

生命・生物流体の輸送・混合過程に関する研究

山崎 博司 (環境安全工学科)

1. 序説

生命工学分野における近年の革新を広く人類に貢献させていくには、生命、バイオ物質の生産および応用技術の有効な連結が重要である。光合成細菌はその生命活動の一環として、有機物を分解し、水素を排出するとともに、二酸化炭素も排出する場合があることなどから、二酸化炭素の処理もまた重要な課題のひとつといえる。また発酵過程においてはアルコールを生産する場合も考えられる。エタノールまたはメタノールは化石燃料の代替として新世代内燃機関、燃料電池など、次期移動体動力源などの主力として注目されている。人類の生命活動や社会活動ではさまざまな側面では有機物が発生しており、資源循環型社会の確立にはエネルギー問題への対応のみではなく、有機物転換をエネルギー問題に関連させる観点の有効な方法のひとつと考えられる。他方、地球温暖化対策の一環として、近年植物起源燃料であるバイオアルコール利用が促進されている。このようにバイオ起源燃料や二酸化炭素処理についても今後より効率の良い有効利用を図っていくことは資源循環社会の重要な要素となるものといえる。本研究の最終年度にあたり、従来行ってきた成果を踏まえ、その応用技術および付随物質の処理についての検討もまた重要と考えられる。

現在バイオマスを原材料とする燃料の利用がカーボンニュートラルという観点から推進されており、アルコールの燃料利用が多方面から推進されている。アルコールは極性を有し、炭化水素と混合した場合、条件によっては溶解せず、相を成す。またそれらを均一に混合した場合、燃焼過程で二次微粒化が発生することも知られている。アルコール/炭化水素燃料の燃焼過程については、懸垂液滴、自由液滴などを対象として研究<sup>1)</sup>が行われてきたが、界面活性剤の問題から多くは行われていない。エマルジョン燃料およびバイオディーゼル燃料(BDF)にアルコールを添加した場合において、液滴温度、マイクロ爆発発生待ち時間分布、マイクロ爆発発生強度について検討を行うことにより、燃料設計におけるバイオ起源燃料の有効性を検討した。

2 実験装置および方法

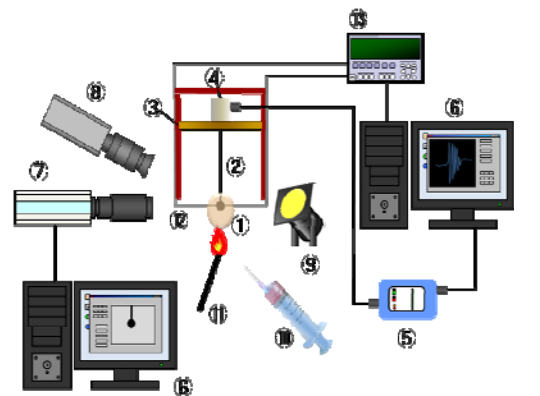
図1に実験装置の概略を示す。実験装置は燃焼実験装置、可視化系、AE測定系および温度測定系から構成される。燃焼実験装置は、懸垂線が取り付けられている測定部およびその支持部、点火系から構成される。懸垂線には直径150 $\mu$ mの石英線を用い、液滴を保持するために先端を球形に加工した。可視化系は、高速度ビデオカメラ、デジタルビデオカメラおよび光源で構成した。高速度ビデオカメラは光源に対面して設置し、液滴内の沸騰挙動および液滴の分裂、崩壊過程を1000ま

たは500fpsにて記録させた。デジタルビデオカメラは光源から90°方向に設置し、火炎挙動および液滴挙動を30fpsで撮影を行った。AEセンサは、黄銅円板の懸垂線取付側反対面に懸垂線延長線を中心軸として取り付けられている。本研究で使用したAE測定系はAEセンサ、増幅器、DSP、パーソナルコンピュータで構成されており、収集したデータは専用ソフトウェアによって処理される。サンプリング周波数は200kHzとした。温度測定系は熱電対、データロガー、パーソナルコンピュータで構成した。熱電対は直径100 $\mu$ mのR型を用い、サンプリングレートは1msとした。供試液滴をマイクロシリンジにより所定の初期液滴直径で懸垂した後、小ブタン炎によって点火を行った。30個以上の液滴について点火から燃焼終了時までの燃焼過程を観察するとともに、マイクロ爆発および液滴内沸騰が発生するまでの待ち時間を計測し、可視化結果とAE信号を対応させた。実験は、室温、大気圧下、静止空気中において行った

