

## ■原著論文/ORIGINAL PAPER■

マイクロチャンネル内メタン・空気予混合火炎における金属壁面の化学的効果  
Chemical Effect of Metal Wall Surface on a Methane-Air Premixed Flame in Micro Channels齋木 悠<sup>1\*</sup>・鈴木 雄二<sup>2</sup>SAIKI, Yu<sup>1\*</sup> and SUZUKI, Yuji<sup>2</sup><sup>1</sup> 名古屋工業大学 大学院工学研究科 〒466-8555 愛知県名古屋市昭和区御器所町  
Nagoya Institute of Technology, Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya, Aichi 466-8555, Japan<sup>2</sup> 東京大学 大学院工学系研究科 〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1  
The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

2013年6月4日受付; 2013年9月21日受理/Received 4 June, 2013; Accepted 21 September, 2013

**Abstract** : To give an insight into wall material effect on the chemical quenching phenomena, a methane-air premixed flame formed in narrow quartz channels with metal wall surface is investigated. In the present study, stainless-steel321 (SUS321) and Inconel600 are chosen as the surface materials for high oxidation/heat resistivity. SUS321 and Inconel600 thin films ~150 nm in thickness are deposited on polished quartz substrates by using vacuum arc plasma gun to establish equivalent thermal boundary condition for different wall surface reactions. OH-PLIF and numerical simulation with detailed reaction mechanisms are employed to examine interaction between the gas-phase and surface reactions. When the wall temperature is higher than 1073 K, the wall chemical effect starts to take over the thermal effect. It is shown through the PLIF measurements that OH\* mole fraction near the SUS321 and Inconel600 surfaces becomes significantly lower than that near the quartz surface. By using a radical quenching model, the initial sticking coefficient  $S_0$  associated with radical adsorption is evaluated at the metal and the quartz surfaces. It is found that  $S_0$  are estimated to be 0.1 and 0.01 for the metal and the quartz surfaces. A series of numerical simulation is also made to examine the effect of  $S_0$  on the methane flame in micro channels. It is found that the wall chemical effect becomes of great importance for the gross flame characteristics such as the initiation temperature of the chain reaction and the heat release rate.

**Key Words** : Micro-scale combustion, Wall chemical effect, Metal surface, Thin film technique, Planar laser induced fluorescence, Numerical simulation

## 1. 緒言

近年、高性能な携帯情報通信端末や小型医療・福祉機器などの進展に伴い、2次電池の容量不足が顕在化し、高エネルギー密度のポータブル電源が注目されている。炭化水素燃料は、リチウム二次電池と比較して数十倍のエネルギー密度を有しているため[1]、エネルギー変換効率が5%程度であっても、より長時間持続可能なエネルギー源を構築できる可能性がある。マイクロスケールにおける化学エネルギーから電気的エネルギーへの変換方法としては様々なものが提案されているが、燃料電池のための改質も含めて多くの場合にマイクロスケールにおける燃焼が必要となる[2-12]。しかしながら、マイクロ燃焼では、燃焼器の体積に比べて壁面の面積が相対的に大きくなるため、壁面の

熱的・化学的消炎効果を見逃さず、安定燃焼の達成が難しい[13-15]。

熱的効果に関しては、壁への熱損失による可燃限界の変化や燃焼不安定について詳細に検討されている。例えば、Maruta et al. [16,17]は、流れ方向に温度勾配を課した細管において、振動火炎の発生を報告している。著者らは[15]、位相ロック OH-PLIF により、マイクロ平板チャンネル内振動火炎を計測し、時空間的な火炎の様相を温度場も含めて明らかにした。

一方、化学的効果は、壁面でのラジカル種の表面反応に起因する現象である。Vlachos et al. [18-22]は、壁面でのラジカルの吸着・再結合・脱離を考慮した反応モデルを提案し、着火・消炎限界に及ぼす影響を数値計算により検討した。Miesse et al. [13]は、壁面温度が高い条件では、壁面材質に応じて消炎距離が10倍以上変化することを明らかにした。また、Kim et al. [14]は、壁面のアニーリングにより

\* Corresponding author. E-mail: saiki.yu@nitech.ac.jp

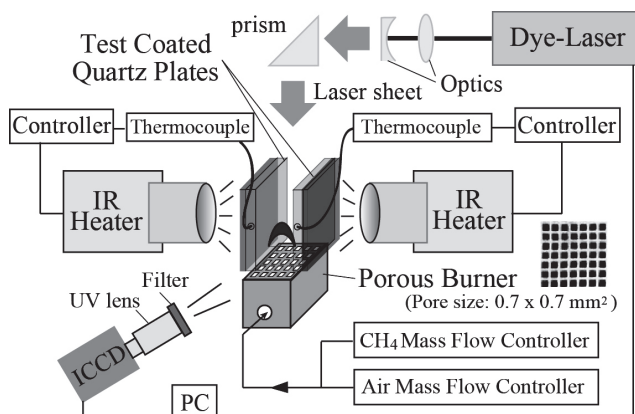


Fig.1 Schematic of experimental setup for OH-PLIF of a methane-air premixed planar channel flame.

消炎距離を顕著に低減できることを示した。これらの結果は、壁面の化学的効果の重要性を示唆しているが、異なる熱伝導率を持つバルク材のプレートが用いられており、壁面材質だけでなく熱的境界条件も変化していると推測される。また、壁面近傍における火炎構造の定量的な情報は極めて少なく、壁面材質を考慮した化学的効果の反応モデルの提案もこれまでにない。

以上を踏まえ、著者らは、石英基板上に原子層堆積法 (ALD) を用いて均一なアルミナ薄膜を形成し、熱的境界条件を一定に保った状態で、メタン・空気予混合火炎に対する石英 / アルミナ壁面の化学的効果を OH-PLIF により定量的に評価した[23]。その結果、従来不活性と認識されている石英壁面には有為な化学的効果が発現し、一方で、ALD で形成した表面欠陥の少ないアルミナ壁面はほぼ不活性とみなしてよいことが明らかになった。

そこで本研究では、実用燃焼器で多用されるステンレスおよびインコネルの薄膜を表面に有する薄型石英チャンネル内のメタン・空気予混合火炎を対象とし、OH-PLIF および詳細素反応機構を考慮した数値解析を用いて、等価な熱的境界条件の下で、化学的効果の定量的な計測とモデリングを行うことを目的とした。また、得られた表面反応モデルに基づき、金属・石英壁面の化学的効果が、マイクロチャンネル内火炎の燃焼特性に与える影響を検討した。

