

■原著論文／ORIGINAL PAPER■

高温空気燃焼におけるメタン-空気簡略化反応機構の適用に関する研究

Application of Methane-Air Reduced Kinetic Mechanisms to High-Temperature Air Combustion

齋藤 寛起¹・大上 泰寛²・小林 秀昭^{2*}・新岡 嵩³・毛利 孝明⁴・穂積 良和⁴・汐崎 徹⁴SAITO, Hiroki¹, OGAMI, Yasuhiro², KOBAYASHI, Hideaki^{2*}, NIOKA, Takashi³, MOHRI, Takaaki⁴, HOZUMI, Yoshikazu⁴, and SHIOZAKI, Tetsu⁴¹ 東京電力(株) 〒100-8560 東京都千代田区内幸町1-1-3

The Tokyo Electric Power Company, Incorporated, 1-1-3 Uchisaiwai-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8560, Japan

² 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

³ 秋田県立大学地域共同研究センター 〒015-0055 秋田県本荘市土谷字海老ノ口84-4

Science and Technology Integration Center, Akita Prefectural University, 84-4 Ebinokuchi, Tsuchiya, Honjyo, Akita 015-0555, Japan

⁴ 千代田化工建設(株) 〒230-8601 横浜市鶴見区鶴見中央2-12-1

Chiyoda Corporation, 2-12-1 Tsurumichuo, Tsurumi-ku, Yokohama 230-8601, Japan

2004年10月25日受付；2005年3月7日受理／Received 25 October, 2004; Accepted 7 March, 2005

Abstract : For the purpose of establishing reduced kinetic mechanism applicable to high-temperature air combustion technology (HiCOT), numerical simulations of the methane-air diffusion flame were performed especially at air temperature of 1300 K and low oxygen concentration of 4 vol %. First, numerical simulations for the one-dimensional counterflow diffusion flame were performed to find suitable reduced kinetic mechanism for HiCOT. Based on the comparison of the numerical results and improvements of steady-state expressions, improved Peters 4-step reduced mechanism (IP4M) was chosen. Secondly, numerical simulations for axisymmetric jet diffusion flame were performed mainly using the IP4M. Because of the numerical instability for the reduced kinetic mechanism peculiar to calculations of multi-dimensional problems, the rapid increase in H radical in non-reacting regions was found. It was also found that certain distinctions between the reaction region and the other region and restrictions of some elemental reactions were better way to overcome the numerical instability. Finally, converged solutions could be obtained and the results using IP4M agreed well with those using the starting full chemistry. Cost of calculation was also compared and it was shown that CPU time using IP4M was about one-third compared to that using the starting full chemistry.

Key Words : High-Temperature Air Combustion (HiCOT), Low oxygen concentration, Reduced kinetic mechanism, Diffusion flame, CPU time

1. 緒言

燃焼システムの大規模な高効率化・低公害化を達成した高温空気燃焼技術[1-3]の各種燃焼設備への適用[4]が進められている。燃焼炉設計における高度な数値シミュレーションにおいては、総括反応では不十分であり、ラジカルを含む反応機構が必要とされるが、計算コストの点から簡略化反

応機構の利用が望まれている。

簡略化反応機構は、一般に準定常近似および部分平衡により詳細反応過程を数段から十数段に省略した見かけの反応系であり、適切な条件下では詳細反応による計算結果とよく一致し、かつ大幅な計算コスト削減が可能となる。しかし、簡略化手法の多くは化学反応特性時間のみを考慮したものであるため、反応領域と準定常近似の異なる非反応領域の扱い、簡略化反応機構の適用範囲といった問題[5,6]を伴う。また簡略化反応機構の適用範囲を拡げるために多くの化学種を考慮すれば、温度、圧力、濃度の広い範囲においても準定常近似を成立させることはできる。十数種類

* Corresponding author. E-mail: kobayashi@ifs.tohoku.ac.jp

の化学種を考慮した十数段程度の簡略化反応では、かなり広い条件範囲で詳細反応と同じ結果が得られることが示されているが[7]、計算コストの点から未だ実用的とは言えない。したがって、特に多次元数値計算において、現状では火炎特性を概ね正確に解析できる十種以下の化学種で表される4, 5段程度の単純な簡略化反応機構を用いるのが、工学的に有用であると考えられる。しかし、低酸素高温空気燃焼における準定常近似を用いた簡略化反応機構による多次元の数値計算例は、著者の知るところまだ無い。

そこで本研究では、高温空気燃焼に適用可能な簡略化燃焼反応機構の検討を目的として、上述の簡略化反応に特有な問題点に対処し、二次元数値計算に対するメタンの簡略化反応機構の適用の可能性を調べる。特に低酸素高温空気燃焼の代表的条件(1300 K, O₂: 4 vol % の希釈高温空気)について、最も基本的な4, 5段の簡略化反応機構と詳細反応機構との比較を行う。主な注目点は、火炎温度、化学種濃度、消炎限界、および高温空気燃焼において重要とされる熱発生率(発熱速度)分布である。

上述の目的を達成するためには、計算時間および計算安定性の点から一次元数値計算から検討を始めることが望ましい。すなわち、始めに一次元対向流拡散火炎に対して、簡略化反応計算コードの作成、および数種の簡略化反応機構に対して高温空気燃焼計算に適用可能な反応機構の選択を行った。また簡略化反応機構の計算の安定性、および詳細反応機構である starting mechanism との計算結果の同一性を高めるため、本研究で用いた簡略化反応機構に対し準定常近似等に改良を加えた。続いて、対向流拡散火炎の数値計算に改良した簡略化反応機構を用いるとともに、実用的な同軸噴流拡散火炎においてその適用の可能性を調べた。二次元数値計算では、次元の増加に伴う簡略化反応機構に特有な計算不安定性の増大によって収束が困難となる。そこで本研究では、さらに反応領域と非反応領域を区別する監視条件、および非反応領域において素反応速度に適切な制限条件を加えることにより、広い計算条件において簡略化反応機構を用いた計算を可能にした。また、簡略化反応機構の特長である計算コスト削減の効果についても検討した。

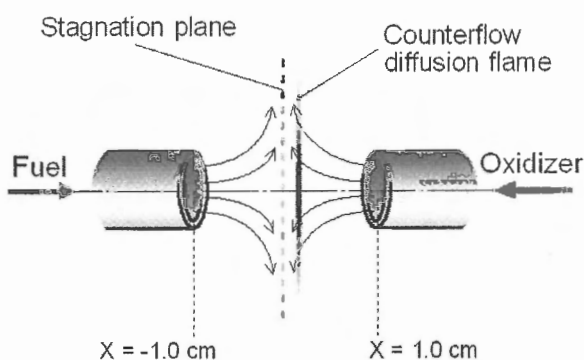


Fig. 1 Schematic diagram of counterflow diffusion flame.

