

# 酸素富化空気を用いた対向流火炎の火炎構造および $\text{NO}_x$ 生成に関する数値解析\*

(速度こう配が  $\text{NO}_x$  生成の抑制に与える影響)池田 光芳<sup>\*1</sup>, 趙 黛 青<sup>\*2</sup>, 山下 博史<sup>\*3</sup>

## Numerical Study on Flame Structure and $\text{NO}_x$ Formation of Counterflow Flame Using Oxygen-Enriched Air (Effect of Strain Rate on Reduction of $\text{NO}_x$ Formation)

Mitsuyoshi IKEDA, Daiqing ZHAO and Hiroshi YAMASHITA<sup>\*4</sup><sup>\*4</sup> Department of Mechanical Science and Engineering, Nagoya University,  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 464-8603 Japan

In this study, numerical simulations for the flame structure and  $\text{NO}_x$  formation of counterflow diffusion flame with oxygen-enriched air were made by using the GRI chemical reaction mechanism ( $\text{NO}_x$  included) in order to elucidate the effect of strain rate on reduction of  $\text{NO}_x$  formation. The following conclusions were reached: (1) As the strain rate increases, the maximum heat release rate increases, and the width of high-temperature zone becomes narrow. (2) In the case where the strain rate is small, the thermal NO mechanism is dominant of NO formation, and NO formation by the prompt NO mechanism is negative. (3) As the strain rate increases, NO formation by the prompt NO mechanism increases, and it becomes positive when strain rate exceeds  $400 \text{ s}^{-1}$ . At the same time, since the width of high-temperature zone becomes narrow, that by the thermal NO mechanism decreases, and it becomes smaller than that by prompt NO mechanism for the case where the strain rate exceeds  $1200 \text{ s}^{-1}$ . The decrease rate of thermal NO is bigger than the increase rate of prompt NO, so that the total NO formation is reduced by the increase in the strain rate.

**Key Words:** Counterflow Flame, Numerical Analysis, Oxygen-Enriched Air,  $\text{NO}_x$  Formation, High-Temperature Combustion, Strain Rate

## 1. 緒 言

酸素富化空気燃焼は従来より製鉄やガラス溶融のような非常に高い温度場が必要となる分野で応用されているが<sup>(1)</sup>、近年、地球環境保全の関心が高まるなかで、その優れた省エネルギー性や、 $\text{CO}_2$  の削減および回収の容易さに注目が集められている。しかし、この燃焼法の進展には、火炎の高温化に伴う  $\text{NO}_x$  生成の増加に対する抑制技術の開発が不可欠である。

これまでの研究では、酸素濃度 30~40% の酸素富化空気燃焼に対する平衡計算により、火炎温度やエネルギー効率が高いことが示されている。また、詳細素反応機構を考慮した予混合火炎の数値計算により、予混合気の当量比を 0.5 以下もしくは 1.5 以上で燃焼させる場合、 $\text{NO}_x$  濃度を 100 ppm 以下に抑制することができることが明らかにされている。しかしながら、実際の燃焼器では、空気と燃料の総括的な当量比が 1.0 程度になる必要があるために、上記のような燃料希薄

あるいは過濃燃焼後の再燃焼過程における  $\text{NO}_x$  の抑制も非常に重要であることが指摘されている<sup>(2)(3)</sup>。また、高酸素濃度での燃焼や、実際の燃焼器で重要な燃焼場の濃度および温度の空間分布を考慮した研究も最近なされてきているがいまだ十分ではない<sup>(4)~(6)</sup>。

前報<sup>(7)</sup>では、詳細素反応機構を考慮し、酸素富化空気を用いた対向流拡散火炎および二重火炎の数値解析を行い、酸化剤の酸素濃度と過濃予混合気の当量比が火炎構造および  $\text{NO}_x$  生成に与える影響を明らかにした。特に、拡散火炎では、酸素の質量分率が 0.8 の場合に NO 生成が最も大きく、Thermal NO 機構が支配的であることを示した。

そこで、本研究では、前報の結果を踏まえて、NO 生成抑制の観点から、火炎温度を低下させ、高温領域を狭めるのに有力な方法であると考えられる速度こう配の増加が NO 生成の抑制に与える影響について検討した。これらの研究は、高効率ならびに低汚染の酸素富化燃焼技術の開発に有用な知見を与えると考える。

