



Title	Fuel N源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場の詳細光学計測とNOx生成特性
Author(s)	田, 碩
Citation	大阪大学, 2023, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/92939
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

博士学位論文

Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への
酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場
の詳細光学計測と NO_x 生成特性

田 碩

2023 年 6 月

大阪大学大学院工学研究科

目次

第1章 緒論	1
1.1 はじめに	1
1.2 廃棄物発電について	2
1.3 都市ごみ焼却炉の燃焼現象及び生成機構による窒素酸化物の分類 ..	6
1.3.1 都市ごみ焼却炉における燃焼過程及びFuel N _{ox} の生成	6
1.3.2 窒素酸化物の生成機構	7
1.4 バイオマス熱分解過程およびFuel N の生成	9
1.5 都市ごみ焼却炉における火炎の燃焼状態及びMILD combustion に関する先行研究	11
1.6 本研究の目的と論文構成	19
参考文献	21
第2章 実験装置および計測手法	28
2.1 はじめに	28
2.2 実験装置	28
2.2.1 燃焼炉	31
2.2.2 供給系	34
2.2.3 排気系	39
2.3 計測系	39
2.3.1 平面レーザー誘起蛍光法	40
2.3.2 燃焼領域の温度計測	46
2.3.3 ガスサンプリング法を用いた排気 N _{ox} 濃度計測	47
2.4 まとめ	50
参考文献	51
第3章 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態と N _{ox} 生成特性	54
3.1 はじめに	54
3.2 実験装置および実験条件	54

3.3 実験結果	55
3.3.1 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態	55
3.3.2 燃焼場の温度分布計測	57
3.3.3 OH-PLIF による火炎形態の評価	62
3.3.4 ガス分析器による排気 NO _x 測定	65
3.4 まとめ	67
参考文献	68
第4章 NO-PLIF 法を用いた Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される MILD combustion 状態の燃焼場における NO 生成機構	70
4.1 はじめに	70
4.2 実験装置および実験条件	70
4.3 NO-PLIF 計測に関する装置構成および計測条件	73
4.4 実験結果および考察	74
4.4.1 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態	74
4.4.2 燃焼場の温度分布計測	75
4.4.3 レーザー誘起蛍光法の励起光源による NH ₃ の分解	77
4.4.4 NO-PLIF と OH-PLIF の比較による火炎形態の評価	80
4.4.5 アンモニア添加の影響	84
4.5 まとめ	89
参考文献	90
第5章 結論	92
研究業績	94
謝辞	95

記号表

A:	空気
$A^2\Sigma^+$:	励起電子状態
B:	AINSHUTAIN係数
c:	光速
E:	排気
EH:	混合した高温空気と排気
EA:	混合した空気と排気
F:	燃料
H:	高温空気
HAB	バーナ端面からの垂直距離
h:	プランク定数
I_0 :	励起光強度
I_{FL} :	蛍光強度
K_v :	排気ガスの巻き込み率
M_E :	巻き込んだ排気ガスの質量流量
M_F :	燃料の質量流量
M_A :	酸化剤の質量流量
m:	各回転準位
N_1 :	下準位の数密度
N_2 :	上準位の数密度
N_T :	励起される前の基底準位の数密度
N_m :	回転準位 m の数密度分布
Q:	無放射遷移速度定数
Re:	レイノルズ数
T_{in} :	燃焼器入り口のガス温度
T_{si} :	自着火温度
t:	時間
v:	光の振動数
$X^2\Pi$:	基底電子状態
ΔT :	燃焼場で上昇した温度
*:	燃焼反応
λ :	光の波長

第1章 緒論

1.1 はじめに

近年、地球温暖化の影響として、海拔が低い陸地の浸水や海没などを発生させる海面上昇、降水量の地域的な変化、熱波や大規模な自然災害などの異常気象が頻発している。さらに、北極圏では地表温度の上昇が最も大きく、これが氷河、永久凍土、海氷の融解をもたらしている。このような気候変動は作物の収穫量を減少させ、食糧安全保障に悪影響を及ぼす恐れがあり、海面上昇は沿岸地域における浸水被害をもたらし、多くの沿岸都市の放棄を余儀なくされる可能性がある^[1]。

現在、地球表面の大気や海洋の平均温度は、1896年から1900年の5年間の平均温度に比べて、 0.75°C ($\pm 0.18^{\circ}\text{C}$) 上昇しており、1979年以降の観測では下部対流圏温度で10年につき 0.12°C から 0.22°C の割合で上昇し続けている（図1.1参照）。

2019年2月6日には、世界気象機関（World Meteorological Organization; WMO）が2015年から4年間の世界の平均気温が観測史上最高だったことを報告した。また、2018年の世界の平均気温が産業革命前比で 1°C 上昇し、過去4番目に高く、2015年から4年連続で異例の高温が続き、地球温暖化が進行している証拠だとしている。

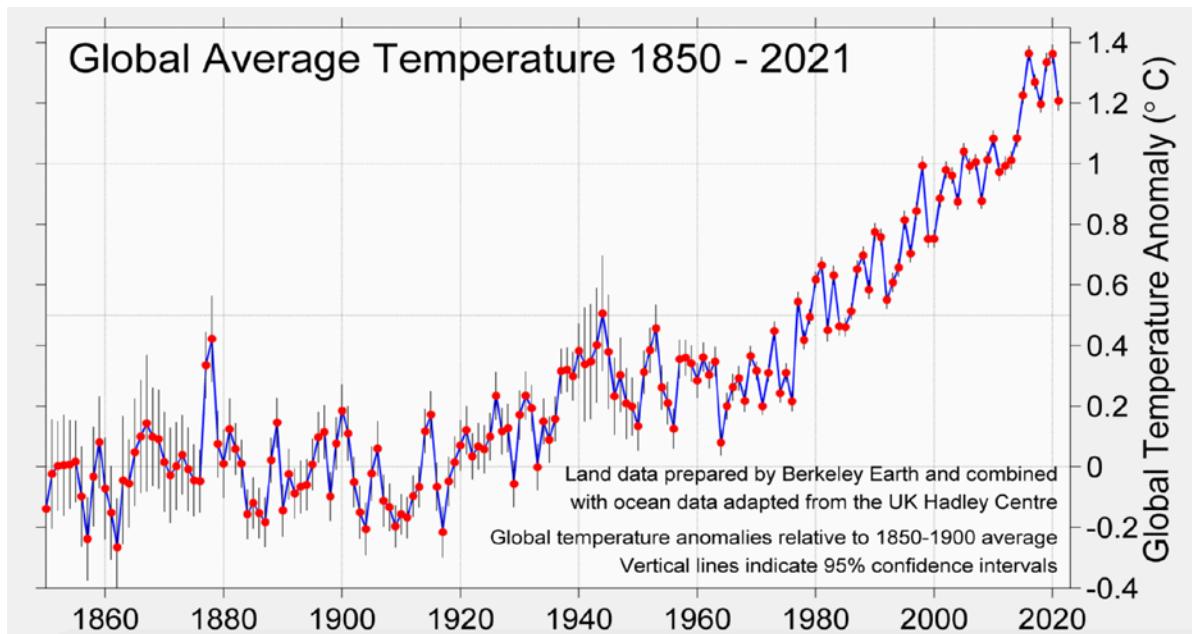


Fig. 1.1 The changing of global temperature.^[2]

気候変動問題は、国際社会が一体となって直ちに取り組むべき重要な課題である。国際社会では、1992年に採択された国連気候変動枠組条約に基づき、1995年より毎年、国連気候変動枠組条約締約国会議（COP）が開催され、世界での実効的な温室効果ガス排出量削減の実現に向けて、精力的な議論が行われてきた。

このような中、2015年12月、フランスのパリで開催された第21回国連気候変動枠組条約締約国会議（COP21）においては、2020年以降の温室効果ガス排出削減等

のための新たな国際枠組みとして、パリ協定が採択された。パリ協定の概要の中に世界共通の長期目標として、世界的な平均気温上昇を産業革命以前に比べて 2°C より十分低く保つとともに、1.5°C に抑える努力を追求することがあり^{[3], [4]}、この合意により、京都議定書の成立以降長らく我が国が主張してきた「全ての国による取組」が実現した。

2019 年 6 月、「パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略」を策定し、国連に提出した。菅総理大臣（当時）は、2020 年 10 月 26 日、所信表明演説において、「我が国は、2030 年には温室効果ガス排出量を 2013 年比で 46% 削減、2050 年までに温室効果ガスの排出を全体としてゼロにする、すなわち 2050 年カーボンニュートラル、脱炭素社会の実現を目指す」ことを宣言した。その後、2021 年 10 月 22 日に 2050 年カーボンニュートラルに向けた基本的な考え方等を示す「パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略」を閣議決定し、国連へ提出した。

温室効果ガスの中にエネルギー起源 CO₂ (84.1%) が大部分を占めるため^[5]、温室効果ガス排出量の削減はエネルギー起源 CO₂ の大幅な削減を求められている。日本で消費されているエネルギーは、2000 年代半ばを境に原油価格高騰、リーマンショック、東日本大震災、そしてコロナ禍を通じて、長期的な減少傾向にある。結果として、2020 年度の最終エネルギー消費量は、1987 年度とほぼ同程度になっている^[6]。しかし、コロナ禍が収束し、経済活動が正常化することで、エネルギー消費はある程度回復することが見込まれる。

以上のことから、再生可能エネルギー導入の推進が温室効果ガス削減という日本が抱える大きな課題への解となり得ると考えられ、2022 年 4 月に FIP 制度が導入された^[7]。FIP 制度は、再エネ発電事業者が卸市場などで売電したとき、その売電価格に対して一定のプレミアム（補助額）を上乗せするという仕組みである^[8]。すなわち、補助額を足した売電価格は電力の需要に伴って変動する。したがって、電力需給バランスを維持することが求められており、再生可能エネルギーの普及において、出力の安定性を向上させることが急務である。

このような情勢の中で、廃棄物発電には、再生可能エネルギーの中でも比較的安定した電力を供給可能な地域の分散型エネルギー源としての役割が期待されており、環境に対する負荷の少ない設備の運用や開発が求められている。都市部における代表的な廃棄物は都市ごみであり、環境負荷の少ない都市ごみの燃焼方式に関して数多くの研究が行われてきている。

1.2 廃棄物発電について

廃棄物処理法により、廃棄物は「産業廃棄物」と「一般廃棄物」に分類され、「一般廃棄物」の中に「ごみ」と「し尿」が含まれる^[9]。また、「ごみ」の中に「都市ごみ」、「観光ごみ」、「工場ごみ」、「農村ごみ」などが含まれている^[10]。本論文では「都市ごみ」に着目する。

日本のごみ排出量は、2020 年度には 4272 万トン/年まで減少している（図 1.2 に

示す)。「循環型社会形成推進基本法」^[11]により、ごみの処理順位の中に、熱回収の一部としてごみ発電がある。

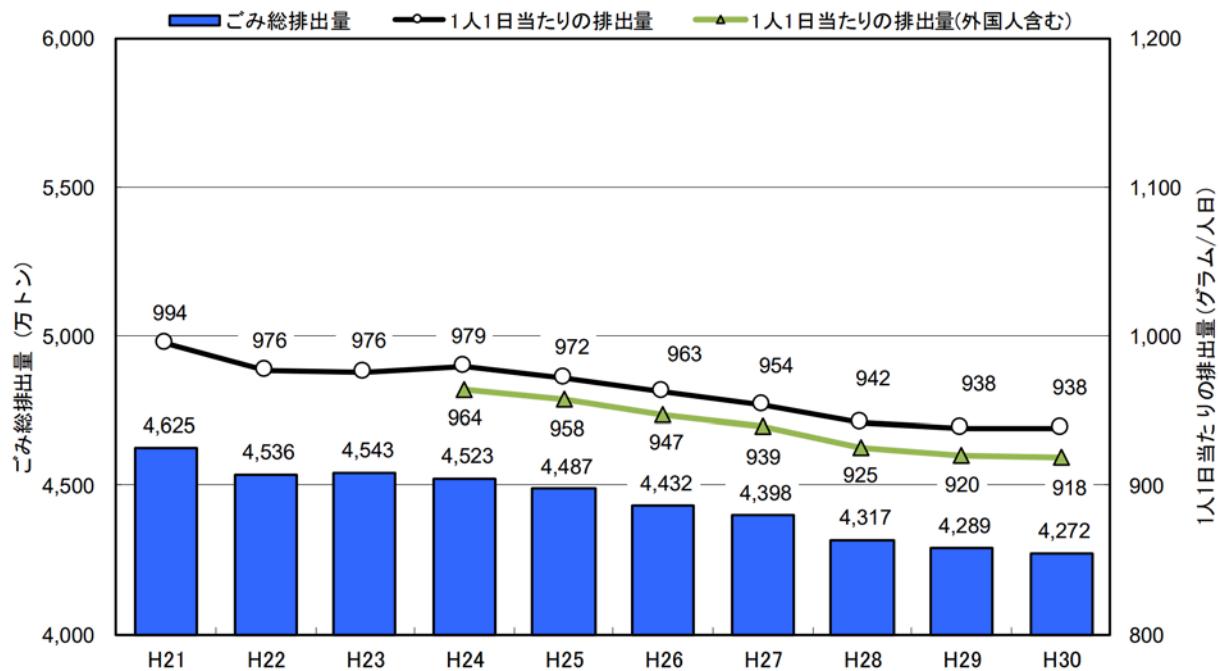


Fig. 1.2 The changing of total waste emissions.

「都市ごみ発電」は、都市ごみエネルギーを利用した発電の総称である^{[12], [13]}。特に、図 1.3 に示すように都市ごみを焼却する際の熱を回収し、蒸気を作り、その蒸気でタービンを回すことにより発電を行う方法である^[14]。

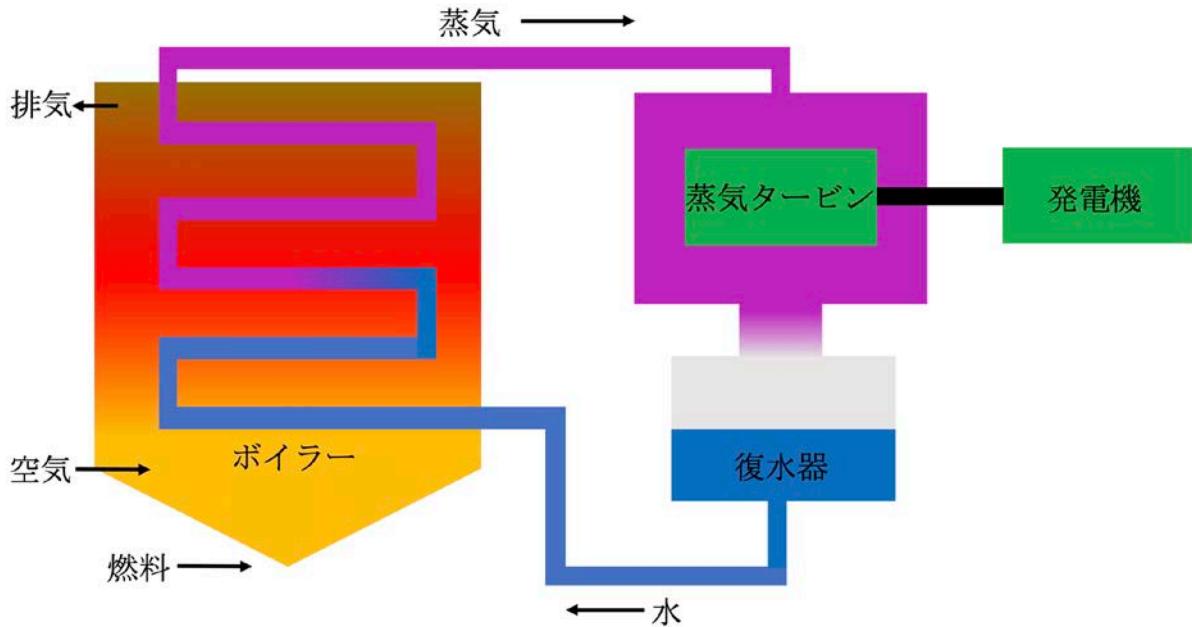


Fig. 1.3 Waste power generation system.

図 1.4 に一般的なごみ焼却発電施設の処理フローを示す。図 1.4 はごみを焼却するとともに排気中に生成された窒素酸化物 (NOx) を触媒によって除去するシステムである。ごみ焼却によって発生した高温の排ガスは、ボイラーを用いて熱を回収した後、バグフィルターを使用してばいじんを除去するとともに、消石灰などの薬剤と反応させることにより、排気中の酸性ガスが除去される。ここで、大気汚染防止法により、廃棄物焼却炉を対象に NOx の排出規制値は 250 ppm (酸素 12% 換算値、連続炉以外は 40000 m³/h 以上に限る) と定められており、さらに厳しい自主規制値を設けている自治体も存在する。そのため、多くの施設では触媒を用いた脱硝が行われている。この場合、バグフィルターの後に触媒反応塔が必要となる。排ガスに含まれる NOx は、還元剤と反応することで無害化される。触媒脱硝では排ガス温度が高いほど脱硝率が高くなることに加えて触媒が劣化しにくいことから、前段のバグフィルターの運転温度である 160°C ~ 170°C よりも高い温度で運転することが望ましい。そのため、ボイラーで発生した高圧蒸気の一部を使用した排ガスの再加熱が行われており、触媒反応塔入口の温度は 200°C ~ 220°C 程度で設計されることが多い。このように、触媒を用いた脱硝ではボイラーで発生した高圧蒸気の一部を用いた排ガスの再加熱が行われており、そこで用いられる蒸気の熱量分だけ発電効率が低下しているのが現状である。低 NOx 燃焼技術や無触媒脱硝を用いて自主規制値を満足できれば、触媒とそれに付随する排ガス再加熱が不要になり発電効率向上に貢献できる^[15]。さらに、本研究において対象としたストーカ式都市ごみ焼却炉の二次

燃焼領域では、一次燃焼領域で不完全燃焼によって生成されたガスや熱分解ガス中に二次空気が吹き込まれるため、二次空気の吹き込み位置に逆拡散火炎（Inverse Diffusion Flame; IDF）が形成される^[16]。また、二次空気の吹き込み速度、燃焼場の酸素濃度や温度の条件によっては、浮き上がり火炎や MILD combustion（Moderate & Intense Low Oxygen Dilution）状態の火炎が形成される^[17]。上述のように、都市ごみ焼却炉に対しては低い NO_x 排出量が求められることから、触媒を用いた燃焼技術によって低 NO_x 化を達成するためには、二次燃焼領域における燃焼形態と NO_x 生成特性の関係を明らかにすることが必要である。NO_x 生成に対しては、数多くの研究が行われているが、次節では既往研究により都市ごみ焼却炉で生成される NO_x の特性について述べる。

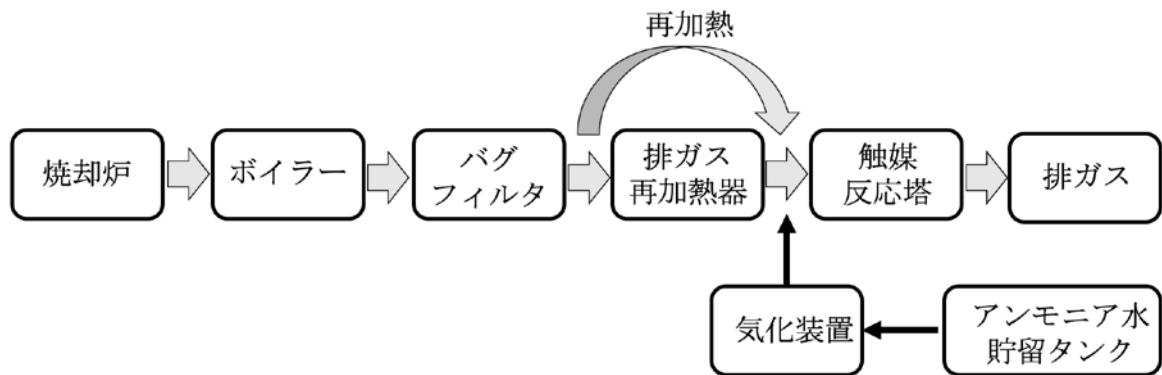


Fig. 1.4 Typical flue gas treatment process.

1.3 都市ごみ焼却炉の燃焼現象及び生成機構による窒素酸化物の分類

1.3.1 都市ごみ焼却炉における燃焼過程及び Fuel NOx の生成

ストーカ式焼却炉は、代表的な都市ごみ燃焼炉の一つであり、都市ごみの成分中に含まれる窒素分に起因して排出される NOx の低減は重大な開発要求として認識されている。図 1.5 にストーカ式の都市ごみ焼却炉における燃焼過程を示す。炉内の下部に都市ごみは火格子の移動により搬送されて、火格子の下部から燃焼用の一次空気が供給される。火格子上のごみ層は、乾燥段、燃焼段、後燃焼段が分類される。乾燥段において、都市ごみの水分がふく射熱を受けて乾燥が行われる。燃焼段にごみの揮発分が放出されて、燃焼する。ごみ層上部の空間では二次空気が供給され、炉内のガスと混合されて、完全燃焼を行う。生成された排ガスがボイラーや排ガス処理系統へと導かれる。熱分解ガス中に放出された窒素分が一次空気、二次空気によって酸化されて、NOx へと転換される^[18]。都市ごみ焼却炉における NOx の生成機構を理解するためには、二次燃焼領域における火炎形態の把握、および火炎形態が NOx 生成に与える影響を明らかにする必要がある。

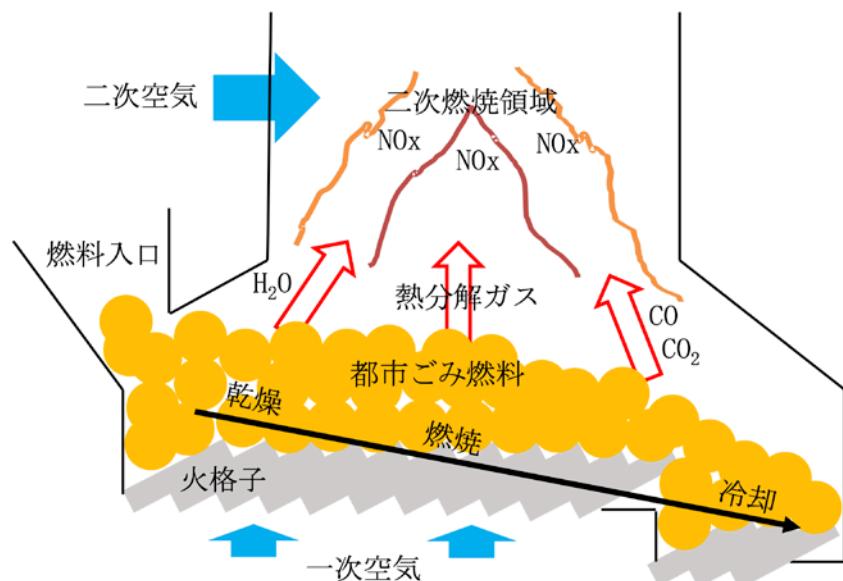
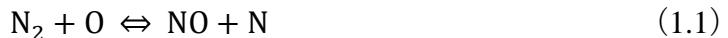


Fig. 1.5 Diagram of combustion process in stoker type incinerator.

1.3.2 窒素酸化物の生成機構

窒素酸化物 (NOx) は、一酸化窒素 (NO), 一酸化二窒素 (N₂O), 二酸化窒素 (NO₂), 五酸化二窒素 (N₂O₅) などが含まれている。NOx の生成機構により Thermal NOx, Prompt NOx, Fuel NOx に分類される。それぞれの生成機構は下記の通りである^[19]。

Thermal NOx は空気中の窒素分子 (N₂) を起源として、1800 K 以上で発生が顕著になり、拡大ゼルドヴィッチ機構と呼ばれて、下記の反応により生成される。



Thermal NO では、燃料希薄条件の火炎では火炎帯下流で生成され、燃料過濃条件の火炎では火炎帯内側で生成される。その際に、火炎帯前半部と後半部でシアン化水素 (HCN), NO が生成される。燃料希薄条件においては、反応 (1.1) から (1.3) の拡大ゼルドヴィッチ機構により生成される、しかし、燃料過濃条件では燃焼の連鎖反応の中で NO が生成されていることが知られている^[20]。このように拡大ゼルドヴィッチ機構以外の経路で急速に生成される NOx を Prompt NOx と呼ぶ。Prompt NOx の生成濃度は当量比 1.2 ~ 1.4 で最大となる。Prompt NOx の生成について、火炎中の CH 濃度に依存する^[21]ため、CH の反応が Prompt NOx の生成に及ぼす影響があると考えられる。Prompt NOx の生成機構を下記の反応 (1.4) と (1.5) に示す。



Fuel NOx は、燃料中の窒素分 (Fuel N) を起源とする。窒素分は石炭で 0.2% ~ 3.4%，バイオマスの窒素分含有率は石炭と比較して約 1/10 と低く^[22]、C 重油で 0.1% ~ 0.4% 含まれており、副生ガスや石炭ガスにもアンモニア (NH₃) や HCN の形で含まれる。Fuel N は火炎帯とその直後で急速に NOx に変換されるが、これを Fuel NOx と呼ぶ。また、Fuel N の内、Fuel NOx に変わったものの割合を変換率と呼び、次式で定義される^[23]。

$$\text{変換率} = \frac{\text{Fuel NOx の生成モル数}}{\text{Fuel N の原子数}} \quad (1.6)$$

変換率は温度が高いほど、また酸素濃度が高いほど高くなり、80%を越えることもある。しかし、Thermal NOx 程には温度依存性は高くない。また、Fuel N の含有率が高くなると変換率が低下する傾向が見られ、含有率 0.1%で 80%前後もあった変換率が含有率 5%で数十%に落ちる。

Fuel NOx の生成機構を下記の式に示す。まず、Fuel N が分解して NH_i に変わり、下記の反応 (1.7) により NO が生成される。



また、下記の反応 (1.8) によって、NO が N_2 に分解される。



さらに、下記の反応 (1.9) によって HCN を生成する。



燃料希薄領域では NO が生成され、燃料過濃領域では HCN と NH_3 が生成される^[24]。酸素の供給の場合、HCN や NH_3 は NOx に転換されるので、当量比を増大しても Fuel NOx の排出量が減少しない。高温の条件において、HCN や NH_3 は分解しやすいため、Fuel NOx 排出量低減のために、第 1 段目の燃焼で HCN や NH_3 を N_2 に分解した後、第 2 段目の燃焼を行わせるという二段燃焼法が採用されている^[25]。

上述のように、燃料中に N 分を含む場合、燃焼場における NOx 生成には、Thermal NOx, Prompt NOx に加えて Fuel NOx の生成を考慮する必要がある。燃料中に N 分を含む燃焼過程は、バイオマス燃料の燃焼において研究対象とされ様々な研究が行われてきた。そこで次節では、バイオマス燃焼におけるバイオマス熱分解過程および Fuel N の生成に関する先行研究を示し、本研究で対象とする都市ごみの熱分解ガスの燃焼過程において有用な計測手法について触れる。

1.4 バイオマス熱分解過程および Fuel N の生成

バイオマスから Fuel N 放出について、木質・草木系を中心に研究が行われている^[26-41]。バイオマスに含まれている Fuel N が熱分解、燃焼過程を経て Fuel NOx となる経路を図 1.6 に示す。まず、燃料が熱分解により、Fuel N は揮発分中の窒素分 (Volatile-N) とチャー中に残るもの (Char-N) が含まれている。また、Volatile-N は、NH₃, HCN, N₂ とタール中に含まれる窒素分 (Tar-N) に分解される。さらに、Tar-N は再分解により、最終的に NH₃, HCN, N₂ に分解される。このような NOx の前駆物質の生成挙動に関して、多くの先行研究が行なわれている^[42-45]。

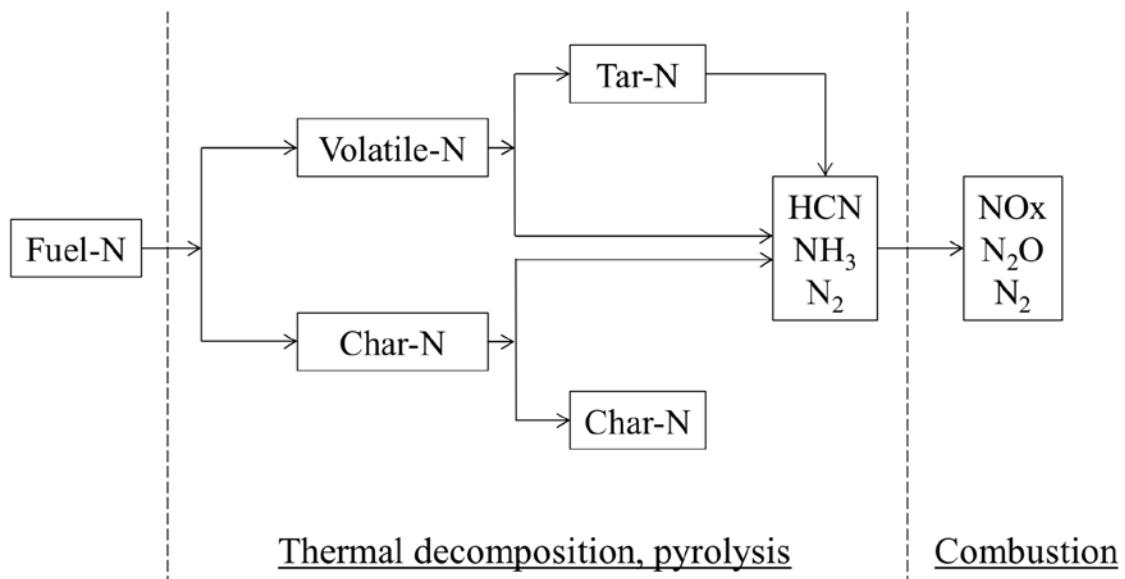


Fig. 1.6 Path from Fuel-N to NOx in thermal decomposition, pyrolysis and combustion process.

都市ごみ焼却炉において、ごみ熱分解に関する研究としては、NH₃ や HCN を含む混合ガス組成や予熱温度などを制御して燃焼させ、最終的な NOx の排出量の測定^[46]や、高温空気燃焼、二段燃焼法など、NOx の排出を低減する経験的な燃焼法の開発などが行われている^[47]。このように、最終的な排出物である NOx を指標とした研究は行われているが、前駆物質が Fuel NOx 生成に与える影響を詳細に解明するためには、火炎近傍において反応 (1.1) ~ (1.9) に現れるような化学種の挙動を詳細に計測する必要がある。火炎近傍の化学種を可視化する手法として、高感度かつ 2 次元の情報を得ることができるレーザー誘起蛍光 (Laser-Induced Fluorescence; LIF) 法が用いられている^[48]。LIF 法は非接触で燃焼場を乱すことなく計測が可能であり、信号強度が強く、二次元の情報を得ることができるなど、燃焼場の化学種を可視化する手法として多くの利点がある^[49]。特に、励起レーザー光をシート状にして測定対象に導入する計測方法を平面レーザー誘起蛍光 (Planer LIF; PLIF) 法と呼ぶ。

LIF 法では化学種に対する選択性が優れていることから, 燃焼場のような異なる化学種が数多く存在する環境であっても, ターゲットとする火炎ラジカルや化学種を, ppm オーダで検出できる. 本研究の研究対象として, ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域において, 燃焼により燃焼場に OH ラジカル, NO 分子が存在するため, LIF 法がその化学種計測に対して有効な計測法である.

