噴流噴霧火炎におけるすす生成過程の数値解析

Numerical Simulation of Soot Formation in Spray Jet Flames

渡邊 裕章^{a*}, 黒瀬 良一^b, 矢野 裕^b, 牧野 尚夫^a, 小森 悟^b

Hiroaki Watanabe, Ryoichi Kurose, Yutaka Yano, Hisao Makino, Satoru Komori

Received 8 February 2012; Accepted 25 April 2012

A two-dimensional numerical simulation is applied to spray jet flames, and effects of droplet size on soot formation behavior is investigated in detail in the mono- and poly-dispersed droplet size conditions. N-decane ($C_{10}H_{22}$) is used as a liquid fuel, and droplet motion is calculated by the Lagrangian method. The extended flamelet/progress-variable approach is employed for the turbulent combustion chemistry. A kinetically based soot formation model with the flamelet model is employed to predict soot formation. Radiation is taken into account using the discrete ordinate method. The results show that the soot is mainly formed in the large vortex structure in the downstream region and the soot formation behavior is strongly affected by the droplet size. The soot volume fraction increases with increasing the mono-dispersed droplet size, and the larger droplet in the widely-distributed condition affects the soot formation behavior.

Keywords: Numerical simulation, Spray combustion, Soot formation, Flamelet model, Droplet size

1. 緒 言

噴霧燃焼は、液体燃料の主要な利用形態として、ガスタービンエンジンや電力用ボイラ等のエネルギー変換機器やロケットエンジン等の推進装置をはじめ、多くの工業装置で利用されている。このような工業装置の開発、最適設計および運転条件の選定等において、燃焼時に生成される環境影響物質の窒素酸化物(NO_x)とすすの抑制が大きな課題として挙げられる。特に、すすは、PM_{2.5}等の微小粒子状物質として、近年注目が集まっており、その生成挙動の把握は重要である。しかしながら、噴霧火炎中では、液体燃

料の微粒化、油滴の気相への分散、蒸発、燃料蒸気の空気との混合反応など多くの過程が同時に進行しながら起こるため、その火炎構造は極めて複雑であり、依然不明な点が多い。これまで著者らは、層流対向流中に形成される噴霧火炎の直接数値計算(direct numerical simulation, DNS)を実施し、油滴の群燃焼や火炎片の挙動等について詳細な検討を行ってきた^{1~5)}。

他方、すすの生成挙動についても、近年、著者らを含め、多くの研究者により精力的な研究が進められている^{5~14)}。この理由として、すす生成に係わる化学種や微小すす粒子の挙動に関する数値モデルが提案されると共に、計算機性能の飛躍的な向上にともない、LES(Large-eddy simulation)等の高精度な非定常流体解析法とのカップリングが可能な乱流燃焼モデルが開発され、乱流場における化学反応の詳細を把握することができるようになってきたこと^{15~17)}が挙げられる。ガス燃焼分野では、El-Asrag ら¹⁰⁾による linear eddy モデルを用いた LES による予混合火炎内のすす生成予測や、Mueller ら¹⁴⁾による flamelet モデル¹⁸⁾を用いた拡散噴流火炎内のすす生成予測等すす生成に関する複雑な化学反応と乱流計算とのカップリングに関する

a (財) 電力中央研究所 エネルギー技術研究所
(〒240-0196 神奈川県横須賀市長坂2-6-1)
TEL 046-856-2121
Energy Engineering Research Laboratory, Central Research
Institute of Electric Powder Industry
(2-6-1 Nagasaka, Yokosuka, Kanagawa 240-0196 Japan)
b 京都大学大学院 工学研究科
(〒606-8501 京都市左京区吉田本町)
TEL 075-753-9218
Department of Mechanical Engineering and Science, Kyoto
University
(Yoshida-honmachi, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501 Japan)
* 連絡先 E-mail: whiroaki@criepi.denken.or.jp

研究が進められている。特に近年、すす生成に関わる数多くの化学種と素反応を比較的低い計算負荷で取り扱うことが可能な flamelet モデルは、実用規模の燃焼器への適用性の観点から注目されている。しかしながら、噴霧燃焼分野については、火炎自体が上述のようにきわめて複雑であるため、ようやく LES の適用が検討されてきた段階^{19, 20)}であり、実験計測の難しさと相まって、噴霧火炎内のすす生成に関する知見はほとんどない。そこで著者らは、噴霧火炎内のすす生成挙動を明らかにするため、*n*-デカンの噴霧火炎に対して、112化学種と883反応式を考慮する flamelet モデルを用いた 2 次元 DNS を行い、flamelet モデルにより得られた噴霧火炎内のすす生成特性が実験と定性的に一致すること、および、すす生成が燃料油滴の当量比や輻射伝熱に大きな影響を受けること等を明らかにした¹¹⁾。また、Sauter 平均径 (SMD) が、拡散火炎の形成とすす生成に及ぼす影響を明らかにした¹²⁾。さらに、ごく最近、単分散油滴径条件でのすす生成特性について、詳細な実験と 2 次元 DNS を実施し、拡散火炎内部から外部に向かってすす粒子径が成長していく様子を明らかにしている¹³⁾。しかしながら、これらは全て、拡散火炎の基礎的な形態である層流対向流場における検討であり、より実用燃焼器に近い流れ場である噴流火炎において、油滴径条件がすす生成や凝集に及ぼす影響については、ほとんど議論がなされていない。

そこで本研究では、噴流の噴霧火炎を対象に、2 次元 DNS を実施することにより、噴霧の油滴径条件がすす生成や凝集過程に及ぼす影響について明らかにすることを目的とする。すすの生成には、アセチレンを前駆体とした核生成、凝集、表面成長、および酸化反応の各過程を考慮する。