## 2. 解析モデルおよび計算方法

本研究で用いた平面二次元対向流拡散火炎の解析モデルを図 1 に示す<sup>(8)</sup>。二つのノズルが距離  $L$  だけ離

\* 原稿受付 2004 年 3 月 12 日。

<sup>\*1</sup> 名古屋大学大学院工学研究科。<sup>\*2</sup> 正員、中国科学院広州エネルギー研究所(番号 510640 中国広州市天河区能源路 1 号)。<sup>\*3</sup> 正員、名古屋大学大学院工学研究科(番号 464-8603 名古屋市千種区不老町)。

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

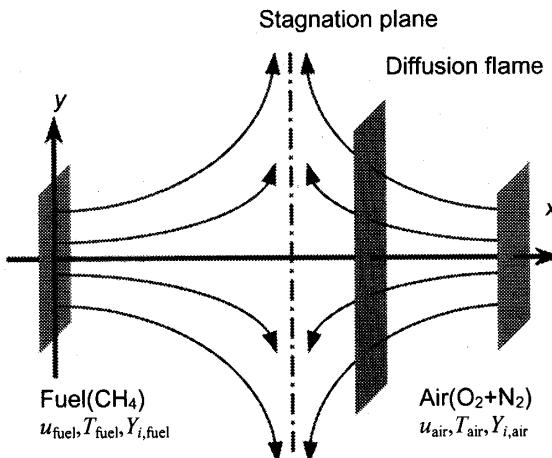


Fig. 1 Analytical model of counterflow diffusion flame

れ対向していると仮定する。左側ノズルから燃料が速度  $u_{\text{fuel}}$ , 温度  $T_{\text{fuel}}$ , 濃度  $Y_{i,\text{fuel}}$  で、右側ノズルから酸化剤が速度  $u_{\text{air}}$ , 温度  $T_{\text{air}}$ , 濃度  $Y_{i,\text{air}}$  で噴射される。この場合には、燃料側のノズル寄りによどみ面が存在し、よどみ面の酸化剤側に拡散火炎が形成される。計算条件は以下のように設定した。燃料は純粋なメタン、酸化剤は酸素富化空気とし、前報<sup>(7)</sup>において最もNO生成が顕著であった酸素および窒素の質量分率  $Y_{\text{O}_2,\text{air}}=0.8$  および  $Y_{\text{N}_2,\text{air}}=0.2$ とした。温度は  $T_{\text{fuel}}=T_{\text{air}}=300\text{K}$  とした。速度こう配を幅広く設定するために、 $L$ としては15 mmと3 mmの2種類を用いた。ノズル出口速度は  $L=15\text{mm}$  で  $u_{\text{fuel}}=u_{\text{air}}=1.0\sim21.0\text{ m/s}$ ,  $L=3\text{mm}$  で  $u_{\text{fuel}}=u_{\text{air}}=1.0\sim20.8\text{ m/s}$  とした。速度こう配  $K_f$  を以下のように定義する。

$$K_f = \frac{u_{\text{fuel}} + u_{\text{air}}}{L} \quad \dots \dots \dots (1)$$

式(1)より、 $L=15\text{mm}$  で  $K_f=133.3\sim2800\text{ s}^{-1}$ ,  $L=3\text{mm}$  で  $K_f=666.7\sim13866.7\text{ s}^{-1}$  となる。このような条件下では  $K_f=13866.7\text{ s}^{-1}$  を超えたときに消炎した。

本研究では流れ場を平面二次元ポテンシャル流れとし、温度場および濃度場において相似解が適用できるものと仮定する。成分連続式においてSoret効果(熱拡散), 壓力拡散は無視し、エネルギー保存式においてDufour効果、ふく射、粘性散逸および圧力仕事  $Dp/Dt$  を無視すると、支配方程式は次式となる。

$$\rho \frac{\partial Y_i}{\partial t} + \rho u \frac{\partial Y_i}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho Y_i V_{i,x}) - w_i = 0 \quad \dots \dots \dots (2)$$

