

## ■原著論文/ORIGINAL PAPER■

高温・高圧下における  $H_2/O_2/He$  予混合火炎の層流燃焼速度に関する研究A Study of Laminar Burning Velocity for  $H_2/O_2/He$  Premixed Flames at High Pressure and High Temperature大上 泰寛<sup>1\*</sup>・小林 秀昭<sup>2</sup>OGAMI, Yasuhiro<sup>1\*</sup> and KOBAYASHI, Hideaki<sup>2</sup><sup>1</sup> 東北大学大学院工学研究科 〒980-8577 仙台市青葉区片平2-1-1  
Institute of Fluid Science, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan<sup>2</sup> 東北大学流体科学研究所 〒980-8577 仙台市青葉区片平2-1-1  
Institute of Fluid Science, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

2001年12月26日受付; 2002年1月10日受理 / Received 26 December 2001; Accepted 10 January 2002

**Abstract** : Experimental and numerical studies on laminar burning velocities of a stoichiometric  $H_2/O_2$  mixture, which was diluted by helium in order to exclude flame instabilities, were performed in the pressure range of 0.1 to 1.0 MPa and in the preheated-mixture temperature range of 300 to 500 K. Measurements of laminar burning velocities were conducted by a technique which measures the instantaneous local burning velocity using particle tracking velocimetry (PTV) and planar laser induced fluorescence (PLIF) simultaneously for burner-stabilized flames in a high-pressure chamber. Experimental results were compared with numerical results obtained considering some existing detailed reaction mechanisms, and the verification of reaction mechanisms was performed. A modification of the reaction mechanism was also conducted using the mechanism of Allen et al. as a starting mechanism for the application in high-pressure and high temperature condition, and the modified mechanism was in good agreement with experimental data in the pressure dependency of laminar burning velocity.

**Key Words** : High pressure, High temperature, Laminar burning velocity, PLIF, PTV, Reaction mechanism

## 1. 緒言

層流燃焼速度は燃焼現象の解明およびその解析において最も基本的な特性値の一つである。水素火炎の燃焼速度は、多くの研究者によって研究が行われてきた[1-8]が、主に常温、大気圧下で行われてきたものであり、高温・高圧といったような特殊な条件下におけるデータは限られたものとなっている。また、それらのほとんどは球形定容器法を用いているが、高圧において圧力依存性に関して互いに矛盾する結果も報告されている[7,8]。球形定容器法には燃焼過程が非定常であること、燃焼時間が非常に短いこと、容器内の圧力が測定中に変化することなどの問題点が存在する。また、測定中の火炎観察が困難であり、火炎面の状態を把握しにくい。特に高圧のように、固有不安定性によ

て火炎面に変化が生じやすいような条件下では、火炎を観察しながら測定を行うといった手法が望ましい。

著者らは近年、これらの問題を解決する新たな手法として、粒子追跡速度計 (PTV) と瞬時 Schlieren 画像を利用した層流燃焼速度測定法を開発した[9]。この手法はバーナ上に定在化された火炎に対し、PTV から得られる火炎全域の速度分布と、Schlieren 画像から得られる火炎面位置情報を用いて、局所的に角度法を行って燃焼速度を求めるものであり、測定中の火炎の観察も比較的容易に行うことができる。また、高圧下で Reynolds 数の増大を抑えるために小さなバーナを用いなければならない状況でも、局所燃焼速度を測定できる本手法は境界層の影響を少なくすることができる。本手法は高圧における  $H_2/Air$  予混合火炎の層流燃焼速度の測定に用いられた[10]が、その圧力範囲は 0.4 MPa 以下に止まっている。これは高圧において火炎に不安定性が発生し、火炎に激しい変形と振動が生じたためである。このような状況下では、局所燃焼速度は火炎面に沿って変

\* Corresponding author. E-mail : ogami@flame.ifs.tohoku.ac.jp.

化することが予想され, 層流燃焼速度の測定に適した条件であるとは言えない。即ち, 高圧における燃焼速度測定には, 火炎の不安定性を排除することが不可欠である。固有不安定性は Darrieus-Landau 不安定性と熱・物質拡散効果として知られており, 高圧においてはほとんどの予混合火炎に作用する。そのため, 高圧において, 安定な火炎に対する層流燃焼速度の測定は一部の限られた条件に対してのみ可能であり, その他の条件については数値計算によって層流燃焼速度を推定する方法を取らざるを得ない。

近年, 層流火炎の数値計算は比較的容易になされるようになってきたが, 基となる詳細反応機構は, 層流燃焼速度などの実験データを元に修正されてきた[11-13]。その検証は, 主に常温, 大気圧下で行われてきたが, 実用高負荷燃焼器に近い条件下で利用可能な反応機構とするためには, 高温・高圧といった環境における実験データを用いた反応機構の検証およびその開発が不可欠である。しかしながら, 現状では高温・高圧下における実験データは十分とは言えず, 実験データの蓄積と反応機構の検証が望まれる。本研究は, 以上のような背景に基づいて行われた。

高温・高圧下において層流燃焼速度の測定を行うに際し, PTV を用いた従来の方法[9]に対して三つの改良を加えた。第一は, ヘリウムによる  $H_2/O_2$  混合気の希釈である。ヘリウムは温度拡散率が大きいことから, Lewis 数を増大させる効果が強い。Lewis 数が 1 よりも大きいとき, Darrieus-Landau 不安定性は熱・物質拡散効果によって抑制され, 火炎は安定化される。よって, ヘリウムによる混合気の希釈は, 高圧において火炎の不安定性を抑制する効果を持つ。第二の改良として, 矩形ノズルバーナを用いた, 円形ノズルバーナを用いた場合, 火炎面には曲率が存在することが避けられないが, 矩形ノズルバーナでは曲率を排除することが可能である。特に, 希釈によって火炎厚さが増加しているような状況では, 矩形バーナは効果的である。第三の改良点は, 火炎面の可視化のために用いていた Schlieren 法に変え, レーザ誘起蛍光法 (PLIF) を用いた点である。PLIF は PTV と同時に使用することが比較的容易である上, 2 枚のレーザーシートを重ねることにより, 同一平面上において測定を行うことができる。これらの改良を行った測定法を用いて, 高温・高圧下における当量比 1.0 の  $H_2/O_2/He$  予混合火炎の層流燃焼速度を測定した。さらに, 測定結果と詳細反応機構を考慮した数値計算結果と比較を行い, 高温・高圧条件下における反応機構の検証を行った。最後に, 本研究における測定データを数値計算によって再現できるよう, 反応機構の改良も試みた。

