

# 予混合火炎の消炎限界の圧力依存性に関する研究

滝田 謙一 プラムーヌジャッゴーパオパン\*

高橋 和也\* 升谷 五郎\*

Study of dependence of extinction limit of premixed flame on pressure

Kenichi TAKITA, Paopan PRAMOONJAGGO\*, Kazuya TAKAHASHI\*, Goro MASUYA\*

The dependence of extinction limits of lean hydrocarbon/air counterflow premixed flames on pressure was experimentally and numerically investigated. Except for  $C_3H_8$ , the stretch rates at extinction of very lean mixtures near the stability limit of the flame remained constant or decreased with an increase in pressure and those of mixtures with relatively large equivalence ratios increased with pressure. These tendencies coincided with those of numerical results. Only the stretch rate at extinction of  $C_3H_8$  with a relatively large equivalence ratio, which decreased with an increase in pressure, showed a tendency different from that of the numerical result. Moreover, it was confirmed that the local Karlovitz numbers for both DME and  $C_3H_8$  fuels, which were defined at extinction conditions of stretched flames, were almost unity for all equivalence ratios tested in this study.

## 1. はじめに

希薄予混合火炎は低公害ガス排出燃焼法として注目され、ガスタービン燃焼等広く適用が試みられている。しかし、燃料が希薄になるほど、不安定な燃焼を起しやすく、吹き飛びも生じやすい。従って、希薄予混合火炎の消炎限界や吹き飛び限界を広い条件で把握しておくことは安定な希薄燃焼の実現に不可欠である。また、乱流予混合火炎の消炎の理論的予測<sup>1)</sup>において、層流火炎の消炎伸長率の値がパラメータとして必要になるが、それらの高圧下でのデータはほとんど報告されていない。著者らは、過去の研究<sup>2)</sup>において希薄メタン対向流予混合火炎の消炎伸長率の圧力依存性を実験的に調べ、混合気の当量比によって圧力依存性が変化することを明らかにした。そして、反応の特性時間が消炎伸長率を決定する因子であることを数値計算により示した。本研究では、希薄予混合火炎の消炎特性の圧力依存性の一般的性質を調べるため、前報<sup>2)</sup>のメタンに続き、プロパン、さらに近年注目されている新燃料であるDMEの消炎伸長率の圧力依存性を実験的に調べ、炭化水素系燃料に共通な性質が存在するのかを調べた。さらに、詳細化学反応機構を用いた数値計算も実施し、消炎時における反応の特性時間を算出し、消炎条件として提案されている局所カルロビッツ数<sup>3)</sup>の有効性を吟味した。

## 2. 実験装置

図1に実験装置の概略図を示す。実験には内径334 mm、高さ580 mm、最大耐圧3.0 MPaの円筒型高圧容器を用いた。容器内に対向して設けられた縮流ノズルバーナにより、よどみ面を挟んで上下2枚の火炎を形成する。ノズルは出口径が9 mmであり、上下のノズル間隔は10 mmとした。主流ノズルの外側にもノズルを設け、副流として窒素を流すことで周囲酸素の影響を除くとともに、火炎の尾を消している。また、上部バーナの外周には銅管を巻き付け冷却水による冷却を行っている。着火にはステッピングモータで制御されたニクロム線を用いた。安定な対向流双子火炎を形成させた後、ノズル噴出速度を増大させて消炎させ、その時のガス流量から、火炎伸長率  $K=2U/L$  ( $U$ はノズル出口の平均流速、 $L$ はノズル間隔)を求めグローバルな消炎伸長率 ( $K_g$ )とした。圧力を上げた実験では、大気圧雰囲気では着火させた後、徐々に昇圧し設定圧力に達した後、一定圧力になるよう流量制御を行った。設定圧力に対する変動は $\pm 2$  kPaに抑えた。

