

令和 4 年 6 月 21 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03971

研究課題名(和文)水素ガスタービン燃焼における壁面の化学的消炎効果の解明と有効利用

研究課題名(英文) Investigation and Utilization of Wall Chemical Quenching Effect in Hydrogen Gas Turbine Combustion

研究代表者

范 勇 (Fan, Yong)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員

研究者番号：40748662

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：石英製薄型流路内に形成された水素火炎を対象に、OH濃度分布を単光子吸収LIF法で取得し、HとOの濃度分布を2光子吸収LIF(TALIF)法で取得した。流路内壁面にInconelの薄膜(100 nm程度)を形成することで、壁面の熱的境界条件を一定に保ったまま、壁面材質が火炎に与える影響を壁面近傍のラジカル濃度分布から定量評価した。そして、各ラジカルが壁面における初期吸着係数を系統的に変化しながら水素火炎の数値シミュレーションを行った。計算と実験で得られたOH、OとHの濃度差の平方和を目標関数とし、最小2乗法を用いて各ラジカルの初期吸着係数の最適値を算出し、表面反応モデルの構築に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、壁面近傍の水素火炎構造をレーザー計測により解明することで、従来定量情報が極めて少ない壁面の化学的消炎効果を系統的に調べることに大きな特色がある。本研究により構築した表面反応モデルは、壁面に近接する多くの燃焼場において、壁面効果を予測するために重要な役割を果たすと考えられ、低NOxかつ安定な水素ガスタービン燃焼のための制御、超小型燃焼器・改質器の開発、HCCIエンジンの熱効率の向上や安定燃焼領域の拡大に大きく寄与すると期待される。また、本研究により確立されるHとO原子の2次元レーザー計測手法は、様々な燃焼場への適応が期待され、また、燃焼場に限らず、プラズマの計測への適応も期待される。

研究成果の概要(英文)： The wall chemical effect on hydrogen (H₂) combustion was studied using a premixed H₂/air flame with N₂ dilution formed in a quartz micro flow reactor with/without a 100-nm thick Inconel coating. Two-dimensional distributions of OH radical, O atom and H atom in the hydrogen flame were measured via laser induced fluorescence (LIF) and two-photon absorption laser induced fluorescence (TALIF) techniques, respectively. It is found that the distributions of all these three main species in the hydrogen flame are significantly changed with/without the Inconel coating. OH, O and H shift downstream in the Inconel-coated channel. Their concentration becomes lower than those in the quartz channel. Based on the measured distributions of OH, O and H over Inconel walls, the initial sticking coefficients in the radical quenching model for Inconel are estimated as 0.4-0.5, 0.1-0.2 and <0.05 for OH, O and H, respectively.

研究分野：燃焼工学

キーワード：水素 燃焼 ラジカル 表面吸着 レーザー誘起蛍光法

1. 研究開始当初の背景

ガスタービン燃焼による再エネ水素の利用拡大が期待されている。水素用ガスタービン燃焼器として、細管ノズルを多数集約したマルチクラスタ燃焼器が提案されている。細管ノズルから形成される水素火炎は、壁面と近接するため、壁面の影響を強く受ける。壁面の干渉による消炎効果の定量化は高性能の水素燃焼器の開発に重要である。

壁面の消炎効果の1つは、壁への熱損失に起因する熱的效果であり、熱損失に伴う可燃限界の変化や燃焼不安定の発生について詳細な検討が行われ、多くの基礎的知見が蓄えられてきた。一方、壁面の消炎効果には、熱的效果とは別に、気相中のラジカルが壁面で吸着・再結合することで消失する化学的效果が存在し得る。化学的消炎効果の重要性は、高壁温条件における消炎距離が壁面材質に応じて10倍以上大きく変化するという Miesse ら(2004)の報告により指摘された[1]。しかし、この化学的效果は、熱的效果と分離して評価することが難しく、また、燃焼場では定量可能なラジカル種も限られることから、定量評価によるモデル化が難しいとされてきた。Saiki らは、マイクロ流路内メタン火炎の OH ラジカルの分布を定量測定し、異なる壁面材質の化学的消炎効果を初期吸着係数により簡易的にモデル化した[2,3]。ただし、計測する化学種を OH に限定したため、各化学種の初期吸着係数の違いは考慮されていなかった。

