのおの (S_b)_{max} は 4.3%, 3.1% の混合割合のときであることを示している。

以上の結果より、最大燃焼速度 (S_b)_{max} と予熱温度 T_i の関係を示したのが Fig. 10 である。図中に Dugger & Heimel⁽¹¹⁾ の実験結果をメタン、エタンについて書き入れたが、多少、本実験の結果とずれているが、これは実験方法、条件などによる差と考えられる。

Fig. 10 を log-log にプロットすると各ガスとも直線となる。この直線性より (S_b)_{max} と T_i との間のつぎの簡単な実験式が導き出せる。

ただし、 T_i °K の範囲は 300~600°K である。

都市ガス: (S_b)_{max} = $6.51 \times 10^{-3} \cdot T_i^{1.61}$ (cm/sec)

メタン: (S_b)_{max} = $2.55 \times 10^{-3} \cdot T_i^{1.68}$ (cm/sec)

プロパン: (S_b)_{max} = $4.77 \times 10^{-3} \cdot T_i^{1.58}$

ブタン: (S_b)_{max} = $9.10 \times 10^{-3} \cdot T_i^{1.51}$ となる。

Fig. 8 Effect of the initial temp. on the burning velocities of propane-air mixtures

Fig. 9 Effect of initial temp. on burning velocities of buthane-air mixtures.

Fig. 10 Effect of initial mixture temp. on maximum burning velocities.

この実験式から求めた値と測定値は 2~3% の範囲で一致している。

最大燃焼速度となるとき、ガス混合気の混合割合が予熱温度によらず一定であることは予熱温度は燃焼波面での化学反応そのものには影響を与えず、ただ反応速度のみに関係してくることを示している。

Fig. 11 はメタン空気混合気について、流量 97.6 cc/sec, メタン 9.8%, パーナ径 10mmφ で測定した

Fig. 11 Initial temp. vs. length inner cone and burning velocities of methane-air mixtures

ときの燃焼速度、内炎の長さ、予熱温度との関係を示している。

内炎の長さは予熱温度の上昇につれてほぼ直線的に減少する。この場合、内炎の長さが常温では 2cm であるが、300°C に予熱すると 1.2cm と短くなる。

外炎も予熱温度の上昇につれて小さくなる、これは外炎の長さを支配する二次空気と燃料ガスとの接触混合、すなわち乱流、分子拡散が火炎の温度の増加によって大きくなるためでもある。

予熱をすれば、内炎、外炎の長さが小さくなることより、炎の伸びによる不完全燃焼（被加熱物の冷却による不完全燃焼）もなくなるし、また燃焼速度の小さい天然ガス、L. P. G. でもリフティング（爆火）の面からみた安定性も増すので、燃焼能力を低下することなく都市ガスと同じ燃焼方式の器具が可能になる。一方都市ガスのようにある程度大きい燃焼速度をもつた燃料ガスではより高負荷燃焼が可能となる。

2. 予熱段階における酸化反応

予熱温度をあまり高くするとガス混合気はバーナポートに達する前に緩慢な酸化反応（slow oxidation）を始めることがあるために、燃焼速度に対する予熱温度の影響が予想される値と異なってくる。

この酸化反応は燃料ガス—空気混合気をその混合割合に対する自然着火温度（spontaneous ignition temperature）以上に予熱した場合、ある着火遅れ時間（ignition lag time）後に起るとされている。Dugger¹⁰⁾らは、プロパン空気混合気につき燃焼速度に対する予熱温度と着火遅れ時間につき実験を行なっている。

予熱されている時間—接触時間—が着火遅れ時間より小さければ反応が起らないことから、接触時間をもつて着火遅れ時間を調べている。ら旋状の予熱管を用

いて予熱を行ない、プロパン—空気混合気の理論容比
気比 1.15 につきシュリーレン面積法で燃焼速度
を求めて接触時間の影響を調べている。その結果は
Fig. 12 に示す。

Fig. 12 Burning velocity vs. initial
mixture temp. at equival-
ence ratio of 1.15
(by G. L. Dugger)

予熱温度が 783°K 以下では接触時間が 1sec~5sec
の間ではこの現象は起らないが、867°K 以上では接
触時間が 5sec のときこの酸化現象のため燃焼速度は
著しく減少している。

酸化反応が起ると燃焼速度が減少することについて
Dugger らはつぎのように説明している。この酸化反
応が起つても燃料ガスと空気中の酸素との化学当量は
一定であるが、反応で生成する炭酸ガス、水蒸気など
の影響⁷⁾で燃焼速度が減少するためである。

