高圧力下における炭化水素燃料液滴の燃焼^{*1} Droplet Combustion of Hydrocarbon Fuels under High Pressure Conditions

津江光洋^{*2}・宮野春雄^{*3}

Mitsuhiro TSUE, Haruo MIYANO

佐藤順一^{*4}・河野通方^{*5}

Jun'ichi SATO and Michikata KONO

Key Words : Combustion, Evaporation, Fuel Droplet, Supercritical Condition

Abstract

Experimental studies were made of combustion and evaporation of fuel droplets in high pressure environments. The burning rate constant, evaporation constant, life time and droplet temperature were measured for various kinds of liquid hydrocarbon fuels. As results, with increasing ambient pressure the burning rate constant increases and reaches the maximum value in the vicinity of the critical pressure of the fuel, and then decreases as the pressure increases further. From the comparison between the pressure dependences of the burning rate constant and the evaporation constant at various ambient temperatures, it is suggested that the evaporation phenomena during both combustion and evaporation in a high temperature environment are similar to each other.

1. ま え が き

ジェットエンジンやロケットエンジンおよびディーゼルエンジンなどに利用されている燃焼方式は、噴霧燃焼である。これらのエンジンの燃焼室内圧力は年々上昇しており、それぞれの燃料の臨界値を越えている場合が多い。一方、このような高圧力下における噴霧燃焼についての研究はほとんど行われておらず、現象の把握すら十分ではない。その理由として、噴霧燃焼が燃料液滴、燃料蒸気および空気からなる不均一な系の燃焼であり、複雑な現象であることと、さらに、高圧力雰囲気における噴霧燃焼の実験を行うことが、技

術的にかなり困難であることがあげられる。

従来より、噴霧燃焼の基礎的な研究として、噴霧の基本構成要素である単一液滴を用いた実験が行われている。これらの多くは、大気圧力下や比較的低圧のもとでの燃焼に関するものである¹⁻³⁾。このような低圧力下の実験に対応する液滴燃焼の理論として、flame sheet modelを用いた準定常理論⁴⁾などが提案されており、実験で得られた知見がうまく説明されている。

一方、臨界圧力を越えるような高圧力下においては、単一液滴の燃焼に関する研究は少なく、Brzustowski, Natarajan⁵⁾, Faethら⁶⁾および角田, 廣安⁷⁾を除いてはほとんどない。このため、超臨界雰囲気における液滴の燃焼機構は十分に解明されていない。また、このような問題に関する理論的研究は、Spalding⁸⁾や Sánchez-Tarifaら⁹⁾によって行われているが、これらの研究では、液滴をおのおの燃料蒸気の吹き出し点およびガス塊として取り扱っており、液相から気相への相変化については考慮されていない。すなわち、これらの理論では、液滴全体がすでに臨界点を越えていると仮定されている。これに対し、角田, 廣安は、超臨界雰囲気においても液滴温度は燃焼中に臨界値に到達せず、液滴自身は臨界点を越えないと報告している。このように、理論的研究では、液滴は超臨界状態であると仮定されており、実際の現象と異なっていることが示唆されている。そこで、本研究では、超臨界雰囲気中の単一液滴の燃焼機構を解明することを目的として、まず、超臨界中で燃焼している液滴の状態を調べ、亜臨界雰囲気中におけるそれとの比較を行った。また、液滴の燃焼特性を表すパラメータ、すなわち燃焼速度定数、液滴寿命および液滴温度に、雰囲気圧力が及ぼす影響を明らかにした。さらに、単一液滴の蒸発についても同様な実験を行い、雰囲気温度および圧力が蒸発係数および液滴温度に及ぼす影響を

^{*1} 昭和62年2月20日、第27回航空原動機に関する講演会にて発表。昭和62年4月23日原稿受理

^{*2} 東京大学大学院

^{*3} 日本郵船(株)

^{*4} 石川島播磨重工業(株)

