

平成 21 年 5 月 25 日現在

研究種目： 若手研究 (B)  
 研究期間： 2007~2008  
 課題番号： 19760129  
 研究課題名 (和文) 高温・高圧下におけるエタノール燃焼メカニズムの解明  
 研究課題名 (英文) A Study of Combustion Mechanism of Ethanol Premixed Flame  
 at High Pressure and High Temperature  
 研究代表者  
 大上 泰寛 (OGAMI YASUHIRO)  
 東北大学・流体科学研究所・助教  
 研究者番号：00375122

研究成果の概要：高温・高圧下においてエタノール/空気予混合火炎の燃焼試験を行ったが、新たに開発した二流体噴霧装置を利用した蒸気発生器を用いることで、広い条件下での火炎の安定化に成功した。また、熱流体汎用コード **FLUENT** を用い二次元エタノール予混合火炎の数値計算を行った。反応モデルには簡略化反応機構を用いたが、準定常化学種の最適化を行うことで安定性の高い簡略化反応機構を構築することに成功し、計算時間も詳細反応機構を利用した場合と比較し 1/4 程度まで減少した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,600,000	0	1,600,000
2008年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	480,000	3,680,000

研究分野： 工学

科研費の分科・細目： 機械工学・熱工学

キーワード： 熱工学, 流体工学, 環境技術, 燃焼工学

## 1. 研究開始当初の背景

現在、様々な分野で実用化が進められているバイオエタノールは、CO<sub>2</sub>排出削減効果に加え、SO<sub>x</sub>や煤の生成が少ないなどの利点を有するが、エネルギー密度が低く、アルデヒド・NO<sub>x</sub>排出が増大するなどの課題が存在する。これらの問題を低減するためには、実験データや理論に基づいた燃焼器の最適な設計が不可欠である。とりわけ、実用高負荷燃焼器の燃焼条件である高温・高圧下における種々の特性値に関するデータの取得が望まれる。とりわけ、燃焼現象の基本的な特性値

である層流燃焼速度は、あらゆる予混合燃焼の研究において基礎となる情報であるものの、高温・高圧下においては、従来の測定法では実験が極めて困難であり、データはほとんど存在しない。申請者らは、近年、粒子追跡速度計(PTV)と平面レーザー誘起蛍光法(PLIF)を用いた局所燃焼速度測定法(図1参照)を開発し、圧力1.0 MPa、温度600 Kの高温・高圧下における水素およびメタン予混合火炎の層流燃焼速度の測定を行った([1]大上 他, 日本燃焼学界誌, 第44巻(2002), [2]Ogami et. al., *JSME Int. Journal*, Series

B, Vlo.48 (2005)) . 本研究では, 同様の手法を用いて, 圧力 2.0 MPa, 温度 900 K までの高温・高圧下におけるエタノール予混合火炎層流燃焼速度の測定を行う.

また, 本研究では, 簡略化反応機構についても研究を行う. エタノール反応機構 (詳細反応機構) [3]は, 57 化学種・383 素反応式を含んだものであり, 多次元あるいは非定常計算に用いた場合, 実用燃焼器スケールでは莫大な計算コストとなる. 計算コスト削減の手段としては, 簡略化反応機構が挙げられるが, このような反応機構は不安定であり, 特に, 高温・高圧といった条件下では収束解を得ることは困難である. また, 多次元数値計算においては, 物質拡散の影響により, 計算不安定性が増大する ([4]齋藤, 大上 他, *日本燃焼学雑誌*, 第 47 巻, (2005)). 本研究では, 新たに開発した詳細反応機構を基に簡略化反応機構を作成し, 高温・高圧下においても安定して計算が行えるよう改良を加える.

