

平成 30 年 5 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03927

研究課題名(和文) 火炎と壁面の熱的・化学的干渉機構の解明と制御

研究課題名(英文) Elucidation and Control of Flame-to-Wall Interaction through Thermal/Chemical Effects

研究代表者

鈴木 雄二 (Suzuki, Yuji)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：80222066

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：壁面は、流体力学的・熱的な境界条件を規定することによって火炎に影響を及ぼしているが、同時に壁面の化学的境界条件も大きな影響因子である。化学的境界条件は表面反応に依存し、ラジカルの吸着による化学的消炎、ラジカルの脱離による気相反応・自着火促進などを通じて、燃焼場において重要な役割を果たすことが近年明らかになりつつある。本研究では、壁面の化学種を変化させた場合の壁近傍の燃焼機構を、火炎温度・ラジカル分布の顕微PLIF計測、ラジカルの放電生成による非燃焼場での表面反応計測、気相詳細反応と表面反応を組み込んだ数値解析を用いて詳細に検討し、火炎と壁面の熱的・化学的な干渉効果の物理現象を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Flame near the wall is largely affected by the chemical boundary condition as well as the thermal and fluidic boundary conditions. The chemical boundary condition depends on the surface reaction, and recently it is proved that it has an important role in the macroscopic combustion field through chemical quenching by radical adsorption and enhancement of gas-phase reaction/autoignition by desorption of the radical from the surface. In the present study, near-wall combustion mechanisms when the surface chemical materials are modified, and thermal and chemical flame-to-wall interaction is investigated in detail. For that purpose, a series of measurements of flame temperature, radical distribution using microscopic laser induced fluorescence, and surface reaction measurement in non-combustion field using electro-discharge-based radical formation as well as numerical simulations with detailed gas-phase and surface reactions are carried out.

研究分野：熱工学

キーワード：燃焼 壁面効果 表面反応 LIF 冷炎 化学吸着 weak flame

1. 研究開始当初の背景

壁面が火炎に与える影響として、速度勾配による流体力学的効果、壁面への熱損失に伴う熱的效果があることはよく知られた事実である。例えば、火炎は、せん断の強い領域では火炎伸張により、また、燃焼速度に比べて壁面への熱損失が相対的に大きいとき、それぞれ消炎に至り、これらは産業用燃焼器、内燃機関の設計において重要な検討項目である。

一方、火炎は、壁面の化学的境界条件にも大きく影響される。壁面が高い化学的活性を持つ触媒層の場合、表面反応による燃料の酸化反応・発熱が生じ、触媒支援燃焼ではそれにより気相反応が促進される。これに対し、壁面の化学的活性が触媒ほど高くない場合においても、火炎は壁面の化学的活性度に大きな影響を受ける。Miesse et al. (2004)は、壁温が高い場合、壁面材質に応じて消炎距離が10倍以上変化することを示し、化学的效果の重要性を指摘した。しかし、彼らは、バルク基板を壁面として用いたため、異なる材料において壁面の熱伝導率、すなわち熱的境界条件も変化していると考えられ、熱的消炎と化学的消炎効果を完全に分離できていなかった。また、古典的な消炎距離のみが議論され、詳細なラジカル表面反応モデルの構築に必要な壁面近傍における火炎構造の定量的な情報は得られていなかった。

申請者らは、平成19～21年度基盤研究(B)「マイクロ燃焼における化学的消炎機構に関する研究」、および平成22～24年度基盤研究(B)「MEMS技術とレーザー計測の融合によるマイクロ燃焼の解明と制御」において、壁面の熱的および化学的效果が火炎に与える影響の検討を行った。まず、光学的アクセスが可能な幅0.7～1.5 mmの石英流路内にメタン予混合火炎を形成し、時系列OH/CH自発光計測、OH PLIF計測、条件抽出2ラインOH法による温度計測を行い、定常火炎、振動火炎の保炎範囲をマッピングし、振動火炎の消炎には熱的效果が与える影響が大きいことを明らかにした(Fan et al., 2009, 2011)。また、壁面からの距離10 μm程度からデータ取得可能な顕微鏡下のOH-PLIFを構築し、100 nm厚の異なる材料を成膜した石英基板を用いた平行平板流路内において、メタン予混合火炎のOH分布を計測した。その結果、

