

## 希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果\*

### (第3報, 反応機構に着目した管状火炎の数値計算)

山本和弘<sup>\*1</sup>, 小沼義昭<sup>\*1</sup>

## Effects of Hydrogen Addition on Lean Combustion

### (3rd Report, Computational Study of Reaction Scheme in Tubular Flames)

Kazuhiro YAMAMOTO<sup>\*2</sup> and Yoshiaki ONUMA

<sup>\*2</sup> Toyohashi University, of Technology Department of Mechanical Engineering,  
1-1 Hibirigaoka, Tempaku, Toyohashi, Aichi, 441-8580 Japan

To stabilize a flame and enlarge its reaction rate in lean combustion, we have focused on hydrogen addition and rotational flow. We present results of numerical simulations of premixed flames in a stretched, rotating flow field for methane/hydrogen/air mixtures to investigate effects of hydrogen addition on the lean combustion. The governing equations with a similarity solution are conservation equations of mass, momentum, chemical species and energy. Equation of state is also used and a reduced 4-step mechanism is adopted. Detailed transport properties are taken into account. Results show that with increasing the concentration of added hydrogen, (1) the flame temperature monotonically increases, (2) the flame diameter which is determined by the maximum heat release rate is extended, (3) the reaction rate is accelerated and burning velocity is increased. These results are in accordance with those of previous experiments. To make clear the mechanism, we discuss the flame characteristics based on the chemical scheme and radical transport. Particularly, we examine the non-equilibrium (super-equilibrium) concentration in the reaction zone, and compare it with equilibrium value obtained by chemical equilibrium calculation. It could be concluded that effects of hydrogen addition are explained by the fact that the non-equilibrium radical concentration in the reaction zone is increased by hydrogen addition, which plays an important role in chain-reactions in lean combustion.

**Key Words:** Premixed Combustion, Chemical Reaction, Diffusion, Non-Equilibrium, Lean Combustion, Hydrogen Addition, Tubular Flame

## 1. 緒 論

環境問題やエネルギー有効利用の観点から希薄燃焼が近年注目されている。しかし、希薄燃焼は燃焼速度が小さく火炎安定性が悪いため、不完全燃焼や火炎の吹消えが起こる。また、燃焼負荷を高くすることができないなどの欠点をもつ。したがって、希薄燃焼には何らかの対策が必要となる。そこで著者らは、希薄燃焼の改善を行うため、回転流れと水素添加の効果に着目した<sup>(1)~(4)</sup>。

回転流れ(旋回流, スワール)は実用燃焼器に幅広く応用されており、これまでもこの回転流れに着目したさまざまな研究が行われてきた<sup>(5)~(11)</sup>。しかしながらこの回転流れが、火炎特性や反応機構に及ぼすメカニズムは、完全には解明されていない。

管状火炎<sup>(12)(13)</sup>は伸長・回転流中に形成されるので、この火炎を研究することにより、回転流れが火炎の特性に及ぼす影響について検討することができる。これ

までの研究により、燃料が水素もしくはメタンの場合には、希薄可燃限界値以下でも安定な燃焼が可能であり、特に回転が強いものほど可燃範囲が広がることが明らかとなっている<sup>(14)(15)</sup>。また、回転強さの効果を説明する因子については、圧力拡散がその有力な候補である<sup>(16)~(19)</sup>。

一方、希薄燃焼の低い燃焼速度を改善するため、反応性の高い水素を利用することを検討した。希薄混合気に水素を添加して実験を行った結果<sup>(3)(4)</sup>、水素を添加すると、(1) 火炎温度と火炎直径が増加する、(2) 燃焼速度と熱放出速度が増加する、(3) 水素の添加により燃焼が維持される熱放出速度が小さくなり、より希薄な燃焼が可能となる、という知見を得た。

この水素添加の効果のメカニズムについては明らかではなく、詳細な検討が必要である。しかしながら、メタン単独の燃焼を考える場合でも、含まれる素反応の数は膨大であり、しかも反応特性は、気体の流れ、粘性、熱伝導、そして拡散などの気体力学的特性により大きく影響されるので、水素添加の影響を解析的に検討し、メカニズムを明らかにすることは困難であった。