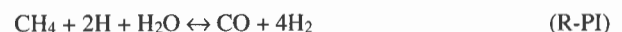
燃料にはメタンを用いた。メタンは工業炉や高温化学反応改質炉などで使用される天然ガスの主成分である。最も構造が単純な炭化水素系燃料でもあることから、簡略化反応機構を考える上での基本燃料といえる。

2. 数値計算方法

2.1. 対向流拡散火炎 (一次元数値計算)

対向流拡散火炎の計算モデルを図1に示す。左ノズルからメタン ($T_f = 300$ K), 右ノズルから常温 ($T_o = 300$ K) または高温 ($T_o = 1300$ K) の窒素希釈空気をそれぞれ流出させ、よどみ面付近に対向流拡散火炎を形成させる。本研究では燃料および酸化剤の温度をそれぞれ T_f および T_o で表す。バーナ中心軸上 (x 軸) について数値計算を行い、定常解を求める。

計算コードには Kee らが開発した一次元層流伝播火炎解析用コード PREMIX[8]を Ju らが対向流拡散火炎用に改良したもの[9]を用いた。熱物性値、輸送係数の算出には CHEMIKIN II [10]を用いた。詳細反応機構には Warnatz の素反応機構[11] (以降 WC1) を用いた。WC1 は 17 化学種、39 素反応式から成る C1-chemistry である。簡略化反応機構には Mauss and Peters の 4 段反応 [12] (Peters 4-step mechanism, 以降 P4M) と Chelliah et al. の 5 段反応 [13] (Chelliah 5-step mechanism, 以降 C5M) を、また、比較のため代表的な総括多段反応である Jones and Lindstedt の総括 4 段反応機構 [14] (Jones 4-step mechanism, 以降 JM4) を取り上げた。特に P4M は、メタンの燃焼反応に対する最も基本的な簡略化反応機構であり、予混合火炎、拡散火炎いずれにも信頼性があるとされている。本研究では P4M を中心に論じる。P4M の 4 段反応は、CH₄, O₂, CO₂, CO, H, H₂, H₂O の 7 化学種 (本研究ではこれらを主要化学種と称する) に対するもので、以下に示される。



C5M は、CH₃ を主要化学種に加えて、PM-4 の R-PI を分解し、



としたもので、上記 2 つの反応と R-PII から R-PIV までの計 5 段反応からなる。一方、JM4 は、CH₄, O₂, CO₂, CO, H₂, H₂O の 6 化学種に対して、





から成る総括4段階反応である。R-JI, R-JIIの逆反応は考慮されず、各反応速度定数はアレニウス型で表され、頻度係数、反応指数、活性化エネルギーといったパラメータが定数で与えられている。反応パラメータの詳細は文献14を参照されたい。

本研究で詳細反応機構としてWC1を用いた理由は、P4MおよびC5MがWC1をstarting mechanismとして開発され、反応速度の算出に必要な素反応パラメータを全て含むためである。また、本研究では化学反応機構による違いに着目するため、輻射熱損失については考慮しない。

また、熱発生率分布について論じるため、熱発生率(Heat Release Rate, HRR)を以下のように定義する。

$$\text{HRR} = \sum_i h_i \cdot \omega_i \quad [\text{J} / \text{m}^3 \text{s}] \quad (1)$$

ここで、 h_i は化学種*i*のエンタルピー、 ω_i は化学種*i*の生成速度を表す。

2.2. 同軸噴流拡散火炎(二次元数値計算)

同軸噴流拡散火炎の計算モデルを図2に示す。燃料はメタン($T_f = 300 \text{ K}$ または $T_f = 900 \text{ K}$)、酸化剤は常温($T_o = 300 \text{ K}$)または高温($T_o = 1300 \text{ K}$)の窒素希釈空気である。計算時間を削減するため、軸対称条件として右側の領域のみについて計算を行い定常解を求めた。格子点数は約8000点であり、温度、濃度、速度変化の大きい燃料管出口近くには細かい格子を追加している。

計算コードには熱流体解析コードFLUENT 6.0.20を用いた。ただし、FLUENTでは簡略化反応計算を直接行うことができないため、3.1および3.2節で示す対向流拡散火炎で作成した反応速度計算コードをFLUENTのユーザー定義関数(UDF)として組み込んだ。対向流拡散火炎の計算コードはFortran言語で記述されているのに対して、FLUENT 6.0.20ではUDFとしてC言語のプログラムしか使用できないため、C言語コードを作成して間に介している。これにより対向流拡散火炎と同軸噴流拡散火炎との比較が容易となる。また、高温空気燃焼は一般に乱流拡散火炎の形態をとるため、乱流モデルとしてk-εモデルを用いた。本研究では選定する乱流モデルは本質的な問題とはならない。乱流パラメータには本数値計算とほぼ同形状の実験装置[15]によって求められた値を用いた。同軸噴流拡散火炎の計算では、主に対向流拡散火炎の数値計算結果より選択した改良Peters簡略化4段階反応(IP4M)をWC1と比較した。

3. 計算結果および考察

3.1. 簡略化反応計算の安定化および改良

簡略化は反応領域の反応動力学に注目して行われてい

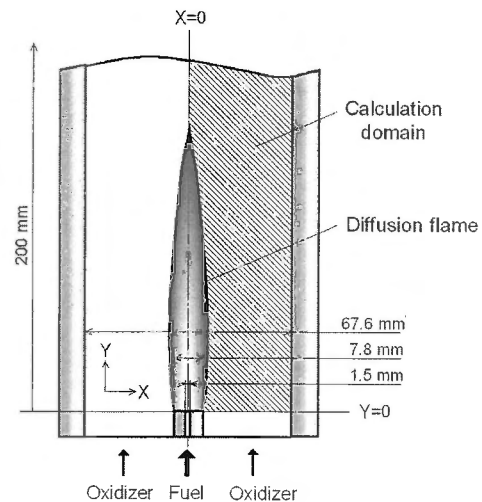


Fig. 2 Schematic diagram of axisymmetric jet diffusion flame.