## 2. 実験装置および数値計算方法

### 2.1. 不安定性の抑制

前述したように, 高圧において, 火炎は Darrieus-Landau 不安定性と熱・物質拡散効果として知られる固有不安定性の影響を強く受ける。Darrieus-Landau 不安定性は混合気が

火炎面を通過する際に生じる熱膨張によって引き起こされ [14], ほとんどの混合気は無条件に不安定となるが, 層流燃焼速度が減少すると Darrieus-Landau 不安定性は弱まる [15]。一方, 熱・物質拡散効果は, 混合気の Lewis 数の大きさによってその傾向が変わる。Lewis 数 ( $= \alpha/D$ ,  $\alpha$ : 熱拡散率,  $D$ : 物質拡散係数) が 1 より小さいとき, 熱・物質拡散効果は Darrieus-Landau 不安定性を助長するが, Lewis 数が 1 より大きいとき, 熱・物質拡散効果の火炎安定化作用により Darrieus-Landau 不安定性は抑制される [14]。そこで本研究では, 当量比 1.0 の  $H_2/O_2$  混合気をヘリウムで希釈することにより, 混合気の Lewis 数を増大させた。ヘリウムは熱拡散率が大きく, Lewis 数を増大させる効果が強い。ヘリウム希釈率が 0% のとき, 即ち,  $H_2/O_2$  混合気の場合, 酸素, 水素の Lewis 数は共に 1 よりも大きい (共に 1.6) しかし, このとき層流燃焼速度は 10 m/s 以上で, 断熱火炎温度も 3000 K を上回り, 実験には適していない。ヘリウム希釈率が增大していくにつれ, 水素の Lewis 数は一旦, 1 以下に減少する。その後さらに希釈率を上げていくと水素の Lewis 数は再び 1 以上となる。本研究では, ヘリウム希釈率 82% の  $H_2/O_2/He$  混合気を用いて実験を行った。このとき Lewis 数は酸素, 水素でそれぞれ 2.07, 1.06 であり, さらにヘリウム希釈により層流燃焼速度が減少し Darrieus-Landau 不安定性も弱まることから, 高圧において不安定性の抑制が可能であると考えられる。予熱混合気に対しては, 混合気の Lewis 数は熱拡散率の増加によって更に大きくなり, 安定した火炎が得られると予想される。また, 動粘性係数の増加によって, 層流燃焼速度の増大による Reynolds 数の増大は低く抑えられるため, 乱流遷移を避けることが可能である。尚, 全実験条件を通しての Reynolds 数の最大値は 1900 (1.0 MPa, 500 K) であり, これは矩形バーナにおいて乱流に遷移するといわれる Reynolds 数 (2200) よりも小さい。

### 2.2. 実験装置

図 1 に実験装置の概略図を示す。実験には内径 150 mm, 高さ 1050 mm の高圧燃焼容器を用いた。高圧容器には, バーナ下方から常に加圧用空気が供給されており, 容器内の圧力は, 圧力センサーの値をもとに排気バルブの開度を調整することにより一定に保たれる。容器内にはバーナが設置されるが, 本研究では火炎の曲率を排除するため, 矩形ノズルバーナを使用した。バーナ出口寸法は, 大気圧に近い条件においては出口寸法の大きなバーナ (8 mm × 15 mm) が, また高圧においては不安定性の抑制と Reynolds 数の増大を抑えるため小さなバーナ (4 mm × 15 mm, または 4 mm × 10 mm) が用いられた。高圧容器直前の流路にはヒータが設置されており, 混合気の予熱および温度調節に用いられる。混合気温度は, バーナ出口から 5 cm 上流に設置された熱電対によって測定された。尚, 混合気温度の誤差は, 全実験を通して  $\pm 5$  K である。

本研究では, 火炎の速度場の計測には PTV が, また火

炎面の検出には OH-PLIF が用いられた。PTV にはダブルパルス Nd-YAG レーザー (Continum, Surelite I-10) を用いた。Nd-YAG レーザー光は 2 つのレンズによって厚さ 100  $\mu\text{m}$  以下のシート状に変形され、火炎の中心面に照射される。また、OH-PLIF には Dye レーザー (Lumonics, HD-500B+HT1000) を用いた。Dye レーザー光は Nd-YAG レーザー光と同様にシート状に変形された後、Nd-YAG レーザー光に重ねられ火炎中心面に照射される。Dye レーザーの発振は、二つの Nd-YAG レーザー発振の中間において行われる。混合気中に混入された  $\text{SiO}_2$  粒子による Mie 散乱光および OH ラジカルによる蛍光は、それぞれ CCD カメラ (Kodak, Megapulus Es1.0; 1008  $\times$  1014 pixels) および ICCD カメラ (Princeton Instruments, ICCD576/RB-T; 576  $\times$  384 pixels) によって撮影された。

### 2.3. 数値計算方法および反応機構

詳細反応機構を考慮した一次元平面火炎の数値計算は CHEMKIN-II[16] および PREMIX[17] を用いて行った。詳細反応機構は Allen ら[18]の反応機構と、GRI-Mech version 2.11[19], GRI-Mech version 3.0[20]中の水素と酸素に関する反応を抜き出したものを用いた。GRI-Mech 2.11, 3.0 は、それぞれメタン、プロパン用に開発されたものであるが、

