

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*

清水 昭博^{*1}, 山下 博史^{*2}
高石 良伸^{*3}, 趙 黛青^{*2}

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

Akihiro SHIMIZU, Hiroshi YAMASHITA^{*4},
Yoshinobu TAKAISHI and Daqing ZHAO

^{*4} Department of Mechanical Engineering, Nagoya University,
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 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 to yield the NO_x emission of the whole flame. The recombination parameters have to be defined in common for both calculations. With the aim to find out the recombination parameters and to prove the validity of them, 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: 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 of the combination method.

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

1. 緒言

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。しかしながら、このような計算負荷は最新のスーパーコンピュータに対しても過大である。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⁽²⁻⁹⁾。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。この再結合パラメータとしては、できるだけ同じ瞬間に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。本研究では、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勾配と関連する Scalar Dissipation Rate SDR_q を用いることを提案してきた。 SDR_q は次式で定義される。

$$SDR_q = D_q (\partial Z / \partial x)_q^2 \quad (1)$$

ここで、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 は火炎面垂直方向の距離である。また、より高い精度の予測をするためには新たな再結合パラメータとして、最高火炎温度 T_{max} を追加する必要があることを指摘した^(8, 9)。

この予測手法では、まず、任意の簡単な流れ場について、詳細素反応機構を用いて、式(2)で定義される NO_x の Emission Index⁽¹⁰⁾ を SDR_q および T_{max} の関数として求める。

$$EI_{NO_x}(SDR_q, T_{max}) = \frac{\dot{M}_{NO_x}(SDR_q, T_{max})}{-\dot{M}_{fuel}(SDR_q, T_{max})} \quad (2)$$

一方、実際の複雑な変動流れ場について、総括反応を用いて、再結合パラメータである SDR_q と T_{max} の確率密

* 原稿受付 2002年5月29日。

*1 新日本製鐵(株)(〒100-8071 東京都千代田区大手町2-6-3)。

*2 正員、名古屋大学大学院工学研究科(〒464-8603 名古屋市千種区不老町)。

*3 名古屋大学大学院。

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

度関数 PDF を求める。次に、これらを結合し、火炎全体で式(3)のように平均操作を行うことにより、火炎全体における NO_x の生成量を予測することになる。

$$\langle EI_{NO_x} \rangle = \frac{\langle \dot{M}_{NO_x} \rangle}{\langle -\dot{M}_{fuel} \rangle} = \frac{\langle EI_{NO_x} \cdot (-\dot{M}_{fuel}) \rangle}{\langle -\dot{M}_{fuel} \rangle} \quad (3)$$

ここで、

$$\langle \dot{M}_i \rangle = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \{ \dot{M}_i(SDR_q, T_{max}) \cdot PDF(SDR_q, T_{max}) \} dSDR_q dT_{max} \quad (4)$$

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すべて一致する必要がある。本報では、種々の異なった流れ場についてこのことを検証する研究の一環として、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ついて、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、非定常の燃焼特性、特に NO_x の非定常生成特性を解明し、 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した。

2. 解析モデルおよび計算手法

本計算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。両ノズルは 15mm だけ離れ、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)とし、速度成分を(u, v)とする。下部ノズルから純粋のメタン、上部ノズルから空気を対向して噴出させ、 x 軸に垂直な平面火炎が形成される。ノズル出口温度は等しく $T_F=T_O=300K$ とした。ここで、添字 F および O は燃料側および酸化剤側ノズル出口での値であることを示す。メタンおよび空気のノズル出口速度 u_F および u_O は等しく、正弦振動を加え、 $u_F=u_O=u_m\{1+Amp \cdot \sin(2\pi f \cdot t)\}$ とする。本計算の範囲は、平均流速 $u_m=0.5m/s \sim 2.0m/s$ 、振幅 $Amp=0.8, 1.0$ 、振動数 $f=20 Hz \sim 1000Hz$ とし、十分な時間が経過した後の準定常状態について検討する。速度勾配を大きくすると対向流火炎は消炎するが、定常対向流の消炎限界は $u_m=2.01126m/s$ であった。

対向流拡散火炎の解析では、流れ場については準定常ポテンシャル流、すなわち、速度場はノズル出口速度の非定常変化に瞬間にに対応した定常分布となると仮定している。温度場および濃度場においては相似解が適用でき、温度および濃度は 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⁽¹¹⁾を用いた。熱力学定数については CHEMKIN データベース⁽¹²⁾から求め、輸送

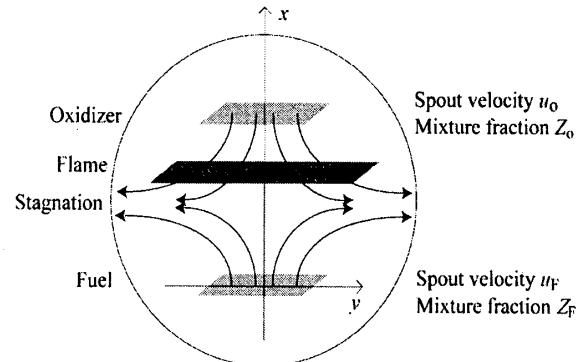


Fig.1 Theoretical model of counterflow diffusion flame

係数は Simplified Transport Model⁽¹³⁾を拡張して算出した。

本解析では、対流項の離散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 法による繰り返し計算を行った。 x 方向の差分格子は等間隔格子とし、格子幅 0.075mm の 201 点とした。