2. 研究の目的

本研究では、反応メカニズムが比較的単純な水素火炎に着目し、水素燃焼の主な中間生成物である OH ラジカル、O と H 原子をレーザー誘起蛍光法(LIF)により系統的に測定することを通じて、材質の異なる壁面における化学的消炎効果の定量評価、そして、詳細表面反応モデルの構築を目的とする。

また、O と H 原子の計測には、通常単光子吸収 LIF ではなく、2光子吸収 LIF (TALIF)を用いる。これまでの燃焼研究で計測例が極めて少なく、2次元計測が難しいとされている[4, 5]。O と H 原子の2次元 TALIF 計測手法の確立も本研究の1つの目的である。

3. 研究の方法

薄型流路内水素火炎の OH, O, H ラジカルの濃度分布をレーザー誘起蛍光法と数値解析で定量化し、計測と解析結果の比較から Inconel 壁面における各ラジカルの初期吸着係数を見積って、詳細表面反応モデルを構築する。

3.1 薄型流路内水素火炎の LIF 計測

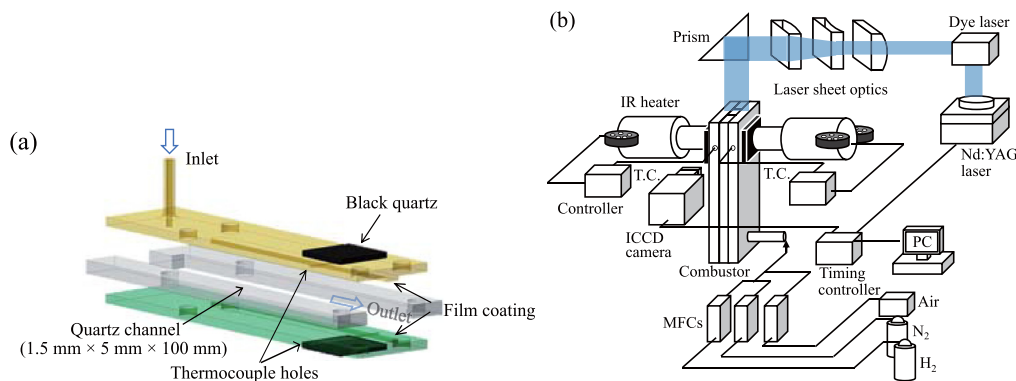


図1 (a)水素燃焼実験用石英製薄型燃焼器, (b)水素火炎の LIF/TALIF 計測装置[6]

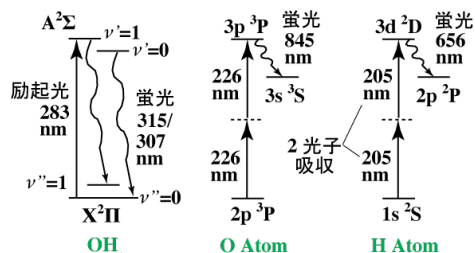


図2 LIF/TALIF による OH, O, H 計測の原理[5]

図1に薄型流路内水素火炎の LIF 計測装置を示す。ラジカル分布の LIF 計測のために、高さ 1.5 mm の石英製薄型流路を試作し、燃焼室として用いた。流路下流側の外壁に2枚の黒色石英

板を溶融接着し、流路側面からの光学アクセスを保ちながら、黒色石英板への赤外線 (IR) 加熱により壁面温度を 1200 K と一定に制御可能である。また、真空アークフプラズマ蒸着法 (APG) を用いて内壁面に Inconel 合金の薄膜 (100 nm 程度) を形成することで、壁面の熱的境界条件を一定に保ったまま、壁面材質の影響、つまり、壁面の化学的消炎効果の定量評価を可能にした。