また, 前節で触れたように, ストーカ式都市ごみ焼却炉の二段燃焼領域では, 逆拡散火炎や浮き上がり火炎, MILD combustion 状態の火炎が形成される. 次節では, 都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域で形成される火炎形態の中でも特徴的な MILD combustion 状態の火炎に対して得られている知見を示すとともに, MILD combustion 状態の火炎において形成される NO_x について言及し, 本研究との関連性について述べる.

1.5 都市ごみ焼却炉における火炎の燃焼状態及び MILD combustion に関する先行研究

MILD combustion は、燃焼効率が高く環境負荷物質の排出量が少ない燃焼技術として 1990 年代から研究が開始されており^[50]、近年では、次世代のクリーンな燃焼技術の一つと見なされている^[51-63]。MILD combustion は緩慢な燃焼方式であり^[50, 54-56]、燃焼領域に目視できる明確な火炎面が存在しないため^[54]、「Flameless combustion」や「Flameless oxidation」^[55]と呼ばれることがある。また、MILD combustion 状態の燃焼場を実現するために、燃料や酸化剤の予熱温度が 1000°C 以上となる必要があると考えられているため、「High Temperature Air Combustion, Hi-TAC」とも呼ばれる^[55-56]。あるいは、「Low-temperature combustion」^[57]と呼ばれる。本論文では、「MILD combustion」で統一して呼称する。

MILD combustion は従来の燃焼方式と比較して、燃焼領域の温度分布が均一かつ最高温度が低いこと、NOx や一酸化炭素の排出濃度が低いことなど、様々な利点がある。

MILD combustion の定義

今日では、世界中の産業界で MILD combustion が応用されている。しかし、学術的には、MILD combustion の定義が統一されていない状況にある。研究者によって、燃焼器の構造、実験条件が異なるため、MILD combustion の定義が異なるものと考えられる。例えば、Cavaliere らは WSR (Well Stirred Reactor) モデルを使用して、希釈率と予熱温度をパラメーターとして、メタン-空気燃焼において、MILD combustion 状態の火炎の形成に関する研究を実施した^[55]。

Table 1 Summary of conditions identifying the different combustion modes.

Combustion mode	Inlet conditions	Working conditions
Feedback combustion	$T_{in} < T_{si}$	$\Delta T > T_{si}$
High temperature air combustion	$T_{in} > T_{si}$	$\Delta T > T_{si}$
MILD combustion	$T_{in} > T_{si}$	$\Delta T < T_{si}$

T_{in} : Inlet temperature T_{si} : Self-ignition temperature ΔT : Temperature increment

Cavaliere らは、表 1 に示した通り、燃焼器入り口温度および燃焼場において上昇したガス温度を用いて、高温空気燃焼、MILD combustion、および Feedback combustion を定義した^[55]。Cavaliere らの定義では、Feedback combustion は、燃焼器入り口のガス温度が燃料の自着火温度より低く、予熱によって燃焼場の温度が上昇し、燃料の自着火温度より高い条件において燃焼器内部の燃焼領域に目視できる明確な火炎

面が観察される燃焼形態を示している。高温空気燃焼では、燃焼器入り口のガス温度が燃料の自着火温度より高く、燃焼反応の過程において燃焼場において上昇した温度が燃料の自着火温度より高い条件で生じる燃焼形態である。MILD combustion は、燃焼器入り口のガス温度が燃料の自着火温度より高く、燃焼反応の過程において燃焼場に上昇した温度が燃料の自着火温度より低い条件で生じ、目視できる明確な火炎面が観察されずに温度場分布が均一となる。

また、Wünnung らの文献^[50]により、燃料と酸化剤及び燃焼器内部に巻き込む排ガスの質量流量の比、 K_v 値から、MILD combustion が定義されている。

$$K_v = \frac{M_E}{M_F + M_A} \quad (1.10)$$

式 1.10 より、 K_v が排ガスの巻き込み率 (Exhaust gas recirculation) であり、 M_E 、 M_F 、 M_A が巻き込んだ排気ガス (Recirculated exhaust gas)、燃料、酸化剤、それぞれの質量流量である。Wünnung らはメタン-空気の燃焼実験から「 K_v 値が 2.5 より大きく、かつ燃焼器内部の温度が 1100 K 以上の場合、MILD combustion 状態の火炎が維持される」という結論を得た。一方で、Cavigiolo らは、燃料の種類と予熱温度が異なる場合、MILD combustion 状態の火炎が形成できる K_v 値が異なることを示した^[55]。例えば、メタン-空気燃焼の場合は、 K_v 値が 2.5 より大きく、燃焼器内部の温度が 1100 K 以上の場合、MILD combustion 状態の火炎が維持される。エタン-空気燃焼の場合は、MILD combustion 状態の火炎を形成するために、 K_v 値が 3.5 以上、燃料の予熱温度が 900 K 以上となる必要がある。Yu らは、酸化剤と燃料の流速、酸化剤ノズルと燃料ノズルのなす角度およびそれぞのノズルの間の距離をパラメータとして、MILD combustion 状態の火炎の形成に与える影響を考察した。その結果から、酸化剤と燃料の流速、酸化剤ノズルと燃料ノズルのなす角度が大きい場合、MILD combustion 状態の形成に与える影響が顕著になった^[64]。

以上によって、MILD combustion 燃焼場の形成に関する条件が複雑であり、燃料組成、予熱温度、ガス流速、燃焼器ノズル距離や内径などの条件により、形成された MILD combustion 火炎状態が同一ではないと考えられる。

MILD combustion の特徴および Thermal NOx の生成に与える影響

MILD combustion 状態の火炎の形成においては、反応物に対する予熱と希釈が必要であるため、MILD combustion に関する研究の初期に「蓄熱式 MILD combustion システム」という燃焼器の応用が広まった^[56]。このシステムでは、燃焼反応によって、生成された排ガスの熱量を回収して、その後、熱交換器により回収した熱量によって空気を予熱することで、空気が 1300 K 以上に予熱される。予熱された高温空気と燃料が高速で燃焼器に供給され、燃焼器内部において燃焼反応が進行し、燃焼場内部に燃焼反応により生成された排ガスが巻き込まれて、燃焼場に存在する酸

化剤が希釈される。この蓄熱式 MILD combustion システムでは、コストが 30% 以上抑制され、Thermal NOx が 50% 以上低減された。

蓄熱式 MILD combustion システムは、燃焼場の外側を経由して排ガスが循環することにより、排ガスの熱量を利用して酸化剤を加熱するため、「排ガス外部循環式 MILD combustion システム」とも呼ばれる^[57]。排ガス外部循環の作用は酸化剤加熱である。一方で、「排ガス内部循環式 MILD combustion システム」という燃焼器が近年注目されている^[58]。排ガス内部循環式 MILD combustion 燃焼器では、酸化剤は燃焼場中心の酸化剤ノズルから供給され、燃料は酸化剤ノズルの周囲の燃料ノズルから供給される。排気の出口が酸化剤と燃料ノズルと同じ側面に配置されている。この燃焼器の利点は、燃焼反応により生成した排ガスが、燃焼場に十分循環された後で、出口から排出されることである。この方式では、排ガスが燃焼器内部に循環することにより、燃料と酸化剤が排ガスの熱量を吸収して加熱され、同時に燃焼器内部のガスが十分希釈される。そのため、燃焼器内部に高温及び低酸素濃度の環境が形成され、MILD combustion 燃焼状態を形成するためにかかる時間が排気ガス外部循環の方式より速くなっている。

Szego らの研究では、希釈剤として不活性ガスを燃焼場に供給することにより、火炎構造と燃焼反応、温度場に与える影響を考察した。その結果から、燃料と酸化剤が希釈される場合には、MILD combustion 状態の火炎を形成しやすく、さらに形成された MILD combustion 状態の燃焼場の温度が低下することを示した^[59]。一方、希釈剤として二酸化炭素を使用する場合には、窒素の使用と比較して、Thermal NOx の排出が低減できることも示した。

Dally らは MILD combustion 状態の火炎において NOx 生成特性を考察した。その結果では、空気比、予熱温度、希釈率などの変化が Thermal NOx の生成に与える影響が大きいことを示した。また、燃焼領域の温度場及び燃焼反応により生成された排ガスが燃焼器に滞留する時間が、Thermal NOx の生成特性に非常に大きな影響を与えることを示した^[49, 59]。

カナダの Queen 大学の研究者らが設計した MILD combustion 燃焼器^[60-63]では、7 つの燃料ノズルと 7 つの酸化剤ノズルが、対になって並んでバーナー下部に配置されている。さらに燃料ノズルと酸化剤ノズルが離れており、燃料と酸化剤が炉内の高温排ガスの循環により十分混合され、従来の燃焼器より MILD combustion 状態の形成が容易になることを示した。Waseem らは上述の燃焼器を用いて、従来の MILD combustion 燃焼器と比較して、燃焼領域の温度場の最大温度が 100 K ~ 200 K 低下し、排気中の CO と NOx 濃度も低くなることを示した^[64]。

Abbas らは燃料の予熱温度を変化させて、MILD combustion 状態の火炎の形成に与える影響を考察した。結論として、燃料の予熱温度が上昇するとともに、MILD combustion 状態の火炎において、排ガス中の Thermal NOx 濃度が低下することを示した^[65]。また、Mario らは、酸化剤の酸素濃度を変化させて、MILD combustion 状態の火炎の形成に与える影響を考察した。その結果から、当量比が一定の場合、酸

化剤の酸素濃度が 21% から 35% に上昇するとともに、燃焼場の温度が 60°C 上昇し、さらに、排ガス中の Thermal NO_x の濃度が 5 ppm 以下となったことを示した^[66]。Verissimo らは、MILD combustion 状態の火炎において空気の流速を変化させるとともに、レーザー誘起蛍光法により OH ラジカルの空間分布に与える影響を考察した。その結論として、空気の流速が上昇する場合、燃焼反応により生成されたガスが燃焼場に巻き込まれるため、OH ラジカルの信号強度が弱くなつたことを示した^[67]。Li らの研究により、空気予熱温度、空気流速及び煙道の内径が、MILD combustion 状態の火炎の燃焼特性に与える影響が評価された。まず、予熱温度及び空気流速が上昇した場合には、安定な MILD combustion 状態の火炎を容易に形成できることを示した。また、煙道の内径を増大させた場合には、排ガス循環率が小さくなつたことにより、燃焼反応により生成されたガスが燃焼場に滞留する時間が短くなり、燃焼場のガスが十分希釈できなついため、排ガス中の CO 濃度が上昇することを示した^[68, 69]。Szego らの研究により、MILD combustion 状態の火炎において空気比が上昇するとともに、排ガス中の Thermal NO_x 濃度が上昇することが示された。一方で Szego らは、排ガス中の CO 濃度が低下したことを示した^[70]。Sudarshan Kumar らは、3 kW と 150 kW の安定な MILD combustion 状態の燃焼場において、燃焼領域の酸素濃度を評価した。その結果から燃焼場の 96% 以上の領域において、酸素濃度が 15% 以下であった。さらに、排気中の Thermal NO_x 濃度が 26 ppm (3 kW) と 3 ppm (150 kW) であり、CO 濃度が 1% (3 kW) と 0.221% (150 kW) になったことを示した^[71]。Dally らは、異なる種類の気体燃料を用いて、MILD combustion の燃焼特性および火炎構造に与える影響を考察した^[72]。その結果、燃料が CH₄ の場合には、安定な MILD combustion 状態の火炎が形成できることを示した。一方で、燃料が C₂H₄ と C₃H₈ の場合には、目視できる火炎面が現れることにより、安定な MILD combustion 燃焼状態を維持することが難しいことを示した。数値計算の結果から、素反応として、C₂ ラジカルの生成が抑制できる場合に、安定な MILD combustion 状態の火炎を形成できることを示した。Ayoub らはメタンと水素を用いて、それぞれの添加量をパラメータとして、MILD combustion の燃焼特性に与える影響を考察した。その結果から、メタンの中に少量の水素を供給する場合、MILD combustion 状態の火炎において、排気中の Thermal NO_x 濃度が上昇したことが示された。一方で、メタンの中に 70 % の水素を混合させた場合には、排ガス中の Thermal NO_x 濃度が低下することが示された^[73]。

以上のように、MILD combustion では、燃焼領域に目視可能な明確な火炎面が存在せず、広い空間において緩慢な燃焼反応が起こることにより、従来の燃焼形態より排ガス中の Thermal NO_x 濃度が大幅に低減することが示されている。

従来の MILD combustion の研究において使用された燃料

これまでに報告されている MILD combustion に関する研究では、単一の気体燃料を使用した研究例が多い。しかし、近年では、MILD combustion の研究で扱われる

燃料種が多様となり、液体燃料と固体燃料による燃焼においても MILD combustion に対する研究が行われている。

Derudi らは液体燃料を用いて、ダブルノズル形式の燃焼器において MILD combustion を形成した。さらに、従来の燃焼方式と比較して、排気ガス中の NOx 濃度、PAH 濃度が低下したことを明らかにした^[74-76]。Mahendra Reddy らは、灯油、ガソリン、軽油を用いて、形成された MILD combustion の燃焼特性を考察した。その結果から、空気比が上昇するとともに、3 種類の燃料によって形成された MILD combustion では温度分布が均一になり、また、燃焼騒音が 8 dB 低減したことを示した^[77, 78]。Schaffel らは、微粉炭を用いて、空気の予熱温度を 1623 K に設定することにより、MILD combustion を形成した。また、数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics: CFD) により、MILD combustion の流れ場、温度場、化学種の濃度分布を取得した^[79]。

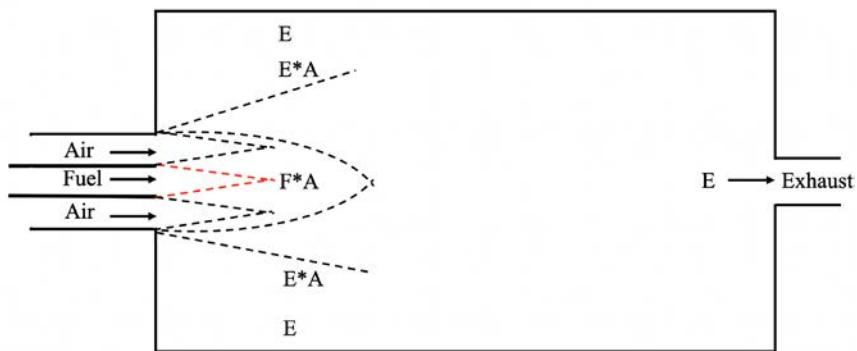
Stadler らは、微粉炭を用いて MILD combustion 状態の火炎の燃焼特性を考察した。Stadler らは、20 kW の燃焼器において、空気比、空気の流速及び希釈剤の種類 (N_2/O_2 , Ar/O_2 , CO_2/O_2) を変化させて、MILD combustion の火炎形成に与える影響を評価した。その結果として、空気の流速が上昇する場合は、炉内に安定な MILD combustion を容易に形成できることを示した。また、希釈剤として CO_2 を使用した場合に、MILD combustion の燃焼場において、排ガス中の Thermal NOx 濃度が大幅に低減する一方で、Fuel NOx 濃度がわずかに上昇することを示した^[80, 81]。Fielenbach らは、微粉炭を用いて、燃焼器内部を加圧する条件において、酸化剤の流速が十分速い場合は、予熱していない常温の酸化剤でも MILD combustion を形成できることを示した。さらに、形成された MILD combustion において、排ガス中の NOx 濃度が従来の燃焼方式より 25% ~ 65% 低減されることを示した^[82]。

本研究において形成された MILD combustion の特徴

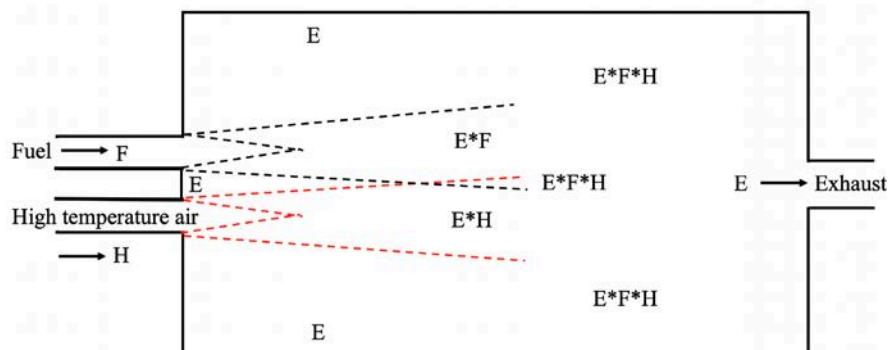
MILD combustion 燃焼場は従来の燃焼方式と比較して、図 1.7 のような従来の燃焼方式 (図 1.7 (a)) では、燃料と酸化剤ノズルの距離が近く、燃料と酸化剤が燃焼器内部に供給された際に急速に混合され、燃焼反応が進行するとともに、目視できる明確な火炎面が存在する。従来の MILD combustion 状態の火炎 (図 1.7 (b)) では、燃料と酸化剤ノズルの距離が離れている。また、燃料と酸化剤は予熱され、それぞれの流速も上昇する。そのため、燃料と酸化剤が燃焼器内部に供給された際に、燃焼後ガスが炉内の下流からノズル近傍までの再循環効果によって、燃焼反応が広い領域に進行できる。また、ガスの予熱および炉内の熱輻射により、反応物の温度が自着火温度以上に維持される、さらに、再循環効果によって、炉内ガスが希釈されたため、燃焼領域における酸素濃度が低下する。結果として、緩慢に燃焼反応が進行する MILD combustion 状態の火炎が形成される。燃焼器内部には目視できる明確な火炎面が存在しない。

ここで、本研究で対象とする都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域では (図 1.7 (c))、高

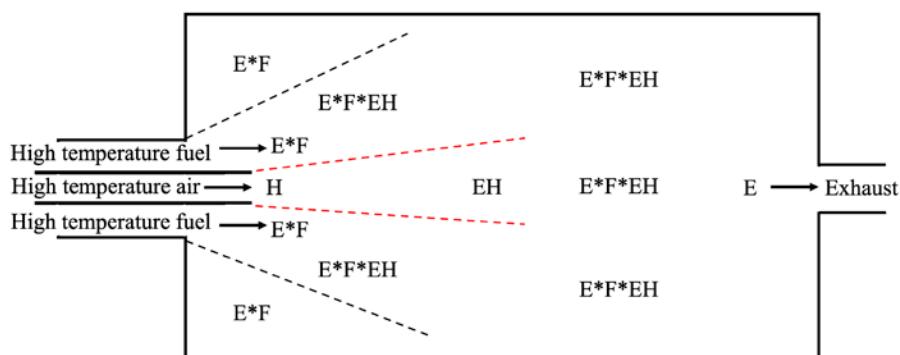
温の燃料中に CO_2 , 水蒸気という希釈剤となり得る成分が含まれている。希釈剤が燃料中に含まれる場合は、燃焼反応が阻害されることが明らかになっており、都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域における NO_x 生成特性を明らかにするためには、予熱された高温の Fuel N 源を含む燃料の燃焼過程で形成される可能性のある MILD combustion 状態の火炎における Fuel NO_x の生成特性を明らかにすることが求められる。



(a) Traditional combustion



(b) MILD combustion in past research



(c) MILD combustion in this research

Fig. 1.7 The situation in the burner under different combustion methods

E: Exhaust *: Combustion reaction F: Fuel A: Air
 H: High temperature air EH: Exhaust and High temperature air mixture EA:
 Exhaust and Air mixture.

以上の MILD combustion に関する既往研究によって, MILD combustion が形成される条件について, 燃料組成, 予熱温度, 燃焼器設計などの影響が複雑に関連することが示されており, 単純に MILD combustion 状態の火炎を定義することは困難である. さらに, 異なる実験条件, 燃料種の場合には, 形成された MILD combustion 状態の火炎において, 排ガス中の NO_x 濃度に与える影響を総括して評価できないことが分かる. 本研究では, ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域を対象とするために, 燃料が単一成分ではなく, 燃料中に Fuel N 源を含むことから, MILD combustion に関する既往研究から取得した知見をそのまま適用することは難しいと考えられる. 本研究の目的である, ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域における NO_x 生成特性に与える火炎形態の影響を明らかにするためには, 二次燃焼領域に形成される火炎形態, およびその構造と Fuel NO_x の生成特性の関係を明らかにする必要がある.

1.6 本研究の目的と論文構成

上述の MILD combustion 状態の火炎に関する既往研究では、MILD combustion 状態の燃焼形態を形成することで排ガス中の Thermal NO_x が低減できることが示された。しかしながら、MILD combustion 状態の燃焼形態が Fuel NO_x の生成に与える影響に関しては未だ不明である点が多い。また、MILD combustion 状態の火炎の形成については、拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎への遷移に注目した研究が報告されている^[83-87]。ここで、本研究において対象としたストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域では、一次燃焼領域で未燃となった燃料や揮発分として放出された燃料中に二次空気が吹き込まれて逆拡散火炎が形成される。もしくは、条件によっては、MILD combustion 状態の火炎が形成されることが推察される。ストーカ式都市ごみ焼却炉を用いたごみ発電において NO_x 排出量の低減を達成するためには、二次燃焼領域における火炎形態の把握、および火炎形態が NO_x 生成に与える影響を明らかにする必要がある。

特に、ストーカ式都市ごみ焼却炉を用いたごみ発電では、都市ごみ中に含まれる分子中の窒素分からの Fuel NO_x 生成が考えられる。都市ごみ中の窒素分は燃料由来の窒素 (Fuel N) として認識され、NH₃、HCN などの窒素化合物を前駆物質として、最終的に Fuel NO_x へと変化することが知られている^[88-91]。

そこで本研究では、実験室規模の燃焼装置を用いて、ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に準ずる燃焼条件における火炎形態および NO_x 生成特性を明らかにすることを目的とした。本研究では、燃焼形態を詳細に観察するために、非接触の光学計測法である LIF 法 (Laser Induced Fluorescence; レーザ誘起蛍光法) の適用とともに、熱電対を用いた燃焼場の温度分布の評価を行った。さらに、NO_x 計測として、ガス分析装置を用いた煙道での NO_x 濃度計測を適用し、被焼却物中に含窒素成分が含まれていることを考慮して、燃料中にアンモニアを添加した場合と添加しない場合において、同一の燃料と酸化剤の供給条件で形成される“逆拡散火炎”と“MILD combustion 状態の火炎”を対象として、光学計測によりその詳細構造を詳細に観察するとともに、NO_x 生成特性を比較した。

本論文は全 5 章で構成される。

第 1 章では、世界的な温室効果ガス排出低減の潮流と日本国エネルギーを取り巻く環境から、都市ごみ発電の有効性とその発電効率向上の方策としての低 NO_x 燃焼技術の貢献について述べた。また、ストーカ式都市ごみ焼却炉内において二次燃焼によって形成された MILD combustion 状態の火炎について、先行研究で得られている知見を示し、ストーカ式都市ごみ焼却炉における火炎形態及び NO_x 評価の重要性を述べ、本研究の目的を明確にした。

第 2 章では、ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域の燃焼現象を模擬するための、実験室規模の燃焼装置について述べた。自着火により形成された逆拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎への遷移過程及び火炎構造、火炎形態を把握する

ための非接触光学計測手法として, OH-PLIF 法及び関連装置について述べた. また, 二種類の火炎の温度場を把握するために, 熱電対を用いた火炎の温度計測手法及び関連装置について述べた. さらに, 逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎の燃焼領域において, NO_x 生成に関する NO 分子の生成特性を把握するための非接触光学計測手法として, NO-PLIF 法及び関連装置について述べた. 最後に, NO_x 生成特性を把握するために, 実際の煙道内ガス中における NO_x 濃度計測手法及び関連装置について述べた.

第 3 章では, ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に準ずる燃焼条件における火炎形態および NO_x 生成特性を明らかにすることを目的として, 逆拡散火炎及び MILD combustion 状態の火炎の燃焼形態を詳細に観察するために, 非接触の光学計測法である OH-PLIF 法の適用とともに, R 型熱電対を用いた燃焼場の温度分布の評価を行った. また, NO_x 計測として, ガス分析装置を用いた煙道での NO_x 濃度計測を適用し, 被焼却物中に含窒素成分が含まれていることを考慮して, 燃料へのアンモニア添加が火炎形態と NO_x 排出特性に与える影響について考察した.

第 4 章では, ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に形成された逆拡散火炎及び MILD combustion 状態の火炎の反応領域における NO 生成の増減, および燃料中に N 分を含む場合の NO 生成について, ノズル端面からの垂直方向距離の異なる範囲で NO-PLIF 法により NO 生成特性を考察した. さらに, アンモニアに対する NO-PLIF 計測では励起光源によるアンモニアの光分解による計測誤差が懸念されるため, ホルムアミドを用いて, アンモニアの光分解が計測誤差に及ぼす影響を調べた. 最後に, 火炎に対して NO-PLIF と OH-PLIF を適用し, 両者を比較することで, アンモニア添加による NO_x 生成特性について検討した.

第 5 章には本論文の結論をまとめた.

参考文献

1. 環境省, IPCC 「土地関係特別報告書」(2020),
<https://www.env.go.jp/content/900442314.pdf>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 112-121.
2. Berkeley Earth, Global Temperature Report for 2019, 20220615.
3. 環境省, 環境白書, (2016), 第 1 部, 第 1 章,
<http://www.env.go.jp/policy/hakusyo/h28/pdf.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 4-24.
4. 環境省, 環境白書, (2016), 第 1 部, 第 2 章,
<http://www.env.go.jp/policy/hakusyo/h28/pdf.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 25-48.
5. 環境省, 2020 年度温室効果ガス排出量（確報値）概要,
<https://www.env.go.jp/content/900445424.pdf>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 5.
6. 経済産業省, 2020 年度エネルギー需給実績からみる日本のエネルギー構造の変化と今後の課題,
<https://www.meti.go.jp/press/2022/04/20220415003/20220415003.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 1.
7. 経済産業省資源エネルギー庁, FIP 制度,
<https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/fip.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日).
8. 経済産業省資源エネルギー庁, 再エネを日本の主力エネルギーに !「FIP 制度」が 2022 年 4 月スタート,
<https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/fip.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日).
9. 環境省, 環境白書, (2016), 第 2 部, 第 3 章,
<http://www.env.go.jp/policy/hakusyo/h28/pdf.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日), pp. 170-183.
10. 田中 勝, 廃棄物用語集, (1983), pp. 155-156, 中央法規出版.
11. 環境省, 循環型社会形成推進基本法, (2000),
<https://www.env.go.jp/recycle/circul/recycle.html>, (参照日 2022 年 7 月 1 日).
12. 橋詰博樹, 廃棄物処理の現状と高効率廃棄物発電, 資源環境対策, 45 卷, 4 号, 2009.4, pp. 22.
13. 稲村光郎, わが国におけるごみ熱エネルギー回収の変遷, 都市清掃, 66 卷, 316 号, 2013.11, pp. 535.
14. 豊村紳一郎, 廃棄物発電導入の現状とその推進策, 環境技術, 42 卷, 6 号, 2013.6, pp. 328.
15. 白石裕司, ごみ層からの窒素分放出挙動を考慮した NO_x 予測モデルを含む

- ごみ焼却炉の数値解析手法に関する研究, 博士学位論文, (2017), pp. 3.
16. Qiu, X. L., Zhang, H., Wu, Y. X., Yu, H. Y. and Lu, J. F., Experimental study on characteristics of the temperature fields of inverse diffusion flames, *Journal of Engineering Thermophysics*, Vol. 33, No. 2 (2012) , pp. 348-351.
17. Li, X. Y., Dai, Z. H., Xu, Y. T., Li, C., Zhou, Z. J. and Wang, F. C., Inverse diffusion flame of CH₄-O₂ in hot syngas coflow, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 46, No. 40 (2015) , pp. 16104-16114.
18. 白石裕司, 中塚記章, 宮内隆志, 林 潤, 赤松史光, 都市ごみ焼却炉における Fuel-NO_x の生成に及ぼす揮発成分の影響に関する詳細素反応解析, *日本機械学会論文集*, Vol. 82, No. 838 (2016) , DOI: 10.1299/transjsme.15-00601.
19. 水谷幸夫, 燃焼工学 (第3版) , (2002) , pp. 217-220, 森北出版.
20. Fenimore, C. P., *Proceedings of Combustion Institute*, 13-1, (1971) , pp. 373-380.
21. Lamoureux, N., Deagroux, H., Bakali, P. A., Experimental and numerical study of the role of HCN in prompt-NO formation in low-pressure CH₄-O₂-N₂ and C₂H₂-O₂-N₂ flames, *Combustion and Flame*, 57-10 (2010) , pp. 1921-1941.
22. 奥村幸彦, 渡部弘達, 岡崎健, バイオマス低温燃焼における N₂O 生成特性, *日本機械学会論文集*, Vol. 799, No. 3 (2013) .
23. 水谷幸夫, 燃焼工学 (第3版), (2010) , pp. 219, 森北出版.
24. 水谷幸夫, 燃焼工学 (第3版), (2010) , pp. 220-222, 森北出版.
25. 加藤幸三, 藤井健一, 蔵田親利, 森 建二, フェール NO の生成とその低減方法に関する研究, *日本機械学会論文集*, (1976) , pp. 582-591.
26. Jong, W., Unal, O., Andries, J., Hein, K. R. G. and Spliethoff, H., Biomass and fossil fuel conversion by pressurised fluidised bed gasification using hot gas ceramic filter as gas cleaning, *Biomass and Bioenergy* 25-1 (2003) , pp. 59-83.
27. Zhou, J., Masutani, S. M., Ishimura, D. M., Turn, S. Q. and Kinoshita, C. M., Release of fuel-bound nitrogen during biomass gasification, *Industrial and Engineering Chemistry Research* 39-3 (2000) , pp. 626-634.
28. Winter, F., Wartha, C., Hofbauer, H., NO and N₂O formation during the combustion of wood, straw, malt waste and peat, *Bioresource Technology* 70-1 (1999) , pp. 39-49.
29. Li, C. and Suzuki, K., Tar property, analysis, reforming mechanism and model for biomass gasification - An overview, *Renewable and Sustainable Energy Review* 13-3 (2009) , pp. 594-604.
30. Girods, P., Dufour, A., Rogaume, Y., Rogaume C. and Zoulalian, A., Thermal removal of nitrogen species from wood waste containing urea formaldehyde and melamine formaldehyde resins, *Journal of Hazardous Materials*, 159- 2-3 (2008) , pp. 210-221.
31. Chen, Y., Duan, J. and Luo, Y., Investigation of agricultural residues pyrolysis behavior under inert and oxidative conditions, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 83-