そこで本研究では、メタンの四段の簡略化機構<sup>(20)(21)</sup>

\* 原稿受付 1998年10月5日。

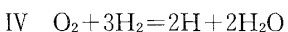
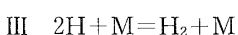
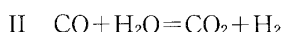
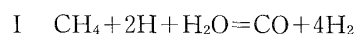
<sup>\*1</sup> 正員, 豊橋技術科学大学(〒441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1)。

E-mail: yamamoto@mech.tuf.ac.jp

(Reduced 4-step Mechanism)を用いて、詳細な輸送係数を考慮した管状火炎の数値計算を行い、希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果、火炎特性および反応機構の点から検討した。

## 2. 数値解析法

図1に解析に用いた円筒座標系を示す。原点を管の中心にとり、 $r$ は半径方向距離、 $z$ は軸方向距離、 $\theta$ は回転角度とし、これら各方向の速度成分をそれぞれ $v_r, v_z, v_\theta$ とする。混合気は速度 $v_{\theta,0}$ で回転する壁面より垂直に一律な速度で吹出される。計算に用いた仮定はこれまでのものと同じである<sup>(16)~(19)</sup>。支配方程式は、圧縮性、粘性、熱伝導率、および物質拡散を考慮した質量、運動量、エネルギーの保存式と状態方程式であり、これらの式を相似解を仮定して差分法により解く。混合気は水素を添加したメタン・空気の希薄混合気とし、反応には以下のような四段の反応メカニズムを用いた<sup>(20)(21)</sup>。ここで、計算のうえで考慮する化学種は $\text{CH}_4, \text{O}_2, \text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{CO}, \text{H}_2, \text{H}, \text{N}_2$ の8成分である。



計算条件は、これまでの実験結果に対応させるため、壁面における半径方向速度(吹出し速度)を $0.2 \text{ m/s}$ 、回転速度を $10 \text{ m/s}$ とした。計算領域は、回転軸における対称性を考慮して $r=0 \sim 9.5 \text{ mm}$ とした。ただし、 $r=0 \text{ mm}$ が中心に、 $9.5 \text{ mm}$ が管壁に対応する。

## 3. 計算結果

**3.1 火炎温度および火炎直径** まずはじめに、水素を添加した場合としない場合の火炎構造の違いを調べるために、メタンの体積濃度を5%と一定にし、添加する水素の濃度を $0, 0.2\%$ として計算を行った。

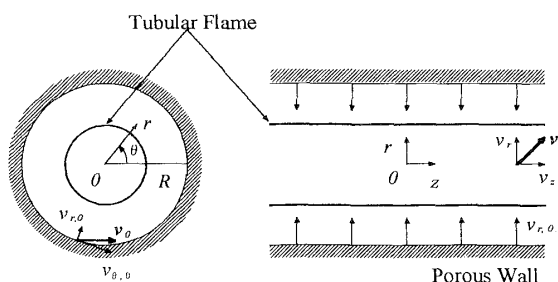


Fig. 1 Axially symmetric flow field in an infinitely long rotating porous tube with uniform injection

その結果得られた温度 $T$ と熱放出速度 $Q$ の半径方向分布を図2に示す。ただし、熱放出速度は四段の反応熱の合計から求めた。

まず水素を添加しない場合、 $r=5 \text{ mm}$ 付近で温度が上昇しはじめ、反応帯と考えられる $r=4 \text{ mm}$ で温度が急激に上昇し、その後中心で一定値( $1516 \text{ K}$ )となった。一方、水素を添加した場合も同様な分布となったが、温度の立上り位置が約 $6 \text{ mm}$ であり、分布は壁面方向に平行に移動した。加えて、中心での最高温度が $1533 \text{ K}$ であり、水素を添加しない場合より約 $20 \text{ K}$ 程度高くなることがわかった。また、水素を添加することにより、熱放出速度分布も壁面側に移動し、熱放出速度の最大値も増加することがわかった。