## 2. 研究の目的

本研究では, 圧力 2.0 MPa, 温度 900 K までの高温・高圧環境下において,  $C_2H_5OH/O_2/N_2$  予混合火炎の層流燃焼速度の測定を行うことを目的とする. また, 測定結果と計算結果を比較することによりエタノール詳細反応機構の検証, 修正を行い, 高温・高圧下において利用可能な化学反応機構の開発を目指す. さらに, 得られた詳細反応機構を基に, 高温・高圧下でも安定なエタノール簡略化反応機構を開発し, 多次元数値計算への拡張を試みる. これらの結果から, 高温・高圧下におけるエタノール予混合火炎の燃焼メカニズムの詳細な解明を目指す.

## 3. 研究の方法

### (1) 実験方法

実験は, 東北大学流体科学研究所内の高圧燃焼実験設備を用いて行われた. 本実験設備は, 高圧燃焼実験容器, 高圧ガス・液体供給系, 燃焼ガス排気系, 水蒸気発生装置, 気体加熱装置, 燃焼器, 保炎装置および計測用光学系から形成されている. 以下, 詳細について述べる.

図 1 に, 実験装置の概略図を示す. 高圧条件下における実験は, 内径 150 mm, 高さ 500 mm の高圧燃焼容器を使用して行った. 高圧容器内には, バーナー, 水蒸気発生装置, 気体加熱装置が設置されている. 容器の側面には内径 40 mm の観測窓が三つ設置されており, 実験中の火炎の観察および撮影が可能である. 高圧容器下部からは容器内加圧用のガスが供給される. 燃焼の際に生成される高温の燃焼ガスおよび加圧用空気は, 水冷式排気管, 排気バルブを経て, 室外へ放出される.

予混合気用の空気は, ボンベから圧量調整

弁を介してマスフローコントローラーへと供給される. また, 液体燃料であるエタノールは, 窒素によって加圧された貯蔵タンクから液体用マスフローコントローラーへと供給される. エタノールおよび空気は二流体噴霧ノズル (ノズル孔径 0.2 mm) へと供給されるが, 二流体噴霧ノズルによってエタノールが微粒化され, 気液混相流となって蒸気発生装置へ噴射される. 蒸気発生装置は, 直径 20 mm・長さ 70 mm の流路を持つ銅製ブロック, フランジから構成されており, 銅製ブロックにはロッドヒーターが 4 本挿入されている. 二流体噴霧ノズルで形成された気液混相流は, 銅製ブロック内を通過する際に蒸発, 混合される. このように気液混相流を形成させることによりエタノールの蒸気化が大幅に安定化すると共に, 加熱装置を簡略化することが可能となる.

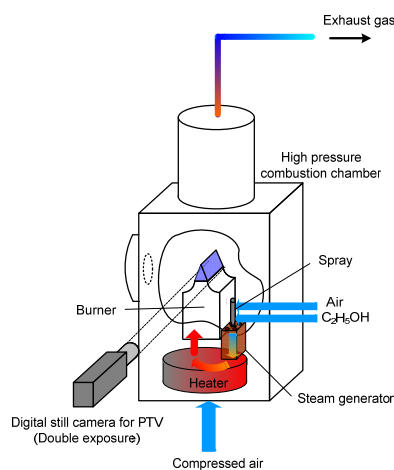


図 1 実験装置概略図

蒸気化された気液混層流は, スイスロール式加熱装置へと供給され, 実験条件における温度まで過熱される. スイスロール式加熱装置を出たエタノール/空気混合気はバーナーへと供給されるが, 本研究では火炎の曲率の影響を排除し二次元的な形状の火炎を形成させるため, 実験には矩形ノズルバーナーを用いた. また, バーナー法においては周辺空気の乱れや自然対流によって火炎が影響を受ける可能性がある. 本研究では, バーナー出口に火炎全体を囲うガラスカバーを設けた. このガラスカバーを設置することで, 周囲空気流による外乱の影響を防ぎ, 火炎の揺らぎを抑えることが可能である.

