拡散火炎のもたらす流れの動的性質

同志社大学エネルギー変換研究センター 横山直人 (Naoto YOKOYAMA)¹ 同志社大学工学部 水島二郎 (Jiro MIZUSHIMA)

1 はじめに

燃焼時に燃料と酸化剤が拡散・混合して混合気を形成する拡散火炎は、燃料と酸化剤を 異なる経路で供給し安全であるため古代から広く使用されてきた.たとえば、ろうそくの ような炭化水素系の燃料では拡散時にすすが生じ、人類はこのすすからの放射を光源や熱 源として利用してきた.このように火炎の使用が非常に長期にわたるのにもかかわらず、 現在に至っても燃焼の研究は実験および数値計算における挑戦的な課題である.

燃焼の数値的研究では,流体のもつ時間スケールと化学反応のもつ時間スケールの隔た りが大きいことに由来し,乱流場の瞬間的局所火炎構造は定常層流火炎によって模擬でき るとする層流火炎片モデル (Peters, 1984)が,広く用いられてきた.しかしながら,反応面 の厚さの増大 (Donbar et al., 2001),カオス混合による化学反応の促進(植田利久, 2002) など流れの性質は,化学反応に多大な影響を及ぼすことが予想され,これらの性質を考慮 した数値計算が必要とされる.実際,近年の計算機の能力の向上により,乱流予混合燃焼 の直接数値計算が可能になると,Navier-Stokes 方程式および素反応からなる詳細化学反 応機構により記述される予混合燃焼において,乱流微細渦が予混合火炎にもたらす影響が 明らかになりつつある (Nada et al., 2004).

本研究で対象とする噴流火炎では, Everest et al. (1995)が平面 Rayleigh 散乱法により メタン-空気乱流拡散火炎の瞬時2次元温度分布を測定し,高温領域の空気側への張り出 し,火炎内への空気の巻き込み,高温領域における空気の存在などを可視化し,流体の渦 構造の火炎における役割を述べた.一方,山下博史ら (1998)はメタン-空気 Skeletal 反応 機構に基づく数値計算を行い,局所消炎の生じる機構を検証し,層流火炎片モデルを支持 する結果を得た.また,木下進一ら (2004)は簡略反応機構による水素/窒素-空気の拡散燃 焼における数値計算を行い,渦構造は火炎面に曲率をもたらせ,この火炎面の局率によっ て生じる化学種間の選択拡散が温度特性など火炎に大きく影響することを明らかにした. また,Takahashi and Katta (1996)は非定常層流拡散火炎における渦構造と化学反応の相 互作用は対流・拡散・化学反応の3段階の順次かつ重複する過程に分割して考えた.さら に、反応物質の流束が支配する局所消炎の機構に言及した.

拡散火炎は、予混合火炎と異なり伝播速度をもたないために、流れ場、特に火炎面の伸長 に対して敏感になる.したがって、従来の $k - \epsilon$ 法やラージエディシミュレーション (LES) によって流れ場を記述する場合や以前の空間解像度が低い数値計算では、化学反応の持 つ長さスケールを計算することができないために火炎面を十分に捉えることができない. 本研究では、メタン-空気噴流火炎において6種4段階簡略反応機構に基づき、流れ場に対

¹e-mail: nyokoyam@mail.doshisha.ac.jp



して近似を用いない数値計算を行い,流れ場と化学反応の相互作用を調べ,熱発生に対す る火炎面近傍の動力学の影響を述べる.

2 数値計算法

燃焼場の支配方程式は,質量,運動量,エネルギー,化学種の保存方程式を用いて表される.本研究では,運動方程式において外力と体積粘性を無視し,エネルギー方程式において運動エネルギー,圧力仕事,外力,Dufour効果(質量分率勾配による熱流),輻射,粘性散逸を無視する.さらに,化学種方程式において圧力拡散,Soret効果(温度勾配による化学種の拡散)を無視すると,密度ρ,速度 u,温度 T,化学種 i の質量分率 Y_iに対する支配方程式は以下のようになる.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \boldsymbol{u}) = 0, \tag{1a}$$

$$\frac{\partial(\rho \boldsymbol{u})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \boldsymbol{u} \boldsymbol{u}) = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}, \tag{1b}$$

$$\frac{\partial(\rho T)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u T) - \frac{1}{\overline{c_p}} \nabla \cdot (\lambda \nabla T) = -\frac{1}{\overline{c_p}} \sum_i h_i \omega_i, \qquad (1c)$$

$$\frac{\partial(\rho Y_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \boldsymbol{u} Y_i) - \nabla \cdot (\rho D_i \nabla Y_i) = \omega_i.$$
(1d)