## 2. 実験および数値解析方法

### 2.1. 実験手法

図 1 に、実験装置の概略図[23]を示す。2 枚の合成石英板 ( $20 \times 20 \times 5 \text{ mm}^3$ ) を 3 mm の間隔を設けて平行に配置し、ポラスバーナー (細孔サイズ  $0.7 \times 0.7 \text{ mm}^2$ ) を用いて、石英板間にメタン・空気予混合火炎を形成した。混合気の流量は 800 sccm として、当量比  $\phi$  は 0.95 に設定した。石英板は、2 mm 厚の Nb をドーブした黒色石英板を裏面に融着させ、背面から赤外線ヒーター (GVL298, サーモ理工) で加熱される。壁面温度  $T_w$  は、石英板表面から 1.5 mm の

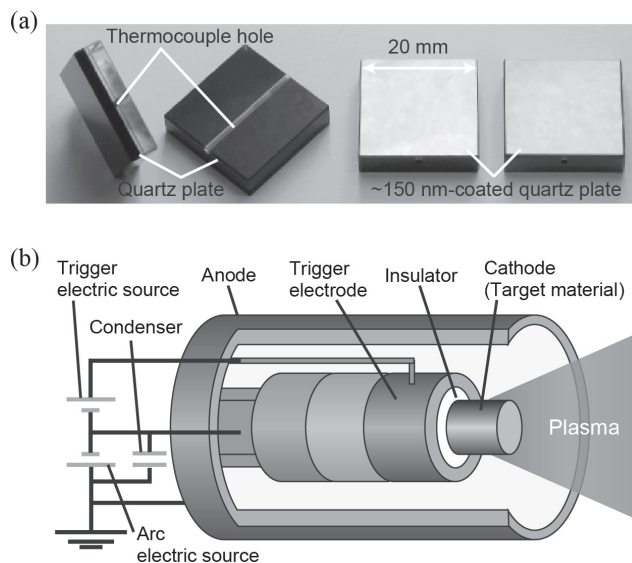


Fig.2 (a) Test coated quartz plate and (b) Principle of vacuum arc plasma gun.

位置に設けた小孔内で K-type 熱電対により測定し、ヒーターの出力を調整することで所定の温度に保った。なお、過去の実験[10]において、熱電対の測定値と放射温度計により取得した壁表面の温度は、15 K の範囲内で良い一致を示すことを確認している。以後、座標系は、 $x$  および  $y$  をそれぞれ流れ方向および壁垂直方向とした。

本研究では、表面の金属材料として、高い耐熱性・耐酸化性を有する SUS321 および Inconel600 を選択し、図 2a に示す 3 mm 厚の石英板に蒸着した。金属の成膜には、様々な金属材料の蒸着が可能である真空アークプラズマガン (ARL-300, ULVAC) を使用した。図 2b に、真空アークプラズマガンの概念図を示す。円柱のカソードおよび円筒のアノードが同軸上に配置され、基板は軸方向に対して垂直に離して設置される。作動は、真空チャンパ内で行い、トリガ電極より沿面放電により電子を発生させてトリガをかけ、外部のコンデンサに充填させた電荷をカソード電極に放電させて、カソード材 (ターゲット材) をプラズマにし、基板に飛来・付着させる。真空アークプラズマガンは、様々な種類の金属 / 合金に対し、純度・密着性が高く、表面粗さの少ない薄膜の形成を可能とする。ここで、金属薄膜の厚さは、約 150 nm であり、全ての表面において熱的境界条件は等価とみなせる。

壁面近傍の火炎構造の評価には、OH-PLIF を使用した。OH\* の励起光源には、Nd: YAG 第二高調波励起の色素レーザー (Lambda Physics, SCANmate2C, Rhodamine 6G) を用いた。レーザービーム光は、円筒面レンズおよび球面レンズにより 0.3 mm 厚のシート光に成形した後、石英板間に導いた。励起線には、OH\* 蛍光の温度依存性が弱く、強い蛍光強度が得られる  $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi (1, 0)$  バンドの  $Q_1 (8)$  (283.553 nm) を選択した。このとき、火炎温度  $T = 1000 \sim 2000 \text{ K}$  において、OH\* 蛍光強度および OH\* モル分率の間には 10% の範囲内

Table 1 Elemental reaction for radical quenching [22].

Adsorption	Recombination & Desorption
1. $\text{CH}_3 + \text{B}(\text{s}) \rightarrow \text{CH}_3(\text{s})$	5. $\text{CH}_3(\text{s}) + \text{H}(\text{s}) \rightarrow \text{CH}_4 + 2\text{B}(\text{s})$
2. $\text{H} + \text{B}(\text{s}) \rightarrow \text{H}(\text{s})$	6. $2\text{CH}_3(\text{s}) \rightarrow \text{C}_2\text{H}_6 + 2\text{B}(\text{s})$
3. $\text{O} + \text{B}(\text{s}) \rightarrow \text{O}(\text{s})$	7. $2\text{H}(\text{s}) \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{B}(\text{s})$
4. $\text{OH} + \text{B}(\text{s}) \rightarrow \text{OH}(\text{s})$	8. $2\text{O}(\text{s}) \rightarrow \text{O}_2 + 2\text{B}(\text{s})$
(B(s) denotes bare sites.)	9. $\text{H}(\text{s}) + \text{OH}(\text{s}) \rightarrow \text{H}_2\text{O} + 2\text{B}(\text{s})$
	10. $2\text{OH}(\text{s}) \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}(\text{s}) + \text{B}(\text{s})$

での線形性が確保される[24]. なお, レーザーシート光の空間強度分布の補正は, 励起レーザー強度に対するアセトン蛍光強度の線形性を考慮し, acetone-PLIF により行った[25]. PLIF 画像は, 反射光除去のための干渉フィルター ( $\lambda = 307 \pm 10 \text{ nm}$ ) を装着した UV レンズを通して, ICCD カメラ (LaVision, Flamestar2  $576 \times 384 \text{ pixel}^2$ ) により取得し, 空間解像度は,  $24.5 \times 24.5 \mu\text{m}^2$  に設定した.

