

拡散火炎における NO_x の非定常生成特性の解明と 組合せ予測手法の検証*

(燃料希釈および酸化剤予熱条件への拡張)

高石良伸^{*1}, 山下博史^{*2}

Study on Unsteady NO_x Formation Characteristics in Diffusion Flame and Verification of Combination Method Predicting NO_x Emission of Turbulent Flame

(Extension to Diluted Fuel and Preheated Oxidizer Conditions)

Yoshinobu TAKAISHI and Hiroshi YAMASHITA^{*3}

^{*3} Department of Mechanical Science and Engineering, Nagoya University,
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 464-8603 Japan

In order to predict accurately the NO_x emission of turbulent diffusion flame, we proposed the combination method based on the laminar flamelet model. In this method, the detailed kinetics calculation is separated from the turbulent flow calculation, and then they are recombined in terms of recombination parameters. We examined whether this method could be extended to diluted fuel and preheated oxidizer conditions. With the aim to find out the recombination parameters and to prove the validity of them for these conditions, we carried out the numerical calculation for the unsteady combustion characteristics of counterflow diffusion flame, in which the spout velocities of counterflow varied in a cyclic. The obtained results are as follows: It is necessary for extending this method to change the definition of the mixture fraction Z in consideration of fuel dilution. The production/consumption rates of major stable species are mostly determined by the scalar dissipation rate at flame surface SDR_q , and the production rates of intermediate products and nitric oxides are mostly determined by SDR_q and the maximum flame temperature T_{\max} . Consequently, it is verified that SDR_q and T_{\max} are appropriate as the recombination parameters for diluted fuel and preheated oxidizer conditions.

Key Words: Diffusion Combustion, Turbulent Flame, Numerical Analysis, NO Formation, Counterflow, Laminar Flamelet Model, Combination Method, Diluted Fuel, Preheated Oxidizer

1. 緒 言

近年、エネルギーの有効利用と地球環境問題の観点から、化石燃料の燃焼に対していっそう関心が高まっており、特に、実用的な燃焼器での燃焼特性や NO_x などの有害大気汚染物質の生成量を正確に予測することは緊急の課題となっている。この予測を行うためには、変動する三次元の速度場、濃度場および温度場に対して多数の素反応群からなる詳細な化学反応機構を考慮して計算しなければならないが、このような計算は最新の高性能コンピュータに対しても過大であり実用的ではない。そこで、著者らは、Laminar Flamelet Model⁽¹⁾ による「乱流場の瞬間の局所的な火炎構造は層流火炎によって模擬できる」という考えに基づき、乱流拡散火炎に対する組合せ予測手法を提案してき

た⁽²⁾⁻⁽⁶⁾。すなわち、「詳細化学反応計算」を「変動流れ場計算」から分離して行い、両方の計算で共通に定義できるパラメータを媒介として再結合するというものである。この手法では再結合パラメータは、同じ瞬間において火炎位置で定義される特性量であることが望ましい。前報⁽⁶⁾では、このパラメータとして、流れ場および燃焼場を反映する Conserved Scalar である混合分率 Z の火炎面位置におけるこう配と関連する Scalar Dissipation Rate SDR_q および最高火炎温度 T_{\max} を用いることを提案した。

この手法が成立するためには、各流れ場において同じ再結合パラメータに対する火炎構造が反応帯近傍で一致する必要がある。このことについては、すでに定常状態にある対向流拡散火炎⁽²⁾⁽³⁾ や二次元噴流火炎⁽⁴⁾、非定常対向流拡散火炎⁽⁵⁾⁽⁶⁾ について詳細に検討してきた。

最近では燃焼器の高効率化や低 NO_x 化の観点から、燃料希釈や酸化剤予熱を行う燃焼器が多くなり、このような燃焼条件に対してもこの手法が拡張して適用で

* 原稿受付 2004年3月12日。

^{*1} 大王製紙(株) (☎799-0492 伊予三島市紙屋町2-60)。

^{*2} 正員、名古屋大学大学院工学研究科 (☎464-8603 名古屋千種区不老町)。

E-mail: yamashita@mech.nagoya-u.ac.jp

きるかどうかについて検討する必要がある。そこで本報では、対向流拡散火炎の噴出速度に時間的変動を与えた場合において、燃料を窒素で希釈した条件、および酸化剤を予熱した条件に対して、NO_x 生成機構を含む詳細素反応機構を用いて計算を行い、希釈・予熱が火炎構造に与える影響、特に NO_x 生成への影響を解明し、提案した手法が拡張して適用できるかどうかについて検討した。

2. 混合分率 Z の定義の拡張

Scalar Dissipation Rate SDR_q は混合分率 Z により次式で定義される⁽⁵⁾。

$$SDR_q = D_q(\partial Z/\partial x)_q \dots \dots \dots (1)$$

ここで、D は混合気の有効拡散係数であり、添字 q は熱発生速度が最大となる火炎面位置における値であることを示し、x は火炎面に垂直方向の距離である。混合分率 Z は生成項のない保存則に基づく支配微分方程式の解である Conserved Scalar であり、これまでの研究では窒素濃度を、次式のように、燃料側(添字 F)と酸化剤側(添字 O)の値で正規化したものを用いてきた^{(2)~(6)}。

$$Z = \frac{Y_{N_2} - Y_{N_{2,0}}}{Y_{N_{2,F}} - Y_{N_{2,0}}} \dots \dots \dots (2)$$