3. 供試燃料

3.1 エタノール含有エマルジョン燃料

ベース燃料にはn-ヘキサデカンを使用し、蒸留水およびエタノール(試薬特級)を混入させて3成分エマルジョンとした。界面活性剤はポリオキシエチレンアルキルエーテルを使用した。ベース燃料の体積割合を0.7と一定として、蒸留水、エタノール混合割合を変化させて供試燃料とし



- ① Emulsion droplet
- ② Quartz fiber
- ③ AE signal transmission plate
- ④ AE sensor
- ⑤ Amplifier
- ⑥ Personal computer
- ⑦ High speed video camera
- ⑧ Digital video camera
- ⑨ Light source
- ⑩ Micro syringe
- ⑪ Butane flame
- ⑫ R-type thermocouple
- ⑬ Data logger

Fig.1 Schematics of experimental apparatus

た. エタノール含有率 (体積割合) は  $c_e=0.0$ , 0.03, 0.05, 0.08 であり, 界面活性剤の体積割合は  $c_s=0.03$  とした. これらの試料は所定の体積比率で混合し, マグネチックスターラで攪拌し, エタノール含有エマルジョン燃料を調製した. 実験前に溶存ガスによる影響を最小限に抑えるため, およそ 6 kPa で 2 分間脱気処理を行った. 初期液滴直径  $d_0=1.1\text{mm}$  である.

### 3.2 メタノール含有 BDF

ベース燃料にはパーム油由来の高純度な脂肪酸エステル (ラウリン酸メチル, ライオン (株), 以後 M-12 と略記) を使用し, メタノール (試薬特級) を混入させた. メタノールの含有率  $c_m$  は 0.1 から 0.9 まで 0.1 おきである. これらの試料を所定の体積比率で混合し, メタノール含有燃料を調製した. 初期液滴直径  $d_0=1.0\text{mm}$  である.

## 4. 実験結果および考察

### 4.1 エタノール含有エマルジョン燃料

図 2 に液滴の燃焼過程における液滴直径の変化を示す. 横軸は点火を起点とした時間  $t_b$ , 縦軸は液滴直径  $d$  の 2 乗値であり, 両者とも初期液滴直径  $d_0$  の 2 乗値で規格化されている. エタノールを添加した場合, いずれの体積割合においても時間経過とともにほぼ直線状に減少している. また, その傾きにも大きな差異は見られない. 本研究で使用したエマルジョン燃料においては燃焼過程早期の相分離過程において添加水分が液滴内で凝集し, 炭化水素成分のみが蒸発することが確認されている. 本報においても同様の現象が観察されており, その結果としてエタノール含有率によらず燃焼速度定数は一定となったものと考えられる.