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho u c_p \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right)$$

$$+ \sum_{i=1}^N \rho Y_i c_{p,i} V_{i,x} \frac{\partial T}{\partial x} + \sum_{i=1}^N h_i w_i = 0 \quad \dots \dots \dots (3)$$

$$p = \rho R^0 T \sum_{i=1}^N \frac{Y_i}{m_i} \quad \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 $\rho$  は密度、 $T$  は温度、 $c_p$  は定圧比熱、 $\lambda$  は熱伝導率、 $Y_i$ 、 $V_{i,x}$ 、 $h_i$ 、 $w_i$  はそれぞれ成分  $i$  の質量分率、 $x$  方向の拡散速度、比エンタルピー、質量生成速度を示す。

これらの支配方程式を計算領域において有限体積法を用いて離散化する。解の安定性を考慮し、対流項については一次風上法を、時間展開についてはEulerの完全陰解法を採用した<sup>(8)</sup>。各時間ステップにおいて、SOR法による繰返し計算を行い、緩和係数は0.01程度、収束判定値は  $1.0 \times 10^{-6}$  とした。差分格子は等間隔で  $L=15\text{mm}$  のとき401点(格子間隔  $0.0375\text{ mm}$ )、 $L=3\text{mm}$  のとき201点(格子間隔  $0.015\text{ mm}$ )とした。また、計算の時間刻みを  $5\text{ }\mu\text{s}$  とした。

化学反応機構はNO<sub>x</sub>の生成反応を含むGRI-Mech 3.0<sup>(9)</sup>を用い、53種の成分と正・逆325組の素反応を考慮した。熱力学定数についてはCHEMKINデータベース<sup>(10)</sup>を用い、輸送係数の計算にはSmookeらのSimplified Transport Model<sup>(11)</sup>を用いた。

熱発生速度  $q$  および質量生成速度  $w_i$  を定量的に検討するために火炎面に垂直な  $x$  方向の積分値、すなわち単位火炎面積あたりの熱発生速度  $q_{\text{sum}}$  および質量生成速度  $w_{i,\text{sum}}$  を以下のように定義する。

$$q_{\text{sum}} = \int_0^L q dx, \quad w_{i,\text{sum}} = \int_0^L w_i dx \quad \dots \dots \dots (5)$$

また、単位火炎面積あたりのメタン消費量に対するNO生成量を表すNOのEmission Index  $EI_{\text{NO}}$  を以下のように定義する<sup>(12)</sup>。

$$EI_{\text{NO}} = \frac{w_{\text{NO,sum}}}{w_{\text{CH4,sum}}} = \frac{\int_0^L w_{\text{NO}} dx}{\int_0^L w_{\text{CH4}} dx} \quad \dots \dots \dots (6)$$

### 3. 計算結果および考察

**3・1 火炎構造** 対向流拡散火炎の代表例として、 $L=15\text{mm}$  の場合のノズル出口速度  $1.0\text{ m/s}$  ( $K_f=133.3\text{ s}^{-1}$ ) および  $5.0\text{ m/s}$  ( $K_f=666.7\text{ s}^{-1}$ ) の条件での温度  $T$  および主成分の質量分率  $Y_i$  の分布を図2に、熱発生速度  $q$  と燃焼中に形成されたラジカルの質量分率  $Y_i$  の分布を図3に示す。図2, 3中の縦の破線はよどみ面の位置を、縦の一点鎖線は火炎面の位置を表す。対向流拡散火炎では熱発生速度ピークが二つ存在するが、ここでは燃料側寄りの  $Y_{\text{CH4}}=Y_{\text{O}_2}=0$  となるほうのピーク位置を火炎面と呼ぶことにする。図2および図3に示された濃度分布からわかるように、燃料

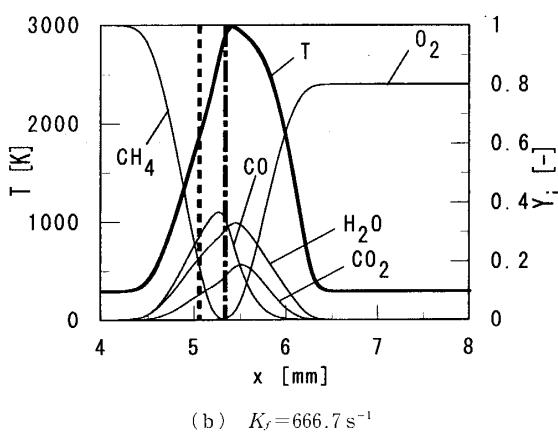
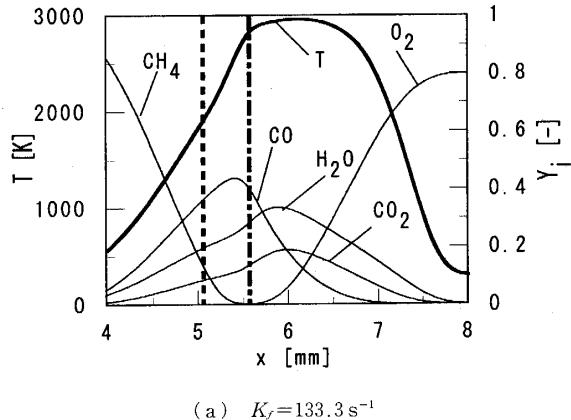