後述するように、近年報告された新しい反応速度定数のデータを良く反映しており、本研究で用いることとした。尚、ヘリウムについて再結合反応の衝突効率に関するデータはいずれの文献にも存在しないため、熱化学的に物性の近いアルゴンの衝突効率を用いて計算を行った。これは Kwon ら[21]が行った手法と同様のものである。その他の反応機構[12,13,22]も検討を行ったが、その中で Allen ら[18]の反応機構を用いた結果が本実験結果に最も近かったこと、また他の反応機構は第三体としてのアルゴンについてのデータを含んでいないなどの理由から、本論文では Allen ら[18]の反応機構をベースとして用いることとした。また、高圧下での数値計算においては素反応の fall-off 特性[23]を考慮する必要があるが、本研究における圧力範囲では重要でないと考えられることから、ここではその影響を考慮していない。

## 3. 結果および考察

### 3.1. 高圧における火炎の観察

図 2(a), (b) に高圧における当量比 1.0 の  $\text{H}_2/\text{Air}$ , および  $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{He}$  予混合火炎 (ヘリウム希釈率 82vol.%) の Schlieren 画像を示す。尚、 $\text{H}_2/\text{Air}$  予混合火炎は出口径 4 mm の円形

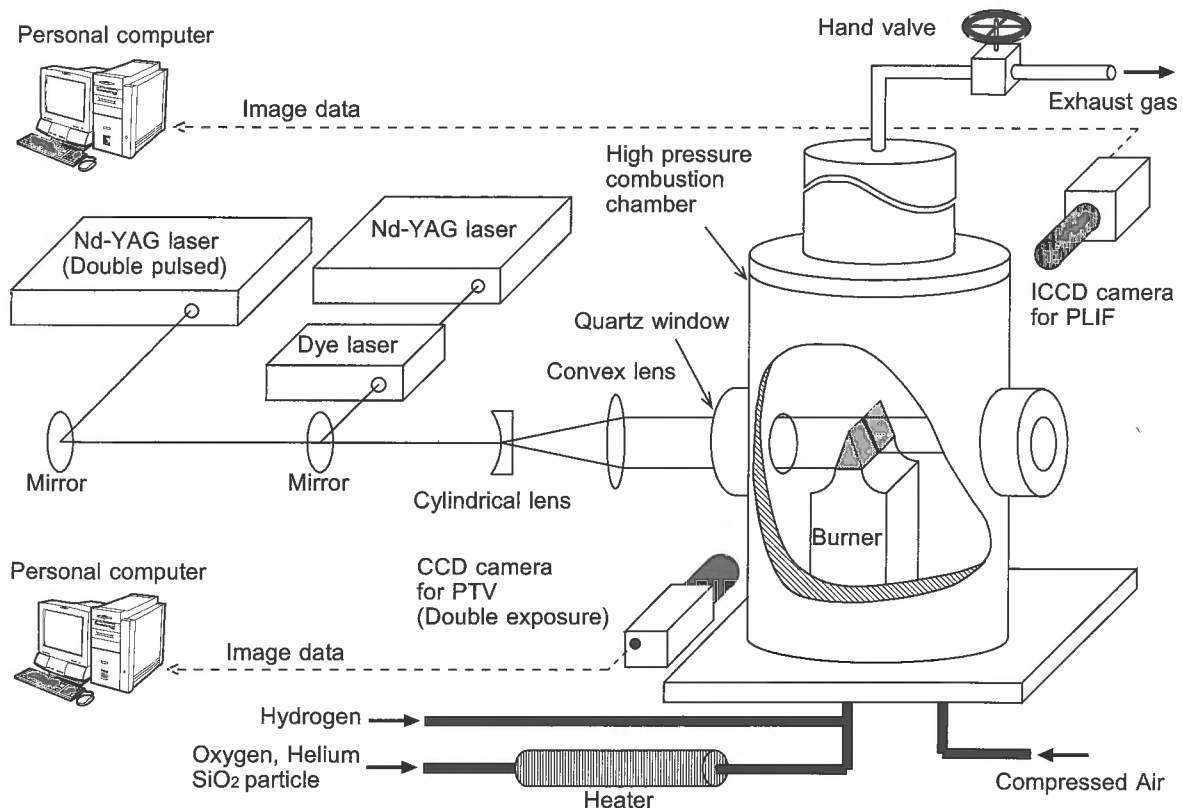


Fig.1 Schematic diagram of experimental setup.

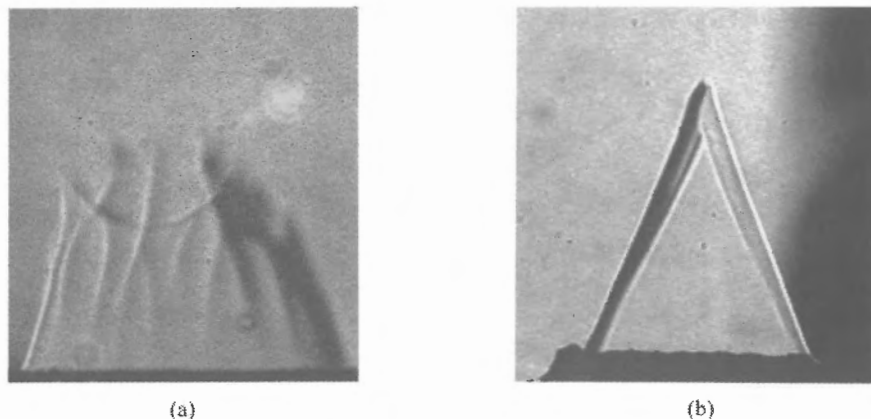


Fig. 2 Instantaneous Schlieren photographs of the flame at high pressure: (a) H<sub>2</sub>/air,  $P=0.4$  MPa,  $T_0=300$  K; (b) H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He,  $P=1.0$  MPa,  $T_0=300$  K, He=82 vol. %.

