

報告番号	甲 第 14060 号
------	-------------

## 主 論 文 の 要 旨

論文題目   メタン-水素予混合火炎における火炎特性  
                  と燃焼速度  
(Flame characteristics and burning  
velocity of methane-hydrogen premixed  
flames)

氏 名   森山 達也

## 論 文 内 容 の 要 旨

近年、地球温暖化に伴い、世界各地において気温の上昇に加え、集中豪雨・熱波や竜巻などの異常気象が発生している。これ以外にも氷河の融解による海面上昇、生態系の変化を含む数多くの気候変動による問題や災害が頻発しており、我々人類の生活はますます脅かされている。地球温暖化の抑制は、今やこの世界における最も大きな課題の一つと言える。

地球温暖化の主な原因は、人類の活動による二酸化炭素などの温室効果ガスの排出であると考えられている。温室効果ガス削減のためには、石油や天然ガスなどの化石燃料の使用量を削減する必要がある。そこで現在、化石燃料に代わる燃料として、水素が注目されている。再生可能エネルギー由来の水素はグリーン水素と呼ばれる。ただし、グリーン水素の製造量が安定せず、水素貯蔵設備などを併設しなければ、需要に対する流量・熱量の不足が生じる可能性がある。そこで、天然ガスに水素を添加・混合し、既存のガス配管を用いて輸送・利用する検討が行われている。

水素はメタンなどの炭化水素系の燃料と比較して燃焼速度が大きく逆火を起こしやすいことや、断熱火炎温度が高くなるなどの特性があるため、適切に取り扱わなければ、燃焼機器や被加熱物に損傷を与える恐れがある。したがって、上記のような水素を含む混合燃料やその火炎について、安全を担保しつつ活用してゆくためには、水素を混合した炭化水素の燃焼特性を十分に把握しておく必要がある。

そこで本研究では、火炎中の OH ラジカルに着目した。OH は燃焼場に比較的多く存在するため、火炎構造の可視化に広く用いられており、燃焼領域における OH 濃度は火炎の燃焼速度や発熱速度と相関があることも報告されている。層流火炎を対象として、水素添加時におけるこれらの関係性について確認しておくことは、火炎の基礎的な特性を把握し、今後、より複雑な燃焼形態である乱流火炎などについて検討する上で、有用であると考えられる。

本研究で検討するような混合燃料の火炎特性について把握するためには、上記のような火炎中のラジカル濃度を含む濃度場と温度場を含む火炎構造や燃焼速度・発熱速度等の推定が重要となる。しかし、すべての化学種の濃度や温度を実験により計測することは容易ではなく、さらに複数の条件および位置において計測を実施する必要があるため、莫大なコストや時間を要する作業となる。このような場合、コンピュータを用いて燃焼反応を含む数値シミュレーションを実施し、対象となる火炎を模擬することによりこれらの値を調査することは、昨今の計算機の能力向上も相まって、非常に有用な手法と言える。

ただし、自発光強度や蛍光強度の計測結果について、都市ガス用のバーナ等の燃焼機器を対象に、計測試験と同一の火炎を再現した数値シミュレーションとの組合せにより、都市ガスと水素を混焼する場合の OH 濃度や燃焼速度・発熱速度との関係性について詳細に確認した事例はほとんど存在しない。OH 濃度から燃焼速度や発熱速度を推定することが可能となれば、バーナ等の燃焼機器に水素を含む燃料を適用した場合の火炎について、逆火や局所加熱の可能性を事前に予測できる。また、その成果を基に、水素混焼に適した燃焼機器の設計や、従来の都市ガス用燃焼機器へ混合燃料を適用した際に万が一トラブルが発生した場合の原因究明にも活用できる。水素混焼時の燃焼現象の解明のためにも、上記のような検討は不可欠であると考えられる。

本研究では、工業炉向けの都市ガスバーナを対象とした検討に先立ち、家庭用燃焼機器等において広く利用されているブンゼンバーナを対象とした。最終的には乱流・非予混合火炎を形成するような工業炉向けのバーナへ同様の研究を展開することを想定しているが、ブンゼンバーナは軸対称形状の火炎が形成でき、計測および数値シミュレーションの精度が得やすく、混合燃料の基礎的な特性の把握が容易であるという利点がある。今回は都市ガスの主成分であるメタンおよび、メタン-水素の層流・予混合火炎を対象として、OH 自発光強度・蛍光強度の計測および数値シミュレーションによって、燃料組成が変化した場合の火炎中の OH 濃度の変化および、燃焼速度・発熱速度との関係を調べた。

以下に、得られた結果について示す。

#### (1) メタン-水素予混合火炎の OH 自発光強度と燃焼速度

ブンゼンバーナの火炎の自発光計測から、メタン火炎およびメタン-水素火炎の OH 自発光強度を調べた。自発光強度は、光路に沿って積分された値であるため、火炎端部と火炎中心部の値を比較し、いずれが測定位置の影響を受けにくいかを調べた。また、自発光強

度の逆アーベル変換を行って、光路上で積分される前の OH 自発光の二次元断面の値を見積った。OH 自発光強度の測定には、中心波長の異なる 4 種類のフィルタを用いた。