本解析では、混合分率 Z は、窒素の質量分率を正規化し次式で定義した。

$$Z = \frac{Y_{N_2} - Y_{N_2,O}}{Y_{N_2,F} - Y_{N_2,O}} \quad (5)$$

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。

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

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

3. 計算結果および考察

3.1. 非定常燃焼特性

本節では、ノズル出口速度を種々の振動数および振幅で正弦振動させた場合の対向流拡散火炎の非定常燃焼特性について検討する。

まず、非定常火炎の消炎特性を調べる。ノズル出口平均速度 $u_m=1.5m/s$ と $u_m=2.0m/s$ の条件では、 $Amp=1.0$ の場合において、正弦振動によって流速が消炎限界を一時的に大きく越えるにもかかわらず、高い振動数条件では、消炎に至らなかった。一方、 $u_m=1.5m/s$ の場合は振動数が 50Hz 以下、 $u_m=2.0m/s$ の場合は振動数が 100Hz 以下になると、消炎に至ることを確認した。このように、非定常燃焼場では、流入速度が一時的に消炎限界を超えて、振動数が大きい場合には火炎温度が大きく低下しないうちに、流入速度が再び小さくなるので、火炎が維持される。しかし、振動数が小さい場

合、消炎限界を超える状態が長く続くことになるため、火炎が維持できなくなったものと考えられる。このような消炎限界に関する傾向はほかの研究⁽¹⁴⁻¹⁶⁾と一致するが、本研究では消炎限界だけでなく、3.2節で述べるように、すべての非定常過程における火炎の特性を統一的に表すことのできる適切な特性量（再結合パラメータ）を見出すことを目的としている。

次に、非定常火炎の火炎構造を表す諸量の空間分布について検討する。平均速度 $u_m=1.0\text{m/s}$, $Amp=1.0$, $f=100\text{Hz}$ の場合について、位相 $f \cdot t=0$ および $f \cdot t=0.5$ における軸方向速度 u 、熱発生速度 Q 、スカラー散逸速度 SDR 、温度 T 、NOの質量分率 Y_{NO} および NOの質量生成速度 w_{NO} の空間分布を図2(a)～(f)に示す。なお、これらの位相ではノズル出口速度は $u_F=u_0=1.0\text{m/s}$ となる。比較のために $u_F=u_0=1.0\text{m/s}$ の定常解の結果も併せて示した。図から分かるように、速度勾配が同じでも火炎構造は異なり、瞬間の速度勾配だけでは火炎構造は決まらないことが明らかである。

さらに、非定常火炎の燃焼特性を調べるために、 $u_m=1.0\text{m/s}$, $f=100\text{Hz}$, $Amp=0.8$ および $Amp=1.0$ の場合について、燃料のノズル出口速度 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 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 $w_{\text{NO,sum}}$ の一周期にわたる時間的变化を図3(a)～(f)に示す。比較のために、定常解 ($Amp=0$ の場合に相当) の

値も破線で示した。一般的に定常火炎の場合には、速度勾配が大きいほど熱発生速度が大きくなり、火炎温度が低くなる。図3に示した非定常火炎の場合には、ノズル出口速度 u_F の周期的な変化による速度勾配の変化に対して、火炎特性を表す T_{max} , Q_{sum} および主要化学種の $w_{i,\text{sum}}$ なども周期的に振動しているが、位相が遅れることがわかる。また、 SDR_q はこれらの燃焼特性を表す諸量の応答と同様な挙動を示している。このことは、 SDR_q がノズル出口速度 u_F で定義される速度勾配、すなわち火炎伸張率 κ_f よりも、非定常過程における火炎特性に対応する、より妥当な再結合パラメータであることを示唆している。しかし、本研究で注目している窒素酸化物の $w_{\text{NO,sum}}$ と SDR_q には単純な対応関係が見られず、むしろ最高火炎温度 T_{max} と同様な挙動を示しているので、窒素酸化物生成量の予測のためには、さらに T_{max} をも再結合パラメータとして導入する必要があると考えられる。

非定常条件下で振幅の変化が火炎挙動に与える影響を考察する。図3に示すように、火炎全体の熱発生速度 Q_{sum} が出口流速の正弦振動に対して位相遅れを伴い正弦的に振動し、 SDR_q の変化によく対応していることが分かる。なお、振幅 $Amp=1.0$ の場合では、 Q_{sum} は $f \cdot t=0.3$ と 0.75付近で二つの極大値を取る。位相 $f \cdot t=0.3$ 付近の極大値の形成については、速度勾配に起因する燃料と酸化剤の拡散流束の増加により熱発生速度が増大する