この中心での最大値を火炎温度 $T_f$ とし、添加する水素濃度を変化させて火炎温度を求めた。この結果を図3に示す。また比較のため、メタンの燃料濃度がほぼ同じ場合の実験結果<sup>(4)</sup>も同時に示す。まず計算に

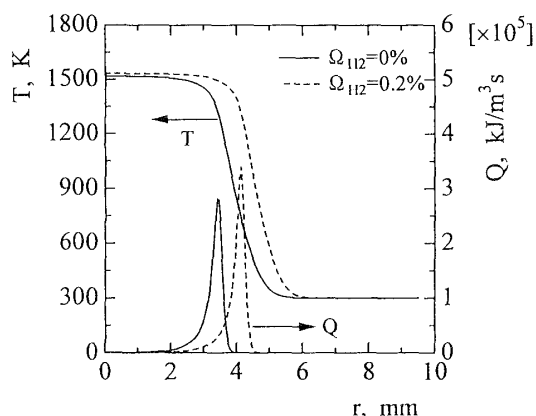


Fig. 2 Temperature and heat release rate distributions ( $v_{r,0}=0.2 \text{ m/s}$ ,  $v_{\theta,0}=10 \text{ m/s}$ ,  $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

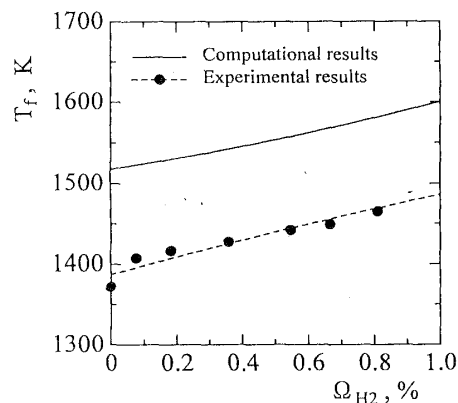


Fig. 3 Variations of flame temperature obtained by computational and experimental results with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

より得られた火炎温度であるが、水素を添加すると単調に増加することがわかった。これを実験結果と比較すると、添加した水素濃度に対する火炎温度の変化が、実験結果と定性的に同じであることがわかった。ただし、今回の計算により求められた火炎温度のほうが約100 K程度高い値となった。おそらくこの違いは、ふく射による熱損失を今回の計算で考慮していないためであると思われる。

次に、水素を添加した場合の火炎挙動を調べる目的で、半径方向分布から熱放出速度が最大となる半径方向位置  $r_0$  を求めた。この結果を図4に示す。これによると、水素を添加することにより、 $r_0$  は単調に増加していることがわかる。熱放出速度が最大となる位置は、発熱反応が活発に起こっている領域を示しており、反応帯の位置にほぼ対応していると思われる。したがって、水素の添加による  $r_0$  の増加は、火炎直径の増加を意味する。これまでに行った実験<sup>(3)</sup> では、水素を添加することにより火炎直径が増加することがわかっている。したがって今回の結果は、実験結果と定性的に一致することが明らかとなった。

**3・2 燃焼速度** 次に、管状火炎の燃焼速度について検討した。火炎面に対する未燃混合気の法線方向の速度成分(半径方向速度)と燃焼速度の釣合いを考え、火炎面における半径方向速度を求めることにより、燃焼速度  $S_L$  を得る。すでに行った実験では、温度分布を測定し、温度の立上り位置での半径方向速度を求め、燃焼速度を決定した<sup>(3)(4)</sup>。ただし、管状火炎は伸長・回転流中に形成されるので、ここで求めた燃焼速度が、いわゆる非伸長の一次元火炎の値とは異なることに注意する必要がある。実験と同様、メタンの体積濃度を5%と一定にし、添加する水素濃度を変化させ、水素を添加したときの燃焼速度の変化について検討し