ここで, 圧力 p は, 気体定数 R と化学種 i の分子量 W_iを用いて状態方程式により p = $\rho RT \sum_{i} Y_i/W_i$ と表せ, 粘性応力テンソル τ は I を単位テンソルとして $\tau = \mu(T)(\nabla u + (\nabla u)^T - 2/3(\nabla \cdot u)I)$ である. 平均定圧比熱 $\overline{c_p}$ は, $\overline{c_p} = \sum_{i} Y_i c_{p,i}$ と与えられる. 化学種 i の定圧比熱 $c_{p,i}$ とエンタルピー h_i の温度依存性は多項式によって与えられ, その係数に CHEMKIN(Kee *et al.*, 1996) を用いた. また, ω_i は化学反応による化学種 i の生成項である. 熱伝導係数 λ , i 種の拡散係数 D_i , 粘性係数 μ は、簡略輸送モデル (Smooke *et al.*, 1991) を用い, それぞれ, $\lambda/\overline{c_p} = A(T/T_0)^{0.7}$, $\rho D_i = Le_i^{-1}(\lambda/\overline{c_p})$, $\mu = Pr(\lambda/\overline{c_p})$ により与える. ここで, 比例係数を $A = 2.58 \times 10^{-5}$ kg/(m · sec), 基準温度を $T_0 = 298.15$ K, Prandtl 数を Pr = 0.75 とした. また, i 種の Lewis 数 Le_i は表 1 のように与える.

化学反応には6種4段階簡略反応機構 (Jones and Lindstedt, 1988),

$$CH_4 + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow CO + 2H_2,$$
 (2a)

$$CH_4 + H_2O \rightarrow CO + 3H_2,$$
 (2b)

$$H_2 + \frac{1}{2}O_2 \rightleftharpoons H_2O, \qquad (2c)$$

表 2: 反応定数. 単位系には m, kg, sec, kmol を用いた.

反応番号	A_i	E_i
(a)	4.4×10^{11}	$1.26 imes 10^5$
(b)	$3.0 imes10^8$	$1.26 imes 10^5$
(c) Water Rich	$2.5 imes 10^{16}$	$1.67 imes 10^5$
Water Lean	$6.8 imes10^{15}$	$1.67 imes 10^5$
(d)	$2.75 imes 10^9$	$8.38 imes 10^4$

$$\rm CO + H_2O \rightleftharpoons \rm CO_2 + H_2$$
 (2d)

を用いた.本研究では (2c,2d) における逆反応は考えないとすると, 各反応の反応速度 Ω_j は, Arrhenius 型の

$$\Omega_{\rm a} = A_{\rm a} [{\rm CH}_4]^{1/2} [{\rm O}_2]^{5/4} \exp(-E_{\rm a}/RT), \tag{3a}$$

$$\Omega_{\rm b} = A_{\rm b}[\rm CH_4][\rm H_2O]\exp(-E_{\rm b}/RT), \tag{3b}$$

$$\Omega_{\rm c} = \begin{cases}
A_{\rm c,wr}[{\rm H}_2]^{1/2}[{\rm O}_2]^{9/4}[{\rm H}_2{\rm O}]^{-1}T^{-1}\exp(-E_{\rm c,wr}/RT), & [{\rm H}_2{\rm O}] > 10^{-3}{\rm mol/m}^3, \\
A_{\rm c,wl}[{\rm H}_2]^{1/4}[{\rm O}_2]^{3/2}T^{-1}\exp(-E_{\rm c,wl}/RT), & [{\rm H}_2{\rm O}] \le 10^{-3}{\rm mol/m}^3, \\
\Omega_{\rm d} = A_{\rm d}[{\rm CO}][{\rm H}_2{\rm O}]\exp(-E_{\rm d}/RT)
\end{cases}$$
(3c)
(3d)