2. 計算方法

2. 1 支配方程式

本研究では、速度論に基づくすす生成モデルを採用する。すすの前駆体に C_2H_2 を、酸化剤には OH ラジカルと酸素を考慮する。ガス組成は、後述する拡張 flamelet/progressvariable 法により決定する。気相の支配方程式は、質量、運動量、およびエネルギーの保存式である。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_j}{\partial x_j} = S_\rho \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho u_i}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_j u_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} + S_{u_i} \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho h}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_j h}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho a \frac{\partial h}{\partial x_j} \right) + S_h \quad (3)$$

ここで、 ρ 、 u_i 、および h は、それぞれ密度、速度、および全エンタルピーである。また、 σ_{ij} は粘性応力テンソルであり、次式で与えられる。

$$\sigma_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \mu \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \quad (4)$$

ここで、 μ は粘性係数である。エンタルピーの拡散係数 a は、Lewis 数 = 1 の仮定から、 $\rho a = \lambda / c_p$ で与える。また、 S_ρ 、 S_{u_i} 、および S_h は、油滴との干渉による生成項であり、それぞれ次式で表される。

$$S_\rho = -\frac{1}{\Delta V} \sum_N \frac{dm_d}{dt} \quad (5)$$

$$S_{u_i} = -\frac{1}{\Delta V} \sum_N \frac{d}{dt} (m_d u_{d,i}) \quad (6)$$

$$S_h = -\frac{1}{\Delta V} \sum_N \left[\frac{1}{2} \frac{d}{dt} (m_d u_{d,i} u_{d,i}) + Q_d + \frac{d}{dt} (c_{p,d} m_d T_d) \right] \quad (7)$$

ここで、 $c_{p,d}$ は油滴比熱、 ΔV は検査体積、 Q_d は対流熱流束である。油滴の挙動は、ラグランジュ的に解くことにより求める。油滴密度は気相よりも十分に大きいと仮定し、油滴の挙動に対して、抗力と重力の影響のみを考慮し、流れのせん断力に起因する揚力は無視する²¹⁾。さらに、油滴の衝突、分裂および合体は考慮しない²²⁾。油滴の蒸発モデルには、非平衡 Langmuir-Knudsen モデルを用いる²³⁾。油滴の位置 ($x_{d,i}$)、速度 ($u_{d,i}$)、温度 (T_d)、および質量 (m_d) に関する保存式は、次式で表される。

$$\frac{dx_{d,i}}{dt} = u_{d,i} \quad (8)$$

$$\frac{du_{d,i}}{dt} = \frac{f_1}{\tau_d} (u_i - u_{d,i}) \quad (9)$$

$$\frac{dT_d}{dt} = \frac{Nu}{3Pr} \left(\frac{c_p}{c_{p,d}} \right) \left(\frac{f_2}{\tau_d} \right) (T - T_d) + \frac{1}{m_d} \left(\frac{dm_d}{dt} \right) \frac{L_v}{c_{p,d}} \quad (10)$$

$$\frac{dm_d}{dt} = -\frac{Sh}{3Sc} \frac{m_d}{\tau_d} \ln(1 + B_M) \quad (11)$$

ここで、 L_v は潜熱、 Nu 、 Pr 、 Sh 、および Sc は、それぞれ Nusselt 数、Prandtl 数、Sherwood 数、および Schmidt 数、 τ_d は粒子緩和時間、 B_M は相間移動係数、 f_1 と f_2 はそれぞれ油滴の蒸発による抗力と熱伝達に

関する修正係数²⁴⁾である。

以上の支配方程式および計算手法の詳細については、文献^{2~4)}を参照されたい。

2. 2 拡張 flamelet/progress-variable 法

拡張 flamelet/progress-variable 法 (FPVA-PE)^{4, 25)}では、データベースである flamelet ライブラリを参照しながら、変動流れ場を計算することで燃焼流に対する解を得る。変動流れ場については、Eqs. (1)~(3)の各保存式に加え、次の混合分率 (Z) と反応進行変数 (C) の輸送方程式を解く。

$$\frac{\partial \rho Z}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho v Z) = \nabla \cdot (\rho D_Z \nabla Z) + S_Z \quad (12)$$

$$\frac{\partial \rho C}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho v C) = \nabla \cdot (\rho D_C \nabla C) + \rho \dot{\omega}_C \quad (13)$$

ここで、 D_Z と D_C は、それぞれ Z と C に関する拡散係数であり、Eq. (3) と同様に、Lewis 数 1 を仮定し、 $D_Z = \lambda / c_p$ 、 $\rho D_C = \lambda / c_p$ により与える。 S_Z と $\rho \dot{\omega}_C$ は、それぞれ燃料油滴の蒸発による Z の生成項、化学反応に伴う C の生成項である。 C は任意の変数により定義することが可能であるが、FPVA-PE では、 C を反応生成物と定義する ($C = Y_{CO} + Y_{CO_2} + Y_{H_2} + Y_{H_2O}$)。このとき、それぞれの生成項は次式で表される。

$$S_Z = \frac{\partial \rho Z}{\partial t} = \frac{dm_d}{dt} \quad (14)$$

$$\rho \dot{\omega}_C = \rho (\dot{\omega}_{CO} + \dot{\omega}_{CO_2} + \dot{\omega}_{H_2} + \dot{\omega}_{H_2O}) \quad (15)$$

FPVA-PE では、変動流れ場の計算から得られる Z と C を参照パラメータとして、flamelet library にテーブル化されている flamelet データを次式に従って抽出することで得る。

$$\rho = \rho(Z, C), \quad T = T(Z, C), \quad Y_k = Y_k(Z, C) \quad (16)$$

ここで、 k は各化学種を表す。Flamelet library は、 Z 空間において、1 次元火炎片方程式を解くことで得られる。本研究では、 Z 空間における n -デカン / 空気の 1 次元層流対向流拡散火炎方程式の計算には、112 の化学種と 883 の素反応過程を考慮した²⁶⁾。