ノズルバーナを, H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He 予混合火炎は 4 mm × 10 mm の矩形ノズルバーナを用いた結果である. H<sub>2</sub>/Air 予混合火炎の場合 (図 2(a)), バーナ寸法が小さいにもかかわらず, 圧力 0.4 MPa において火炎に激しく不安定性が作用していることが分かる. 矩形ノズルバーナを用いた場合, 火炎のスケールが増大することにより火炎はより不安定となり易いが, H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He 予混合火炎 (図 2(b)) では圧力 1.0 MPa においても火炎面に不安定性の影響は見られず, 不安定性が効果的に排除されていることが分かった. H<sub>2</sub>/Air 混合気の水素の Lewis 数は 0.6 であり, さらに, 層流燃焼速度は 2 m/s と H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He 火炎の 2 倍の大きさであることから, H<sub>2</sub>/Air 予混合火炎では不安定性が激しく作用したものと考えられる. 図 2(b) において, 火炎が二重に見えるのは, 矩形ノズルバーナにおける火炎形状の影響である. Schlieren 法では, バーナの長手方向の影響を受け易いことから, 本研究においては OH-PLIF を用いることとした. 火炎の観察は圧力

0.1 ~ 1.0 MPa, 混合気初期温度 300 ~ 500 K の範囲内で行われたが, いずれの実験条件においても不安定性の影響を受けない, 安定した火炎が観察された. そこで, この混合気 (H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He, He = 82vol.%) を用いて, 層流燃焼速度の測定を行った.

### 3.2. 層流燃焼速度の導出

PTV を用いた層流燃焼速度の測定法は著者らの過去の論文[9]中に詳しく記述されているため, ここでは簡単に述べる. まず, ダブルパルス Nd-YAG レーザーと CCD カメラによって SiO<sub>2</sub> 粒子に対する 2 枚の Mie 散乱光画像が撮影される. 二値化処理した Mie 散乱光画像に対し, PIV 解析ソフト (AEA Technology, Visiflow) を用いて Particle Tracking 処理を行うことにより, 火炎断面全域における瞬時速度ベクトルの分布図が得られる (図 3(a)). この速度ベクトル分布図から補間法により粒子の流跡線を計算する. こ

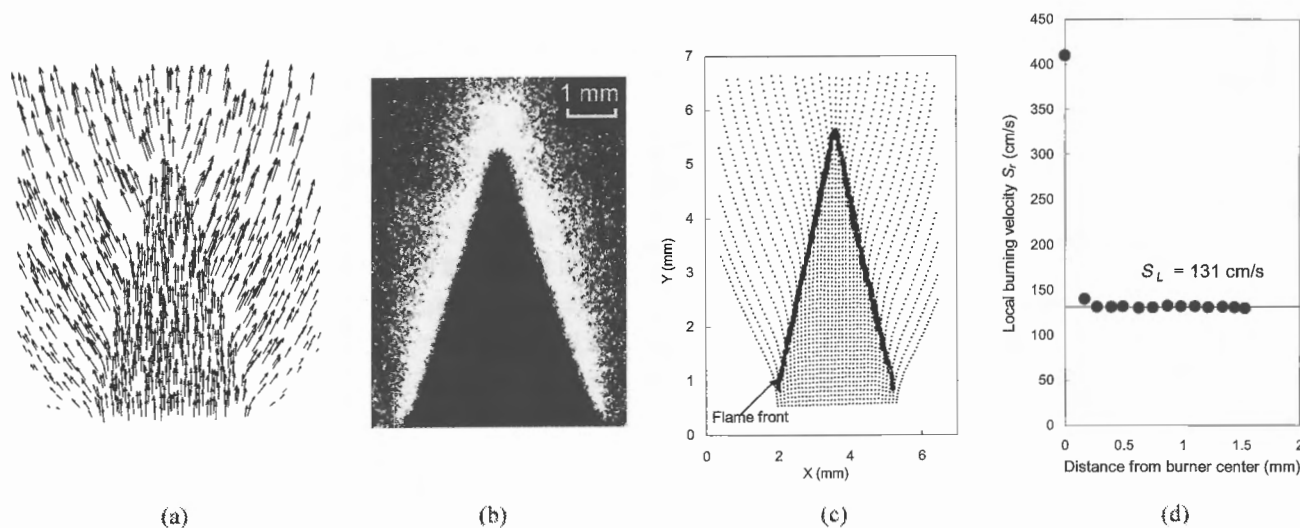


Fig. 3 Procedure of the measurement of laminar burning velocity: (a) Velocity vectors; (b) OH-PLIF image; (c) Flame front superpose on flow streamlines; (d) Distribution of local burning velocities (H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He flame, He=82 vol.%,  $P=0.6$  MPa,  $T_0=400$  K).

