高圧力における燃料液滴の燃焼^{*1}

新 岡 嵩^{*2}

Key Words: Droplet, Combustion, High Pressure, Critical Point

1. はじめに

宇宙への物資輸送量は年々増加し、したがって、その輸送手段であるロケットも巨大化する傾向にある。巨大なブースタロケットの燃料として、比推力が高い液体水素ではなく、炭化水素系燃料を用いたほうが有利である論理とその技術的背景についてはほかの解説等¹⁾に委ねて、ここでは、炭化水素燃料の燃焼科学的、基礎的研究の動向について述べることにする。

ロケットエンジン全体をコンパクトにするためと性能向上を図るため燃焼圧を上げてきており、米国スペースシャトル主エンジン(液体水素燃料)は20 MPaを越えている。炭化水素燃料についても、このレベルあるいはそれ以上まで高圧にして高性能化を図ろうとする考えがある。しかし、燃料・燃焼上の問題点がいくつか存在し、はたして高圧化に決定的な欠点がないか基礎的に調べる試みが行われている。一つは、液体燃料の臨界点をはるかに越えた超臨界圧燃焼であり、二つ目としては、多量の煤生成の問題である。このほかに、燃料物性上、コーキングやインジェクタ設計上の問題が発生することもありうる。いずれも互いに関連しており、また、いずれの問題も炭素化合物であることに基づいている。

超臨界圧燃焼については、各種高圧燃焼器が、従来

から超臨界圧で支障なく燃焼しているので特別な問題点はないとするかもしれない。また、煤の生成も、もともとある程度の低い比推力は覚悟の上で炭化水素ロケットを考えているのであるから、燃焼効率の多少の低下はいとわないとするかもしれない。しかし、これまでの液滴燃焼実験で見える限り、きわめて特異な現象が見出され、燃焼科学的立場からは、高圧化は好ましい方向とはいえない。したがって、応用実用面でどのような問題が生じるのか興味深いことであるし、また、基礎研究者にとっても興味深い現象であるので、とくに高圧燃焼現象に絞って以下に解説したい。

2. 高圧液滴燃焼実験

常圧における燃料液滴の燃焼実験については、従来から相当数の報告があって、おおむね現象は捉えられているといつてよい。物性値の温度依存性、熱拡散の効果、熱放射の量などこれからも詳細に調べなければならないことはいくつかあるとしても、液滴燃焼現象の根本を変えるものではなく、おおむね定量的な課題であるといつてよい。しかし、高圧における液滴燃焼は、定性的にも特異であることが近年明らかになってきた。

横軸に燃焼時間(t)、縦軸に液滴直径(d)の二乗をとると、第1図に示すように、着火から短時間の間、液滴の膨張が見られるものの、全体的には負の勾配をもって直線になる(第1図の燃料は、後述する高密度炭化水素)。

$$K = -d(d^2)/dt \quad (1)$$

この比例定数を燃焼速度定数(K)と呼び、常圧でほとんどの燃料は大略 $1 \text{ mm}^2/\text{s}$ の値となる。第1図の低圧力範囲では、圧力上昇とともに勾配が大きくなっており、したがって、 K の値が大きくなることがわかる。この値が大きいと速く燃焼し、小さいと遅い燃焼となるので、燃料の燃焼性を示す一つの特性値といえる。この値を高圧空气中で測定し、まとめた例が第2図である。ばらつきはあるものの、圧力とともに大きくなる傾向にあるので、高圧ほど燃焼性が良くなるように見える。ところが、第2図からわかるように、

著者紹介

新岡 嵩 (正会員)

昭和15年生。秋田県出身。昭和39年東北大学工学部機械工学科卒業。昭和45年東北大学大学院博士課程修了。同年航空宇宙技術研究所入所。昭和63年東北大学教授。現在、流体科学研究所反応流体研究部門担当。燃焼工学、宇宙推進工学などの研究に従事。日本機械学会、日本燃焼研究会、日本ロケット協会等の各会員。

^{*1} 昭和63年10月26日、第32回宇宙科学技術連合講演会にて講演。平成元年3月3日原稿受理 Combustion of Fuel Droplet under High Pressure Atmosphere