一般的に変動流れ場におけるガス温度は、輻射伝熱や相間の潜熱・物質の移動により、flamelet ライブラリにテーブル化されている断熱計算のガス温度と一致しない。Ihme and Pitsch¹⁹⁾ は、flamelet ライブラリを作成する際の火炎片方程式にこれらの熱損失項を考慮することで、非断熱計算を可能としたが、計算量やライブラリ容量が膨大になる。ここでは、変動流れ場に

おけるエンタルピー保存式の解と、flamelet ライブラリにテーブル化されているエンタルピーの値から、変動流れ場のガス温度を修正することで、変動流れ場における熱移動を考慮する。このとき、ガス温度の修正値は次式で計算される。

$$\Delta T = \frac{h_{\text{dns}} - h_{\text{lib}}}{c_p} \quad (17)$$

ここで、 h_{dns} と h_{lib} は、それぞれ変動流れ場と flamelet 空間における全エンタルピーである。FPVA-PE の詳細は、文献^{4, 25)}を参照されたい。なお、本計算では、計算負荷低減の観点から輻射の影響は無視した。

2. 3 すす生成モデル

本研究では、すすの挙動を、次に示すすすの数密度 ($N \text{ m}^{-3}$) と質量密度 ($M \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$) の各保存式を解くことによって求める。

$$\frac{\partial \rho \phi}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho u_j \phi - \rho D_s \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \right) = S_\phi \quad (18)$$

ここで、 D_s は拡散係数、 ϕ は N または M を表す。ただし、 N と M は次式で与えられる。

$$N = N_A \rho \phi_N, \quad M = \rho \phi_M \quad (19)$$

ここで、 N_A はアボガドロ数 ($6.02 \times 10^{26} \text{ kmol}^{-1}$) である。また、それぞれの保存式の生成項は、次式で表すことができる。

$$S_N = \frac{1}{N_A} \left[\left(\frac{dN}{dt} \right)_{\text{Inc.}} + \left(\frac{dN}{dt} \right)_{\text{Coa.}} \right] \quad (20)$$

$$S_M = \frac{M_p}{N_A} \left(\frac{dN}{dt} \right)_{\text{Inc.}} + \left(\frac{dM}{dt} \right)_{\text{Gro.}} + \left(\frac{dM}{dt} \right)_{\text{Oxi.}} \quad (21)$$

ここで、 M_p はすすのモル質量 ($1,200 \text{ kg} = \text{kmol}$) である²⁷⁾。本研究では、すすの生成は、核生成 (inception)、凝集 (coagulation)、表面成長 (growth) および酸化反応 (oxidation) の各過程から構成されるものと仮定する。

すすの前駆体として C_2H_2 を仮定し、すすの核生成速度には、次式で表される Leung らの単純化モデル²⁷⁾を用いる。

$$\left(\frac{dN}{dt} \right)_{\text{Inc.}} = c_1 N_A \left(\rho \frac{Y_{\text{C}_2\text{H}_2}}{W_{\text{C}_2\text{H}_2}} \right) e^{-\frac{E_1}{T}} \quad (22)$$

ここで、 $c_1 = 54 \text{ s}^{-1}$ ⁷⁾、 $E_1 = 21100 \text{ K}$ ^{27, 28)} である。

すすの凝集は、すす粒子同士の衝突頻度に比例すると考えられる。衝突頻度は、すすの粒子径と雰囲気ガ

Table 1 Cases presented

Cases	Droplet size (Sauter mean) d_p/SMD (μm)	Droplet size distribution	Equivalence ratio ϕ_1 (—)
Case 1 (base)	50	mono-dispersed	1.26
Case 2	50	poly-dispersed	1.26
Case 3	82	mono-dispersed	1.26
Case 4	104	mono-dispersed	1.26

スの平均自由行程から決めることができ、凝集速度は次式で与えられる²⁹⁾。

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{\text{Coa}} = -\left(\frac{24R}{\rho_{\text{soot}} N_A}\right)^{1/2} \left(\frac{6}{\pi \rho_{\text{soot}}}\right)^{1/6} \times T^{1/2} M^{1/6} N^{1/6} \quad (23)$$

ここで、 R は一般ガス定数、 ρ_{soot} はすすの密度 ($2,000 \text{ kg/m}^3$) である。

すすの表面成長は、核生成と同様に、 C_2H_2 が寄与するものと仮定する^{30, 31)}。このとき、表面成長速度は、

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{\text{Gro.}} = c_A \left(\rho \frac{Y_{\text{C}_2\text{H}_2}}{W_{\text{C}_2\text{H}_2}}\right) e^{-\frac{E_2}{T}} \times \left[(\pi N)^{1/3} \left(\frac{6M}{\rho_{\text{soot}}}\right)^{2/3}\right] \quad (24)$$

ここで、 $c_4 = 9000.6 \text{ kg} \cdot \text{m} = (\text{kmol} \cdot \text{s})$ 、 $E_2 = 12100 \text{ K}$ ^{27, 28)} である。

OH ラジカルと酸素をすすの酸化反応の酸化剤として考慮する^{28, 29)}。このとき、すすの酸化反応速度は、OH ラジカルによる反応速度と酸素による反応速度との加算の形で表される⁹⁾。