しかしながら、燃料を不活性ガスで希釈する場合にはこの定義では希釈の効果が表せない。本来の拡散火炎の意味を考えれば、燃料と酸化剤自体の濃度が重要であり、不活性ガスである窒素の濃度は副次的なものである。したがって、このような場合には燃料と酸化剤の濃度の結合関数で定義される次式を用いなければならないと考えられる⁽⁷⁾。

$$Z_0 = \frac{(Y_{CH_4} - Y_{O_2}/j) - (Y_{CH_{4,0}} - Y_{O_{2,0}}/j)}{(Y_{CH_{4,F}} - Y_{O_{2,F}}/j) - (Y_{CH_{4,0}} - Y_{O_{2,0}}/j)} \dots (3)$$

ここで、j は量論酸素・燃料質量比であり、メタン・空気系では j=4 である。なお拡散火炎の場合には、燃料側には酸素が存在せず、また酸化剤側にはメタンは存在しないので、上式において、Y_{O_{2,F}} = Y_{CH_{4,0}} = 0 である。本研究では、燃料を希釈しない場合と希釈した場合を統一的に取扱うために、燃料側では、希釈しない場合を基準として、つねに Y_{CH_{4,F}} = Y_{CH_{4,F}|non-diluted} = 1 とした。また、酸化剤側では、通常空気を用いる場合を基準として、つねに Y_{O_{2,0}} = Y_{O_{2,0}|regular-air} = 0.232 とした。すなわち、式(3)は次のように表される。

$$Z_0 = \frac{(Y_{CH_4} - Y_{O_2}/j) - (0 - Y_{O_{2,0}}|_{regular-air}/j)}{(Y_{CH_{4,F}}|_{non-diluted} - 0) - (0 - Y_{O_{2,0}}|_{regular-air}/j)} \dots \dots \dots (4)$$

なお、混合分率の値は、純粋燃料と通常空気を用いた条件では 0 から 1 となり正規化されているが、それ以外の条件では 0 から 1 にはならない。この式(4)を用いて、数値計算結果から混合分率 Z₀ を算出することを試みたが、火炎面近傍ではメタンおよび酸素濃度の分布には、当然ながら素反応機構の効果が現れるため、Z₀ は生成項の影響を直接受けやすく、反応帯付近で素反応機構による差異が生じてしまう。これに対し、窒素濃度で定義した混合分率 Z にはそのような効果が現れず、反応機構による差異が生じにくく都合がよい。そこで、Z₀ は燃料側境界での混合分率の値を指定するためにのみ使い、燃焼場内部の混合分率の分布の算出には従来どおり Z を用いることとした。すなわち、混合分率 Z の式(2)を燃料希釈の効果を表すように修正して次式のように定義した。

$$Z = \frac{(Y_{CH_{4,F}} - 0) - (0 - Y_{O_{2,0}}|_{regular-air}/j)}{(Y_{CH_{4,F}}|_{non-diluted} - 0) - (0 - Y_{O_{2,0}}|_{regular-air}/j)} \times \frac{Y_{N_2} - Y_{N_{2,0}}}{Y_{N_{2,F}} - Y_{N_{2,0}}} \dots \dots \dots (5)$$

この式から、混合分率 Z は燃料希釈割合が多くなるにつれて燃料側での値が小さくなるのがわかる。この式を用いることにより、燃料の希釈の有無によらず、拡散火炎の挙動を統一的に表すことができるかどうかについて以下で検証する。

3. 解析モデルおよび計算手法

平面二次元対向流拡散火炎の解析モデルを図1に示す。下方から窒素で希釈されたメタン、上方から予熱された空気を対向して流出させる。メタン流と空気流の温度および濃度の境界条件を設定するために仮想的に距離 L=15 mm だけ離れた二つのノズルが対向しているものとし、下部ノズルの中心を原点として、ノズル軸方向および軸に垂直方向の座標を (x, y) とする。軸方向の速度成分を u、および密度を ρ とする。ノズル出口における燃料と酸化剤の質量流束比は

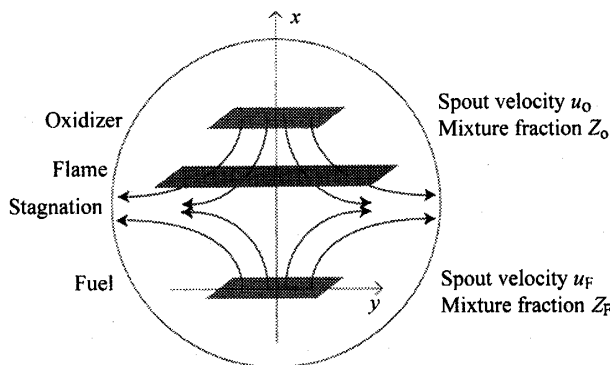


Fig. 1 Theoretical model of counterflow diffusion flame

$\rho_F u_F / \rho_0 u_0 = 1.8$ とした。速度こう配を $K_f = (u_F + u_0)/L$ と定義する。圧力は大気圧で、燃料のノズル出口温度は $T_F = 300$ K とし、酸化剤のノズル出口温度は $T_0 = 300, 600, 900$ K および 1200 K とした。また燃料側のメタンの質量分率は $Y_{CH_4,F} = 0.4, 0.6, 0.8$ および 1.0 とし、残りは希釈剤の窒素とした。定常状態における燃料側ノズル出口速度を $u_F = 0.5, 1.0, 1.5$ m/s および 2.0 m/s とした。また火炎の非定常過程を考察するために、ノズル出口速度 u_m に対する定常解を初期値として、出口速度に正弦振動 $u_F = u_m \{1 + Amp \cdot \sin(2\pi ft)\}$ を加え、十分時間が経過したあとの準定常状態について検討した。ここで平均速度 $u_m = 1.0$ m/s, 速度変動の振幅 $Amp = 0.8$, および振動数 $f = 100 \sim 1000$ Hz とした。