- 2 (2008) , pp. 165-174.
32. Stubenberger, G., Scharler, R., Zahirovi, S. and Obernberger, I., Experimental investigation of nitrogen species release from different solid biomass fuels as a basis for release models, *Fuel*, 87 (2008) , pp. 793-806.
33. Blasi, C. D., Modeling chemical and physical processes of wood and biomass pyrolysis, *Progress in Energy and Combustion Science*, 34-1 (2008) , pp. 47-90.
34. Lepplahti, J. and Koljonen, T., Nitrogen evolution from coal, peat and wood during gasification: Literature review, *Fuel Processing Technology*, 43-1 (1995) , pp. 1-45.
35. Lepplahti, J., Formation of NH₃ and HCN in slow-heating-rate insert pyrolysis of peat, coal and bark, *Fuel*, 74-9 (1995) , pp. 1363-1368.
36. Hansson, K. M., Samuelsson, J., Tullin, C. and Åmand, L. E., Formation of HNCO, HCN, and NH₃ from the pyrolysis of bark and nitrogen-containing model compounds, *Combustion and Flame*, 137-3 (2004) , pp. 265-277.
37. Ren, Q., Zhao, C., Chen, X., Duan, L., Li, Y. and Ma, C., NO_x and N₂O precursors (NH₃ and HCN) from biomass pyrolysis: Co-pyrolysis of amino acids and cellulose, hemicellulose and lignin, *Proceedings of the Combustion Institute*, 33-2 (2011) , pp. 1715-1722.
38. 社会法人日本エネルギー学会, バイオマス用語辞典 (第 1 版), オーム社, (2006) , pp. 76-77.
39. 社会法人日本エネルギー学会, バイオマス用語辞典 (第 1 版), オーム社, (2006) , pp. 77.
40. 社会法人日本エネルギー学会編, バイオマスハンドブック (第 2 版), (2009) , pp. 24.
41. 落 修一, 尾崎正明, 牧孝 徳, 土木研究所資料, (2008) , pp. 36.
42. Ren, Q., Zhao, C., Wu, X., Liang, C., Chen, X., Shen, J., Tang, G. and Wang, Z., TG-FTIR study on co-pyrolysis of municipal solid waste with biomass, *Bioresource Technology*, 100-17 (2009) , pp. 4054-4057.
43. 村上恵一, 向田裕志, 波岡知昭, 吉川邦夫, 原 勉, 動物系バイオマスガス化ガス時における有害窒素化合物の生成挙動に関する研究, 日本機械学会論文集 (B 編) , 72-724 (2006) , pp. 3082-3088.
44. Jong, W., Nola, D., Venneker, B. C. H., Spliethoff, H. and WÙjtowicz, M.A., TG-FTIR pyrolysis of coal and secondary biomass fuels: determination of pyrolysis kinetic parameters for main species and NO_x precursors, *Fuel*, 86-15 (2007) , pp. 2367-2376.
45. Nola, G., Jong, W. and Spliethoff, H., The fate of main gaseous and nitrogen species during fast heating rate devolatilization of coal and secondary fuels using a heated wire mesh reactor, *Fuel Processing Technology*, 90-3 (2009) , pp. 388-395.
46. 長谷川武治, 佐藤幹夫, 酸素吹きガス化中カロリー燃料用ガスタービン燃焼器の開発, 日本機械学会第 8 回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文

- 集, (2002), pp. 353-358.
47. 須田俊之, 高藤 誠, 濱野靖徳, Dirk Richelmann, 藤森俊郎, 平田哲也, 佐藤順一, 高温空気燃焼技術: 基礎研究から固体燃料への適用について, 日本機械学会熱工学コンファレンス講演論文集, (2003), pp. 535-539.
48. レーザー計測ハンドブック編集委員会, レーザー計測ハンドブック, (2009), pp. 277-280.
49. 辻 博文, 宮崎哲夫, レーザ誘起蛍光法 (LIF) による燃焼火炎内ラジカルの可視化, 電力中央研究所報告, (1998) , W97007.
50. Wünning, J. A. and Wünning, J. G., Flameless oxidation to reduce thermal NO formation, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 23, No. 1 (1997) , pp. 81-94.
51. Noor, M., Wandel, A. P. and Yusaf, T., A review of MILD combustion and open furnace design consideration, *International Journal of Automotive and Mechanical Engineering*, Vol. 6, No. 1 (2012) , pp. 730-754.
52. Giammartini, S., Girardi, G. and Cipriani, R., Diluted combustion with high air pre-heating: Experimental characterization of laboratory furnace by means of advanced diagnostics, *Proceedings of the Industrial Furnaces and Boilers, European Conference* (2000) .
53. Park, J., Choi, J. W., Kim, S. G., Kim, K. T., Keel, S. I. and Noh, D. S., Numerical study on steam-added mild combustion, *International Journal of Energy Research*, Vol. 28, No. 13 (2004) , pp. 1197-1212.
54. Tsuji, H., Gupta, A. K., Hasegawa, T., Katsuki, M., Kishimoto, K. and Morita, M., High temperature air combustion: from Energy Conservation to Pollution Reduction, CRC Press (2003) .
55. Cavaliere A., Joannon M., Mild combustion. *Prog Energy Combust Sci*, 2004, 30 (4) : pp. 329-366.
56. Katsuki M., Hasegawa T., The science and technology of combustion in highly preheated air. *Proc Combust Inst*, 1998, 27 (2) : pp. 3135-3146.
57. Colorado, A., Herrera, B., Amell, A. Performance of a Flameless combustion furnace using biogas and natural gas. *Bioresource technology*. 2010, 101 (7) : pp. 2442-2249.
58. Szegö, G., Dally, B. B. and Nathan, G., Scaling of NOx emissions from a laboratory-scale mild combustion furnace, *Combustion and Flame*, Vol. 154, No. 1 (2008) , pp. 281-295.
59. Szegö, G. G., Effects of mixing patterns on mild combustion: [Ph.D. thesis], The University of Adelaide (2005) .
60. Khinkis, M. J., Ultra-low pollutant emission combustion process and apparatus, in, Editor Editors. 1991, Google Patents.
61. Nabi, M. N., Minami, M., Ogawa, H., Ultra low emission and high performance diesel

- combustion with highly oxygenated fuel, Technical SAE Technical Paper: 2000.
62. Lv, X., Cui, Y., Fang, A., Experimental Test on a Syngas Model Combustor with Flameless Technology. in: ASME Turbo Expo 2010: Power for Land, Sea, and Air: American Society of Mechanical Engineers, 2010. pp. 885-894.
63. He, Y., flameless combustion of nature gas in the sj/wj furnace: [Ph.D. thesis]. Queen's University. 2008.
64. Nazeer, W., Smith, K., Sheppard, P., Full scale testing of a low swirl fuel injector concept for ultra-low NO_x gas turbine combustion systems. in: ASME Turbo Expo 2006: Power for Land, Sea, and Air: American Society of Mechanical Engineers, 2006. pp. 107-115.
65. Khoshhal, A., Rahimi, M., Alsairafi, A. A. CFD study on influence of fuel temperature on NO_x emission in a Hi-TAC furnace. International Communications in Heat and Mass Transfer. 2011, 38 (10) : pp. 1421-1427.
66. Sánchez, M., Cadavid, F., Amell, A. Experimental evaluation of a 20kW oxygen enhanced self-regenerative burner operated in flameless combustion mode. Applied Energy. 2013, 111: pp. 240-246.
67. Veríssimo, A., Rocha, A., Costa, M. Importance of the inlet air velocity on the establishment of flameless combustion in a laboratory combustor. Experimental Thermal and Fluid Science. 2013, 44: pp. 75-81.
68. Li, G., Gutmark, E. J., Overman, N., Experimental study of a flameless gas turbine combustor. in: ASME Turbo Expo 2006: Power for Land, Sea, and Air: American Society of Mechanical Engineers, 2006. pp. 793-804.
69. Li, G., Gutmark, E., Stankovic, D., Experimental study of flameless combustion in gas turbine combustors. AIAA paper. 2006, pp. 546: 2006.
70. Szego, G., Dally, B., Nathan, G. Operational characteristics of a parallel jet MILD combustion burner system. Combustion and Flame. 2009, 156 (2) : pp. 429-438.
71. Kumar, S., Paul, P., Mukunda, H. Investigations of the scaling criteria for a mild combustion burner. Proceedings of the Combustion Institute. 2005, 30 (2) : pp. 2613-2621.
72. Dally, B., Riesmeier, E., Peters, N. Effect of fuel mixture on moderate and intense low oxygen dilution combustion. Combustion and flame. 2004, 137 (4) : pp. 418-431.
73. Ayoub, M., Rottier, C., Carpentier, S., An experimental study of mild flameless combustion of methane/hydrogen mixtures. International Journal of Hydrogen Energy. 2012, 37 (8) : pp. 6912-6921.
74. Derudi, M., Rota, R. Experimental analysis of mild combustion of liquid fuels. Combustion Colloquim of Italian Section of the Combustion Institute. 2009.
75. Derudi, M., Villani, A., Rota, R. The Influence of Operating Parameters on Mild Combustion Sustainability, Dipartimento Chimica, Materiali Ingegneria Chimica "G.

- Natta”/CIIRCO–Politecnico di Milano, Milano–ITALY.
- 76. Derudi, M., Rota, R. Experimental study of the mild combustion of liquid hydrocarbons. Proceedings of the Combustion Institute. 2011, 33: pp. 3325-3332.
 - 77. Mahendra R, V., Kumar, S. Development of high intensity low emission combustor for achieving flameless combustion of liquid fuels. Propulsion and Power Research. 2013, 2 (2) : pp. 139-147.
 - 78. Mahendra R, V., Sawant, D., Trivedi, D. Studies on a liquid fuel based two stage flameless combustor. Proceedings of the Combustion Institute. 2013, 34 (2) : pp. 3319-3326.
 - 79. Schaffel, N., Mancini, M. Mathematical modeling of MILD combustion of pulverized coal. Combustion and Flame. 2009, 156 (9) : pp. 1771-1784.
 - 80. Stadler, H., Ristic, D., Förster, M., et al. NOx-emissions from flameless coal combustion in air, Ar/O₂ and CO₂/O₂. Proceedings of the Combustion Institute. 2009, 32 (2) : pp. 3131-3138.
 - 81. Stadler, H., Toporov, D., Förster, M., et al. On the influence of the char gasification reactions on NO formation in flameless coal combustion. Combustion and Flame. 2009, 156 (9) : pp. 1755-1763.
 - 82. Fielenbach, C., Holfeld, T., von Petery, C., NOx-reduction in a pressurized pulverized coal flame by flue gas recirculation. in: Pittsburgh Coal Conference, Pittsburgh, USA: 2003.
 - 83. Weber, R. and Smart, J. P., On the MILD combustion of gaseous, liquid, and solid fuels in high temperature preheated air, Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 30, No. 2 (2005) , pp. 2623-2629.
 - 84. Ozdemir, I. B. and Peters, N., Characteristics of the reaction zone in a combustor operating at mild combustion, Experiments in Fluids, Vol. 30, No. 6 (2001) , pp. 683-695.
 - 85. Xing, X., Wang, B. and Lin, Q., Structure of reaction zone of normal temperature air flameless combustion in a 2 ton/h coal-fired boiler furnace, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part A: Journal of Power and Energy, Vol. 221, No. 4 (2007) , pp. 473-480.
 - 86. Katsuki, M. and Hasegawa, T., The science and technology of combustion in highly preheated air, The Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 27, No. 2 (1998) , pp. 3135-3146.
 - 87. Shim, S., Dally, B. B., Ashman, P. J., Szego, G. and Craig, R. A., Sawdust burning under MILD combustion condition, Proceedings of the Australian Combustion Symposium (2007) .
 - 88. Shaddix, C., Williams, T., Blevins, L. and Schefer, R., Flame structure of steady and pulsed sooting inverse jet diffusion flames, Proceedings of the Combustion Institute,

- Vol. 30, Issue 1 (2005) , pp. 1501-1508.
- 89. Okuno, K., Sano, T., Saitoh, H., Yoshikawa, N. and Hayashi, S., Measurements of temperature and concentration of nitrogen monoxide in flame by LIF imaging spectroscopy with standard addition method, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 72, No. 723 (2006) , pp. 2733-2740 (in Japanese) .
 - 90. Shirashi, Y., Nakataya, N., Sajiki, K., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., Numerical Simulation of Stoker-type Incinerator including Waste Bed Combustion and NOx Prediction using a Detailed Chemical Kinetics Mechanism, Journal of the Japan Society Material Numerical Cycles and Waste Management, Vol. 29 (2018) , pp. 80-90.
 - 91. Leppälähti, J. and Koljonen, T., Nitrogen evolution from coal, peat and wood during gasification: Literature review, Fuel Processing Technology, Vol. 43, No. 1 (1995) , pp. 1-45.

第2章 実験装置および計測手法

2.1 はじめに

二段燃焼方式の都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域では、部分燃焼によって生成された可燃性ガスや熱分解ガス中に二次空気が吹き込まれるため、二次空気の吹き込み位置に逆拡散火炎 (Inverse Diffusion Flame; IDF) が形成される^[1]。また、二次空気の吹き込み速度、燃焼場の酸素濃度や温度の条件によっては、浮き上がり火炎や MILD combustion (Moderate & Intense Low Oxygen Dilution) 状態の火炎が形成される^[2,3]。これまでに、MILD combustion 状態の火炎の形成に関して、拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎への遷移に注目した研究が報告されている^[4-14]。本研究において対象としたストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域では、一次燃焼領域で未燃となった燃料、あるいはガス化された燃料中に二次空気が吹き込まれることから逆拡散火炎が形成される。逆拡散火炎は、燃料と酸化剤の位置関係が逆転していることを除けば、バーナーリムに対する火炎の形成位置、構造、吹き飛びの特性など、拡散火炎と異なると考えられる^[15]。通常の拡散火炎と同様の火炎構造を持つと考えられる。このことから、本研究で対象とした二次燃焼領域において形成される逆拡散火炎でも、付着火炎から MILD combustion 状態への遷移が生じることが想定される。しかしながら、ストーカ式焼却炉において、主な燃料がバイオマスの場合の熱分解ガス中に形成される火炎形態は不明である。このため、ストーカ式都市ごみ焼却炉を用いたごみ発電において、燃焼効率の向上と NOx 排出量の低減を達成するためには、二次燃焼領域における火炎形態の把握、および火炎形態が Fuel N 源を含む燃料の燃焼過程における Fuel NOx の生成特性に与える影響を明らかにする必要がある。

そこで本研究では、実験室規模の燃焼装置を用いて、ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に準ずる燃焼条件における逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎の形成過程および火炎形態構造を明らかにすることを目的とした。本章に逆拡散火炎および MILD combustion 火炎の形態、NOx 生成状況を詳細に考察できるように設計・構築した実験装置、および計測手法について述べる。

2.2 実験装置

図 2.1 に本研究で使用した実験装置の概略図を示す。図 2.2 に実験装置の直接写真を示す。この実験装置では、燃焼装置底部の燃料ガスのノズルは円形断面であり、酸化剤供給ノズルは燃料流路断面中心に同軸に配置した。また、酸化剤と燃料が予熱されて、燃焼領域において自着火することにより、ノズルに付着した逆拡散火炎が形成される。後述するように、中央に供給された酸化剤の流速を変化させることで、逆拡散火炎から浮き上がり火炎や MILD combustion 状態の火炎を形成できる。したがって、本装置により実際のストーカ式焼却炉の二次燃焼領域に存在する火炎

形態を模擬できる。実験装置は燃焼器、供給系、排気系、計測系から構成されている。本節では、燃焼器、供給系、および排気系について述べる。計測系の詳細については、2.3節において計測法と共に記述する。

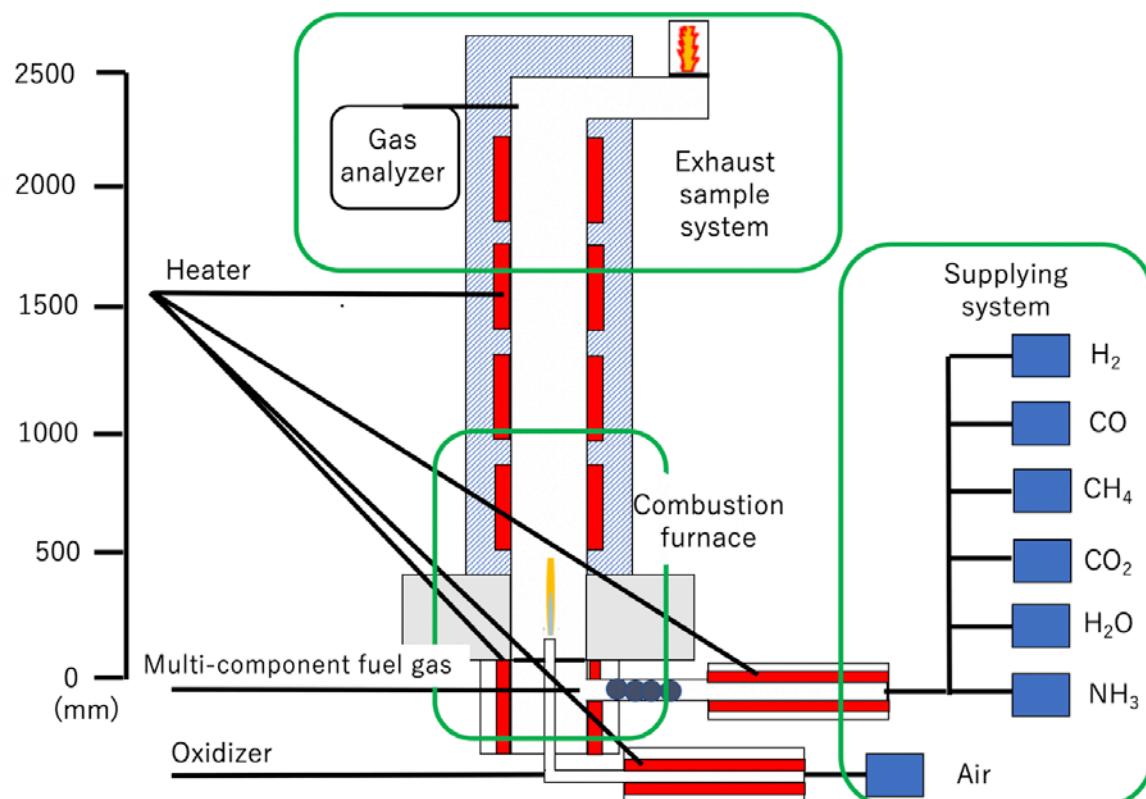


Fig. 2.1 Schematic illustration of combustion furnace and gas reformer.



Fig. 2.2 Direct photograph of experimental equipment.

2.2.1 燃焼炉

図 2.3 に本研究に用いた燃焼炉の直接写真を示す。図 2.4 に燃焼炉の図面を示す。図 2.5 に燃焼炉の概略図を示す。図 2.4 および図 2.5 に示されるように、燃焼炉は同軸噴流バーナー、断熱壁および石英ガラス窓から構成される。同軸噴流バーナーは内径 50 mm の円管と外径 17 mm, 内径 11 mm の中心ノズル (SUS310S 製) から構成される。酸化剤は中心ノズルに導かれて燃焼炉に噴出される。模擬ガスは同軸環状流路から燃焼炉に供給される。燃焼炉の側壁の 4 面のうち 1 面は火炎を直接に観察するための縦 210 mm, 横 120 mm, 厚さ 5 mm の石英ガラス窓 (大健石英硝子社製) を設置している。また、対面する 2 面はレーザーシートの入射および出射をするために、縦 210 mm, 横 90 mm, 厚さ 5 mm の石英ガラス窓 (大健石英硝子社製) を設置している。材質は紫外光においても高い透過率を有する透明石英ガラス (大健石英硝子社製) を用いることで、紫外光を受光する必要がある光学計測 (後述) に対応している。

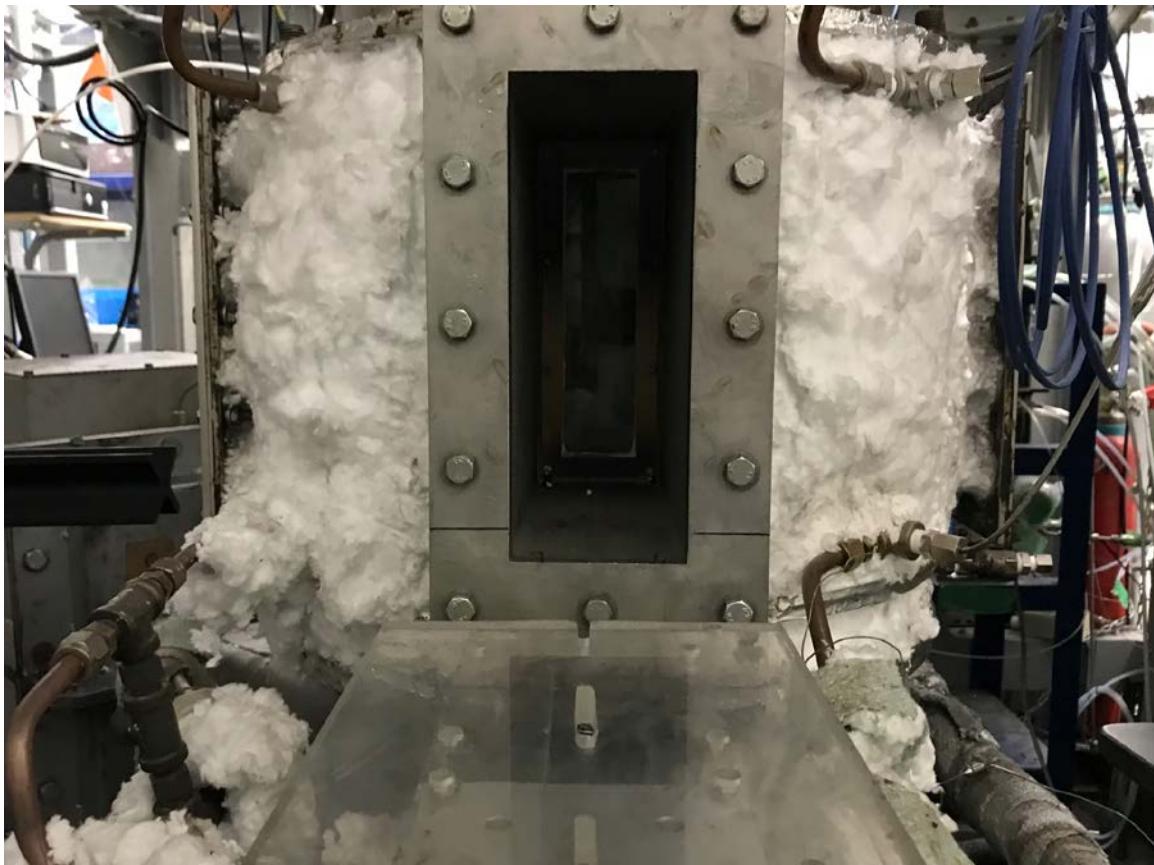


Fig. 2.3 Direct photograph of the combustion chamber with three-side quartz windows.

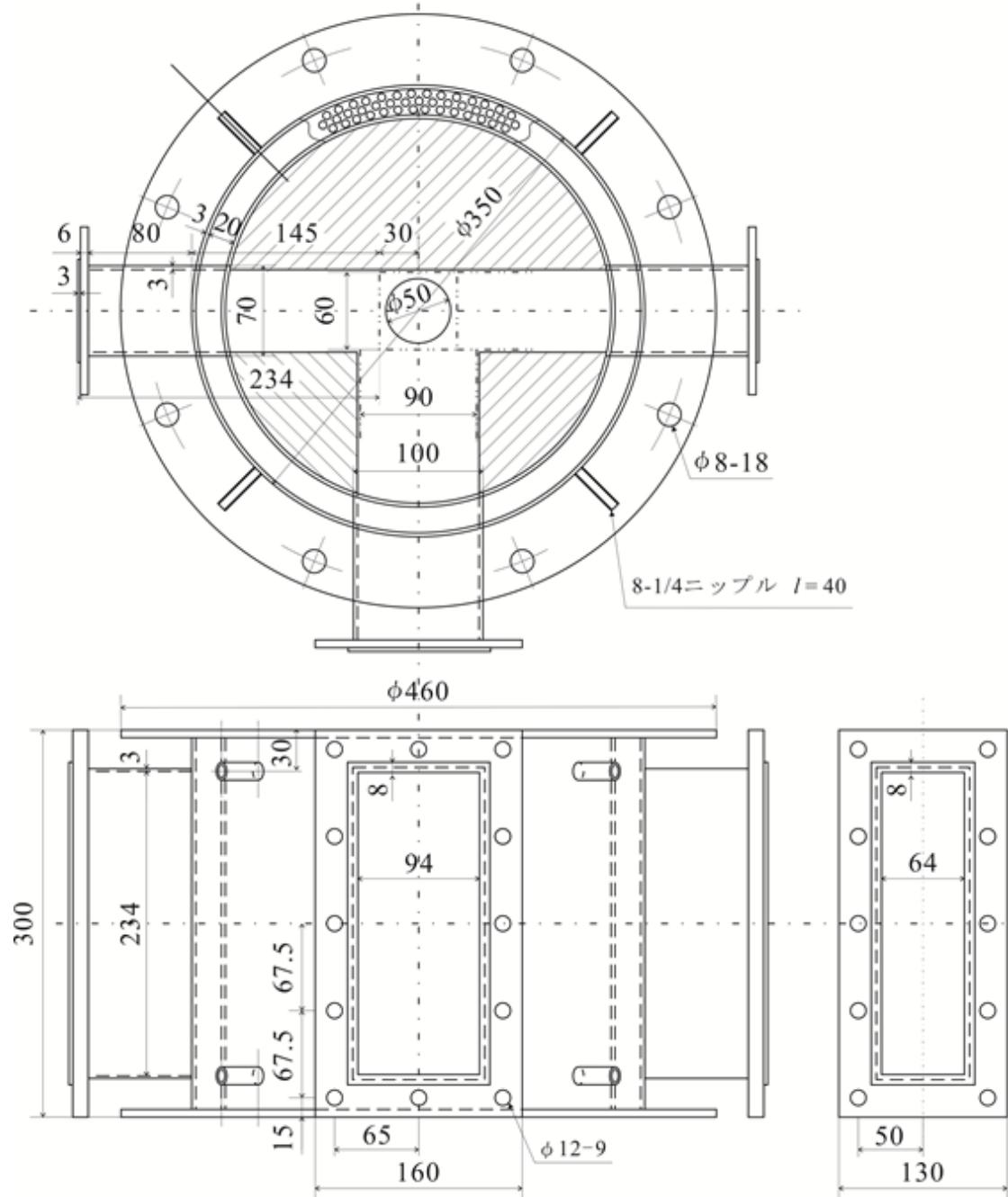


Fig. 2.4 Drawing of body of the combustion chamber with tree-side quartz window.

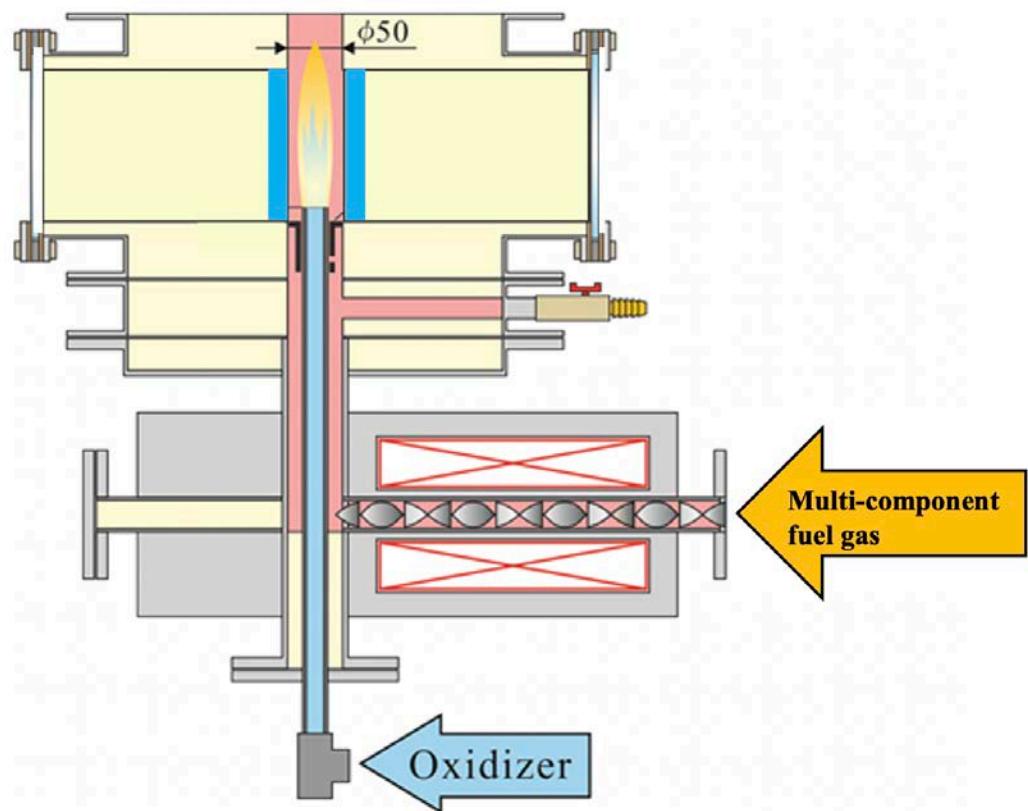


Fig. 2.5 Schematic illustration of the combustion furnace.