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{\text{Oxi.}} = -c_5 \eta \rho \frac{Y_{\text{OH}}}{W_{\text{OH}}} T^{1/2} (\pi N)^{1/3} \left(\frac{6M}{\rho_{\text{soot}}}\right)^{2/3} - c_6 \rho \frac{Y_{\text{O}_2}}{W_{\text{O}_2}} e^{-\frac{E_3}{T}} T^{1/2} (\pi N)^{1/3} \left(\frac{6M}{\rho_{\text{soot}}}\right)^{2/3} \quad (25)$$

ここで、 $\eta = 0.13$ 、 $c_5 = 105.81 \text{ kg} \cdot \text{m} = (\text{kmol} \cdot \text{K}^{1/2} \cdot \text{s})$ 、および $c_6 = 8903.51 \text{ kg} \cdot \text{m} = (\text{kmol} \cdot \text{K}^{1/2} \cdot \text{s})$ 、 $E_3 = 19778 \text{ K}$ ³²⁾ である。

すす生成モデルに必要な化学種の濃度は、Eq. (16) により決定される。

2. 4 計算条件

Fig. 1 に計算領域と流入条件の概略を示す。噴霧油滴の流入速度は、ガス流速と同様とした。計算領域は二次元の $0.0 \leq x^* \leq 4.5$ 、 $-1.0 \leq y^* \leq 1.0$ の矩形領域であり、計算格子には、 $1,500 \times 400$ 点を配置した。ただ

Fig. 1 Schematics of computational setup

し、 $x^* \equiv x/L_0$ 、 $y^* \equiv y/L_0$ であり、基準長さ (L_0) を 5 cm とした。格子は不等間隔の直交スタッガード格子を使用した。スパン方向の空間刻みは反応帯近傍で $\Delta y^* = 0.001$ 、主流方向の空間刻みは一定で $\Delta x^* = 0.003$ とした。また、流入境界以外はすべて自由流出境界とした。

運動量保存式の移流項には 2 次精度完全保存スキーム³³⁾ を、スカラー量の移流項には QUICK スキームを³⁴⁾ 用いた。その他の項については 2 次精度中心差分法を用いた。計算のアルゴリズムは fractional step 法³⁵⁾ を用い、時間積分は 2 次精度 Runge-Kutta 法を用いた。時間刻みは、クーラン数を 0.4 に固定して決定した。この時、時間刻みは 10^{-6} s オーダーとなる。また、流体の物性については、Eq. (16) により決定した。

本研究では、噴霧油滴の当量比 (ϕ_1) は、すべて 1.26 とした。油滴粒子径の影響を調べるため、単分散条件で $50, 82, 104 \mu\text{m}$ のもの、および算術平均粒子径 $d_{10} = 50 \mu\text{m}$ (最大 $100 \mu\text{m}$ 、最小 $1 \mu\text{m}$) で均一に分布するものの計 4 条件を検討した。本研究で検討する条件を **Table 1** にまとめる。なお、Case 3 および 4 は、比較のため、対向流拡散火炎を対象に検討した条件¹³⁾ と同一である。入口境界におけるガス流速の変動は、文献^{4, 15)} と同様に考慮した。また、油滴の初期位置は一樣乱数を用いて決定し、その速度は気相の流入速度に等しいとした。

Fig. 2 Comparison of distributions of instantaneous gaseous temperature T
 (a) Case 1 (b) Case 2
 (c) Case 3 (d) Case 4

Fig. 3 Comparison of distributions of instantaneous mixture fraction Z
 (a) Case 1 (b) Case 2
 (c) Case 3 (d) Case 4

3. 結果と考察

3. 1 噴流噴霧火炎の燃焼特性

Fig. 2 に、各油滴径条件 ((a) Case 1 (単分散, 粒子径 $50\mu\text{m}$), (b) Case 2 (多分散, 平均粒子径 $50\mu\text{m}$), (c) Case 3 (単分散, 粒子径 $82\mu\text{m}$), および (d) Case 4 (単分散, 粒子径 $104\mu\text{m}$)) におけるガス温度 (T) の瞬間分布を示す。図より、各条件において、燃料投入ポート直後から、油滴噴流の上下外縁で着火し、下流に向かって火炎が発達していることがわかる。また、 $x^* = 2$ 程度までの上流域では、安定した噴流火炎が形成される一方で、 $x^* = 2 \sim 3$ にかけて、噴流にともなう渦構造が発達し、これより下流域では火炎が分断され、独立した渦状火炎が見られる。これらの噴流状火炎と渦状火炎では、ともに酸素が外部流から供給される火炎外縁に高温域が形成されており、燃料油滴の蒸発が顕著で酸素不足となる火炎内部には、比較的低い温度の領域が形成される。油滴径条件の影響に注目すると、ベース条件の Case 1 に比較して、単分散粒子径が大きくなる Case 3 と 4 では、粒子径がより大きくなるほど、着火位置が下流に移動することがわかる。

Fig. 3 に、各油滴径条件における混合分率 (Z) の瞬間分布を示す。 Z の生成は、燃料油滴の蒸発によって進行するため、 Z 分布は、**Fig. 2** における T 分布と似た形状をもつが、図より、 Z の高い領域は、**Fig. 2** において酸素不足となる火炎内部に存在することがわかる。これは、主に火炎内部で燃料油滴の蒸発が進行していること、蒸発した燃料ガスは火炎外縁に移流・拡散し、強い拡散火炎を形成することを示唆してい