^{*5} 東京大学工学部航空学科

調べ、液滴の燃焼現象と蒸発現象の関連性について考察を行った。

2. 実験装置および方法

第1図に、燃焼実験に用いた装置の概略を示す。燃焼容器は内直径100 mm、高さ450 mmの円筒形圧力容器で、直径50 mmと30 mmの観察用窓がそれぞれ一対ずつ設けられている。容器の上部フランジには、懸垂装置、燃料供給装置および点火装置が取り付けられている。懸垂線は石英製で、直径が約250 μm のものを用いた。燃料供給装置は、燃料を押し出すためのプランジャ、注射針およびそれらを結ぶシリコンチューブから構成されている。先端の注射針はレバーにより容器外部から回転させることができる構造になっており、注射針を懸垂線に近づけて液滴をつくった後、液滴の燃焼に影響を及ぼさないように、液滴から遠ざけておく。点火装置は懸垂線の下方に取り付けられている。これは、回路の電流を切るときにその遮断点にとぶ、いわゆるアークを利用して点火する方式のものである。この点火方式を用いた理由は、固定間隙長の火花間隙をよこぎってとぶ、いわゆる高圧火花が高圧力下では発生困難になるためである。また、このような実験でしばしば用いられるニクロム線を加熱して点火する方式には、加熱しているニクロム線によって生じる自然対流の影響や、加熱期間に液滴が蒸発するという欠点があり、さらに点火の時期を確実に決められないという理由から用いなかった。

液滴の温度測定には、白金-白金ロジウム(13%)熱電対を利用した。素線直径は50 μm で、高温接点球状部直径はそのほぼ2倍である。高温接点は、石英線の先端から少し離すように取り付けられている。熱電対出力をアンプにより増幅し、それをデジタルメモリ

ースコープに導き、液滴温度の時間的変化を記録、観察した。

ビデオカメラは、液滴の懸垂状況や点火の成否を確認するために用いた。ビデオは、時間および距離の分解能があまり高くないために、その画像から液滴直径を測定することは困難であった。そこで、液滴直径の時間的変化の測定には16 mm高速度シネカメラを用い、影写真法により行った。撮影速度は64~400コマ/secで、照明には高圧水銀ランプを用いた。高圧力雰囲気においては、液滴周囲で生成するすすの増加により、液滴直径の測定が困難になる。このため、液滴直径の測定可能な圧力範囲は、たかだか燃料の臨界圧力の1.5~2倍程度までであった。また、この程度の圧力になると、表面張力が減少するために、液滴が燃焼中に落下することが認められている。

燃料としては、メチルアルコール、エチルアルコールおよびプロピルアルコールのアルコール系燃料と、*n*-ヘプタン、*n*-オクタンおよび*n*-デカンのパラフィン系炭化水素燃料を用いた。これらは、燃料組成および臨界点の異なるもので、また、すすの生成が比較的少ないものである。雰囲気気体は空気とし、その圧力を大気圧から燃料の臨界圧力の約2倍まで変化させた。雰囲気温度は室温とした。

液滴の蒸発実験には、上述の燃焼容器に高温室を組み込んだ装置を用いた。その概略を第2図に示す。高温室は、内直径50 mm、高さ65 mmの円筒形で、その内壁に沿って電熱線が巻かれており、周囲は断熱材で囲まれている。懸垂線としては、直径250 μm の石英線を用いた。燃料供給装置は、このなかでの燃料の温度上昇をおさえるために水冷されており、燃焼実験と同様な操作で、懸垂線先端に液滴がつくられる。懸垂線先端から水平方向に5 mm離れた位置に、直径

第1図 燃焼実験に用いた装置の概略

第2図 蒸発実験に用いた装置の概略

500 μ mの白金-白金ロジウム熱電対が固定されており、この指示値を雰囲気温度とした。蒸発過程の液滴はビデオカメラにより撮影、録画され、その映像から、液滴直径の時間的変化を測定した。また、液滴温度の時間的変化の測定には、懸垂線先端に取り付けられた直径50 μ mのクロメル-アルメル熱電対を用いた。

燃料としては、*n*-ヘプタン、*n*-ヘキサンおよびエチルアルコールを使用した。雰囲気気体は窒素とし、雰囲気温度および圧力をそれぞれ373 Kから573 K、0.1 MPaから12.3 MPaまで変化させた。