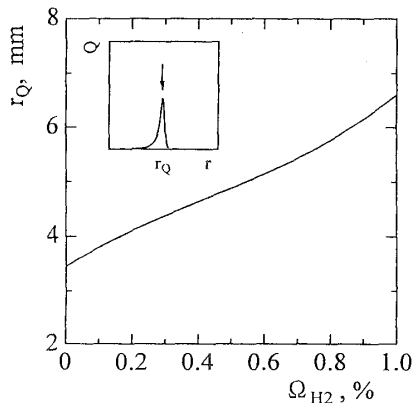


Fig. 4 Variations of radial distance of maximum heat release rate with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

た。

添加する水素濃度が0%と0.2%の場合に得られた半径方向速度分布を図5に示す。半径方向速度は、流れが中心に向かうため負の値をとる。いずれの場合も半径方向距離が減少するにつれ、その絶対値は増加するが( $r=8\sim 9.5$  mm), その後単調に減少する。火炎帯に入ると、温度上昇による密度変化のためいったん流速が増加するが( $r=3\sim 6$  mm), 既燃ガス中では再び減少して零となる。この流速分布を図2の半径方向温度分布と比較すると、温度の立上り位置で半径方向速度が極小値をとることがわかり、この値が燃焼速度となる。水素を添加しない場合は燃焼速度が11.3 cm/s, 水素を添加すると燃焼速度は12.4 cm/sとなった。したがって、これまでの実験<sup>(3)</sup>と同様、今回の計算でも、水素を添加することにより燃焼速度が増加することが明らかとなった。

さらに、添加する水素濃度を変化させて、燃焼速度を求めた。その結果を図6に示す。これによると、水素を添加することにより燃焼速度が単調に増加することがわかった。水素を約1%添加すると約40%燃焼速

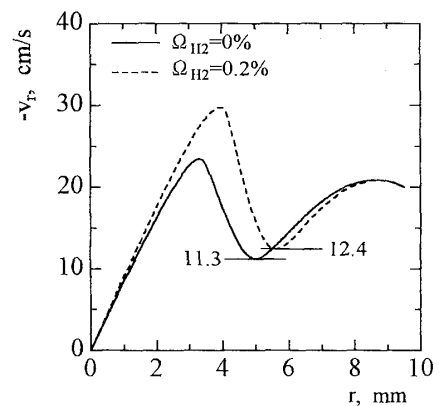


Fig. 5 Radial velocity distribution ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

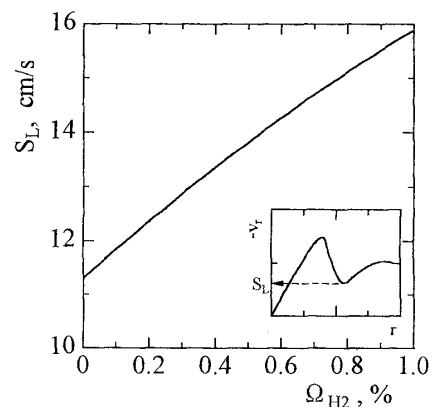


Fig. 6 Variations of burning velocity with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

度が増加した。したがって、これまでの実験で示された水素添加による燃焼速度の増加を、今回の数値計算で示すことができた。ただし今回得られた燃焼速度は、実験結果よりも高い値となった。実験では、詳細な速度分布を測定していないため、よどみ流れを仮定し<sup>(22)(23)</sup>、温度の立上り位置で半径方向速度分布を求め、燃焼速度を算出している。そのため実験で得られた燃焼速度は、実際の値といくぶん異なるものと思われるが、少なくとも定性的には、水素を添加することにより混合気の燃焼速度を増加させることができることがわかった。

**3.3 反応割合** 最後に燃焼負荷の面から、水素添加の希薄燃焼を検討するため、以下のような式でメタンの反応割合を定義し、添加する水素の量を変化させて反応割合 (Reaction Ratio,  $RR$ ) を計算した。実際に反応速度を実験で求めることは困難であるが、数値計算ではこのような値を得ることが可能である。これにより、管壁から吹出したメタンのうち、どの程度の量が反応しているかがわかるので、水素添加の効果を見積もることができる。

$$RR = \frac{\text{メタンの反応量}}{\text{メタンの流入量}} = \frac{-\int_0^R M_{\text{CH}_4} 2\pi r \omega_{\text{CH}_4} dr}{v_{r,0} 2\pi R \rho Y_{\text{CH}_4,0}}$$