る。非反応領域では準定常近似が成立し難くなるため、文献[12,13]のP4MおよびC5Mでは計算条件により収束が困難となった。そこで本研究では、工学的観点から計算を安定させるための主に二点の方策を施した。一点目は、主要化学種の制限条件、すなわち下限値の設定($1.0 \times 10^{-20} \text{ mol/cm}^3$)である。例えば、以下の式においてOHのモル濃度が過大なるのを防ぐとともに収束も早めることができる。

$$[\text{OH}] = \frac{k_{3b}[\text{H}_2\text{O}][\text{H}]}{k_{3f}[\text{H}_2]} \quad (\text{R-OH})$$

二点目は、P4MおよびC5Mにおける準定常近似式について重要な項の復活である。これらの改良からP4MおよびC5Mの語頭にImprovedの意味を加え、それぞれIP4M, IC5Mとする。表1は、IP4Mの準定常化学種におけるモル濃度の算出式を示している。表中の*k*はWC1の各素反応の速度定数であり、添え字の番号は文献11の素反応番号、*f*は正反応、*b*は逆反応を意味している。また、網掛箇所が本研究においてPetersの準定常式[12]から復活させた項である。

準定常近似を用いた反応機構の簡略化では、starting mechanismと準定常化学種が決まると準定常化学種の濃度計算式は自動的に定まり、準定常化学種の数の多元連立方程式となる。これらを数値的に解くことは計算時間を要するため、全体への寄与が比較的小さい素反応を削除して、多元連立方程式を解くことなく準定常化学種濃度が順次求まるようにする方法があり、Petersの準定常近似式[12]は基本的にそのようにして導かれている。しかし、計算条件によっては除かれた素反応項が重要な役割を果たす場合がある。本研究ではPetersの準定常近似式[12]から除かれていた素反応項の寄与を調べながら、計算時間を増大させることなく高温空気燃焼条件を含む広い条件範囲でも計算収束性が高かつstarting mechanismであるWC1による結果

Table 1 Improved steady state expressions of IP4M.

Species	Equation of quasi-steady-state concentration
[OH]	$\frac{k_{3b}[H_2O][H]}{k_{3r}[H_2]}$
[O]	$\frac{k_{1r}[O_2][H] + k_{2b}[OH][H] + k_{4r}[OH]^2}{k_{1b}[OH] + k_{2r}[H_2] + k_{4b}[H_2O] + k_{35r}[CH_3] + k_{39r}[CH_4]}$
[CH ₃]	$\frac{(k_{38r}[H] + k_{39r}[O] + k_{40r}[OH])[CH_4]}{(k_{33r} + k_{34r})[H] + k_{35r}[O] + k_{37r}[O_2] + k_{38b}[H_2] + k_{40b}[H_2O]}$
[CH ₂]	$\frac{k_{33r}[CH_3][H]}{k_{25r}[H] + (k_{27r} + k_{28r})[O_2] + k_{33b}[H_2]}$
[CH]	$\frac{k_{25r}[H][CH_2]}{k_{19r}[O_2] + k_{20r}[CO_2] + k_{25b}[H_2]}$
[CH ₂ O]	$\frac{(k_{35r}[O] + k_{37r}[O_2])[CH_3]}{k_{29r}[H] + k_{30r}[O] + k_{33r}[OH] + k_{32r}[M]}$
[CHO]	$\frac{(k_{19r}[O_2] + k_{20r}[CO_2])[CH] + k_{24b}[CO][H][M] + (k_{29r}[H] + k_{30r}[O] + k_{33r}[OH] + k_{32r}[M])[CH_2O]}{k_{22r}[H] + k_{22r}[OH] + k_{23r}[O_2] + k_{24r}[M]}$
[HO ₂]	$\frac{k_{5r}[H][O_2][M] + k_{14r}[H_2O_2][OH] + k_{23r}[CHO][O_2]}{(k_{8r} + k_{7r} + k_{9r})[H] + k_{8r}[OH] + k_{10r}[O] + k_{14b}[H_2O] + k_{5b}[M] + 2k_{11r}[HO_2]}$
[H ₂ O ₂]	$\frac{(k_{11r}[HO_2] + k_{14b}[H_2O])[HO_2] + k_{12r}[OH]^2[M]}{k_{12b}[M] + k_{13r}[H] + k_{14r}[OH]}$

 : restored term

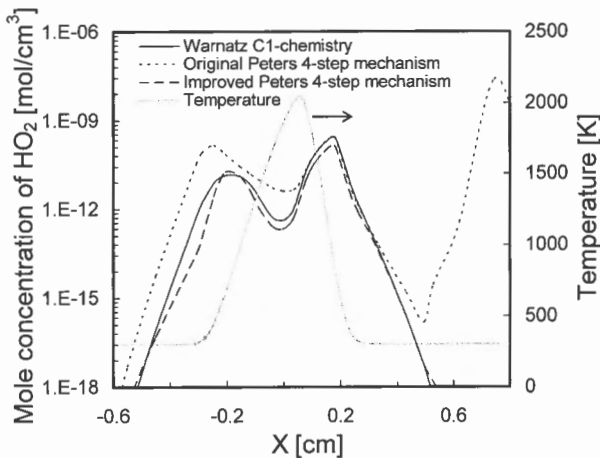


Fig. 3 Comparison between IP4M and P4M for mole concentration of HO₂ (T₀ = 300 K, O₂: 21 vol %).

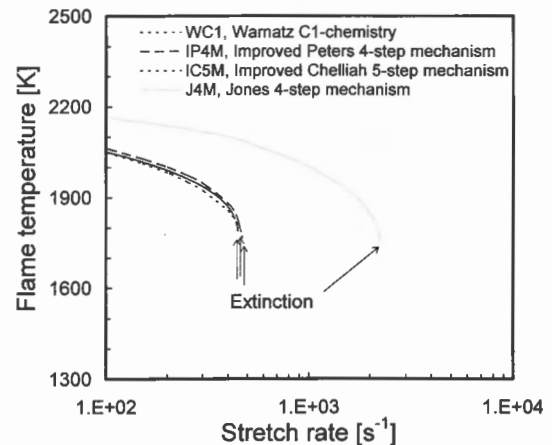


Fig. 4 Relationship between stretch rate and flame temperature (T₀ = 300 K, O₂: 21 vol %).

と近い結果が得られる準定常化学種濃度式 (表 1) を導出した。

3.2. 対向流拡散火炎の計算結果

図 3 は本研究における IP4M と P4M との HO₂ モル濃度分布の比較である。HO₂ のモル濃度の算出式では、P4M からさらに HO₂ 自身の消滅反応 (文献[11]の Warnatz 素反応式 11 番目 R-W11. 以降 Warnatz の反応式は R-W で表す) および H₂O₂ からの生成反応 R-W14 も考慮する必要がある。

その結果、計算上不安定となる非反応領域の低温領域について、HO₂ のモル濃度が大きく改善されたことが分かる。

図 4 に、酸化剤に常温空気 (T₀ = 300 K, O₂: 21 vol %) を用いたときの伸長率と火炎温度の関係を示す。伸長率の増大とともに火炎温度が徐々に低下していき、ある伸長率で消滅することが分かる。IP4M および IC5M の計算結果は、火炎温度および消滅限界について WC1 の計算結果とほとんど一致した。一方、J4M の計算結果については、WC1 のそれに比べて、火炎温度は少なくとも 100 K 以上高く、

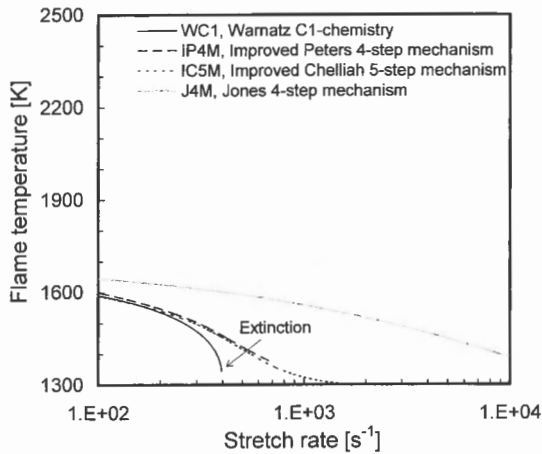


Fig. 5 Relationship between stretch rate and flame temperature ($T_0 = 1300 \text{ K}$, $\text{O}_2: 4 \text{ vol } \%$).

