熱損失を伴う水素-空気予混合火炎の不安定性*

門 脇 敏^{*1}, 中 屋 和 英^{*2}

Instability of Hydrogen-Air Premixed Flames with Heat Loss

Satoshi KADOWAKI^{*3} and Kazuhide NAKAYA^{*3} Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology,
Kamitomioka, Nagaoka-shi, Niigata, 940-2188 Japan

The instability of hydrogen-air premixed flames with heat loss has been investigated by two-dimensional, unsteady calculations of reactive flows. The numerical model containing the detailed hydrogen-oxygen combustion with 17 elementary reactions of 8 reactive species and a nitrogen diluent, compressibility, viscosity, heat conduction, molecular diffusion, and heat loss of Newtonian type was used. Estimating the diffusive-thermal effect on the instability of premixed flames, the equivalence ratio was varied 0.75 to 1.25. A sufficiently small disturbance was superimposed on a planar flame to obtain the dispersion relation and linearly most unstable wave number. To investigate the characteristics of cellular flames, the disturbance with the linearly most unstable wave number, i.e. the critical wave number, was superimposed. The superimposed disturbance evolves owing to intrinsic instability, and then the cellular-flame front forms. With an increase in the heat-loss parameter, the burning velocity of a cellular flame becomes monotonously smaller, which is due to the decrease in thermal expansion. However, the burning velocity of a cellular flame normalized by that of a planar flame at equivalence ratios lower than unity becomes larger near the quenching point.

Key Words: Premixed Combustion, Hydrogen Flame, Heat Loss, Intrinsic Instability

1. はじめに

近年, 燃料としての水素は, 低環境負荷の観点から大きく脚光を浴びている。現在, 多くの場合, 水素は化石燃料から製造されているが, カーボンニュートラルであるバイオマス等からの製造も検討されている。近い将来, バイオマス等からの水素の製造が軌道に乗れば, 低環境負荷燃料の水素は, 次世代のエネルギー資源として, 重要な役割を演じると思われる。

水素火炎の消炎距離は非常に短いので, 水素は超小型燃焼器の燃料としても注目されている。実用器における燃焼過程では, 高温気体から周囲壁面への熱損失が常に生じている。そして, この熱損失は, 燃焼速度や消炎などの燃焼特性に多くの影響を及ぼすことが知られている。特に超小型燃焼器では, その影響が顕著に現れるので, 熱損失に関する知見は燃焼器の実用化を図る上で非常に重要である。

熱損失は燃焼速度や消炎などに影響を及ぼすが, 予混合火炎の不安定性にも多大の影響を与える^{(1),(2)}。これまでに, 非断熱火炎の不安定性が解析的に調べられており, 熱損失と安定/不安定領域との関係, 並びに火炎不安定挙動との関係が示されている⁽³⁾⁻⁽⁶⁾。しかし, 気体の密度一定を仮定した拡散・熱的モデル方程式に基づいているので, 熱膨張の効果(流体力学的効果)は考慮されていない。その後, 著者は, 流体力学的効果を考慮した非断熱火炎の不安定性を, 圧縮性 Navier-Stokes 方程式に基づく数値計算を用いて調べた⁽⁷⁾。そして, 予混合火炎の不安定性に与える熱損失効果を明らかにした。しかし, 一段不可逆反応(未燃ガス⇒既燃ガス)を仮定しているため, 各々の化学種や化学反応が現象に及ぼす影響は明らかになっていない。

これまでに, 著者は, 詳細な化学反応を考慮した水素-空気予混合火炎(断熱火炎)の計算を遂行し, 火炎の固有不安定性を調べてきた⁽⁸⁾。それゆえ, 従来の計算コードを改良して, 熱損失の効果を加えることにより, 非断熱火炎の不安定性を調べることが可能である。そこで本研究では, 改良した計算コードを用いて

* 原稿受付 2006年3月20日。

^{*1} 正員, 長岡技術科学大学工学部(〒940-2188 長岡市上富岡町)。^{*2} 長岡技術科学大学大学院工学研究科。

E-mail: kadowaki@mech.nagaokaut.ac.jp

二次元非定常反応流れの数値計算を行い、水素-空気予混合火炎の不安定性に及ぼす熱損失の影響を調べる。そして、火炎の不安定性を示す分散関係、並びにセル状火炎の形状や燃焼速度に及ぼす熱損失効果を明確にする。