Fig. 2 Distributions of temperature and major species mass fractions with stagnation plane and flame front

側の熱発生速度のピークがおもにメタンの酸化・分解反応によって形成され、酸化剤側のピークがおもに火炎面で生成されたH, O, OHラジカルが酸化剤側に拡散し、O<sub>2</sub>と反応する素反応によって形成される。温度分布については、速度こう配の増加により、火炎面から燃料側にかけての温度こう配が大きくなり、一方、火炎面から酸化剤側にかけての高温領域の幅が狭くなる。また、酸化剤側の熱発生速度のピークが存在するため、火炎面の酸化剤側の温度こう配は緩やかなままであり、最高温度には大きな変化はない。速度こう配の増加による濃度こう配の増加により火炎が強められ、燃料側および酸化剤側の熱発生速度ピーク値はともに増大する。

対向流拡散火炎の最高火炎温度  $T_{\max}$ 、単位火炎面積あたりの熱発生速度  $q_{\text{sum}}$  と速度こう配  $K_f$  との関係を図4に、燃料側の熱発生速度のピーク値  $q_{\max,1st}$ 、酸化剤側の熱発生速度のピーク値  $q_{\max,2nd}$  と速度こう配  $K_f$  との関係を図5に示す。図5中の「Extinction」と縦の破線は消炎限界における速度こう配を示す。

図4より、 $K_f = 133.3 \sim 933.3 \text{ s}^{-1}$  の範囲では、最高

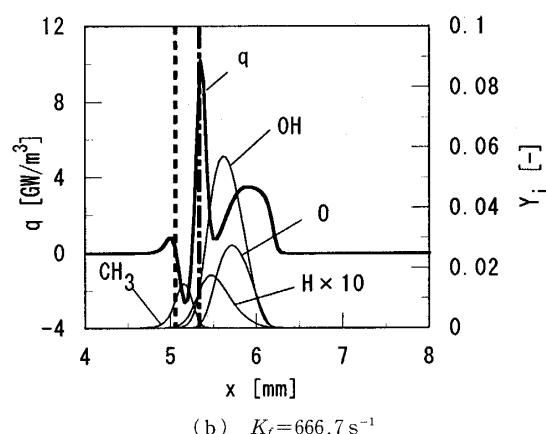
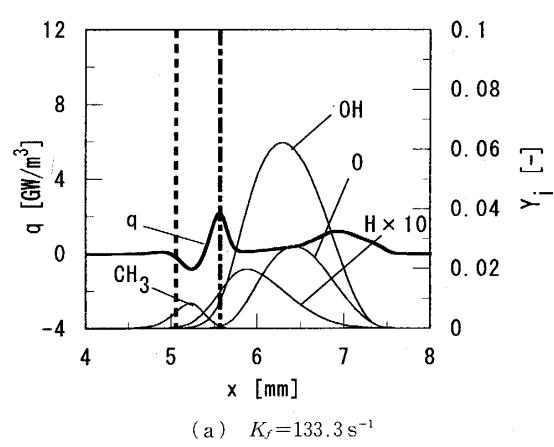


Fig. 3 Distributions of heat release rate and radical mass fractions with stagnation plane and flame front