2.2.2 供給系

模擬ガス供給系

模擬ガスは、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタン、水蒸気、アンモニアから構成される多成分燃料である。模擬ガスの組成は都市ごみの熱分解ガス組成を採用した^[16-21]。模擬ガスの供給系は気体供給系と液体供給系から構成される。水素、メタン、一酸化炭素、二酸化炭素、アンモニアはそれぞれボンベから供給され、圧力調整器（千代田精機社製、CHN-4）により供給圧を 0.2 MPa に減圧された後、5 台のマスフローコントローラ（堀場エステック社製、SEC-N110）により流量が制御される。模擬ガスを構成するガスは、逆止弁を通った後、テフロンチューブ（スウェージロック社製、外径 1/4 inch、肉厚 1 mm）、一段目の管状電気ヒーター（イソライト工業社製、パネルヒーター 1000 W, 10 A 仕様、加熱部長さ 650 mm）の配管内に設置されているフィン構造の三重管、二段目のジャケットヒーター（東京技術研究所社製、マントルヒーター PHH、AC200 V, 2000 W 仕様）を通過し、燃料模擬ガスが混合される。その後、燃料模擬ガスは予熱され、燃焼炉バーナー内部の燃料供給ノズルに供給される。

水蒸気を安定に供給するため、図 2.6 に示すような模擬ガス液体供給系を構築した。液体タンク（ユニコントロールズ社製、TM10R-LG）に充填された精製水は脱気装置（フロム社製、BG-34-10）によって吸引され、低真空度制御方式により精製水に溶解している気体を脱気する。デュアルポンプ（フロム社製、KP-22-13）により脱気後の精製水を、図 2.7 に示す気化器で気化させて水蒸気を得る。水蒸気を前述の燃料模擬ガスと混合した後、管状電気ヒーターで任意の温度に加温して燃焼炉に供給する。気化器では、前述したデュアルポンプによる供給した水を一流体噴射ノズル（スプレーイングシステムスジャパン社製、Y130754-B1/4MN-SS1.8V）により微粒化し、気化器外部に巻いているリボンヒーターによって加熱されたステンレス製の円筒に供給することによって蒸発させて水蒸気とする。本研究では脱気装置の真空度を 70, リボンヒーターの加熱温度は 200°C に設定した。

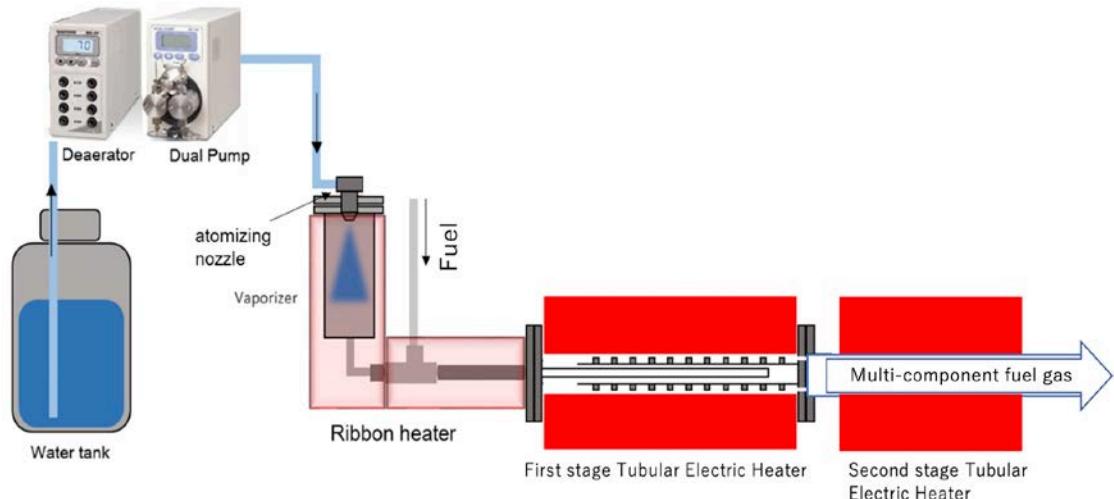


Fig. 2.6 Schematic diagram of the liquid of model producer gas supply system.

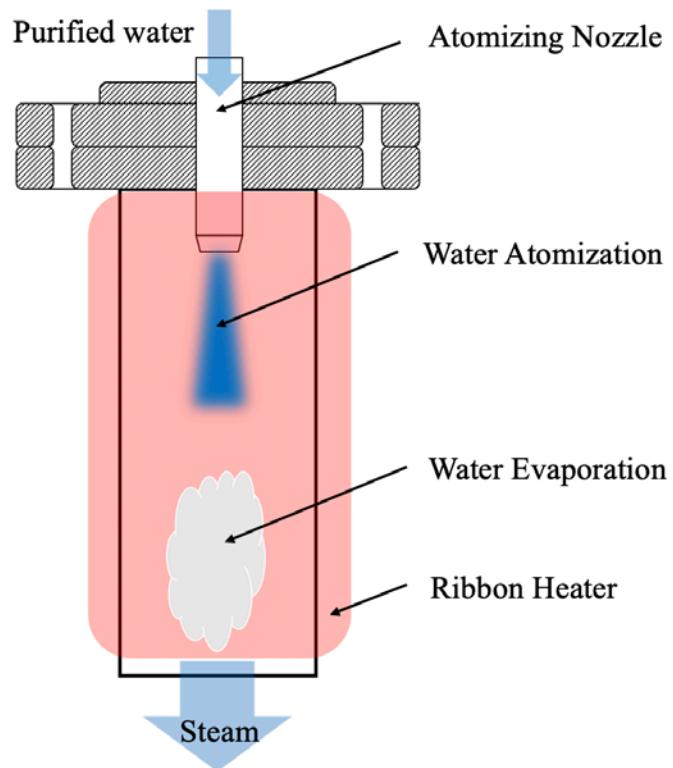


Fig. 2.7 Schematic diagram of the liquids of the model producer gas vaporizer.

酸化剤供給系

図 2.8 に酸化剤供給系の概略図を示す.

本研究では、酸化剤として空気を使用した。空気はエアーコンプレッサ (Anest Iwata 製, CFD75BH-14D) により燃焼炉に供給する。空気はレギュレータ (千代田精機社 製, CHN-4) によって供給圧を 0.2 MPa に調整されて、マスフローコントローラ (堀場エステック社製, SEC-N112MGR) により流量が制御される。酸化剤を予熱するため、管状電気ヒーター (イソライト社製、パネルヒーター 1000 W, 10 A 仕様、加熱部長さ 650 mm) を通過させて、燃焼炉内の酸化剤供給ノズルへと供給される。

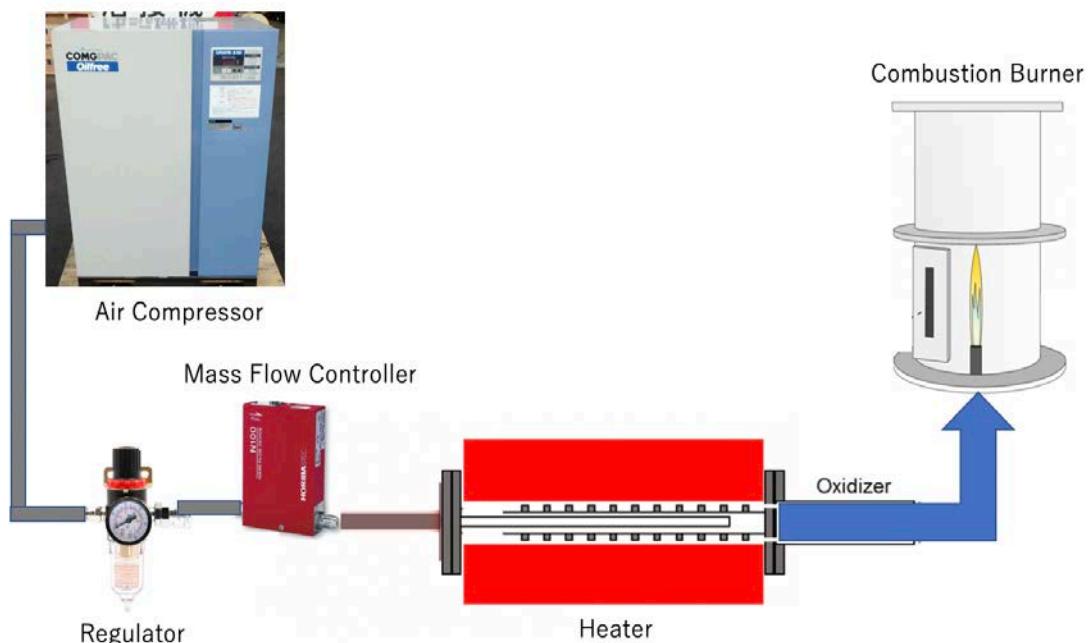


Fig. 2.8 Schematic diagram of Oxidizer supply system.

燃料供給系管状電気ヒーター部

本研究では、ストーク式都市ごみ焼却炉において炉内の高温ガスの温度を模擬するため、二段管状電気ヒーターを用いて、模擬ガスを通すステンレス管 (SUS310S 製、内径 53.5 mm、長さ 856 mm) を加熱することで、模擬ガスを間接的に予熱する。一段目の管状電気ヒーター (イソライト工業社製、パネルヒーター1000 W 10 A 仕様、加熱部長さ 650 mm) と二段目のジャケットヒーター (東京技術研究所社製、マントルヒーターPHH、AC200 V, 2000 W 仕様) を装置に備え付けの制御盤 (中外炉工業社製) と専用の制御ソフトウェア (中外炉工業社製) を用いて、ステンレス管の壁面温度を 600°C に温度制御する。ステンレス管の壁面から模擬ガスへの熱伝達を促進するために、一段目の管状電気ヒーター内部のステンレス管は、図 2.9 に示すようなフィン構造のある 3 重管である。フィンのイメージを図 2.10 に示す。3 重管の下流の配管には、模擬ガスの混合を促すためのスタティックミキサ・エレメント (TAH 社製、091-606) が設置されている。二段目のジャケットヒーターの概略図を図 2.11 に示す。二段目のジャケットヒーターから出た燃料模擬ガスでは、直径 6 mm のアルミナボールを詰めた長さ 25 mm の整流部で整流され、燃焼炉内へと導かれる。



Fig. 2.9 Triple tube for preheating zone.

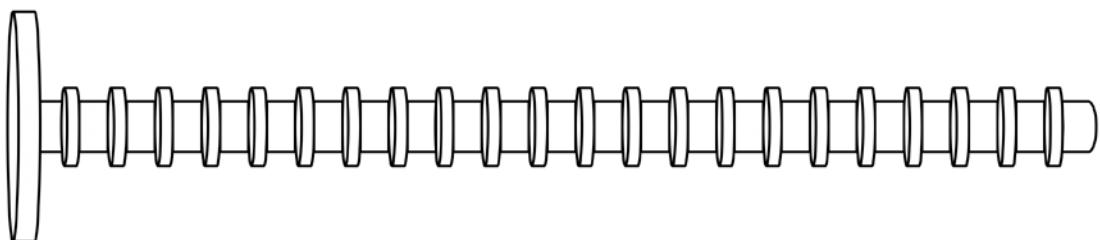


Fig. 2.10 Fin structure of triple tube for preheating zone.

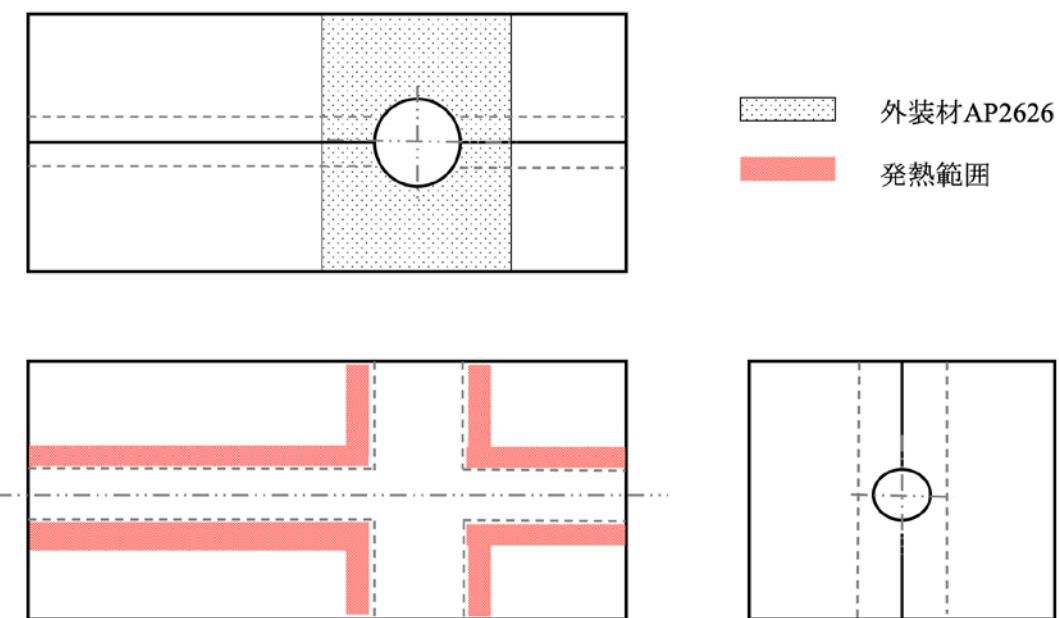


Fig. 2.11 Mantle heater drawing.

酸化剤供給系管状電気ヒーター部

酸化剤を予熱するヒーターでは、管状電気ヒーター（イソライト工業社製、パネルヒーター 1000 W, 10 A 仕様、加熱部長さ 650 mm）を装置に備え付けの制御盤（中外炉工業社製）と専用の制御ソフトウェア（中外炉工業社製）を用いて、ステンレス管の壁面温度を制御することで、ストーカ式都市ごみ焼却炉の熱分解ガス温度を模擬した。また、燃料模擬ガスの予熱装置と同様に、ステンレス管の壁面から空気への熱伝達を促進するために、管状電気ヒーター内部のステンレス管部分は、フィン構造のある 3 重管とした。

2.2.3 排気系

本研究の燃焼器において、煙道上部の排気出口の位置は大気開放であり、未燃分や既燃ガスがそのまま大気中に放出される可能性がある。この対策として、煙道上部の排気出口の位置にフレアスタックを設置した。フレアスタックにより、未燃燃料を完全燃焼させる。フレアスタックの排気は誘引ファンダクトを介して大気中に排出される。なお、安全確保のため、実験室内の CO と NH₃ は検知器によって常時監視して実験を行った。

煙道上部の排気出口の位置にサンプリング出口も設置されており、排ガス分析器を接続して、排気成分を分析できる。

2.3 計測系

本研究では、ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に準ずる燃焼条件における逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎の形成過程、火炎形態構造、NO_x 生成状況を明らかにするために、逆拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎への遷移過程の直接撮影、および OH 平面レーザー誘起蛍光法を行った。また、逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎の燃焼領域において、NO の詳細な生成状況を評価するために、NO 平面レーザー誘起蛍光法を実施した。さらに、逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎において、煙道内において生成された NO_x 濃度を把握するために、排ガス分析器を用いて、排気 NO_x 濃度を計測した。併せて、熱電対で燃焼場の温度計測を行った。

2.3.1 平面レーザー誘起蛍光法

平面レーザー誘起蛍光法原理

本研究では、燃焼場においてラジカルを計測するために、レーザー誘起蛍光 (Laser-Induced Fluorescence: LIF) 法を適用した。LIF 法は非接触計測法として、燃焼場を乱さずに計測可能であり、高強度の LIF 信号強度で二次元の情報を取得することができ、燃焼場のラジカルを可視化する手法として多くの利点がある^[22-25]。

LIF 計測法では、測定対象である原子や分子の基底電子状態における特定の回転準位（以後下準位となる）と、励起電子状態における特定の回転準位（以後上準位とする）との 2 準位間のエネルギー差 $h\nu$ (h : プランク定数, ν : 光の振動数) に等しい強度（波長）を持つレーザー光を測定場に照射する。その後、そのレーザー光（光子）を共鳴的に吸収して上準位へ励起された測定対象の化学種が、自然放出によって下準位へ緩和する際に発する蛍光の強度から濃度の測定を行う。

特に、レーザー光をシート状にする、燃焼場に導入する計測方法を平面レーザー誘起蛍光 (Planer Laser-Induced Fluorescence: PLIF) 法と呼ぶ^[26]。図 2.12 に、ラジカルの蛍光過程に関する二準位系を示す。

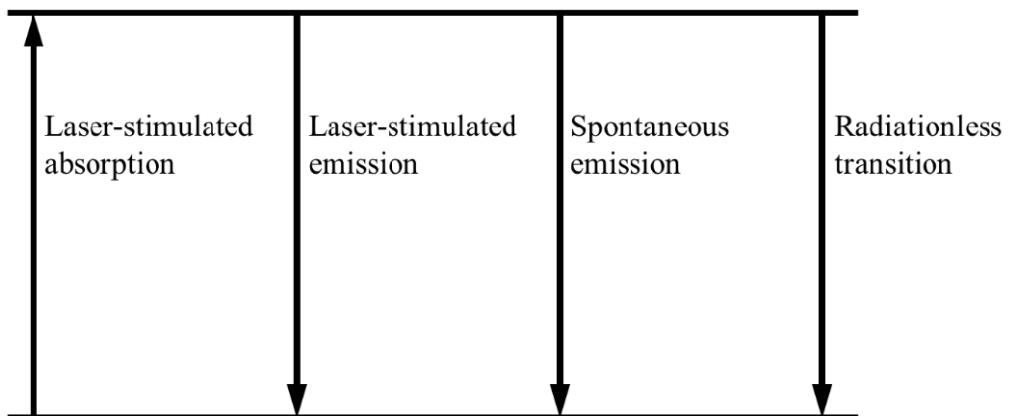


Fig. 2.12 Energy level diagram of important processes in Laser induced fluorescence in two-level system.

時刻 $t = 0$ からレーザー光を一定の強度で照射し始めた場合, 下準位の数密度 N_1 および上準位の密度 N_2 の変化を表わすレート方程式は, 下記の式 (2.1), 式 (2.2) となる.

$$\dot{N}_2 = \left(\frac{BI_0}{c} \right) (N_1 - N_2) - (Q + A) N_2 \quad (2.1)$$

$$\dot{N}_1 = \left(\frac{BI_0}{c} \right) (N_2 - N_1) - (Q + A) N_2 \quad (2.2)$$

$\dot{N}_1 = \dot{N}_2 = 0$ の場合, N_2 は式 (2.3) が成り立つ.

$$N_2 = \frac{BI_0}{c(Q+A)+BI_0} N_1 \quad (2.3)$$

ここで A : アインシュタインの A 係数, B : アインシュタインの B 係数, Q : 無放射遷移速度定数, c : 光速, I_0 : 励起光強度. したがって, 蛍光強度 I_{FL} は式 (2.4) で示される.

$$I_{FL} = \frac{ABI_0}{c(Q+A)+2BI_0} N_T \quad (2.4)$$

$N_T = N_1 + N_2$ であり, これは励起前の基底準位の数密度である. 式 (2.4) より, I_{FL} を測定することによって N_T を求めることができる. 励起蛍光強度が小さい場合, すなわち $BI_0 \ll c(Q+A)$ ならば, 式 (2.4) は式 (2.5) に簡略化され 蛍光強度は励起蛍光強度と原子の数密度の積に比例する.

$$I_{FL} = \frac{ABI_0}{c(Q+A)} N_T \quad (2.5)$$

$BI_0 \gg c(Q+A)$ ならば, 式 (2.4) は式 (2.6) に簡略化される.

$$I_{FL} = \frac{A}{2} N_T \quad (2.6)$$

分子の場合, 励起移乗を考慮する必要がある. 図 2.13 に励起移乗を含めた分子の励起, 放射過程を示す. 分子の励起移乗に伴い, I_{FL} は式 (2.7) で表わすことができる.

$$I_{FL} = \frac{AB_{mi}I_0}{c(A+B)} N_m \quad (2.7)$$

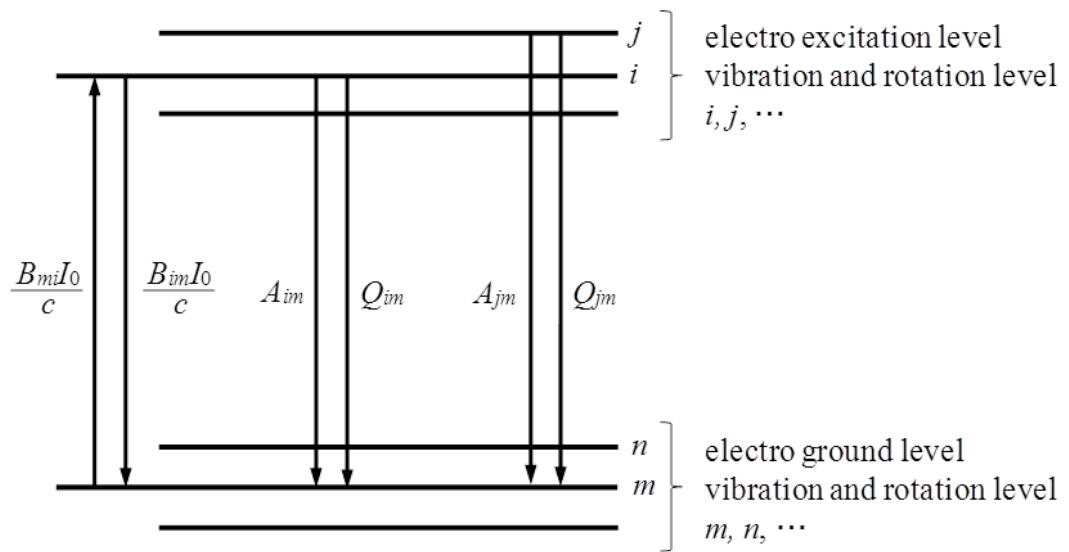


Fig. 2.13 Transition process in molecular-level system.

ここで、 N_m は回転準位 m の数密度分布であるため、式 (2.7) に示す分子の蛍光強度は、式 (2.5) に示す原子の蛍光強度と同様の扱いが可能である。励起光強度が大きい場合、電子基底状態における回転準位間の移乗を考慮する必要があり、蛍光強度からの濃度の絶対値を求めるることは特定の分子を除いて困難である。したがって、燃焼領域における LIF 計測法による分子濃度の計測は、相対的な濃度分布の計測が行われることが多い。

PLIF 計測法による光学計測系

図 2.14 が PLIF 計測法による光学計測系の概略図である。光学計測系はレーザー光源、光路中に設置したミラー・レンズ群および蛍光の検出装置で構成される。レーザー光源は、Nd: YAG レーザー (Spectra Physics 製, Quanta-Rey), 色素レーザー (Sirah 製, CSTR-LG-2400) である。Nd: YAG レーザーは繰り返し周波数 10 Hz, パルス幅 8 ns (半値幅) であり、本論文では、Nd: YAG レーザーの第二高調波 (532 nm) および第三高調波 (355 nm) を使用した。Nd: YAG レーザーはポンプ光源として色素レーザーを励起する。レーザー光が色素レーザーの倍波結晶 (Sirah 製, SHG-280-T, SHG-XXL-T) に照射されることにより、二倍波 (Second harmonic generation: SHG) を発生することができる。Nd:YAG レーザーの高調波の波長、色素レーザーの色素種、および倍波結晶の波長範囲により、レーザーの発振波長を選択することができる。本論文では、LIBBASE の吸収線バンドのデータを参考にして、LIF の励起および検出波長を決定した^[27-33]。OH ラジカル計測の場合、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ 電子エネルギー遷移における (1, 0) バンド吸収線の Q_1 (7) を励起線として選択した。この場合、励起光の波長は 283.222 nm となる。この吸収線を用いれば、1000 K – 2000 K の温度範囲で、全数密度に対する基底準位数密度の変化量をその最大値の 10% 以内に抑えることができる。蛍光の検出には、(1, 1) バンド (312.221 nm) を用いた。これにより比較的バンド幅の広いバンドパスフィルターを用いた検出においても、励起レーザー光のレイリー散乱光を避けることができる。一方、NO 分子計測の場合、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ 電子エネルギー遷移において、大気中の酸素を励起しにくくすることに加えて、500 K – 2000 K の温度範囲で信号強度の温度依存性が小さい (0, 0) バンド吸収線の Q_1 (28) を励起線として選択した。この場合、励起光の波長は 225.960 nm となる。励起レーザー光のレイリー散乱光を避けるために、蛍光の検出には、(0, 2) バンド (247.421 nm) を用いた。表 2.1 に Nd:YAG レーザーと色素レーザーの仕様を示す。レーザーの出力はエネルギーメーター (OPHIR 製, 30-A-P-SH-V1) を使用して計測した。

レーザー光を燃焼器まで導光するための光学系は、誘電体多層膜平面ミラー (シグマ光機製, TFMQ-30C05), 3 枚のシリンドリカルレンズ群 (平凸レンズ、焦点距離 240 mm, 平凹レンズ、焦点距離 -80 mm, 平凸レンズ、焦点距離 1000 mm) から構成される。レーザー光は、シリンドリカルレンズによりシート状に成形され、酸化剤供給ノズルの中心軸を含む鉛直断面に照射される。火炎近傍における二次元の LIF 信号はシート光入射方向に対して 90° の位置に設置されたイメージ・インテンシファイア (Image Intensifier; I.I.) を内蔵した CCD カメラ (ICCD カメラ; iStar, Andor) を用いて取得した。ICCD カメラ先端には、レンズ (UV-Objective-OUC 2.50, B. Halle Nachfl 焦点距離: 100 mm, F 値: 2.0, レンズ口径: 50 mm), 各ラジカルの蛍光波長に対応したバンドパスフィルターを設置して、蛍光波長以外の火炎からの自発光を除去した。表 2.2 にバンドパスフィルターの仕様を示す。

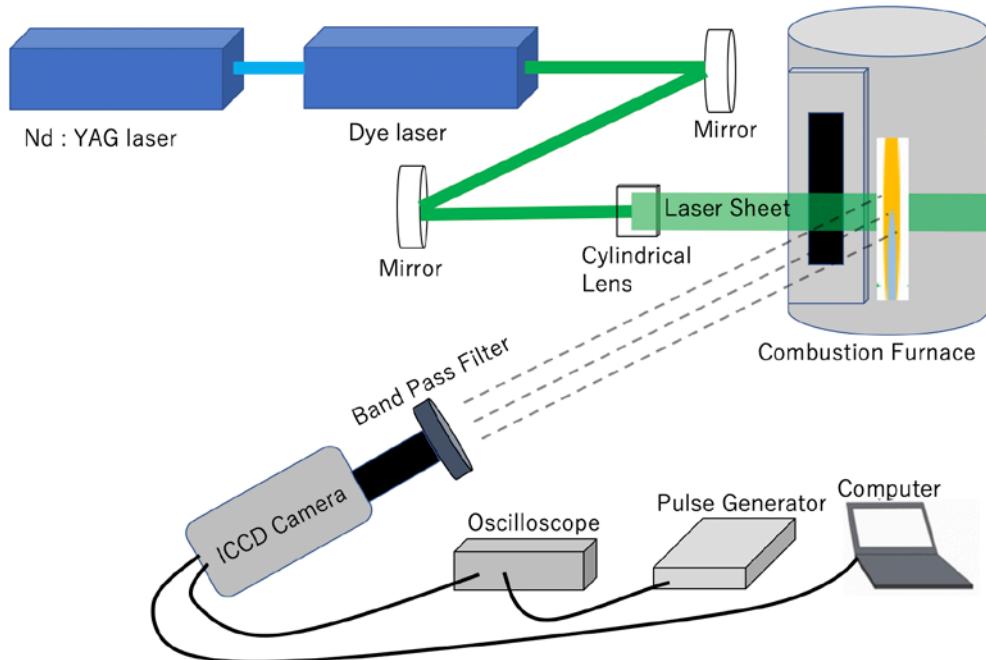


Fig. 2.14 Planer laser induced fluorescence measurement system.

Table 2.1 Excitation and detection wavelength and setting of laser system.

Radical		OH	NO
Excitation Wavelength [nm]		283.220 (1, 0)	225.960 (0, 0)
Detection wavelength [nm]		312.221 (1, 1)	247.421 (0, 2)
Nd:YAG laser	harmonic	Second	Third
Dye laser	Dye	Coumarin540A	Coumarin2
	SHG*	With	With

* SHG: Second harmonic generator

Table 2.2 Specification of band pass filter for radicals attached to ICCD camera.

Radical	Center wavelength (nm)	Half value with (nm)
OH	310.0	9.0
NO	250.0	10.0

図 2.15 に, Lamp trigger, Q-sw trigger, Laser pulse, LIF 信号, ICCD カメラ露光時間, Image Intensifier gate を示す. 各信号の timing は, デジタル遅延パルス発生器 (Stanford Research Systems 製, DG645) および ICCD カメラに内蔵されている遅延発生器から制御した. はじめに, Lamp trigger へ信号が送られる. これを起点に $170 \mu\text{s}$ 後で Q-sw trigger へ信号が送られる. YAG レーザーから色素レーザー光が発振されるとともに ICCD カメラへ信号が送られて, 露光が開始される. Q-sw trigger および ICCD へ信号を送った後で, 色素レーザーから発振された光が燃焼炉の計測部に至り, 化学種が励起, 脱励起を経る時間が 160 ns である. LIF 光が検出された timing を含む, 25 ns 間 ICCD カメラの gate を解放して撮影を行った. その後, カメラの露光が閉じて, 一回の撮影が完了する.

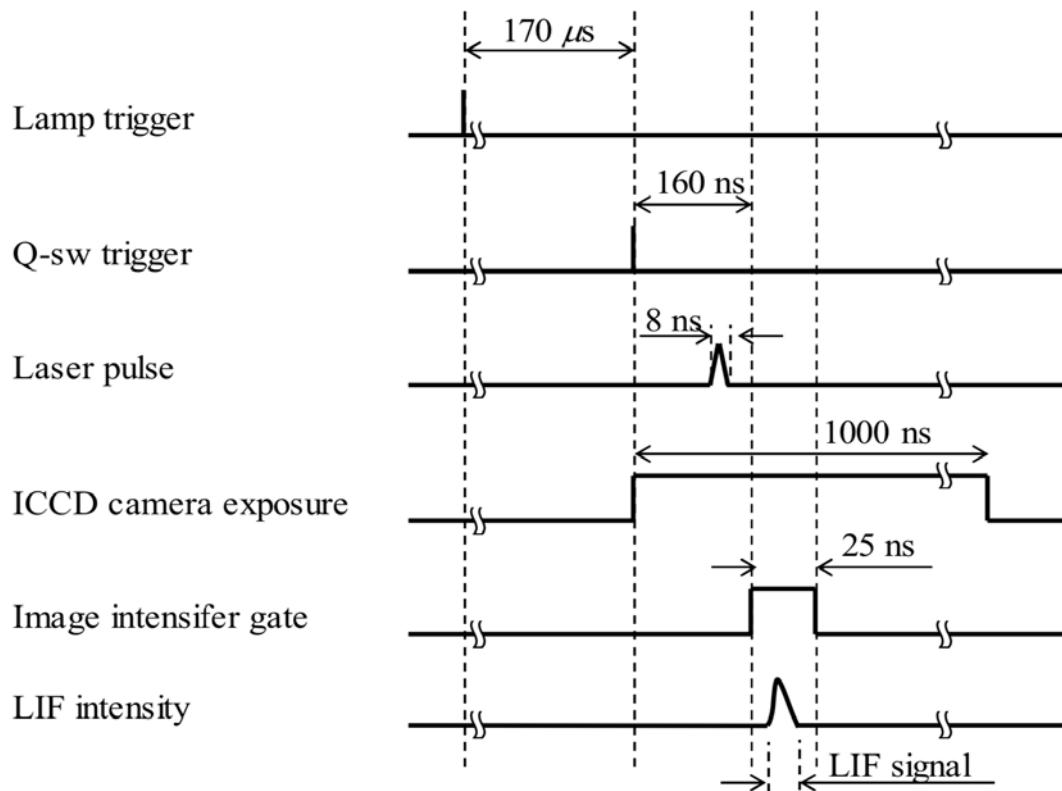


Fig. 2.15 Timing diagram of the two-dimensional measurement systems of laser induced fluorescence.