壁面温度を 1200 K と設定し、流路に当量比 1、流速 533 cm/s の水素・空気・窒素混合ガスを供給して流路内に水素火炎を形成させた。なお、燃焼速度を落とすために酸化剤として空気と窒素を 1:1 の希釈率で供給した。

火炎に対してシートレーザー光を流路出口側から照射し、励起されたラジカルから出る蛍光の強度分布をイメージインテンシファイア付きの CCD カメラで取得した。図 2 に OH, O, H の計測原理を示す。OH の計測は、波長 283.553 nm のレーザー光励起による通常の単光子吸収 LIF 法で行った。H と O の計測には、それぞれ波長 205.08 nm と 225.585 nm のレーザー光励起による 2 光子吸収 LIF (TALIF) 法で行った。なお、OH, H と O の LIF 画像から濃度分布を算出するために、レーザーシートの空間強度分布の影響を補正する必要がある。本研究では、OH, H, O の補正にそれぞれアセトン蒸気 (励起波長: 283.553), クリプトンガス (励起波長: 204.196 nm) とキセノンガス (励起波長: 225.510 nm) を石英流路に供給して補正用の LIF 画像を取得した。ガスが均一に分布しているため得られる LIF 画像にレーザーシートの空間強度分布が表れている。

3.2 薄型流路内水素火炎の計算方法

上述の薄型流路内水素火炎におけるラジカル分布の LIF 計測に併行して、Ansys Fluent を利用して水素火炎の数値解析を行った。対称性を考慮し、計算領域を流路の半分の高さ (0.75 mm) にした。入口は流入部境界で実験と同じく当量比 1、流速 533 cm/s の水素・空気・窒素混合ガスとした。壁面温度分布は実験で熱電対により測定し、壁面温度境界条件として与えた。気相反応機構に GRI-Mech 3.0 を用いた。表面反応モデルに、H, O, OH, HO₂, H₂O₂ の吸着、再結合、および安定化学種である H₂, O₂, H₂O の脱離を考慮した。火炎中ラジカルが壁面で消滅する過程は吸着律速であり、その吸着反応速度 W_a を式 (1) の Langmuir 型モデルで表すことができる [2, 3]。

$$W_a = \frac{P}{\Gamma \cdot \sqrt{2\pi MRT}} \cdot \theta_{B(s)} \cdot S_0, \quad (1)$$

そこで初期吸着係数 S_0 は燃焼器壁面でのラジカル吸着の確率を表す係数である。本計算では、 S_0 をパラメータとして変化させながら感度解析を実施し、LIF 計測データとの比較を行った。

4. 研究成果

4.1 吸着ラジカル種の感度解析

図 3 に不活性な壁面 ($S_0 = 0$) での OH, O, H 分布の計算結果を示す。OH, O, H 濃度は 10^{-5} ~ 10^{-4} kmol/m³ オーダーであり、2次元 LIF で計測可能な濃度である。OH は O および H と比較して、流れ方向に広く分布している。一方、H は分子量が小さく拡散しやすいため、壁の近くでは O や OH よりも濃度が高く平坦な分布になっている。

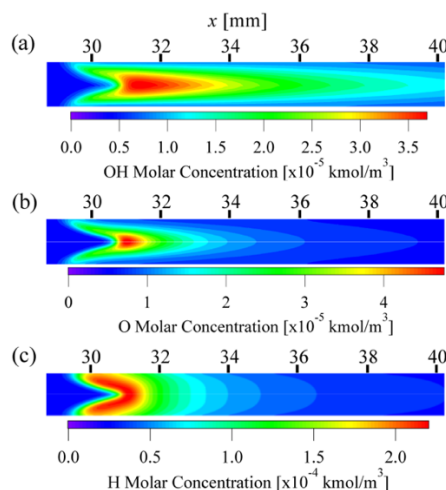


図 3 不活性壁面での OH, O, H 分布の計算結果 [6]