消炎時伸長率は数倍となった。この傾向については、Jones自身の論文[14]にも常温空気を用いた拡散火炎の消炎時伸長率が詳細反応による結果と大きく異なることが述べられ

ている。

図 5 に、酸化剤に低酸素高温空気 ($T_0 = 1300 \text{ K}$, $\text{O}_2: 4 \text{ vol } \%$) を用いたときの伸長率と火炎温度の関係を示す。消炎限界付近以外での IP4M および IC5M の計算結果は、WC1 のそれと一致した。しかし、酸化剤が常温空気 ($T_0 = 300 \text{ K}$, $\text{O}_2: 21 \text{ vol } \%$) の場合とは異なり、J4M だけでなく IP4M および IC5M についても、消炎限界に近づくとき WC1 と異なる結果となった。これは基本的に低酸素高温空気、かつ高伸長率という特殊環境での IP4M および IC5M の適用限界を意味する結果である。なお、図には示していないが、高伸長率で IP4M では火炎帯内で CO 濃度が依然として高い値を示したことから、特に反応式 R-PI が強い発熱を生じ、燃焼を維持しているものと考えられる。

ただし、実際の工業炉は消炎限界付近の局所伸長率となるような強乱流場ではないと考えられる。図 6 には、図 5 での安定燃焼時の伸長率 $a = 100 \text{ s}^{-1}$ における温度および化学種分布を示す。安定燃焼時では、IP4M および IC5M の計算結果は、温度分布および化学種濃度について WC1 のそれと良好な一致をみている。

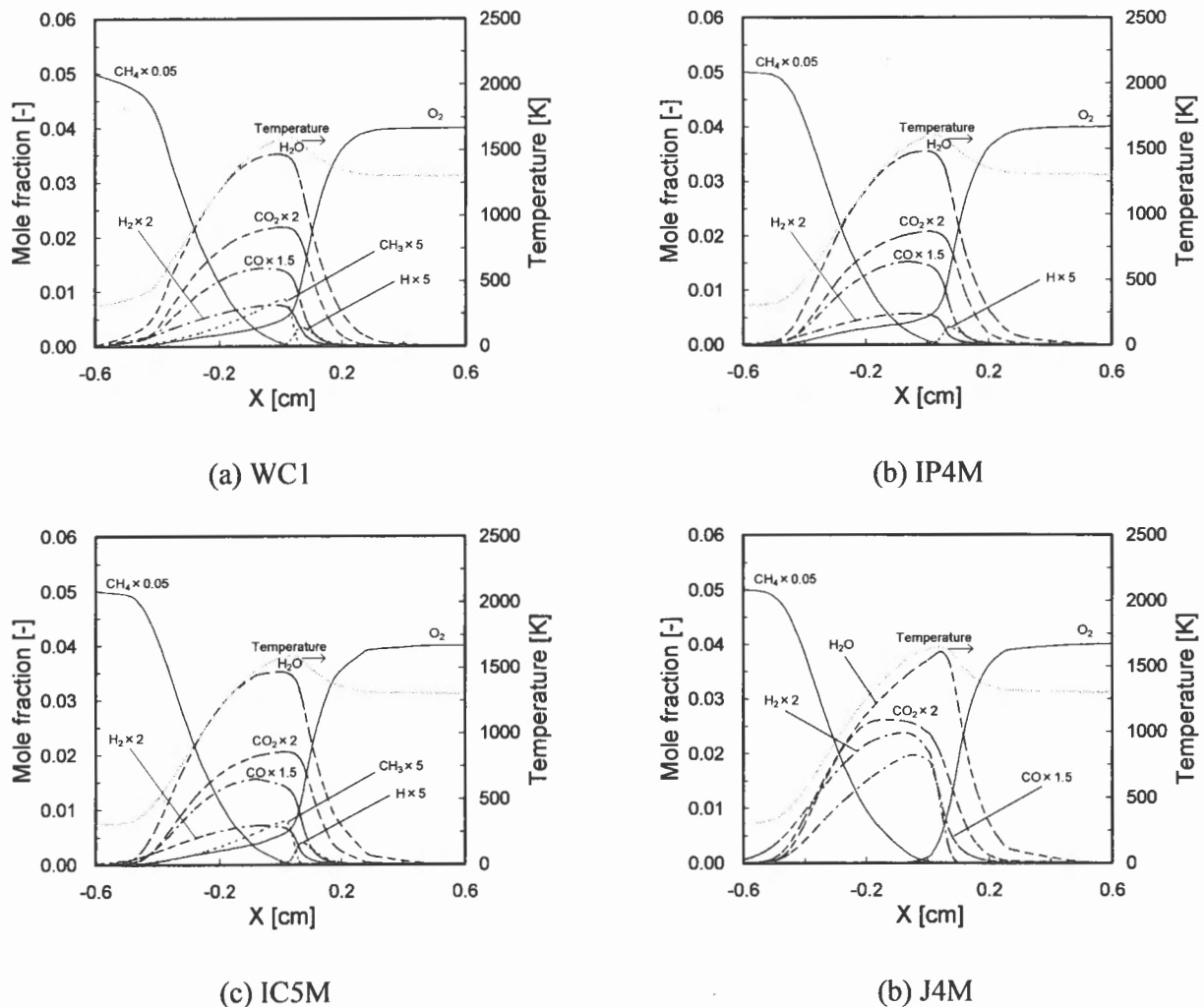


Fig. 6 Mole fraction of major species and flame temperature ($T_0 = 1300 \text{ K}$, $\text{O}_2: 4 \text{ vol } \%$).

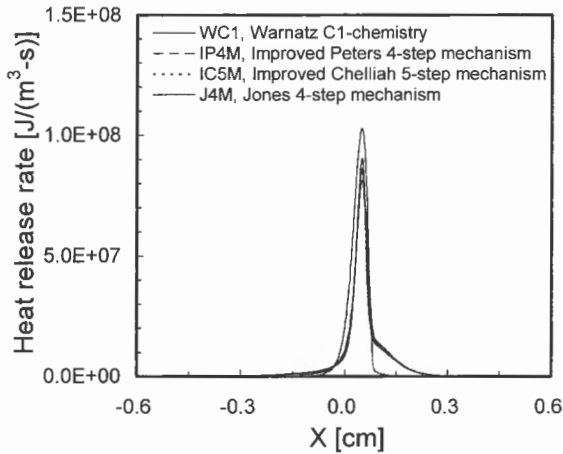


Fig. 7 Comparison of the heat release rate profiles ($T_0 = 1300$ K, $O_2 = 4$ vol %).