2.3.2 燃焼領域の温度計測

本研究では、R型熱電対 (Pt-Pt/Rh 13 %) を用いて、逆拡散火炎およびMILD combustion状態の火炎の燃焼領域において温度場計測を行った。熱電対の燃焼炉への設置は、図2.16のような熱電対をノズル端面から鉛直方向に30 mmずつ配置し、半径方向の温度分布を計測した。なお、図2.16 (a) で観察された逆拡散火炎においては、水平方向にノズル中心から、火炎近傍では1 mmずつ、火炎から離れた領域では5 mmずつ熱電対を水平方向に移動させて温度計測を行い、図2.16 (b) で観察されたMILD combustion状態と考えられる火炎では、熱電対をノズル中心から5 mmずつ水平方向に移動させて温度を計測した。温度データは10 Hzのデータロガー (GRAPHTEC社製、LOGGER GL220) で60秒間記録し、平均値を求めた。また、熱電対の触媒作用を防ぐために SiO_2 コーティングを施した^[34]。熱電対からのふく射による熱損失を補正するために、3つの異なる素線径 (100 μm , 200 μm , 300 μm) で作成した熱電対で同じ位置で計測を行い、測定された温度と素線径についての線形近似式を作成し、この式から素線径0 μm における温度を外挿し、これを燃焼ガス温度とした。

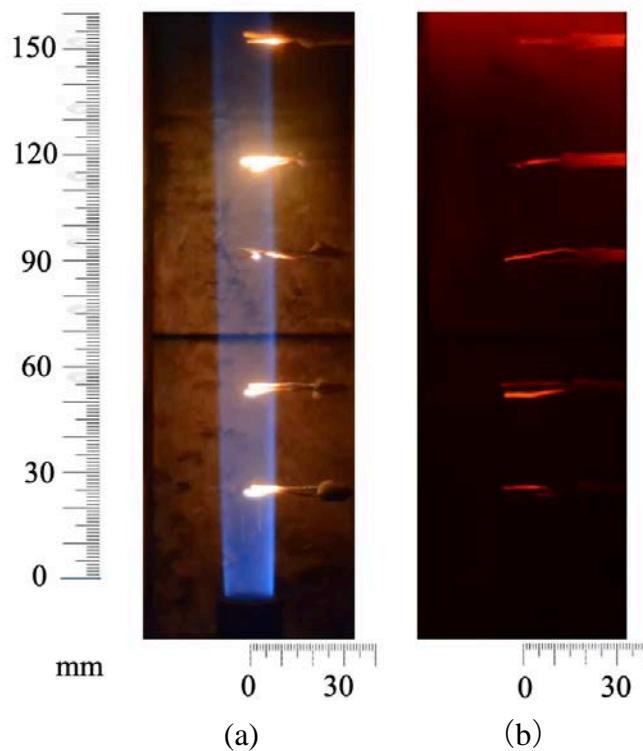


Fig. 2.16 Position of thermocouple in measurement area.

(a) Inverse diffusion Flame (b) MILD combustion

2.3.3 ガスサンプリング法を用いた排気 NO_x 濃度計測

都市ごみ焼却炉において、形成する逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎に生成した NO_x 濃度を考察するために、本研究では、ガス分析装置（堀場製作所製、COPA3000）を用いて、煙道における排気ガスの捕集を行い、燃焼機器出口側における NO_x 濃度を計測した。本節では、NO_x 濃度計測に用いたガスサンプリング法について述べる。

図 2.17 にガスサンプリング法を用いた計測系の概略図を示す。上流から順に、燃焼器サンプリング出口、冷却槽、フィルタ、ガス分析器から構成している。燃焼器サンプリング出口から捕集されたガスは冷却槽（銅管とバケツ）を通って十分に冷却された後、フィルタを通る。図 2.18 (a), 図 2.18 (b) に、フィルタの直接写真および概要図を示す。本フィルタを通すことで、石英ウールによりガス中のすす、ドレンポットにより凝縮水、ミストキャッチャにより湿分を除去する。フィルタを通ったガスは、ガス分析器へと供給され、NO_x、CO、CO₂、O₂ の濃度が計測される。本研究で用いた排ガス分析器（堀場製作所製、COPA-3000）の直接写真を図 2.19 に示す。また、各ガス種の測定原理・測定上限を表 2.3 に示す。

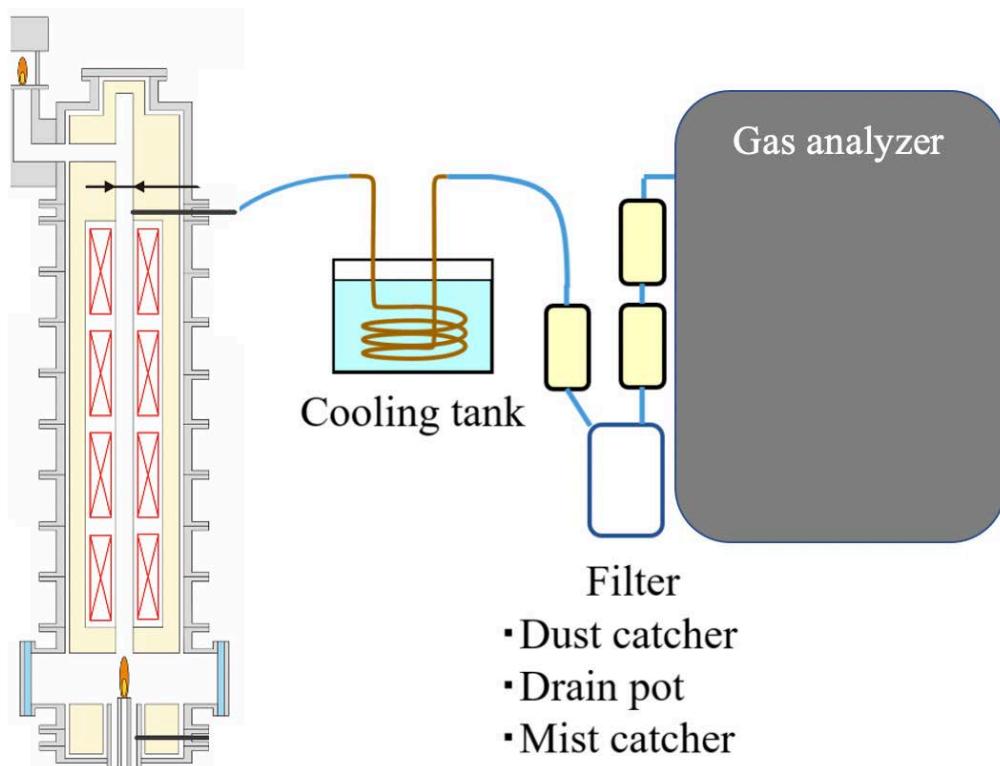
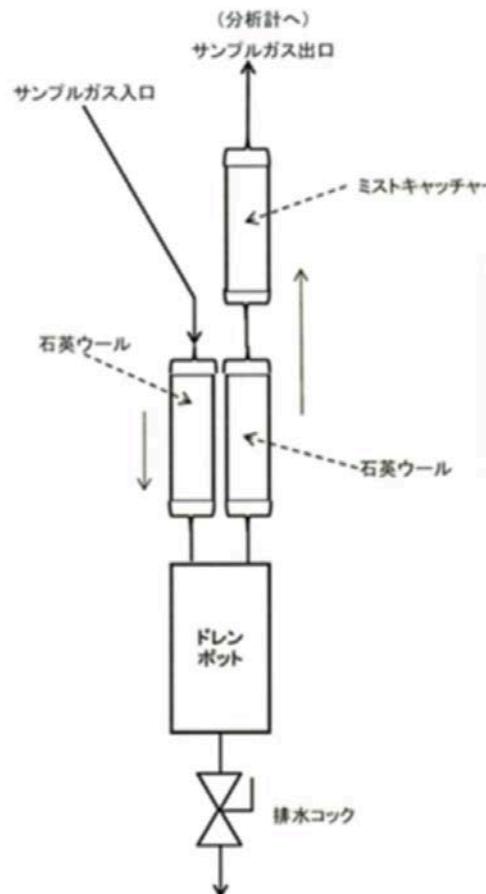


Fig. 2.17 Schematic of the gas sampling system.



(a)



(b)

Fig. 2.18 (a) Photograph of the filter. (b) Schematic of the filter.

Table 2.3 Measurement theory and upper limit of each gas species.

Species	Measurement theory	Upper limit
NOx		5000ppm
CO	NDIR: Non Dispersive Infrared (Light source modulation type)	500ppm
CO ₂	NDIR: Non Dispersive Infrared (Fluid modulation type)	25%
O ₂	Magnetic pressure type oxygen analyze	25%



Fig. 2.19 Photograph of the gas analyzer (COPA-3000) .

2.4 まとめ

本研究では、都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域に存在する逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎の燃焼形態、火炎構造、温度場、火炎形態の遷移過程、排気 NO_x 濃度を詳細に評価して比較するために、二種類の火炎が同一の供給条件で形成できる燃料組成を特定した。さらに、火炎の可視化、光学計測、排気濃度計測、温度場計測などが適用可能な実験装置の構築を行った。本研究においては、燃焼形態を詳細に観察するために、一眼レフカメラでの火炎直接撮影、非接触の光学計測法である平面レーザ誘起蛍光法 (Planar Laser Induced Fluorescence; PLIF) の適用とともに、R 型熱電対を用いた燃焼場の温度分布の評価を行った。また、非接触の光学計測法である NO-PLIF 法を用いて、燃焼領域の NO 分子の詳細な生成過程を考察した。さらに、ガス分析装置を用いた煙道での NO_x 濃度計測を適用し、被焼却物中に含窒素成分が含まれていることを考慮して、燃料へのアンモニア添加が火炎形態と NO_x 生成特性に与える影響について考察した。本章では、構築した実験装置と、適用した計測の原理と手法について詳述した。

(1) Fuel N 源を含む多成分燃料ガス組成の調整によって、同一の燃料と酸化剤の供給条件で “逆拡散火炎” と “MILD combustion 状態の火炎” が形成されるガス組成を決定した。逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎を安定して形成可能とする実験装置系を構築した。この実験装置系に対して光学計測を可能とした。

(2) 逆拡散火炎および MILD combustion 状態の燃焼形態、火炎構造、浮き上がった逆拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎への遷移過程を観察する計測系を構築した。燃焼場における光学計測として、OH-平面レーザー誘起蛍光法 (OH-PLIF 法) の適用を可能とした。OH-PLIF の励起波長として、量子効率の温度依存性が小さい 283.222 nm とした。また、レイリー散乱光を避けるために、検出波長を励起波長からある程度離れた 312.221 nm とした。

(3) 火炎近傍の NO 分子生成を把握できる NO-平面レーザー誘起蛍光法 (NO-PLIF) の計測系を構築した。励起波長は、量子効率の温度依存性が小さい 225.960 nm、検出波長は、レイリー散乱光を避けるために、247.421 nm とした。

参考文献

1. Qiu, X. L., Zhang, H., Wu, Y. X., Yu, H. Y. and Lu, J. F., Experimental study on characteristics of the temperature fields of inverse diffusion flames, *Journal of Engineering Thermophysics*, Vol. 33, No. 2 (2012) , pp. 348-351.
2. Li, X. Y., Dai, Z. H., Xu, Y. T., Li, C., Zhou, Z. J. and Wang, F. C., Inverse diffusion flame of CH₄-O₂ in hot syngas coflow, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 46, No. 40 (2015) , pp. 16104-16114.
3. Cavaliere, A. and Joannon, M., Mild combustion, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 30, No. 4 (2004) , pp. 329-366.
4. Dally, B. B., Karpetis, A. and Barlow, R., Structure of turbulent non-premixed jet flames in a diluted hot coflow, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 29, No. 1 (2002) , pp. 1147-1154.
5. Effuggi, A., Gelosa, D., Derudi, M. and Rota, R., Mild combustion of methane-derived fuel mixtures: Natural Gas and Biogas, *Combustion Science and Technology*, Vol. 180, No. 3 (2008) , pp. 481-493.
6. Noor, M., Wandel, A. P. and Yusaf, T., A review of MILD combustion and open furnace design consideration, *International Journal of Automotive and Mechanical Engineering*, Vol. 6, No. 1 (2012) , pp. 730-754.
7. Park, J., Choi, J. W., Kim, S. G., Kim, K. T., Keel, S. I. and Noh, D. S., Numerical study on steam-added mild combustion, *International Journal of Energy Research*, Vol. 28, No. 13 (2004) , pp. 1197-1212.
8. Saha, M., Gitto, G. and Dally, B. B., Burning characteristics of grape marc under mild combustion conditions, *Experimental Thermal and Fluid Science*, Vol. 114, Article 110059 (2020) .
9. Shim, S., Dally, B. B., Ashman, P. J., Szego, G. and Craig, R. A., Sawdust burning under MILD combustion condition, *Proceedings of the Australian Combustion Symposium* (2007) .
10. Szegö, G., Dally, B. B. and Nathan, G., Scaling of NO_x emissions from a laboratory-scale mild combustion furnace, *Combustion and Flame*, Vol. 154, No. 1 (2008) , pp. 281-295.
11. Wang, X. B., Zhang, J. Y., Xu, X. W., Mikulcic, H., Li, Y., Zhou, Y. G. and Tan, H. Z., Numerical study of biomass co-firing under oxy-MILD mode, *Renewable Energy*, Vol. 146 (2020) , pp. 2566-2576.
12. Weber, R. and Smart, J. P., On the MILD combustion of gaseous, liquid, and solid fuels in high temperature preheated air, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 30, No. 2 (2005) , pp. 2623-2629.
13. Wünning, J. A. and Wünning, J. G., Flameless oxidation to reduce thermal NO formation,

- Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 23, No. 1 (1997) , pp. 81-94.
14. Xing, X., Wang, B. and Lin, Q., Structure of reaction zone of normal temperature air flameless combustion in a 2 ton/h coal-fired boiler furnace, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part A: Journal of Power and Energy, Vol. 221, No. 4 (2007) , pp. 473-480.
15. 吉本隆光, 池田 誠, 木之下幸一郎, 嘉藤吉朗, 高城敏美, 逆拡散火炎の安定と挙動および燃焼特性に関する研究, 関西支部講演会講演論文集, 78巻 (2003) , 905.
16. Shiraishi, Y., Nakatsuka, N., Miyauchi, T., Hayashi, J. and Akamatsu, F., Numerical study on effects of devolatilization gas composition to reducing Fuel-NOx in municipal solid waste incinerator using detailed chemical kinetics, Transactions of the JSME (in Japanese) , Vol. 82, No. 838 (2016) , DOI: 10.1299/transjsme.15-00601.
17. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Sajiki, K., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., Numerical Simulation of Stoker-type Incinerator including Waste Bed Combustion and NOx Prediction using a Detailed Chemical Kinetics Mechanism, Journal of the Japan Society Material Numerical Cycles and Waste Management, Vol. 29 (2018) , pp. 80-91.
18. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Hama, T., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., A Study of Kinetic Analysis and Nitrogen Emission Behavior of Municipal Solid Waste in Thermal Decomposition, Journal of the Society of Environmental Instrumentation Control and Automation, Vol. 21 (2016) , pp. 145-151.
19. Suzuki, M., Development of High-Temperature Air Combustion Technology for Stoker-Type Waste Incineration Process, Journal of the Combustion Society of Japan, Vol. 49 No. 147 (2007) , pp. 29-37.
20. Grieco, E. and Baldi, G., Analysis and modelling of wood pyrolysis, Chemical Engineering Science, Vol. 66, No. 4 (2011) , pp. 650-660.
21. Ouimbinga, S. K., Rogaume, T., Sougoti, M., Commandre, J. M. and Koulidiati, J., Experimental characterization of gaseous species emitted by the fast pyrolysis of biomass and polyethylene, Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, Vol. 82, No. 2 (2009) , pp. 260-268.
22. 林田和宏, 天谷賢児, 新井雅隆, KrF エキシマレーザを用いたレーザ誘起蛍光法によるプロパン拡散火炎内の OH 計測, 日本機械学会論文集 B 編, 65-633 (1999) , pp. 1793-1799.
23. Sadanandan, R., Stöhr, M. and Meier, W., Simultaneous OH-PLIF and PIV measurements in a gas turbine model combustor, Applied Physics B, 90-3-4 (2008) , pp. 609-618.
24. Donbar, M. J., Driscoll, J. F. and Carter, C. D., Reaction zone structure in turbulent nonpremixed jet flames from CH-OH PLIF images, Combustion and Flame, 122-1-2

- (2000) , pp. 1-19.
- 25. Herzberg, G., Molecular Spectra and Molecular Structure, I. Spectra of Diatomic Molecules, 2nd ed, Van Nostrand Reinhold, New York (1950) .
 - 26. 辻 博文, 宮崎哲夫, レーザ誘起蛍光法 (LIF) による燃焼火炎内ラジカルの可視化, 電力中央研究所報告, (1998) , W97007.
 - 27. Huber, K. P. and Herzberg, G., Molecular Spectra and Molecular Structure, IV. Constants of Diatomic Molecules, Van Nostrand Reinhold, New York (1979) .
 - 28. Herzberg, G.著, 奥田典夫訳 : 分子スペクトル入門, 培風館 (1975).
 - 29. Tsuji, H. and Miyazaki, T., Visualization of radicals in flame by Laser-Induced Fluorescence (LIF) , Central Research Institute of Electric Power Industry Report, No. W97007 (1998) (in Japanese) .
 - 30. Luque, J. and Crosley, D. R., Database and spectral simulation for OH A-X, OD A-X, NO A-X, B-X, D-X, CH A-X, B-X, C-X, CN B-X, SiH A-X and CF A-X, SRI Report, No. MP99-009 (1999) .
 - 31. 堀江竜太, 安藤千博, 朱 学雷, 西岡牧人, 竹野忠夫, PLIF による同軸流拡散火炎中の NO 分布の測定, 日本機会学会論文集 B 編, Vol. 65, No. 629 (1999) , pp. 62-70.
 - 32. 奥野和也, 佐野高也, 斎藤寛泰, 吉川典彦, 林 茂, 標準添加 LIF 画像分光法による火炎中の一酸化窒素の濃度・温度計測, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 72, No. 723 (2006) , pp. 2733-2740.
 - 33. 堀江竜太, 伊東 昭, 西岡牧人, 朱学 雷, 竹野忠夫, PLIF による同軸流拡散火炎中の OH 分布の測定, 日本機会学会論文集 B 編, Vol. 65, No. 629 (1999) , pp. 54-61.
 - 34. 水谷幸夫, 燃焼工学第 3 版, 2001. pp. 238.

第3章 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態と NOx 生成特性

3.1 はじめに

本章では、第2章において構築した光学計測とガス分析の同時計測が可能な実験室規模の燃焼装置を用いて、株式会社タクマとの共同研究におけるプライベートディスカッションに基づいて、ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域に準ずる燃焼条件における火炎形態および NOx 生成特性を評価した。燃焼形態の詳細な観察のためには、OH-PLIF (Planer Laser Induced Fluorescence) 法^[1]を適用した。同時に熱電対を用いて燃焼場の温度分布の評価を行った。また、都市ごみの熱分解ガス中には、1000 ppm 程度の濃度で窒素原子が含まれている分子が存在するため、燃料成分由來の NOx 生成 (Fuel-NOx 生成) が考えられる^[2]。燃料に対して 1000 ppm のアンモニアを添加することで、ストーカ式都市ごみ焼却炉二次燃焼領域を模擬した燃焼条件における燃料中の Fuel N 源としてのアンモニアが NOx 排出特性に与える影響について考察した。

3.2 実験装置および実験条件

本章では、第2章において構築した光学計測とガス分析の同時計測が可能な実験室規模の燃焼装置を用いる。燃焼装置は、ガス供給部、燃焼器、排気部、計測系から構成される。表3.1に、Fuel N 源を含む多成分燃料ガスの組成を示す。燃料模擬ガスの組成は、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタン、水蒸気、アンモニアであり、都市ごみの熱分解ガス組成に基づいて決定した^[3-8]。

Fuel N 源を含む多成分燃料ガスは、マスフローコントローラによって、それぞれのガス成分の流量が制御される。また、ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次空気吹き込み直前のガス温度を模擬するために、燃焼器前段の二段のヒーターにより燃料ガスと空気を予熱することで、燃料ガスと空気の予熱温度をそれぞれ 600°C, 900°C に制御した。水蒸気は、デュアルポンプを用いて液相の状態で流量が制御され、気化器によって蒸気へと相変化させた後に燃焼器へと供給される。また、酸化剤は空気であり、燃焼器全体に対する供給空気比は 1.05 とした。酸化剤の空気流量は 30.0 LN/min、燃料総流量は 12.08 LN/min とした。予熱温度を考慮して計算される燃料及び酸化剤の断面平均流速は、それぞれ 12.77 m/s, 0.28 m/s となる。また、酸化剤ノズルの内径を代表長さとして、温度依存性を考慮した空気の動粘性係数を用いて計算した酸化剤供給ノズル内のレイノルズ数は 2134 である。

本章では、形成される火炎形態を把握するために、火炎直接撮影及び OH-平面レ

一ザー誘起蛍光法 (OH-PLIF 計測) を適用した。LIF の励起・検出波長を第 2 章の表 2.1, 表 2.2 の通りに決定した。また、被焼却物中の窒素分はタールやアンモニア (NH_3)、シアノ化水素 (HCN)、イソシアノ酸 (HNCO) として放出されると考えられているため、本章では都市ごみの熱分解ガスにおける NO_x 生成の Fuel N 源としてアンモニアが作用することを想定した。実験条件として、アンモニア (1000 ppm) を燃料ガス成分に含む条件と、アンモニアを燃料ガス成分に含まない条件を設定した。さらに、燃焼器の下流において、ガス分析器を用いて、 NO_x , CO , CO_2 , O_2 の濃度の計測を行った。

Table 3.1 Volume flow rate and mole fraction of each species in the model gasified.

	Mole fraction [mol/mol]	Volume flow rate [L_N/min]
CH_4	0.062	0.75
CO	0.497	6.00
H_2	0.249	3.00
CO_2	0.109	1.32
H_2O	0.083	1.00

*Fuel NO_x の影響を検討する際には、上記成分にモル分率にして 0.001 (体積流量 0.01 L_N/min) 相当の NH_3 を添加剤として添加する。

3.3 実験結果

3.3.1 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態

都市ごみの熱分解ガスに準ずる多成分燃料ガスは、ヒーターにより加熱され、燃焼器に供給される。酸化剤は燃焼炉流路断面の中央に配置されたノズルから供給される。なお、初期状態として安定な付着火炎を自着火により形成するために、着火時には、純酸素を酸化剤として低流速で供給し、着火後に酸化剤を空気に切り替える。結果として試験開始時には、図 3.1 (a) に示すようなノズルリムに付着した逆拡散火炎が形成された。逆拡散火炎が形成された状態を維持すると、燃焼により炉内が加熱され、壁が赤熱することで燃焼器内が明るくなる。酸化剤である空気の流量を増加させると、火炎基部がノズルリムから離れて浮き上がり火炎が形成される(図 3.1 (b))。続いて、ノズルリムに付着した逆拡散火炎が形成された条件と同様となるように空気流量を減少させたところ、ノズルリムに火炎基部が付着することはなく、火炎の目視が困難になった(図 3.1 (c))。ここで、浮き上がり火炎が観察されていた図 3.1 (b) の条件と比較して、図 3.1 (c) の条件における酸化剤噴流の流速は遅く、図 3.1 (a) の条件と同一であることから、燃焼反応領域が観察範囲外の下流に移動することは考えにくい。また、図 3.1 (c) の条件における排ガス計測より、燃焼効率はほぼ 100% であった。なお、化学反応式から算出される排気中 CO_2 濃度は 20.23

vol%である。よって、燃焼反応は維持されているものの、火炎からの発光が観察しにくい状態と考えることができる。

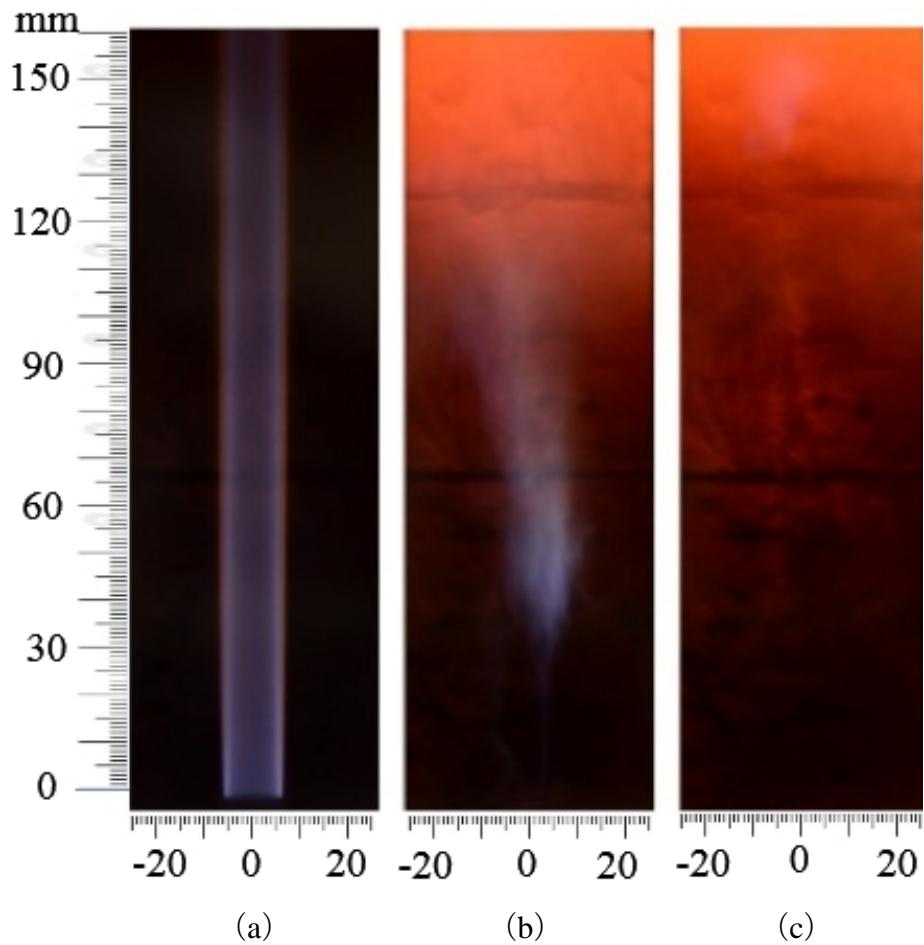


Fig. 3.1 The characteristic photographs of the flame

3.3.2 燃焼場の温度分布計測

本節では、前節で観察された燃焼形態を評価するために、温度分布の計測を行った。熱電対で高温の燃焼場の温度を計測する際に、熱電対の素線は触媒反応が起こる可能性があり、計測誤差を防ぐために、事前に SiO_2 で熱電対素線の全体を被覆し、温度を計測した。データは 10 Hz のサンプリングレートに設定したデータロガーで 60 秒間記録し、得られた値の平均値を温度とした。

図 3.2 に、ノズル端面からの鉛直方向が異なる位置における温度の半径方向分布を示す。ここで本研究では、ふく射による温度の補正を行うために、素線径 100 μm , 200 μm および 300 μm の R 型熱電対を用いた外挿法によって素線径 0 μm の温度を得ている。補正のための温度計測は、ノズル端面から鉛直方向距離が 150 mm の位置において行った。図 3.2 (a) と図 3.2 (c) はアンモニアを含まない条件で形成された火炎形態における温度分布、図 3.2 (b) と図 3.2 (d) はアンモニアを含む条件で形成された火炎形態における温度分布である。なお、図 3.2 には対応する燃焼状態の直接写真を図の下部に示している。視認性を上げるために、輝度を補正している。図 3.2 における縦軸は温度、横軸はノズル中心からの水平方向距離である。まず、図 3.2 (a), (b) に示した温度分布より、半径方向 5 mm ~ 10 mm の位置に温度のピークが現れていることが分かる。下部に示した火炎の直接写真より、温度のピークが現れる位置と火炎帯が存在する位置が一致していることが分かる。また、火炎帯近傍においては、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに温度が少し上昇した。火炎帯から離れた領域においては、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに温度の上昇が顕著になった。図 3.2 (a), (b) に現れた火炎形態は、燃料ガス中に酸化剤が吹き込まれて形成される拡散火炎形状、すなわち逆拡散火炎であり、温度分布においても典型的な逆拡散火炎の構造が示されている。

一方で、図 3.1 (c) において観察される火炎（図 3.2 (c), 3.2 (d)）では、半径方向に特徴的な温度のピークは現れず均一な温度分布を持ち、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに、半径方向温度が全体的に上昇していることが分かる。また、図 3.1 (c) において観察された火炎における最高温度は、予熱温度 (873 K) より 600 K 高く、燃焼反応は進行していることが温度計測結果からも示された。Cavaliere らの研究により、MILD combustion の定義に従えば、予熱温度が燃料の自着火温度 (850 K) より高く、燃焼場の温度が 1700 K より低い状況は、MILD combustion に分類される^[9]。また、MILD combustion 状態の燃焼領域では、明確な火炎面が目視できないことが特徴として挙げられる。したがって、本研究における実験条件は、MILD combustion 状態を形成していると考えることができる。

以上の結果より、燃料および酸化剤の供給条件が同じことから、本章の試験条件を設定することで、同一の流量条件、温度条件で逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎を用いて燃焼特性の比較が可能となることが示された。また、図 3.3 から、火炎形態に関係なく、燃料に対するアンモニア添加が温度場に対して影響を与えないことが分かる。この結果から、NO_x 生成量に対する平均的な温度場の変化の

影響を除いて考えることが可能であり、後述の NO_x 計測において得られる結果が、アンモニア成分の有無および火炎構造から考察可能であると考えられる。

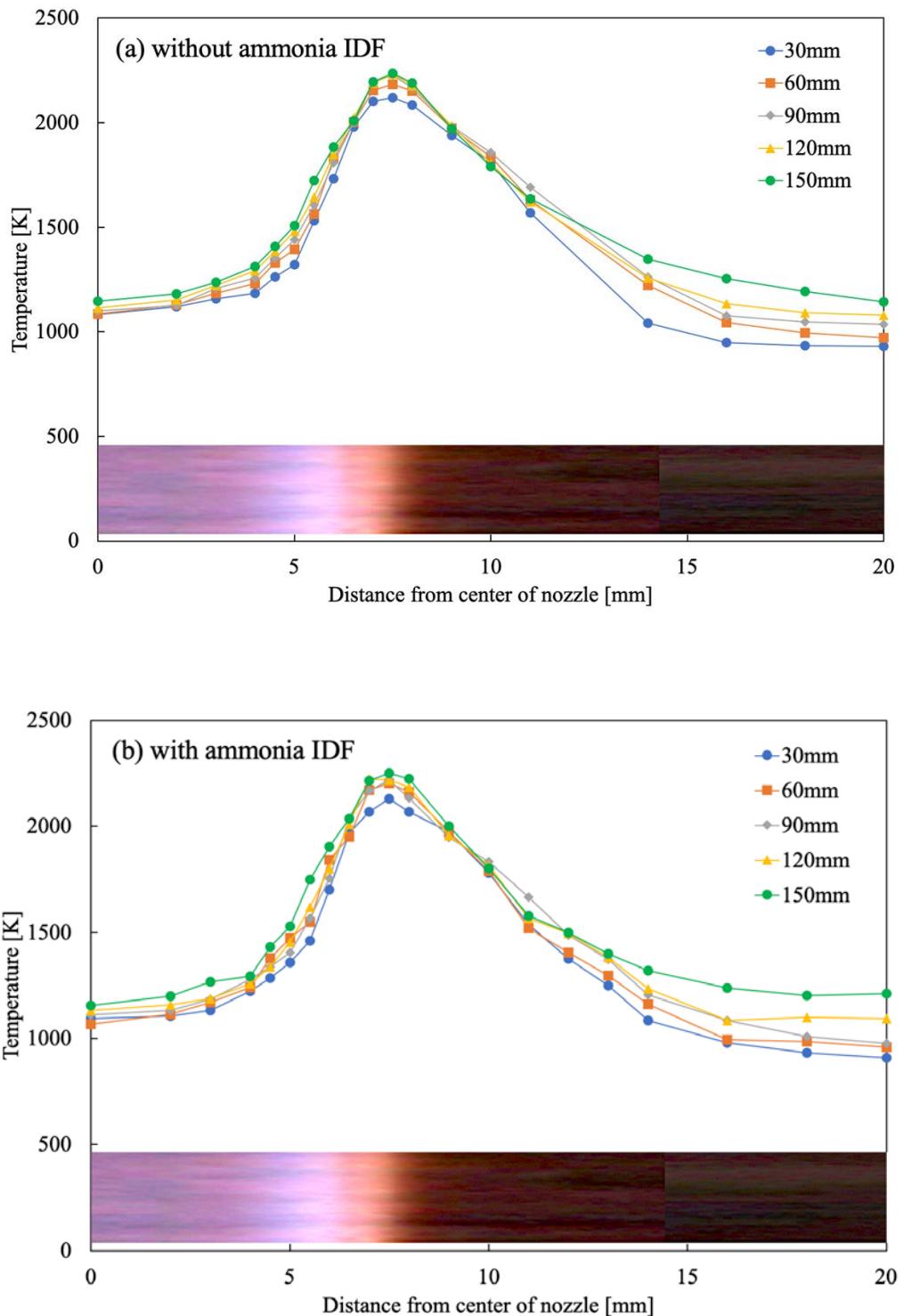


Fig. 3.2 Temperature measurement result of Inverse Diffusion flame and MILD combustion.