## 3. 計算方法

非伸長火炎の層流燃焼速度 ( $S_L$ )、火炎帯厚さ ( $\delta$ ) の計算には Kee et al. の開発した CHEMKIN<sup>4)</sup> パッケージの PREMIX コード、対向流火炎の消炎の計算には Ju et al. により対向流火炎用に改良されたコード<sup>5)</sup>を用いた。計算におけるバーナ間隔は実験と同じ10 mmに設定した。火炎帯厚さの算出には次式に示す温度勾配に基づいた手

2007年03月02日 受理

\*東北大学大学院工学研究科

法<sup>6)</sup>を用いた。

$$\delta = \frac{T_{ad} - T_u}{(dT/dx)_{max}} \quad (1)$$

上式で  $T_{ad}$  は断熱火炎温度、 $T_u$  は未燃ガス温度である。また、伸長火炎の局所の燃焼速度は予熱帯における最小速度<sup>7)</sup>とした。反応機構のモデルはメタン、エチレン、DME に対しては Fisher et al.<sup>8)</sup> により提案された DME の酸化反応機構に Li et al.<sup>9)</sup> の C1 機構を加えた 78 化学種、419 素反応モデルを用いた。プロパンに対しては GRI Mech. Ver. 3.0<sup>10)</sup> (53 化学種、325 素反応) 及び San Diego Mechanism<sup>11)</sup> (46 化学種、235 素反応) を用いた。

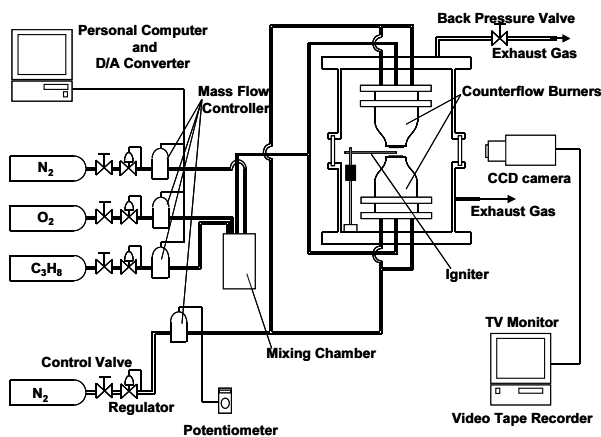


図1 実験装置概略図

## 4. 結果及び考察

### 4.1 高圧下における消炎の挙動

プロパンや DME の希薄予混合火炎の燃料ルイス数は 1 より大きく、消炎時には 2 枚の火炎が離れた状態で消炎することが知られている。雰囲気圧力が上昇しても、同じように 2 枚の火炎が離れた状態で消炎の様子が観察された。図 2 には雰囲気圧力 0.3 MPa における消炎直前のプロパン希薄火炎の直接写真を示す。また、圧力の増加に伴い、混合気流量が大きくなると火炎面が振動する傾向が見られた。

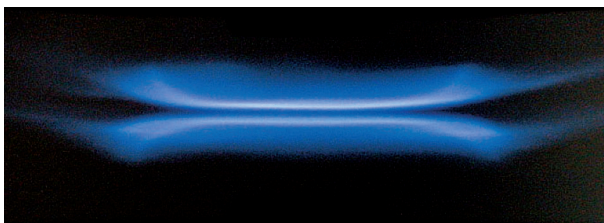


図2 消炎間際のプロパン希薄双子火炎 (p=0.3 MPa)

### 4.2 消炎伸長率の測定結果

図 3 に DME 希薄火炎の消炎伸長率の実験値及び計算値

を示す。DME の消炎伸長率は、同じ当量比で比較するとメタンやプロパンより大きく、エチレンより小さい。図 3 において、定量的には実験値のほうが計算値よりも大きな値を示しているが、圧力に対する傾向は一致している。火炎安定限界付近の低当量比においては、消炎伸長率は圧力に対して変化しないか、または減少する傾向にある。実験値は得られなかったが、当量比 0.55 の場合の計算値は圧力に対して減少する結果となっている。当量比が増加するにつれて、消炎伸長率は圧力とともに増加するようになる。本実験装置の供給流量の制限により、実験データは限られているが当量比 0.70 において消炎伸長率は増加している。このような傾向は前報<sup>2)</sup>のメタン希薄火炎の結果とも一致する。