化学的消炎効果が吸着律速であること、アルミナはほぼ不活性であるのに対し、従来不活性と考えられてきた石英はOHの初期吸着係数0.01に相当して有為な化学的消炎効果が存在すること、そして、SUS/インコネルなどの金属は初期吸着係数が石英の10倍の0.1であることを初めて明らかにするなど(Saiki et al., 2013)、火炎に対する壁面の化学的效果という新しい分野を開拓してきた。

申請者らは、これらの研究を進めていくうち、壁面の表面活性、熱伝導率を系統的に変化させ、申請者らの開発した顕微PLIFを中心とした実験計測と詳細モデルを用いた数値解析により、表面反応が気相燃焼反応に与える影響を調査することによって、火炎に対する壁面の熱的・化学的な干渉メカニズムおよびその制御方法について統一的な理解が得られるのではないかという着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、アークプラズマガン、原子層堆積法(ALD)などのMEMS技術を駆使して、表面化学種、表面粗さの異なる壁面、すなわち化学的境界条件を系統的に変化させた壁面の作製を行う。そして、異なる燃料における壁面近傍でのラジカル分布を定量計測し、気相反応、表面反応の詳細反応機構を用いた数値解析結果と比較することによって、火炎に対する壁面の化学的な干渉機構の解明を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、
 (1) 平行平板間におけるメタン・空気火炎における壁面の化学的效果
 (2) 流れ方向に温度勾配を印加したマイクロリアクタ内に形成されるDMEのweak flameにおける壁面の化学的效果
 (3) 壁面で安定化されるDME・酸素冷炎における壁面の化学的效果
 について実験計測・数値解析による検討を行った。また、そのため、新しい実験系の構築、水素原子の2光子吸収LIF計測システムの構築などを行った。

4. 研究成果

(1) 平行平板間におけるメタン・空気火炎における壁面の化学的效果
 水素原子の2光子吸収LIFのための励起波長205nmを得るには、615nmとその倍波を合成する必要があるが、従来の2ビーム形式ではアライメントが難しく、変換効率が2%程度に留まっていた。本研究では、図1に示す1ビームの新しい光学系を構築し、8.6%の高い変換効率を得ることができた。この励起光を用いて、3mm間隔の平行平板間に形成さ

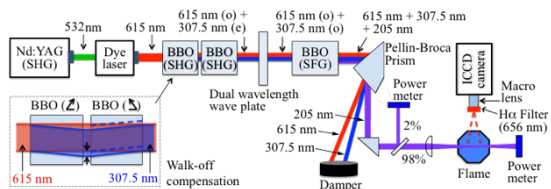


図1 水素原子の2光子吸収 LIF 計測システム (Fan et al., 2017, 2018)

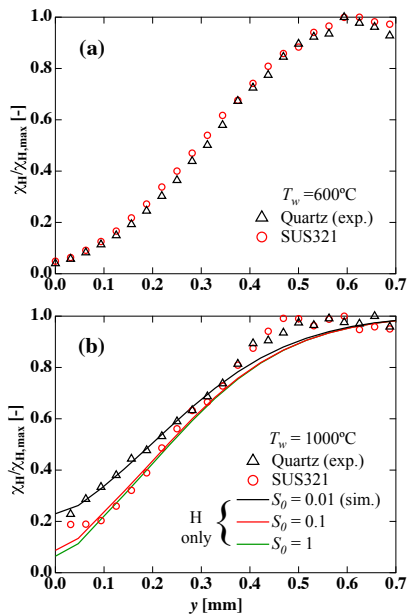


図2 水素原子の壁垂直方向分布と水素原子のみの吸着を仮定した数値解析結果. a)壁温 600°C, b)壁温 1000°C (Fan et al., 2017, 2018).

れたメタン・空気火炎に適用した. 図2に示すように, 壁温 600°Cでは, 壁面の材質によって水素原子分布に変化がなく, 熱的効果が支配的であることが判る. 一方, 壁温 1000°Cでは石英に対してステンレス壁面上の濃度は顕著に減少し, ラジカル吸着モデルとのフィッティングにより, 初期吸着係数 S_0 が 0.1 程度に相当することが明らかになった. また, 異なる化学種の S_0 に対する感度解析から, 熱炎においては水素原子の吸着が支配的な役割を果たすことが示された.