る。また、最も Z が高い値を示すのは、**Fig. 2** において安定的な噴流火炎が形成される上流域であることがわかる。油滴径条件の影響に注目すると、ベース条件の Case 1 に比較して、単分散粒子径が大きくなる Case 3 と 4 では、燃料投入ポートから離れたより下流の位置にこの高 Z 領域が形成される。これは、粒子径が大きくなるに従い、燃料ガスの蒸発速度が低くなるためである。また、粒子径分布をもつ Case 2 も、Case 1 に比較して高 Z 領域は下流に形成されている。これは、Case 2 の粒子径分布のうち、Case 1 の $50\mu\text{m}$ よりも大きな粒子径をもつ油滴粒子の蒸発速度の影響が顕著であり、Case 2 における燃料ガスの蒸発速度は、Case 3 および 4 と同様に、Case 1 よりも低いと推察される。

より定量的な比較をするため、**Fig. 4** に、各油滴条件における時間平均ガス温度 ($\bar{T}$) の (a) 中心軸上分布、および各流れ方向位置におけるスパン方向分布 ((b) $x^* = 1.2$, (c) $x^* = 2.4$, および (d) $x^* = 3.6$) を示す。中心軸上分布より、 $\bar{T}$ は、燃料投入ポート出口から急速に上昇し、ピーク値を取る。 $\bar{T}$ は、ピーク値を取った後、 $x^* = 0.5$ 程度下流までいったん低下し、その後、さらに上昇する。この一時的な $\bar{T}$ の低下は、cooling effect^{2,3)} に起因しており、その下流では、外部流から巻き込まれる酸素との混合が進み、高温が維持されるものと考えられる。油滴径条件の影響に注目すると、中心軸上において、Case 1 における $\bar{T}$ が最も速やかに昇温すること、単分散条件では、粒子径が大きくなるに従い着火が遅れるものの、着火時の昇温に伴うピーク値は高くなる傾向にあることがわかる。また、粒子径分布をもつ Case 2 は、単分散条件の Case

Fig. 4 Comparison of time-averaged gaseous temperature $\bar{T}$

- (a) Axial distribution
- (b) Spanwise distribution at $x^*=1.2$
- (c) Spanwise distribution at $x^*=2.4$
- (d) Spanwise distribution at $x^*=3.6$

1に比較して着火が遅れるものの、上述の一時的な $\bar{T}$ のピーク値は高い値を示しており、Case 3に近い分布である。これらの挙動は、前述のように、粒子径が大きいほど蒸発速度が低下すること、Case 2では、Case 1よりも大きな粒子径をもつ油滴粒子の蒸発速度の影響が顕著であることに起因するものと考えられる。一方、スパン方向分布に注目すると、 $x^*=1.2$ では、火炎外縁の高温領域に対応する $\bar{T}$ のピーク値が $y^*=0.1\sim0.2$ 付近に見られるが、それよりも下流域では、各油滴条件ともに $\bar{T}$ のピーク値は、中心軸近傍に存在する。これは、下流域では、大規模な渦による混合が促進されるためであると考えられる。また、下流域では、各油滴条件において、 $\bar{T}$ の分布に大きな差異は見られない。これは、同一の当量比である上に、下流域ではある程度蒸発が進んでいるためである。

Fig. 5に、各油滴径条件における時間平均混合分率 ($\bar{Z}$) の (a) 中心軸上分布、および各流れ方向位置におけるスパン方向分布 ((b) $x^*=1.2$, (c) $x^*=2.4$, および (d) $x^*=3.6$) を示す。中心軸上分布より、各条件において、 $\bar{Z}$ がピーク値を取る位置は、Fig. 4において、着火時に $\bar{T}$ がピーク値を取った後に、一時的に温度が低下する位置に一致することがわかる。前述のとおり、 Z の生成は、油滴粒子の蒸発によって進

Fig. 5 Comparison of time-averaged mixture fraction $\bar{Z}$

- (a) Axial distribution
- (b) Spanwise distribution at $x^*=1.2$
- (c) Spanwise distribution at $x^*=2.4$
- (d) Spanwise distribution at $x^*=3.6$

行するため、この挙動はいわゆる cooling effect によるものと推察される。油滴径条件の影響に注目すると、Case 1において $\bar{Z}$ がピーク値を示す位置は、他の条件よりも上流に位置すること、さらに、その値は最も高いことがわかる。単分散条件では、油滴径が大きくなるほど、Fig. 3に見られたように、ピーク値を示す位置が下流に移動することに加え、その値も低くなる。これらの挙動は、油滴径が大きくなるに従い、蒸発速度が遅くなることに起因する。また、粒子径分布をもつ Case 2は、Fig. 4と同様に、Case 3に近い挙動を示している。

3. 2 噴流噴霧火炎のすす生成特性

Fig. 6に、各油滴径条件におけるすす体積分率 (V_s) の瞬間分布を示す。図より、各々の条件において V_s の高い領域は、Fig. 3において高い Z を示す領域に対応しているが、上流側に形成される安定的な噴流火炎内にはほとんど見られず、噴流火炎が下流に移流するに従い形成されていく大規模な渦構造の内部に存在することがわかる。この領域は、Fig. 2に見られる火炎外縁の高温領域に取り囲まれており、 Z が高い値を示す領域と一致する。これらのことから、 V_s が高い値を示すのは、すすの生成や消費反応に重要なガス温度は比較的高い値を示すものの、燃料ガス過濃で、かつ

Fig. 6 Comparison of distributions of instantaneous soot volume fraction V_s .
(a) Case 1 (b) Case 2
(c) Case 3 (d) Case 4

すすの酸化剤である酸素や OH ラジカルが不足する領域だと考えられる。油滴径条件の影響に注目すると、ベース条件の Case 1 に比較して、単分散粒子径が大きくなる Case 3 と 4 では、粒子径が大きくなるほど高い値を示している。これは、粒子径が大きいくほど、燃料ガスの蒸発速度が低くなることで Z の生成がより下流域で顕著になることに加え、酸化剤との混合時間が長くなることによるものと考えられる。また、粒子径分布をもつ Case 2 の V_s は、単分散条件の Case 1 よりも高い値を示す。これは、Fig. 3 において推察されたように、Case 2 の粒子径分布のうち、Case 1 の $50\mu\text{m}$ よりも大きな粒子径をもつ油滴粒子の蒸発速度の影響が顕著であることに起因するものと考えられる。