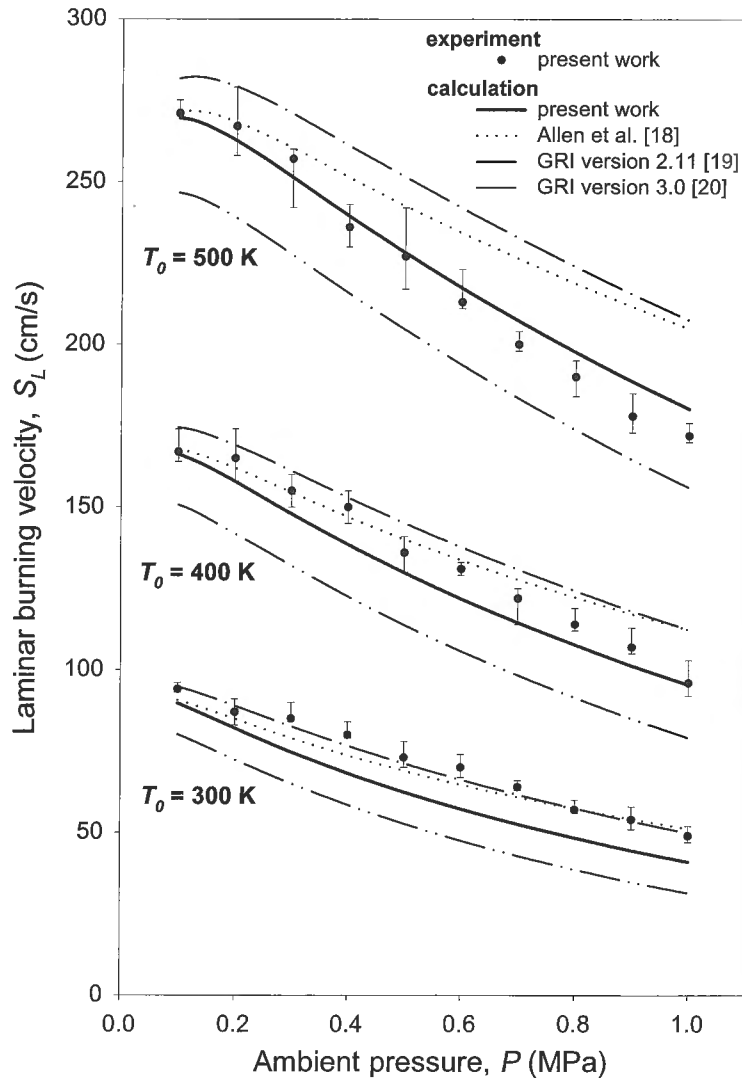


Fig.4 Relationship between laminar burning velocity,  $S_L$ , and ambient pressure,  $P$ , for mixture temperatures,  $T_0 = 300, 400, \text{ and } 500 \text{ K}$ .

の流跡線上において速度ベクトルの方向に大きな変化が現れる点を近似的に予熱帯前縁位置と見なし、これより上流側の流跡線の傾きと予熱帯前縁における速度ベクトルの大きさ  $U_r$  を求める。一方、同時に撮影された OH-PLIF 画像 (図 3(b)) は火炎面の導出に用いられるが、火炎面は LIF 強度が増加し始める点によって決められた。火炎面位置は補間法によって得られた流跡線と重ねられ (図 3(c))、それぞれの流跡線に対する交点の近傍において二次曲線で近似され、火炎面と流跡線との交差角 ( $\theta$ ) が求められる。これらを用いて、 $S_r = U_r \sin \theta$  として局所燃焼速度  $S_r$  の分布を得る (図 3(d))。バーナ中心付近からバーナリップ付近までの中間領域において  $S_r$  がほぼ一定となる領域があり、この領域内では火炎の伸長、および曲率が最小であると考えられる。そこで、ここでの  $S_r$  の平均値を層所燃焼速度  $S_L$  とした [9]。以上のような手順により、高温・高圧下における  $S_L$  の測定を行った。

### 3.3. 実験結果と数値計算結果の比較

図 4 は  $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{He}$  予混合気炎の  $S_L$  と雰囲気圧力  $P$  との関係を示したものである。エラーバーは  $S_r$  がほぼ一定となる領域内における  $S_r$  のばらつきを示している。ばらつきは全て測定値の  $\pm 5\%$  以内に収まっているが、これは主に OH-PLIF 画像より火炎の傾きを求める際に生じるものである。  $\pm 5\%$  という値は、火炎面の傾きが  $\pm 1$  度程度の誤差を含んでいることを示す。図 4 には Allen ら [18]、GRI-Mech 2.11 [19]、GRI-Mech 3.0 [20] の反応機構を用いて行った数値計算結果も同時に示してあるが、いずれの反応機構も本測定結果と全ての条件において一致するものはなかった。

大気圧近傍では、Allen ら [18] の反応機構を用いた計算結果は全ての初期温度条件において測定値と概ね一致するが、高圧下では測定値に比べ大きな値をとる。図 5 は圧力 0.1 MPa から 1.0 MPa までの  $S_L$  の減少率  $\Delta S_L^P (= (S_{L0.1\text{MPa}} - S_{L1.0\text{MPa}}) / S_{L0.1\text{MPa}})$  と  $T_0$  との関係を示したものであるが、

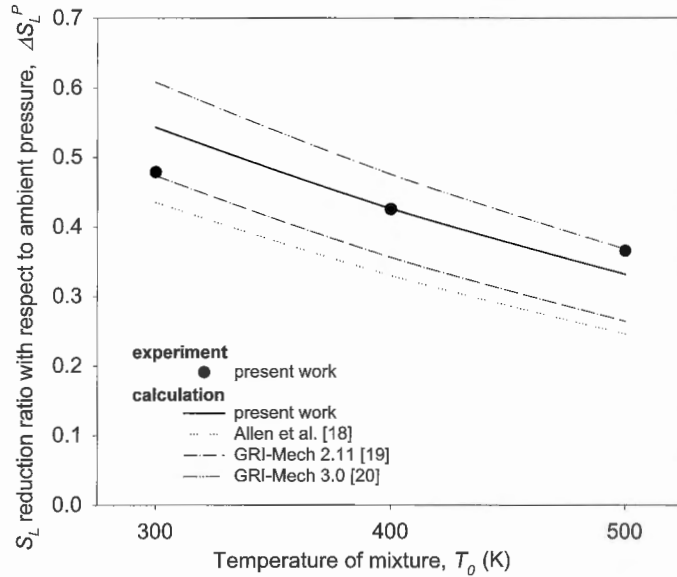


Fig.5 Relationship between  $S_L$  reduction ratio with respect to ambient pressure,  $\Delta S_L^P$ , and mixture temperature,  $T_0$ .