(2)流れ方向に温度勾配を印加したマイクロリアクタ内に形成される DME の weak flame における壁面の化学的効果

冷炎に対する壁面化学的効果を検討するため, 矩形断面を持つ石英製マイクロリアクタ (図3) を新たに構築した. 流れ方向に温度勾配を印加することにより, DME・空気混

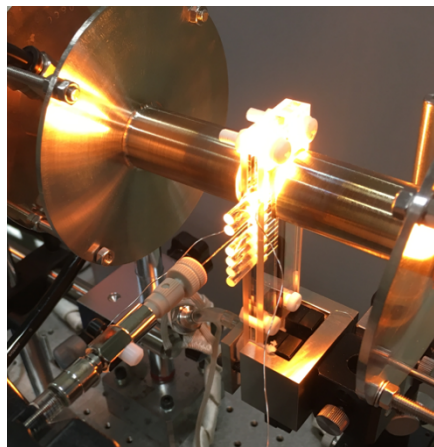


図3 矩形断面の石英流路を用いた weak flame の実験装置 (断面 1.5 mm x 5 mm, Wan et al., 2016, 2017, 2018)

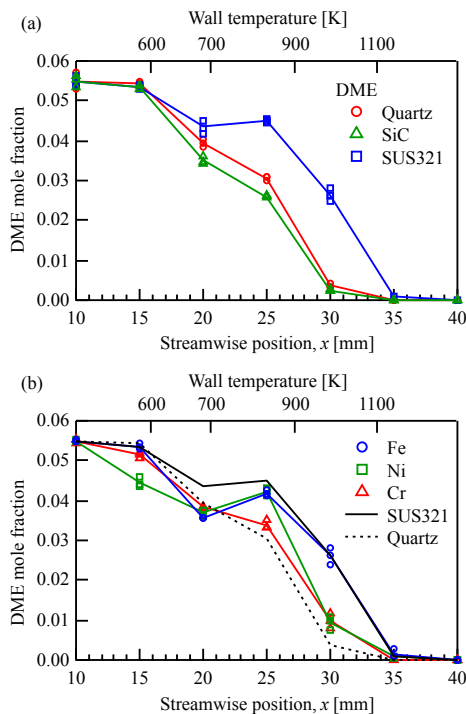


図4 weak flame における壁面の化学的効果 (Wan et al., 2016, 2017, 2018)

合気流速が極めて低いときには, weak flame が形成されて火炎が cool flame, blue flame, hot flame に空間的に分離され, それぞれの火炎に対する壁面効果の定量計測が可能となる. 壁面表面の材質を変化させて, LIF, ガスクロ計測により, 壁面の化学的効果が火炎構造に与える影響を定量計測した. 図4は, DME の流れ方向分布である. 石英や Cr 表面では, 下流に向かうに従って, 燃料である DME が単調に減少するのに対し, SUS321, Fe, Ni では, 700-800K の温度範囲で DME 濃度が一定あるいは逆に増大する極めて特異

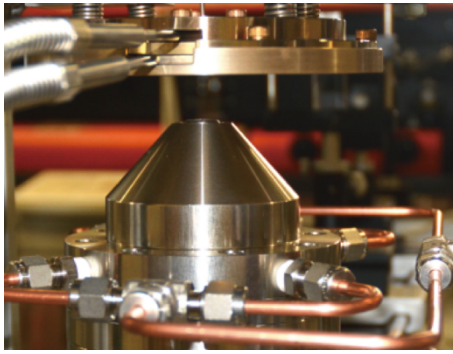


図5 加熱壁面への衝突噴流により形成した冷炎の実験装置（ノズル径1cm, Lee et al., 2017, 2018）

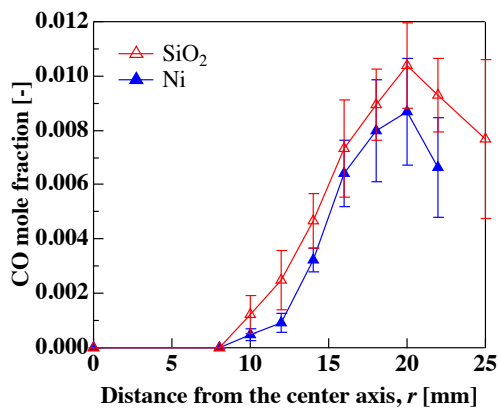


図6 壁面で安定化された冷炎におけるCOの半径方向濃度分布（Lee et al., 2017, 2018）

的な様相を示す。CO, OH濃度は下流側にシフトし、熱炎の着火が遅延することが判った（図省略）。従って、この場合、壁面の化学的効果は単なるラジカル破壊に留まらず、気相反応と干渉して火炎構造全体が変化することが明らかになった。