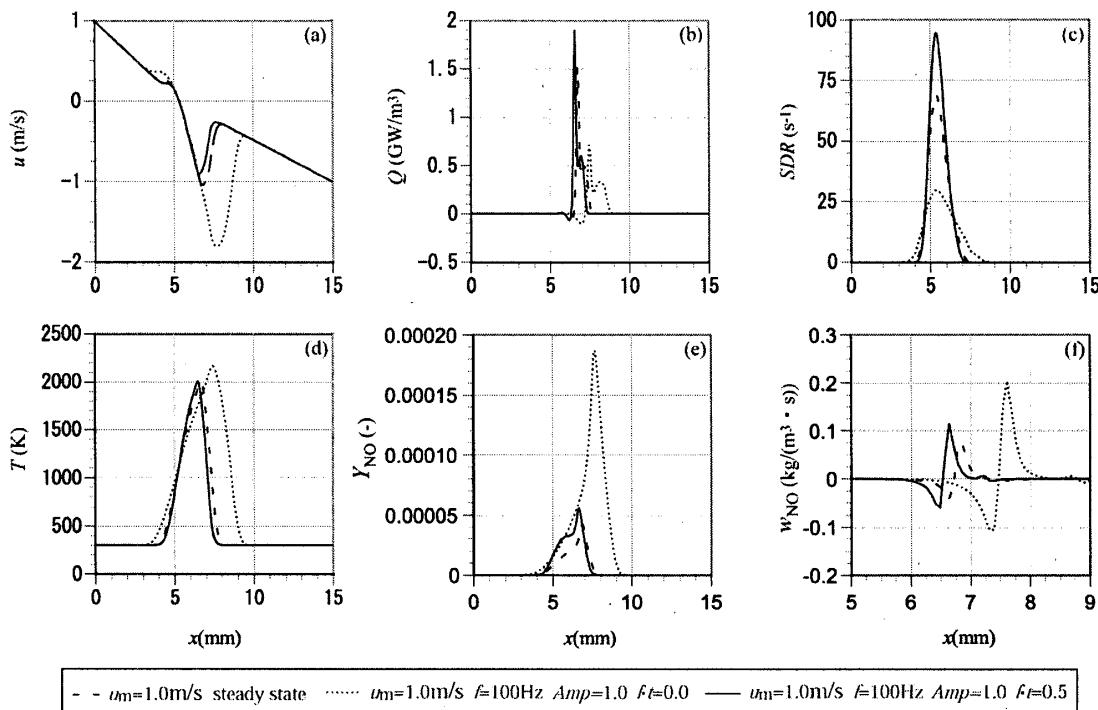


Fig.2 Instantaneous distributions of various physical quantities, (a) Velocity in x-direction, (b) Heat release rate, (c) SDR , (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO, (f) Mass production rate of NO

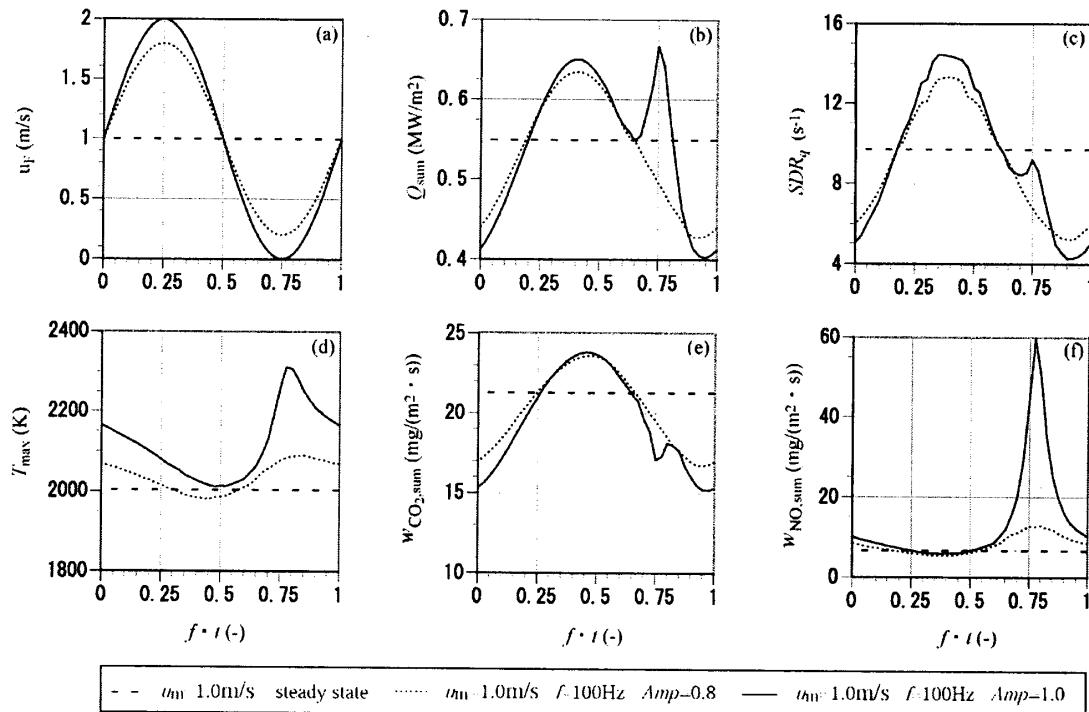


Fig.3 Periodic variations of various physical quantities, (a) Spout velocity of fuel, (b) Total heat release rate, (c) SDR_q , (d) Maximum temperature, (e) Total Mass production rate of CO_2 , (f) Total Mass production rate of NO