Fig. 7 に、各液滴径条件におけるすす粒子径 (d_s) の瞬間分布を示す。図より、各々の条件において d_s の高い領域は、Fig. 6 において高い V_s を示す領域に一致しており、比較的下流域に存在する。特に、下流域の大規模な渦構造の中心に向かって、 d_s が大きくなっていることがわかる。Hayashi ら¹³⁾ によると、層流対向流中で、 d_s はよどみ面中央付近から外側に向かって大きくなるが、いずれの場合においても、核生成反応により生成したすす粒子が、流体の移流に従い滞留するうちに、凝集、もしくは表面成長により、その粒子径が大きくなる傾向を示していると言える。油滴径条件の影響に注目すると、ベース条件の Case 1 に比較して、単分散粒子径が大きくなる Case 3 と 4 では、粒子径が大きくなるほど高い値を示している。また、粒子径分布をもつ Case 2 の V_s は、単分散条件の Case 1 よりも高い値を示す。

Fig. 7 Comparison of distributions of instantaneous soot particle size d_s .
(a) Case 1 (b) Case 2
(c) Case 3 (d) Case 4

すす生成のメカニズムをより定量的に調べるため、**Fig. 8** に、各油滴径条件における中心軸上の時間平均 (a) すす体積分率 ($\bar{V}_s$)、(b) すす粒子径 ($\bar{d}_s$)、(c) セチレン濃度 ($\bar{Y}_{\text{C}_2\text{H}_2}$)、および (d) すすの酸化剤濃度 (酸素と OH ラジカル) ($\bar{Y}_{\text{O}_2}$ と $\bar{Y}_{\text{OH}}$) の分布を示す。 $\bar{V}_s$ は、各条件において、 $x^*=2$ 付近から顕著になり、 $x^*=3.0$ 付近でピーク値を取った後、減少する傾向を示す。油滴径条件の影響に注目すると、単分散条件では、油滴径が大きくなるほど、 $\bar{V}_s$ は高いピーク値をもつことがわかる。多分散条件の Case 2 は、単分散条件の Case 1 に比較して、ピーク値に大きな差異は見られなかったが、より下流域にまで分布が広がっている。 $\bar{d}_s$ は、各条件において、上流から徐々に大きくなる傾向にあるが、Case 1 は、 $x^*=3.0$ 付近でピーク値をとり、その後減少傾向を示している。これらの挙動を理解するために、すすの前駆体と酸化剤であるアセチレン、酸素、および OH ラジカルについて注目すると、アセチレンは、 $\bar{Z}$ の分布との相関が強く、ピーク値は上流域に現れること、また、下流に向かうに従い、徐々に低下していくことがわかる。 $\bar{Y}_{\text{C}_2\text{H}_2}$ のピーク値は、各条件において大きな差異は見られない。一方、すすの酸化剤である酸素は、 $\bar{T}$ の分布において着火後にピーク値をとる位置で最小値をとり、その後下流に向かって徐々に上昇していく。また、OH ラジカルについても、着火位置に置いてピーク値が現れた後、いったん低下するものの、下流に向かって徐々に上昇していく傾向を示す。これは、下流域では、大規模な渦構造の発達にともない、中心軸上にも外部流の酸素が巻き込まれること、この酸素の巻き込みにともない、渦の外縁に高温領域が現れることによる。 $\bar{V}_s$

Fig. 8 Comparisons of time-averaged axial distributions

- (a) Soot volume fraction $\bar{V}_s$
- (b) Soot particle size $\bar{d}_s$
- (c) Mass fraction of acetylene $\bar{Y}_{C_2H_2}$
- (d) Mass fraction of oxidizers $\bar{Y}_{O_2}$ and $\bar{Y}_{OH}$

Fig. 9 Comparison of axial distributions of time-averaged soot formation rates

- (a) Case 1 (b) Case 2
- (c) Case 3 (d) Case 4

が、 $x^* = 3.0$ 付近でピーク値をもつのは、上流域の $\bar{Y}_{C_2H_2}$ が高い領域で核生成反応により発生したすす粒子が、下流に向かって滞留するうちに凝集や表面成長によって成長すること、さらに下流域では、酸化剤濃度の上昇により、消費反応が徐々に進むこと等によるものと考えられる。

さらに詳しくすす生成に関与する反応を調べるため、**Fig. 9** に、各油滴条件における中心軸上の時間平均すす生成・消費速度 ((a) Case 1, (b) Case 2, (c) Case 3, および (d) Case 4) を示す。ただし、Inc. は核生成速度を、Sur. は表面成長速度を、Oxi. は酸化速度を、Coa. は凝集速度を、Sum. はこれらの生成・

消費速度の合計を示す。また、判別のため、核生成速度と凝集速度については、縦軸を100倍に拡大した。図より、核生成速度は、 $\bar{Y}_{C_2H_2}$ の高い領域に対応し、 $x^* = 1.0 \sim 2.0$ 付近でピーク値をもち、その後減少することがわかる。 $x^* = 2.0$ よりも下流域で次にピーク値をもつのは、表面成長速度であり、この反応がすす生成を支配していることがわかる。酸化反応が顕著になるのは、 $\bar{Y}_{O_2}$ 、および $\bar{Y}_{OH}$ に見られるとおり、 $x^* = 3.0$ よりも下流域である。この領域では、すすの生成反応よりも酸化による消費反応の方が顕著であることがわかる。油滴径条件の影響に注目すると、単分散条件では、油滴径が大きくなるほど、生成速度が高い値を示すこと、生成速度のピーク値は下流域へ移動することがわかる。多分散条件の Case 2 は、単分散条件の Case 1 に比較して、生成速度の分布形状が比較的平坦で、下流域に広がっており、 $\bar{V}_s$ や $\bar{d}_s$ の傾向と一致する。これは、粒子径分布に含まれる比較的大きな油滴の蒸発速度が遅く、より下流域ですす生成反応が顕著になる Case 3 や 4 の特徴と同傾向だと考えられる。