で与えられる.式(2c)の水素と酸素の結合反応は,生成物である水のモル濃度によって異なる反応速度で与えられる.これは,水のモル濃度が大きい領域での反応速度が水のモル濃度の逆数に比例することに由来する特異性を回避するためである.実際には,高温かつ水素および酸素のモル濃度が有限の値をとる領域において,水のモル濃度が0に近い値を持つことはないので,反応には式(3c)は上式のみが有効である.ここで[·]はモル濃度を表し,各反応定数 A_i および E_i は表2のように与える.このとき ν_{ij} を式(2)のj次におけるi種の反応係数として,式(1)に表れる化学反応による生成項は $\omega_i = W_i \sum_j \nu_{ij} \Omega_j$ で与えられる.

本研究では、軸対称性を仮定し、図1中の矩形領域のみを計算対象とする. 空間微分に は、動径方向および軸方向ともに格子間隔を2×10⁻⁵mとした6次コンパクト差分法 (Lele, 1992)を用い、境界条件には Navier–Stokes 特性境界条件 (Baum *et al.*, 1994)を適用した. 流入条件は、図1に示すように、直径 $d = 3 \times 10^{-3}$ mのノズルから温度 $T_{low} = 300$ K,質量分 率 $Y_{CH_{4,0}} = 1$ の純メタンが、軸方向速度 $v_{CH_{4}} = 30$ m/secで流入し、その周囲から温度 T_{low} , $Y_{O_{2,0}} = 0.232$, $Y_{N_{2,0}} = 0.768$ で混合された空気が軸方向速度 $v_{air} = 3$ m/sec で流入すると した. さらに、流入境界直後での吹き飛びを防ぐために、ノズルは高温 $T_{high} = 2000$ Kであ るとした. ただし、 $t < 5.0 \times 10^{-4}$ sec の初期段階では着火を引き起こすためにノズル温度は $T_{high,init} = 2500$ Kとし、 $t > 1.0 \times 10^{-3}$ sec で T_{high} となるように $5.0 \times 10^{-4} \le t < 1.0 \times 10^{-3}$ で連続的に下げた、流出境界では、物理量の境界法線方向微分を0とした. この系の特徴 的な無次元数は、Reynolds 数 $Re \sim 9 \times 10^{3}$ および流れと化学反応の時間スケールの比で ある Damköhler 数 $Da \sim 3 \times 10^{7}$ である. また、時間積分には 4 次 Runge–Kutta 法を用 いた.



図 1: 境界条件.

3 数值計算結果

3.1 燃焼場の特性

本研究では、メタン-空気噴流拡散火炎の数値計算を行った. 時刻 $t = 1.72 \times 10^{-2}$ sec における燃焼場を図 2 に示す. 計算領域は噴流の流下にしたがって拡大し、時刻 $t = 1.72 \times 10^{-2}$ sec での計算領域は、 $0 \le r \le 1.8 \times 10^{-2}$, $0 \le z \le 1.2 \times 10^{-1}$ である. 本稿では、 この時刻において、初期条件および境界条件の影響を受けない $2 \times 10^{-2} \le z \le 9 \times 10^{-2}$ の領域での火炎の挙動を調べる. 軸方向速度、温度、二酸化炭素および水の質量分率を、それぞれ、図 2(a), 2(b), 2(c), 2(d)に示す. 噴流火炎が流下するにしたがって、流入境界で主 としてメタンに与えられた運動量が動径方向に拡散するとともに反応により生成された 温度は移流によって拡大される. 式 (2c) の反応で生成される二酸化炭素は、高温領域に広 く存在するのに対し、式 (2d) の反応で生成される水は、主として高温領域の外縁部に存在 する. このことは、表1に示した二酸化炭素および水の Lewis 数の特性に反し、高温領域 外縁部で式 (2d) の反応が選択的に生じていることを表している.