流れ場については準定常ポテンシャル流れ、すなわち、速度場はノズル出口速度の非定常変化に瞬時的に対応した定常分布となると仮定している。また、温度場および濃度場においては相似解が適用でき、 y 方向には変化しないものとする⁽⁴⁾。反応機構としては NO_x 生成反応を含む GRI メカニズム GRI-mech 2.11⁽⁸⁾ を用いた。熱力学定数については CHEMKIN データベース⁽⁹⁾ から求め、輸送係数は Simplified Transport Model⁽¹⁰⁾ を拡張して算出した。

対流項の差分化には一次風上差分、時間方向については Euler の完全陰解法を適用し、時間刻みは $\Delta t = 5 \mu s$ とした。各時間ステップにおいて SOR 法による繰返し計算を行った。差分格子は等間隔格子とし、格子幅 0.075 mm の 201 点とした。

また、単位火炎面面積あたりの熱発生速度および化学種の質量生成速度は次式で計算した。

$$Q_{sum} = \int_0^L Q dx \dots\dots\dots (6)$$

$$w_{i,sum} = \int_0^L w_{i,k} dx \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 L は二つのノズル間の距離である。

4. 計算結果および考察

4.1 燃料希釈による火炎構造への影響 本節では、燃料を窒素で希釈した場合の火炎構造に与える影響について検討する。

まず、定常解の場合として、燃料側質量流束 $\rho_F u_F = 0.641$ kg/(m²·s), 酸化剤ノズル出口温度 $T_0 = 900$ K, メタンの質量分率 $Y_{CH_4,F} = 0.4 \sim 1.0$ における軸方向速度 u , 発熱速度 Q , スカラ散逸速度 SDR , 温度 T , NO の質量分率 Y_{NO} および質量生成速度 w_{NO} の空間分布を図 2(a)~(f) に示す。速度分布からわかるように、よどみ点位置は $x = 5.3$ mm である。燃料希釈

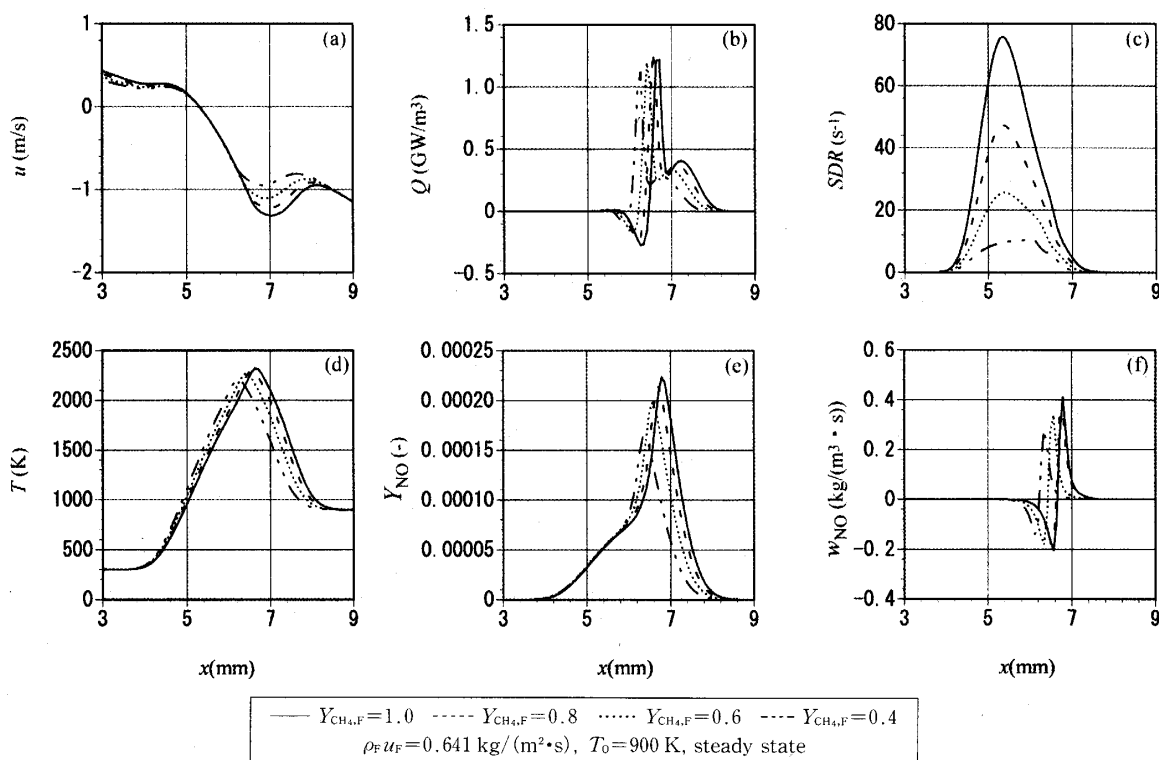


Fig. 2 Effects of fuel dilution on instantaneous distributions of various physical quantities, (a) Velocity in x -direction, (b) Heat release rate, (c) SDR , (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO, (f) Mass production rate of NO

割合が大きくなりメタンの質量分率 $Y_{\text{CH}_4,\text{F}}$ が小さくなると、量論関係に従って、発熱速度が最大となる火炎面位置は酸化剤側からよどみ点のほうに移動する。また、反応物濃度が小さくなるため、発熱速度のピーク値は減少し、最高火炎温度も低下する。火炎温度の低下により、NOの質量生成速度は減少し、その濃度も低下する。