熱発生率分布については、簡略化反応機構 (IP4M, IC5M) と総括多段反応機構 (J4M) の計算結果に大きな違いが生じた。図7は、図6の条件における熱発生率分布の比較である。図7では判別しにくい、IP4M および IC5M は、熱発生率分布についても WC1 と一致している。一方、J4M については、詳細反応機構および簡略化反応機構で現れた酸化剤側の緩やかな発熱領域が存在しなかった。この主な原因は、拡散が大きい H ラジカルが関わる素反応が考慮されていないためと考えられる。

このように、対向流拡散火炎に対する一次元数値計算について、IP4M および IC5M は、特に低酸素高温空気 ($T_0 = 1300$ K, $O_2 = 4$ vol %) の燃焼における消炎伸長率付近で違いが生じる以外は、高温空気燃焼および通常燃焼共に火炎温度、化学種の濃度、熱発生率分布の計算結果は WC1 によるそれと良好に一致した。一方、J4M は、WC1 と比べて火炎温度が高く消炎限界はかなり大きくなり、熱発生率分布については形状も大きく異なった。次節以降の同軸噴流拡散火炎に対する二次元数値計算では、計算時間を考慮し、IP4M を簡略化反応機構として用いることとした。

3.3. 同軸噴流層流拡散火炎における簡略化反応機構の計算安定化

計算次元の増加に伴い、簡略化反応機構に特有な計算不安定要素が強くなる[5]ため収束が困難となる。本研究においても同様であった。図8にその例を示す。これは酸化剤に常温空気 ($T_0 = 300$ K, $O_2 = 21$ vol %) を用いたときの IP4M による計算結果である。図8(a)を初期解として計算を進行させていくと、図8(b)のように反応領域下流の酸化剤側が高温となり、H ラジカルが異常発生する。このように収束が困難となるのは、非反応領域において本来起こらない反応が生じるためである。

このメカニズムは次のように説明される。H ラジカルの

生成は、反応式 R-PIV ($O_2 + 3H_2 \leftrightarrow 2H + 2H_2O$) の発熱によって反応領域の酸化剤側で起こる。H ラジカルの拡散係数は大きいので広範囲に拡散する。反応領域の燃料側では、反応式 R-P I ($CH_4 + 2H + H_2O \leftrightarrow CO + 4H_2$) が R-PIV に追従した反応速度を持つ。一方、反応領域の酸化剤側では、反応式 R-P III ($H + H + M \leftrightarrow H_2 + M$) によって H ラジカルを消費し、発熱する。反応領域の酸化剤側では H ラジカルがある程度残ると、発熱による温度上昇と H ラジカルの存在により、R-PIV が非反応領域の酸化剤側で大きな反応速度を持つことになる。

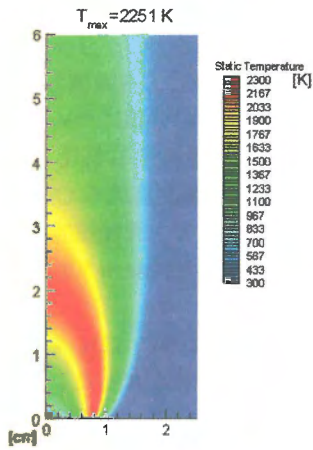
以上のことから、IP4M を用いた二次元数値計算で安定した計算が可能となるのは、(i) 空気比 1 以下 (燃料過剰) であること、反応式 R-PIV を支配する文献[11]の WC1 の素反応式 R-W1 ($O_2 + H \leftrightarrow OH + O$) が適切な反応速度の範囲内となるために、(ii) 短い滞在時間、(iii) 低 O_2 濃度、(iv) 低 H 濃度、(v) 低火炎温度といった条件が考えられ、これらのいずれかが十分に満たされれば計算は安定すると考えられる。このことから考えると、対向流拡散火炎において IP4M による収束解が得られたのは、ノズルから噴出させた反応物質が短時間に全て高温の反応領域に流入すること、すなわち滞在時間が短いことが最大の原因といえる。また、(iii) ~ (v) は高温空気燃焼の条件でもあるため、IP4M は高温空気燃焼計算に適用可能であると予想される。(i) 空気比 1 以下では通常燃焼の温度・濃度条件でもいわゆる under ventilated flame の収束解が得られた。しかし、空気 1 以上の条件で収束解を得るためには、何らかの処置が必要である。

本研究では、反応領域と非反応領域を区別する監視条件および制限条件を与える方法を用いることとした。すなわち、以下の式 (2) または (3) のいずれか一方でも満たす領域を反応領域とし、それ以外の非反応領域において文献[11]の素反応式 R-W1 および R-W5 ($O_2 + H + M \leftrightarrow HO_2 + M$) の反応速度をゼロとした。

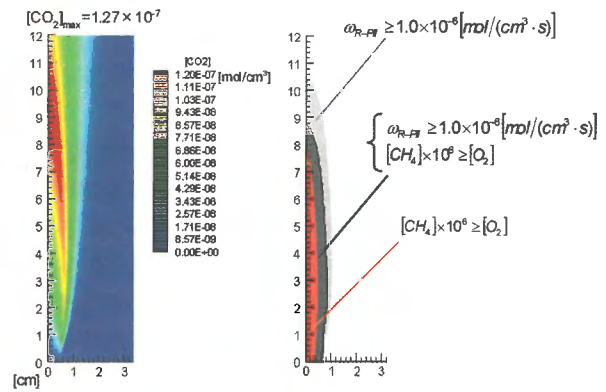
$$\omega_{R-P II} \geq 1.0 \times 10^{-6} \text{ mol/cm}^3 \cdot \text{s} \quad (2)$$