図 3 に液滴寿命分布に対するエタノール含有率の影響を示す. 横軸は点火を起点としたマイクロ爆発発生までの全待ち時間  $\tau_t$ , 縦軸は待ち時間の

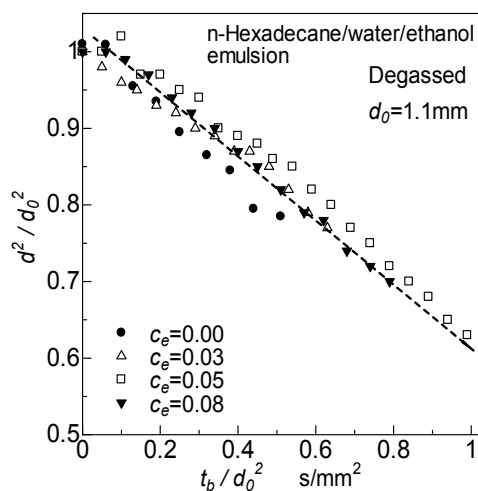


Fig.2 Time histories of squared droplet diameter of burning emulsion droplet

分布関数  $F$  である. エタノールの添加率の増加に

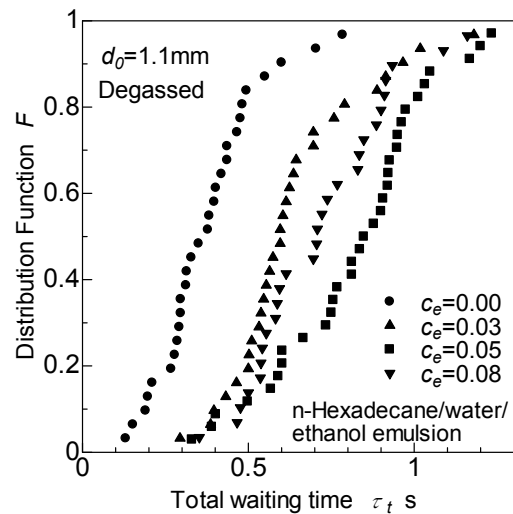


Fig.3 Effect of ethanol content on distribution function of total waiting time

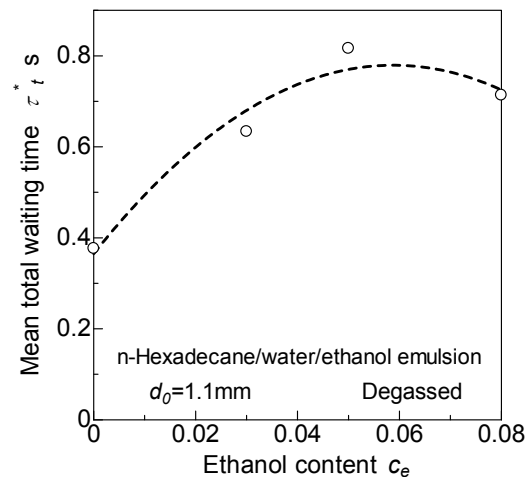


Fig.4 Effect of ethanol content on mean total waiting time

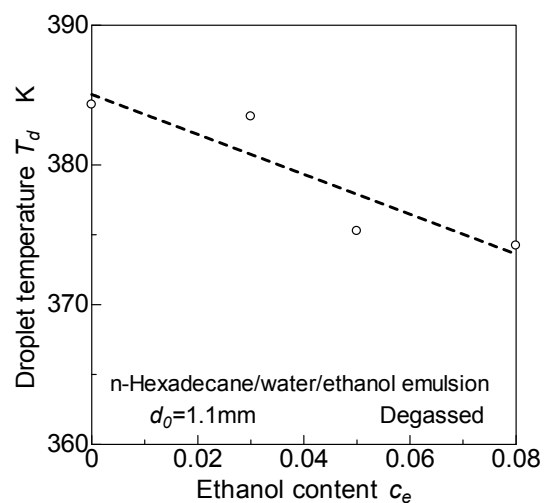


Fig.5 Mean temperature of emulsion droplet

ともない分布関数が右に移動し、 $c_e=0.05$  を境に再び左に移動していることがわかる。すなわちエタノール含有率の増加とともに液滴寿命は長くなり、 $c_e=0.05$  以上では液滴寿命が再び短くなっている。

図 4 に全待ち時間の算術平均  $\tau_i^*$  に対するエタノール含有率  $c_e$  の影響を示す。エタノール含有率の増加とともに平均液滴寿命は長くなり、 $c_e=0.05$  で極大値をとったのち減少する。液滴寿命が長くなる要因として液滴が燃焼する際のエタノール蒸発での潜熱および沸点の影響が考えられる。また  $c_e=0.05$  以降において液滴寿命が短くなった要因としては、熱容量と過熱限界温度の低下による二次微粒化発生が考えられる。

図 5 にエタノール含有率  $c_e$  と液滴の到達温度  $T_d$  の関係を示す。この図よりエタノールの増加に伴い液滴温度が下がっていくことがわかる。これはエタノール量が多くなるにつれ、その蒸発によって液滴温度が低下したと考えられる。