ためと考えられる。位相 $f \cdot t = 0.75$ 付近の極大値については、このとき、ノズル出口の速度は瞬間にゼロとなり、温度勾配が緩やかになるため、火炎温度が上昇し、化学反応が活発化され大きな発熱が起こることが原因として考えられる。また、 Q_{sum} は熱発生速度分布を軸方向に積分した値であるため、流速の減少により燃焼領域が広がることも、 Q_{sum} が大きくなる原因として考えられる。

3.2 結合パラメータ SDR_q および T_{max} の妥当性

3.2.1 SDR_q-T_{max} 平面上での非定常過程

ここでは、 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。全計算条件に対する非定常過程を初期条件に依存しない準定常状態に達した一周期について、 SDR_q-T_{max} 平面上のトラジェクトリを表示したものを図 4 に示す。また、比較のために定常解も示した。定常解は出口速度の減少にしたがって、右下から左上に向かって並んでいる。振幅 $Amp=0.8$ の条件での計算結果はほとんど定常解の分布を結んだ直線に載る。振幅 $Amp=1.0$ の条件では、定常解よりも上方で、8の字を描くような分布をしている。また、出口平均速度の減少にしたがって、その分布は右下から左上方に向かって移動し、周波数が小さい場合ほど、大き

な8の字を描く分布となる。

3.2.2 SDR_q および T_{max} の同一の値における火炎構造

次に、異なる非定常条件下で、 SDR_q および T_{max} がほぼ同じ値を持つ瞬間の火炎構造を比較する。例として、($SDR_q \approx 12.0 \text{s}^{-1}$, $T_{\text{max}} \approx 2064.0 \text{K}$) および ($SDR_q \approx 7.0 \text{s}^{-1}$, $T_{\text{max}} \approx 2211.0 \text{K}$) の場合について、軸方向速度 u 、熱発生速度 Q 、スカラー散逸速度 SDR 、温度 T 、NOの質量分率 Y_{NO} および NOの質量生成速度 w_{NO} の瞬間分布を図 5-1(a)～(f) および 図 5-2(a)～(f) に示す。図 5-1 では、火炎の諸特性はほぼ一致している。しかし、図 5-2 に示した条件の場合には、 SDR_q および T_{max} の二つのパラメータが等しいにもかかわらず、異なる火炎構造であることがわかる。これは振幅 $Amp=1$ かつ低振動数 (図 5-2 中の点線) の場合、低流速の連続する時間が長く、火炎温度に極端な上昇が生じるという非定常的な履歴が影響しているためである。以上により、ノズル出口速度を正弦波的に変化させる場合、振幅 $Amp=1$ かつ低振動数の条件を除いて、非定常火炎の燃焼特性は SDR_q および T_{max} で決定できるので、これらは妥当な再結合パラメータであると考えられる。