4. 結 言

本研究では、 n -デカンの噴流噴霧火炎に対して、2次元 DNS を実施することにより、すす生成挙動に及ぼす液滴径条件の影響について検討を行った。得られた主な知見は、以下の通りであった。

1. すす生成反応が顕著なのは、噴流の下流域に発達

する大規模な渦構造内部であり、すす体積濃度、およびすす粒子径ともに、渦の中心に向かうほど高い値を示す。これは、渦の内部は、高温かつ酸化剤不足な状態にあり、上流域で生成されたすすの核粒子が、表面成長反応や凝集により成長するための十分な滞留時間があることによる。また、この領域で支配的なすす生成反応は、表面成長反応である。

2. すす濃度や粒子径は油滴径条件に大きく依存し、単分散条件では、油滴径が大きいほど高い値を示す。これは、液滴径が大きいほど蒸発速度が遅くなるため、燃料油滴の蒸発が下流域へ移動することで、大規模な渦構造の発達とすすの前駆体であるアセチレン濃度の上昇が同時に進行するためである。また、多分散条件では、単分散条件に比較して、すすの濃度が高く、粒子径が大きな領域が下流域に拡大する。これは、粒子径分布に含まれる大きな油滴が、単分散条件において油滴径が大きくなるにしたがってすすの生成や凝集が顕著な領域が下流域に移動することと同じ効果をもつためである。

[謝辞] 本研究を遂行するにあたり、京都大学林雅人氏に多大なる助力を戴いた。また、本研究の一部は文部科学省高性能汎用計算機高度利用事業「HPCI 戦略プログラム（研究分野 4 次世代ものづくり）」の補助を受けて実施された。ここに記して、謝意を表する。

Nomenclature

a : diffusion coefficient of enthalpy	(m^2/s)	u_i : velocity	(m/s)
B_M : mass transfer number	($-$)	W : molar mass	(kg/mol)
C : progress variable	($-$)	Y : species mass fraction	($-$)
c_p : specific heat of mixture gas	($J/(kgK)$)	Z : mixture fraction	($-$)
D : diffusion coefficient	(m^2/s)	δ : Kronecker's delta	
h : total enthalpy	(J)	μ : viscosity	($Pa \cdot s$)
L_V : latent heat of liquid fuel	(J/kg)	λ : thermal conductivity	($W/(mK)$)
M : soot mass density	(kg/m^3)	ρ : density	(kg/m^3)
M_p : mass of soot nucleus	($kg/kmol$)	σ_{ij} : stress tensor	(Pa)
m_d : mass of droplet	(kg)	τ_d : particle relaxation time	(s)
N : soot number density	(m^{-3})	$\dot{\omega}$: reaction rate	($mol/(m^3 \cdot s)$)
N_A : Avogadro's number	($kmol^{-1}$)		
p : pressure	(Pa)	Subscript	
R : universal gas constant	($J/(molK)$)	d : droplet	
S : source terms of interphase transfer	$kg/(m^3 s), kg/(m^2 s^2), kgJ/(m^3 s)$	dns : DNS	
T : gaseous temperature	(K)	k : k -th species	
t : time	(s)	lib : flamelet library	
		s : soot	