^{*2} 東北大学流体科学研究所 Takashi NIIOKA

第1図 液滴径二乗の時間変化⁵⁾

第2図 圧力による燃焼速度の変化⁵⁾

各々の燃料の臨界圧力近傍で燃焼速度定数は最大値をとり、それ以上大きくはならないばかりか、圧力とともに下がる傾向すら見える。かつては、Kadota and Hiroyasu²⁾や Faethら³⁾も臨界点近傍で特異な変化のグラフを報告してきたが、近年の津江らの実験⁴⁾と著者らの実験⁵⁾は、第2図のような極大値をとることをより明確に示している。

臨界点付近の液滴の挙動は、蒸発についても特異で、林⁶⁾および津江ら⁷⁾が報告している。津江らの実験のなかで、高温雰囲気における短い蒸発時間の場

第3図 1 MPaにおけるヘプタン液滴の燃焼

合には、燃焼の場合と同様の変化を示している。高温高圧雰囲気における蒸発現象は、基本的に高圧における燃焼現象と同様の現象であることを示している。しかし、次節でも述べるが、その要因はいまだ明らかにはなっていない。また、 K の値が臨界圧力以上で低下する傾向は良い方向ではないことは理論的に当然であるが、実際上どのような問題を発生するかは確かめられていない。

液滴回りに形成される球状火炎の内側には、燃料が熱分解してできる炭素帯があつて、第3図にみられるように、高圧ほど揮度を増し、しかも厚みも増すが、なぜ高圧ほど厚くなって煤が出やすくなるのか明らかにされていない。高圧になるとおおむね圧力に比例して浮力の影響も大きくなり、対流のため後流に尾をひいた人魂(ひとだま)状の火炎形状となる。高圧になればなるほど、火炎の尾の先端から煤が多量に排出しているのが観察される。このような液滴回りの炭素微粒子群は、輝度が増して液滴の目視による観察をしにくくするばかりか、弱いレーザ光線も通さなくなり、影写真による液滴径の測定も不可能になる。高圧になるほど表面張力が小さくなって液滴が石英棒に懸垂しにくくなることと相まって、測定上の限界が高圧側にある。

さて、第2図の特異な傾向が高圧液滴燃焼の基本とするのが妥当かどうか吟味する必要がある。浮力は圧力に比例して大きくなるので、自然対流が大きくなって出てきた現象でないかとする見方があるかもしれない。最も明瞭な方法でこれを払拭するのは無重力場で実験することである。前述のとおり、高圧では炭素帯の厚味が増して液滴径の測定がきわめて困難である。

第4図 微小重力環境における液滴燃焼時間⁴⁾

それでも通常の重力場で実験するときは、光学系を駆使してかなりの高圧まで測定できるが、落下塔による微小重力実験では簡単ではなく、液滴寿命（全燃焼時間）の傾向を見るのが主になる。第4図に津江らの結果⁴⁾を示す。寿命が短いことは、 K の値が大きいことを意味しているので、両者は逆比例の関係にある。臨界圧近傍で、第2図を裏返したような傾向が見られ、微小重力場ではいっそう明確に特異な傾向が出ている。したがって、第2図に示した、臨界圧近傍で K の値が極大値をとる性状は、液滴燃焼の基本とすべきであるように見える。

3. 高密度炭化水素の液滴燃焼

近年開発された高密度炭化水素燃料の液滴燃焼実験⁵⁾について述べる。燃料タンクの小型化のためには、燃料密度は高いほど望ましいが、燃焼性能が低下してはならない。呼称 HDF-1 なる高密度炭化水素は、日本石油化学(株)が開発した多環縮合ナフテン化合物の一種で、平均分子式は $C_{13.7}H_{22}$ 、密度 0.969、推算臨界圧が 2.2 MPa、推算臨界温度 743 K である。一方、RJ-1J は、N-I、N-II、H-I ロケットのブースタエンジン (MB-3) 用燃料として米国製 RJ-1 を国産化したもので、飛翔実績のある燃料である。第1図に示したように、圧力が大きくなると、勾配、すなわち燃焼速度定数が大きくなること、着火直後に直径が若干大きくなることなどの性状はヘプタンなどと全く同じである。高密度炭化水素は、低密度に比べて炭素帯が著しく輝き、煤の量もきわめて多いのが観察される。したがって、たかだか 1 MPa の程度の圧力までしか実験できなかった。