3.2.3 SDR_q と燃焼状態を表す諸量との関係

SDR_q に対する火炎面の単位面積当たりの CH_4 , CO_2 ,

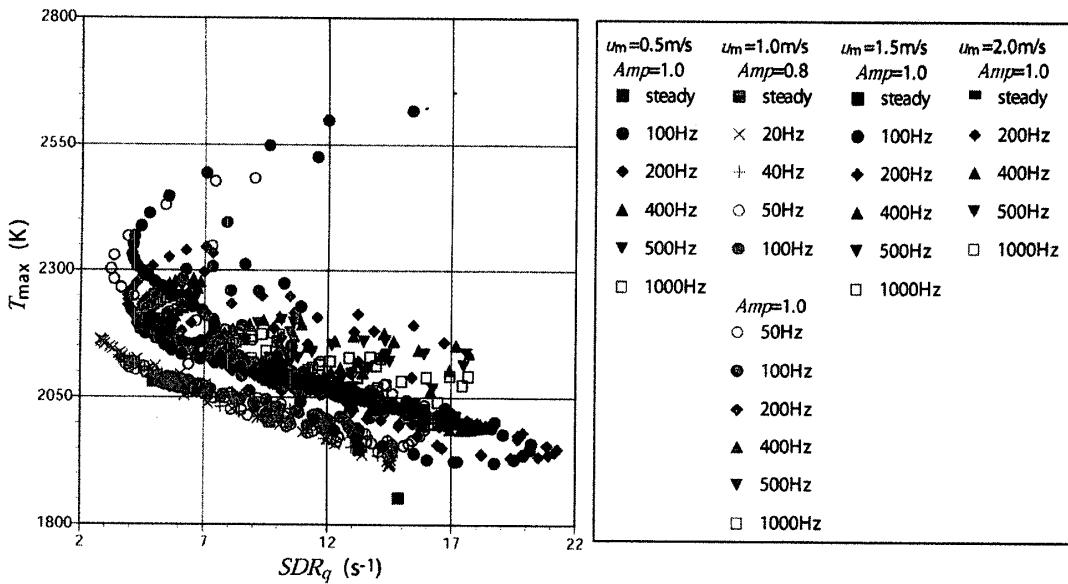
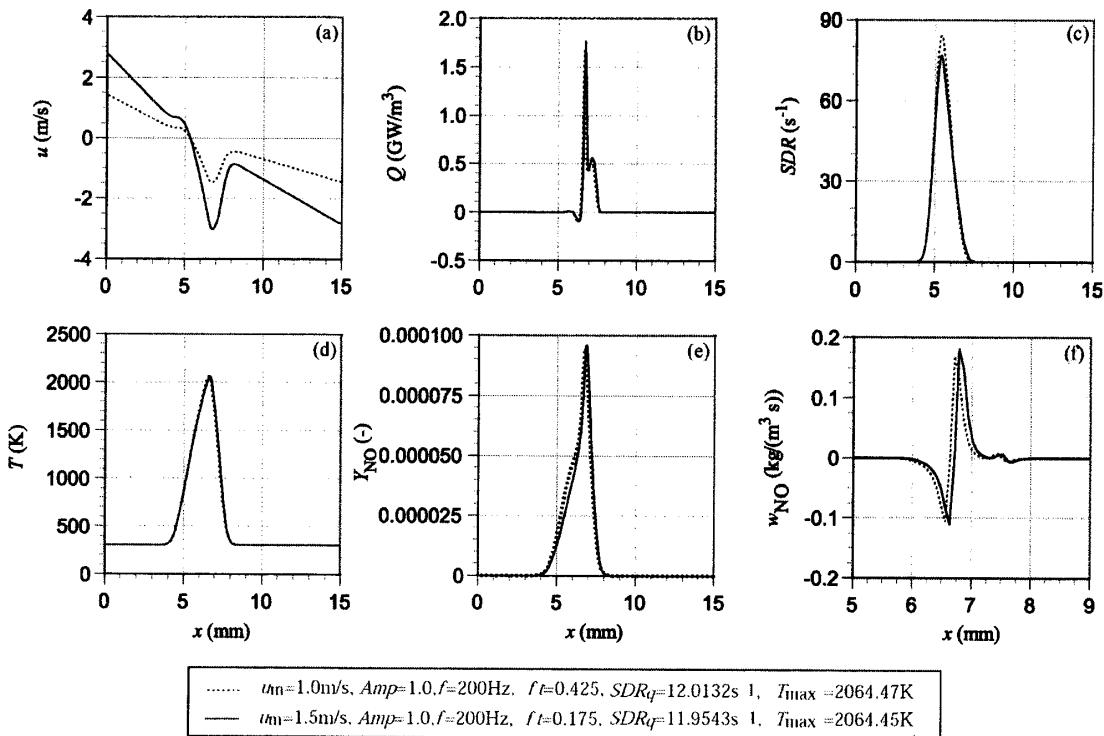
Fig.4 Relationship between SDR_q and T_{max} 

Fig.5-1 Instantaneous distributions of various physical quantities for $SDR_q = 12.0 \text{ s}^{-1}$ and $T_{max} = 2064 \text{ K}$,
 (a) Velocity in x-direction, (b) Heat release rate, (c) SDR , (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO,
 (f) Mass production rate of NO

H_2O の質量生成速度 w_{H_2O} および熱発生速度 Q_{sum} の関係を図 6(a)～(d)に示す。また、 SDR_q の平方根の値を適当に実数倍したものを曲線で示す。 CO_2 を除く主要な化学種である CH_4 、 H_2O などの質量生成速度は SDR_q だけでほぼ決まり、 SDR_q の平方根に比例していることがわかる。また、図

6(b)に示すように、 Q_{sum} も SDR_q だけで決まる。なお、火炎面における燃料の消費量 \dot{M}_{fuel} は主要な化学種のみを考慮した総括一段不可逆反応に基づく火炎面モデルによって次式のように表される。