消炎伸長率は反応特性時間 ( $\tau_c$ ) の逆数に比例すると考えられ、反応特性時間は火炎帯厚さ ( $\delta$ ) を燃焼速度 ( $S_L$ ) で割った値で代表される。火炎帯厚さ、燃焼速度とも炭化水素系燃料の場合、圧力の増加に伴い減少する。低当量比で消炎伸長率がほとんど変化しないのは、それら 2 つの値の圧力に対する変化の度合いがほぼ等しいためであると考えられる。当量比が大きくなるにつれて、燃焼速度よりも火炎帯厚さの変化率が大きくなり、消炎伸長率は増加傾向を示す。

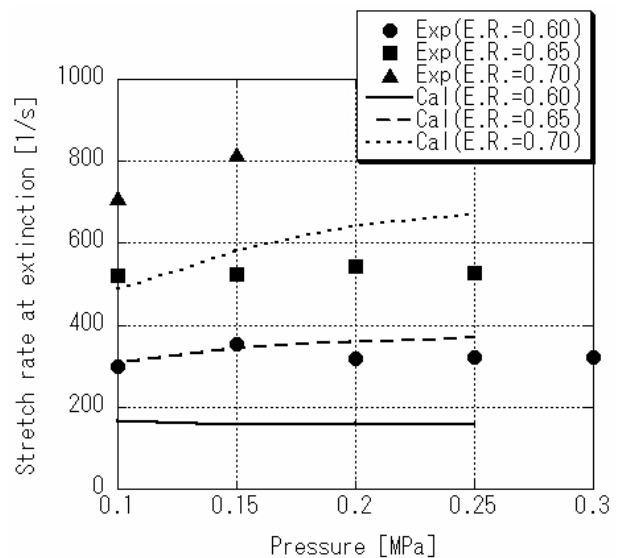


図3 DME の消炎伸長率の圧力依存性

図 4 にプロパン希薄火炎の消炎伸長率の実験値及び計算値を示す。実験においては、消炎伸長率は当量比によらず圧力の増加に対して減少する傾向を示した。また、当量比が大きいほど、勾配が大きくなる傾向を示している。この結果は前報のメタン希薄火炎や DME 希薄火炎とは異なる結果となった。一方、数値計算結果において、GRI メカニズム<sup>10)</sup>、San Diego メカニズム<sup>11)</sup> を使った計算結果がともに高当量比になると消炎伸長率が圧力とともに増大しており、実験結果と異なる傾向を示した。

実験と計算における圧力依存性が異なる傾向となったことの原因はいくつか考えられる。まず、本研究で用いた詳細化学反応機構がプロパンの燃焼反応の圧力依存性を十分に反映していない可能性が考えられる。しかし、同じ化学反応機構を用いて層流燃焼速度を計算すると、高圧時にも実験値に良く一致する結果が得られている。今後、対象をプロパンに絞った反応機構<sup>12)</sup>等を用いてさらに検討する必要があるであろう。

一方、実験においては、圧力の増加に伴う火炎の不安定性や乱流化によって消炎伸長率に達する前に消炎してしまった可能性が考えられる。レイノルズ数は当量比が0.75付近までは2000以下であるが、それより高い当量比になると高圧下で3000を越えている。Yoshida et al.<sup>13)</sup>は、乱流場での伸長火炎は層流場よりも消炎しやすく、その消炎伸長率は平均流による伸長率と乱れによる伸長率の和で表せることを報告している。しかし、実験において火炎が極端に不安定になり一気に消炎するような現象は観察されなかった。基本的に伸長率の増大は不安定性を抑える作用を持つ。メタン希薄火炎やDME希薄火炎の伸長消炎実験においては、高圧かつ高当量比の条件においても火炎は消炎せず、供給流量の限界に達して、データが取れないことが多くあった。乱れの消炎伸長率への影響も混合気レイノルズ数に依存する可能性があると考えられる。今後、ノズル出口流速(U)の精度も含めて、レーザー計測等により流速場を確認する必要がある。