燃焼速度定数を圧力に対してプロットしたのが第5

第5図 高密度炭化水素液滴の燃焼速度定数

図であり、第2図のヘプタンやノルマルヘキサデカンの場合と同様に、圧力と共にほぼ直線的に大きくなる。質量変化、すなわち燃焼率は、ある特定の直径の場合を考えれば、 K に液滴密度(ρ)を乗じた値 ρK に比例することがわかる⁵⁾。そこで、第5図の K の値に ρ を乗じて整理し直すと、4種の燃料の ρK の値がほとんど一致する。これは、空気中では、高密度ほど直径の減少割合は小さいが密度が大きいので燃焼率としては中密度の場合と同程度になることを示している。他の高密度炭化水素燃料である HDF-2 (平均分子式 $C_{13.8}H_{22}$, $\rho=0.978$) および HDF-3 ($C_{14}H_{22}$, $\rho=0.998$) についてもグラフには示していないが、HDF-1 とほとんど一致し、区別できない値を示した。このように燃焼率が変わらないことは、微粒化等の問題を別にして、空気を酸化剤とする燃焼器の中で従来の燃料と同様の燃焼効率が期待できる。

しかし、酸素雰囲気中では、炭素帯がいっそう厚くなって高々 0.3 MPa までしか測定できなかったが、燃料による差が生じた。空気雰囲気内での実験から酸素内の結果は、理論解析⁹⁾の酸素濃度を変えることによって予測可能である。RJ-1J の場合は、 K の値がおおむね 1.6 倍になり、実験値と全く一致する。しかし、HDF-1 の場合は、実験値が約 30% 小さくなり、酸素濃度を上げた分だけ燃焼率は上昇しないことがわかった。実際のロケット燃焼においても¹⁰⁾、この傾向を裏付ける結果が出ている。一般的に、分子量が大きい燃料ほど煤生成が多いので、これが原因していると考えられ、今後の課題である。

4. 高圧燃焼現象の考察

高圧になると興味深い燃焼現象が生じることは前述

第6図 亜臨界圧および臨界圧における温度濃度分布モデル (臨界圧近傍で、物性値変動が著しい(b)図のような領域が存在し、温度濃度の分布が(a)図と異なってくる)

のとおりであり、その主な原因は物性値の圧力による大きな変化にあることが予想される。とくに、臨界点近傍における物性値の著しい変化には十分留意する必要がある。物性値の圧力依存性の確立されたデータは現在のところほとんどないといってよく、推算に頼るしかない。臨界点近傍では各物性値がきわめて急激な振舞いを示すことがわかっている。すなわち、圧力の上昇とともに拡散係数は小さくなり、熱伝導率は大きくなり、臨界状態が近づくとそれが急激になる。定圧比熱は臨界温度および圧力近傍で最大値をとる。燃焼は熱と物質の輸送と反応の相互作用であるから、このような物性値の挙動は、燃焼メカニズムを著しく変えることが予想されるが、問題は、このような臨界状態が火炎回りに形成されるか否かである。

第6図に、簡単な説明図を示す。液滴表面からある距離において火炎面が存在し、臨界圧以下の場合、第6図(a)のような温度および濃度分布となり、通常の拡散炎回りの状態である。第6図(b)は臨界圧あるいはそれより若干大きい圧力の場合を想定したモデル図である。空気あるいは酸素の臨界圧は燃料のそれより十分に高いので、燃料の臨界圧では、火炎より空気側に臨界状態が形成されることはない。燃料側でも、燃焼ガスで希釈された燃料が、その個所の温度で臨界かどうかによる。主な燃焼生成物である水および二酸化炭素の臨界圧は十分に高いので、臨界状態あるいはそれに類似した状態ができるとすれば、燃料濃度が高い燃料表面近くに斜線で示すように存在するであろう(第6図(b)はわかりやすくするため必ずしも表面近くになっていない)。対応状態原理等によって可能かどうか調べられなければならないが、明確に存在する根拠は見当たらない。

拡散火炎のメカニズムにとって、最も重要な拡散係数と熱伝導率(または温度拡散率)が圧力の上昇と

ともに全く逆の動きを示し、臨界状態でこれが急激になるため、燃焼状態が圧力とともに変化する要因となっている。それが燃焼速度係数の第2図のような結果として現れると考えられる。臨界圧近傍で、火炎回りに臨界状態が形成されないとしてもそれに近い状態、すなわち、物性値が大きな変化を伴う領域が形成されれば第2図は説明されうものと考えられる。