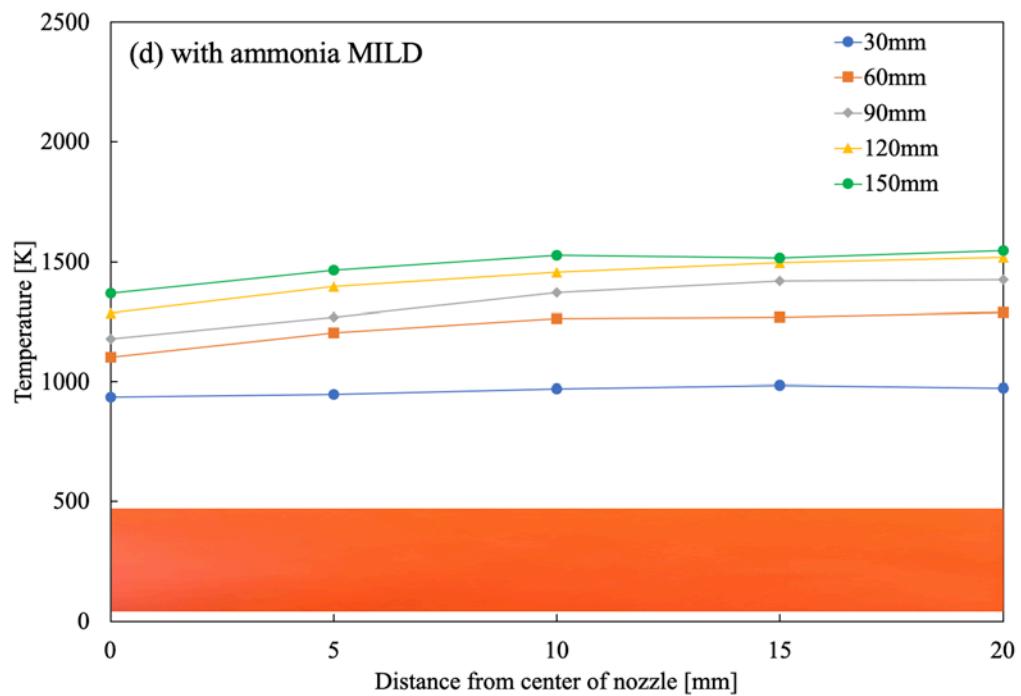
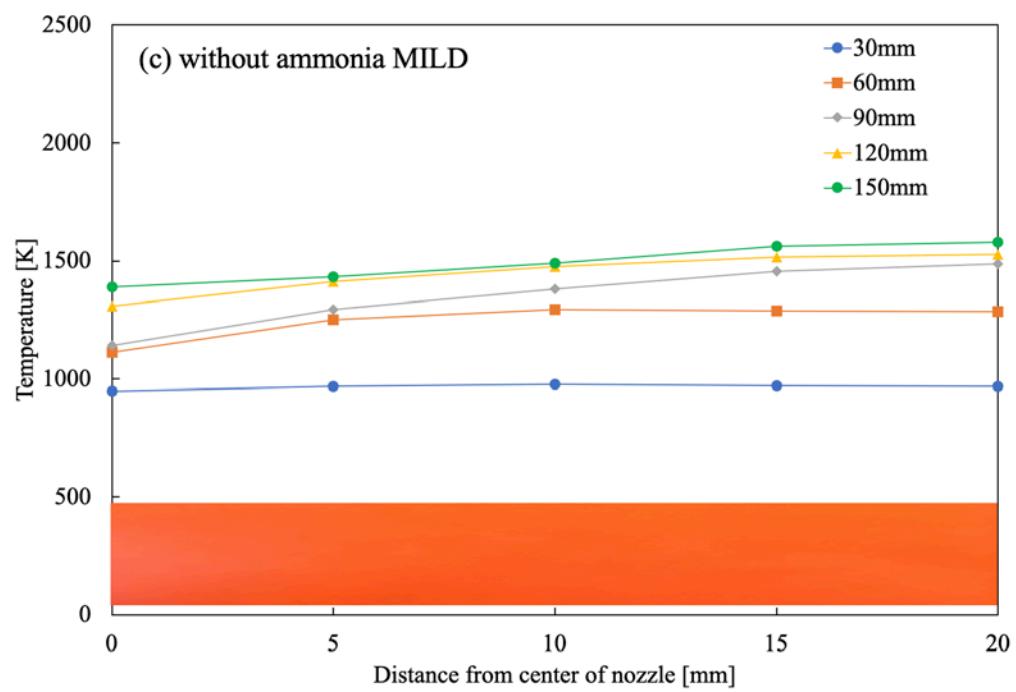


Fig. 3.2 Temperature measurement result of Inverse Diffusion flame and MILD combustion.

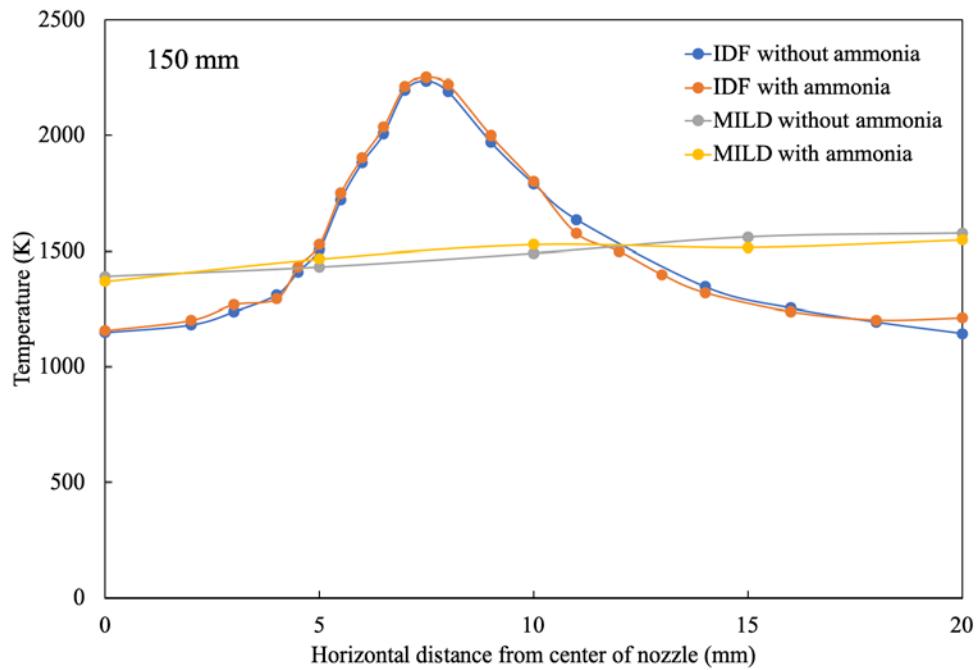


Fig. 3.3 Temperature measurement result of Inverse Diffusion flame and MILD combustion in vertical distance 150 mm.

3.3.3 OH-PLIF による火炎形態の評価

本項では、OH-PLIF 法で取得した LIF 信号強度分布画像を用いて、本章で対象とした燃焼場に形成される火炎構造の評価を行う。図 3.1 において観察された火炎形態の変化に対応する 3 つのフェーズにおける OH-PLIF 信号強度分布の瞬間像を図 3.4 に示す。なお、フェーズ 1 は付着火炎、フェーズ 2 は浮き上がり火炎、フェーズ 3 は MILD combustion 状態の火炎であり、フェーズ 1 からフェーズ 2 への変化では、逆拡散火炎から浮き上がり状態の火炎にするために、空気流速を増加させている。フェーズ 2 からフェーズ 3 への変化では、浮き上がり火炎の状態を維持したまま空気流速を減少させてフェーズ 1 と同様の空気流速としている点に注意が必要である。

図 3.4 下部には、上部の画像に対応する空気流量の値を示している。また、図 3.5 に図 3.4 (Phase 1: a) , (Phase 2: d) , (Phase 3: f) それぞれの条件において繰り返し計測した OH-PLIF 信号強度分布の瞬間像から得られるレーザー入射側における信号強度の半径方向分布を示す。なお、図 3.5 では、計測領域の垂直方向 36 mm ~ 107 mm において計測された輝度値を積算した値を用いた。なお、信号強度の値は図 3.4 (Phase 1: a) より、フェーズ 1 では、ノズル中心軸上に OH-PLIF 信号が計測されない黒い領域が観察される。この領域は、未燃の酸化剤の領域を表している。また、図 3.5 より、Phase 1: a における LIF 信号の半径方向分布では、酸化剤の領域と模擬ガスの領域の境界位置に OH-PLIF のピークが分布する典型的な付着逆拡散火炎の構造が現れていることが分かる。図 3.4 (Phase 2: d) に示した OH-PLIF 信号強度分布の瞬間像より、浮き上がり火炎が形成される条件では、乱れてはいるものの火炎面を把握することができる。図 3.5 の対応する LIF 信号の半径方向分布からは、フェーズ 1 において得られる LIF 信号強度分布の瞬間像と比較すると半径方向への分布は広くなっているものの OH-PLIF 信号強度のピークは酸化剤ノズルリム下流に位置していることが分かる。対して、図 3.4 (Phase 3: f) では、図 3.4 (Phase 1: a) と同様の酸化剤流速であるにも関わらず、明確に火炎面に対応する OH-PLIF 信号は確認できず、孤立した領域に分布する OH-PLIF 信号が現れていることが分かる。また、図 3.4 からは半径方向に明確な OH-PLIF 信号強度のピークは観察されず、領域全体に弱い信号が分布している。この特徴は、MILD combustion の状態と合致している。

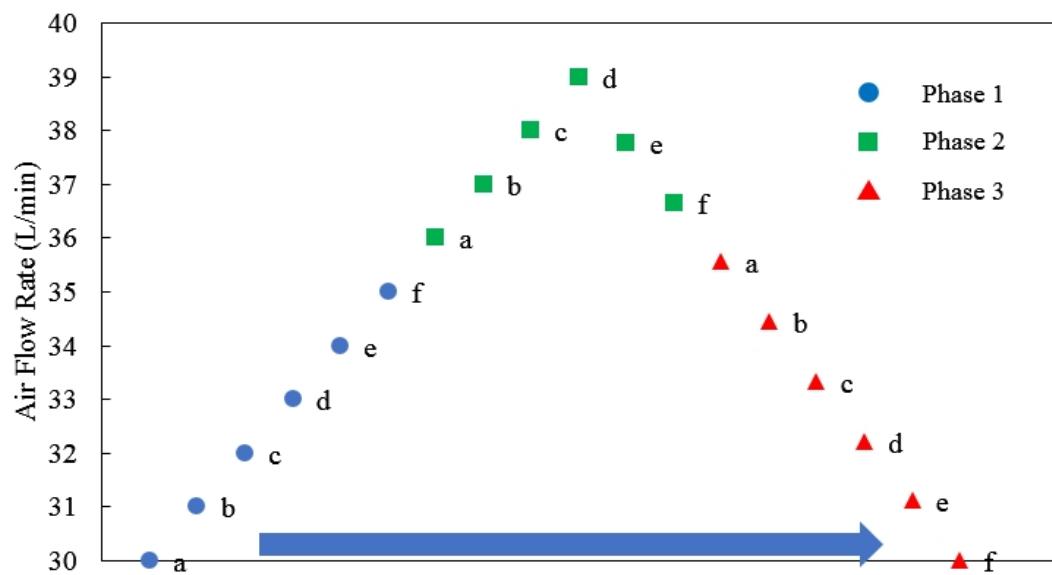
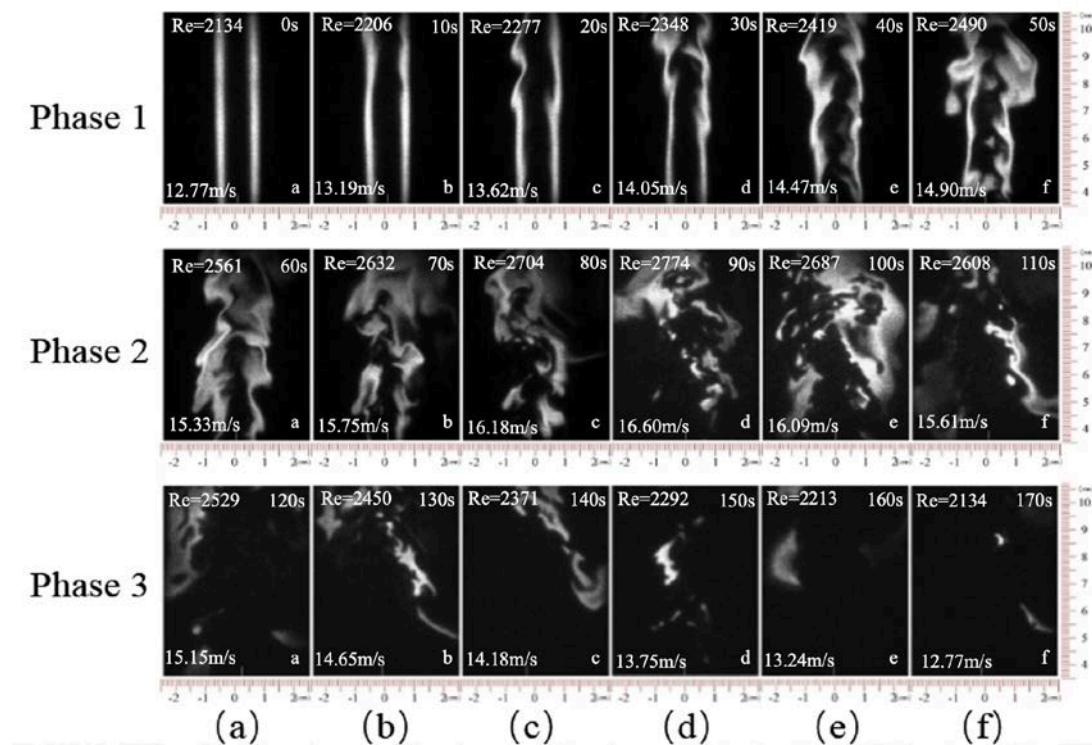


Fig. 3.4 Instantaneous OH-PLIF images (Top) and the variation of volume flow rate for each conditions; Phase 1 (a-f) Transient process from stable IDF to disturbed IDF, Phase 2 (a-f) Transient process from disturbed IDF to lifted flame, Phase 3 (a-f) Transient process from lifted flame to MILD combustion.

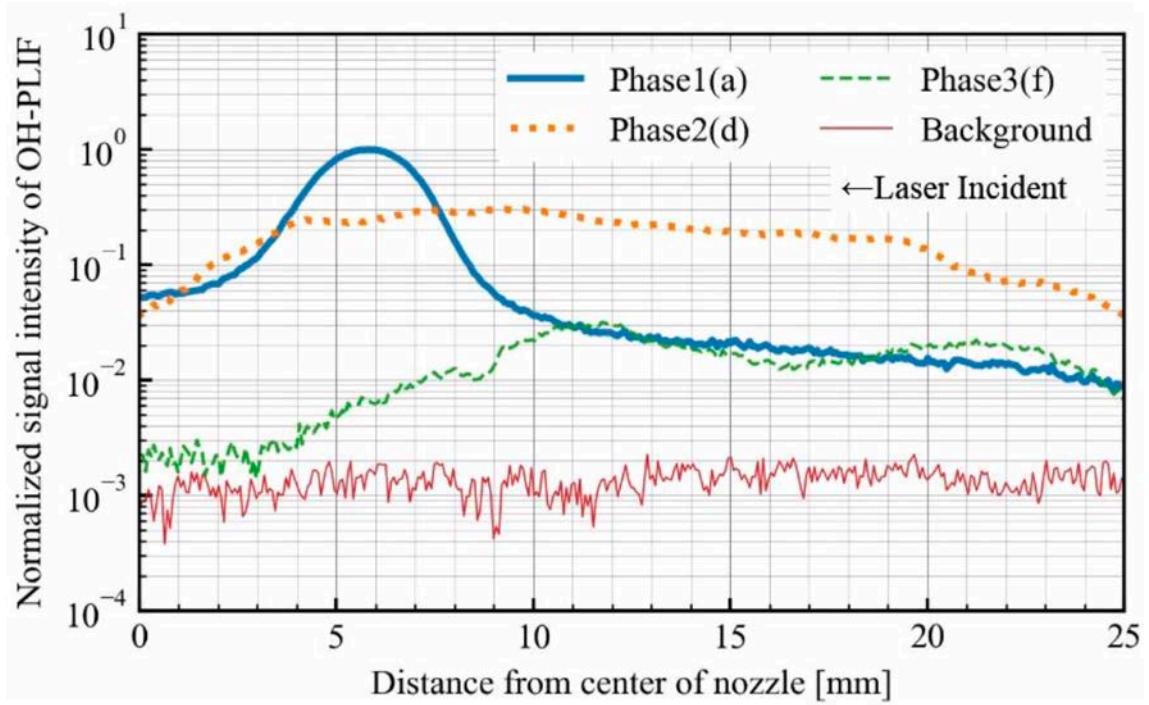


Fig. 3.5 Time averaged OH-PLIF intensity (normalization) of inverse diffusion flame lifted flame and MILD combustion.

3.3.4 ガス分析器による排気 NO_x 測定

本節では、ガス分析装置（堀場製作所製、COPA3000）を用いた燃焼機器出口側における NO_x 計測による NO_x 濃度計測結果及び NO_x の体積流量の結果を考察する。

図 3.6 に、逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎が形成される燃焼形態における排気 NO_x 濃度を、模擬ガス中のアンモニアの有無と火炎形態の差異に対して示す。図 3.6 より、アンモニアを含まない条件では、MILD combustion 状態となった火炎において生成される NO_x の濃度は、逆拡散火炎の状態で生成される NO_x の濃度と比較して低いことが分かる。アンモニアを含まない条件における NO_x 生成量の多くは、酸化剤中の窒素を起因とした Thermal NO_x であると考えられる。一般的に拡大ゼルドヴィッチ機構に起因する Thermal NO_x は温度場の影響を強く受け、1500°C 程度より高温の条件においてその生成量が急上昇する^[10]。3.2 節に示した図 3.2 (a), 3.2 (c) から、付着火炎、MILD combustion ともに、空間の平均温度が最も高温となる下流の領域（バーナからの高さ 150 mm の位置）においても 1500°C 程度となっており Thermal NO_x の生成が支配的な温度よりも低い。また、付着火炎、MILD combustion 状態の火炎の間で、明確な火炎帯以外の領域における空間平均温度に対する大きな差異はない。一方で、付着火炎が形成する温度分布には、ノズル中心からの半径方向距離 10 mm の付近に 2000°C を超える領域がバーナからの高さに関わらず現れており、この領域において Thermal NO_x が生成されていると考えることができる。結果としてアンモニアを燃料成分に含まない条件では、付着火炎となる火炎形態において、煙道において計測される NO_x 濃度が高くなると考えることができる。

燃料にアンモニアを含む場合、図 3.6 に示したように MILD combustion 状態の火炎の NO_x 濃度は付着した逆拡散火炎の NO_x 濃度より高い結果となった。燃料にアンモニアを含む場合、NO_x の生成は、Thermal NO_x と Fuel NO_x 双方が要因となり得る。ここで、図 3.2 に示した通り、アンモニアの添加に伴う温度場の変化がないことから、Thermal NO_x に関してはアンモニア無しの場合と同様の状況であると考えられる。対して、Fuel NO_x は、Thermal NO_x と比較して温度依存性が小さく NO_x 生成に重要となるアンモニアの酸化反応は 1000°C 程度で十分活発になることが示されている^[11]。また、アンモニアの燃焼反応では、NO_x 排出量に対して空気比の影響が大きく、特に燃料希薄条件において NO_x 生成量が増大する^[12-15]ことが示されており、今回のようにアンモニアの添加が微量な条件では燃焼反応領域で Fuel NO が生成されることが考えられる。本研究で対象とした高温かつ燃料過濃の領域において反応が進行する場合には、アンモニアが燃焼反応領域において反応し、Fuel NO が生成されることが考えられる。さらに、図 3.4 (Phase 3: f) および図 3.5 に示した対応する OH-PLIF 信号強度の半径方向分布から、付着した逆拡散火炎の燃焼反応領域は、火炎近傍の領域に限定されるのに対して、MILD combustion 状態の火炎では、燃焼器内全域が反応領域となる。したがって、燃焼反応領域が広い MILD combustion 状態の火炎において同条件の付着した逆拡散火炎と比較して NO_x 濃度が高い結果となった

と考えられる。

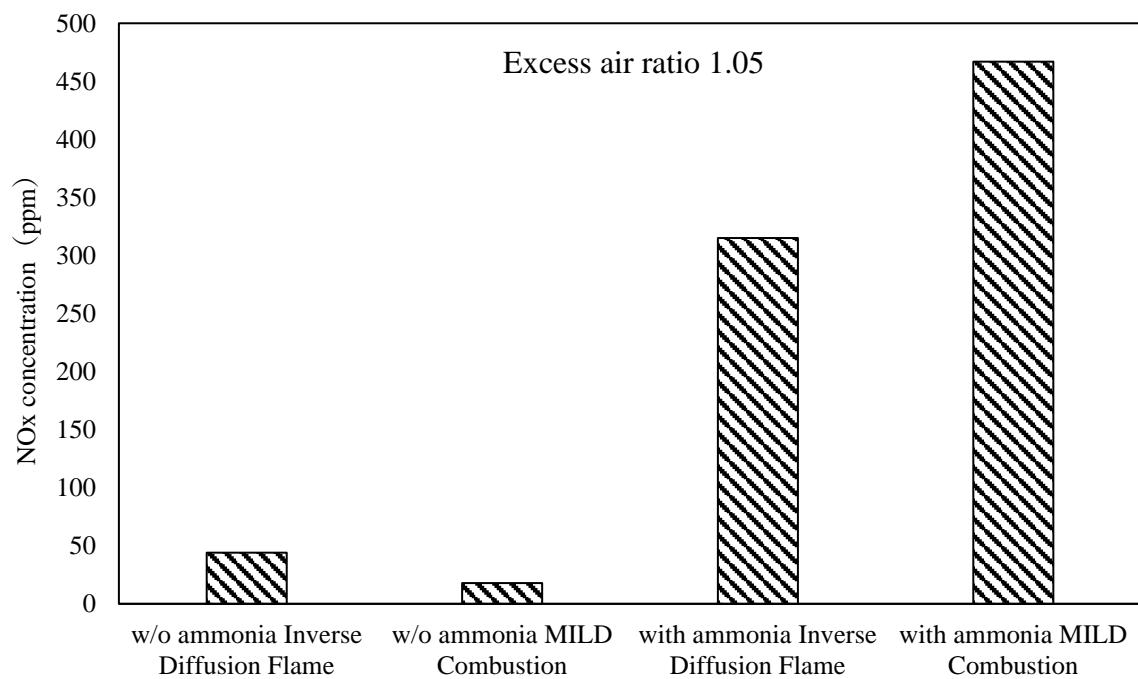


Fig. 3.6 NO_x concentration distribution of Inverse Diffusion flame and MILD combustion by gas sampling.

3.4 まとめ

本章では、ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域における酸化剤ノズルに形成される火炎形態および NO_x の生成特性を明らかにする目的から、予熱された多成分燃料ガス中に噴出される空気によって形成される火炎形態を、直接撮影、温度分布計測、OH-平面レーザー誘起蛍光法 (OH-PLIF 法) により評価した。また、廃棄物中に含窒素成分が含まれていることを考慮して、多成分燃料ガスへのアンモニア添加の有無が排気中の NO_x 生成に与える影響を評価した。得られた結論を以下に示す。

(1) 燃料組成および酸化剤流量を一定とした状態で、燃焼場の温度が異なるため、ノズルに付着した逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎を選択的に形成することが可能であることを示した。

(2) MILD combustion 状態の火炎の温度分布は逆拡散火炎の温度分布に比べて、半径方向に均一な分布を持ち、最高温度が低い。

(3) 本章の供給量の範囲では、燃焼形態に関わらず温度分布に対するアンモニアの影響は現れない。

(4) 燃料中にアンモニアを含む場合は、アンモニアを含まない場合と比較して、アンモニアに起因する NO_x 生成により燃焼形態に関わらず NO_x 濃度が上昇する。

(5) 燃料中にアンモニアを含まない場合には、MILD combustion 状態の火炎は逆拡散火炎より NO_x 濃度が低下する。一方、燃料中にアンモニアを含む場合には、空間的に均一に燃焼反応が進行する MILD combustion 状態の火炎において、燃焼反応領域の空間的な増大に伴いアンモニアに起因する NO_x 生成領域も増大するため、逆拡散火炎の排気中の NO_x 濃度よりも高い値を示す。

本章では、ストーカ式都市ごみ燃焼炉の二次燃焼領域に形成され得るノズルに付着した逆拡散火炎、およびノズルから火炎が浮き上がることで形成される MILD combustion 状態の火炎の火炎構造および排気中の NO_x 濃度の変化を計測して、考察した。しかしながら、NO_x 濃度に関しては煙道における計測値を用いており、本章で考察した火炎形態による生成過程の変化を明らかにするためには、燃焼領域における局所的な濃度分布を理解する必要がある。ガスサンプリングプローブ等を用いた接触計測法による NO_x 計測では、燃焼場を乱し正確な局所濃度を計測できないことから、光学的計測法を用いることが重要となる。そこで、第 4 章の実施内容として、空間的な NO の分布を可視化することが可能な LIF 計測 (NO-LIF) を導入し、火炎形態によって変化する局所の NO_x 生成特性を評価する。

参考文献

1. Okuno, K., Sano, T., Saitoh, H., Yoshikawa, N. and Hayashi, S., Measurements of temperature and concentration of nitrogen monoxide in flame by LIF imaging spectroscopy with standard addition method, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 72, No. 723 (2006) , pp. 2733-2740 (in Japanese) .
2. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Sajiki, K., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., Numerical Simulation of Stoker-type Incinerator including Waste Bed Combustion and NOx Prediction using a Detailed Chemical Kinetics Mechanism, Journal of the Japan Society Material Numerical Cycles and Waste Management, Vol. 29 (2018) , pp. 80-91.
3. Yasuda, T., Shigemasa, S., Furubayashi, M., Tomiyama, S., Numerical Prediction of Waste Bed Combustion in Municipal Solid Waste Incinerator, Journal of High Temperature Society, Vol. 31, No. 1 (2005) , pp. 69-75.
4. Shiraishi, Y., Nakatsuka, N., Miyauchi, T., Hayashi, J. and Akamatsu, F., Numerical study on effects of devolatilization gas composition to reducing Fuel-NOx in municipal solid waste incinerator using detailed chemical kinetics, Transactions of the JSME (in Japanese) , Vol. 82, No. 838 (2016) , DOI: 10.1299/transjsme.15-00601.
5. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Hama, T., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., A Study of Kinetic Analysis and Nitrogen Emission Behavior of Municipal Solid Waste in Thermal Decomposition, Journal of the Society of Environmental Instrumentation Control and Automation, Vol. 21 (2016) , pp. 145-151.
6. Suzuki, M., Development of High-Temperature Air Combustion Technology for Stoker-Type Waste Incineration Process, Journal of the Combustion Society of Japan, Vol. 49 No. 147 (2007) , pp. 29-37.
7. Ouimbinga, S. K., Rogaume, T., Sougoti, M., Commandre, J. M. and Koulidiati, J., Experimental characterization of gaseous species emitted by the fast pyrolysis of biomass and polyethylene, Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, Vol. 82, No. 2 (2009) , pp. 260-268.
8. Grieco, E. and Baldi, G., Analysis and modelling of wood pyrolysis, Chemical Engineering Science, Vol. 66, No. 4 (2011) , pp. 650-660.
9. Cavaliere A., Joannon M., Mild combustion. Prog Energy Combust Sci, 2004, 30 (4) : pp. 329-366.
10. Mizutani, Y., Combustion 3rd, 2021. pp. 217-218.
11. 笠岡成光, 笠岡英司, 長広盛彦, 川上喜好, 無触媒下における酸化窒素のアンモニアによる還元反応およびアンモニアの酸素による酸化反応, 日本化学会誌, Vol. 1979 No. 1 (1979) , pp. 138-144.
12. 武石裕行, 林 潤, 赤松史光, アンモニアを燃料とした層流予混合火炎の基礎燃

- 焼特性, 日本燃焼学会誌, Vol. 58, No. 185 (2016) , pp. 160-166.
13. Kobayashi, H., Hayakawa, A., Kunkuma, K. D., Somarathne, A. and Ekenechukwu C. O., Science and technology of ammonia combustion, Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 37, Issue 1 (2019) , pp. 109-133.
14. 小林秀昭, 早川晃弘, カーボンフリーアンモニア燃焼, 日本燃焼学会誌, Vol. 58, No. 183 (2016) , pp. 41-48.
15. 武石裕行, 林 潤, 河野翔太, 有田 航, 飯野公夫, 赤松史光, 酸素富化燃焼におけるアンモニア層流予混合火炎の基礎燃焼特性, 日本機械学会論文集, Vol. 81, No. 824 (2015) , pp. 14-00423-14-00423, DOI: 10.1299/transjsme.14-00423.