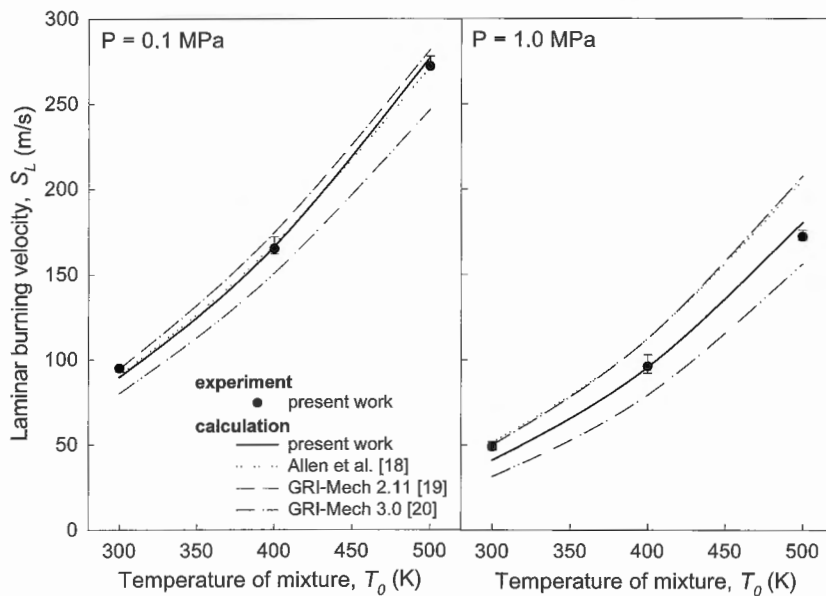


Fig. 6 Relationship between laminar burning velocity,  $S_L$ , and mixture temperature,  $T_0$ .

Allen ら[18]の反応機構は, 全ての  $T_0$  に対して  $\Delta S_L^P$  が実験結果より小さな値であることが分かる. この  $\Delta S_L^P$  の不足は,  $T_0$  が増加するにつれ大きくなる. ゆえに, Allen ら[18]の反応機構は, 高圧で大きな  $S_L$  となる.

GRI-Mech 2.11[19]を用いた計算結果は,  $T_0$  が 300 K のとき, 測定値と良い一致を示すが, 400 K, 500 K では  $S_L$  は測定値よりも大きな値となる. これは, 図 5 において見られる, 400 K, 500 K における  $\Delta S_L^P$  の不足に加え,  $S_L$  が  $T_0$  の増加に伴い増大するといった傾向にも表れている.

図 6 は  $S_L$  と  $T_0$  の関係を, 図 7 は  $T_0$  が 300 K から 500 K に変化するときの  $S_L$  の増加率  $\Delta S_L^T (= (S_{L500K} - S_{L300K}) /$

$S_{L(300K)})$  を示したものであるが, これらより GRI-Mech 2.11[19]を用いた計算結果は, 実験結果に比べ  $T_0$  の変化に対する  $S_L$  の増大が著しいといった傾向を有していることが分かる. この傾向は Allen ら[18]の反応機構でも若干見られる.

GRI-Mech 3.0[20]は, 図 4 に見られるように, 全条件において小さな  $S_L$  となるが,  $\Delta S_L^P$  は他の二つの反応機構に比べて測定結果と良い一致を示す. しかし,  $\Delta S_L^T$  が大きいという傾向は GRI-Mech 2.11[20]同様存在する.

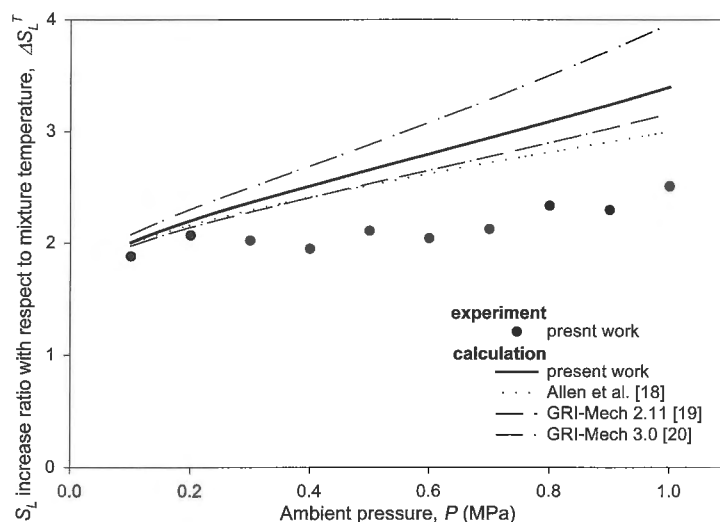


Fig.7 Relationship between  $S_L$  increase ratio with respect to mixture temperature,  $\Delta S_L^T$ , and ambient pressure,  $P$ .

### 3.4. 詳細反応機構の改良

本研究は、混合気温度と圧力の広い範囲において数値計算により  $S_L$  が推算できるよう、反応機構を改良することが目的の一つである。Allen ら[18]の反応機構は、大気圧においては、 $T_0$  上昇に伴う  $S_L$  の若干の増加が見られるものの、測定値と非常に良い一致を示す。近年、Kwon ら[21]は大気圧において、 $H_2/Air$ ,  $H_2/O_2/He$ , および  $H_2/O_2/Ar$  予混合火炎の層流燃焼速度の測定結果と数値計算結果の比較を様々な当量比に対して行ったが、最も実験結果と良い一致を示す反応機構は Muller ら[24]の反応機構であると報告している。Muller ら[24]の反応機構は Allen ら[18]の反応機構に改良を施したものであり、 $H_2/Air$  予混合火炎に対して  $S_L$  は若干小さいものの Allen ら[18]の反応機構と概ね等しい値となった。即ち、Allen ら[18]の反応機構は、大気圧の計算に適した反応機構であると言えるが、高圧においては前述したように  $\Delta S_L^P$  が小さな値をとることもあって、 $S_L$  は測定値と比べ大きな値となる。そこで本論文では、Allen ら[18]の反応機構を基に、本研究で得られた実験結果を良く再現できるよう、反応機構の改良を行った。

前述のように、Allen ら[18]の反応機構には  $S_L$  の圧力依存性と混合気温度依存性に実験結果との相違が見られる。即ち、 $\Delta S_L^P$  が小さく(特に高温領域)、 $\Delta S_L^T$  が大きい。ここではこの二点に着目する。図 8 に Allen ら[18]の反応機構に対して行った感度解析の結果を示す。圧力の増加に対しその感度が大きく増加する反応としては、次のような素反応が挙げられる。