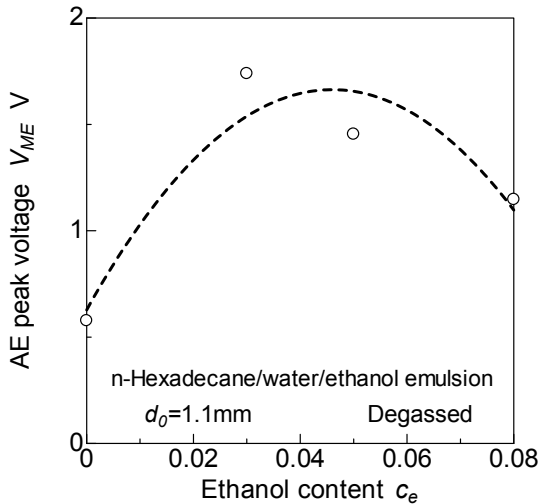


Fig.6 Effect of ethanol content on mean AE peak voltage

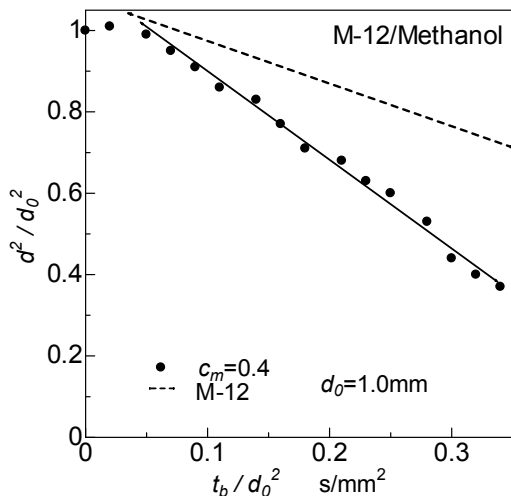


Fig.7 Time histories of squared droplet diameter of burning BDF droplet

図 6 はマイクロ爆発発生時に得られた AE 波形ピーク電圧  $V_{ME}$  の平均値に対するエタノール含有率の影響を示したものである。エタノール成分の増加とともに爆発強度は大きくなるが、 $c_e=0.03$  で極大値を示したのち減少に転じている。以上から、 $c_e=0.03$  までは液滴温度の低下は大きくなく、エタノールを加えたことにより過熱限界が低くなることによりマイクロ爆発発生が促進される。一方で、 $c_e=0.03$  以上では液滴温度の低下により爆発強度も小さくなったと考えられる。

#### 4.2 メタノール含有 BDF

図 7 に液滴の燃焼過程における液滴直径の経時変化を示す。横軸は点火を起点とした時間  $t_b$ 、縦軸は液滴直径  $d$  の 2 乗値であり、両者とも初期液滴直径  $d_0$  の 2 乗値で規格化されている。破線は M-12 における測定結果である。メタノールを添加した燃料では内部沸騰による液滴径のブレが見られるが、ほぼ一定に減少していることがわかる。混合燃料の燃焼速度定数は純粋な M-12 を燃焼させたものより大きくなる。これはパフィンングなどの二次微粒化による影響に加え、M-12 の沸点が  $260^\circ\text{C}$  であるのに対しメタノールの沸点は  $1/4$  の  $65^\circ\text{C}$  であるために点火初期の液滴温度が十分に上がっていない状態からメタノールが蒸発したことによるものと考えられる。

図 8 に  $c_m=0.5$  の混合燃料を燃焼させたときの液滴寿命の分布を示す。横軸は点火を起点とし液滴が消失するまでの液滴寿命  $\tau_i$ 、縦軸は待ち時間の分布関数  $F$  である。分布関数は発生初期からおよそ 0.4 まで急激に立ち上がり、右方向に 0.1 秒ほどシフトしてから緩やかに増加していることがわかる。分布関数は、0.0~0.4 の範囲と 0.4~0.9 の範囲および 0.9~1.0 の範囲の 3 つに分類できることがわかる。0.4 までの範囲ではマイクロ爆発が多く発生しており、液滴寿命が非常に短い。この範囲の平均液滴寿命は 0.31 秒であった。

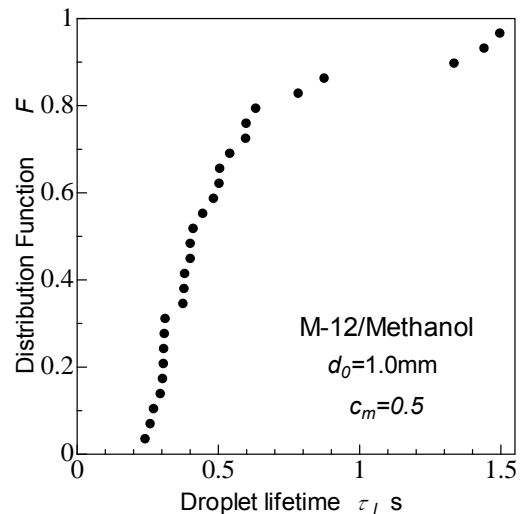


Fig.8 Distribution function of Droplet lifetime

0.4~0.9 までの範囲では激しいパフィンングおよび分裂が多く観察されたために燃焼が促進され燃焼が早期で終わっていると考えられる。この範囲の平均液滴寿命は0.52秒であった。0.9以上の範囲では極度なパフィンングなどの現象は観察されず、比較的穏やかな定常燃焼の様子が見られた。燃焼終期にマイクロ爆発が発生したのもこの範囲である。この範囲の平均液滴寿命は1.43秒であった。パフィンングおよび分裂であってもベース燃料成分だけで燃焼させた際の寿命のおよそ4割程度になっており、二次微粒化による燃焼促進効果が期待できることがわかる。