## 2.2. 数値解析手法

2次元平行平板チャネル内火炎の流動場および気相・表面反応の解析には, Fluent 12.1 (ANSYS, Inc.) および Chemkin-CFD (Reaction Design) を併用した. 支配方程式は, 連続の式, Navier-Stokes 方程式, 化学種の連続式, エネルギー方程式および状態方程式である. 圧力と速度の連成には, SIMPLE 法を使用し, 対流項の離散化には, 一次風上差分法を用いた. グリッド数は,  $192 \times 32 (x \times y)$  に設定した. メタン・空気混合気の流入条件は, 実験のポーラスバーナーを模擬して一様流とし, 当量比および温度は,  $\phi = 0.95$  および  $T_{in} = T_w$  とした. 混合気の流入速度  $U_{in}$  は, 質量流束が実験と等しく一定となるように設定し, 例えば  $T_{in} = 293 \text{ K}$  で  $U_{in} = 0.22 \text{ m/s}$ ,  $T_{in} = 1273 \text{ K}$  で  $U_{in} = 0.97 \text{ m/s}$  である. 流出面に対しては, 全ての物理量に対流流出条件を適用した. また, 壁面には等温条件を課すと伴に, 表面反応に由来する質量流束を定義した. なお, 表面反応機構が最も多く検討されている白金壁面の近傍において, PLIF および計算で取得した  $\text{OH}^*$  分布が異なる壁温において良く一致することを確認しており[23], 本計算モデルにより壁面の熱的効果を適切に再現できる.

気相反応機構は, GRI-mech3.0 を基に, 寄与の小さい Ar,  $\text{C}_3\text{H}_8$  および  $\text{C}_3\text{H}_7$  を除いたモデル (50 化学種, 309 素反応) とした. 一方, 表面反応機構には, Raimondeau et al. [22] が提案した化学的効果の基礎モデルを適用した. 表 1 に化学的効果の素反応機構を示す. このモデルでは, メタン・空気予混合火炎の着火・消炎限界に強い影響を及ぼす  $\text{CH}_3^*$ ,  $\text{H}^*$ ,  $\text{O}^*$ ,  $\text{OH}^*$  の吸着[19]および安定化学種である  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  の脱離を考慮する.

式 (1) に, Langmuir モデルに基づくラジカル種の吸着速度  $W_a$  [1/s] を示す.

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

上式において,  $P$ ,  $\Gamma$ ,  $M$ ,  $R$ ,  $\theta_{B(s)}$  および  $S_0$  は, それぞれラジカル種の分圧, 表面サイト密度, 分子量, 一般気体定数, 空きサイトのサイト分率および初期吸着係数である. 表面サイト密度  $\Gamma$  は, 各表面材での平均分子間距離から算出し, 石英, SUS321 および Inconel600 に対して, それぞれ  $1.31 \times 10^9$ ,  $3.22 \times 10^9$  および  $3.26 \times 10^9 \text{ mol/cm}^2$  とした. ここで本研究の燃焼条件において, 式 (1) に従うラジカル種の吸着速度は, 最大で  $\sim 10^5 \text{ s}^{-1}$  である. 一方, 再結合・脱離の反応速度はアレニウス型の式で記述されるが, 遷移状態理論から導出される前指数因子は  $10^{13} \text{ s}^{-1}$  であり, この値は見積られた吸着速度に対して十分に大きい. また, 前指数因子を  $10^7 \sim 10^{13} \text{ s}^{-1}$  の広い範囲に設定した予備的数値計算において, 気相の火炎構造に変化が現れないことを確認している. 従って, 本研究の条件において壁面の化学的効果は吸着反応に律速されると考えられる. そこで本報では, PLIF および本計算で取得した壁近傍の  $\text{OH}^*$  分布の比較を通じて, 異なる壁面での吸着速度を支配する初期吸着係数  $S_0$  を, 金属壁面において評価した.

## 3. 実験および数値解析結果

### 3.1. 金属壁面の化学的効果

図 3 に,  $T_w = 1073 \text{ K}$ ,  $1273 \text{ K}$  における, 石英, ステンレスおよびインコネル壁面上での  $\text{OH}$ -PLIF 計測結果を示す. 図中, 壁面の位置は,  $y = 0 \text{ mm}$  に相当する. なお,  $\text{OH}^*$  モル分率  $\chi_{\text{OH}}$  は, 比較のため最大値で規格化した. 壁面の化学的効果は,  $T_w \geq 1073 \text{ K}$  の高温条件で発現し, ステンレスおよびインコネル壁面近傍では, 石英壁面と比較し,  $\chi_{\text{OH}}$  が低減する様子 (図中 A, B, C) が分かる. 図 4 に,  $\chi_{\text{OH}}$  が最大となる流れ方向位置での, 各壁面上における  $\chi_{\text{OH}}$  の壁垂直方向分布を示す. 流れ方向距離は,  $T_w = 1073 \text{ K}$  および  $1273 \text{ K}$  においてそれぞれ  $x = 0.7 \text{ mm}$  および  $0.5 \text{ mm}$  である. ステンレスおよびインコネル壁面における  $\chi_{\text{OH}}$  分布の違いは小さい一方で, これら金属壁と石英壁での  $\chi_{\text{OH}}$  分布の変化は,  $y = 0 \sim 0.4 \text{ mm}$  の壁近傍の領域で大きく,  $T_w = 1273 \text{ K}$  における金属壁近傍の  $\chi_{\text{OH}}$  は, 石英壁に対し 40% 程度にまで顕著に減少することが分かる. また, これら壁面における材質の効果は, Miesse et al. [13] による消炎距離の測定データとも定性的に一致する.