2. 支配方程式

本研究では、9個の化学種 (H_2 , O_2 , H , O , OH , HO_2 , H_2O , N_2) と 17 個の素反応を考え、反応速度は Westbrook のデータ⁽⁹⁾を採用する。各化学種の輸送係数は、分子動力学による理論計算により定める。そして、多成分系における輸送係数の値は、従来から提案されている近似式⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾を用いて求める。気体は理想気体の状態方程式に従うものとし、外力、体積粘性、輻射、Soret 効果、Dufour 効果、圧力勾配拡散は無視する。また、熱損失は、ニュートンの冷却の法則に従う、つまり気体と未燃ガスとの温度差に比例すると仮定する。支配方程式として、二次元非定常の圧縮性 Navier-Stokes 方程式を採用する。デカルト座標を用い、気体の主流方向を x 方向とし、火炎面の接線方向を y 方向とする。

本数値計算で用いる二次元非定常反応流れの支配方程式は、以下の通りである。

各化学種の連続の式

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_i) + \frac{\partial}{\partial x}(\rho Y_i u - \rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(\rho Y_i v - \rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y}) = w_i$$

質量保存の式

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho) + \frac{\partial}{\partial x}(\rho u) + \frac{\partial}{\partial y}(\rho v) = 0$$

運動量保存の式 (x 方向)

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u) + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \rho u^2 + p - \mu \left(\frac{4}{3} \frac{\partial u}{\partial x} - \frac{2}{3} \frac{\partial v}{\partial y} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ \rho uv - \mu \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \right\} = 0$$

運動量保存の式 (y 方向)

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho v) + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \rho uv - \mu \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ \rho v^2 + p - \mu \left(\frac{4}{3} \frac{\partial v}{\partial y} - \frac{2}{3} \frac{\partial u}{\partial x} \right) \right\} = 0$$

エネルギー保存の式

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t}(\rho e_t) + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ (\rho e_t + p)u - \kappa \frac{\partial T}{\partial x} - \sum_i \left(h_i \rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial x} \right) \right\} \\ & + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ (\rho e_t + p)v - \kappa \frac{\partial T}{\partial y} - \sum_i \left(h_i \rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial y} \right) \right\} \\ & = H(T - T_u) \end{aligned}$$

状態式

$$p = \left(\sum_i C_i \right) RT$$

ここで、 ρ は密度、 Y は質量分率、 (u, v) は (x, y) 方向の速度成分、 p は圧力、 e_t は全エネルギー、 T は温度、 C はモル濃度、 D は拡散係数、 w は反応速度、 μ は粘性係数、 κ は熱伝導率、 h はエンタルピー、 H は熱損失パラメーター、 T_u は未燃ガス温度、 R は一般気体定数である。また、添字 i は、 i 番目の化学種を示している。

3. 計算方法

水素-空気予混合気の当量比は、 $\phi=0.75 \sim 1.25$ とし、上流の未燃ガスの温度と圧力は、298K と $1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$ とする。数値計算手法として、時間・空間に対して共に二次精度である陽的 MacCormack 法を採用する。計算領域は、 x 方向には 40mm、 y 方向には擾乱の一波長分とする。また、時間ステップ間隔は 10ns とする。計算格子は、 x 方向には不等間隔格子を、 y 方向には等間隔格子を用い、格子数は 1056×33 とする。ここで、 x 方向の最小格子間隔は、0.02mm である。計算領域の上流側と下流側では、流れ変数の勾配が連続であるとする。未燃ガスの流入速度 S_i は、平面火炎の燃焼速度 S_u (当量比と熱損失パラメーターに依存) と一致させる。また、 y 方向の境界では、周期境界条件を用いる。

4. 平面火炎

平面火炎の燃焼速度と熱損失パラメーターの関係を示したのが図 1 である。熱損失が大きくなると共に、火炎の温度が低下するので、平面火炎の燃焼速度は小さくなる。また、消失点の近傍 ($H=H_m$) における燃焼速度を断熱火炎の燃焼速度で除した値は、各々の当量比において大差なく、約 0.6 である。そして、この値は、充分大きい活性化エネルギーを仮定した漸近解析により得られた結果^{(3), (4)} とほぼ一致している。

Fig. 1 Burning velocities of planar flames at $\phi = 0.75$, 1.00, and 1.25, depending on the heat-loss parameter

Fig. 4 Dispersion relations at $\phi = 0.75$, depending on the heat-loss parameter

Fig. 2 Temperature distributions of planar flames under adiabatic and non-adiabatic conditions at $\phi = 0.75$

Fig. 5 Dispersion relations at $\phi = 1.00$, depending on the heat-loss parameter

Fig. 3 Evolution of the disturbed flame front under adiabatic conditions at $\phi = 0.75$, $\lambda = 2.56$ mm, and $A_0 = 0.02$ mm ($t = 0.0, 0.2, 0.4, \dots, 1.0$ ms)