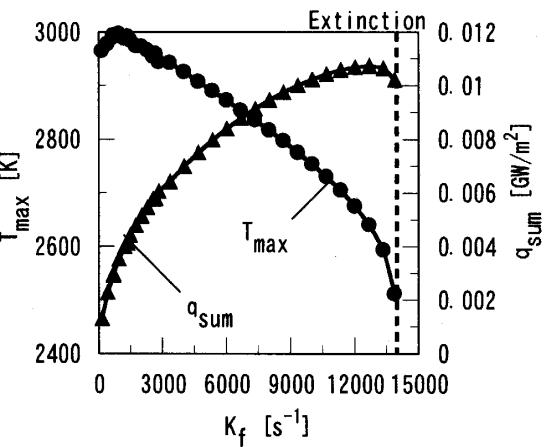


Fig. 4 Effect of strain rate on maximum temperature and total heat release rate

火炎温度位置が火炎面位置に近づくことにより、最高火炎温度がやや上昇する。 $K_f$  が  $933.3 \text{ s}^{-1}$  を超えると、火炎面へ輸送される反応物の増大により、単位火炎面積あたりの熱発生速度  $q_{\text{sum}}$  は増大するが、しだいに燃焼反応による消費が追いつかないために火炎温度は徐々に減少する。消炎直前の  $K_f = 13866.7 \text{ s}^{-1}$

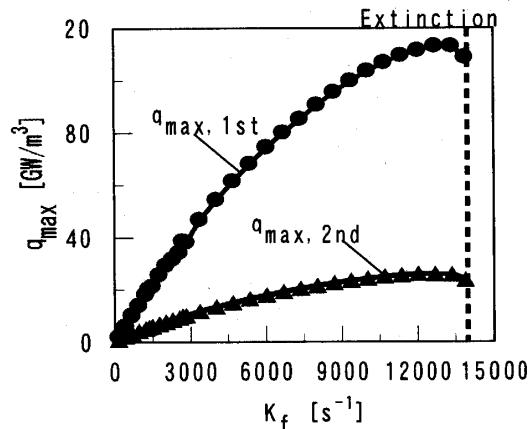


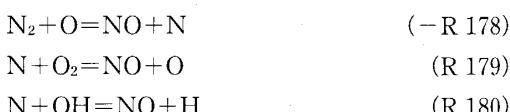
Fig. 5 Effect of strain rate on the first and the second maximum heat release rates

の条件では、単位火炎面積あたりの熱発生速度  $q_{sum}$  はピークをとった後低下し、また、最高火炎温度は以下の割合が大きくなり 2511 K となる。

図 5 より、燃料側の熱発生速度のピークは、よどみ面に近く、速度こう配の増加に伴い濃度こう配が大きくなるため拡散が強まり、酸化剤側の熱発生速度のピークよりも多くの燃料と酸化剤が供給される。一方、酸化剤側の熱発生速度のピーク値は酸化剤側からの対流の影響により、火炎面からの H<sub>2</sub> およびラジカル成分の拡散が弱まるため、燃料側の熱発生速度のピーク値よりも増加の割合は小さい。また、消炎付近では、燃料側および酸化剤側の熱発生速度のピーク値はともに減少する。

**3・2 NO 生成特性** 速度こう配の増加に伴う NO 生成特性の変化について、NO 生成・消滅の素反応の振る舞いから検討する。Thermal NO に関する素反応および Prompt NO の開始反応を以下に示す。ここで括弧内の数値は GRI-Mech 3.0 の素反応機構の番号である。