$$[CH_4] \times 10^6 \geq [O_2] \quad (3)$$

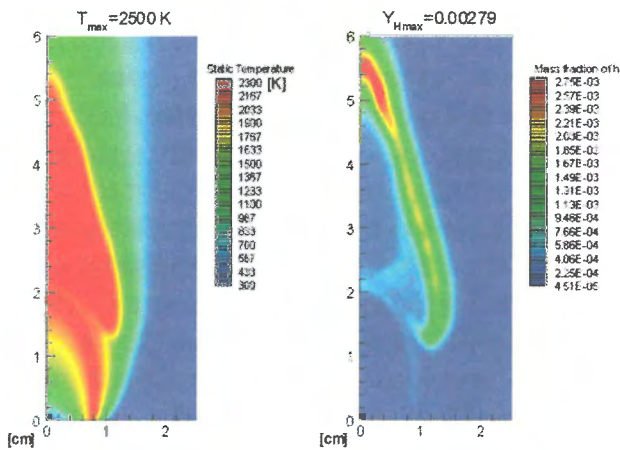
ここで、 $\omega_{R-P II}$ は IP4M における反応式 R-P II ($CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$) の反応速度、 $[CH_4]$ および $[O_2]$ はそれぞれ CH_4 , O_2 のモル濃度を表す。本方法では式 (2) によって反応領域の大部分が包含されることになる。式 (2) の導入は濃度変化が比較的安定している C 原子を含む化学種の濃度または反応速度を監視することが望ましく、その中でも CO_2 の生成速度に着目することが最適と考えたためである。また式 (3) を加えたのは、燃料管出口のごく近傍の火炎が形成され始める領域を非反応領域とみなしてしまうことによる火炎リフト増大など不適切な結果を防ぐためである。監視条件による反応領域への影響が無いよう、しきい値を変化させた計算を広範に試みた。図9にはその一例を示してある。図9(a)と(b)は、入口流速などの境界条件は同じであり、



(a) Initial temperature profile for computation

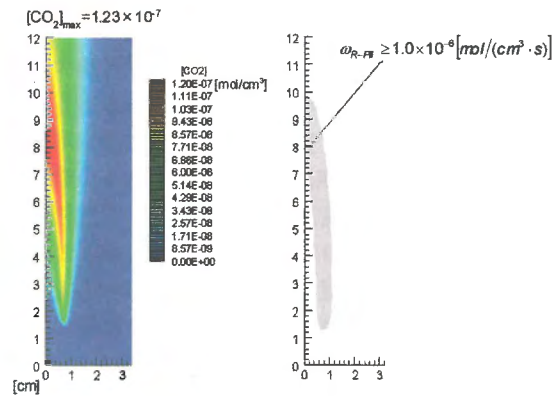


(a) Definition of the reaction region based on either $\omega_{R-PII} \geq 1.0 \times 10^{-6} \text{ mol/cm}^3 \cdot \text{s}$ or $[\text{CH}_4] \times 10^6 \geq [\text{O}_2]$



Temperature Mass fraction of H

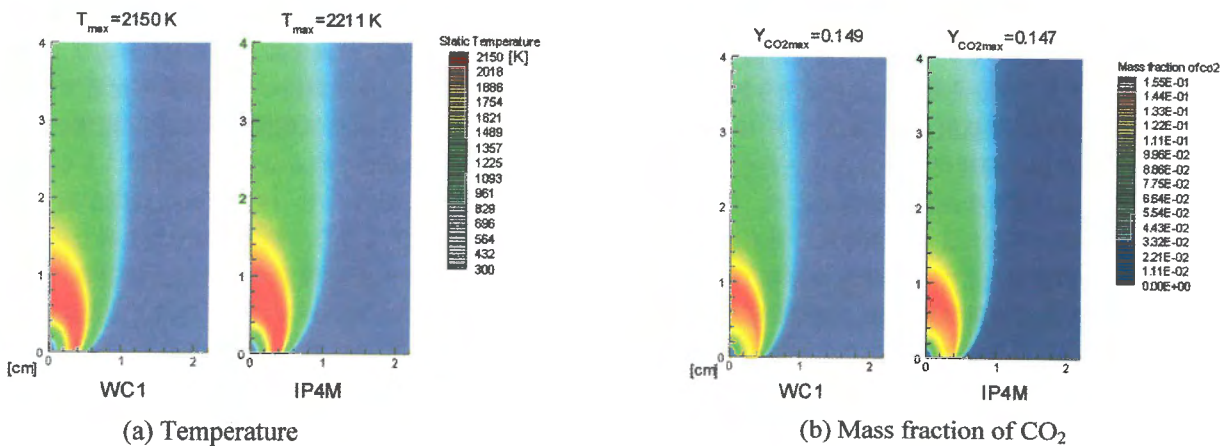
(b) Temperature and H profiles in progress of computation



(b) Definition of the reaction region based on $\omega_{R-PII} \geq 1.0 \times 10^{-6} \text{ mol/cm}^3 \cdot \text{s}$

Fig. 8 Examples of the peculiar unstable computation using IP4M.

Fig. 9 Examples of monitoring condition of reaction zones for utilizing IP4M ($U_f = 10 \text{ m/s}$, $U_o = 4 \text{ m/s}$, $T_f = 900 \text{ K}$, $T_o = 1300 \text{ K}$, $\text{O}_2 = 4 \text{ vol \%}$).



(a) Temperature

(b) Mass fraction of CO₂

Fig. 10 Numerical results of axisymmetric jet diffusion flames ($U_f = 0.4 \text{ m/s}$, $U_o = 0.1 \text{ m/s}$, $T_f = 300 \text{ K}$, $T_o = 300 \text{ K}$, $\text{O}_2 = 21 \text{ vol \%}$).

監視条件が異なっている。図 9(a) は WC1 と良好な一致を示した収束解である。図 9(b) は、本来はすでに反応領域である燃料管出口付近においても素反応式 R-W1 および R-W5 の反応速度をゼロとしたために、火炎が大きくりフトするという計算結果である。

このように反応領域と非反応領域を区別する監視条件、および非反応領域での素反応速度の制限条件を適用することにより、広い条件範囲において IP4M を用いた計算が可能となった。図 10 は酸化剤として常温空気 ($T_0 = 300$ K, O_2 : 21 vol %) を用いた計算結果であるが、このような二次元問題に対しても、WC1 による計算結果と良好な一致を示す IP4M による収束解を得ることができた。

3.4. 同軸噴流乱流拡散火炎の計算結果

図 11 に、酸化剤として低酸素高温空気 ($T_0=1300$ K, O_2 : 4 vol %) を用いた場合の計算結果を示す。熱発生率分布については、総括多段反応機構との違いが対向流拡散火炎と同様に顕著に現れたため、J4M による計算結果も示した。燃料のメタンは噴出温度 900 K、流速 10 m/s、酸化剤の希釈高温空気は噴出温度 1300 K、流速 4 m/s である。燃料のメタンは、計算領域上流で高温の酸化剤によって燃料バーナ出口 ($Y = 0$ cm) までに 900 K に加熱されるものとした。これはほぼ同形状の実験装置による結果[15]に基づく。図 11 より IP4M による計算結果は WC1 のそれと良好に一致した。燃料管出口付近でやや異なる点が見られるのは、 CO_2 生成反応 R-PII ($CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$) が遅く反応領域のやや下流部に位置することが原因であろう。なお、図 11(d) の熱発生率分布では、高温空気燃焼の同軸噴流乱流拡散火炎の WC1 と IP4M による計算結果は、J4M には現れない発熱領域が酸化剤側に広がる様子がいずれも良く示されている。