Fig. 6 Dispersion relations at $\phi = 1.25$, depending on the heat-loss parameter

図2は、 $\phi=0.75$ における定在平面火炎の温度分布を示したものである。断熱火炎の場合 ($H=0$)、既燃ガスの温度は断熱火炎温度に漸近する。非断熱火炎の場合 ($H=H_m=8.35 \times 10^5 \text{ W/m}^3\text{K}$)、既燃ガスの温度は下流へ行くに従い減少する。また、熱損失により、火炎の温度は大きく低下する。

5. 分散関係

予混合火炎の固有不安定性を調べるために、正弦波状の微小擾乱を平面火炎に加え、擾乱の発達の様子をシミュレートする。擾乱による火炎面の x 方向への変位は、以下の通りである。

$$A_0 \sin(2\pi y/\lambda)$$

ここで、 A_0 は擾乱の初期振幅、 λ は擾乱の波長である。擾乱の初期振幅は、 $A_0=0.02\text{mm}$ と設定する。

微小擾乱を断熱平面火炎に加えたときの時間毎の火炎面形状を示したのが図3である ($\phi=0.75$)。ここでは、 $T=1500\text{K}$ の所を火炎面の位置と定義している。未燃ガスが左方から流入し、既燃ガスが右方へ流出する。横軸 (x 軸) は、擾乱の初期振幅で標準化されている。火炎に加えられた擾乱の振幅は、時間と共に指数的に増大する。この様な擾乱の挙動は、非断熱火炎においても観察される。増幅率 ω を以下の様に定義する。

$$\omega = \frac{d}{dt} \ln(A/A_0)$$

ここで、 A は擾乱の振幅である。上記の式から増幅率を求めると、 $\omega=2067\text{s}^{-1}$ となる。なお、擾乱が時間に対して指数的に大きくなるのは、その振幅が充分小さいときのみである。擾乱の振幅がある程度大きくなると、その増幅率は小さくなり、最終的にはほぼ零となる。

擾乱の波長を変えて計算を行い、各波長における増幅率を求める。そして、波数と波長の関係

$$k = 2\pi/\lambda$$

を用いて、増幅率と波数の関係、つまり分散関係を求める。

図4は、 $\phi=0.75$ における分散関係を示したものである。熱損失が大きくなると共に、増幅率は小さくなり、不安定領域 (増幅率が正の領域) は狭くなる。これは、熱損失により熱膨張の効果が小さくなるからである。また、消炎点の近傍 ($H=H_m=8.35 \times 10^5 \text{ W/m}^3\text{K}$) では、熱損失がそれより小さい場合 ($H=8.00 \times 10^5 \text{ W/m}^3\text{K}$) と比較して、増幅率は大きくなる。この現象は、一段不可逆反応を仮定した数値計算⁽⁷⁾では見られなかった。その要因として、燃料 (水素) と酸化

剤 (酸素) の選択拡散と熱損失との相互作用が考えられる。断熱火炎の場合は、気体の温度は下流へ行くに従い単調に増加するが、非断熱火炎の場合は、火炎の近くでピーク値を取る (図2参照)。選択拡散の効果は、気体の温度を局所的に変化させ、火炎の不安定性に影響を及ぼす。この効果は、非断熱火炎の場合に顕著になると思われる。なぜなら、現象に多大な影響を及ぼす温度のピーク値が、選択拡散の効果により変化するからである。この機構、つまり選択拡散と熱損失との相互作用により、消炎点の近傍における増幅率が大きくなると考えられる。

図5は、 $\phi=1.00$ における分散関係を示したものである。増幅率は、熱損失の増大と共に小さくなるが、消炎点の近傍 ($H_m=1.84 \times 10^6 \text{ W/m}^3\text{K}$) で僅かに大きくなる。一方、 $\phi=1.25$ のときは、熱損失パラメータが大きくなると共に増幅率は単調に減少し、消炎点の近傍 ($H_m=2.57 \times 10^6 \text{ W/m}^3\text{K}$) で最小の値を取る (図6)。

6. セル状火炎

固有不安定性に起因して形成されるセル状火炎の挙動を調べるために、特性波長 (最大増幅率に対応する波長) と等しい波長を持つ擾乱を平面火炎に加えて計算を行う。ここでは、擾乱の初期振幅を $A_0=0.2\text{mm}$ と設定する。この値より小さい振幅をもつ擾乱を加えて計算を行っても、得られる結果は同様である。