火炎片モデルでは Bilger (1988)によって定義された混合分率

$$Z = \frac{2Y_{\rm CH_4}/W_{\rm CH_4} + (Y_{\rm O_2,0} - Y_{\rm O_2})/W_{\rm O_2} + (Y_{\rm CO}/W_{\rm CO} + Y_{\rm H_2}/W_{\rm H_2})/2}{2Y_{\rm CH_4,0}/W_{\rm CH_4} + Y_{\rm O_2,0}/W_{\rm O_2}}$$
(4)

を用いて流れと化学反応の相互作用が記述される.混合分率は純酸化剤領域で0,純燃料 領域で1の値をとるラグランジアン保存量²である.また,化学量論比,すなわち本研究で はメタン 1mol に対して酸素 2mol のモル濃度比によって古典的な火炎面は,

$$Z = \frac{Y_{\rm O_2,0}/W_{\rm O_2}}{2Y_{\rm CH_4,0}/W_{\rm CH_4} + Y_{\rm O_2,0}/W_{\rm O_2}} = Z_{\rm st}$$
(5)

で定義され,本研究では $Z_{st} = 0.055$ である.実際,図3に示すように,本研究で得られた 熱発生率 $Q = -\sum_i h_i \omega_i$ の大きな領域は,この化学量論的混合分率 Z_{st} によって定義され る火炎面とよく一致している.

²実際には D_i が全て等しいと仮定し,式(6)を認めてはじめて保存する.



図 2: *t* = 1.72×10⁻²sec における燃焼場. (*a*) 軸方向速度場, (*b*) 温度場, (*c*) 二酸化炭素, (*d*) 水の各質量分率場. 縦軸*r* は動径方向座標, 横軸*z* は対称軸方向座標である.



図 3: (a) 混合分率および化学量論的混合分率 Z_{st} によって定義される火炎面 (白線), (b) 熱発生率.

全ての化学種の Lewis 数が等しく, したがって拡散係数 D_i が同一の Dであるならば, 混合分率の時間発展は

$$\rho \frac{\partial Z}{\partial t} + \rho \boldsymbol{u} \cdot \nabla Z = \nabla \cdot (\rho D \nabla Z) \tag{6}$$

と表される.火炎片モデルでは,各化学種の質量分率および温度の時間発展を直接解くことは行わない.まず式(6)により全空間で混合分率を求め火炎面 $Z = Z_{st}$ を決定する.次に(6)式によって得られた火炎面の近傍でのみ火炎片方程式,

$$\rho \frac{\partial Y_i}{\partial t} = \frac{\rho}{Le_i} \frac{\chi}{2} \frac{\partial^2 Y_i}{\partial Z^2} + \omega_i, \tag{7a}$$

$$\rho \frac{\partial T}{\partial t} = \rho \frac{\chi}{2} \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} + \omega_T \tag{7b}$$

によって各化学種の質量分率および温度の時間発展を与える.ここで,スカラー散逸率 χ は $\chi = 2D|\nabla Z|^2$ であり, ω_T は化学反応による温度生成項である.このようにして火炎片 モデルは,火炎の持つ反応拡散構造を記述するのである.

化学反応は反応速度無限大の総括一段階不可逆反応とし, すべての Lewis 数が 1 とすると, 燃焼域では温度および質量分率を混合分率の関数として Burke-Schumann 解 (Burke and Schumann, 1928)

$$Y_{\rm CH_4} = \begin{cases} 0, & Z \le Z_{\rm st} \\ Y_{\rm CH_4,0}(Z - Z_{\rm st})/(1 - Z_{\rm st}), & Z > Z_{\rm st} \end{cases},$$
(8a)

$$Y_{\rm O_2} = \begin{cases} Y_{\rm O_2,0}(1 - Z/Z_{\rm st}), & Z \le Z_{\rm st} \\ 0, & Z > Z_{\rm st} \end{cases},$$
(8b)



図 4: 温度 T, メタン質量分率 Y_{CH_4} および酸素質量分率 Y_{O_2} の散布図. 横軸は混合分率 Z. 破線, 点線, 一点鎖線は, それぞれ, 温度, メタン質量分率, 酸素質量分率の Burke-Schumann 解を表す. 実線は, 火炎面 $Z = Z_{st}$ を表す.

$$T - T_{\rm low} \propto \begin{cases} Z, & Z \le Z_{\rm st} \\ 1 - Z, & Z > Z_{\rm st} \end{cases}$$
(8c)

が得られる. 熱発生率が大きい領域, $Q > 10^{6}$ J/(m³ sec), での温度および質量分率の分布 を図4に示す. 温度分布は, 吹き飛びを防ぐために設けたノズル部の高温により Burke-Schumann 解とは定性的な一致を示すにとどまるものの, メタンおよび酸素の質量分率分 布は Burke-Schumann 解とよく一致する.