図9にメタノール含有率と平均液滴寿命の関係を示す。横軸はメタノール含有率  $c_m$ 、縦軸は平均液滴寿命  $\tau^*$  である。図からメタノール含有率が増加するにつれ液滴寿命が短くなり、 $c_m=0.6$ の時に極小値をとり、 $c_m=0.6$ 以上ではふたたび増加する傾向がみられた。純粋なM-12の液滴寿命が1.71秒であるから、 $c_m=0.1$ でも3割程度短くなっていることがわかる。 $c_m=0.1$ および0.2では大きなパフィンングや分裂がみられなかったが、 $c_m=0.3$ 以上はメタノール含有率の増加とともにパフィンングの発生頻度が高くなっていく。 $c_m=0.7$ 以上ではパフィンングは発生するがその発生までの時間が長くなる傾向がみられた。これは点火と同時に大量のメタノールが蒸発することにより、蒸発潜熱で液滴の温度が十分に上がらずにパフィンングなどの二次微粒化が抑制されたためであると考えられる。

図10は供試燃料の燃焼過程における乳化相分離過程の可視化例である。エタノールを3%添加した場合の結果である。エマルジョン液滴燃焼過程においては均質であった乳化層が分離して、二次水滴が内部に構成されていることが確認されている。これは温度上昇により界面活性剤の効果が失われる曇点を超え、乳化構造が崩壊したものであることによる。図において、同様に液滴内に二次水滴が確認できるものの、その内部にさらなる小液滴の存在が確認できる。これらは相分離時に内包されたn-ヘキサデカンである可能性が高い。マイクロ爆発をはじめとする二次微粒化は油成分による水分相の過熱に起因したものであり、湯成分の存在はその過熱過程に影響しているものと考えられ、今後その影響についても検討する必要がある。

## 5. 結言

### 5.1 エタノール含有エマルジョン燃料

エタノール含有エマルジョン液滴の燃焼過程におけるマイクロ爆発の発生について実験的に検討を行った結果、次の結論を得た。

- (1) 液滴寿命はエタノールの含有率の増加に伴い長くなるが、5%を超えた領域で減少する。
- (2) 液滴の到達温度はエタノールの含有率の増

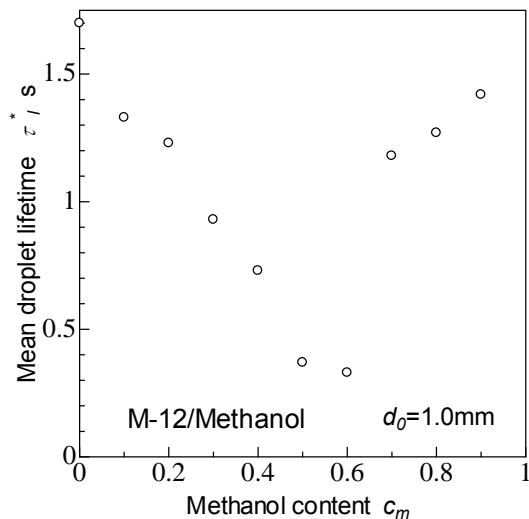


Fig.9 Effect of methanol content on mean droplet lifetime

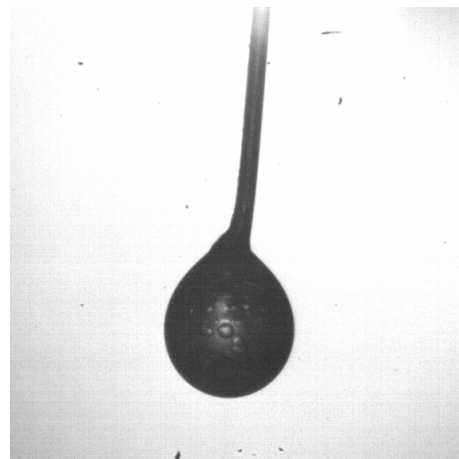


Fig.10 Phase separation of burning n-Hexadecane-water-ethanol emulsion droplet ( $c_a=0.03$ ,  $c_w=0.24$ )

加に伴い低下する。

### 5.2 メタノール含有 BDF

メタノール含有バイオディーゼル燃料のマイクロ爆発の発生について実験的に検討を行った結果、次の結論を得た。

- (1) メチルエステルにメタノールを混合した燃料において、マイクロ爆発やパフィンングなどの二次微粒化現象が発生する。
- (2) メタノール含有率の増加とともに液滴の平均寿命は短くなり、極小値を示したのち、再び増加する。

## 6. 参考文献

- 1) Wang, C. H., Liu, X. Q. & Law, C. K. Proc. Combust. Inst. 30 (2005), 1965-1972
- 2) Kadota, T. and Yamasaki, H., Prog. Energy Combust. Sci., 28 (2002), 385-404