References

- 1) Kurose, R., Desjardins, O., Nakamura, M., Akamatsu, F. and Pitsch, H. : "Numerical simulation of spray flames", *CTR Annual Research Briefs-2004, Center for Turbulence Research, NASA Ames/Stanford Univ.*, 269-280 (2004)
- 2) Nakamura, M., Akamatsu, F., Kurose, R. and Katsuki, M. : "Combustion mechanism of liquid fuel spray entering gaseous flame front", *Phys. Fluids*, **17**, 123301 (2005)
- 3) Watanabe, H., Kurose, R., Hwang, S.-M. and Akamatsu, F. : "Characteristics of flamelet in spray flames formed in a laminar counterflow", *Combust. Flame*, **148**, 234-248 (2007)
- 4) Baba, Y. and Kurose, R. : "Analysis and flamelet modelling for spray combustion", *J. Fluid Mech.*, **612**, 45-79 (2008)
- 5) Kurose, R. and Akamatsu, F. : "Experiments and numerical simulations of spray combustion", *J. Combust. Soc. Japan*, **50**, 206-214 (2008)
- 6) Frenklach, M. and Harris, S. J. : "Aerosol dynamics modeling using the method of moments", *J. Coll. Interf. Sci.*, **118**, 252-261 (1987)
- 7) Brookes, S. J. and Moss, J. B. : "Prediction of soot and thermal radiation properties in confined turbulent jet diffusion flames", *Combust. Flame*, **116**, 486-503 (1999)
- 8) Pitsch, H., Riesmeier, E. and Peters, N. : "Unsteady flamelet modeling of soot formation in turbulent diffusion flame", *Combust. Sci. Tech.*, **158**, 389-406 (2000)
- 9) Wen, Z., Yun, S., Thomson, M. J. and Lightstone, M. F. : "Modeling soot formation in turbulent kerosene/air jet diffusion flame", *Combust. Flame*, **135**, 323-340 (2003)
- 10) El-Asrag, H., Lu, T., Law, C. K. and Menon, S. : "Simulation of soot formation in turbulent premixed flames", *Combust. Flame*, **150**, 108-126 (2007)
- 11) Watanabe, H., Kurose, R., Komori, S. and Pitsch, H. : "Effects of radiation on spray flame characteristics and soot formation", *Combust. Flame*, **152**, 2-13 (2008)
- 12) Watanabe, H., Kurose, R., Makino, H. and Komori, S. : "Effect of droplet size on soot formation in spray combustion", *J. Soc. Powder Technol. Japan*, **46**, 4, 22-31 (2009)
- 13) Hayashi, J., Watanabe, H., Kurose, R. and Akamatsu, F. : "Effects of fuel droplet size on soot formation in spray flames formed in a laminar counterflow", *Combust. Flame*, **158**, 2559-2568 (2011)
- 14) Mueller, M. E. and Pitsch, H. : "LES model for sooting turbulent nonpremixed flames", *Combust. Flame*, **159**, 2166-2180 (2012)
- 15) Pitsch, H. and Steiner, H. : "Large-eddy simulation of a turbulent piloted methane/air diffusion flame (Sandia flame D)", *Phys. Fluids*, **12**, 2541-2554 (2000)
- 16) Pierce, C. D. and Moin, P. : "Progress-variable approach for large-eddy simulation of non-premixed turbulent combustion", *J. Fluid Mech.*, **504**, 73-97 (2004)
- 17) Selle, L., Lartigue, G., Poinot, T., Koch, R., Schildmacher, K.-U., Krebs, W., Kaufmann, P. and Veynante, D. : "Compressible large eddy simulation of turbulent combustion in complex geometry on unstructured meshes", *Combust. Flame*, **137**, 489-505 (2004)
- 18) Peters, N. : "Laminar diffusion flamelet models in non-premixed turbulent combustion", *Prog. Energy Combust. Sci.*, **10**, 319-339 (1984)
- 19) Ihme, M. and Pitsch, H. : "Modeling of radiation and nitric oxide formation in turbulent nonpremixed flames using a flamelet/progress variable formulation", *Phys. Fluids*, **20**, 055110 (2008)
- 20) Patel, N. and Nenon, S. : "Simulation of spray-turbulence-flame interactions in a lean direct injection combustor", *Combust. Flame*, **53**, 228-257 (2008)
- 21) Kurose, R. and Komori, S. : "Drag and lift forces on a rotating sphere in a linear shear flow", *J. Fluid Mech.*, **384**, 183-206 (1999)
- 22) Ham, F., Apte, S. V., Iaccarino, G., Wu, X., Hermann, M., Constantinescu, G., Mahesh, K., Moin, P. : "Unstructured LES of reacting multiphase flows in realistic gas turbine combustors", *Annu. Res. Briefs, CTR, NASA Ames/Stanford Univ.*, 139-160 (2003)
- 23) Miller, R. S. and Bellan, J. : "Direct numerical simulation of a confined three dimensional gas mixing layer with one evaporating hydrocarbon-droplet-laden stream", *J. Fluid Mech.*, **384**, 293-338 (1999)
- 24) Kurose, R., Makino, H., Komori, S., Nakamura, M., Akamatsu, F. and Katsuki, M. : "Effects of outflow from the surface of a sphere on drag, shear lift, and scalar diffusion", *Phys. Fluids*, **15**, 2338-2351 (2003)
- 25) Fujita, A., Watanabe, H., Kurose, R. and Komori, S. : "Two-dimensional direct numerical simulation of spray flames. Part 1 : Effects of equivalence ratio, fuel droplet size and radiation, and validity of flamelet model", *Fuel*, in press
- 26) Bikas, G. and Peters, N. : "Kinetic modelling of n-decane combustion and autoignition", *Combust. Flame*, **126**, 1456-1475 (2001)
- 27) Leung, K. M., Lindstedt, R. P. and Jones, W. P. : "Simplified reaction mechanism for soot formation in non-premixed flames", *Combust. Flame*, **87**, 289-305 (1991)
- 28) Vandsburger, U., Kennedy, I. and Glassman, I. : "Sooting counterflow diffusion flames with varying oxygen index", *Combust. Sci. Technol.*, **39**, 263-285 (1984)
- 29) Puri, R., Richardson, T. F., Santoro, R. J. and Dobbins, R. A. : "Aerosol dynamic processes of soot aggregates in a laminar ethene diffusion flame", *Combust. Flame*, **92**, 320-333 (1993)

- 30) Frenklach, M., Clary, D. W., Gardiner, J. and Stein, S. E.: "Detailed kinetic modeling of soot formation in shocktube pyrolysis of acetylene", *Proc. Combust. Inst.*, **20**, 887-901 (1984)
- 31) Harris, S. J., Weiner, A. M. and Blint, R. J.: "Formation of small aromatic molecules in a sooting ethylene flame", *Combust. Flame*, **72**, 91-109 (1988)
- 32) Lindstedt, P. R.: "Simplified soot nucleation and surface growth steps for nonpremixed flames", *Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models*, Springer-Verlag, Berlin, 417-441 (1994)
- 33) Morinishi, Y., Lund, T. S., Vasilyev, O. V. and Moin, P.: "Fully conservative higher order finite difference schemes for incompressible flow", *J. Comput. Phys.*, **143**, 90-124 (1998)
- 34) Leonard, A.: "A stable and accurate convective modeling procedure based on quadratic upstream interpolation", *Comput. Meth. Appl. Mech. Eng.*, **19**, 15-98 (1979)
- 35) Kim, J. and Moin, P.: "Application of a fractional step method to incompressible Navier-Stokes equations", *J. Comput. Phys.*, **59**, 308-323 (1985)