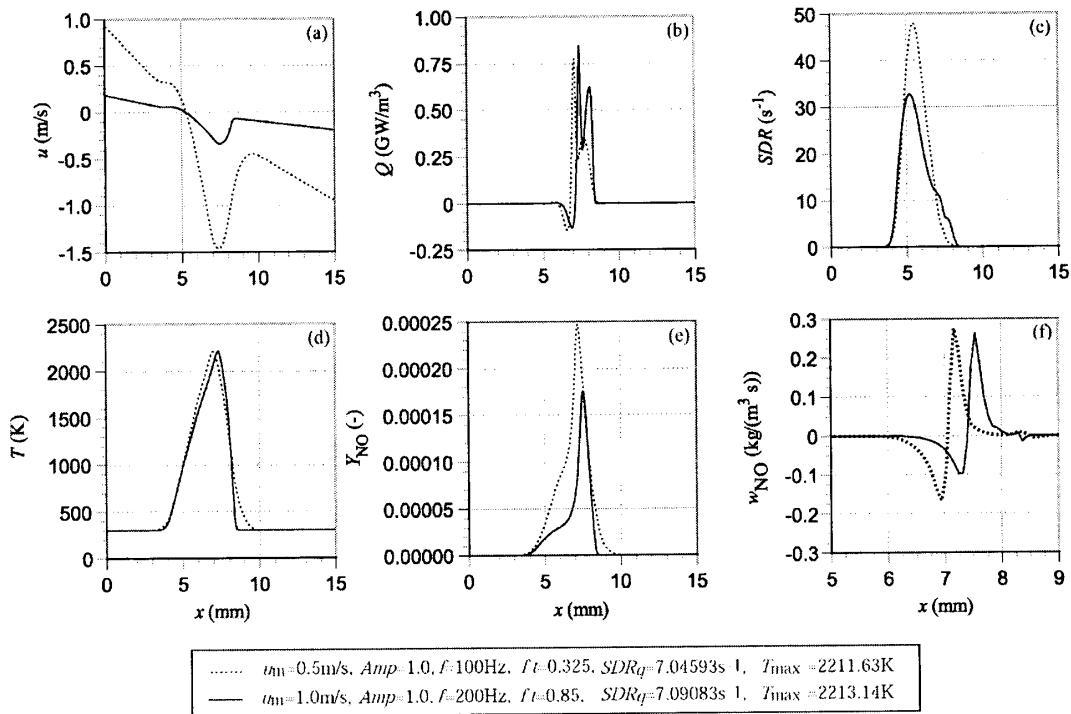
拡散火炎における NO_x の非定常生成特性の解明と組合せ予測手法の検証

Fig.5-2 Instantaneous distributions of various physical quantities for $SDR_q=7.0\text{ s}^{-1}$ and $T_{\max}=2211\text{K}$,
 (a) Velocity in x-direction, (b) Heat release rate, (c) SDR, (d) Temperature, (e) Mass fraction of NO,
 (f) Mass production rate of NO

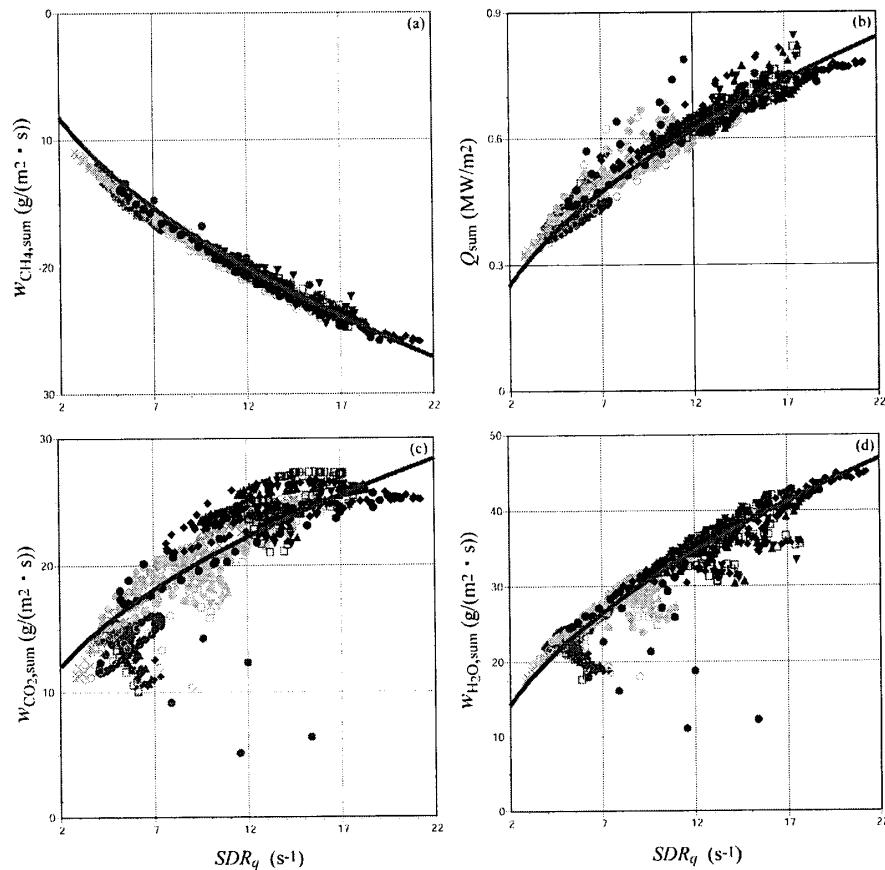


Fig.6 Relationship between various physical quantities and SDR_q . (a) $w_{CH_4,sum}$, (b) Q_{sum} ,
 (c) $w_{CO_2,sum}$, (d) $w_{H_2O,sum}$ (Symbols are same as Fig.4)

$$\dot{M}_{\text{fuel}} = \rho^* \left(Y_{\text{CH}_4,\text{F}} + \frac{Y_{\text{O}_2,\text{O}}}{j} \right) \sqrt{D^* SDR} \quad (8)$$