(3) 壁面で安定化されるDME・酸素冷炎における壁面の化学的効果

対向流火炎は、燃焼分野において代表的な燃焼形態である。本研究では、図5に示すように、加熱壁面への衝突噴流により定常冷炎を形成する全く新しい実験系を構築した。1次元/2次元解析を用いて定常冷炎の形成条件を検討し、DME・酸素混合気を700Kの加熱壁に衝突させることにより、安定化できることを示した。また、得られた条件において、図5の装置での実験計測を行い、実際に定常火炎が安定化することをHCHO-PLIF、火炎温度計測により明らかにした。また、図6に示すように、SiO₂表面に比べてNi表面でのCO濃度は低下し、また火炎温度、HCHO濃度も低下しており、冷炎において、顕著な壁面の化学的効果を与えことを初めて明らか

にした。

以上より、本研究では、壁面の熱的境界条件を保ちながら、化学的境界条件のみを変化させることのできる実験系として、壁温を一定に保った平行平板間流れ、流れ方向に温度勾配を印加したマイクロ流路、加熱壁に対する衝突噴流の3つの形態を構築し、熱炎、冷炎に関する壁面の化学的効果に対して、多くの定量的データを得るとともに、表面反応の重要性を明らかにした。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計5件）

- ① Lee, M., Fan, Y., Reuter C.B., Ju, Y., and Suzuki, Y., “DME/Oxygen Wall-Stabilized Premixed Cool Flames,” Proc. Combust. Inst., (2018), in press. (査読有)
 - ② Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Wall Chemical Effect of Metal Surfaces on DME/air Cool Flame in a Micro Flow Reactor,” Proc. Combust. Inst., (2018), in press. (査読有)
 - ③ Fan, Y., Saiki, Y., Sanal, S., and Suzuki, Y., “Two-dimensional H-TALIF Measurements and Numerical Simulation of Methane Flame under Wall Chemical Effect” Proc. Combust. Inst., (2018), in press. (査読有)
 - ④ Fan, Y., Saiki, Y., Sanal, S., and Suzuki, Y., “H-TALIF Measurement for Wall Radical Quenching Modeling in Microscale Combustion,” J. Sci.: Conf. Ser., (2018), in press. (査読有)
 - ⑤ Saiki, Y., Fan, Y., and Suzuki, Y., “Radical Quenching on Metal Surface in a Methane-air Premixed Flame,” Combust. Flame, Vol. 162, pp. 4036-4045 (2015). (査読有)
- <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.07.043>

〔学会発表〕（計20件）

- ① Saiki, Y., Kinefuchi, I., Fan, Y., and Suzuki, Y., “Evaluation of H-atom Adsorption on Wall Surfaces with a Plasma Molecular Beam Scattering Technique,” 37th Int.