図7と図8は、断熱及び非断熱条件下におけるセル状火炎の挙動を示したものである ($\phi=0.75$)。平面火炎に加えられた擾乱は、固有不安定性により発達し、セル状の火炎面が形成される。その後、セル状火炎は上流側へ移動する。これは、火炎面積の増大により燃焼速度が増加するからである。また、燃焼速度の増分は、セル状火炎の上流側への移動速度と等しくなる。なぜなら、未燃ガスの流入速度と平面火炎の燃焼速度を一致させているからである。断熱及び非断熱条件下における燃焼速度の増分が、 0.33m/s と 0.40m/s であるので、セル状火炎の燃焼速度 S_{cf} は、 1.47m/s と 1.03m/s となる。

図9と図10は、 $\phi=1.25$ におけるセル状火炎の挙動を示したものである。固有不安定性によりセル状火炎が形成され、燃焼速度が増加し、火炎は上流側へ移動する。断熱及び非断熱条件下における燃焼速度の増分は、 0.58m/s と 0.03m/s である。この場合、 $\phi=0.75$ のときとは逆に、断熱条件下における燃焼速度の増分は、非断熱条件下におけるそれより大きくなる。また、セル状火炎の燃焼速度は、 2.62m/s と 1.24m/s である。

Fig. 7 Front shapes of the cellular flame under adiabatic conditions at $\phi = 0.75$, $\lambda = 2.56\text{mm}$, $A_0 = 0.2\text{mm}$, and $S_i = 1.14\text{m/s}$ ($t = 0.0, 0.5, 1.0, \dots, 4.0\text{ms}$)

Fig. 8 Front shapes of the cellular flame under non-adiabatic conditions at $\phi = 0.75$, $\lambda = 2.56\text{mm}$, $A_0 = 0.2\text{mm}$, and $S_i = 0.63\text{m/s}$ ($t = 0.0, 0.5, 1.0, \dots, 4.0\text{ms}$)

Fig. 9 Front shapes of the cellular flame under adiabatic conditions at $\phi = 1.25$, $\lambda = 3.56\text{mm}$, $A_0 = 0.2\text{mm}$, and $S_i = 2.04\text{m/s}$ ($t = 0.0, 0.5, 1.0, \dots, 3.0\text{ms}$)

Fig. 10 Front shapes of the cellular flame under non-adiabatic conditions at $\phi = 1.25$, $\lambda = 5.33\text{mm}$, $A_0 = 0.2\text{mm}$, and $S_i = 1.21\text{m/s}$ ($t = 0.0, 2.0, 4.0, \dots, 10.0\text{ms}$)

Fig. 11 Burning velocities of cellular flames, burning velocities of planar flames, and normalized burning velocities of cellular flames at $\phi = 0.75$, depending on the heat-loss parameter

Fig. 12 Burning velocities at $\phi = 1.00$, depending on the heat-loss parameter

Fig. 13 Burning velocities at $\phi = 1.25$, depending on the heat-loss parameter

Fig. 14 Concentration distributions of hydrogen atom in planar and cellular flames under adiabatic conditions ($H=0$) at $\phi=0.75$

Fig. 16 Concentration distributions of hydrogen atom in planar and cellular flames under adiabatic conditions ($H=0$) at $\phi=1.00$

Fig. 15 Concentration distributions of hydrogen atom in planar and cellular flames under non-adiabatic conditions ($H=H_m$) at $\phi=0.75$

Fig. 17 Concentration distributions of hydrogen atom in planar and cellular flames under non-adiabatic conditions ($H=H_m$) at $\phi=1.00$

各々の熱損失におけるセル状火炎の燃焼速度、平面火炎の燃焼速度、及び両者の比（平面火炎の燃焼速度で標準化したセル状火炎の燃焼速度）を示したのが図 11 である ($\phi=0.75$)。熱損失パラメーターが大きくなると共に、 S_{cr} と S_{th} は単調に減少するが、 S_{cr}/S_{th} は単調に増加する。特に、消炎点の近傍では、急激に増大する。これは、不足成分（水素）の拡散係数が過剰成分（酸素）のそれより大きいこと、並びに混合気の熱拡散率より大きいことに拠るものと考えられる。図 12 は、 $\phi=1.00$ における各燃焼速度を示したものである。標準化したセル状火炎の燃焼速度は、熱損失が大きくないとき、ほぼ一定の値を保持している。しかし、消炎点の近傍では、その値が増加している。流体力学的効果のみにより形成されるセル状火炎では、 S_{cr}/S_{th} の値は熱損失の大きさによらずほぼ一定である⁽⁷⁾。したがって、 $\phi=1.00$ において S_{cr}/S_{th} の値が消炎点の近傍で増加しているのは、選択拡散と熱損失との相互作用がセル状火炎の燃焼速度に影響を及ぼすためと考えられる。図 13 は、 $\phi=1.25$ における各燃焼速度を示したものである。全ての燃焼速度が熱損失の増大と共に単調に減少する。