3.2 火炎面近傍における流れの影響

図 5 は, $Z = Z_{st}$ で定義された火炎面上の自然座標 ξ の関数として (a) 熱発生率とスカ ラー散逸率および (b) 火炎法線歪み速度と火炎面内歪み速度および温度を示したもので ある. ここで $\xi = 0$ は火炎面と r 軸との交点に対応する. また,火炎面の法線ベクトルを nとして火炎法線歪み速度 φ_n および火炎面内歪み速度 φ_t は,それぞれ, $\varphi_n = n \cdot \nabla u \cdot n$, $\varphi_t = \nabla \cdot u - \varphi_n$ と定義される. このとき,図 3(b) で $4 \times 10^{-2} \leq z \leq 6 \times 10^{-2}$ 領域に存在 する高熱発生率の層は,図 5(a) において $4 \times 10^{-2} \leq z \leq 6 \times 10^{-2}$ の高熱発生率域に対応 する. 火炎片方程式 (7) に基づく多くの確率モデル (例えば Peters, 1984)がスカラー散逸 率を火炎を特徴づける確率変数としているように,図 5(a) は高熱発生率はスカラー散逸 率に依存していることを示している. また,火炎面上で温度変化が大きくないことよりこ の高スカラー散逸率は拡散係数の温度依存性ではなく,図 5(b) が示すように負の火炎法 線歪み速度の蓄積によってもたらされる混合分率の大きな勾配によるものであることが わかる.



図 5: 混合分率によって定義された火炎面 Z = Z_{st} 上での (a) 熱発生率 (実線), スカラー 散逸率 (破線) および (b) 火炎法線歪み速度, 火炎面内歪み速度 (実線), 温度 (破線).

図5に見られる火炎面上での熱発生率の不均一性を調べるために、図6(e)に示す火炎面 上5点で火炎面に垂直な座標系をとり、この座標系上での熱発生率、式(3c)で与えられる 水素と酸素の反応速度,混合分率および酸素の質量分率を図 6(a-d) に示す.図 6(a), 6(b) より、熱発生の層は、その大部分が反応式(2c)の水素と酸素による水の生成反応によって 生じていることがわかる.これは、2000Kを超える高温領域では,他の化学種と比較して 水素の持つエンタルピーが非常に大きいために水素の消費反応である式(2c)の反応が熱 発生率に大きく寄与するからである.また、図5と同様に、点C近傍における高熱発生率 は図 6(c) に示された混合分率の勾配の大きさによってもたらされるが、とくに、図 6(d) が 示すように, 混合分率の勾配は火炎周囲に存在する酸素の質量分率の勾配に起因するこ とを示している、すなわち、火炎面に流入する酸素が火炎面の熱発生に強い影響を与える のである.実際,図5に示したように火炎面上の速度歪みのみならず、火炎面に流入する 酸素は、高熱発生率層の外側の速度歪みに強く依存することがわかる(図7). すなわち,流 れ場の移流によってもたらされる混合分率,とりわけ酸素の質量分率の空間構造は,火炎 の熱発生率に大きな影響を与え、化学反応は流れ場の構造に強く依存すると言える.また、 図7は、火炎面を境界としてメタンと空気の領域で流れが分断されている様子を示してい る. これは,熱発生によって火炎面近傍で局所的に圧力が上昇し、火炎面が擬似的な障壁 となり火炎面をまたがる流れが抑制されるためと考えられる.この流れの分断は、流れ場 に対する化学反応からのフィードバックと言える.