ここで, PLIF および数値解析で取得した  $\chi_{\text{OH}}$  分布に基づき, 金属壁面でのラジカル種の初期吸着係数  $S_0$  を評価した. 図 5 に,  $T_w = 1273 \text{ K}$  での  $S_0 = 0$  (不活性), 0.01, 0.1, 1 における, 壁近傍  $\chi_{\text{OH}}$  分布の計算結果を示す. 比較のため, 石英, ステンレスおよびインコネル壁での測定値も併せてプロットした. まず, 石英壁面における  $\text{OH}^*$  分布は,  $S_0 = 0.01$  の分布と良い一致を示し, 微弱ながら石英にも化学的効果が発現することが分かり, これは以前の報告[23]とも一致する. 一方で, ステンレスおよびインコネル壁面での測定値は,  $S_0 = 0.1$  および 1 の分布とほぼ一致することが分かるが, 壁面ごく近傍の  $\chi_{\text{OH}}$  が有為な値を持つことから,

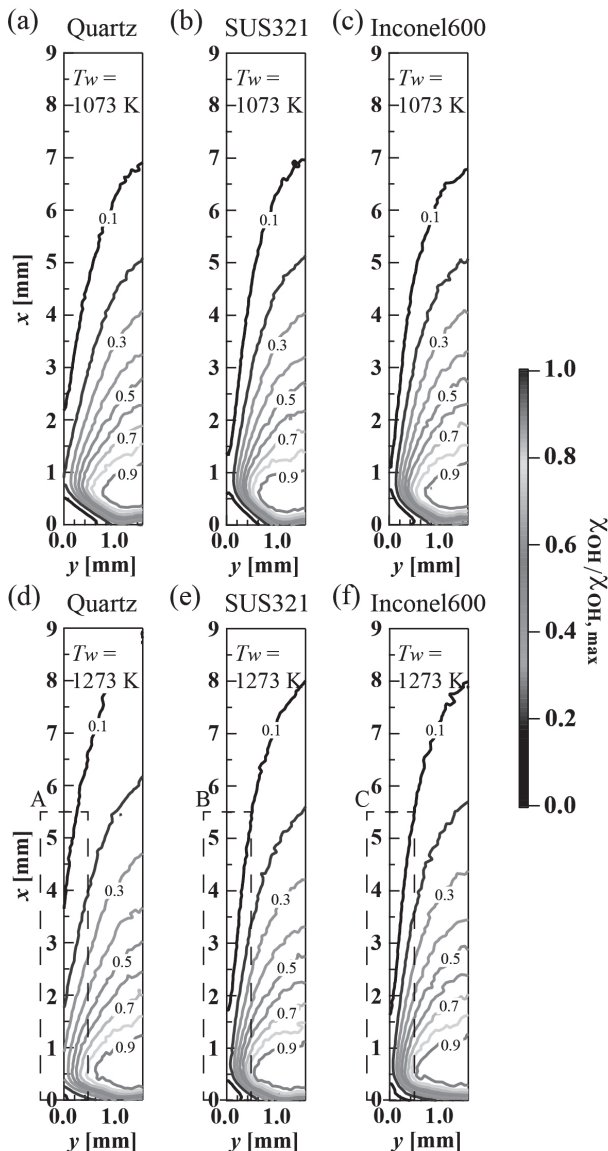


Fig.3 Contours of normalized OH\* mole fraction  $\chi_{OH^*}/\chi_{OH, \max}$  in planar channel with different wall materials at  $T_w = 1073$  K and 1273 K: (a) quartz, 1073 K, (b) SUS321, 1073 K, (c) Inconel600, 1073 K, (d) quartz, 1273 K, (e) SUS321, 1273 K, and (f) Inconel600, 1273 K.

これら金属壁面での  $S_0$  は 0.1 程度と考えられる。すなわち、金属壁面では、石英壁面と比較し、より強い化学的効果が現れると言える。

図 6 に、 $S_0 = 0, 0.01$  および  $0.1$  における、壁面近傍 ( $y = 0.05$  mm) での各ラジカルのモル分率の流れ方向最大値を示す。石英壁面を想定した  $S_0 = 0.01$  および金属壁面を想定した  $S_0 = 0.1$  では、ラジカル濃度が不活性壁に対し、それぞれ最大で 50% および 10% 程度にまで顕著に減少する様子が分かり、化学的効果がチャンネル中心にまで及ぶマイクロチャンネルでは、 $S_0$  の値がバルクの燃焼特性に大きな影響を及ぼすと推測される。

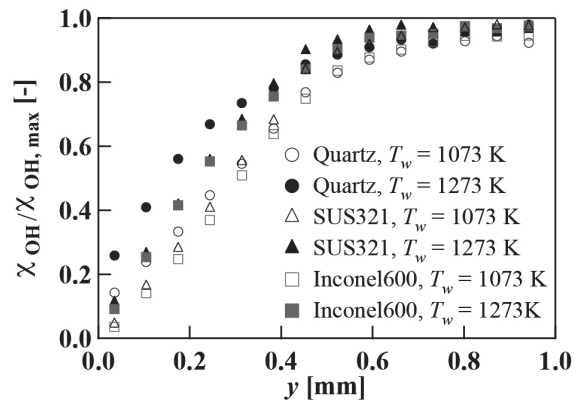


Fig.4 Wall-normal distributions of  $\chi_{OH^*}/\chi_{OH, \max}$  near the quartz, SUS321 and Inconel600 surfaces at  $x = 0.7$  mm and  $0.5$  mm for  $T_w = 1073$  K and 1273 K, respectively. Note that  $\chi_{OH^*}$  becomes maximum at these streamwise positions.

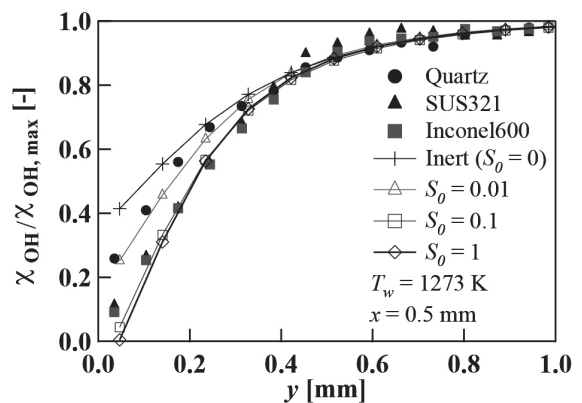


Fig.5 Wall-normal distributions of  $\chi_{OH^*}/\chi_{OH, \max}$  near the wall surfaces with  $S_0 = 0$  (Inert), 0.01 and 0.1 and 1 at  $T_w = 1273$  K. The distributions near the quartz, SUS321 and Inconel600 surfaces are also shown here.

