

論文の内容の要旨

論文題目 天然ガスバーナー火炎中の prompt NO 生成に関する研究

氏 名 辻 下 正 秀

天然ガスは単位熱量当たりの CO_2 排出が少なく、硫黄分を含まないため燃焼時に硫黄酸化物 (SO_x) を排出しないものの、窒素酸化物 (NO_x) の排出は避けられないことから、種々の低 NO_x 燃焼法が提案されてきた。天然ガスを燃焼させた場合に生成する NO_x はその生成機構に基づいて thermal NO と prompt NO に区別される。thermal NO は火炎の高温領域において N_2 が酸化されて生成するとされており、その低減には火炎温度低減と高温域での滞留時間の低減が効果的とされている。一方、prompt NO は燃料過濃な火炎において炭化水素ラジカルが基点となって生成するとされており、その低減には高空気比燃焼すなわち希薄燃焼が効果的とされている。希薄燃焼は、prompt NO に加えて thermal NO の低減にも効果的であることから、ガスタービン、ガスエンジン、ガスボイラーやガス給湯器のバーナーなどに広く適用されている。

しかしながら、希薄燃焼が適用できず、1 次空気比を 1 もしくはそれ以下で燃焼させる必要のある燃焼器も存在する。一例として家庭用ガス機器にて用いられる自然空気吸引式のブンゼンバーナーや工業用の加熱炉用バーナーなどが挙げられる。ブンゼンバーナーにおいてはガスの噴出に伴うエネルギーのみでは希薄燃焼に必要な空気

を吸引できない。また希薄燃焼を行うと熱効率の低下が問題になることから希薄燃焼は加熱炉用バーナーには適用できない。今後、高水準な NO_x 低減を行うには、thermal NO に加えて、prompt NO を対象とした NO_x 低減に取り組む必要がある。希薄燃焼以外の prompt NO 生成量低減の方向性を見い出すためには、その生成機構の解明が重要と考えられるが、現状では十分ではない。また、実用燃焼器から生成する prompt NO については、生成場所や生成量、火炎全体にて生成する NO_x に占める割合なども、よく解明されていない。

本研究は、天然ガスの主成分であるメタンを燃料とするメタン空気火炎より排出する prompt NO 生成量の低減に不可欠と考えられる、生成機構の解明と小規模なブンゼンバーナー火炎から大規模な工業用バーナー火炎において prompt NO の生成量、生成場所を明らかにする NO_x 生成解析の実現を目的として行う。

本研究を遂行するために、まず、prompt NO 生成解析に不可欠な計測手法の水準を向上させた。レーザー誘起蛍光法を利用して prompt NO 生成に関与するとされる CH, NH, CN 濃度計測の高感度化を実現し、メタン空気火炎からの計測を可能とした。同時に本測定法の誤差評価と適用範囲の確認を行い、信頼性を向上させた。反応速度を決定する火炎温度計測についてはレーザー誘起蛍光法に基づく温度計測法の改良を行い、計測の定量性を向上させた。

次に、メタン空気火炎中の prompt NO 生成機構を明らかにするために、低圧モデル火炎を用いて反応動力学計算の計算結果と実測結果の比較を行うことにより、計算結果の信頼性を調べた。低圧のメタン空気平面火炎について Miller, Bowman (M. B.) および GRI により提案された素反応式の組を CHEMKIN により解いた計算結果について実測結果との対比により検証を行った。それぞれについて空気比の異なる火炎を対象として、計算と実測で得られる NO, OH, CH, NH, CN の濃度分布を比較した。その結果、GRI により提案された素反応式の組を CHEMKIN で解いた計算結果が、実測結果と良く一致することがわかった。メタン空気火炎中の prompt NO 生成機構については、反応動力学計算の結果より CH+N₂ の反応が基点となり、NH, CN 等のラジカルを経由して NO が生成すること、prompt NO 生成量は CH 濃度と高い相関を持つこと、prompt NO 生成量の低減には CH 濃度の低減が不可欠なことなどが予測されていたが、本研究により、これらの prompt NO の生成機構が信頼できることを明らかにできた。

さらに実用バーナー火炎中の NO_x 生成解析として、まず常圧下のメタン空気ブンゼン火炎を例に取り、火炎中の NO_x 生成状況を明らかにした。従来のサンプリング法に加えて、レーザー計測を適用して火炎断面の NO, OH, CH, NH, CN の濃度分布

と火炎温度分布を求めた。これより、火炎面に CH, NH, CN が一様な濃度で存在し、火炎全体の NO_x 生成量である 60 ppm のうち 58 %程度をしめる prompt NO が、火炎面にて一様に生成することを明らかにした。さらに希薄燃焼以外の prompt NO 生成量低減の方向性を明らかにするために、予混合気温度、酸化剤中酸素濃度を変化させて、prompt NO 生成量と CH 濃度を計測した。両ケースともに prompt NO 濃度は増加したものの、増加の割合は thermal NO のそれに比較すると小さいことがわかった。ともに prompt NO 生成量の変化に対応して CH 濃度も変化しており、prompt NO 生成に CH ラジカルが関与することを支持する結果となった。

最後に大型の実用バーナー火炎中の NO_x 生成解析として、天然ガスを燃料とする拡散燃焼方式の 230kW の工業用バーナーを例に取り、火炎中の NO_x 生成状況を明らかにした。従来の NO_x 濃度、温度、流れに基づいて NO_x の生成場所、生成量を求めるフラックス解析に加え、CH, OH ラジカル濃度計測に基づいて thermal NO と prompt NO を分離して求める新しい計測法を提案して、適用した。これより本火炎全体の NO_x 生成量である 80 ppm のうち約 45 %の prompt NO が 1 次火炎領域にて生成することを明らかにした。本研究を通じてメタン空気火炎中の prompt NO 生成量は、予混合気温度、酸化剤中酸素濃度に対して依存性をもつことを明らかにした。本バーナーからの prompt NO 生成量低減を目指して、これらを念頭において、1 次火炎領域に炉気を多く巻き込むようにバーナー改良を行った。これにより NO_x 生成量低減が実現でき、バーナー改良の方向性を見いだすことができた。