なお、臨界圧において、燃料全体の温度を上げていくと、臨界温度に達したとき、いわゆる臨界乳光を発して液面境界がなくなる。しかし、液滴の場合は温度分布が存在し、液滴表面は臨界温度に達していないと考えられ、したがって、液滴の輪郭は捉えることができ、直径の変化も求められる。最近の理論的な試み¹¹⁾においても、雰囲気温度が臨界温度の数倍にならないと表面温度が臨界温度に達しないと報告されている。したがって、物性値変動が著しい臨界状態に近い現象となる領域は、もし存在するとすれば、燃料濃度が高い表面近傍になるはずであり、燃焼生成物は臨界圧が高いので、全体の場合が臨界状態には一般的に達しにくい。

5. 噴霧の燃焼効率

上述した液滴の燃焼速度定数(K)を用いて、噴霧全体の燃焼性を簡単に把握できれば便利であるが、これまで完成された解析はない。液滴燃焼のような理想化された燃焼状態で噴霧が燃焼しないことが、もちろんその原因として当然であるが、具体的には、液滴群と酸素の混合が最も重要な過程で、燃焼効率をほとんど決定してしまうことがあるからである。したがって、混合過程や乱流モデルを取り入れた数値計算の例もあるが、最終的には経験定数を必要とする。また、このような数値計算は、ある燃焼器について実験値と良く合い始めると、種々のパラメータの変更に対する燃焼性能の変化を求めるのにはきわめて強力な武器となるが、大づかみの物理的考察には優れていない場合が多い。

一般に、液滴燃焼と噴霧燃焼は直接結びつかないといわれ、噴霧燃焼速度定数を用いる興味深い報告¹²⁾もなされている。したがって、液滴の蒸発あるいは燃焼速度定数を用いた噴霧の基礎理論解析⁹⁾は、実験と比較されることがなかったようである。そこで、基礎理論に立ち戻り、先に求めた K の変化が噴霧の燃焼効率にどのように影響するかを調べ、噴霧の燃焼性を求める簡便な方法を探ってみた。ディーゼルエンジン内では噴霧はほとんどが着火の前に蒸発してしまうとする考えもあり、蒸発時間を無視した取扱いが良い場合がある¹³⁾。したがって、粒径が小さいと、液滴

第7図 粒径分布をパラメータとしたときの燃焼室長さによる燃焼効率の変化

燃焼は実際の問題とかけ離れてしまいそうであるが、液体ロケットの場合は粒径も大きく、全体の流れも一方向であるため、液滴燃焼が応用されうる比較的良好な例と考えられる。

噴霧の粒径分布は、累積重量分率 (M) で表されることが多く、Rosin-Ramler 分布のとき、

$$M(d) = 1 - \exp \{-0.693(d/d_0)^s\} \quad (2)$$

となる¹⁴⁾ 指数 (s) と平均粒径 (d_0) を、測定された分布と合うように決めれば燃焼効率 (η_c) は、 η_c が1に近いとき、次式で求められる。

$$\eta_c \approx 1 - \frac{3\sqrt{\pi}}{4} \left(\frac{2}{s} \right)^{3/2} / (Z^{3/2} e^x) \quad (3)$$

無次元燃焼室長さ (Z) は

$$Z = \left[\frac{\Gamma\{(s-2)s\}}{\Gamma\{(s-3)/s\}} \right]^s \left(\frac{KL}{d_0^2 V} \right)^{s/2} \quad (4)$$

ただし、小さな s の値に対しては、

$$Z = \left[\frac{\Gamma(2/s)}{\Gamma(1/s)} \right]^s \left(\frac{KL}{d_0^2 V} \right)^{s/2} \quad (5)$$

となる¹⁴⁾ ここで、 L , V は、おのおの燃焼室長さ、平均流速を表す。もし、粒径分布が累積粒子数

$$G(d) = ad^t \exp(-bd^s) \quad (6)$$

で与えられれば、定数 a , b , t および s を用いて d_0 は、

$$d_0 = \left(\frac{2}{b^{1/s}} \right) \Gamma\left(\frac{t+2}{s} \right) / \Gamma\left(\frac{t+1}{s} \right) \quad (7)$$