### 3.2. マイクロチャンネルでの燃焼特性

#### 3.2.1. 反応開始温度

PLIF データから見積られた石英および金属壁面でのラジカルの初期吸着係数  $S_0$  に基づき、各壁面を有するマイクロチャンネル内における燃焼特性を数値解析により検討した。ここでは、反応開始特性を考察するため、混合気の流入温度を  $T_{in} = 293$  K とし、当量比は  $\phi = 1.0$  とした。また、流入速度は、計算領域内に火炎が保持されるように決定し、チャンネル幅に依らず  $U_{in} = 0.60$  m/s とした。図 7 に、チャンネル幅  $W = 0.7$  mm,  $T_w = 1273$  K における、不活性壁面 ( $S_0 = 0$ ) と、石英および金属壁面を想定した  $S_0 = 0.01$  および  $0.1$  での  $\chi_{OH}$  分布を示す。壁面の化学的効果がチャンネル中心部に及ぶことで着火遅れが生じ、火炎位置が、 $S_0 = 0.01$  で  $0.5$  mm,  $S_0 = 0.1$  で  $1$  mm 程度下流にシフトする様子が分かる。図 8 に、各壁面条件におけるチャンネル中心での温度および発熱速度の流れ方向分布を示す。この燃焼場では、高温壁による熱伝達により混合気が予熱され、ある温度で燃焼反応が開始する。図には、温度分布の変曲点から求めた反応開始

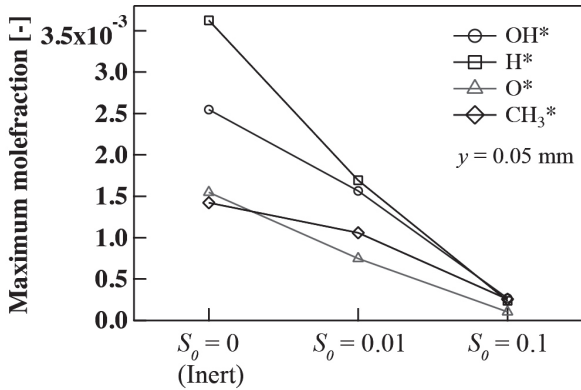


Fig.6 Maximum value of  $\chi_{OH}$ ,  $\chi_H$ ,  $\chi_O$  and  $\chi_{CH_3}$  near the wall surface ( $y = 0.05$  mm) with  $S_0 = 0$  (Inert), 0.01 (quartz) and 0.1 (metal) at  $T_w = 1273$  K.

温度を併せて記した。混合気の温度が反応開始温度に至る流れ方向位置は、発熱速度が急激な上昇を始める位置と良い一致を示す。反応開始温度は、 $S_0 = 0, 0.01$  および  $0.1$  の条件で、それぞれ  $975$  K,  $1100$  K および  $1180$  K であり、同じチャンネル幅でも化学的效果が強くなるにつれて著しく上昇する。これは、連鎖創始反応 ( $CH_4 + (M) = CH_3^* + H^* + (M)$ ) により生成された  $CH_3^*$  および  $H^*$  が、化学的效果により壁面で吸着・再結合されるためと考えられる。

図9に、各壁面条件での、チャンネル幅  $W = 0.55 \sim 1.0$  mm における反応開始温度の変化を示す。不活性壁では、 $W = 1$  mm における反応開始温度は  $765$  K であるが、チャンネル幅が狭くなると反応開始温度は上昇し、 $W = 0.6$  mm では  $1135$  K となる。また、不活性壁面と  $S_0 = 0.01$  および  $0.1$  の壁面における反応開始温度の差は、 $W = 1$  mm では  $70$  K および  $90$  K であるが、 $W = 0.7$  mm では  $125$  K および  $205$  K と増大し、チャンネル幅の減少に伴い、不活性壁に対する反応開始温度の上昇幅が増大するとともに、初期吸着係数の値による相違もより明確に現れることが分かる。ここで、本燃焼条件では、不活性、 $S_0 = 0.01$  および  $0.1$  の条件において、チャンネル幅がそれぞれ  $0.55$  mm,  $0.6$  mm および  $0.65$  mm より小さくなった際に消炎に至るが、これらはいずれも反応開始温度が壁温と等しい  $1273$  K に近づいた条件である。即ち、気相温度が壁温に支配されるマイクロチャンネルでは、反応開始温度が壁温を上回ると消炎に至ると考えられる。

3.2.2. 反応開始後の火炎構造

燃焼反応開始後の火炎構造に化学的效果が及ぼす影響の検討を行った。ここでの解析では、混合気の流入温度を  $T_{in} = T_w$  に設定し、反応開始時の混合気の温度を各壁面条件において一定に保った。また、混合気の当量比は  $\phi = 1.0$  とし、流入速度は、前節で反応開始温度を検討した際の質量流束と同じになるよう  $U_{in} = 2.60$  m/s に設定した。図10a, b および c に、 $W = 0.7$  mm,  $T_w = 1273$  K における、 $S_0 = 0, 0.01$  および  $0.1$  での発熱速度分布を示す。また、図10d および e には、 $S_0 = 0$  および  $0.1$  における、 $\chi_{CH_4}$ ,  $\chi_{O_2}$ ,  $\chi_{CO_2}$ ,  $\chi_{H_2O}$ ,

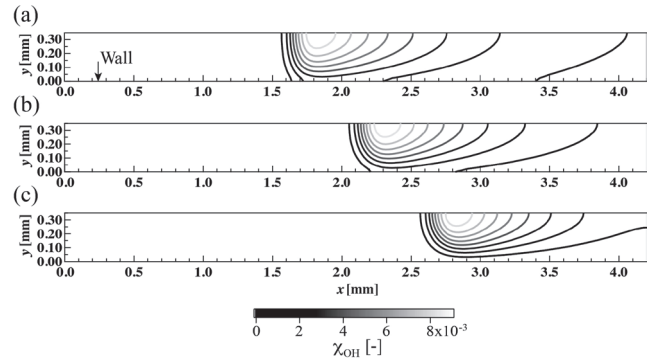


Fig.7 Contours of  $OH^*$  mole fraction  $\chi_{OH}$  in  $0.7$  mm-wide micro planar channels with  $S_0 = 0$  (inert),  $0.01$  and  $0.1$  at  $T_w = 1273$  K and  $T_{in} = 293$  K: (a)  $S_0 = 0$ , (b)  $S_0 = 0.01$ , and (c)  $S_0 = 0.1$ .