ここで、分母は単位軸方向長さあたりにバーナ内へ流入するメタンの量、分子はメタンの反応速度を半径方向に積分して得られたメタンの反応量を示す。求めた結果を図7に示す。

これによると、水素を添加することにより、反応割合がほぼ単調に増加することがわかった。したがって、水素を添加することにより、メタンの反応速度が加速されるだけでなく、バーナ内のメタンの反応量も増加することが明らかとなった。その変化は、水素を

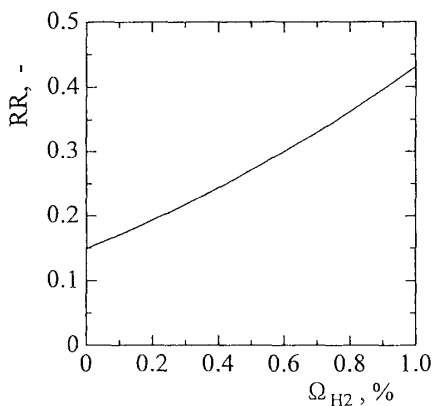


Fig. 7 Variations of reaction ratio with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

1%添加すると、反応割合が約3倍となっており、添加する水素が比較的わずかでも、反応量がかなり増加することがわかった。

#### 4. 考 察

伸長・回転流中に形成される管状火炎を対象に、水素をメタン・空気混合気に添加して計算を行った。その結果、水素を添加すると、(1) 火炎温度が高くなり、火炎直径は大きくなる、(2) 燃焼速度は大きくなる、(3) 主燃料であるメタンの反応量が増加する、ということが明らかとなった。またこの結果は、すでに行われた実験結果と定性的に同じであった。そこで、水素添加の効果のメカニズムを明らかにするため、反応機構に着目し、計算結果の詳細な検討を行う。本研究においては、反応IからIVで示される四段の反応メカニズムを用いたため、反応機構を検討することが比較的容易である。そこでまず、水素を添加したときのこれら四つの反応速度変化について検討した。水素濃度が0, 0.2%のときの反応速度の半径方向分布の結果を図8に示す。

これによると、いずれの反応速度も水素を添加することにより増加していることがわかる。また、各反応帯が壁面方向に移動していることがわかった。特に反応Iは、おもな燃料であるメタンの反応に直接関係するものである。図7では水素添加によりメタンの反応

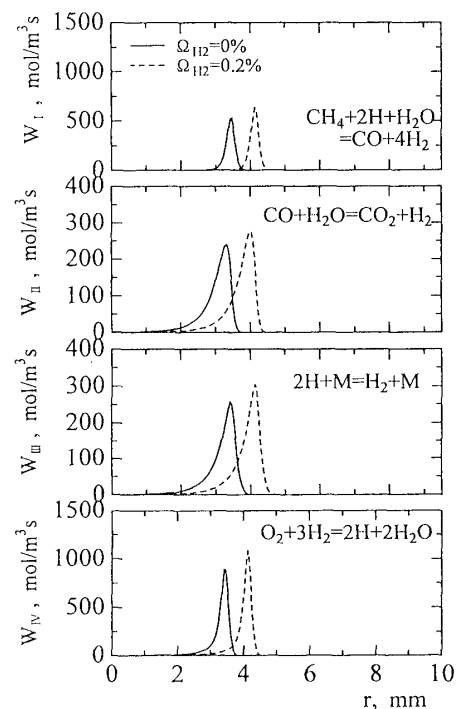
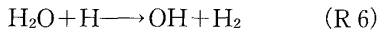
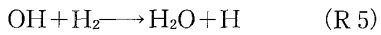
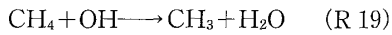
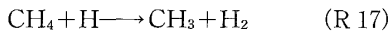


Fig. 8 Radial distributions of 4-step reaction rate ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