次に、非定常特性を調べるために、速度変動の振動数 $f=100$ Hz の場合について、燃料ノズル出口速度 u_{F} 、単位火炎面面積あたりの熱発生速度 Q_{sum} 、火炎面でのスカラ散逸速度 SDR_q 、最高火炎温度 T_{max} 、CO₂ および NO の全質量生成速度 $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$ および $w_{\text{NO},\text{sum}}$ の一周期にわたる時間変化を図 3(a)~(f) に示す。定常の場合には、速度こう配が大きくなると、燃料および酸化剤の濃度こう配が大きくなるため、反応帯へのそれらの供給量が多くなるので発熱速度が大きくなる。一方で、温度こう配も大きくなり放熱速度が大きくなるため、有限反応速度の効果が現れるような場合には、火炎温度が低下することが知られている。このことを考慮すると、非定常の場合には、ノズル出口速度の正弦振動に対して、燃焼場を表す諸量は位相遅れを伴った挙動を示していることがわかる。これに対し、発熱速度 Q_{sum} および $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$ と SDR_q の変化の

間には対応関係が見られる。また、 $w_{\text{NO},\text{sum}}$ は最高火炎温度 T_{max} の変化と同様な挙動を示していることがわかる。このような挙動は前報⁶⁾ で得られた結果と同様であり、 SDR_q および T_{max} は再結合パラメータとして、燃料希釈条件に対して拡張して用いることができることを示唆している。

4.2 酸化剤予熱による火炎構造への影響 ここでは、酸化剤を予熱した場合の火炎構造に与える影響について検討する。

まず、燃料側出口流速 $u_{\text{F}}=1.0$ m/s、燃料のメタンの質量分率 $Y_{\text{CH}_4,\text{F}}=1.0$ 、酸化剤ノズル出口温度 $T_0=300, 600, 900$ K および 1200 K の定常条件における軸方向速度 u 、発熱速度 Q 、スカラ散逸速度 SDR 、温度 T 、NO の質量分率 Y_{NO} および質量生成速度 w_{NO} の空間分布を図 4(a)~(f) に示す。これらの条件の場合には酸化剤側の密度が大きく変化するので、質量流束が同じになるように酸化剤の出口速度を調整した。したがって、よどみ点位置は変化しない。なお、酸化剤側出口速度は大きくなり、速度こう配は大きくなる。また、量論関係は変わらないので火炎面位置はほとんど変化しない。このように、ノズル出口での密度が変化する場合には、速度こう配ではなく質量流束こう配が火炎構造を支配することに注意する必要がある

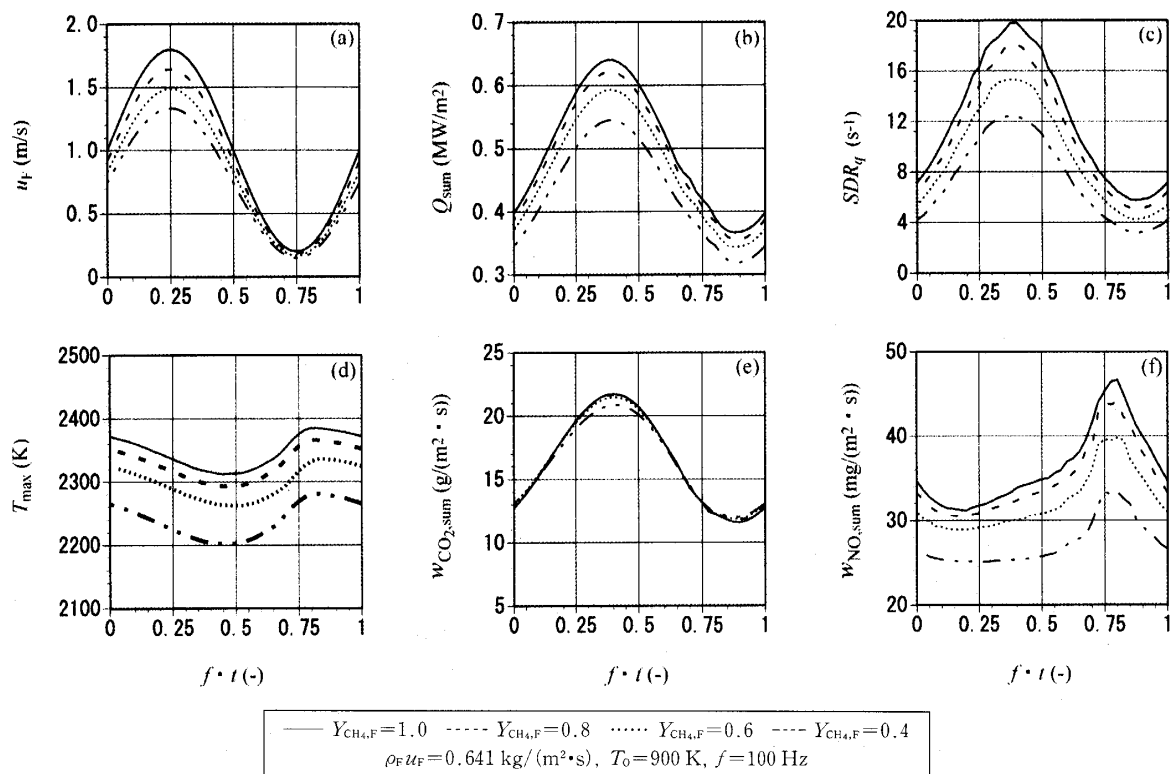


Fig. 3 Effects of fuel dilution on periodic variations of various physical quantities, (a) Spout velocity of fuel, (b) Total heat release rate, (c) SDR_q , (d) Maximum temperature, (e) Total mass production rate of CO₂, (f) Total mass production rate of NO