第4章 NO-PLIF 法を用いた Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される MILD combustion 状態の燃焼場における NO 生成機構

4.1 はじめに

ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域を対象とした MILD combustion 状態における NO_x 生成特性に関して、第3章において、燃料中の Fuel N の有無による NO_x 生成に対する実験的な検討を行った。その結果から、燃料中にアンモニアを微量含む場合には、酸化剤および燃料流量が同一の条件で形成される逆拡散火炎と比較して、MILD combustion 状態の火炎から排出される NO_x 濃度が高くなることが示された。第3章では、火炎構造が NO_x 生成量に与える影響について、OH-PLIF および温度分布の計測結果を用いて考察を加えた。しかしながら、反応領域における NO_x 生成の増減、および燃料中に N 分を含む場合の NO_x 生成について、温度分布、OH-PLIF 計測の半径方向分布、および煙道におけるガスサンプリング計測から反応領域における生成量を推察しており、火炎構造および温度場が反応領域における NO_x 生成に与える影響の詳細については議論の余地がある。

そこで本章では、MILD combustion 状態の火炎が形成された場合に NO_x 濃度が高くなる原因を明らかにするために、第3章で行った熱電対を用いた火炎の温度分布計測、OH-PLIF 計測に加えて、NO-PLIF 計測を用いて燃焼領域における NO 生成特性の評価を行った。

4.2 実験装置および実験条件

図 4.1 (a) に実験装置の概略図を示す。本章では、第2章において構築した光学計測とガス分析の同時計測が可能な実験室規模の燃焼装置を用いる。燃焼装置は、ガス供給部、燃焼器、排気部、計測系から構成される。本章で行う実験に用いる都市ごみの熱分解ガスを模擬した燃料模擬ガスの組成は第3章と同様である^[1-7]。

第3章において述べた通り、被焼却物中の窒素分はタールやアンモニア (NH₃)、シアノ化水素 (HCN)、イソシアノ酸 (HNCO) であると考えられていることから、本研究では都市ごみの熱分解ガスにおける窒素分としてアンモニアを用いた。ここで、本章で適用する NO-PLIF に関して、燃料中 N 分を模擬するために燃料中に添加したアンモニアには NO-PLIF 計測励起光源による光分解を原因とした計測誤差が生じることが懸念されるため、燃料中 N 分の模擬成分をホルムアミドとして光分解の影響の検証を行った。また、燃料模擬ガスの成分に燃料ガス中の窒素分が含まれる

条件と、含まれない条件で、第3章にて形成した条件と同様の逆拡散火炎およびMILD combustion状態の火炎に対してNO-PLIF計測を行った。さらに、燃焼器の下流において、ガス分析器を用いて、NO_x, CO, CO₂, O₂の濃度計測を行った。

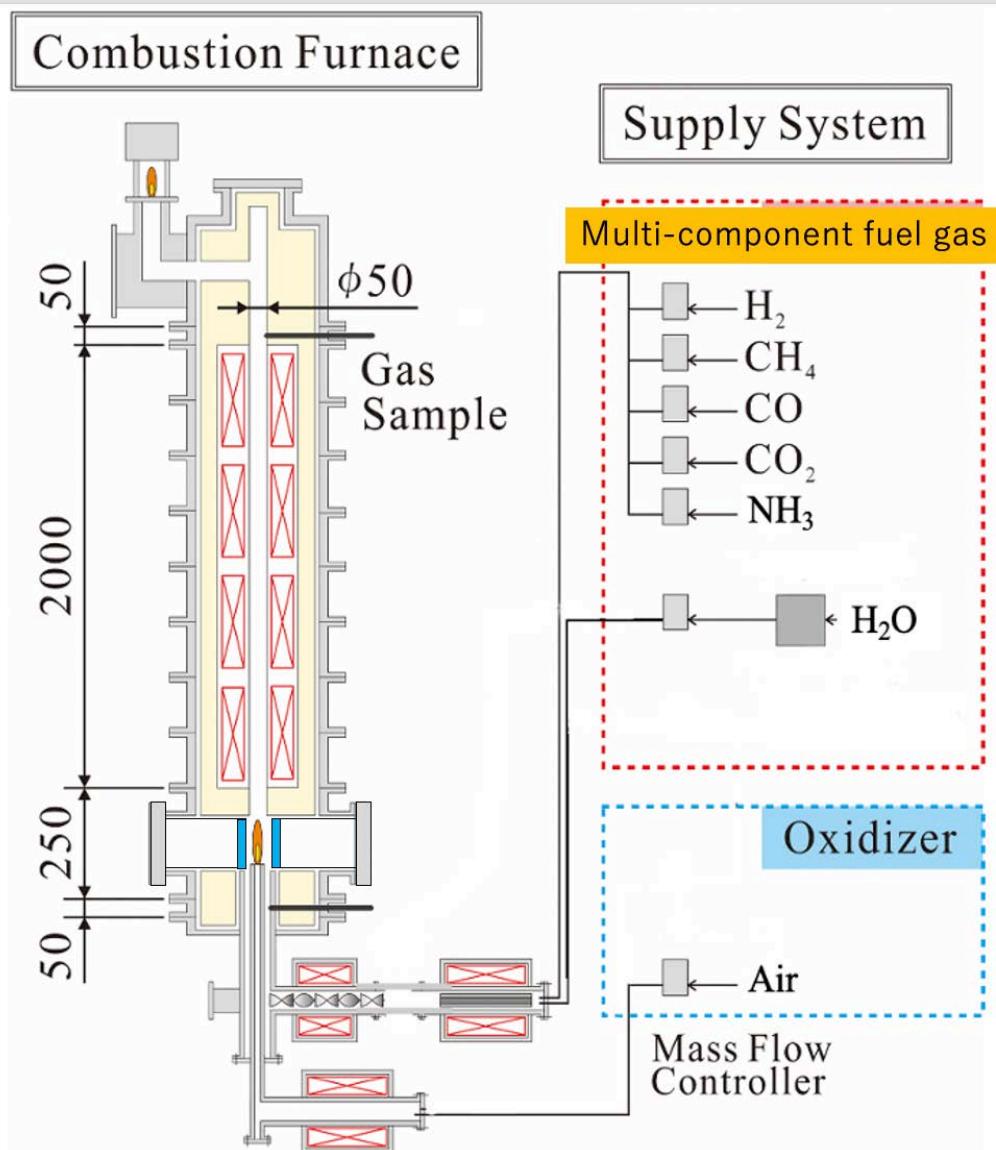


Fig. 4.1 (a) Schematic illustration of combustion furnace and gas reformer.

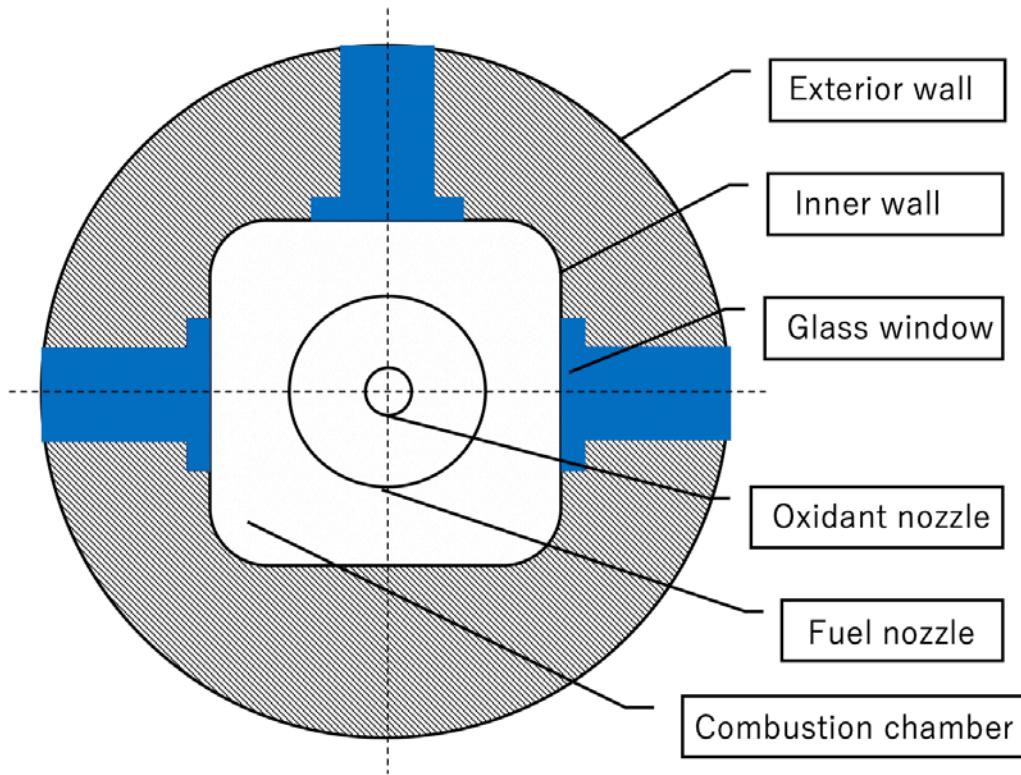


Fig. 4.1 (b) Cross section of the combustor height 50 mm from the oxidizer nozzle.

図 4.1 (a) に燃焼炉とガス供給装置を示す. 図に示したマスフローコントローラによって, それぞれの流量が制御される. なお, 本章において光分解の影響を検証する目的で添加する窒素成分であるホルムアミドの供給は, デュアルポンプ (フロム社製, KP-22-13) を用いて液相の状態で流量を制御し, 脱気装置 (フロム社製, BG-34-10) を通して気化器に圧送した. その後, ホルムアミドは気化器において気化され, 管状電気ヒーター部入口へと導かれ, 前述の模擬ガスに混合される. なお, 脱気装置は定真空度制御方式による脱気性能を用いており, 真空度を 70 とした.

ストーカ式都市ごみ焼却炉における二次空気吹き込み直前のガス温度を模擬するために, 本研究の燃焼器前段の二段のヒーターにより燃料ガスと空気を予熱することで, 実験条件の燃料ガスと空気の予熱温度をそれぞれ 600°C , 900°C に制御する. 水蒸気はデュアルポンプを用いて液相の状態で流量が制御され, 気化器によって蒸気へと相変化させた後に燃焼器へと供給される. また, 本研究の酸化剤は空気であり, 燃焼器全体に対する供給空気比は 1.05 とした. 酸化剤の空気流量は $30.0 \text{ L}_\text{N}/\text{min}$, 燃料総流量は $12.08 \text{ L}_\text{N}/\text{min}$ である. 結果として, 酸化剤供給ノズル出口の空気温度を考慮した酸化剤の断面平均流速および燃料の断面平均流速は, それぞれ 12.77 m/s ,

0.28 m/s となる。酸化剤供給ノズルの内径を代表長さ、温度依存性を考慮した空気の動粘性係数を用いて計算した酸化剤供給ノズル内のレイノルズ数は 2134 である。

4.3 NO-PLIF 計測に関する装置構成および計測条件

本章で用いた光学計測系は、第 2 章に記述した内容と同様であり、光学計測系はレーザー光源、レーザー光を燃焼炉まで導入するミラー・レンズ群、および計測化学種からの蛍光を受光する検出装置で構成される。光学計測系の詳細や計測タイミングに関する設定は第 3 章と同様である。本章では LIF 法を用いて、火炎中の NO 分子の生成状況を計測するために、レーザー光源には、Nd:YAG レーザーの第三高調波 (355 nm) をポンプレーザーとした色素レーザー (CSTR-LG24AFH-W, Sirah) を用いた。本光源の繰り返し周波数は 10 Hz、パルス幅は 8 ns (半値幅) である。NO-PLIF 計測を行う場合、NO 分子に強い蛍光強度、温度依存性及び散乱光影響が小さい検出可能な吸収バンドに対する励起波長を選択する必要がある。本研究では、NO-PLIF 計測を行った先行研究およびスペクトルシミュレーションプログラム LIFBASE の吸収バンドのデータを参考に^[8,9]、NO-PLIF の励起・検出波長を表 4.1 のように決定した。また、NO-PLIF に関する先行研究により、NO-PLIF 信号強度に対する衝突失活の影響が小さいため^[10]、本研究では衝突失活の影響を考慮していない。レーザーのエネルギーの計測にはエネルギー計測器を用いた。

Table 4.1 Excitation and detection wavelength and setting of laser system.

Radical	Excitation wavelength [nm]	Detection wavelength [nm]	Nd:YAG			Dye laser	
			harmonic	Dye	SHG*	With	
NO	225.960 (0, 0)	247 (0, 2)	Third	Coumarin2			

* SHG: Second harmonic generator

レーザー光を燃焼器まで導光するための光学系は、第 3 章と同様である。本章では NO 分子の蛍光波長に対応したバンドパスフィルター (250 nm, FWHM 10 nm, 朝日分光社製) を設置して、蛍光波長以外の火炎からの自発光を除去した。

本研究においては、燃焼反応領域がノズル出口から下流へ広く分布することから、NO-PLIF 信号強度分布の撮影領域を垂直方向に 3 領域設定した。それらは酸化剤供給ノズル端面直上 0 mm から 70 mm, 40 mm から 110 mm, 80 mm から 150 mm であり、半径方向へは酸化剤供給ノズルの中心軸から左右 30 mm の範囲とした。画像の分解能は 70 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ である。

4.4 実験結果および考察

4.4.1 Fuel N 源を含む多成分燃料ガス中への酸化剤吹き込みによって形成される燃焼場での火炎形態

図 4.2 に一眼レフカメラ (NIKON 製, D7000) 用いた逆拡散火炎, 浮き上がり火炎, MILD combustion 状態の火炎 (図 4.2 (e)) において撮影した写真を示す. MILD combustion 状態の火炎は, 逆拡散火炎から浮き上がり火炎を経て形成される. まず, 酸化剤として純酸素を低流速で供給して着火させた後, 酸化剤中の酸素濃度を 21% として逆拡散火炎を形成させる (図 4.2 (a)). 次に逆拡散火炎が形成された状態を維持すると, 燃焼により炉内が加熱され, 壁面温度が上昇して壁が赤熱することで燃焼器内が明るくなる. ここで, 酸化剤流量を増加させると, 火炎基部がノズルリムから離れて浮き上がり火炎が形成される (図 4.2 (b)). 続いて, ノズルリムに付着した逆拡散火炎が形成された条件と同様となるように空気流量を減少させると, ノズルリムに火炎基部が付着することなく, 火炎の目視が困難になる (図 4.2 (e)). 浮き上がり火炎が観察されていた図 4.2 (b) の条件と比較して, 図 4.2 (c) (d) の条件における酸化剤噴流の流速は遅く, 図 4.2 (a) の条件と同一である図 4.2 (e) では, 燃焼反応領域が観察範囲外の下流に移動するとは考えられない. また, 図 4.2 (e) の条件においても排気部における排気ガス計測より, 燃焼効率はほぼ 100 % である^[11]. よって, 燃焼反応は維持されているものの, 火炎からの発光が観察しにくい状態, すなわち MILD combustion 状態の火炎が形成されていると考えることができる.

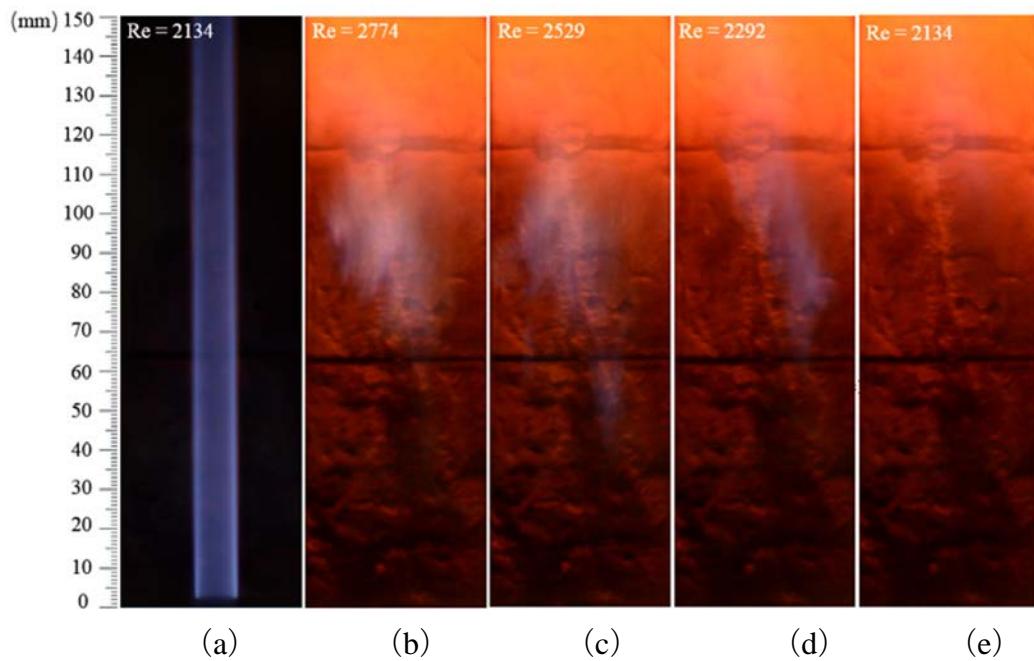


Fig. 4.2 The photographs of combustion furnace of Inversed Diffusion Flame (a), Lifted flame (b, c, d), MILD combustion flame (e).

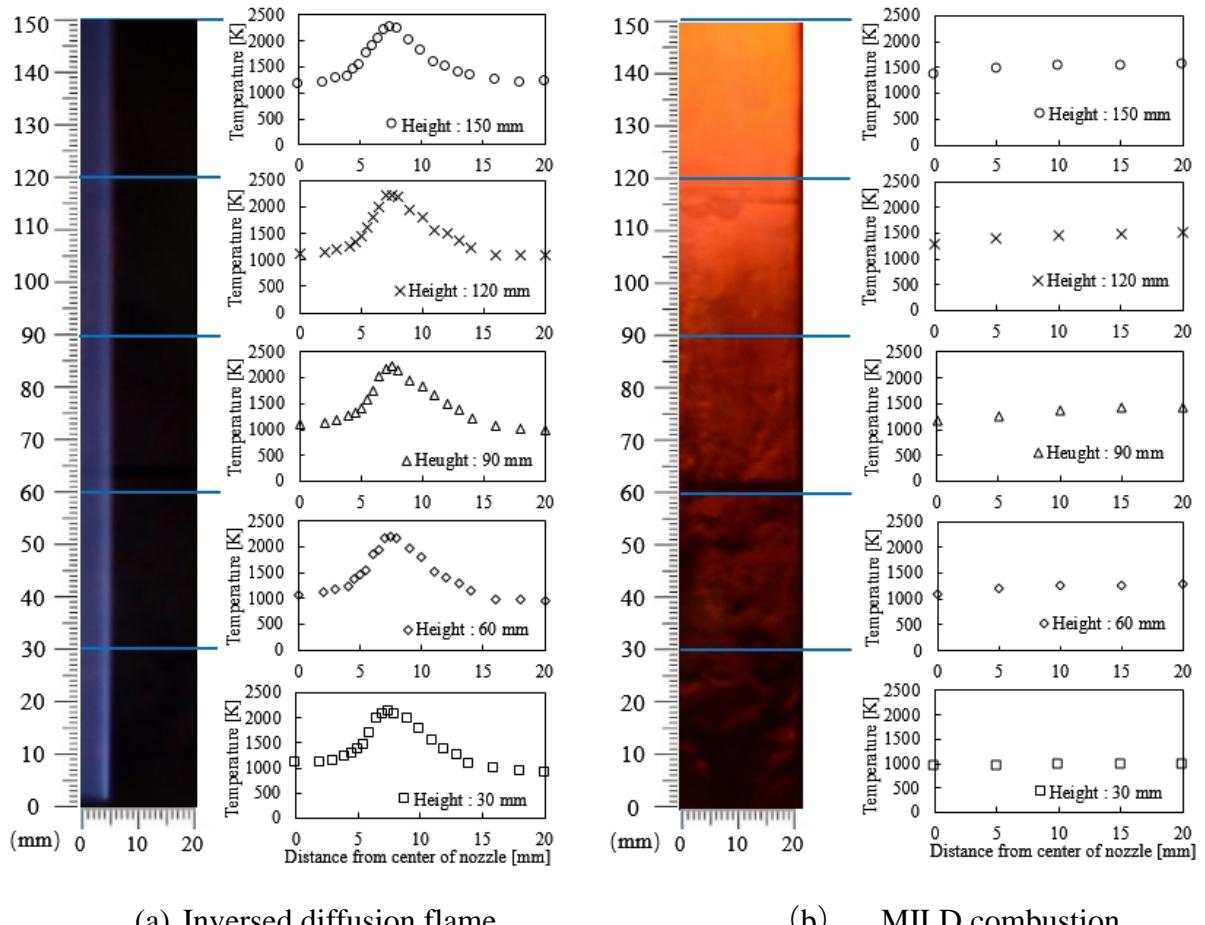
(a) : $t = 0$ s (b) : $t = 110$ s (c) : $t = 130$ s (d) : $t = 150$ s (e) : $t = 170$ s

4.4.2 燃焼場の温度分布計測

本節では、4.4.1節で観察された燃焼形態を評価するために、温度分布の計測を行った。温度の計測には、 SiO_2 で被覆されたR型熱電対を用いた。熱電対をノズル端面から鉛直方向に30 mmずつ配置し、半径方向の温度分布を計測した。なお、図4.2 (a)で観察された逆拡散火炎においては、水平方向にノズル中心から、火炎近傍では1 mmずつ、火炎から離れた領域では5 mmずつ熱電対を水平方向に移動させて温度計測を行い、図4.2 (e)で観察されたMILD combustion状態と考えられる火炎では、熱電対をノズル中心から5 mmずつ水平方向に移動させて温度を計測した。温度データは10 Hzのデータロガーで60秒間記録し、時間平均値を求めた。

図4.3に、ノズル端面からの鉛直方向距離が異なる位置における温度の半径方向分布を示す。ここで本研究では、指示温度に対する輻射補正を行うために、素線径100 μm 、200 μm および300 μm のR型熱電対を用いた外挿法によって素線径0 μm の温度を推定し、計測値として用いた。輻射補正のための温度計測は、ノズル端面から鉛直方向距離に150 mmの位置において行った。第3章の温度結果によって、燃料ガス中におけるアンモニアの有無に関わらず温度分布がほぼ一致したことから、本章の温度計測結果では燃料ガス中にアンモニアを添加した条件の結果のみを示している。図4.3 (a)と図4.3 (b)は、それぞれ逆拡散火炎とMILD combustion状態の火炎の温度分布である。図4.3における縦軸は温度、横軸はノズル中心からの水平方向距離である。

逆拡散火炎の温度分布(図4.3 (a))から、半径方向5 mm～10 mmの位置に温度の最大値が現れていることが分かる。これは、逆拡散火炎の直接写真から、火炎帶の存在する位置を示していると考えられる。火炎帶近傍では、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに、温度が少し上昇した。また、火炎帶から離れた領域では、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに温度が大幅に上昇した。一方で、図4.2 (e)において観察されるMILD combustion状態の火炎(図4.3 (b))では、半径方向に特徴的な温度のピークは現れず均一な温度分布を持ち、ノズル端面からの鉛直方向距離の増大とともに、半径方向温度が全体的に上昇していることが分かる。また、図4.2 (e)において観察された火炎における最高温度は、予熱温度(873 K)より600 K高く、燃焼反応は進行していることが温度計測結果から示された。このことから、本研究の試験条件において、同一の流量条件、温度条件で逆拡散火炎およびMILD combustion状態の火炎が形成できることが温度分布からも確認された。



(a) Inversed diffusion flame

(b) MILD combustion

Fig. 4.3 Temperature measurement result of Inverse Diffusion flame and MILD combustion with NH_3 in fuel.

4.4.3 レーザー誘起蛍光法の励起光源による NH_3 の分解

NH_3 の光吸収係数は波長 160 nm – 210 nm の間で大きいことが知られている^[12]。この波長範囲は本研究で用いる NO-PLIF 計測の励起光源の波長 (225.960 nm) に近い。レーザー誘起蛍光法の励起光源による NH_3 の分解による NO-PLIF 計測への影響を検討するために、 NH_3 と等量の N 原子を分子内に含有し、励起光源によって光分解を起こさないとされるホルムアミド (Formamide : CH_3NO) を添加剤として加えた条件において NO-PLIF 計測を行い、NO-PLIF 計測における励起光源が Fuel N 源として添加したアンモニアの分解に与える影響を検討した。また、NO-PLIF 計測と同時に、煙道における NOx 成分の分析を行うことで比較検討した。

図 4.4 は、添加成分なし、 NH_3 添加、 CH_3NO 添加の条件に形成される逆拡散火炎、および MILD combustion 両状態において行った積算された NO-PLIF 信号強度画像である。積算枚数が 200 枚であり、撮影領域がバーナ出口からの鉛直方向距離 40 mm – 110 mm における半径方向である。図 4.4 (a) の逆拡散火炎の NO-PLIF 信号強度画像から見ると、NO-PLIF 信号が計測されない中心軸上の黒い領域が観察されていることが分かる。この領域は、典型的な IDF の未燃の酸化剤の領域である。一方、図 4.4 (b) の MILD combustion 状態の火炎の NO-PLIF 信号強度画像では、燃焼領域が拡大されたため、NO-PLIF 信号が計測されない中心軸上の黒い領域が顕著ではなく、半径方向の全体の領域に均一な NO-PLIF 信号強度分布を持ち、MILD combustion 状態の火炎の特徴と合致した。

図 4.5 は、添加成分なし、 NH_3 添加、 CH_3NO 添加の条件においてそれぞれ形成される逆拡散火炎、および MILD combustion 両状態において行った NO-PLIF 計測結果である。なお、NO-PLIF 強度は図中の「Formamide_MILD」の条件における信号強度の最大値を用いて正規化し、バーナ出口からの鉛直方向距離 40 mm – 110 mm における半径方向分布を示している。また、図 4.6 は添加成分なし、 NH_3 添加、 CH_3NO 添加の条件で形成される逆拡散火炎、および MILD combustion 状態の火炎において計測された煙道の NOx 濃度である。添加成分なしの場合に、生成される NOx は酸化剤中の窒素起源の NOx、すなわち Thermal NOx および Prompt NOx となる。両 NOx 生成機構は、温度の影響を受けるため、空間の温度が均一で低い MILD combustion が形成される条件において低い NO-PLIF の値を示していると考えられる。一方、Fuel NOx 源を加えた条件では、添加成分の種類によらず NO-PLIF の信号強度に大きな変化はないことが示された。この結果は、図 4.5 および図 4.6 に共通する結果であり、今回の条件では励起光源による NH_3 の光分解が NO-PLIF に及ぼす影響は無視できる程度であると考えられる。

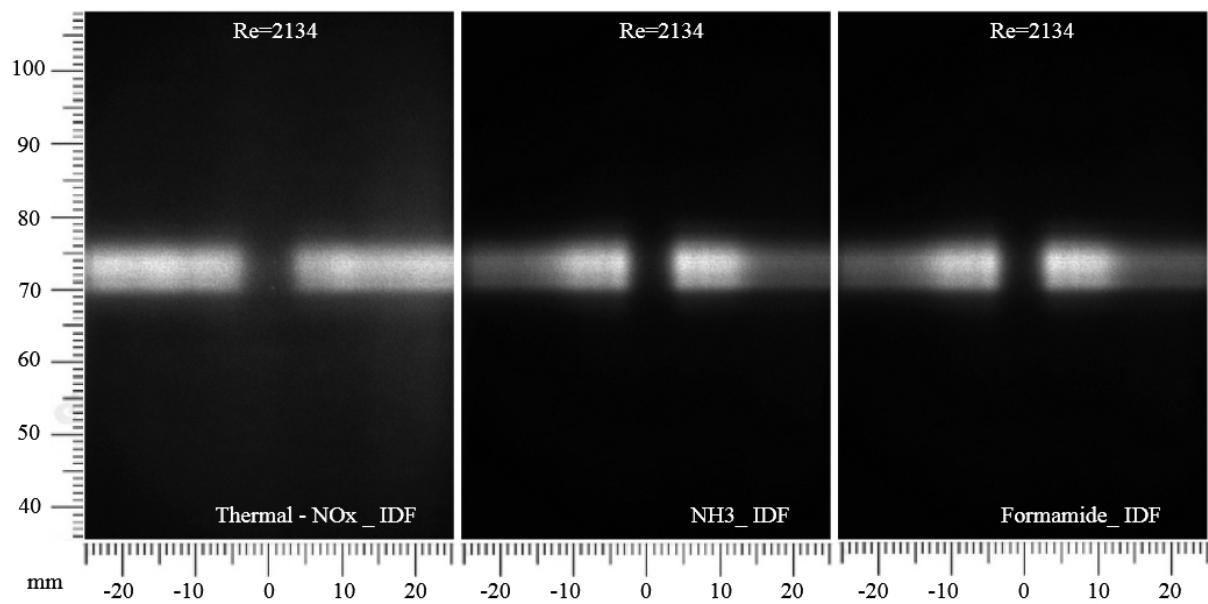


Fig. 4.4 (a) Accumulated NO-PLIF photo in condition of without ammonia, with ammonia, with formamide of inverse diffusion flame.
(vertical distance 40 mm–110 mm from nozzle outlet)