量が増加したが、これはメタンの反応速度そのものの増加と、反応帯が壁面方向に移動したので火炎面が増大したことによるものである。この I の反応は、以下の素反応から成る<sup>(20)(21)</sup>。



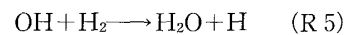
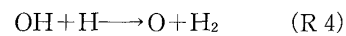
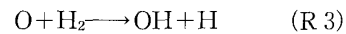
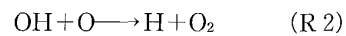
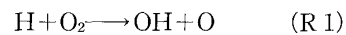
したがって、四段の反応メカニズムに現れる化学種のうち、これらの反応に密接に関連する水素と水素ラジカルについて検討した。まず、水素と水素ラジカルの濃度分布を図9に示す。

まず、水素を添加しない場合、未燃混合気中には H と H<sub>2</sub> は存在しないので、これらは反応により生成されたものと考えてよい。一方、水素を0.2%添加した場合の水素濃度は、 $r=3\sim 6$  mm において徐々に減少している [図9(b)]。したがって、添加した水素濃度が水素を添加しない場合に生成される濃度よりも高いために、添加した水素の多くは消費されたものと考えられる。この結果、Hラジカルが多く生成され、図9(b)に示されるようにHの濃度が高くなる。反応機構は、Hの生成・消滅と密接に関連するので、次に反応特性について検討するため、Hの反応速度を調べた。また、拡散による流束も同時に求めた。この結果を図10に示す。

図10(a)によると、水素を添加しない場合は  $r=3.5\sim 3.9$  mm 付近に、水素を添加した場合は  $r=4.2\sim 4.6$  mm 付近に H が消費される反応帯(領域 A)が存在する。一方、Hの拡散による流束分布を調べると、この領域では流束が正の値をとることから、Hは

拡散により、下流から領域 A に流入していることがわかる。また、水素を添加しない場合は  $r=2.0\sim 3.5$  mm 付近に、水素を添加した場合は  $r=2.5\sim 4.2$  mm 付近に H が生成される反応帯(領域 B)が存在する。この領域では図9で水素が減少していることから、IVの反応により H が生成しているものと思われる。また、水素を添加することにより、Hの生成速度が増加することがわかった。

以上により、水素添加の効果は以下のように説明される。すなわち水素を添加すると、本来連鎖反応の過程で生成される水素がすでに存在することになるので、反応IVに関連する以下の素反応、



を通して、領域 B で水素ラジカルが多く生成される。このため、拡散により領域 A に H が多く流入し、メタンが消費される I の反応速度が増加する。この結果、燃焼速度が増加して、火炎温度が高くなったものと思われる。

このことを確認するため、反応帯における水素ラジカル濃度(非平衡濃度)を調べた。添加する水素濃度を変化させ、反応帯における水素ラジカルのモル分率の最大値  $X_{H, re}$  を求めた結果を図11に示す。比較のため、Gordon-McBrideにより開発された平衡計算プログラム<sup>(24)</sup>を用いて水素/メタン/空気混合気の水素ラジカルの平衡値  $X_{H, eq}$  も求め、図11中に示した。

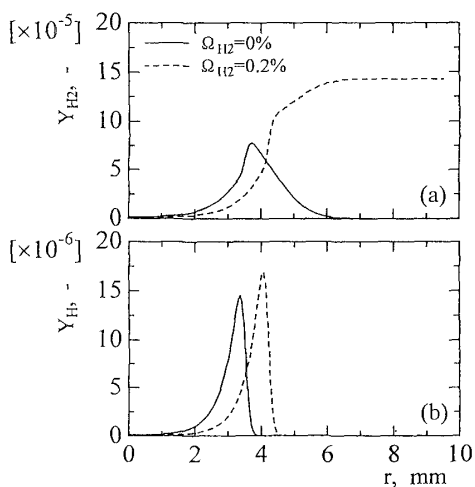


Fig. 9 Mass fraction of (a) H<sub>2</sub> and (b) H distributions ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