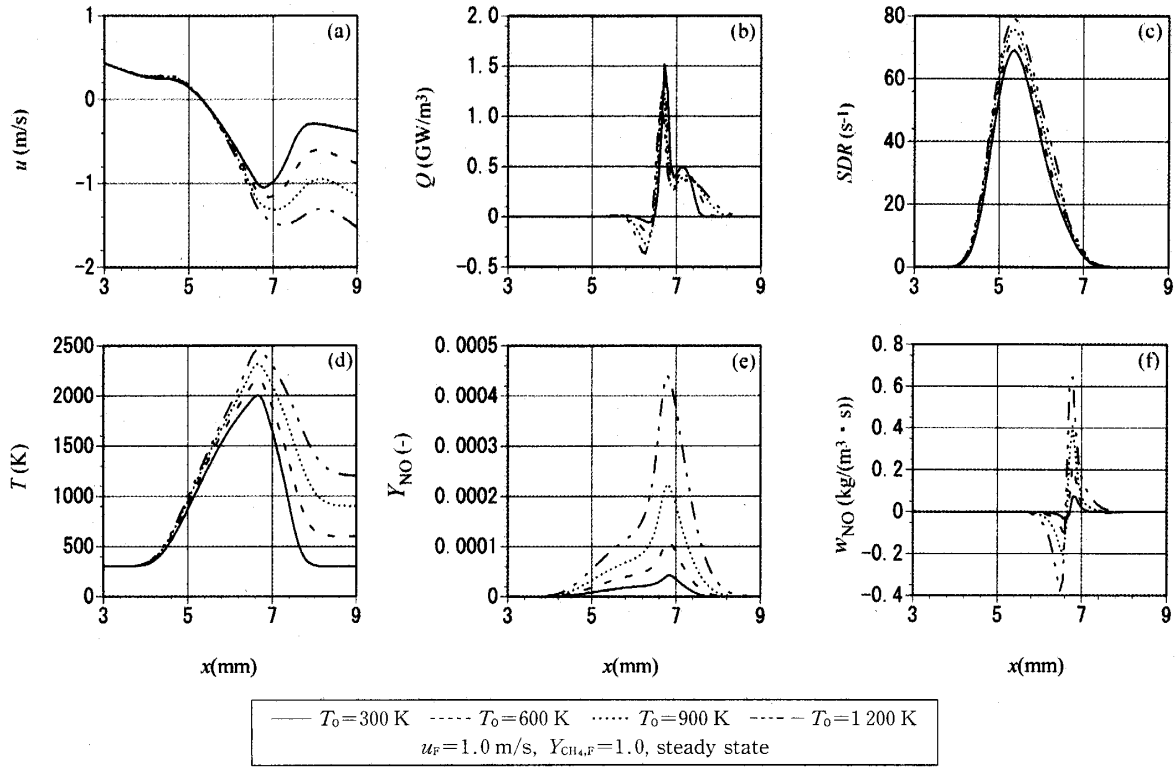


Fig. 4 Effects of oxidizer preheat on instantaneous distributions of various physical quantities, (a) Velocity in x -direction, (b) Heat release rate, (c) SDR, (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO, (f) Mass production rate of NO

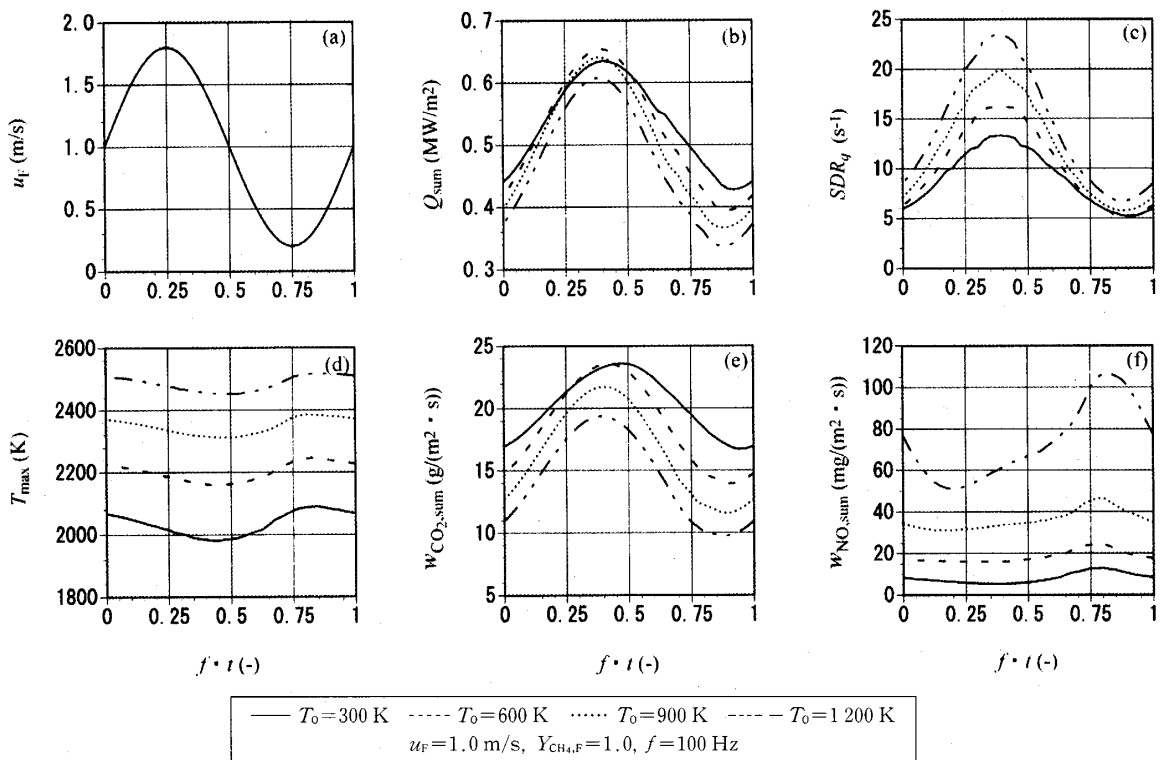


Fig. 5 Effects of oxidizer preheat on periodic variations of various physical quantities, (a) Spout velocity of fuel, (b) Total heat release rate, (c) SDR_d, (d) Maximum temperature, (e) Total mass production rate of CO₂, (f) Total mass production rate of NO