で求められる。

こうして求めた計算結果の一例を第7図に示す。粒径分布によって、また、燃焼室長さによって著しく燃焼効率が変化していることがわかる。第8図には、実験値との比較を示す。実験値は、田村ら¹⁵⁾ のケロシン/液酸ロケットの結果で、噴射口形状3種類について燃焼室長さを変えていったものである。従来、このような実験そのものが少なく、全体の様相を捉えるのが困難であるが、長さ (L) に対し燃焼効率 (η_c) が急激に変化する様子がわかる。第2図から $K=4.65$

第8図 液体ロケット長と燃焼効率の関係¹⁴⁾

mm^2/s とし、Knight ら¹⁶⁾ の実験から $d_0=325 \mu\text{m}$ とすると、第8図のように実験と合うためには $V \approx 2 \text{ m/s}$ でなければならない。この値は、燃焼室内の平均流速がほとんど噴射口付近の流速に等しいことを意味し、適切でないように見える。しかし、固体ロケットの場合と比較すると¹⁴⁾、傾向が比較的良好に合っており、上述したパラメータ (とくに K および V) に工夫を行えば、かなり良く燃焼効率の予測が可能になると考えられる。したがって、複雑な仮定や計算を進めて、より実際に近づく努力も、もちろん必要ではあるが、液滴の燃焼速度定数を基にした基礎理論解析の利用も並行して議論されるべきものとする。

6. 今後の課題

液滴の高圧燃焼、とくに、実用的に重要な超臨界圧燃焼の詳細については、微小重力環境における実験によるのが最も良く、現在進められている研究^{17,18)} が待たれる。このような実験は容易にはできないので、浮力の影響を無視でき、しかも定常状態を形成できるような基礎実験も重要で、液滴火炎とよみ点近傍火炎のアナロジーを利用した研究¹⁹⁾ も進められている。これらの一連の研究は、米国およびヨーロッパとの国際共同で行われつつあり、高圧雰囲気における燃焼場の解明はいちだんと進むことになる。

現在のところ、第2図のような燃焼速度定数 (K) の圧力による変化を実験的解析的に両面から確認する作業が進んでいるが、実験的な難点は、炭素帯が厚くなってレーザ光をブロックしてしまい、光学的測定を困難にすることであり、解析的には高圧における物性値データが不足していることである。 K の特徴的変

化が確認されれば、温度場および濃度場が測定され、熱と物質移動の詳細が求められる。一方では、高圧における反応メカニズムもしだいに調べられ始めているので、これらを総合的に把握すれば、液滴燃焼の複合現象は明らかになっていくものと思われる。とくに、臨界圧近傍における挙動は基礎研究者の興味を引きつける。

燃焼速度定数が超臨界圧において圧力とともに小さくなる現象は、おおむね確認されつつあるといっているが、これが事実とすると、次のことが基本的にいえる。すなわち、高圧化することによって、圧力に反比例して燃焼室の大きさをコンパクトにできるが、燃焼効率も少しずつ下がることになる。前節の理論が教えるところは、 Z が K に比例しているのだから、 K の低下分だけ燃焼室長さ (L) が減少することになる。 L の影響は第 6 図に示すとおり、きわめて大きいので、急激な燃焼効率の低下が予想される。実験などによって今後確認されなければならない。

炭化水素ロケット燃焼について、基礎的な観点から考察し、解説した。高圧液滴燃焼に焦点を当てて、その物理化学的意味と、応用上の取扱いを述べた。応用の面からも、また基礎的な面からも、さらに興味深いのは 2 成分以上の燃料が混合された場合の高圧の液滴燃焼²⁰⁾であろう。臨界条件と物性値が異なる各成分同士の間で蒸発と燃焼反応がきわめて複雑な現象となることが予想される。この現象が的確に捉えられて、ロケット用混合燃料の考え²¹⁾や燃焼制御に利用されることも魅力ある課題である。このほかに、この解説では述べなかったが、基礎的に興味深く、しかも実用上も大きな問題であるのは、煤生成やコーキングの問題である。燃焼効率の低下だけでなく、エンジンの設計そのものに大きな障害になる可能性があるからである。この方面の基礎的な研究も待たれる。