3. 実験結果および考察

第3図に、*n*-デカン液滴を燃焼させたときの液滴の影写真を示す。*n*-デカンの臨界圧力は2.15 MPaであるので、第3図の(a)、(b)はそれぞれ臨界圧力以下および以上の条件になっている。写真中央に、懸垂線に付着している液滴が認められ、そのまわりにすすがあることがわかる。すすが観察される位置に火炎帯が存在すると考えられるので、雰囲気圧力の上昇と

ともに火炎帯は液滴に近づいており、しかも縦に細長くなることがわかる。また、圧力の上昇とともに、すすの発生が増加していることもわかる。第3図の(a)と(b)を比較して、超臨界圧力下(b)においても(a)と同様に液面が明確に観察されており、超臨界圧力下における燃焼は、亜臨界圧力下におけるそれと見掛け上同様な現象であることがわかる。

液滴の影写真から液滴直径を測定したが、第3図からわかるように、液滴は完全な球ではない。そこで、液滴を回転楕円体とみなし、長径および短径を測定してその体積を求め、その体積と等しい球の直径を液滴直径 d_0 とした。第4図にエチルアルコール液滴直径の2乗の時間的変化を、圧力をパラメータにして示す。この図から、臨界圧力を越えるような高圧力下においても、燃焼の初期を除いて、直径の2乗が時間に対して直線的に減少する関係、いわゆる d^2 法則が成り立っていることがわかる。燃焼初期において d^2 法則が成り立たないのは、液滴に入ってくる熱が液滴自身の温度上昇に使われるので、蒸発が抑制されること、液滴の温度上昇に伴う直径の増加に起因すると思

第3図 燃焼中の液滴の写真 (*n*-デカン)
左図 (a) 雰囲気圧力 1.01 MPa、右図 (b) 雰囲気圧力 3.05 MPa

第4図 液滴直径の2乗の時間的変化 (燃焼)

第5図 燃焼速度定数と雰囲気圧力の関係

われる。

第4図の直径の2乗-時間曲線の直線部分の傾きを燃焼速度定数と定義し、これを最小2乗法により求めた。第5図は、燃焼速度定数と雰囲気圧力の関係を、*n*-デカンについて示している。図の横軸は、雰囲気圧力を燃料の臨界圧力で除した圧力比である。この図から、燃焼速度定数は圧力比の増加にともないほぼ直線的に増加するが、圧力比1以上すなわち超臨界圧力においては、圧力比の増加とともに逆に減少することがわかる。燃料の種類によって臨界圧力が異なるにもかかわらず、いずれの燃料についてもこのように燃焼速度定数が臨界圧力付近で最大値をとる傾向を示している。このことから、高圧力下における液滴の燃焼を考える場合、重要なパラメータは雰囲気圧力の絶対値ではなく、雰囲気圧力と燃料の臨界圧力の比であることが示唆される。

燃焼速度定数とともに、液滴の燃焼特性を表す重要なパラメータに液滴寿命がある。本研究においては、これを液滴の点火から液滴周囲の火炎が消滅するまでの時間で定義する。液滴寿命と雰囲気圧力の関係を、*n*-ヘプタンと *n*-デカンについて調べた結果を、おのおの第6図と第7図に示す。これは、他の報告結果と比較するために、液滴の初期直径が異なる幾つかの測定値から、初期直径 $d_0=1.0$ mm の場合の寿命を内挿

第6図 液滴の寿命と雰囲気圧力の関係

第7図 液滴の寿命と雰囲気圧力の関係

して求めたものである。第6, 7図からわかるように、圧力比の増加とともに液滴寿命は減少し、臨界圧力付近、すなわち圧力比1付近で最小値をとり、圧力比1以上では圧力比の増加に伴い、液滴寿命は増加する傾向を示している。他の燃料についても、この傾向は同様であった。液滴寿命は近似的に燃焼速度定数と逆比例の関係があると考えられるが、第5, 6および7図から、本研究においてもこの関係が成り立っていることがわかる。