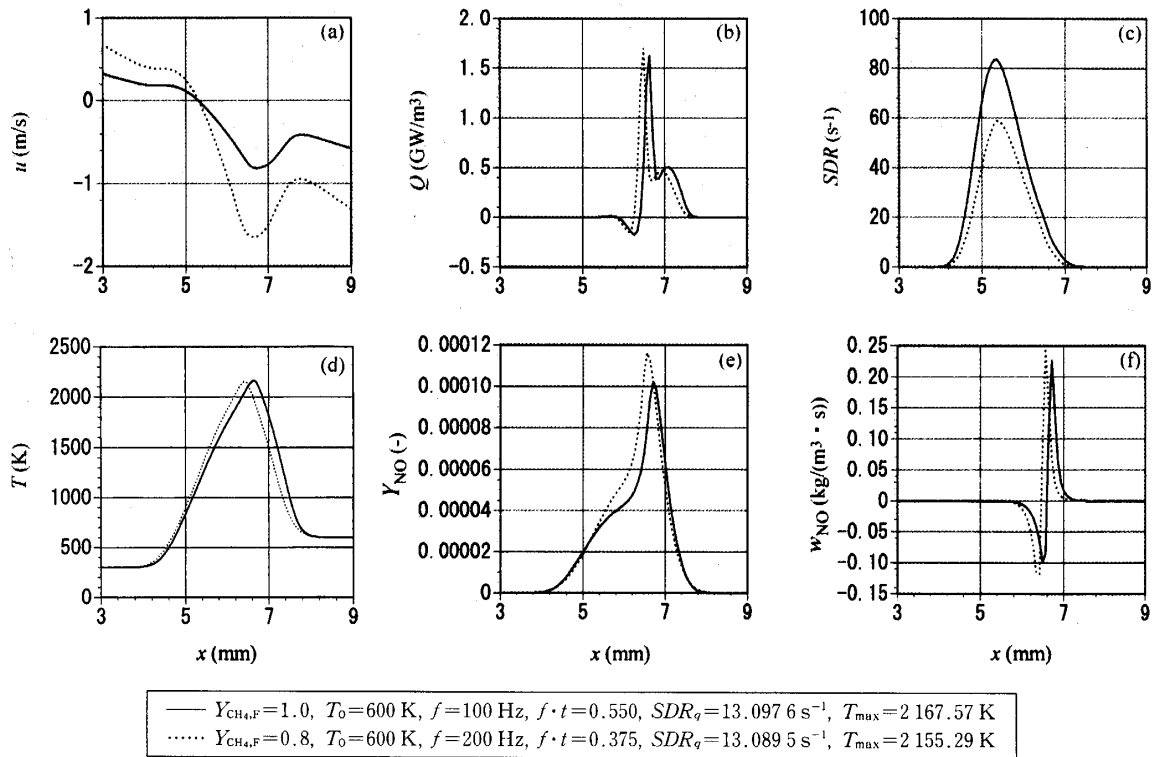


Fig. 6 Instantaneous distributions of various physical quantities for $SDR_q \approx 13.1 \text{ s}^{-1}$ and $T_{\max} \approx 2160 \text{ K}$, (a) Velocity in x -direction, (b) Heat release rate, (c) SDR , (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO , (f) Mass production rate of NO