終わりに臨み、第 4 図を提供していただき、本解説についてご意見ご討論いただきました河野通方 (東大工)、佐藤順一 (IHI 技研) の両氏に厚く感謝いたします。

参考文献

- 1) 毛呂明夫、橋本亮平：将来型ブースタとしての炭化水素ロケットエンジンの検討、日本航空宇宙学会誌、31 (1983)、

- pp. 548-554、および本号の特集解説。
- 2) Kadota, T. and Hiroyasu, H.: Combustion of a Fuel Droplet in Supercritical Gaseous Environments, Eighteenth Symp. (Int.) on Combustion, 1981, pp. 275-282.
- 3) Faeth, G. M. et al.: Supercritical Bipropellant Droplet Combustion, Twelfth Symp. (Int.) on Combustion, 1969, pp. 9-18.
- 4) 津江光洋ほか：高圧力下における炭化水素燃料液滴の燃焼、日本航空宇宙学会誌、35 (1987)、pp. 433-438.
- 5) 高橋 守、新岡 嵩、佐藤順一、山川紀夫：高圧における燃焼液滴の燃焼速度定数、航空宇宙技術研究所報告、TR-1001 (1988)、pp. 1-14.
- 6) 林 茂：高温・高圧の静止及び流動雰囲気中での燃料液滴の蒸発、航空宇宙技術研究所報告、TR-538 (1978)、pp. 1-18.
- 7) 津江光洋ほか：高温高圧下における燃料液滴の蒸発機構、日本航空宇宙学会誌、37 (1989)、pp. 21-28.
- 8) 津江光洋、丹羽マリオ、佐藤順一、河野通方：微小重力場における高圧力下での炭化水素燃料液滴の燃焼、第 25 回燃焼シンポジウム前刷集 (1987)、pp. 349-351、および Combustion and Flame (to appear).
- 9) Williams, F. A.: Combustion Theory, The Benjamin/Cummings, Menlo Park, 1985.
- 10) 熊谷達夫ほか：高密度炭化水素燃料/酸素の比推力性能の相对比较、日本航空宇宙学会北部支部講演会前刷集 (1988)、pp. 45-46.
- 11) 梅村 章：超臨界蒸発燃焼の基礎理論、第 23 回燃焼シンポジウム前刷集 (1985)、pp. 217-219.
- 12) 八柳信之：ロケット推進薬の噴霧燃焼速度定数、日本機械学会東北支部第 23 期総会講演会講演論文集 (1988)、pp. 121-122.
- 13) Sato, J. et al.: Ignition Process of Fuel Spray Injected into High Pressure High Temperature Atmosphere, 21st Symp. (Int.) on Combustion, 1988, pp. 695-702.
- 14) Nioka, T. and Mitani, T.: On the Relationship between Combustion Efficiency and Combustion Chamber Length, Int. Symp. on Scale Modeling, 1988, pp. 129-133.
- 15) 田村 洋ほか：液体酸素ケロシンロケットの燃焼性能の研究、航空宇宙技術研究所報告、TR-648 (1981)、pp. 1-50.
- 16) Knight, R. M. and Nurich, W. H.: Correlation of Spray Droplet Size Distribution and Injector Variables, NASA CR-107411 (1969), pp. 1-85.
- 17) 河野通方、佐藤順一、新岡 嵩：宇宙環境利用と燃焼研究、第 5 回宇宙利用シンポジウム前刷集 (1988)、pp. 294-299.
- 18) 佐藤順一、津江光洋、河野通方、新岡 嵩：微小重力場における液滴燃焼研究、第 5 回宇宙利用シンポジウム前刷集 (1988)、pp. 300-305.
- 19) 新岡 嵩：液滴火炎とよみ点近傍火炎のアナロジーについて、第 26 回伝熱シンポジウム前刷集 (1989)、pp. 815-817.
- 20) Nioka, T. and Sato, J.: Combustion and Microexplosion Behavior of Miscible Fuel Droplets under High Pressure, 21st Symp. (Int.) on Combustion, 1988, pp. 625-631.
- 21) 新岡 嵩、三谷 徹、冠 昭夫、佐藤順一：混合炭化水素燃料の燃焼性について、第 30 回宇宙科学技術連合講演会講演集 (1986)、pp. 162-163.