図 12 に、簡略化反応機構と総括多段反応機構のもう一つの違いについて示す。これは、図 11 の計算条件において、酸化剤流速を 4.5 m/s へと増大させたときの計算結果である。IP4M では、浮き上がり高さは多少異なるものの WC1 と同様に火炎の浮き上がりが観察されたが、J4M では消炎限界が遙かに大きいという性質のため、図中に示すように火炎がバーナリップから離れることは全く無かった。

以上より、同軸噴流乱流拡散火炎においても IP4M を高温空気燃焼の数値解析に適用可能であることが分かった。また簡略化反応機構は総括多段反応機構に比べ、詳細反応機構による発熱領域の構造とよく一致することも確認された。すなわち、炉内計算などで発熱領域の分布 (熱発生率分布) が重要となる高温空気燃焼では、詳細反応機構とよく一致する計算結果が得られる簡略化反応機構の重要性は高いと言えよう。

3.5. 計算時間の比較

表 2 に一次元対向流拡散火炎および同軸噴流乱流拡散火炎の計算時間の比較を示す。表 2(a) は初期温度分布を異な

る 4 つの場合に変化させて計算を行った結果である。最終的なグリッド数に差があるが、グリッド数が計算時間に与える影響はほとんどないことを確認してある。計算時間、すなわち計算コスト削減の効果について論じるため、対向流拡散火炎では N が関係する反応を除いた GRI-Mech 3.0[16] (36 化学種, 219 素反応式の C3-chemistry) を用いた計算結果も示した。ただし、同軸噴流乱流拡散火炎では計算時間の制約のために GRI-Mech 3.0 を用いた計算は行っていない。

IP4M による計算時間は WC1 に比べ 1/3 程度、GRI-Mech 3.0 に比べおよそ 1/15 程度となった。一般に燃焼数値解析における計算時間は化学種数の影響を最も受け[17]、化学種数の 2 ~ 3 乗に比例する[18]と言われている。本研究においても、一次元、および二次元数値計算ともに同様の傾向を示すため、IP4M は二次元数値計算においても GRI-Mech 3.0 に比べ一次元数値計算と同様の計算コスト削減が見込まれる。また表 2(b) において、IP4M と J4M の iteration に対する CPU 時間はそれほど変わらないことから、簡略化反応計算のルーチンに要する時間は全体の割合からみれば大きくないと考えられる。したがって以下のことが推定される。すなわち、本研究で準定常近似式において復活させた項による計算時間増加は、計算全体からみればほとんど無視できること、また、GRI-Mech 3.0 のようなさらに大規模な詳細反応を starting mechanism とする簡略化反応が用いられた場合にも、計算時間に大きな違いはなく、むしろより信頼性の高い簡略化反応機構として利用できる可能性があることである。

4. 結言

低酸素高温空気燃焼における数値計算への簡略化反応機構の適用を目指して、簡略化反応機構に特有な問題に対処し、一次元および二次元数値計算に対するメタン-空気簡略化反応機構の適用性を調べた。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 対向流拡散火炎に対する一次元数値計算において、主に準定常近似式に改良を加えた IP4M および IC5M は、特に低酸素高温空気燃焼の消炎伸長率付近で違いが生じる以外は、高温空気燃焼および通常燃焼の両方で、starting mechanism である WC1 詳細反応による計算結果とよく一致した。一方、J4M は火炎温度が高く消炎限界はかなり大きくなり、熱発生率分布も異なった。
- (2) 同軸噴流拡散火炎に対する二次元数値計算において、IP4M を熱流体解析コードに組み込み、非反応領域に対する適切な監視条件および制限条件を加えることにより低酸素高温空気燃焼における収束解を得ることができた。また IP4M による計算結果は WC1 による計算結果と良好な一致を得た。
- (3) IP4M による計算時間は、一次元対向流拡散火炎では WC1 の 1/3、N が関係する反応を除いた GRI-Mech 3.0