### (2) 数値計算方法

簡略化反応機構とは, 様々な近似手法を用いて, 詳細反応機構を数段から数十段に簡略化した反応機構である. 化学反応を含む数値計算において, 計算コストは考慮する化学種の 2~3 乗に比例することが報告されており,

簡略化反応機構を用いることで大幅な計算コストの削減が可能となる。本研究では簡略化手法に、Luら([5] *Combust. Flame* 126: 1445-1455 (2001))による、準定常近似(Quasi-steady-state-assumption; QSSA)に基づく Computational Singular Perturbation (CSP) 法を利用した。これは Perfect Stirred Reactor (PSR) による計算結果を基に、反応系を化学特性時間スケールの長短に応じて分類し、反応速度の速いグループを定常として削除する手法である。本研究では、Starting mechanismとして、46化学種235段からなるWilliamsらのエタノール詳細反応機構([6] *Proc. Combust. Inst.* 31: 1149-1156 (2007))を用い、19~26段の簡略化反応機構を構築し、それぞれの適合性を検討した。このようにして得られた簡略化反応機構を用い、1次元および2次元定常予混合火炎の数値計算を行った。

1次元数値計算は、CHEMKIN II packageの1次元定常予混合火炎計算コードPREMIXを用いて行った。予混合燃焼は化学反応が支配的であることから、反応モデルの検証に適していると言える。反応速度の計算を担うサブルーチン(CKWYP)を、簡略化反応機構のルーチンで置換することで簡略化反応機構を用いた計算が可能となる。各化学種の熱物性値、輸送係数の算出にはWilliamsらの熱物性値データベースとCHEMKIN IIを用いた。計算条件は、当量比 $\phi = 0.5 \sim 1.5$ 、圧力は $P = 0.1 \sim 3.0$  MPa、予混合ガスの温度は $T = 298$  Kとした。収束時間はCPU時間を用いて評価した。

2次元数値計算は、汎用熱流体解析コードFLUENT6.3.26を用いて行った。連続の式、運動量保存、エネルギー保存、化学種保存に関する方程式はSIMPLE法を用いて解いた。なお、浮力と輻射の効果は考慮していない。また、粘性係数、熱伝導率、物質拡散係数はWilliamsらの熱物性値データベースとFLUENTの輸送モデルを用いて計算した。2次元予混合火炎の数値計算に用いた計算格子は、左端を対称境界とする $2 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ の長方形領域で、下端に予混合ガスの流入口を有する。格子間隔は $50 \mu\text{m}$ で、全格子点数は3200点である。また、2次元噴流拡散火炎の計算格子は、左端を対称境界とする $5 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ の長方形領域で、下端にエタノールと空気の流入口を有する。格子間隔は $100 \mu\text{m}$ で、全格子点数は5000点である。FLUENTの標準インターフェースでは簡略化反応機構を用いた計算が行えないため、ユーザー定義関数(UDF)機能を用いて簡略化反応機構の反応速度計算ルーチンをFLUENTに組み込んだ。計算の収束判定は、各方程式の残差が定常になった時とした。

## 4. 研究成果

### (1) 実験結果

本研究における実験条件では、エタノールの供給量は毎時200g程度と非常に微小であり、このような流量の液体を安定して蒸発・混合させることは非常に困難である。さらに、液体燃料を使用した場合、燃焼振動が生じ、火炎が不安定となる場合が存在することが知られている。これは、バーナー出口周辺の圧力変動が燃料の蒸気化及ぼす影響によって生じる。しかし、本研究で燃料供給装置として使用した孔径0.2mmの二流体噴霧ノズルにより、微小な燃料流量であるにもかかわらず極めて安定した燃料供給および蒸発が可能となった。さらには、バーナー内部にスチールウール、セラミックス製ハニカムなどを設置し、バーナー上流で発生する圧力変動が二流体噴霧ノズルに伝わらない構造とすることで、液体燃料を使用する際に問題となる燃焼振動を抑制することに成功した。このような改良により、広範な実験条件下で極めて安定した予混合火炎が形成されることを確認した。