標準化したセル状火炎の燃焼速度が消炎点の近傍で急激に増大することを調べるために、平面火炎とセル状火炎における水素原子の濃度分布を求める。断熱条件下における水素原子の濃度分布を示したのが図 14 である ($\phi=0.75$)。未燃ガス側に凸な火炎面において、水素原子の濃度は高くなる。加えて、この領域では、気体の温度も高くなり、局所的燃焼速度も大きくなる。これは、選択拡散によるものと考えられる。非断熱条件下における濃度分布を示したのが図 15 である。水素原子濃度の変化量は、さらに大きくなる。これは、選択拡散と熱損失の相互作用に拠るものと考えられる。この相互作用により、 S_{cr}/S_{th} の値は、熱損失と共に単調に増加する。図 16 と図 17 は、 $\phi=1.00$ における濃度分布を示したものである。断熱条件下の場合（図 16）、平面火炎とセル状火炎における水素原子濃度には、大きな差が見られない。しかし、非断熱条件下の場合（図 17）、未燃ガス側に凸な火炎面において、水素原子の濃度は高くなる。この機構により、消炎点の近傍において S_{cr}/S_{th} の値が増大すると思われる。この特性には、選択拡散が強く作用していると考えられる。

7. おわりに

詳細な化学反応を考慮した水素-空気予混合火炎の数値計算を行い、固有不安定性に及ぼす熱損失の影響

を調べた。そして、火炎の不安定性を示す分散関係、並びにセル状火炎の形状や燃焼速度を求め、熱損失の役割を明らかにした。得られた結論は以下の通りである。

1) 熱損失が大きくなると共に、増幅率は小さくなり、不安定領域は狭くなる。これは、固有不安定性に対する熱膨張の効果が、熱損失により小さくなるからである。また、 $\phi \leq 1$ のとき、消炎点の近傍において増幅率は僅かに大きくなる。

2) 平面火炎に加えられた擾乱は、固有不安定性により発達し、セル状の火炎面が形成される。セル状火炎の燃焼速度は、熱損失パラメーターの増大と共に単調に減少する。しかし、それを平面火炎の燃焼速度で除した値は、熱損失パラメーターへの依存性が当量比により大きく異なる。つまり、 $\phi=0.75$ (< 1) のとき、 S_{cr}/S_{th} は H と共に単調に増加する。 $\phi=1.00$ のとき、 S_{cr}/S_{th} はほぼ一定の値を保持するが、消炎点の近傍で大きくなる。 $\phi=1.25$ (> 1) のとき、 S_{cr}/S_{th} は単調に減少する。この特性には、選択拡散が強く作用していると考えられる。

文 献

- (1) Williams, F. A., *Combustion Theory* 2nd Edition, (1985), pp. 349-365, Addison-Wesley.
- (2) Sivashinsky, G. I., *Ann. Rev. Fluid Mech.*, Vol. 15 (1983), pp. 179-199.
- (3) Joulin, G. and Clavin, P., *Combust. Flame*, Vol. 35 (1979), pp. 139-153.
- (4) Joulin, G. and Sivashinsky, G. I., *Combust. Sci. Technol.*, Vol. 31 (1983), pp. 75-90.
- (5) Buckmaster, J. and Jackson, T. L., *Combust. Sci. Technol.*, Vol. 103 (1994), pp. 299-313.
- (6) Kadowaki, S. and Fukugawa, T., *Trans. Japan Soc. Mech. Engr., Ser. B*, Vol. 70, No. 699 (2004), pp. 2883-2890.
- (7) Kadowaki, S., *Combust. Flame*, Vol. 143 (2005), pp. 174-182.
- (8) Kadowaki, S., *Trans. Japan Soc. Mech. Engr., Ser. B*, Vol. 61, No. 587 (1995), pp. 2718-2723.
- (9) Westbrook, C. K., *Combust. Sci. Technol.*, Vol. 29 (1982), pp. 67-81.
- (10) Wilke, C. R., *J. Chem. Phys.*, Vol. 18 (1950), pp. 517-519.
- (11) Coffee, T. P. and Heimerl, J. M., *Combust. Flame*, Vol. 43 (1981), pp. 273-289.
- (12) Wilke, C. R., *Chem. Eng. Prog.*, Vol. 46 (1950), pp. 95-104.