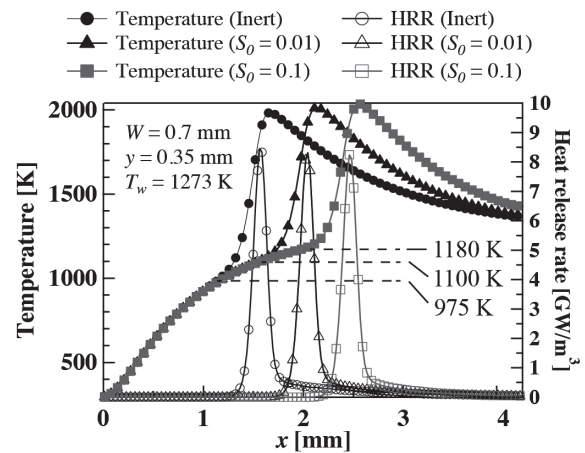


Fig.8 Streamwise distributions of temperature and heat release rate in  $0.7$  mm-wide micro planar channels with  $S_0 = 0$  (inert),  $0.01$  and  $0.1$  at  $T_w = 1273$  K ( $y = 0.35$  mm).

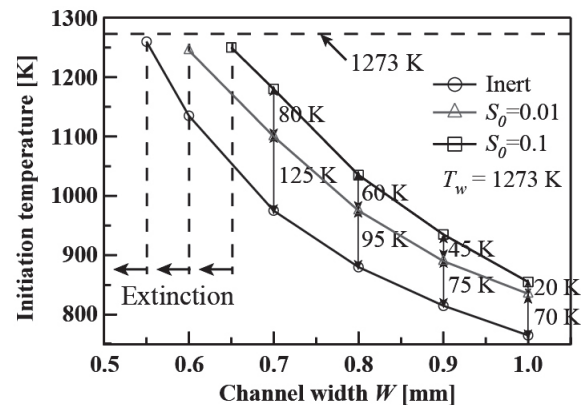


Fig.9 Variation of initiation temperature of chain reaction for different channel width at  $S_0 = 0$  (inert),  $0.01$  and  $0.1$ .

$\chi_{CO}$  のチャンネル中心における流れ方向分布を併せて示した。いずれの条件においても、混合気の流入温度が反応開始温度と比較し高いため(図9参照)、反応はチャンネル入口から開始され、燃焼器出口 ( $y = 4.2$  mm) では、生成物の組成は平衡状態に達する。化学的效果により、発熱速度が特に壁

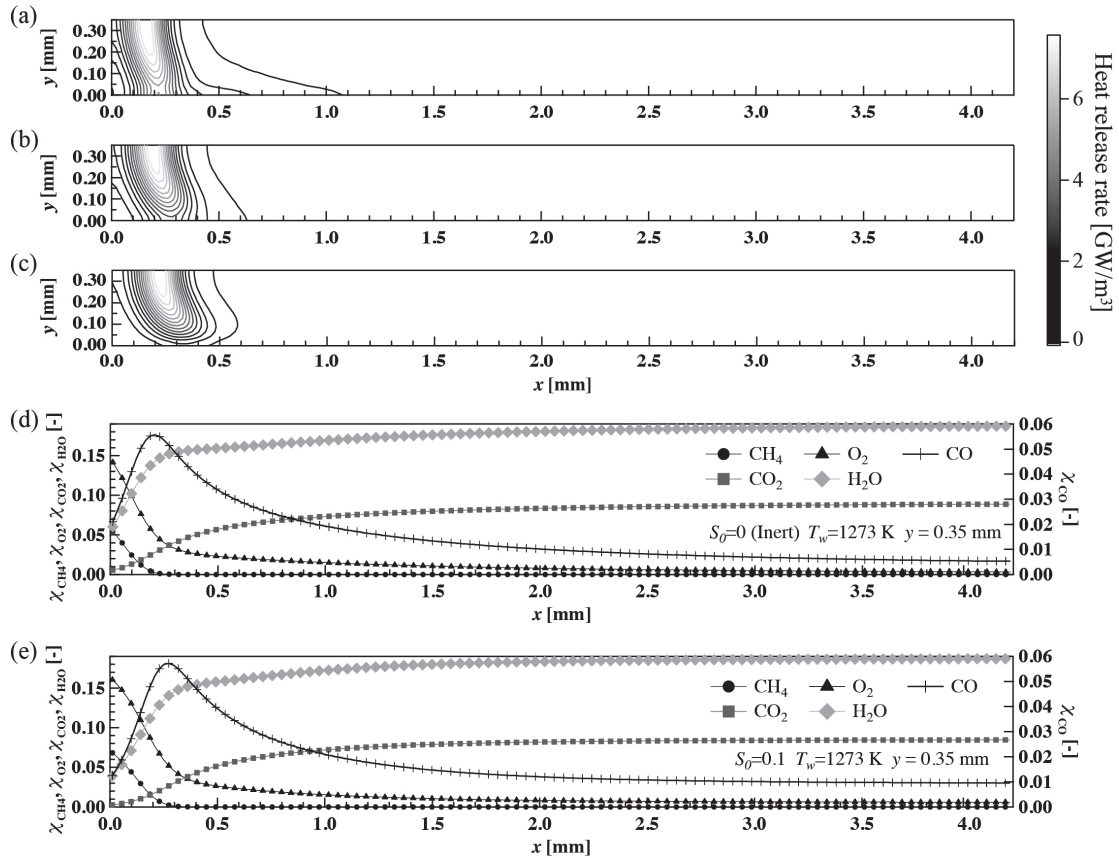


Fig.10 Contours of heat release rate and streamwise distributions of  $\chi_{CH_4}$ ,  $\chi_{O_2}$ ,  $\chi_{CO_2}$ ,  $\chi_{H_2O}$  and  $\chi_{CO}$  in 0.7 mm-wide micro planar channels at  $T_w = 1273$  K and  $T_{in} = 1273$  K: (a)  $S_0 = 0$  (inert), heat release rate, (b)  $S_0 = 0.01$ , heat release rate, (c)  $S_0 = 0.1$ , heat release rate, (d) streamwise distributions of  $\chi_{CH_4}$ ,  $\chi_{O_2}$ ,  $\chi_{CO_2}$ ,  $\chi_{H_2O}$  and  $\chi_{CO}$  at  $S_0 = 0$  ( $y = 0.35$  mm), and (e) streamwise distributions of  $\chi_{CH_4}$ ,  $\chi_{O_2}$ ,  $\chi_{CO_2}$ ,  $\chi_{H_2O}$  and  $\chi_{CO}$  at  $S_0 = 0.1$  ( $y = 0.35$  mm).