- Symp. Combust. (Combustion 2018), Dublin, (2018), to be presented. (査読有)
- ② Lee, M., Fan, Y., Ju, Y., and Suzuki, Y., “Wall Chemical Effects on Wall-Stabilized Cool Flames” 37th Int. Symp. Combustion (Combustion 2018), Work-in-Progress Poster, Dublin, (2018), to be presented.
- ③ 李敏赫, 范勇, 鈴木雄二, “壁面で安定化された冷炎における化学的干渉効果に関する研究,” 第55回日本伝熱シンポジウム, 札幌, (2018), A123. (発表予定)
- ④ 万・范・丸田・鈴木, “Effect of Wall Surface Reaction on a DME/air Weak Flame in a Micro Flow Reactor with a Streamwise Temperature Distribution,” 第53回日本伝熱シンポジウム, 大宮, A133 (2017).
- ⑤ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Development of Surface Reaction Model for DME/air Weak Flame in Alloy/metal-coated Channels,” 第55回燃焼シンポジウム, 富山, D214, (2017).
- ⑥ 李・范・C. B. Reuter・Y. Ju・鈴木, “壁面近傍で安定化された冷炎の数値計算とHCHO-PLIF計測,” 第55回燃焼シンポジウム, 富山, E131, (2017).
- ⑦ Lee, M., Fan, Y., Reuter, C. B., Ju, Y., and Suzuki, Y., “Numerical Study and HCHO-PLIF Measurement of Wall-Stabilized Cool Flames,” 10th Asia-Pacific Conference on Combustion (ASPACC), Sydney, p248 (2017).
- ⑧ Wan, S., Fan, Y., and Suzuki, Y., “Investigation of Wall Chemical Effect on Weak Flame with GC and PLIF,” 11th Asia-Pacific Conference on Combustion (ASPACC), Sydney, p396 (2017).
- ⑨ Lee, M., Reuter, C. B., Suzuki, Y., and Ju, Y., “Numerical Study of Wall-stabilized Cool Flames,” Asian Conf. Therm. Sci. (ACTS2017), Jeju, ACTS-P00731 (2017).
- ⑩ Wan, S., Fan, Y., Saiki, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Investigation of Wall Chemical Effect on DME Weak Flame in a Rectangular Micro Channel with a Streamwise Temperature Gradient,” 36th Int. Symp. Combustion (Combustion 2016), Seoul, Work-in-Progress Poster, 1P123 (2016).
- ⑪ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “HCHO-PLIF Measurement of DME Weak Flame for Investigation of Wall Chemical Effect,” 36th Int. Symp. Combustion (Combustion 2016), Seoul, Work-in-Progress Poster, 2P138 (2016).
- ⑫ 齋木・杵淵・范・鈴木, “プラズマ分子線散乱法による水素ラジカル吸着の計測,” 第52回日本伝熱シンポジウム, 大阪, I321, (2016).
- ⑬ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Investigation of Wall Chemical Effect on DME/air Weak Flame by HCHO-PLIF,” 第52回日本伝熱シンポジウム, 大阪, I322, (2016).
- ⑭ 范・サナル・齋木・鈴木, “2光子吸収レーザー誘起蛍光法を用いた壁面の化学的消炎における水素吸着の影響評価,” 日本機械学会熱工学コンファレンス2016, 松山, E223 (2016).
- ⑮ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “HCHO-PLIF Measurement of DME Weak Flame for Wall Chemical Effect Study,” 第54回燃焼シンポジウム, 仙台, B134 (2016).
- ⑯ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Wall Chemical Effect on DME Weak Flame in a Rectangular Micro Channel with a Streamwise Temperature Gradient,” 10th Asia-Pacific Conference on Combustion (ASPACC), Beijing, (2015), ID.295.
- ⑰ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Investigation of Radical Quenching for the DME/air Weak Flame in a Rectangular Micro Channel with a Streamwise Temperature Gradient,” 第53回燃焼シンポジウム, つくば, (2015), pp. 32-33.
- ⑱ Suzuki, Y., Plenary talk, “Micro Energy - Crossroad between Thermal Engineering and MEMS Technology,” 8th Int. Symp. on Turbulence, Heat and Mass Transfer, Sarajevo, 2015.9.17.
- ⑲ Wan, S., Fan, Y., Maruta, K., and Suzuki, Y., “Wall Chemical Effect on Weak Flame in a Micro Channel with a Streamwise

Temperature Gradient,” 第52回日本伝熱シンポジウム, 福岡, B124, (2015).

- ⑳ 齋木・鈴木, “壁面の化学的消炎効果における吸着ラジカル種の影響,” 第52回日本伝熱シンポジウム, 福岡, B115, (2015).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 雄二 (SUZUKI, Yuji)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：80222066

(2) 研究分担者

范 勇 (FAN, Yong)
東京大学・大学院工学系研究科・助教
研究者番号：40748662

(3) 連携研究者

森本 賢一 (MORIMOTO, Kenichi)
東京大学・大学院工学系研究科・講師
研究者番号：90435777

(4) 研究協力者

丸田 薫 (MARUTA, Kaoru)
齋木 悠 (SAIKI, Yu)
ジュ イグアン (JU, Yiguang)
ドイチマン オラフ (DEUTSCHMANN, Olaf)