また、圧力が増加すると流れ場がプラグ流に近くなり、グローバルな伸長率と局所伸長率との差が大きくなる。従って、グローバルな消炎伸長率と局所の消炎伸長率の圧力依存性が異なる傾向が得られる可能性がある。4.5節で述べるが、消炎時の局所の性質が重要となる。

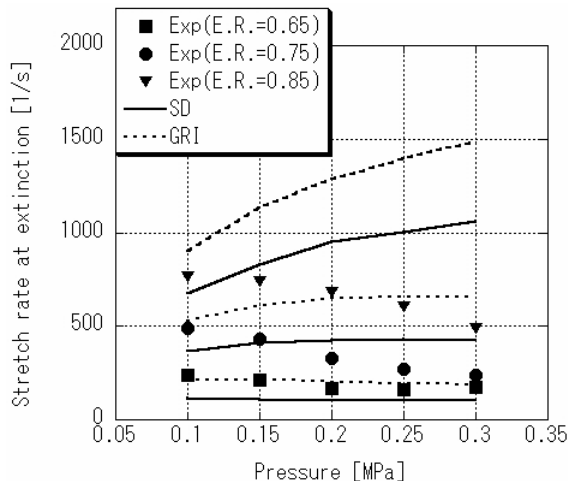


図4 プロパン希薄火炎の消炎伸長率の圧力依存性

### 4.3 質量燃焼流束による整理

Law<sup>14)</sup>は層流伝播火炎の固有値は質量燃焼流束であり、圧力が変化する場では質量流束あるいは密度重みつき伸

長率で整理すべきであることを述べている。燃焼速度を基にした反応の特性時間は次のように未燃ガスの密度( $\rho_u$ )つまりは圧力の関数となり、質量流束で整理することにより、反応速度( $\omega$ )のみに依存する形となる。

$$\tau_c = \delta_0 / S_L \rho_u / \omega \quad (2)$$

図5には、これまでのメタン、DME、プロパンの消炎伸長率の測定データの中で、最も希薄時のデータを密度で重みをつけた伸長率で表したものである。すべての燃料において、密度で重みをつけた消炎伸長率は圧力にほぼ比例して増加しているのがわかる。見かけの消炎伸長率が低下している低当量比においても、反応は圧力の増加により強化されていることを示している。

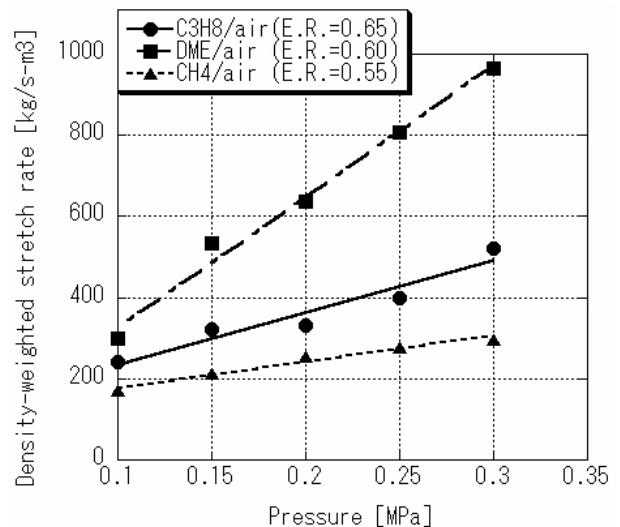


図5 密度で重みをつけた消炎伸長率の圧力依存性

### 4.4 総括反応次数

次式で示される総括反応次数(n)は、混合気の圧力依存性を示す良い指標であることが知られている。

$$n = 2 \left[ \frac{\partial \ln f^0}{\partial \ln p} \right]_{T_{ad}} \quad (3)$$

上式で、 $f^0$ と $p$ は非伸長火炎の燃焼質量流束と圧力である。

図6にはDME火炎の総括反応次数の圧力依存性を示す。図から総括反応次数が圧力とともに減少傾向にあることがわかる。この減少は圧力の増加に伴い、3体反応が強化されていることを示している。また、総括反応次数は当量比が大きくなるほど増加しているのがわかる。総括反応次数が大きいほど、圧力に対する燃焼流束の増加率が大きくなる。この傾向は、図3、図4を密度重みつきの伸長率で整理した結果に一致する。