近傍で顕著に抑制される様子が確認される。

図 11 に、 $W = 0.7$  mm での、 $S_0 = 0$  および 0.1 における、メタン・空気燃焼において重要な素反応の反応速度の流れ方向分布を示す。なお、反応速度は、バルクでの影響を評価するため壁垂直方向に平均化した。素反応 R10 および R98 に代表される  $CH_4$ ,  $CH_3$  の酸化・分解反応、R58 および R101 による  $CH_2O$  (ホルムアルデヒド) の分解反応、R55, R99 および R100 による  $CO$  の生成・酸化反応の全ての反応速度が、ラジカルの不足により、 $S_0 = 0.1$  において不活性壁に対し 20% 程度低減することが分かる。

図 12 に、 $S_0 = 0, 0.01, 0.1$  および 1 における、チャンネル幅に対する燃焼器出口での  $CO$  濃度の変化を示す。チャンネル幅が  $W \sim 1.0$  mm の条件では、 $CO$  排出量に与える化学的効果の影響が無視できなくなり、 $W = 0.7$  mm では、 $S_0 = 0.01, 0.1$  および 1 において不活性壁に対し 35%、85% および 91% 程度増加する。これら  $CO$  排出の増加量は、熱量に換算して不活性壁に対する全損失熱量の約 3.5%、6.5% および 7.0% に相当し、発熱量が減少する重要な要因の一つである。

図 13a に、 $S_0 = 0, 0.01, 0.1$  および 1 における、チャンネル幅に対する有効発熱量の変化を示す。ここで、有効発熱量

は、チャンネル全域において局所の発熱速度を空間積分した値として定義し、各チャンネル幅における不活性条件での値で規格化した。化学的効果による有効発熱量の減少率は、チャンネル幅が狭くなるにつれ徐々に増大する。また、 $S_0 = 0.1$  と 1 における発熱量の違いは小さいものの、チャンネル幅の減少に伴い初期吸着係数の値による影響が大きくなり、 $W = 0.7$  mm での減少率は、 $S_0 = 0.01, 0.1$  および 1 において約 18%、26% および 27.5% となる。前述の通り、化学的効果により有効発熱量が減少する要因の一つは、 $CO$  を主とした未燃成分の排出量増加にある。また、表 1 で示したように、壁面に吸着したラジカルは、再結合反応により安定化学種となり気相中へと脱離するが、安定化学種が生成する際の反応熱は、壁を介して外部へ失われることになり、有効発熱量が減少する大きな原因となる。図 13b に、各チャンネル幅における  $S_0 = 0.1$  での、各安定化学種の生成によって生じた発熱量の減少量を示す。なお、各損失熱量の値は、図 13a で示した不活性壁に対する全損失熱量で規格化している。損失される反応熱の合計値は、全損失熱量の 90% 以上を占め、チャンネル幅が大きいほどその占有割合は大きくなる。特に、気相中に豊富に存在し吸着量も比較的に多い  $H^*$ ,  $O^*$ ,  $OH^*$  が寄与する  $H_2$ ,  $H_2O$ ,  $O_2$  の生成は、その

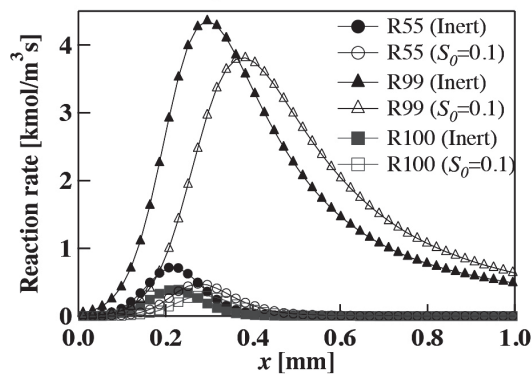
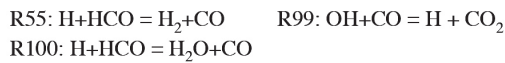
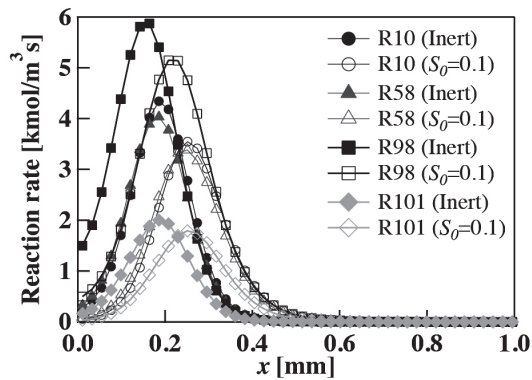
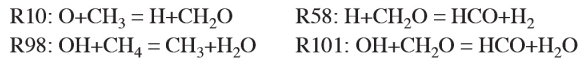


Fig. 11 Wall-normal averaged streamwise distributions of reaction rate for typical elemental reactions in 0.7 mm-wide micro planar channel with  $S_0 = 0$  and 0.1 at  $T_w = 1273$  K.

反応速度が大きいため、有効発熱量に対し強い影響を及ぼすことが分かる。

#### 4. 結言

本研究では、ステンレスおよびインコネルの薄膜を表面に持つ石英平板チャンネル内メタン・空気予混合火炎を対象として、等価な熱的境界条件の下で、金属壁面における化学的消炎効果を、OH-PLIF による実験計測および数値解析の比較を通じて定量評価した。また、得られたラジカルの初期吸着係数に基づき、マイクロチャンネルでの燃焼特性を検討した。以下に、得られた知見を示す。

- (1) 壁面の化学的効果は、壁温  $T_w \geq 1073$  K の高温条件で発現し、ステンレスおよびインコネル壁面近傍では、石英壁面に対し、OH\* 濃度が顕著に減少する。
- (2) 壁面近傍の OH\* 分布より、ラジカル種の初期吸着係数は、金属および石英壁面において、それぞれ 0.1 および 0.01 と見積られる。すなわち、金属壁面は、石英壁面と比較しより強い化学的効果を有する。
- (3) マイクロチャンネルでは、化学的効果による気相中でのラジカルの減少が反応開始温度および有効発熱量に大

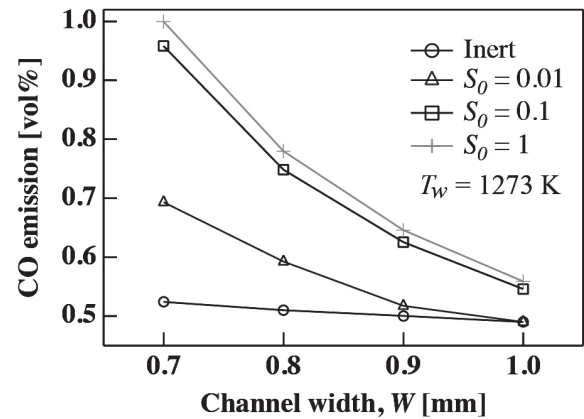


Fig. 12 Variation of CO emission for different channel width at  $S_0 = 0$  (inert), 0.01, 0.1 and 1.