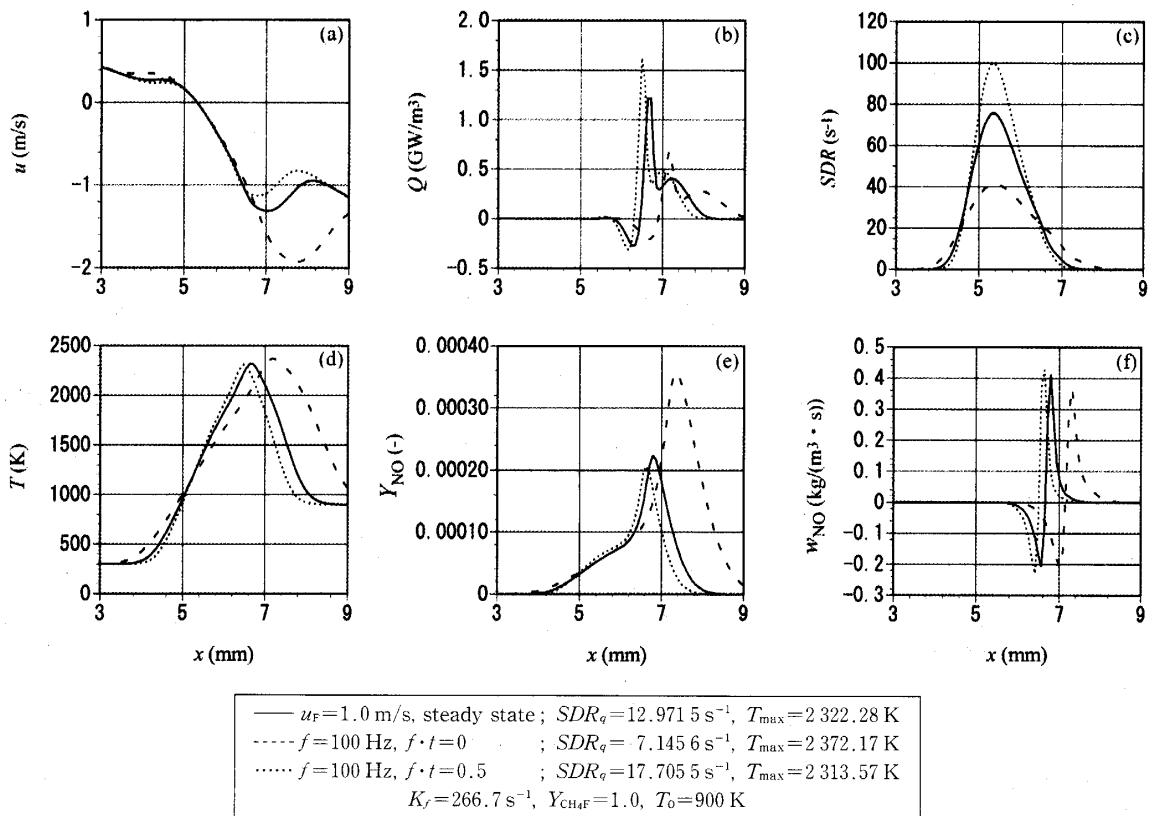


Fig. 7 Instantaneous distributions of various physical quantities for $K_f = 266.7 \text{ s}^{-1}$, (a) Velocity in x -direction, (b) Heat release rate, (c) SDR , (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO , (f) Mass production rate of NO

る。予熱温度が増加するのに従い、最高火炎温度は上昇するが発熱速度の最大値は低下する。ここでは質量流束こう配は同じになるように設定してあるので、これは酸化剤を予熱した影響により火炎温度が高くなり、ル・シャトリエの原理と同様な作用により、反応帯で発熱反応が抑えられ、吸熱反応が活発になったために、発熱速度の最大値が減少したものと考えられる。また、その効果により、最高火炎温度の増分は予熱温度の増分に比べて小さい。火炎温度の上昇により、 NO の質量生成速度は増大し、その濃度も上昇する。なお、図 4 には示していないが、混合分率 Z の分布は酸化剤予熱温度によらずほぼ一致しており、そのこう配に関係するスカラ散逸速度 SDR の分布も、拡散係数の温度依存性によりわずかに異なるだけである。

次に、ノズル出口速度に正弦振動を加えた非定常条件において、振動数 $f=100$ Hz の場合の燃料ノズル出口速度 u_F 、単位火炎面積あたりの熱発生速度火炎面 Q_{sum} 、火炎面でのスカラ散逸速度 SDR_q 、最高火炎温度 T_{max} 、 CO_2 および NO の全質量生成速度 $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$ および $w_{\text{NO},\text{sum}}$ の一周期にわたる時間変化を図 5(a)~(f) に示す。

非定常の場合には、燃料希釈条件のときと同様に、ノズル出口速度の正弦振動に対して諸量は位相遅れを伴った挙動を示している。発熱速度 Q_{sum} および $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$ の挙動は SDR_q の変化によく対応する。また、 $w_{\text{NO},\text{sum}}$ は最高火炎温度 T_{max} の変化と同様な挙動を示す。これらの結果は、酸化剤予熱条件に対しても、 SDR_q および T_{max} は再結合パラメータとして拡張して用いることができることを示唆している。

4.3 再結合パラメータ SDR_q および T_{max} の妥当性

4.3.1 SDR_q および T_{max} の同一の値における火炎構造

燃料希釈条件および酸化剤予熱条件に対して、 SDR_q および T_{max} の再結合パラメータとしての妥当性について検討する。そのため、異なる非定常状態で、同じ SDR_q および T_{max} の値をもつ瞬間の火炎構造を比較する。例として、 $SDR_q \approx 13.1 \text{ s}^{-1}$ かつ $T_{\text{max}} \approx 2160 \text{ K}$ の場合について、軸方向速度 u 、発熱速度 Q 、スカラ散逸速度 SDR 、温度 T 、 NO の質量分率 Y_{NO} および質量生成速度 w_{NO} の空間分布を図 6(a)~(f) に示す。火炎面位置は異なっているが、火炎面近傍での諸量の分布形状はよく一致していることがわかる。

ここで、比較のために、速度こう配 K_f を同一とした場合について検討する。燃料のメタンの質量分率 $Y_{\text{CH}_4,\text{F}}=1.0$ および酸化剤ノズル出口温度 $T_0=900 \text{ K}$