ここで * は火炎面における値であることを表し, j は量論混合気の酸化剤と燃料の質量比である。本来、この関係は火炎面モデルを適用した場合にのみ成り立つ関係であり、本研究のように多段の反応を適用した場合にも成り立つとは限らない。本計算の結果では、CO₂ を除く主要化学種の生成・消費量に関しては火炎面モデルと同様の関係が成立するといえる。なお、CO₂ の場合については、CO の生成・消滅の効果が大きいと考えられるので、CO₂ と CO の質量生成速度を合算したものに注目して、 SDR_q との関係を図 7 に示す。この図から、CO₂+CO の質量生成速度も SDR_q だけでは決まることがわかる。また、 SDR_q に対する NO の質量生成速度 $w_{\text{NO,sum}}$ を図 8 に示す。この図より、窒素酸化物の質量生成速度は SDR_q だけでは決まらないことがわかる。

3.2.4 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 CO₂, NO および HCN の $w_{i,sum}$ の関係を図 9(a)~(c) に示す。 $w_{i,sum}$ 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の右側に示す。項 3.2.2 で示した、一周期にわたり平均温度が極端に高くなる $u_m=0.5\text{m/s}$, $f=100\text{Hz}$, $Amp=1.0$ および $u_m=1.0\text{m/s}$, $f=50\text{Hz}$, $Amp=1.0$ の条件下での各点を除いて、諸量は (SDR_q , T_{\max}) の同一点においてほぼ同じ色になり、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、同一の SDR_q と T_{\max} の場合、NO などの生成特性もほぼ同じになることが確認できる。

以上のことから、今回計算を行った非定常条件下において、CO₂ を除く主要化学種の生成特性および火炎全体での熱発生速度に対しては、 SDR_q は再結合パラメータとして妥当であるといえる。一方、CO₂ および中間生成物、窒素酸化物などを考える際には、再結合パラメータとして SDR_q と T_{\max} を用いることが妥当であるといえる。振幅 $Amp=1$ で、振動数が 100Hz より低い条件での非定常火炎においては、低流速の連続する時間が長く、火炎温度が極端に高くなり、このような場合には非定常過程の履歴をも考慮できる新たなパラメータを追加することが必要と考えられる。ただし、実際の燃焼器では、このような大きな振幅を有する変動が生じることは多くないと思われる。

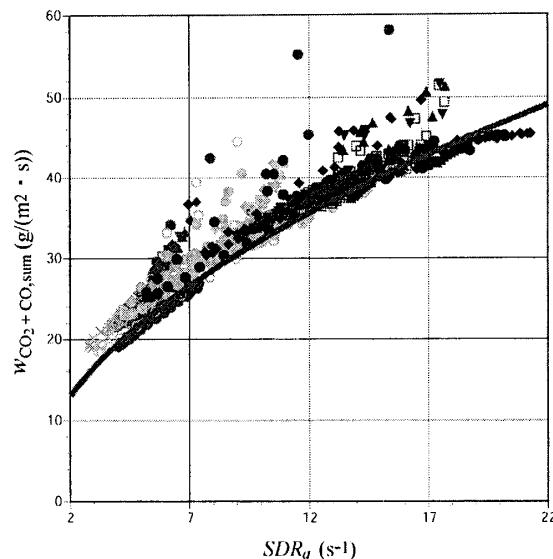


Fig.7 Relationship between $w_{\text{CO}_2+\text{CO,sum}}$ and SDR_q
(Symbols are same as Fig.4)

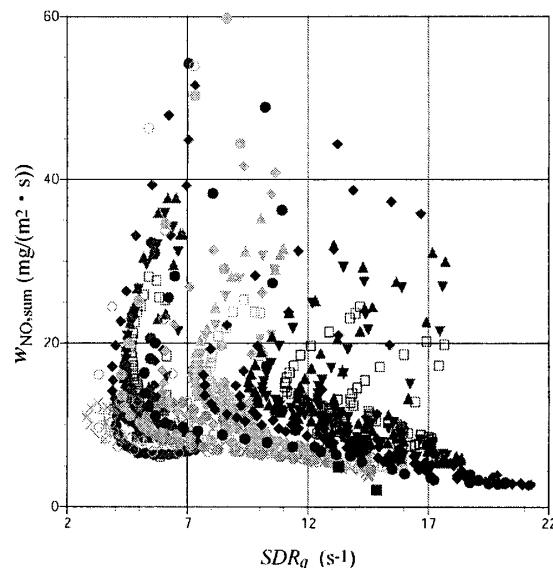


Fig.8 Relationship between $w_{\text{NO,sum}}$ and SDR_q
(Symbols are same as Fig.4)

4. 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確立するため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) 噴出速度の周期的な変動に対して、燃焼特性を表す諸量の応答は遅れ、諸量の時間変化と流速の時間変化は一致しない。また、 SDR_q の時間変動は諸量の時間変化と対応している。