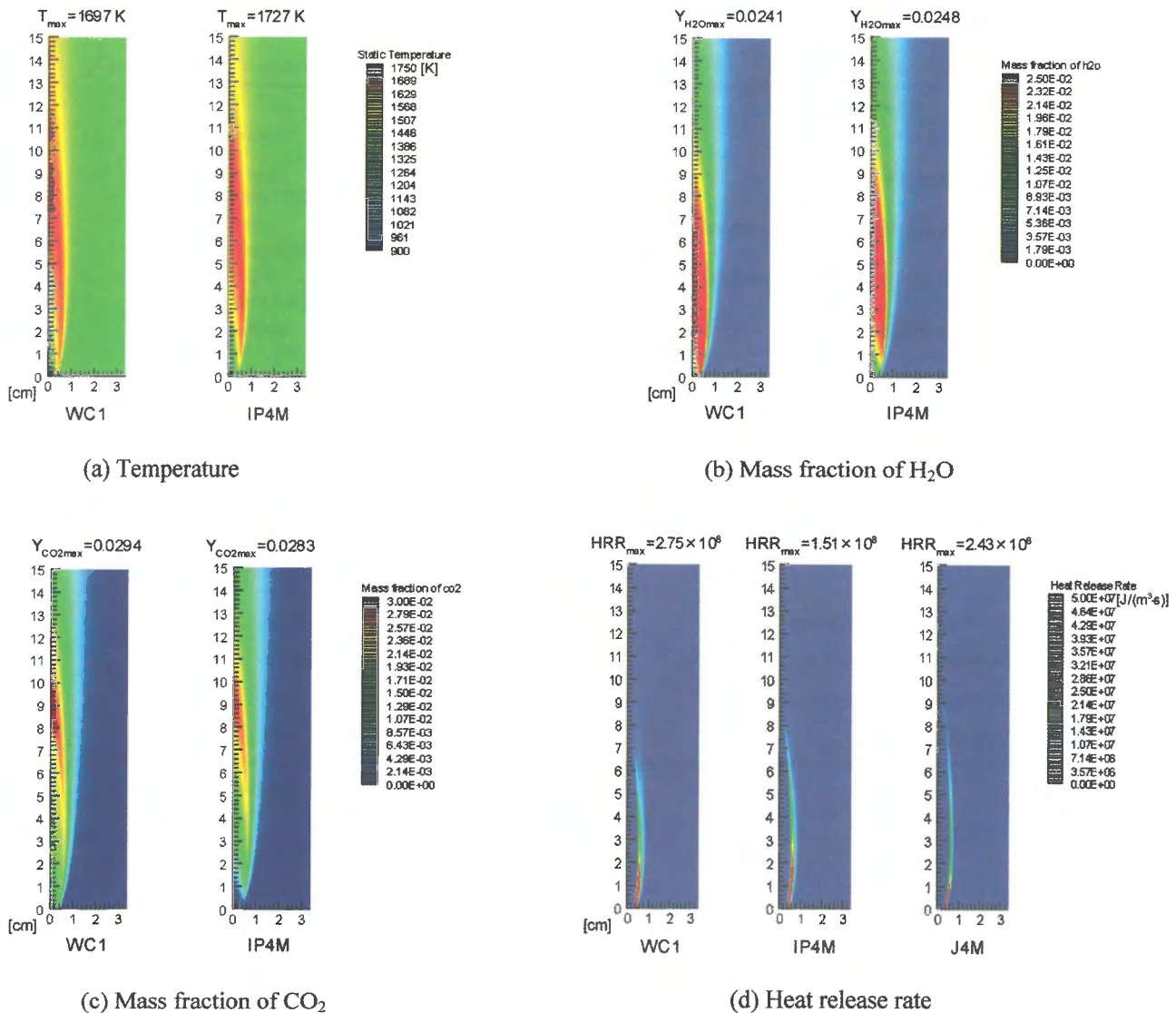


Fig. 11 Numerical results of axisymmetric turbulent jet diffusion flame ($U_f = 10$ m/s, $U_o = 4$ m/s, $T_f = 900$ K, $T_o = 1300$ K, $O_2 = 4$ vol %).

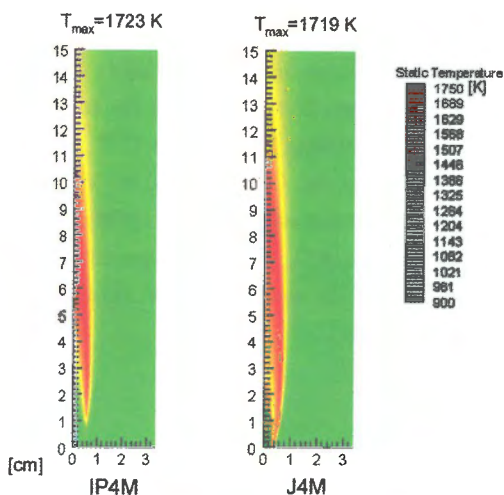


Fig. 12 Temperature profiles of axisymmetric turbulent jet diffusion flame ($U_f = 10$ m/s, $U_o = 4.5$ m/s, $T_f = 900$ K, $T_o = 1300$ K, $O_2 = 4$ vol %).

の 1/15 程度となった。二次元数値計算においても同程度の計算コスト削減が見込まれ、工学的観点からも有用性が高い。

謝辞

本研究は、NEDO から (財) 省エネルギーセンターが委託されて実施した「高温空気燃焼制御技術研究開発」プロジェクトの一環として行ったもので、ここに感謝の意を表す。

References

1. Katsuki, M., and Hasegawa, T., *Proc. Combust. Inst.* 27: 3135-3146 (1998).
2. Niioka, T., *Fifth ASME/JSME Joint Thermal Engineering*

Table 2 Comparisons of the computational time.

(a) Counterflow diffusion flame ($T_0=1300$ K, O_2 : 21 % vol., CH_4 : 20 vol %, stretch rate= 1000 s⁻¹)

Reaction model	Initial temperature profile			
	case 1	case 2	case 3	case 4
WC1, Warnatz C1-chemistry	166 s (191 points)	90 s (202 points)	288 s (202 points)	1044 s (297 points)
IP4M, Improved Peters 4-step mechanism	65 s (124 points)	32 s (131 points)	91 s (135 points)	256 s (234 points)
IC5M, Improved Chelliah 5-step mechanism	99 s (143 points)	61 s (138 points)	100 s (138 points)	322 s (242 points)
GRI-Mech 3.0 C3-chemistry	381 s (228 points)	461 s (227 points)	1390 s (221 points)	4953 s (322 points)

CPU: Intel pentium 4, 1.80 GHz.

Upper stand: CPU time to convergence.

Lower stand, parentheses: Final number of grids.

(b) Axisymmetric turbulent jet diffusion flame ($U_f=10$ m/s, $U_o=4$ m/s, $T_f=900$ K, $T_0=1300$ K, O_2 : 4 vol %)

Reaction model	CPU time /iteration	CPU time to convergence
WC1, Warnatz C1-chemistry	15.588 s	108 hr
IP4M, Improved Peters 4-step mechanism	2.272 s	32 hr
J4M, Jones 4-step mechanism	2.030 s	17 hr
Overall 1 step	1.624 s	8.6 hr

CPU : Intel Pentium 4, 3.06 GHz.

Conference, AJTE99-6301, 1999.

- Tsuji, H., Gupta, A.K., Hasegawa, T., Katsuki, M., Kishimoto, K., and Morita, M., *High Temperature Air Combustion*, CRC Press, Boca Raton, Florida, 2003.
- New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO), *Annual Reports of the Research and Development on Advanced High-Temperature Air Combustion Technology (HiCOT)*, NEDO, 2002, pp.1-7.
- Fiorina, B., Gicquel, O., Carpentier, S., and Darabiha, N., *Proceedings of the Third Mediterranean Combustion Symposium*, 2003, pp.897-906.
- Schwer, D. A., Lu, P., and Green Jr, W. H., *Combust. Flame* 133: 451-465 (2003).
- Sung, C. J., Law, C. K., and Chen, J.-Y., *Proc. Combust. Inst.* 27: 295-304 (1988).
- Kee, R. J., Grcar, J. F., Smooke, M. D., and Miller, J. A., *Sandia Rep.*, SAND85-8240, 1985.
- Ju, Y., Guo, H., Maruta, K., and Liu, F., *J. Fluid Mech.* 342: 315-334 (1997).
- Kee, R. J., Rupley, F. M., and Miller, J. A., *Sandia Rep.*, SAND89-8009, 1989.
- Peters, N., *Reduced Kinetic Mechanisms for Applications in Combustion Systems*, Springer-Verlag, 1993, pp.3-14.
- Mauss, F., and Peters, N., *Reduced Kinetic Mechanisms for Applications in Combustion Systems*, Springer-Verlag, 1993, pp.58-75.
- Chelliah, H. K., Seshadri, K., and Law, C. K., *Reduced Kinetic Mechanisms for Applications in Combustion Systems*, Springer-Verlag, 1993, pp.224-240.
- Jones, W. P., and Lindstedt, R. P., *Combust. Sci. Technol.* 61: 31-49 (1988).
- Kobayashi, H., Oono, K., Cho, E.-S., Hagiwara, H., Ogami, Y., and Niioka, T., *The Reports of the Institute of Fluid Science, Tohoku University* 16: 16-27 (2004).
- Smith, G. P., Golden, D. M., Frenklach, M., Moriarty, N. W., Eiteneer, B., Goldenberg, M., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Song, S., Gardiner, W. C., Lissianski, V. V., and Qin, Z., <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>, (1999).
- Peters, N., and Kee, R. J., *Combust. Flame* 68: 17-29 (1987).
- Schwer, D. A., Lu, P., and Green Jr, W. H., *Combust. Flame* 133: 451-465 (2003).