亜臨界圧力雰囲気において、圧力の上昇とともに燃焼速度定数が増加し、液滴寿命が減少する理由として、物性値の圧力および温度による変化と、自然対流により熱と物質の輸送が促進されることの2点がまず考えられる。第6図から、亜臨界圧力下における液滴寿命の圧力依存性は、角田、廣安の結果と一致している。一方、第7図から、超臨界圧力下において、圧力の上昇とともに液滴寿命が増加する傾向は、無重力場で行われたFaethらの実験結果と定性的に一致することがわかる。このことから、自然対流は液滴寿命の値の大小に影響を及ぼしているが、液滴寿命の圧力依存性には影響を及ぼしていないと考えられる。超臨界圧力雰囲気における液滴寿命の圧力依存性について考える場合、液滴自身とその周囲の雰囲気状態を明らかにする必要があると思われる。しかしながら、液滴の燃焼実験においては、高圧力下ではすすの増加により液滴の観察が困難になること、雰囲気温度が火炎温度とほぼ等しいのでそれを独立に変化させることができないことなど、実験上の制約がある。そこで本研究では、これらの制約を受けない液滴の蒸発実験を行い、雰囲気の温度および圧力が蒸発現象に及ぼす影響を調べた。

第8図に、*n*-ヘプタン液滴を蒸発させたときの写真を示す。第8図(a)は、雰囲気温度および圧力が燃料の臨界値を越えた状態、すなわち超臨界雰囲気中で蒸発している液滴の様子を示しており、(b)は亜臨界雰囲気中の場合である。第8図から、液滴表面の様相に関して、超臨界雰囲気中においても亜臨界雰囲気と同様な現象が観察されることがわかる。第9図に、雰囲気温度573 Kにおいて、雰囲気圧力を変化させたときの液滴直径の2乗の時間的変化を、*n*-ヘプタンについて示す。*n*-ヘプタンの臨界温度および圧力は540 K, 2.74 MPaであるので、雰囲気温度は臨界温度を越えている。したがって、雰囲気圧力が4.05, 7.09および12.2 MPaの場合は、超臨界雰囲気ということになる。第9図から、このような雰囲気においても、 d^2 法則が成り立っていることがわかる。第9図の液滴直径の2乗-時間曲線の直線部分の傾き

第8図 蒸発中の液滴の写真(*n*-ヘプタン)
左図 (a) 雰囲気圧力 8.61 MPa, 雰囲気温度 573 K
右図 (b) 雰囲気圧力 8.61 MPa, 雰囲気温度 473 K

第9図 液滴直径の2乗の時間的変化 (蒸発)

第11図 蒸発および燃焼中の液滴温度の時間的変化

第10図 蒸発係数および燃焼速度定数と雰囲気圧力の関係

を、蒸発係数と定義する。これは、燃焼における燃焼速度定数と対応するものである。なお、本研究では同一雰囲気条件について数回実験を行ったが、液滴の初期直径および初期温度は一定ではなかった。そこで、これらが蒸発係数に及ぼす影響を調べた結果、その影響はほとんどないことがわかった。第10図は、*n*-ヘプタンの蒸発係数と雰囲気圧力の関係を、雰囲気温度をパラメータにして示している。また、燃焼速度定数と雰囲気圧力の関係も示している。図の蒸発係数についての測定点は平均値を表し、縦棒の長さは標準偏差の値を表している。第10図から、蒸発係数の圧力依存性は雰囲気温度により異なることがわかる。雰囲気