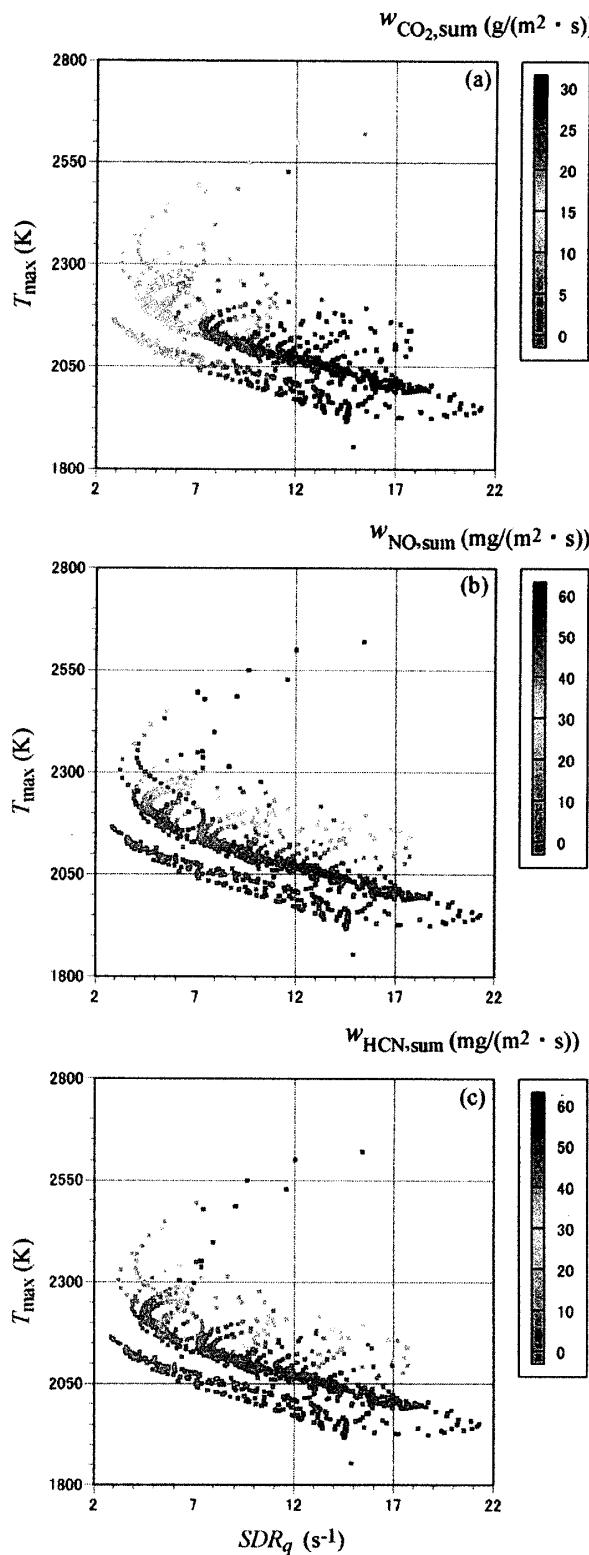


Fig.9 Relationship of various physical quantities to SDR_q and T_{\max} , (a) $w_{\text{CO}_2,\text{sum}}$, (b) $w_{\text{NO},\text{sum}}$, (c) $w_{\text{HCN},\text{sum}}$

- (2) 主要な安定化学種の生成・消滅特性は SDR_q のみでほぼ決まる。中間生成物や窒素酸化物の生成速度は、 SDR_q および T_{\max} によってほぼ決定できる。
- (3) 振幅 $Amp=1$ かつ低振動数の条件では、低流速の連続する時間が長く、火炎温度に極端な上昇が生じ、時間に対する燃焼特性の変化が正弦振動から離れる。このような場合、非定常過程の履歴をも考慮できる新たなパラメータが必要と考えられる。

参考文献

- (1) Peters, N., Prog. Energy Combust. Sci., **10** (1984), 319.
- (2) Takeno, T., Nishioka, M. and Yamashita, H., Turbulence and Molecular Processes in Combustion, Elsevier, (1993), 375.
- (3) Yamashita, H., Nishioka, M., Takeno, T., Energy Convers. Mgmt., Vol.38, No.10-13, (1997), 1343-1352.
- (4) 山下, 機論, 65-630, B (1999), 783.
- (5) 村松, 山下, 竹野, 第 35 回燃焼シンポジウム講論集, (1997), 317.
- (6) 寺田, 山下, 日本機械学会 1999 年度年次大会講論集, IV (1999), 355.
- (7) 寺田, 山下, 第 37 回燃焼シンポジウム講論集, (1999), 27.
- (8) 清水, 山下, 趙, 第 39 回燃焼シンポジウム講論集, (2001), 291-292.
- (9) 山下, 燃焼研究, **124**, (2001), 47-55
- (10) Nishioka, M., Nakagawa, S., Ishikawa, Y. and Takeno, T., Combust. Flame, 92(1993), 465.
- (11) GRI, <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>, 1995.
- (12) Kee, R.J. et.al., Sandia Report, SAND89-8009, Sandia National Laboratory, Livermore, CA(1989).
- (13) Smooke, M. D., Reduced Kinetic Mechanisms and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames, Springer-Verlag, (1991).
- (14) Kistler, J. S. et.al., Prog. 26th Symp. (Int.) Combust., The Combustion Institute, (1996), 113-120.
- (15) 小澤, 北島ほか, 日本機械学会論文集, (B), 64-620(1998), 1228-1233.
- (16) 吉田, 高井, 高城, 第 36 回燃焼シンポジウム講演論文集, (1998-11), 350-352.