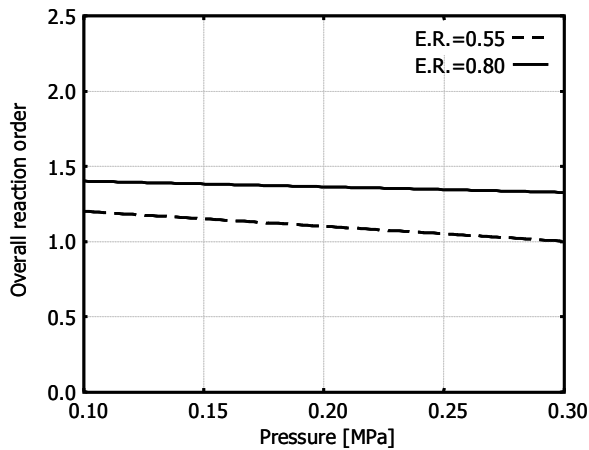
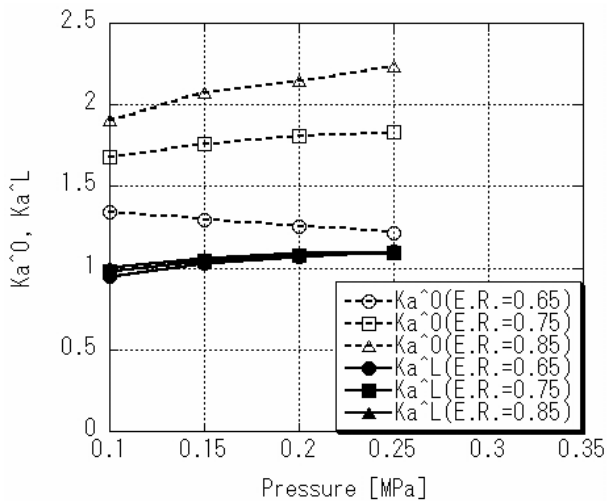
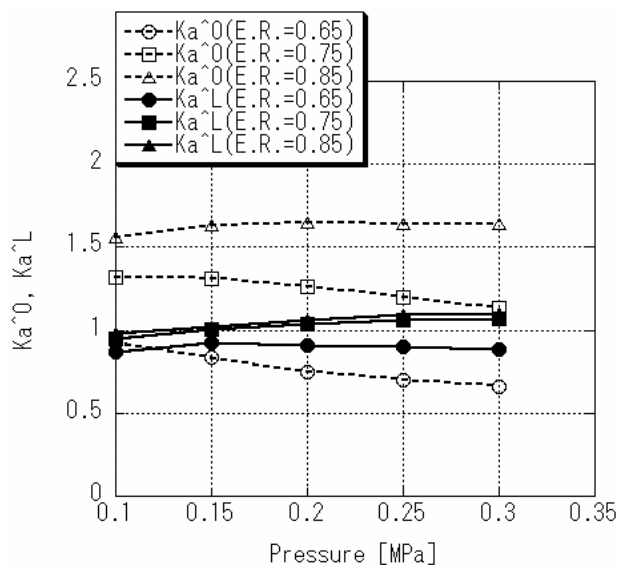


図6 DME 火炎の総括反応次数

図7 DME 火炎の消炎時における  $Ka^L$  と  $Ka^0$  の比較図8 プロパン火炎の消炎時における  $Ka^L$  と  $Ka^0$  の比較