### (2) 数値計算結果

#### ① 1次元数値計算結果

詳細反応機構および簡略化反応機構を用いた数値計算を行い、収束解を得た。図2に1次元数値計算における化学種数と収束時間の関係を示す。収束時間は考慮する化学種が減少するにつれて線形的に短縮され、1次元数値計算においては、考慮する化学種数が計算コスト削減に関して支配的であることが確認された。特に20段簡略化反応機構は、構築した反応機構の中で最も収束時間が短く、詳細反応機構を用いた計算と比較して、収束時間はおよそ1/4まで短縮された。しかし、必ずしも先述した線形則に従うとは言えず、準定常近似される化学種の選択が簡略化反応機構の計算安定性に影響を及ぼすと考

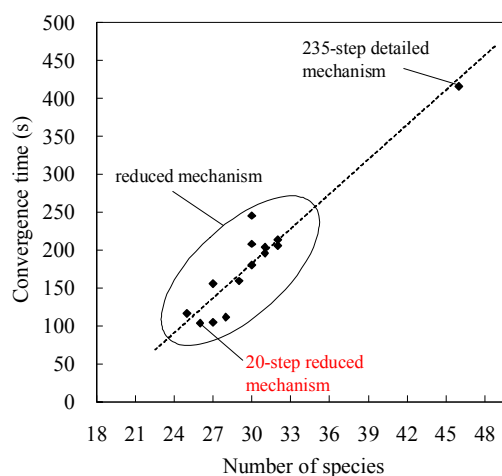


図2 1次元数値計算における収束時間



えられる。

図3に詳細反応機構および20段簡略化反応機構を用いて計算した層流燃焼速度の比較を示した。また、大気圧下におけるGülderら([7] *Proc. Combust. Inst.* 19: 275-281 (1982)) およびEgolfopoulosら([8] *Proc. Combust. Inst.* 24: 883-841 (1992)) による実験結果も併せてプロットした。詳細反応機構および20段簡略化反応機構による数値計算は、大気圧下だけでなく高圧下においても良い一致を示した。燃料過濃条件と比べて燃料希薄条件では、両者の計算結果の差異が大きい。これは、いくつかの化学種の準定常近似が、燃料希薄側では成立しづらいことを示唆している。また、両者の計算結果は、Gülderらの実験結果とも良く一致した。さらに、温度や化学種濃度分布に関しては、いずれの条件においても両者による実験結果は良い一致を示した。

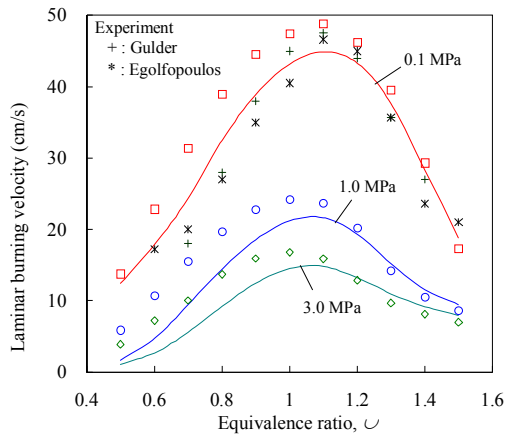


図3 詳細反応機構および20段簡略化反応機構による1次元数値計算結果

## ② 2次元数値計算結果

詳細反応機構および先述した20段簡略化反応機構を用いた2次元予混合火炎の数値計算を行い、収束解を得た。なお、計算の初期段階における準定常化学種濃度の代数計算式に起因する不安定性を排するため、詳細反応機構、簡略化反応機構共に総括1段反応の収束解を初期解として用い、計算を行った。