各ラジカル (H, O, OH, HO₂, H₂O₂) の初期吸着係数 S_A に対する OH, O, H 濃度 C_A の感度を調べるために、式 (2-3) に示す正規化感度 ST 導入した。

$$ST_{S_A=x} = f_{S_A=x} \times \frac{\sqrt{\frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n (C_{A, S_A=x, i} - C_{A, S_A=0.1, i})^2 \right)}}{\sqrt{\frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n (C_{H, S_H=0, i} - C_{H, S_H=0.1, i})^2 \right)}}, \quad (2)$$

$$f_{S_A=x} = \begin{cases} 1 & \text{if } C_{A,S_A=x,1} - C_{A,S_A=0.1,1} \leq 0 \\ -1 & \text{if } C_{A,S_A=x,1} - C_{A,S_A=0.1,1} > 0 \end{cases} \quad (3)$$

図4に感度解析の結果を示す。OH, O, Hの濃度は、HO₂とH₂O₂の吸着にほぼ影響されないことが判る。これはHO₂とH₂O₂の吸着反応を無視できることを意味する。また、H原子の濃度はH自体の吸着にのみ敏感であることがわかる(図4a)。一方、O原子の濃度はHとOの吸着にのみ敏感であり(図4b)、OHラジカルの濃度はOH, O, Hの吸着にのみ敏感です(図4c)。従って、水素火炎中のOH, O, Hを測定できれば、まずH原子の濃度分布の測定結果と比較してH原子のS_{0,H}を決定し、次にS_{0,H}を固定してO原子の測定結果と比較してS_{0,O}の最適値を探し、最後にOHラジカルの測定結果と比較してS_{0,OH}を推定可能である。

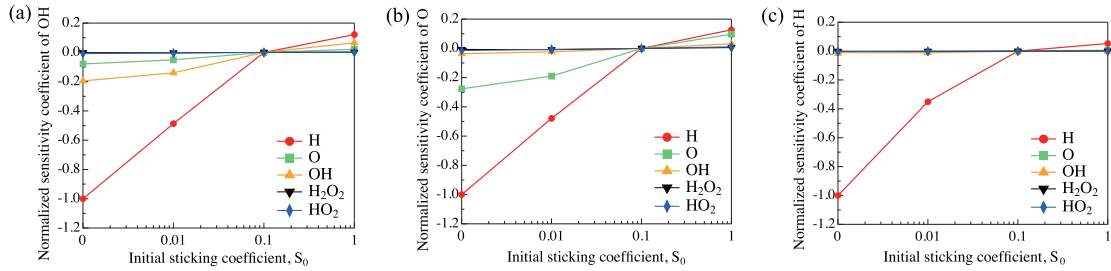


図4 OH, O, H濃度に対するH, O, OH, HO₂, H₂O₂吸着の感度[6]

4.2 LIF計測データに基づく表面反応モデルの構築

図5に石英およびInconel壁面近傍のOH, O, Hラジカルの濃度分布の計測結果を示す。石英流路に対して、内壁面にInconel薄膜を付けた流路内では、OH, O, Hラジカルがより下流側に分布し、壁面近傍に濃度が低下していることが分かる。これは、水素火炎に対して、Inconelが石英より高い化学的消炎効果を持つことを示唆している。

図6aは、壁面垂直方向のH原子の正規化濃度分布を示す。S_{0,H}=0.1とS_{0,H}=1の計算結果は計測されたH原子の分布と近いことから、S_{0,H}=0.1~1と推定できる。また、Saikiらは分子ビーム散乱法を用いてS_{0,H}をより高精度で0.45と見積った[7]。本研究ではS_{0,H}=0.45を採用した。

S_{0,O}とS_{0,OH}は、最小二乗法を用いて最適化した。式(4)に示すように、壁面垂直方向のO原子およびOHラジカル濃度分布の測定結果と計算結果の差の二乗の和を目標関数Vと定義した。