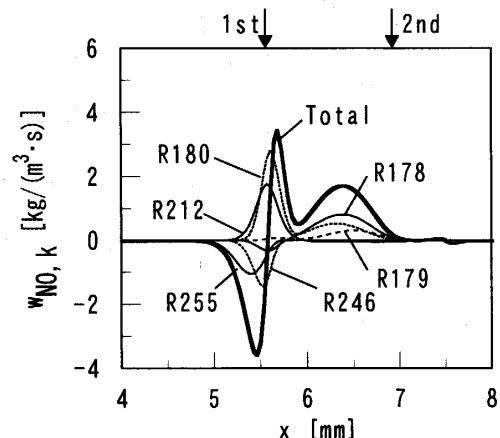
#### Thermal NO



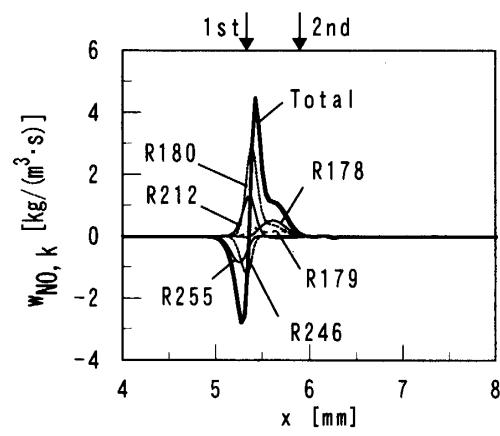
#### Prompt NO の開始反応



$L=15\text{mm}$  でノズル出口速度  $1.0\text{ m/s}$  ( $K_f=133.3\text{ s}^{-1}$ ) および  $5.0\text{ m/s}$  ( $K_f=666.7\text{ s}^{-1}$ ) の条件での NO の素反応別の質量生成速度  $w_{\text{NO},k}$  の分布を図 6 に示す。図 6 中の「1st」および「2nd」は燃料側および酸化剤側の熱発生速度のピーク位置を示す。計算結果より、以下の素反応が NO の生成・消滅に大きく関与することがわかる。



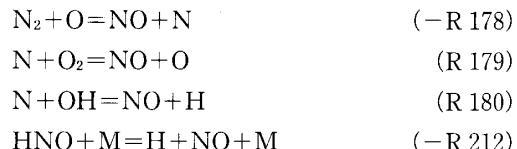
(a)  $K_f=133.3\text{ s}^{-1}$



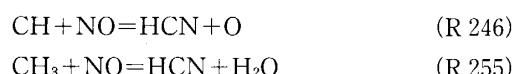
(b)  $K_f=666.7\text{ s}^{-1}$

Fig. 6 Distributions of NO mass production rate by various elementary reactions

#### 生成反応



#### 消滅反応



酸化剤側の二つの熱発生速度のピーク間では、Thermal NO 機構の  $-R\ 178$ ,  $R\ 179$  および  $R\ 180$  が重なり、速度こう配の増加により、火炎温度が低下し高温領域が狭まるため、生成領域および生成ピーク値とともに減少し、火炎面付近の Prompt NO 生成ピーク位置に近づく。火炎面付近の Prompt NO は、火炎温度に大きな変化がないため、生成ピーク値には大きな影響はない、Thermal NO 生成量が減るため、この NO が Prompt NO の消滅に使用されているので消滅ピーク値が減少する<sup>(7)</sup>。NO 濃度は生成領域が減少し、

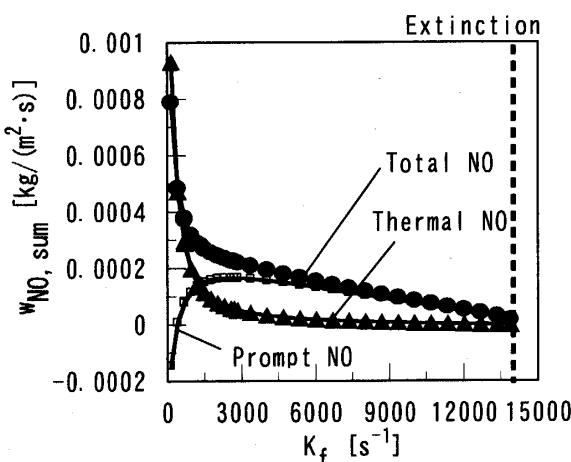


Fig. 7 Effect of strain rate on total NO, Prompt NO and Thermal NO mass production rates

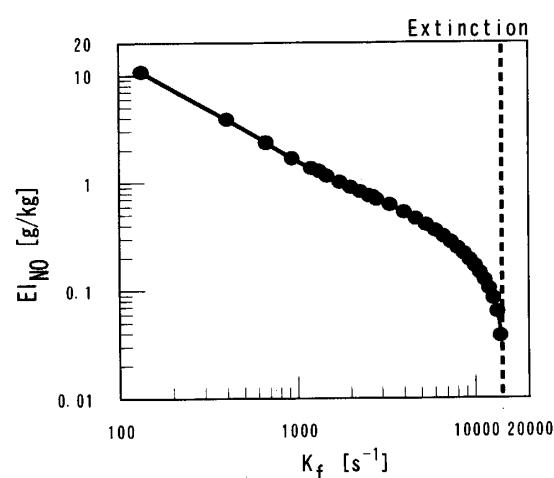


Fig. 8 Effect of strain rate on emission index of NO

全体の生成量が減少するため、速度こう配の増加により大きく減少する。図6からわかるように、Prompt NOに関する素反応はすべて火炎面付近で起こり、Thermal NOに関するR179とR180は火炎面付近でのNO生成にも関与している。Thermal NOの領域では、R179とR180の寄与の和が-R178の寄与と等しい。このことから、Thermal NOおよびPrompt NOを次式のようにして定量的に算出した<sup>(7)</sup>。