図4に2次元予混合火炎の数値計算におけるiteration数とCPU時間との関係を示した。これらは全て $\phi = 1.0$ ,  $P = 0.1$  MPa, 入口平均流速1.0 m/sの条件で、一定の緩和係数を用いて計算された。詳細反応機構を用いた計算は100時間以内に収束せず、1 iterationあたりのCPU時間は20段簡略化反応機構と比較して8倍以上要した。一方、20段簡略化反応機構は約23時間で収束し、多次元数値計算における簡略化反応機構の有効性が示された。

また、本研究のようなstiffな反応系を取

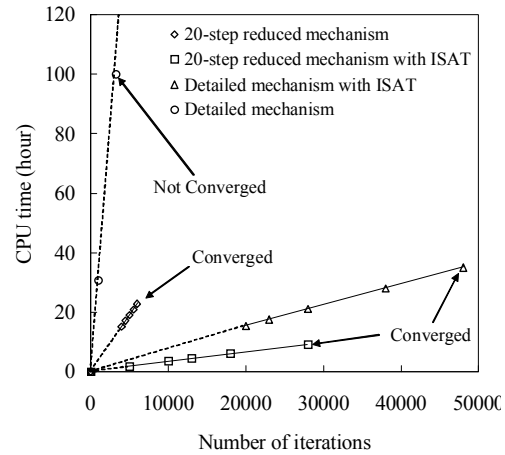


図4 2次元予混合数火炎の数値計算のiteration数とCPU時間の関係

り扱う場合、積分法にISAT([9] Pope, S. B., *Combustion Theory and Modeling* 1: 41-63 (1997))を使用することも、計算コスト削減には効果的である。ISATを有効にした詳細反応機構を用いた場合、収束時間は、20段簡略化反応機構を用いた場合と同程度のコスト削減効果が見られた。しかし、ISATを用いた数値計算は、可燃限界付近の条件および非定常火炎の計算においては、収束解を得ることが困難になると言われている。本研究においてもエタノールの可燃限界付近では、簡略化反応機構を用いた場合は収束解が得られたが、ISATを計算に用いた場合は収束解が得られず、これらの条件下では、ISATよりも簡略化反応機構を用いる方が有効である。また、 $\phi = 1.0$ ではISATを有効にした20段簡略化反応機構を用いた場合、収束時間は1/11まで短縮された。

図5に当量比 $\phi = 1.0$ , 圧力 $P = 0.1$  MPa,  $T = 300$  Kにおいて20段簡略化反応機構およびISATを用いた詳細反応機構による計算結果の比較を示す。化学種濃度分布および火炎温度分布は良い一致を示し、準定常近似に基づく簡略化反応機構を用いた2次元予混合火炎の数値計算結果の妥当性が確認された。

さらに、詳細反応機構および20段簡略化反応機構を用いた2次元噴流拡散火炎の数値計算を行い、収束解を得た。なお、予混合火炎と同様の理由から、拡散火炎の数値計算にも総括1段反応の収束解を初期解として与えた。図6に、2次元噴流拡散火炎の計算結果を示した。これは、 $P = 0.1$  MPa,  $T = 300$  K, 入口流速に空気0.2 m/s, エタノール1.0 m/sを与え、計算を行った。20段簡略化反応機構およびISATを有効にした詳細反応機構を用いた計算結果を比較したところ、火炎温度、比較的高濃度の化学種に関しては良い一致を示した。しかし、低濃度の化学種に関しては濃度分布に差異が見られた。拡散支配であ

噴流火炎の数値計算においては、考慮する化学種数が計算結果に及ぼす影響が比較的大きいと考えられる。また、ISATを用いた計算結果には、 $\text{CH}_3\text{OH}$ を含む一部の中間化学種に不自然な分布が見られ、これらを含めた計算にはISATで高速化した詳細反応機構よりも、ISATを用いずに簡略化反応機構を使用する方が有効であると示唆される。