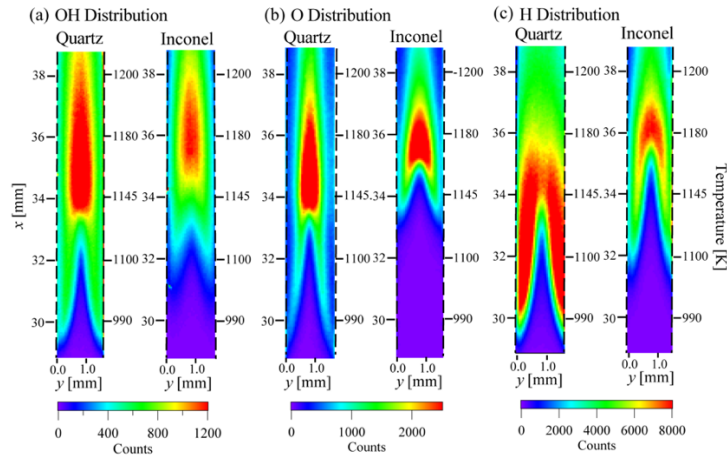


図5 石英およびInconelにおけるOH, O, H分布の計測結果[6]

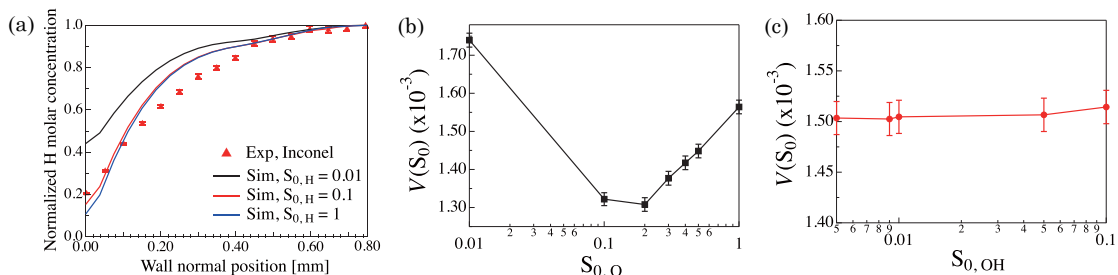


図6 Inconel壁面におけるH, O, OHの初期吸着係数の算出[6]

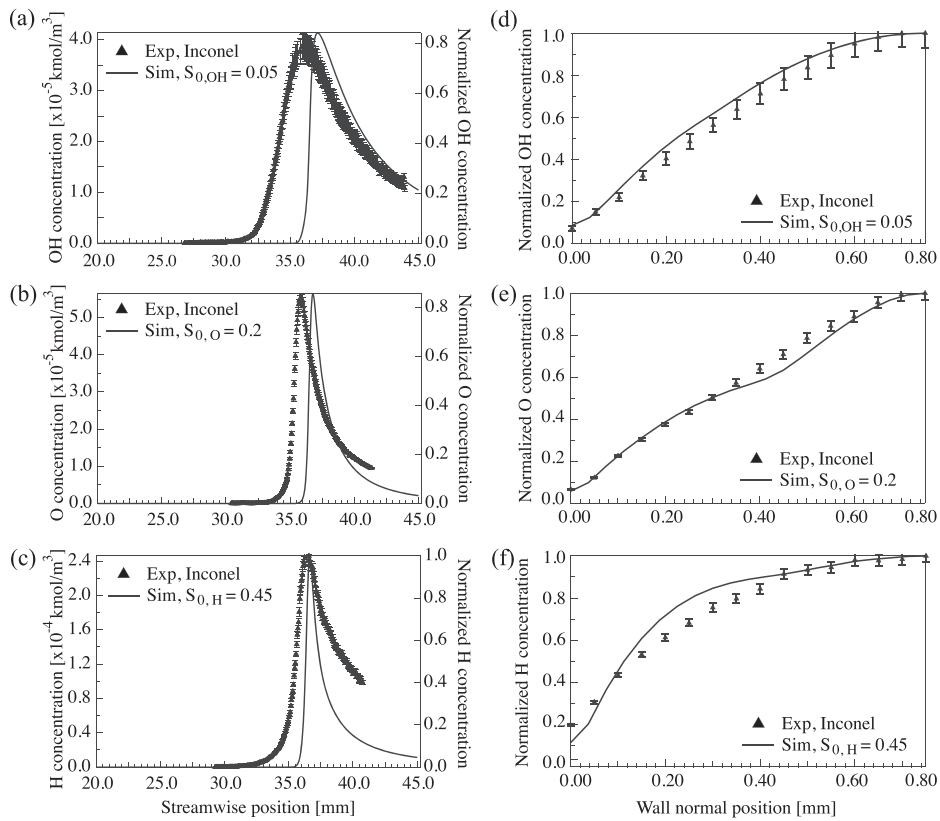


図7 Inconel 壁面における H, O, OH 分布の計測結果と計算結果の比較[6]