本実験ではプロパンの場合、接触時間が 3sec~5sec
の間であるが、予熱温度が 600°K 以下であることか
ら酸化反応は問題ない。燃料ガス—空気混合気を予熱
する場合に予熱温度が着火温度以下のときは問題ない
が、それ以上のときは接触時間などを考慮する必要が
ある。

各燃料ガスの理論空気量のときの着火温度（当研究
所燃焼研究室で測定）を Table 5 に示す。

IV. 高負荷燃焼に対する考察

1. 発熱速度の定義*

燃焼装置を設計するときよく炎孔負荷 (kcal/mm²·

Table 5 Ignition temp. of fuel gases
at stoichiometric ratio.

fuel gas	ignition temp.
CH ₄	645
C ₃ H ₈	510
C ₄ H ₁₀	490
H ₂	530
CO	610

hr) とか燃焼室負荷 (kcal/mm²·hr) という言葉が
出てくる。これら炎孔負荷、燃焼室負荷とは各種の燃
焼装置で安定した炎で完全燃焼することのできる燃料
ガスの単位時間当りの熱量を単位炎孔、単位燃焼室当
りについて求めた数値である。従つてこれらの数値は
燃焼方式などによつて異なつてくる。そこでこれらの
数値を用いて燃料ガスの燃焼性の良否を一概に論ずる
ことはあまり好ましくない。そこで装置には無関係の
発熱速度 J (rate of heat production) kcal/mm²·sec
の概念を導入する。

この J は燃料ガス個々の物性定数で、燃焼速度線
図が測定できれば求まる値である。 J の値が大きいガ
スほど燃焼性のよい、燃え易いガスといえる。

J と燃焼速度 S_b との関係はつぎの式で表わされる

$$J = \frac{Q}{1+N} \cdot S_b (M \cdot T_i N)$$

ただし、 Q : 燃料ガス発熱量 (kcal/mm³), N : 1 次
空気量 / 燃料ガス量 (mm³/mm³), M : 助燃焼ガス中

の酸素量, $= \frac{O_2}{O_2+N_2}$, T_i : 予熱温度 (°K)

たとえば、常温における各燃料ガス—空気の $J \times 10^3$
を比較すると、都市ガス 0.50~0.73, メタン 0.39,
プロパン 0.47, ブタン 0.37, 水素 3.2 である。単独
で燃料ガスとしては適しない水素は他の燃料ガスに比
べてずばぬけて大きい値をもっている。水素を 25~45
% も含んでいる都市ガス (5,000kcal/m³) の J は天
然ガス, L. P. G. に比べ 1.1~2.0 倍大きい値であ
る。

2. J に対する M および T_i の影響

Fig. 13 は縦軸に最大発熱速度 $J_{\max}$, 横軸に酸素
量を示すパラメーター $M \left(= \frac{O_2}{O_2+N_2} \right)$ をとると、各
燃料ガスについてほぼ直線となり、それらの勾配はほ
んど一致している。すなわち、各燃料ガスの J は同
じ程度の影響を受ける。都市ガスの場合、 $M=0.21$
のとき $J_{\max}=0.7 \times 10^{-3}$ kcal/mm²·sec であるのに対
し、 $M=0.40$ (すなわち空気: 酸素=1: 0.28) のと

* 井上, 燃協誌, 42, 436, 572 (1963)

Fig. 13 Effect of $M = \frac{O_2}{O_2 + N_2}$ on maximum rate of heat production of fuel gases.

Fig. 14 Effect of initial mixture temp. on maximum rate of heat production of fuel gases.

き $J_{\max} = 2.8 \times 10^{-3}$ と約 4 倍となり、それだけ高度の高負荷燃焼が可能になる。

一方、予熱温度の影響は Fig. 14 に示すごとく都市ガスにおいて最もその効果が現われ、 T_i を 100°C 、 200°C 、 300°C とすれば $J_{\max}$ はそれぞれ常温の 1.4、2.1、3.0 倍となる。

その他の燃料ガスでは効果は少し小さくなって T_i が 300°C で常温の約 2~2.5 倍となっている。

このように、助燃焼ガス中に酸素を加えたり、混合

気を予熱することによって高度の高負荷燃焼が得られる。この場合、燃焼速度が非常に大きくなるので、逆火 (flash back) に注意する必要がある。その他、熱効率、作業の能力に重要な火炎温度も M および T_i の影響で非常に高くなることが予想される。参考のため、理論火炎温度を計算すると都市ガスでは、 $M = 0.21$ 、常温で $2,200^\circ\text{C}$ であるのが $M = 0.4$ 常温で $3,200^\circ\text{C}$ 、 $M = 0.21$ 、 $T_i = 100^\circ\text{C}$ では $2,300^\circ\text{C}$ 、 $M = 0.21$ 、 $T_i = 300^\circ\text{C}$ では $2,450^\circ\text{C}$ となる。他の燃料ガスについても同じ程度の火炎温度上昇が予想される。