このように、NOの生成機構を Prompt NOと Thermal NOに大別し、火炎面で生成されるNOを Prompt NO( $w_{\text{Prompt NO}}$ )、二つの熱発生速度のピーク間で生成されるNOを Thermal NO( $w_{\text{Thermal NO}}$ )と定義する。

対向流拡散火炎における単位火炎面積あたりの NO の全質量生成速度  $w_{\text{NO,sum}}$ , ならびに単位火炎面積あたりの Prompt NO および Thermal NO の質量生成速度  $w_{\text{Prompt NO}}$  および  $w_{\text{Thermal NO}}$  と速度こう配  $K_f$  との関係を図 7 に, また, NO の Emission Index  $EI_{\text{NO}}$  と速度こう配  $K_f$  との関係を図 8 に示す.

図7からわかるように、 $K_f = 133.3 \sim 1\,200 \text{ s}^{-1}$  の範囲では、速度こう配の増加により、Thermal NO 生成が減少し、一方、Prompt NO 生成は増加し、 $K_f = 400 \text{ s}^{-1}$  以上で Prompt NO は正の生成量となる。また、この速度こう配の範囲では Thermal NO が支配的であることがわかる。 $K_f = 1\,200 \sim 13\,333.3 \text{ s}^{-1}$  の範囲では、Thermal NO は速度こう配の増加により、大きく減少し、ほとんど零になる。Prompt NO は  $K_f = 4\,000 \text{ s}^{-1}$  で最大値となるが、Thermal NO と同様に

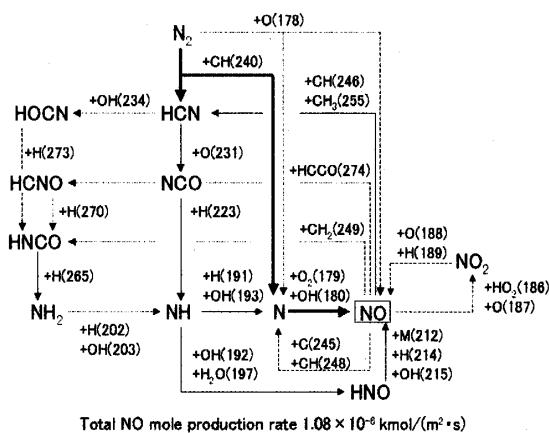
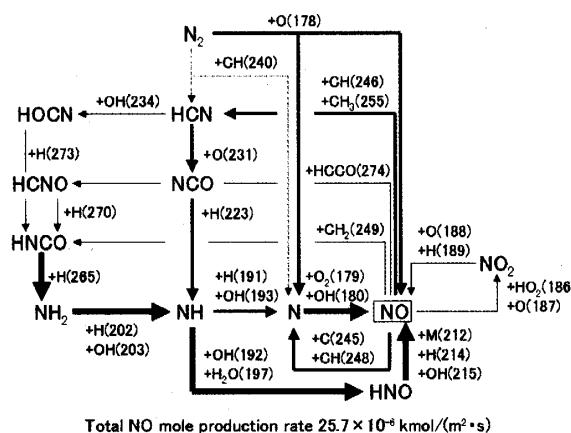


Fig. 9 Quantitative reaction path diagrams of NO formation

火炎温度減少の影響により減少する。この速度こう配の範囲では Prompt NO の全 NO に対する割合が 50%以上となり、速度こう配が大きくなるほど Prompt NO の寄与が大きくなる。

図 8 からわかるように、NO の Emission Index  $EI_{NO}$  は速度こう配が大きくなると大きく低下する。これは速度こう配の増加によりメタンの消費速度が増加し、NO 生成速度が減少するためである。