その結果、火炎中心部の OH 自発光強度は、火炎端部の自発光強度と比較して測定位置への依存性が小さく、逆アーベル変換によって得られる自発光強度と同じ傾向を示すことが分かった。また、中心波長 307nm のフィルタによって得られた自発光強度が、他の 3 種類のフィルタによって得られた自発光強度よりも大きい値を示した。

そこで、中心波長 307nm のフィルタを用いて火炎中心部の OH 自発光強度を求め、水素添加の影響を調べた。その結果、メタン-水素火炎の OH 自発光強度は、OH 濃度ではなく、励起された OH\* の生成速度に対して線形性が見られることが分かった。OH\* の生成速度は CH 濃度と O<sub>2</sub> 濃度の積に比例するが、CH 濃度の値は水素割合にかかわらずほぼ一定であったことから、水素を添加すると O<sub>2</sub> 濃度の分布が変化し、OH の自発光強度の値が変わることが分かった。また OH 自発光強度は、水素添加時においても燃焼速度および発熱速度との間に一定の相関が見られた。

## (2) メタン-水素予混合火炎の OH 蛍光強度と燃焼速度

メタン・空気およびメタンに水素を添加したメタン-水素・空気の予混合気を用いて、OH-PLIF によりブンゼン火炎の OH 蛍光強度を計測した。また、一次元火炎の数値シミュレーションを行い、水素を添加した場合の OH 濃度と火炎構造の変化について考察した。

その結果、過濃混合気のメタン火炎では、当量比が大きくなるにつれ OH 蛍光強度が小さくなり、数値シミュレーションにおいて得られた OH 濃度の最大値と蛍光強度の間には、比較的良い線形性が見られた。

一方、メタンに水素を添加した火炎において、メタン換算当量比一定の条件においては、水素割合が高いほど燃焼速度が低下し、蛍光強度は低下した。数値シミュレーションの結果から、水素割合が高いほど予混合気中の水素原子が減少することで、火炎における OH の生成・消費速度が低下し、これにより OH 濃度および発熱速度が小さくなり、OH 蛍光強度が減少したものと思われる。

総当量比一定の条件においては、水素割合が高いほど燃焼速度が増加し、OH 濃度および発熱速度が大きくなるため、OH 蛍光強度が増加した。水素を添加した火炎においても、蛍光強度の変化が OH 濃度の変化と同様の傾向を示すため、OH 蛍光強度と OH 濃度が比例することを確認した。総当量比一定の条件においては燃焼速度の変化が発熱速度の変化に似た傾向を示したことから、メタンに水素を添加した場合の火炎についても、OH 蛍光強度から燃焼速度と発熱速度の変化をある程度評価できることが分かった。

## (3) メタン-水素予混合火炎の二次元数値シミュレーション

メタン-水素と空気の予混合火炎を対象に、軸対称を仮定した二次元数値シミュレーションにより、燃料に水素を添加した場合の OH 濃度や発熱速度の変化について調べた結果、以下のことが明らかとなった。

予混合気中の水素割合の増加に伴い、素反応 R1 ( $\text{H}+\text{O}_2\rightleftharpoons\text{OH}+\text{O}$ ) および素反応 R2 ( $\text{O}+\text{H}_2\rightleftharpoons\text{OH}+\text{H}$ ) により OH の生成速度が増加する。その結果、予混合火炎中の OH 濃度の上昇により、主に素反応 R3 ( $\text{H}_2+\text{OH}\rightleftharpoons\text{H}_2\text{O}+\text{H}$ ) により、発熱速度が増加する。拡散火炎においては、素反応 R3 による OH 生成が見られるものの、水素割合が増加しても OH 生成速度や発熱速度はほとんど変化しない。

燃料中の水素については、そのほとんどが予混合火炎において反応・消費されているものと考えられ、水素を添加した場合においても予混合火炎より下流側の領域における組成への影響は小さい。反応速度は水素よりメタンの方が遅いため、総当量比が大きいほど予混合火炎において反応できるメタンの量が減り、逆に反応する水素の量は増加するため、水素添加による OH 濃度や発熱速度の変化への影響が大きくなる。

また、予混合火炎の OH 濃度の最大値と 3 章で示した OH 蛍光強度との関係を調べた結果、メタン火炎およびメタン-水素火炎における OH 濃度と OH 蛍光強度の関係はほぼ同一線上にあり、メタン-水素火炎においても、メタン火炎と同様に OH 蛍光強度をもとに OH 濃度変化を議論できることを確認した。ただし、同一の OH 濃度であっても水素割合が大きいほど燃焼速度は大きくなったが、発熱速度と燃焼速度の関係についてはほぼ同一直線上にあったことから、総当量比一定の条件においては、燃焼速度から発熱速度を予測できるという実験結果と同じ結論が得られた。

本論文において、ブンゼンバーナによるメタン-水素の層流・予混合火炎の OH 自発光強度、OH 蛍光強度の計測および数値シミュレーションにより、メタンと水素の混合燃料を用いた場合の火炎の OH 濃度の変化および燃焼速度と発熱速度との関係を明らかにすることができた。今後、乱流・非予混合火炎を形成するような実用燃焼器に都市ガスと水素の混合燃料を使用していく上で、水素混焼に適した燃焼機器の設計や都市ガス用燃焼機器を実際に運用する前の適性評価、トラブル原因の究明にも本研究の成果を活用できることから、脱炭素化技術を今後進めていく上で有用な知見が提供できたと考えている。