$$V(S_0, x) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n [c_{x,i}^{exp} - c_{x,i}^{sim}(S_0, x)]^2, \quad (4)$$

OH の初期吸着係数を変化させながら解析した結果、図 6 に示すように、 $S_{0,O}$ が 0.1~0.2 で、 $S_{0,OH}$ が 0.05 未満のときにそれぞれの目標関数が最小値になることがわかる。図 7 に、H, O, OH の初期吸着係数にそれぞれ 0.45, 0.2 と 0.05 を採用した数値解析の結果と Inconel 壁面での計測結果の比較を示す。数値解析で得られた分布は計測データとよく一致していることがわかる。

4.3 まとめ

水素火炎における壁面の化学的消炎効果レーザー誘起蛍光法(LIF)によるラジカル分布計測と詳細表面反応を考慮した数値解析にて定量評価した。計測された OH, O, H ラジカルの濃度分布と数値解析結果の比較から、Inconel 壁面における各ラジカルの初期吸着係数を見積ることに成功し、詳細表面反応モデルを構築した。

5. 参考文献

- [1] C.M. Miesse, R.I. Masel, C.D. Jensen, M.A. Shannon, M. Short, Submillimeter-Scale Combustion, *AIChE J.* 50 (2004) 3206-3214.
- [2] Y. Saiki, Y. Suzuki, Effect of wall surface reaction on a methane-air premixed flame in narrow channels with different wall materials, *Proc. Combust. Inst.* 34 (2013) 3395-3402.
- [3] Y. Saiki, Y. Fan, Y. Suzuki, Radical quenching of metal wall surface in a methane-air premixed flame, *Combust. Flame* 162 (2015) 4036-4045.
- [4] W.D. Kulatilaka, B.D. Patterson, J.H. Frank, T.B. Settersten, Comparison of nanosecond and picosecond excitation for interference-free two-photon laser-induced fluorescence detection of atomic hydrogen in flames, *Appl. Opt.* 47 (2008) 4672-4683.
- [5] 范勇, 斎木悠, 万遂, 李敏赫, 鈴木雄二, レーザー誘起蛍光法(LIF)を用いた燃焼計測の基礎, *日本燃焼学会誌*, Vol. 62, No. 200, pp. 132-142 (2020).
- [6] Y. Fan, J. Guo, M. Lee, N. Iki, Y. Suzuki, Quantitative evaluation of wall chemical effect in hydrogen flame using two-photon absorption LIF, *Proc. Combust. Inst.* 38, pp. 2361-2370 (2021).
- [7] Y. Saiki, I. Kinefuchi, Y. Fan, and Y. Suzuki, Evaluation of H-atom adsorption on wall surfaces with a plasma molecular beam scattering technique, *Proc. Combust. Inst.* 37 (2019) 5569-5576.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Fan Yong, Guo Junqi, Lee Minhyeok, Iki Norihiko, Suzuki Yuji | 4. 巻 38 |
| 2. 論文標題 Quantitative evaluation of wall chemical effect in hydrogen flame using two-photon absorption LIF | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Proceedings of the Combustion Institute | 6. 最初と最後の頁 2361 ~ 2370 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.proci.2020.06.021 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名 范 勇、齋木 悠、万 遂、李 敏赫、鈴木 雄二 | 4. 巻 62 |
| 2. 論文標題 レーザー誘起蛍光法（LIF）を用いた燃焼計測の基礎 | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 日本燃焼学会誌 | 6. 最初と最後の頁 132 ~ 142 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.20619/jcombsj.62.200_132 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Saiki Yu, Kinefuchi Ikuya, Fan Yong, Suzuki Yuji | 4. 巻 37 |
| 2. 論文標題 Evaluation of H-atom adsorption on wall surfaces with a plasma molecular beam scattering technique | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Proceedings of the Combustion Institute | 6. 最初と最後の頁 5569 ~ 5576 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.proci.2018.08.061 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件／うち国際学会 6件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 Junqi Guo, Yong Fan, Norihiko Iki, Yuji Suzuki, |