反応 (R5) は連鎖分岐反応



と H ラジカルに関して競合し、温度や圧力の変化により火炎の燃焼速度に大きな影響を及ぼすことがよく知られており、反応 (R5) の反応速度が増大すると  $S_L$  は減少する。また、三体反応である反応 (R5) は強い圧力依存性を有し、高圧においてその反応速度は増大し、反応 (R1) に対して優勢となる。 $\Delta S_L^P$  を増大させるには、反応 (R5) のように強い圧力依存性を持ち、且つ  $S_L$  を減少させる作用のある反応について、その反応速度を増大させることが効果的である。Allen ら[18]の反応機構における反応 (R5) の反応速度定数は、GRI-Mech 2.11[19]、GRI-Mech 3.0[20]のものと比べ全温度域で小さい値を取る。特に、GRI-Mech 3.0[20]は、近年の Davidson ら[25]や Ashman ら[26]による衝撃波管を用いた実験データを良く反映している。そこで、反応 (R5) の速度パラメータを GRI-Mech 3.0[20]のものとの入れ換える変更を行った。GRI-Mech 3.0[20]の反応 (R5) は、Allen ら[18]の値に比べ、特に高温域でその反応速度が大きい。この入れ換えによって、高圧において反応 (R5) の反応速度が増大し、 $\Delta S_L^P$  が増大するものと予想される。また、特に高温領域で反応 (R5) の反応速度の増大が大きいため、混合気温度が高いときにおける  $\Delta S_L^P$  の不足が緩和されるものと考えられる。ただし第三体が  $H_2O$  の場合に対しては、GRI-Mech 2.11[19]の速度定数が最近の実験値に良く一致している[25]ことから、第三体が  $H_2O$  の場合に対してのみ、GRI-Mech 2.11[19]の速度定数パラメータを用いることとした。反応 (R5) に加え、圧力依存性の修正のため、反応 (R1) の反応速度パラメータも GRI-Mech 3.0[20]のものとの入れ換えを行った。前述したように、高圧において反応 (R1) は反応 (R5) と競合しているが、この反応の反応速度を減少させることにより反応 (R5) が相対的に強まり、 $\Delta S_L^P$

が大きくなると考えられる。GRI-Mech 3.0[20]では、反応 (R1) は Allen ら[18]のものとは比べ高温領域において小さな値を取るため、高温領域において  $\Delta S_L^P$  の増大をもたらす。この反応も (R5) と同様に、近年の Masten らの実験結果 [27]を良く反映している。

上記の修正により、 $S_L$  の圧力依存性  $\Delta S_L^P$  は改善されるが、 $S_L$  の温度依存性  $\Delta S_L^T$  に関しての問題は残る。そこで、反応



について、GRI-Mech 2.11[19]の反応速度パラメータとの入れ換えを行った。反応 (R6) は、図 8 から分かるように感度の高い反応であるが、GRI-Mech 2.11[19]では、反応 (R6) は高温側で Allen ら[18]の反応速度より小さく、低温側では大きい値を取る。この反応は火炎伝播に正の作用を持つことから、この入れ換えにより高温側において  $S_L$  が減少し、低温側で  $S_L$  が増大することが予想される。即ち、 $\Delta S_L^T$  を減少させることができるものと考えられる。次の反応についても、同様の結果を予測し、GRI-Mech 3.0[20]との入れ換えを行った。



他の大きな感度を持つ反応についても修正を検討したが、それらの反応速度定数のデータは、各反応機構の間に

大きな違いがないことから、変更は行わなかった。

図 4, 5, 6, 7 には上記の修正を行った反応機構を用いた数値計算結果が同時に示されているが、この修正によって、 $S_L$  の減少率  $\Delta S_L^P$  も実験値と概ね一致する結果が得られた。しかし、 $S_L$  の混合気温度に対する増大率  $\Delta S_L^T$  が大きいといった点は依然として存在する。この傾向は、本研究で用いた全ての反応機構が有するものであり、修正を加えなかった他の素反応によって生じているものとも考えられ、更なる検討が必要であると言える。

本研究では輸送特性係数、熱化学データに関しては変更を行っていない。近年、Paul ら[28]は輸送特性係数の計算法に対して修正を行ったが、この修正によって H ラジカルのような軽い化学種の拡散速度は増大する。H ラジカルは H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> 反応機構で強い影響を持つ反応 (R1) に関与する化学種であり、また輸送特性係数は温度依存性が強いことから、 $S_L$  の温度依存性改善のためには、今後、輸送特性係数についても検討を行う必要があると言える。

#### 4. 結言

一定圧力に制御された高压容器内に安定化された H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He 予混合火炎に対し、高温・高圧下において実験を行った結果、次のような結論が得られた。

1. H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He 混合気は、Lewis 数の増大と層流燃焼速度の減少のために、高压における火炎の不安定性は効果的に抑制され、圧力 0.1~1.0 MPa、混合気温度 300~500