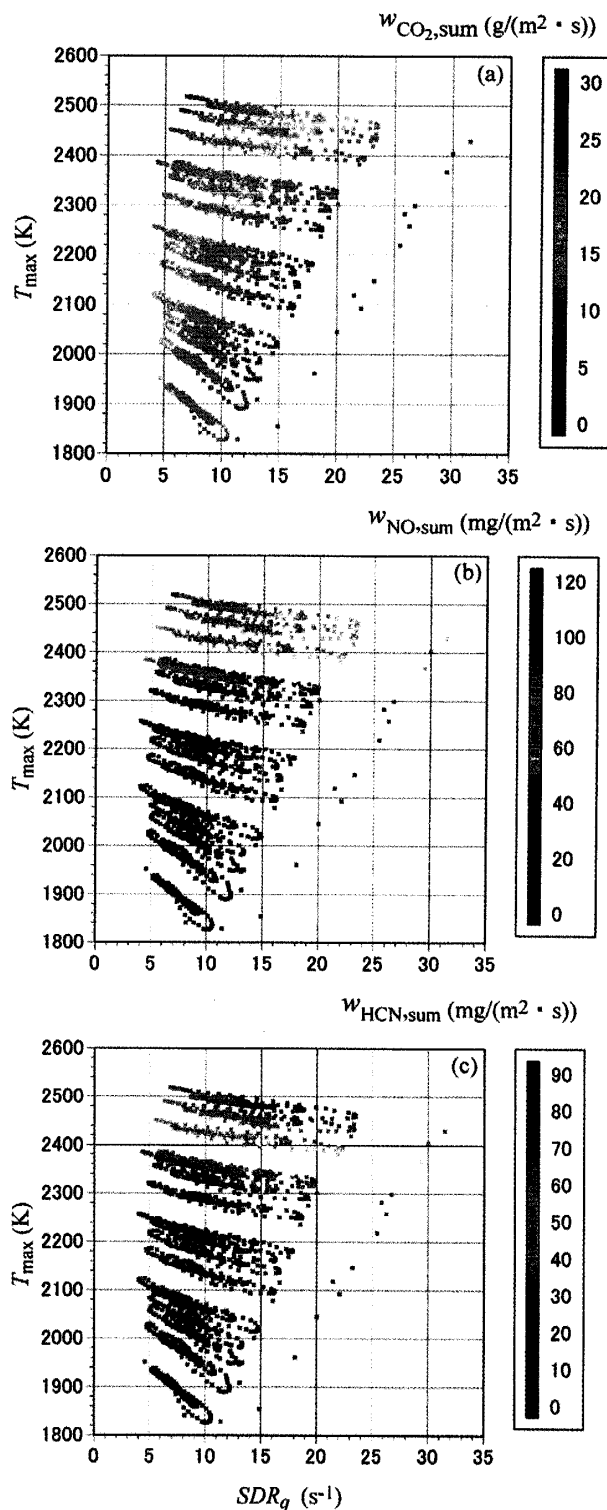


Fig. 8 Relationship of various physical quantities to SDR_q and T_{max} , (a) $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$, (b) $w_{\text{NO},\text{sum}}$, (c) $w_{\text{HCN},\text{sum}}$

の条件で、燃料側出口速度 $u_F=1.0 \text{ m/s}$ に対応する速度こう配 K_f をもつ場合として、定常条件における解と、非定常条件において振動数 $f=100$ Hz とした場合で、位相 $f \cdot t=0$ および 0.5 の瞬間における解を用いて、火炎構造を図 7(a)~(f) に示す。図 7 からわか

るように、速度こう配が同じでも、火炎面付近での諸量の空間分布形状および大きさは異なっており、瞬間の速度こう配だけでは火炎構造は一意的には決まらない。

以上のように、 SDR_q および T_{\max} を用いることで火炎構造が一意的に定まることから、 SDR_q および T_{\max} は燃料希釈条件および酸化剤予熱条件に対して、再結合パラメータとして拡張して用いることは妥当であるといえる。

4・3・2 SDR_q および T_{\max} と燃焼状態を表す諸量との関係 SDR_q および T_{\max} と CO_2 , NO および HCN の全質量生成速度 $w_{i,\text{sum}}$ の関係を図8(a)~(c)に示す。 $w_{i,\text{sum}}$ の値は SDR_q - T_{\max} 平面上にプロットされた各点の色を最小値が青色、最大値が赤色となる擬似カラーで表示し、そのカラーバーを図8の右側に示す。燃焼状態を表す諸量、特に NO などの生成特性は、(SDR_q , T_{\max}) の同一点においてほぼ同じ色になっている。すなわち、非定常火炎の特性が二つの再結合パラメータで決定されることがわかった。したがって、今回計算を行った燃料希釈・酸化剤予熱条件においても、 SDR_q と T_{\max} を再結合パラメータとして用いることにより、条件を問わず統一的に扱うことができ、火炎構造を一意的に決めることができることが明らかとなった。

5. 結 論

本研究では、乱流拡散火炎における NO_x の生成量に対する組合せ予測手法を、燃料希釈および酸化剤予熱条件へ拡張し、その場合の再結合パラメータを決定し、その妥当性を検討することを目的として、噴出速度に時間的変動を与えた対向流拡散火炎の非定常燃焼特性に関する数値解析を行い、以下のような知見を得た。

(1) 燃料希釈割合が増加すると、火炎は燃料側に移動し、火炎温度が低下する。この結果、 NO の生成量は減少する。

(2) 酸化剤予熱温度が増加すると、火炎温度は上昇するが、その増分は予熱温度の増分より小さくなる。また、 NO の生成量は火炎温度の上昇に伴い、急激に増加する。

(3) 混合分率 Z の定義において、純粋な燃料と通常空気の状態を基準として正規化を行うことにより、 SDR_q と T_{\max} を用いて、火炎全体での発熱速度および各化学種の生成量が一意的に予測できる。したがって、燃料希釈・酸化剤予熱条件においても、 SDR_q と T_{\max} は再結合パラメータとして妥当である。

本研究は文部科学省科学研究費補助金(No. 14550177)、および(財)大幸財団からの支援を受けて行われたものである。ここに記して謝意を表す。

文 献

- (1) Peters, N., *Prog. Energy Combust. Sci.*, **10** (1984), 319-339.
- (2) Takeno, T., Nishioka, M. and Yamashita, H., *Turbulence and Molecular Processes in Combustion*, (1993), 375, Elsevier.
- (3) Yamashita, H., Nishioka, M. and Takeno, T., *Energy Convers. Mgmt.*, **38**-10-13 (1997), 1343-1352.
- (4) 山下博史, 機論, **65**-630, B (1999), 783-789.
- (5) 山下博史, 燃焼研究, **124** (2001), 47-55.
- (6) 清水昭博・山下博史・高石良伸・趙黛青, 機論, **69**-678, B (2003), 453-460.
- (7) Williams, F. A., *Combustion Theory*, (1985), 9-13, The Benjamin/Cummings Publishing.
- (8) GRI, <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>, 1995.
- (9) Kee, R. J., ほか2名, *Sandia Rep.*, SAND 89-8009, Sandia National Laboratory, Livermore, CA, (1989).
- (10) Smooke, M. D., *Reduced Kinetic Mechanisms and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames*, (1991), 1-28, Springer-Verlag.