| 2. 発表標題 Evaluation of Wall Chemical Effect in Hydrogen Flame |
| 3. 学会等名 12th Asia-Pacific Conference on Combustion (ASPACC 2019) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Junqi Guo, Yong Fan, Norihiko Iki, Yuji Suzuki, |
| 2. 発表標題 Investigation of Wall Chemical Effect in Hydrogen Combustion Using Two-photon Absorption LIF |
| 3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2019 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yong Fan, Junqi Guo, Minhyeok Lee, Norihiko Iki, Yuji Suzuki, |
| 2. 発表標題 Evaluation of Wall Chemical Effect in Hydrogen Flame |
| 3. 学会等名 38th International Symposium on Combustion (Combustion 2020) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yong Fan, Yu Saiki, Sangeeth Sanal, Yuji Suzuki, |
| 2. 発表標題 Two-dimensional H-TALIF measurements and numerical simulation of methane flame under wall radical quenching |
| 3. 学会等名 37rd Int. Symp. Combustion (Combustion 2018) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yong Fan, Junqi Guo, Norihiko Iki, Yuji Suzuki |
| 2. 発表標題 Investigation of Wall Radical Quenching in Hydrogen Flame for Gas Turbine Applications |
| 3. 学会等名 37rd Int. Symp. Combustion (Combustion 2018) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Junqi Guo, Yong Fan, Norihiko Iki, Yuji Suzuki, |
| 2. 発表標題 Evaluation of Wall Adsorption of Atomic Oxygen in Hydrogen Flame Using Two-photon Absorption LIF |
| 3. 学会等名 第56回燃焼シンポジウム |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 齋木悠, 杵淵郁也, 范勇, 鈴木雄二 |
| 2. 発表標題 プラズマ分子線散乱法による異なる壁面での水素原子吸着の計測 |
| 3. 学会等名 第56回燃焼シンポジウム |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yu Saiki, Ikuya Kinefuchi, Yong Fan, Yuji Suzuki |
| 2. 発表標題 Evaluation of H radical adsorption on wall surfaces with a plasma molecular beam scattering technique |
| 3. 学会等名 37rd Int. Symp. Combustion (Combustion 2018) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yuji Suzuki, Yong Fan, Minhyeok Lee, |
| 2. 発表標題 Quantitative Measurement of Near-wall Radicals Using Microscopic Two-photon-absorption Laser Induced Fluorescence (TALIF) |
| 3. 学会等名 15th Asian Symposium on Visualization (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計2件

| | |
|--------------------------------------|-----------------|
| 1. 著者名 編集代表 丸山茂夫 | 4. 発行年 2021年 |
| 2. 出版社 (株)エヌ・ティー・エス | 5. 総ページ数 731 |
| 3. 書名 マイクロ・ナノ熱工学の進展 (第5編第2章第4節執筆) | |

| | |
|---|-----------------|
| 1. 著者名 技術資料「流体計測法改訂版」出版分科会 | 4. 発行年 2022年 |
| 2. 出版社 日本機械学会 | 5. 総ページ数 504 |
| 3. 書名 技術資料 流体計測法 <改訂版> (応用編第1章第7.3節執筆) | |

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|----------------------------|-----------------------|----|
| 研究協力者 | 鈴木 雄二 (Suzuki Yuji) | | |
| 研究協力者 | 齋木 悠 (Saiki Yu) | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| | |
|---------|---------|
| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|

| | | | | |
|----|----------------------|--|--|--|
| 米国 | Texas A&M University | | | |
|----|----------------------|--|--|--|