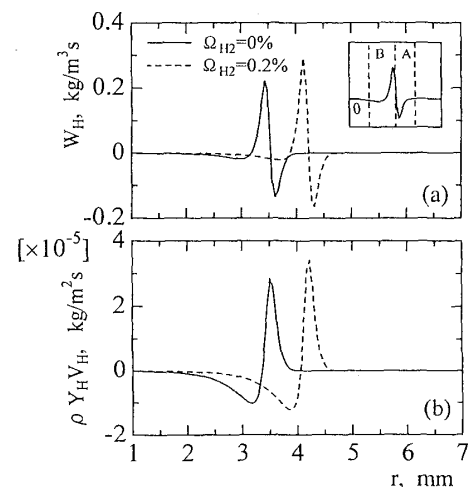


Fig. 10 (a) Reaction rate and (b) diffusion flux of H distributions ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

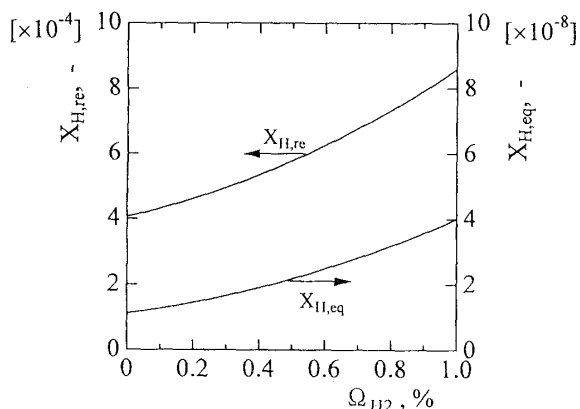


Fig. 11 Variations of mole fraction of H in reaction zone and equilibrium value of H with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

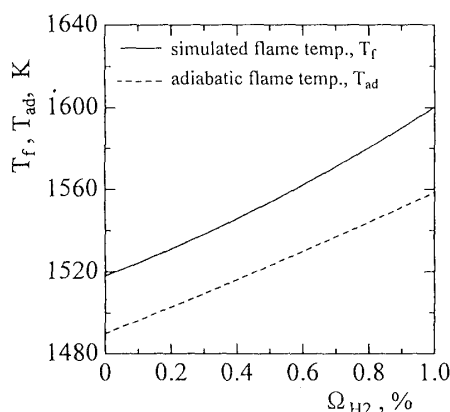


Fig. 12 Variations of simulated flame temperature and adiabatic flame temperature with hydrogen concentration ( $\Omega_{\text{CH}_4}=5\%$ )

また、図 12 にこの平衡計算プログラムによって得られた断熱火炎温度  $T_{ad}$  と今回の計算で得られた火炎温度  $T_f$  を示す。

これによると、今回得られた管状火炎の火炎温度と同様、断熱火炎温度も、水素を添加することにより単調に増加することがわかる。ただし、管状火炎のほうが、約 30 K ほど高い値を示すことがわかった。これはおそらく、火炎が伸長流れ場で形成されるので、管状火炎が正の伸長率をもち、流管をよぎる熱・物質移動が生じることから説明される<sup>(12)(13)(23)</sup>。すなわち、メタンおよび水素の希薄混合気の場合は、ルイス数が 1 より小さいため、熱伝導による熱損失の負の効果よりも不足成分である燃料が反応帯に過剰に供給される正の効果が大きいため、断熱火炎温度よりも高くなったものと思われる。

次に、管状火炎の反応帯における水素ラジカル濃度の最大値を求めた結果、水素を添加すると反応帯の非

平衡濃度が高くなり、水素を約 1% 添加すると、反応帯の H ラジカル濃度がほぼ倍となることがわかった。一方、同じ条件で平衡計算プログラムにより計算された平衡濃度も、添加する水素濃度の増加とともに高くなることはわかったが、その絶対値は反応帯の濃度の約 10 000 分の 1 であり、非常に低い濃度であることがわかった。