温度 573 K では、蒸発係数は圧力とともに増加しているが、圧力比 3 付近で飽和している。この傾向は燃焼速度定数の場合と同様であるが、その場合と比較すると、蒸発係数が飽和する雰囲気圧力は、燃焼速度定数のそれよりも高くなっている。また雰囲気温度 473 K においては、圧力の上昇とともに蒸発係数は増加する傾向を示しており、雰囲気温度 373 K では、蒸発係数は圧力によらずほぼ一定となっている。このように、蒸発係数の圧力依存性は、燃焼速度定数のそれと異なっていることがわかる。第 11 図は、液滴温度の時間的変化を、燃焼と蒸発の場合について示している。第 11 図から、燃焼および蒸発中の液滴温度の時間的変化を比較すると、現象の前半における温度の上昇率はかなり異なっているが、現象の後半における液滴温度はほとんど変わらない。また両方の場合とも、液滴温度は臨界温度まで達しておらず、液滴自身は亜臨界状態にあることがわかる。このことから、液滴自身は蒸発および燃焼中においてほぼ同様な状態であることがわかる。したがって、第 10 図のように蒸発係数の圧力依存性が燃焼速度定数のそれと異なるのは、燃焼においては雰囲気温度が燃料の臨界温度をはるかに越えているのに対し、蒸発実験においては、雰囲気温度が臨界温度のたかだか約 1.06 倍であるように、雰囲気状態が異なっているためではないかと考えられる。また逆に、雰囲気温度が高くなるほど、蒸発係数の圧力依存性が燃焼速度定数のそれに近づいてくるという第 10 図に示す結果から推察すると、蒸発の場合においても雰囲気温度を高くすると、燃焼の場合の結果に漸近していくことが示唆される。

4. 結 論

高圧力下における単一液滴の燃焼および蒸発実験を行い、以下の結論を得た。

(1) 燃焼速度定数は雰囲気圧力とともに増加するが、臨界圧力を越えると逆に減少する傾向を示す。

(2) 蒸発実験において、雰囲気温度が比較的高い場合 (573 K) には、蒸発係数は雰囲気圧力とともに増加するが、圧力比 3 付近で飽和する傾向がみられた。

(3) 燃焼時と蒸発時の速度定数を比較した結果、燃焼時の液滴の蒸発は、蒸発実験における雰囲気温度を増加させたと同様に考えられる測定事実が得られたが、このことは、両者の場合の液滴が影写真において液相とそれ以外の相との間に、明確に境界面を示していることから裏づけられる。

(4) 超臨界雰囲気における燃焼機構の解明には、液滴周囲の雰囲気状態、たとえば燃料蒸気の拡散機構の解明などが重要であると思われ、その現象の正確な把握とともに、このような雰囲気における拡散係数などの物性値を正確に知ることが必要であると考えられる。

参考文献

- 1) Hall, A. R. and Diederichsen, J.: An Experimental Study of the Burning of Single Drops of Fuel in Air at Pressures up to Twenty Atmospheres, Fourth Symposium (International) on Combustion, 1953, pp. 837-846.
- 2) Rush, J. H. and Krier, H.: Burning of Fuel Droplets at Pressures Greater Than Atmospheric, Combustion and Flame, 22(1974), pp. 377-382.
- 3) Reuss, D. L. and Krier, H.: Suspended Fuel Droplet Burning in a Combined High Temperature and High Pressure Environment, Combustion and Flame, 25(1975), pp. 259-267.
- 4) Spalding, D. B.: The Combustion of Liquid Fuels, Fourth Symposium (International) on Combustion, 1953, pp. 847-864.
- 5) Brzustowski, T. A. and Natarajan, R.: Combustion of Aniline Droplets at High Pressures, The Canadian Journal of Chemical Engineering, August, 1966, pp. 194-201.
- 6) Faeth, G. M., Dominicus, D. P., Tulpinsky, J. F. and Olson, D. R.: Supercritical Bipropellant Droplet Combustion, Twelfth Symposium (International) on Combustion, 1969, pp. 9-18.
- 7) Kadota, T. and Hiroyasu, H.: Combustion of a Fuel Droplet in Supercritical Gaseous Environments, Eighteenth Symposium (International) on Combustion, 1981, pp. 275-282.
- 8) Spalding, D. B.: Theory of Particle Combustion at High Pressures, ARS J, 29(1959), pp. 828-835.
- 9) Sánchez-Tarifa, C., Crespo, A. and Fraga, E.: A Theoretical Model for the Combustion of Droplets in Supercritical Conditions and Gas Pockets, Astronautica Acta, 17(1972), pp. 685-692.