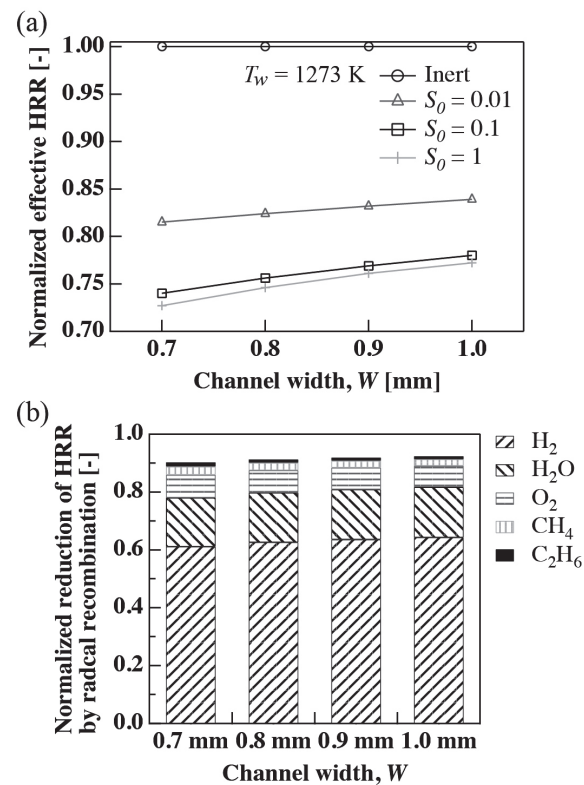


Fig. 13 (a) Variation of normalized effective heat release rate (HRR) for different channel width at  $S_0 = 0$  (inert), 0.01, 0.1 and 1, and (b) Normalized reduction of HRR by radical recombination.

きな影響を与え、壁面に応じたラジカルの初期吸着係数の値が、バルクの燃焼特性を決定する上で重要となる。

#### 謝辞

本研究は、文部科学省研究費補助金基盤研究 B (No. 22360083) の助成を受けた。ここに記して謝意を表する。

## References

1. Fernandez-Pello, A. C., *Proc. Combust. Inst.* 29: 883-899 (2002).
2. Arana, L. R., Schaevitz, S. A., Franz, A. J., Schmidt, M. A., and Jensen, K. F., *J. Microelectromech. Syst.* 12: 600-612 (2003).
3. Epstein, A. H., *Trans. ASME: J. Eng. Gas Turbine Power* 126: 205-226 (2004).
4. Suzuki, Y., Saito, J. and Kasagi, N., *JSME Int. J. Ser. B* 47: 522-527 (2004).
5. Ahn, J., Eastwood, C., Sitzki, L., and Ronney, P. D., *Proc. Combust. Inst.* 30: 2463-2472 (2005).
6. Norton, D. G. and Vlachos, D. G., *Proc. Combust. Inst.* 30: 2473-2480 (2005).
7. Okamasa, T., Lee, G.-G., Suzuki, Y., Kasagi, N., and Matsuda, S., *J. Micromech. Microeng.* 16: S198-S205 (2006).
8. Takahashi, S. and Wakai, K., *AIAA paper* 2009-5246 (2009).
9. Kamijo, T., Suzuki, Y., Kasagi, N., and Okamasa, T., *Proc. Combust. Inst.* 32: 3019-3026 (2009).
10. Fan, Y., Suzuki, Y. and Kasagi, N., *Proc. Combust. Inst.* 32: 3083-3090 (2009).
11. Maruta, K., *Proc. Combust. Inst.* 33: 125-150 (2011).
12. Ju, Y. and Maruta, K., *Prog. Energy Combust.* 37: 669-715 (2011).
13. Miesse, C. M., Masel, R. I., Jensen, C. D., Shannon, M. A. and Short, M., *AIChE J.* 50: 3205-3214 (2004).
14. Kim, K. T., Lee, D. H. and Kwon, S., *Combust. Flame* 146: 19-28 (2006).
15. Fan, Y., Suzuki, Y. and Kasagi, N., *Proc. Combust. Inst.* 33: 3267-3273 (2011).
16. Maruta, K., Parc, J. K., Oh, K. C., Fujimori, T., Minaev, S. S. and Fursenko, R. V., *Combust. Expl. Shock Waves* 40: 516-523 (2004).
17. Maruta, K., Kataoka, T., Kim, N., Minaev, S. S. and Fursenko, R. V., *Proc. Combust. Inst.* 30: 2429-2436 (2005).
18. Vlachos, D.G., Schmidt, L. D. and Aris, R., *Combust. Flame* 95: 313-335 (1993).
19. Vlachos, D.G., Schmidt, L. D. and Aris, R., *AIChE J.* 40: 1005-1017 (1994).
20. Vlachos, D. G., *Combust. Flame* 103: 59-75 (1995).
21. Aghalayam, P., Bui, P-A. and Vlachos, D. G., *Combust. Theory Model.* 2: 515-530 (1998).
22. Raimondeau, S., Norton, D., Vlachos, D. G. and Masel R. I., *Proc. Combust. Inst.* 29: 901-907 (2002).
23. Saiki, Y. and Suzuki, Y., *Proc. Combust. Inst.* 34: 3395-3402 (2013).
24. Allen, M. G., Parker, T. E., Reinecke, W. G., Legner, H. H., Foutter, R. R., Rawlins, W. T. and Davis, S. J., *AIAA J.* 31: 505-512 (1993).
25. Saiki, Y. and Kurimoto, N., Suzuki, Y. and Kasagi, N., *Combust. Flame* 158: 1391-1403 (2011).