これまでの実験において、水素を多く添加すると、消炎時の熱放出速度が減少し、より低いメタン濃度でも燃焼が可能となることがわかっている<sup>(3)</sup>。これも水素を添加することにより、燃焼反応に必要なラジカルが多く生成され、より低い熱放出速度でも連鎖反応が維持されて、より希薄な燃焼が可能となったものと思われる。

## 5. 結 論

希薄燃焼に及ぼす水素添加の効果を調べる目的で、水素を添加したメタン・空気混合気中に形成される管状火炎を対象に、詳細な輸送特性を考慮した数値計算を行った。その結果、これまでの実験結果と同様、水素を添加することにより、火炎直径、火炎温度、燃焼速度が増加することがわかった。このことから、水素を添加することで、混合気の燃焼速度を増加させ、燃焼負荷を高くすることができ、希薄燃焼の改善が可能となることが明らかとなった。そのメカニズムは、水素を添加することにより、希薄燃焼に特に重要な反応帯における非平衡のラジカル濃度が増加し、燃焼反応が促進されたことから説明される。

## 文 献

- (1) 田口秀之・ほか 5 名, 第 32 回航空原動機・宇宙推進講演会論文集, (1992), 232-237.
- (2) Strehlow, R. A., *Combust. Fundam.*, (1984), 253-262.
- (3) 山本和弘・丸山昌幸・小沼義昭, 機論, **64**-622, B(1998), 1919-1924.
- (4) 山本和弘・丸山昌幸・小沼義昭, 機論, **65**-629, B(1999), 351-356.
- (5) Lewis, G. D., *Proc. 13rd Symp. (Int.) Combust.*, (1971), 625-629.
- (6) Syred, N., Chigier, N. A. and Beer, J. M., *Proc. 13rd Symp. (Int.) Combust.*, (1971), 617-624.
- (7) Lewis, G. D., *Proc. 14th Symp. (Int.) Combust.*, (1973), 413-419.
- (8) Matsushita, S., Inoue, T., Nakanishi, K., Okumura, T. and Isogai, K., *SAE Paper*, No. 850046 (1985).
- (9) Weinberg, F. J., *Combust. Flame*, **78**(1989), 121-127.
- (10) Zhang, D. and Hill, P. G., *Combust. Flame*, **106**(1996), 318-332.
- (11) Asato, K., Wada, H., Hiruna, T. and Takeuchi, Y., *Combust. Flame*, **110**(1997), 418-428.
- (12) Ishizuka, S., *Proc. 20th Symp. (Int.) Combust.*, (1984), 287-294.

- (13) Ishizuka, S., *Combust. Flame*, **75**(1989), 367-379.
- (14) Yamamoto, K., Ishizuka, S. and Hirano, T., *Proc. 25th Symp. (Int.) Combust.*, (1994), 1399-1406.
- (15) 山本和弘・石塚悟・平野敏右, 機論, **62**-600, B(1996), 3185-3190.
- (16) 山本和弘・石塚悟・平野敏右, 燃焼の科学と技術, **3**(1996), 199-211.
- (17) Yamamoto, K., Ishizuka, S. and Hirano, T., *Proc. 26th Symp. (Int.) Combust.*, (1996), 1129-1135.
- (18) Yamamoto, K. and Ishizuka, S., *Proc. 10th Int. Symp. Transport Phenomena (ISTP-10)*, (1997), 577-580.
- (19) 山本和弘・石塚悟, 機論, **63**-615, B(1997), 3751-3757.
- (20) Peters, N., *Lecture Notes in Physics*, **241**(1985), 91-109, Springer-Verlag, Berlin.
- (21) Rogg, B., *Lecture Notes in Physics*, **384**(1991), 159-192, Springer-Verlag, Berlin.
- (22) Takeno, T. and Ishizuka, S., *Combust. Flame*, **64**(1986), 83-98.
- (23) Ishizuka, S., *Prog. Energy Combust. Sci.*, **19**(1993), 187-226.
- (24) Gordon, S. and McBride, B. J., Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions, Rocket Performance, Incident and Reflected Shocks, and Chapman-Jouget Detonations, *NASA Spec. Publ.*, **273**, Interim Revision N78-17724(1976).