$L=15\text{mm}$  の場合のノズル出口速度  $1.0\text{ m/s}$  ( $K_f=133.3\text{ s}^{-1}$ ) および  $L=3\text{mm}$  の場合の  $20.0\text{ m/s}$  ( $K_f=13333.3\text{ s}^{-1}$ ) の条件での NO まわりの定量的な反応経路図を図 9 に示す。反応経路図において矢印の方向は各素反応の方向を示し、太さは各素反応によるモル生成速度  $w_{i,k,\text{sum}}/m_i$  と全 NO モル生成速度  $w_{NO,\text{sum}}/m_{NO}$  との比を表す<sup>(13)(14)</sup>。また、基準となる全 NO モル生成速度  $w_{NO,\text{sum}}/m_{NO}$  の値を経路図の下部に示した。

図 9 からわかるように、速度こう配が小さい場合には、NO 生成において Prompt NO の開始反応である R 240 の寄与は小さく、-R 178 により N<sub>2</sub> から N と NO が生成され、さらに生成された N が R 179 と R 180 により O<sub>2</sub> および OH と反応し、NO が生成される Thermal NO が支配的となる。また、R 246, R 255 に代表される NO の消滅反応の寄与も大きいため、このときの Prompt NO の生成量は負の値となる。一方、速度こう配が大きい場合には、Thermal NO の寄与は小さく、Prompt NO の開始反応である R 240 により N が生成され、その N が R 179 や R 180 により NO に変化する経路が NO 生成において支配的となる。

#### 4. 結 論

本研究では、詳細素反応機構を考慮し、酸素富化空気を用いた対向流拡散火炎の数値解析を行い、速度こう配が NO 生成の抑制に与える影響を検討し、以下の結論を得た。

(1) 速度こう配  $K_f$  が増加すると、熱発生速度のピーク値は大きくなる。また、熱発生速度には二つの

ピーク位置が存在するが、その間隔が短くなり、それによって火炎の高温領域が狭くなり、最高温度が低下する。

(2)  $K_f$  が小さいときは、NO 生成において Thermal NO が支配的で、Prompt NO の生成量は負の値をとる。

(3)  $K_f$  が大きくなると、火炎の高温領域が狭くなることにより、Prompt NO の生成量は増加し、 $K_f=400\text{ s}^{-1}$  を超えると正の値となる。また、Thermal NO の生成量は減少し、 $K_f=1200\text{ s}^{-1}$  を超えると全体の NO 生成量に対する Thermal NO の割合が 50% を下まわる。Thermal NO の生成量の減少による影響が大きいため、全体の NO 生成が抑制される。なお、Prompt NO において、素反応式 CH+N<sub>2</sub>=HCN+N により N が生成され、それが NO に変化する経路が支配的になる。

#### 文 献

- (1) 本田尚士監修、環境圈の新しい燃焼工学、(1999), 216-222, フジ・テクノシステム。
- (2) 西村真・須鎌護・鈴木富雄・高城敏美、日本エネルギー学会論文集、79-4 (2000), 321-328.
- (3) 西村真・須鎌護・鈴木富雄・高城敏美、日本エネルギー学会論文集、79-4 (2000), 329-337.
- (4) Beltrame, A. and Porshnev, P., ほか 8 名, *Combust. Flame*, 124 (2001), 295-310.
- (5) Sun, C. J., Sung, C. J., Wang, H. and Law, C. K., *Combust. Flame*, 107 (1996), 321-335.
- (6) Ju, Y. and Niioka, T., *Combust. Theory Modell.*, 1 (1997), 243-258.
- (7) 岸本衛・趙黛青・山下博史、機論、68-669, B (2002), 1578-1585.
- (8) 山下博史、機論、65-630, B (1999), 783-789.
- (9) GRI, <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>, 1999.
- (10) Kee, R. J., Rupley, F. M. and Miller, J. A., CHEMKIN-II : A Fortran Chemical Package for the Analysis of Gas-Phase Chemical Kinetics, SAND 89-8009 (1989).
- (11) Smooke, M. D., *Reduced Kinetic Mechanism and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames*, (1991), 1-28, Springer-Verlag.
- (12) Takeno, T. and Nishioka, M., *Combust. Flame*, 92 (1993), 465-468.
- (13) 西岡牧人・栗田敦・近藤雪水・竹野忠夫、燃焼研究、104 (1995), 75-90.
- (14) 竹野忠夫・西岡牧人、燃焼研究、111 (1998), 3-15.