4 まとめ

本研究では、メタン-空気の噴流拡散燃焼において、熱発生率の大きな面が化学量論的混 合分率によって定義される火炎面とよい一致を示すことを6種4段階簡略化学反応機構 による流体運動に関して一切の近似を用いない数値計算により確認した.また、熱発生の 大部分は水素と酸素の反応によるものであり、この反応は火炎の外側から流入する酸素に よって支配される.この点において、流れ場の構造は化学反応に大きな影響を与えると言



図 6: 火炎面に垂直な自然座標系での (a) 熱発生率, (b) 式 (3c) で与えられる水素と酸素の反応速度, (c) 混合分率, (d) 酸素の質量分率および (e)(a)-(d) を描くための火炎面に垂直な座標系. η は空気領域からメタン領域に向かう方向を正とした.



図 7: 高熱発生率層近傍の (a) 渦度および (b) 速度勾配テンソルの第1固有値. 実線は化 学量論的混合分率によって定義される火炎面である.

える. また,熱発生による圧力の局所的な増加により,流れ場は火炎面の両側で分断される. これは,流れ場に対する化学反応からのフィードバックと言える.

本研究の一部は、文部科学省学術フロンティア推進事業「次世代ゼロエミッション・エ ネルギー変換システム」の支援を受けた.また、本研究の数値計算は京都大学基礎物理学 研究所ならびに東北大学情報シナジーセンターの計算設備にて行った.

参考文献

- Baum, M., Poinsot, T., and Thévenin, D. (1994). Accurate boundary condition for multicomponent reactive flows. J. Comput. Phys. 116, 247-261.
- Bilger, R. (1988). The structure of turbulent nonpremixed flames. In Twenty-Second Symposium (International) on Combustion, pp. 475–488. The Combustion Institute, Pittsburgh.
- Burke, S. P. and Schumann, T. E. W. (1928). Diffusion flames. In *First Symposium* (*International*) on Combustion, pp. 2–11. The Combustion Institute, Pittsburgh.
- Donbar, J. M., Driscoll, J. F., and Carter, C. D. (2001). Strain rates measured along the wrinkled flame contour within turbulent non-premixed jet flame. *Combust. Flame* 125, 1239–1257.

Everest, D. A., Driscoll, J. F., Dahm, W. J. A., and Feikema, D. A. (1995). Images of

the two-dimensional field and temperature gradients to quantify mixing rates within a non-premixed turbulent jet flame. *Combust. Flame* **101**, 58–68.

- Jones, W. P. and Lindstedt, R. P. (1988). Global reaction schemes for hydrocarbon combustion. *Combust. Flame* **73**, 233-249.
- Kee, R. J., Rupley, F. M., Meeks, E., and Miller, J. A. (1996). Chemkin-III: A fortran chemical kinetics package for the analysis of gas-phase chemical and plasma kinetics. Technical Report SAND96-8216, Sandia National Laboratories.
- 木下進一,高城敏美,小宮山正治,脇田将寛 (2004). 大規模渦の干渉を受ける噴流拡散火 炎の数値解析.日本機械学会論文集 (B 編) **70**, 773–779.
- Lele, S. K. (1992). Compact finite difference schemes with spectral-like resolution. J. Comput. Phys. 103, 16–42.
- Nada, Y., Tanahashi, M., and Miyauchi, T. (2004). Effect of turbulence characteristics on local flame structure of H₂-air premixed flames. J. Turbulence 5, 16.
- Peters, N. (1984). Laminar diffusion models in non-premixed turbulent combustion. *Prog.* Energy Combust. Sci. 10, 319–339.
- Smooke, M. D., Wess, J., Ruelle, D., Jaffe, R. L., and Ehlers, J. (Eds.) (1991). Reduced Kinetic Mechanisms and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames, pp. 1– 28. Springer-Verlag.
- Takahashi, F. and Katta, V. R. (1996). Unsteady extinction mechanisms of diffusion flames. Proc. Combust. Inst. 26, 1151–1160.
- 植田利久 (2002). 反応系の流体力学. コロナ社.
- 山下博史, Djamrak, D., 竹野忠夫 (1998). 2次元燃料噴流拡散火炎の火炎構造と非定常挙動に対する素反応の役割.日本機械学会論文集 (B編) 64, 318-325.