V. 結 論

1. 都市ガス ($5,000\text{kcal/m}^3$ 、比重 0.5) メタン、プロパンおよびブタン—空気混合気の最大燃焼速度 $(S_b)_{\max}(\text{cm/sec})$ と予熱温度 $T_i(^{\circ}\text{K})$ は $(S_b)_{\max} = a \cdot T_i^{1.5-1.7}$ の関係にある。

ただし、 a : 定数、 T_i の範囲は $300 \sim 600^\circ\text{K}$ である。

2. 最大燃焼速度となるとき燃料ガス—空気の混合比は予熱温度に無関係に一定となる。

3. 予熱温度の上昇につれてブンゼン炎の内炎および外炎の高さにほぼ直線的に減少する。

4. 予熱温度をあまり大きくすると燃料ガス—空気混合気の場合は予熱の段階で酸化反応が起り、燃焼速度が低下する。この限界予熱温度は接触時間が関係してくるので一概にはいえない。

5. ガスの燃焼性を発熱速度 J をもって比較すると都市ガスの場合、予熱温度を 30° 、 100° 、 200° 、 300°C としたときの J の比は 1.0、1.4、2.1、3.1 となる。天然ガス、L. P. G. はほぼ 300°C では常温の 2~2.5 倍となる。一方 J に対する酸素量の影響は都市ガス、天然ガス、L. P. G. についてはほぼ同じであつて、たとえば都市ガス—空気の J は $0.7 \times 10^{-3} \text{ kcal/mm}^2 \cdot \text{sec}$ であるが都市ガス—空気—酸素 (空気 : 酸素 = 1.0 : 0.28) での J は 2.8×10^{-3} と約 4 倍となる。

なお、本稿を終るに際し、当研究所酒井博主査および井上二郎氏の適切な御指導と御援助に深く感謝する。

文 献

- 1) Lewis von Elbe, Combustion Flames and Explosions of Gases, (1961). 430.
- 2) J. P. Longwell, Fourth Symposium (International) on Combustion, 8, 90, (1953) 「(1962)
- 3) F. H. Wright and E. E. Zukoski, Eight Symposium (International) on Combustion, 99, 933

- 4) F. Filippi and L. Fabbro-mazza, *Eight Symposium (International) on Combustion*, 101, 956 (1962) [102, 956 (1962)]
- 5) P. Roy Choudhury and Ali Buleny Cambel, 6) 飯田, 本誌, 41, 428 (1962)
- 7) G. L. Dugger, and D. D. Graab, *Fourth Symposium on Combustion*, 35, 320 (1953)
- 8) G. L. Dugger, and D. D. Graab, *Fourth Symposium on Combustion*, 40, 336 (1953)
- 9) 木村, 石川, 日本機械学会論文集 27, 180 (1960)
- 10) G. L. Dugger, R. C. Weast and S. Heimel, *Industrial Engineering Chemistry*, 47, 114 (1955) 74 (1953)
- 11) A. G. Gaydon, H. G. Wolfhard, *Flames*, p.

Burning Velocities of Preheated Town Gas (II)

—Methane, Propane and Butane-Air Mixtures—

by Hirofumi Iida

(Tokyo Gas Co.)

SYNOPSIS:—The author have investigated the influence of the initial mixture temperature on the burning velocities of Town Gas, Methane, Propane and Butane-Air Mixtures. The result showed that the maximum burning velocities of these fuel gas, $(S_b)_{\max}$, (cm./sec.) are proportional to the 1.5–1.7 th power of the absolute initial mixture temperature T_i °K. i. e. $(S_b)_{\max} = aT_i^{1.5-1.7}$.

Therefore, where high-speed combustion is required, an appreciable gain in rate of heat production J (kcal/mm². sec.) can be had by increasing the initial mixture temperature. For instance, In the case of Town Gas, if the length of the inner cone of the flame are constant, $J_{\max}$ for the initial mixture temperature of 373°K, 473°K and 573°K are respectively 1.4, 2.1 and 3.1 times larger than that for the room temperature.