#### 4.5 局所カルロピッツ数

伸長火炎の消炎は、流れの特性時間と反応の特性時間がほぼ同じオーダーになる時、つまりはカルロピッツ数が1のオーダーになった時、起こることが明らかにされている。反応の特性時間を非伸長火炎の値で見積もった場合の消炎カルロピッツ数は広い範囲に分布することが知られている。これは、非伸長時の火炎の特性が消炎時には変化しているためである。Chung et al.<sup>3)</sup>は数値計算により、以下に定義される局所カルロピッツ数を求め、消炎時の局所カルロピッツ数は燃料種や混合気の当量比によらず、ほぼ1となることを示した。著者らの前報<sup>2)</sup>においても、メタン予混合火炎の希釈剤を変えた異なるルイス数の混合気間の消炎伸長率の大小関係が局所カルロピッツ数を考慮して初めて説明されることを示した。

$$Ka^L = (\delta^L / S_L^L) \cdot K \quad (4)$$

上式で添字Lは消炎直前の伸長火炎における値である。

局所カルロピッツ数を本研究におけるDME火炎およびプロパン火炎の計算結果にも適用した。図7にはDME火炎、図8にはプロパン火炎の消炎時の局所カルロピッツ数( $Ka^L$ )を示す。図には比較のため、非伸長火炎の層流燃焼速度、火炎帯厚さを基にしたグローバルカルロピッツ数( $Ka^0$ )も示してある。両燃料とも消炎時の局所カルロピッツ数が圧力や当量比によらず、ほぼ1であることがわかる。ルイス数が1より大きいDME希薄火炎やプロパン希薄火炎の場合、グローバルカルロピッツ数の値も比較的、1に近い値となる。これに対し、ルイス数効果による火炎強化作用が現れるメタン希薄火炎ではグローバルカルロピッツ数が4から5とやや大きい値となった。そのような場合も局所カルロピッツ数はほぼ1であった。これらの結果は必ずしも驚くべき結果ではないが、燃料の種類やルイス数、雰囲気圧力、混合気の当量比などによらず、成立することが示された。

#### 5. 結論

(1) プロパンを除き、炭化水素系燃料の希薄予混合火炎の消炎伸長率は安定限界付近の低当量比においては、圧力の増加に対して低下または、ほぼ横ばいとなり、当量比が大きくなるにつれて増加傾向を示すようになる。この傾向は数値計算にもよく一致する。

(2) 消炎伸長率が圧力とともに低下または変化しない低当量比においても、密度重みつき消炎伸長率は圧力とともに増加する。

(3) 燃料種、混合気のルイス数や当量比、雰囲気圧力等によらず、消炎時の局所カルロピッツ数はほぼ1となる。

## 引用文献

- 1) D.Bradley, M.Lawes, K.Liu, R.Woolley, Proc. Combust. Inst. **31**, 2007, 1393.
- 2) K.Takita, H.Yamazaki, T.Uchida, G.Masuya, Combust. Sci. Tech. **178**, 2006, 1649.
- 3) S.H.Chung, D.H.Chung, C.Fu, P.Cho, Combust. Flame **106**, 1996, 515.
- 4) R.J.Kee, J.F.Grcar, M.D.Smooke, J.A.Miller, Sandia National Laboratories Report, SAND85-8240, 1985.
- 5) Y.Ju, H.Guo, K.Maruta, T.Niioka, Combust. Flame **113**, 1998, 603.
- 6) C.J.Sun, C.J.Sung, L.He, C.K.Law, Combust. Flame **118**, 1999, 108.
- 7) C.K.Law, D.L.Zhu, G.Yu, Proc. Combust. Inst. **21**, 1986, 1419.
- 8) S.L.Fisher, F.L.Dryer, H.J.Curran, Int.J.Chem. Kinet. **32**, 2000, 713.
- 9) J.Li, A.Kazakov, F.L.Dryer, Int.J.Chem.Kinet. **33**, 2001, 859.
- 10) M.Frenklack, C.T.Bowman, G.P.Smith, W.C.Gainer, [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/), 1999.
- 11) San Diego Mechanism <http://maemail.uscd.edu/combustion/cermech/>, 2005.
- 12) M.V.Petrova, F.A.Williams, Combust. Flame **144**, 2006, 526.
- 13) A.Yoshida, H.Kakinuma, Y.Kodani, Proc. Combust. Inst. **26**, 1996, 397.
- 14) C.K.Law, Combust. Sci.Tech. **178**, 2006, 335.