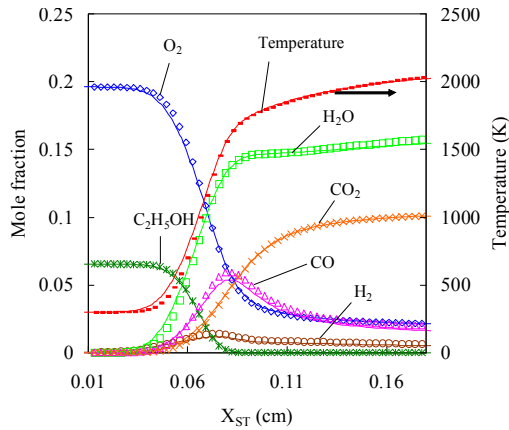
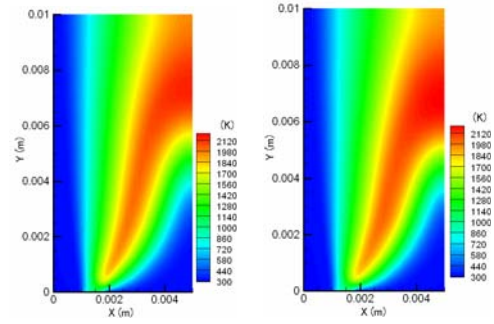
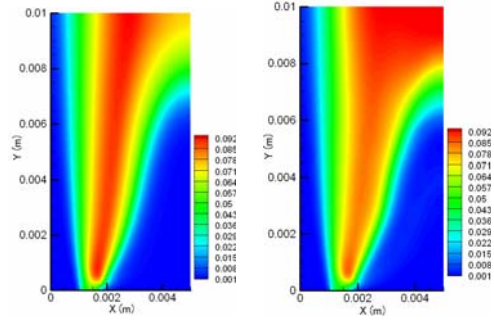


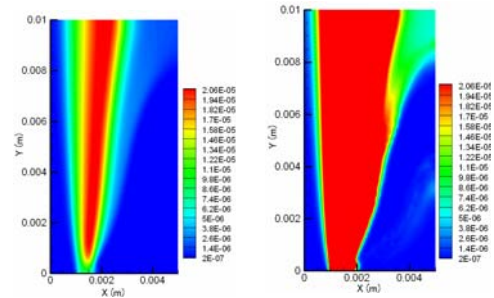
図5 詳細反応機構および20段階簡略化反応機構による2次元予混合火炎の数値計算結果の比較



(a) Temperature



(b) CO mole fraction



(c)  $\text{CH}_3$  mole fraction

図6 20段階簡略化反応機構(左)およびISATを有効にした詳細反応機構(右)を用いた2次元噴流拡散火炎の計算結果

## 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)

[学会発表] (計 4 件)

- ① Yasuhiro Ogami, Hisashi Nakamura and Hideaki Kobayashi, Effects of Flame Stretch and Heat Loss on Local Burning Velocities for Two-dimensional Bunsen Flames , The Seventh International Symposium on Advanced Fluid Information, 2007 年 12 月 15 日, 仙台
- ② 奥山昌紀, 川瀬雅大, 大上泰寛, 中村寿, 小林秀昭, エタノール簡略化反応機構の多次元数値解析への適用に関する研究, 第 45 回燃焼シンポジウム, 2007 年 12 月 6 日, 仙台
- ③ 橋本和典, 大上泰寛, 小林秀昭, PTVおよびPLIF同時計測によるしわ状層流火炎の挙動に関する研究, 第 46 回燃焼シンポジウム, 2007 年 12 月 5 日, 京都
- ④ Masaki Okuyama, Masao Kawase, Yasuhiro Ogami, Hisashi Nakamura, Hideaki Kobayashi, Reduced Kinetic Mechanism of Ethanol for Multi-dimensional Combustion Analysis , Fourth International Conference on Flow Dynamics, 2007 年 9 月 26 日, 仙台

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大上 泰寛 (OGAMI YASUHIRO)

東北大学・流体科学研究所・助教

研究者番号：00375122