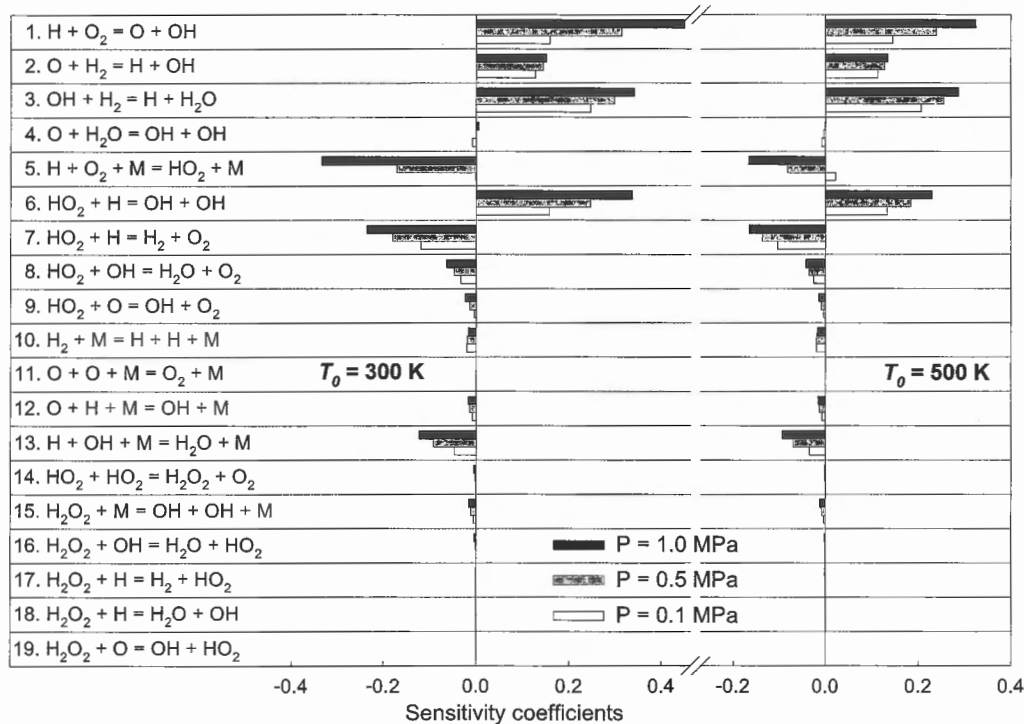


Fig.8 Sensitivity coefficients for H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> mechanism of Allen et al.[18] for various pressure, P, and temperature, T<sub>0</sub>.



- K の範囲内で安定な火炎が得られた。
2.  $H_2/O_2/He$  予混合火炎に対し, PTV と OH-PLIF を用いた局所燃焼速度測定法により, 高温・高圧下における層流燃焼速度を測定することができた。
  3. 詳細反応機構を用いた層流燃焼速度の数値解析を行い, 数値解析結果と実験結果との比較を行ったが, 調査した反応機構中に, 全ての圧力, 温度範囲で測定データと一致するものは見出されなかった。
  4. 本実験結果と数値計算結果との比較に基づき反応速度定数の検討を行い, Allen ら[18]の反応機構に対し修正を行った結果, 実験結果と概ね等しい層流燃焼速度の圧力依存性を再現することが可能になった。

## 謝辞

本研究に対して, 貴重なご助言を賜った, 東北大学流体科学研究所, 新岡嵩教授に感謝の意を表します。また, 実験および数値解析に協力いただいた東北大学大学院生, 川畑琢也君, 瀬山勝広君, 東北大学学生, 三津谷維基君に感謝の意を表す。

## References

1. Gunther, R. and Janisch G., *Combust. Flame* 19: 49-53 (1972).
2. Andrews, G. E., and Bradley, D., *Combust. Flame* 20: 77-89 (1973).
3. Liu, D. D. S. and MacFarlane, R., *Combust. Flame* 49: 59-71 (1983).
4. Wu, C. K., and Law, C. K., *Proc. Combust. Inst.* 20: 1941-1949 (1984).
5. Dowdy, D. R., Smith, D. B., Taylor S. C., and Williams, A., *Proc. Combust. Inst.* 23: 325-332 (1990).
6. Aung, K. T., Hassan, M. I., and Faeth, G. M., *Combust. Flame* 112: 1-24 (1998).
7. Iijima, T., and Takeno, T., *Combust. Flame* 65: 35-43 (1986).
8. Shebeco, Yu. N., Tsarichenko, S. G., Korolchenko, A. Ya., Turnev, A. V., Navzenya, V. Yu., Papkov, S. N., and Zaitnev, A. A., *Combust. Flame* 102: 427-437 (1995).
9. Kobayashi, H., Sugai, A., Kawabata, Y., Maruta, K., and Nioka, T., in: *1st Asia-Pacific Conf. on Combust.*: 302-305 (1997).
10. Qin, X., and Kobayashi, H., *Experimental Thermal and Fluid Science* 21: 58-63 (2000).
11. Dixon-Lewis, G., *Proc. Roy. Soc. A*298: 495-513 (1967).
12. Baulch, D. L., Drysdale, D. D., Horne, D. G., and Llod, A. C., *Evaluated Kinetic Data for High temperature Reactions*, Vol.1 (1972).
13. Warnatz, J., W. C. Gardiner Jr. (Ed.), *Combustion Chemistry*, Springer, New York, 1985, p.204-224.
14. Williams, F. A., *Combustion Theory*, second ed., (1985).
15. Sivashinsky, G. I., *Ann. Rev. Fluid Mech.* 15: 179-199 (1983).
16. Kee, R. J., Grcar, J. F., Smooke, M. D., and Miller, J. A., *Sandia National Laboratories Report No.SAND89-8009* (1993).
17. Kee, R. J., Rupley, F. M., and Miller, J. A., *Sandia National Laboratories Report No.SAND85-8240* (1991).
18. Allen, M. T., Yetter, R. A., and Dryer, R. L., *Combust. Flame* 109: 449-470 (1997).
19. Frenklach, M., Wang, H., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Smith, G. P., Goldin, D. M., Gardiner, W. C., and Lissianski, V., <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/> (1995).
20. Frenklach, M., Bowman, C. T., Smith, G. P., and Gardiner, W. C., <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/> (1999).
21. Kwon, O. C., and Faeth, G. M., *Combust. Flame* 124: 590-610 (2001).
22. Balakrishnan, G., Smooke, M. D., and Williams, F. A., *Combust. Flame* 102: 329-340 (1995).
23. Cobos, C. J., Hippler, H., and Troe, J., *J. Phys. Chem.* 89: 342-349 (1985).
24. Mueller, M. A., Kim, T. J., Yetter, R. A., and Dryer, F. L., *Int. J. Chem. Kinetics* 31: 113 (1999).
25. Davidson, D. F., Petersen, E. L., Rohrig, M., Hanson, R. K., and Bowman, C. T., *Proc. Combust. Inst.* 26: 481-488 (1996).
26. Ashman, P. J., and Haynes, B. S., *Proc. Combust. Inst.* 27: 185-191 (1998).
27. Masten, D. A., Hanson, R. K., and Bowman, C. T., *J. Phys. Chem.* 94: 7119-7128 (1990).
28. Paul, P., and Warnatz, J., *Proc. Combust. Inst.* 27: 495-504 (1998).