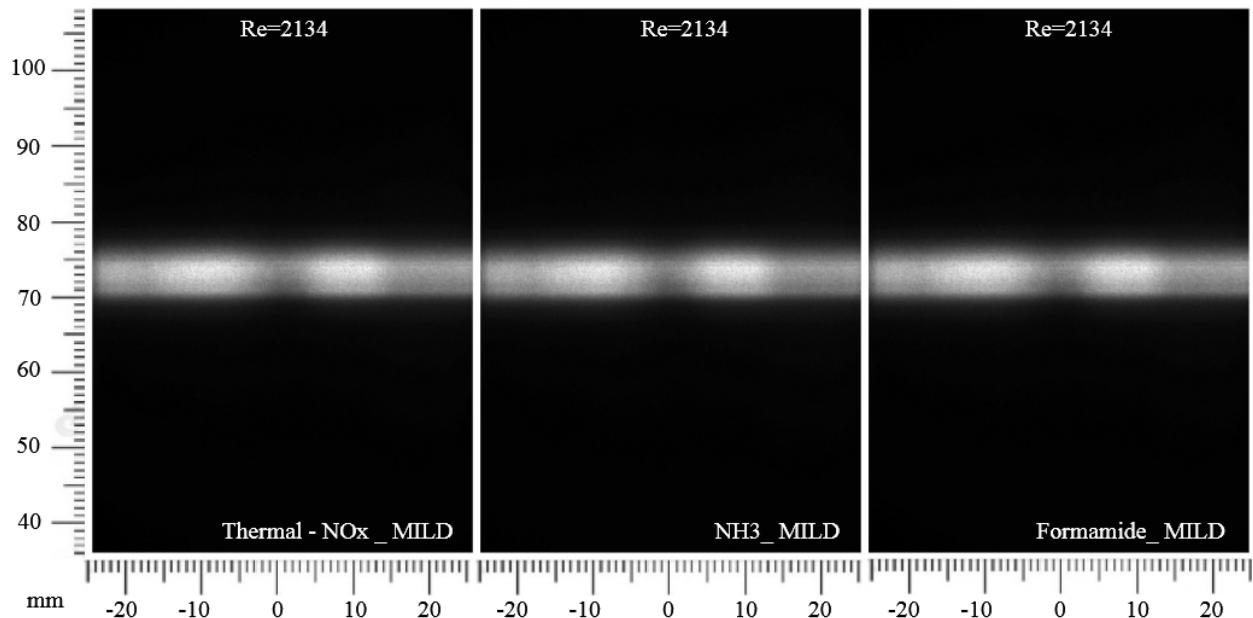


Fig. 4.4 (b) Accumulated NO-PLIF photo in condition of without ammonia, with ammonia, with formamide of MILD combustion.
(vertical distance 40 mm–110 mm from nozzle outlet)

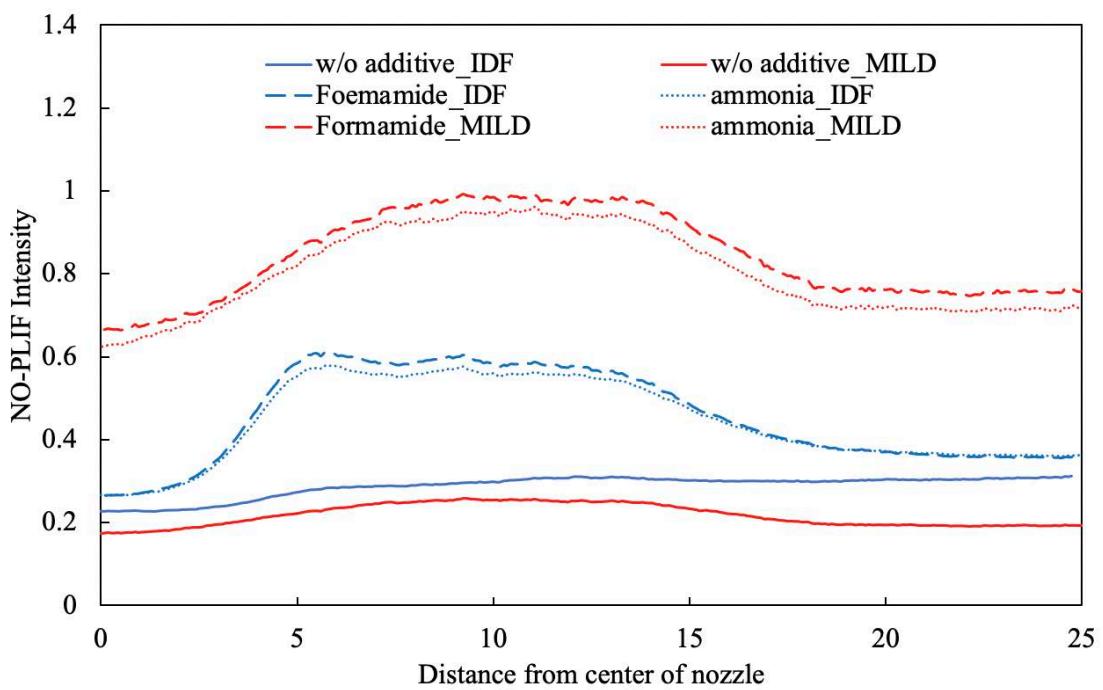


Fig. 4.5 Time averaged NO-PLIF intensity with/without ammonia of inverse diffusion flame and MILD combustion.

(vertical distance 40 mm–110 mm from nozzle outlet)

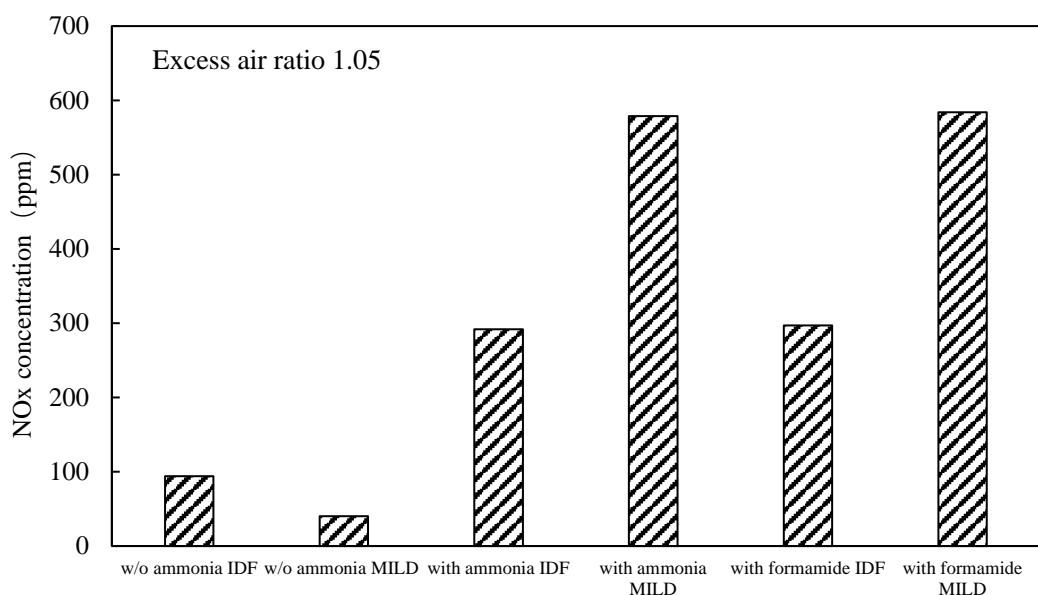


Fig. 4.6 NOx concentration of the inverse diffusion flame and MILD Combustion from gas sampling.

4.4.4 NO-PLIF と OH-PLIF の比較による火炎形態の評価

図 4.7 に逆拡散火炎から MILD combustion 状態の火炎までの遷移過程における NO-PLIF の時系列画像を示す。撮影領域が酸化剤ノズル端面から 0 mm ~ 70 mm の範囲, 40 mm ~ 110 mm の範囲, 80 mm ~ 150 mm の範囲であり。図 4.9 の可視化像には、照射範囲全域において得られる LIF 信号を示したため、レーザーシート内の高さ方向のエネルギー密度に依存した蛍光輝度の分布が現れることに注意が必要である。半径方向の分布を評価する際には、シート光の高さ方向分布中でエネルギー密度が十分強い酸化剤ノズル端面から 60 mm ~ 80 mm の範囲における信号データを抽出して、データ処理を行った。燃料には NH_3 が添加されている。撮影開始からの時間を t とすると、 $t = 0$ s の NO-PLIF 瞬時像から NO-LIF 信号が火炎帯近傍に現れていることが分かる。ノズル中心軸上の LIF 信号が計測されない黒い領域は酸化剤である。これは典型的な逆拡散火炎の NO-LIF 信号分布である。

酸化剤の流速を増加させると ($t = 0$ s ~ 90 s), 逆拡散火炎がノズル端面から浮き上がり、逆拡散火炎から浮き上がり火炎に遷移する。流速の上昇や浮き上がり火炎への遷移過程で火炎面が乱されるため、NO-LIF 信号分布も同様に乱されていることが分かる。酸化剤の流速を減少させる ($t = 90$ s ~ 170 s) と、浮き上がり火炎により乱された NO-LIF 信号の強度分布が比較的一様になった。酸化剤流速が $t = 0$ s と同等となる $t = 170$ s の NO-LIF 信号の瞬時像では、図 4.2(e) に示すような MILD combustion 状態の火炎が形成されており、ノズル中心軸上の酸化剤の領域以外は、NO-LIF 信号強度が比較的一様に分布している。さらに、垂直方向の距離が高くなるとともに、火炎下流の方に酸化剤の流速が遅くなり、燃焼領域の未燃ガスと既燃ガスが十分混合されて、安定な MILD combustion 状態の火炎へと変化した。その際に、 $t = 170$ s の NO-LIF 信号強度の瞬時像では、図 4.7 (a) と図 4.7 (b) と図 4.7 (c) を比較して、同時期の MILD combustion 状態の火炎の NO-LIF 信号において、中央の黒い帯状の酸化剤未燃領域が観察されなくなった。

図 4.8 に燃料中に NH_3 を添加成分として加えた条件において、MILD combustion 状態の火炎における OH-PLIF 瞬時像 (図 4.8 (a)) と NO-PLIF 瞬時像 (図 4.8 (a)) と NO-PLIF 瞬間像 (図 4.8 (b)) の比較を示す。なお、OH-PLIF と NO-PLIF は同時撮影でなく、別実験時の結果である。また、図 4.8 において OH-PLIF, NO-PLIF に対して用いたレーザーシートのエネルギー密度のプロファイルが異なることから、可視化される範囲が異なる。NO-PLIF 信号は酸化剤の噴流があると考えられる領域は小さく、その周囲には空間に対して比較的一様に分布している。図 4.8 (a) より、MILD combustion 状態の火炎における OH-PLIF 信号は逆拡散火炎の OH-PLIF 信号強度に比べて弱い信号を観察できる。OH-PLIF 信号が高温の領域および反応領域において計測されることを考えれば、図 4.8 (a) において計測されている OH-PLIF 信号の付近に反応面が形成されていることが推察できる。一方で、MILD combustion 状態の火炎では、NO-PLIF が半径方向全域に分布していることから、MILD combustion 状態では燃焼反応領域で生じた NO と既燃ガスが混合して広範囲に NO が分布すると

考えられる。

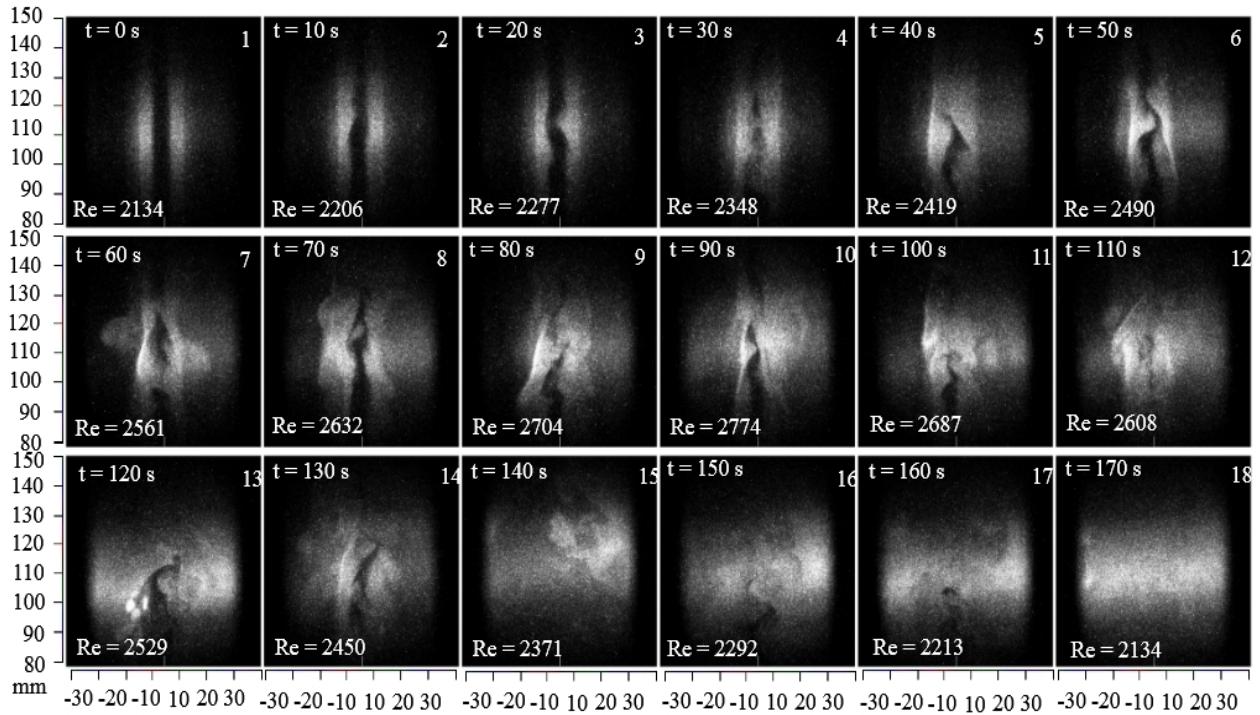


Fig. 4.7 (a) NO-PLIF Intensity of changing process from IDF to MILD in vertical distance from nozzle. (80 mm ~ 150mm)

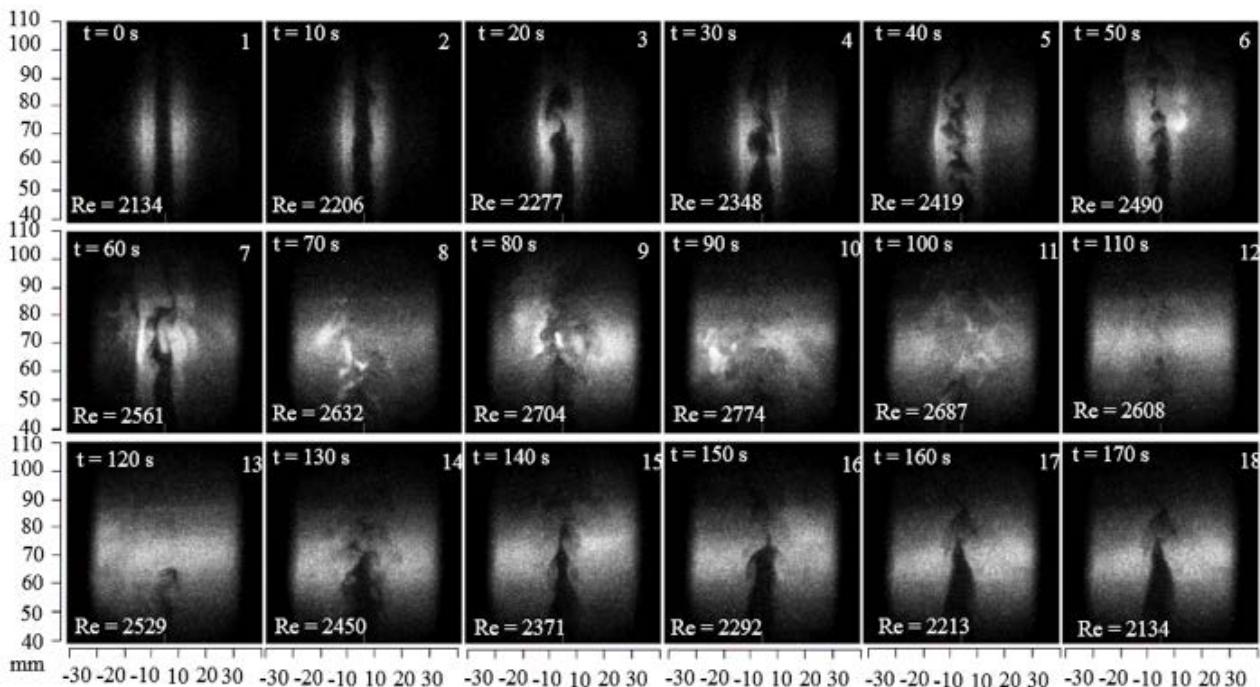


Fig. 4.7 (b) NO-PLIF Intensity of changing process from IDF to MILD in vertical distance from nozzle. (40 mm ~ 110mm)

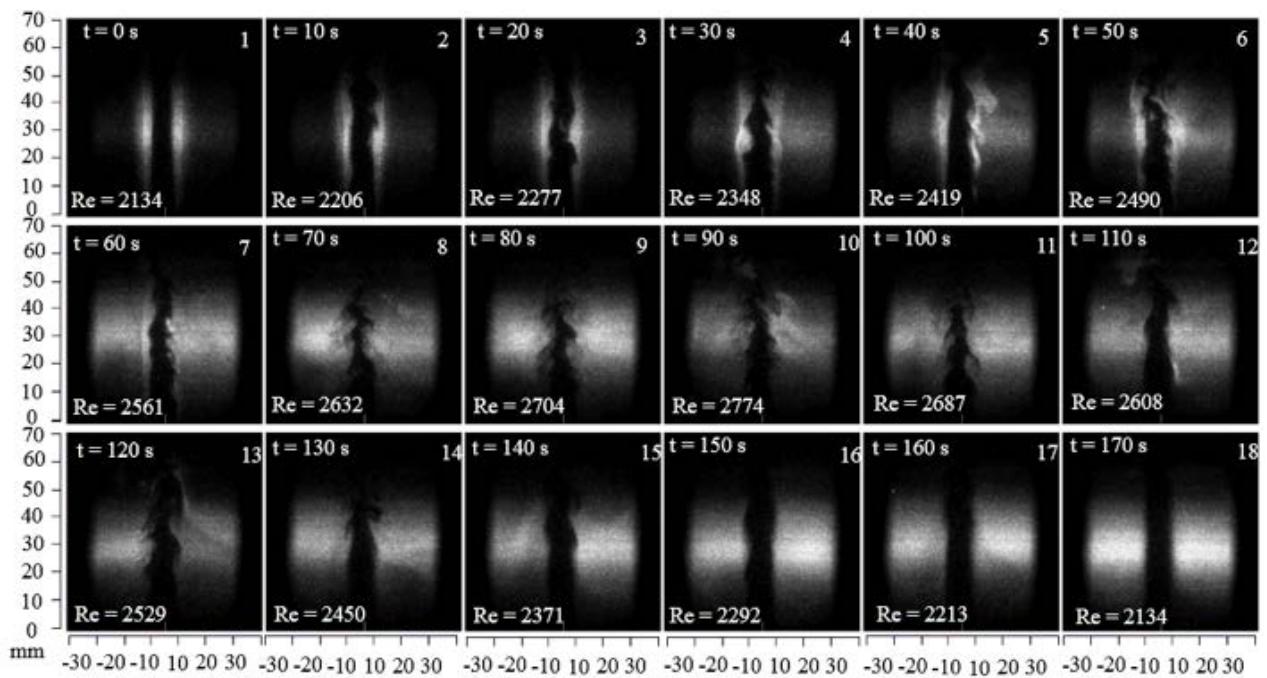


Fig. 4.7 (c) NO-PLIF Intensity of changing process from IDF to MILD in vertical distance from nozzle. (0 mm ~ 70mm)

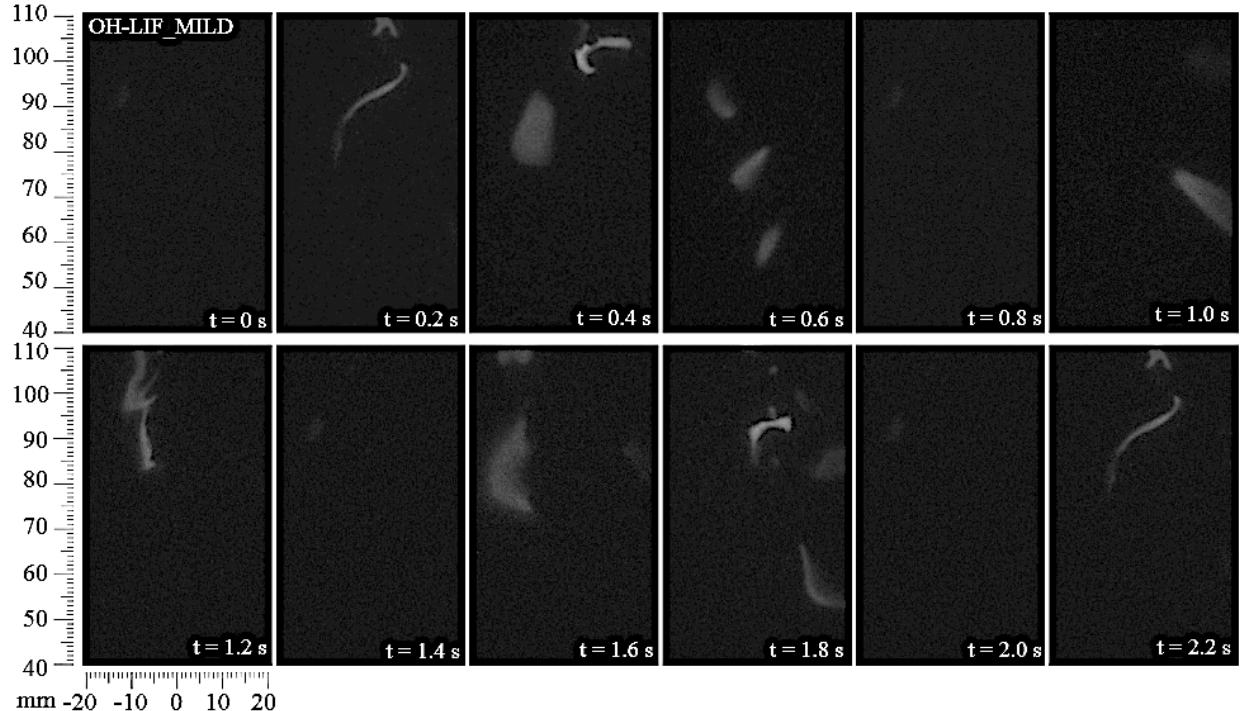


Fig. 4.8 (a) OH-PLIF signal intensity of MILD combustion in different time.

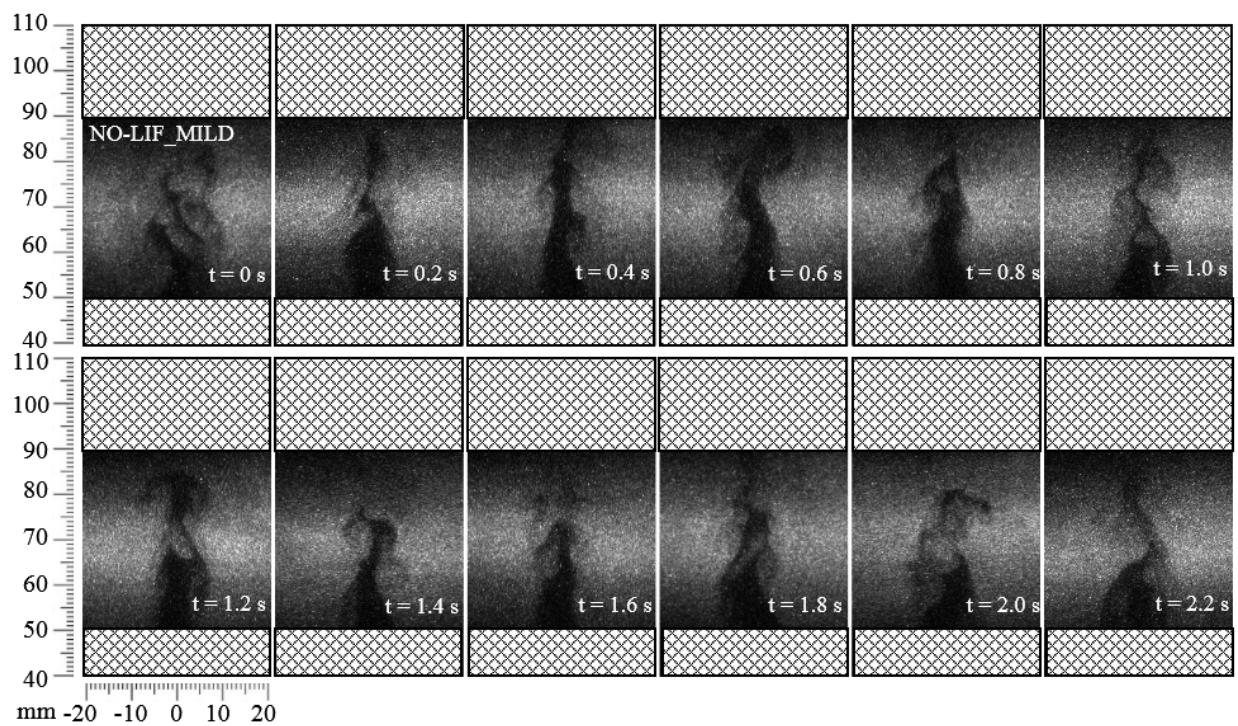


Fig. 4.8 (b) NO-PLIF signal intensity of MILD combustion in different time.

4.4.5 アンモニア添加の影響

図 4.9 に燃料中のアンモニア有無による OH-PLIF, NO-PLIF の計測結果の相違を, 逆拡散火炎および MILD combustion 状態の火炎それぞれについて示す. 図 4.9 (1), (2) にはアンモニア添加なしの逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎の直接写真, 図 4.9 (a), (b) には燃料中にアンモニアを添加した場合と添加なしの場合の条件での逆拡散火炎と MILD combustion に対応する OH-PLIF 積算画像 (200 枚) を示している. MILD combustion 状態の火炎において, OH-PLIF 信号はアンモニア添加の有無により変化しなかったため, 図中の OH-PLIF はアンモニア添加なしの場合の結果を示している. 図 4.9 (c), (d), (e), (f) には NO-PLIF 積算画像を示している. 積算枚数は 200 枚である. 図 4.9 (g) には, HAB (Height above the burner) = 30, 60, 120 mm における OH-PLIF 信号強度と NO-PLIF 信号強度の半径方向分布を示している. NO-PLIF 信号強度は HAB = 30 mm におけるアンモニアを添加した逆拡散火炎の NO-PLIF 信号強度の最大値によって正規化している. また, 図 4.9 (h) はアンモニア添加なしの条件における MILD combustion 状態の火炎の NO_x 生成量を理解するために縦軸を変更した図である.

図 4.9 (g), (h) ではアンモニア添加なしの条件において, 火炎形態に関わらず, ノズル端面からの鉛直方向距離が増加するとともに, NO-PLIF 信号強度が強くなつたことが分かる. アンモニア添加なしの条件における NO_x 生成量の多くは, 酸化剤中の窒素を起因とした Thermal NO であると考えられる. Thermal NO は反応速度が遅いために, 火炎下流で大量に生成される^[13]. さらに, Thermal NO では, 一般的に拡大ゼルドヴィッチ機構に起因する Thermal NO は温度場の影響を強く受け, 1800 K 程度より高温の条件においてその生成量が急上昇するため^[14], 前節の温度分布結果により, 火炎帶付近の温度が 2000 K を超える火炎下流において NO 濃度が上昇したと考えられる. なお, ノズル端面からの鉛直方向距離に関わらず, 逆拡散火炎の NO-PLIF 信号強度と MILD combustion の NO-PLIF 信号強度を比較すると, 逆拡散火炎の NO-PLIF 信号強度が強いことが分かる. これは, MILD combustion 条件における温度が, 逆拡散火炎の最高温度と比較して低いことが原因であると考えられる.

一方, 図 4.9 (g) にアンモニアを添加した場合, NO-PLIF 信号強度分布は大きく異なり, 逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎の両者とも NO-PLIF 信号強度がアンモニア添加なしの場合に比べて強くなっている. 逆拡散火炎ではノズルに最も近い HAB = 30 mm で NO-PLIF 信号強度の最大値が最も大きくなる. さらに, 下流に進むに従い, 酸化剤ノズル端面から垂直方向距離の増加とともに, NO-PLIF 信号強度が半径方向に平滑化され, 信号強度が低下することが示された. OH-PLIF の信号領域を反応領域とすると, HAB = 30 mm では NO-PLIF 信号強度は反応領域と反応領域から燃料側に分布している. HAB = 60 mm, 120 mm では NO-PLIF 信号強度は反応領域と反応領域から燃料側に加えて, 反応領域から酸化剤側にも分布する. これは, 生成された Fuel NO が混合および拡散によって燃焼器内に広く分布していることを示していると考えられる. また, NH₃ を燃料側に添加していることから, 生

成された NO と未燃の NH₃ の反応による窒素への還元によって、火炎下流の方において信号強度が低下することが考えられる^[13]。

ここで、図 4.6において得られたガスクロマトグラフィの結果と比較を行う。図 4.6において、逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎が形成される燃焼形態における排気 NO_x 濃度を比較すると、アンモニア添加なしの条件では、MILD combustion 状態の火炎において生成される NO_x の濃度は、逆拡散火炎の状態で生成される NO_x の濃度と比較して低いことが分かる。これは、MILD combustion 状態では炉内の最高温度が低下するため、NO_x 濃度が逆拡散火炎に比べて低減したと考えられる。一方で、模擬ガス成分にアンモニアを添加した場合、図 4.6 に示したように MILD combustion 状態の火炎の NO_x 濃度は付着した逆拡散火炎の NO_x 濃度より高い結果となった。

模擬ガス成分にアンモニアを添加した場合、NO_x の生成は、Thermal NO_x と Fuel NO_x 双方が要因となり得る。Fuel NO_x は温度依存性が小さく、NO_x 生成に重要なアンモニアの酸化反応は 1000°C 程度で十分活発となる^[15]。また、アンモニアの燃焼反応では、NO_x 排出量に対して空気比の影響が大きく、特に燃料希薄条件において NO_x 生成量が増大する^[16]ことから、今回のようにアンモニアの添加が微量な条件下では燃焼反応領域で Fuel NO が生成されることが考えられる。さらに、図 4.9 (g)、(h) に示した NO-PLIF 信号強度の半径方向分布から、付着した逆拡散火炎の NO-PLIF 信号が出ていた領域は火炎近傍の領域に限定される。それに対して、MILD combustion では、酸化剤噴流による希釈燃焼によって、燃焼器内全域に NO-PLIF 信号が均一的な分布になる。したがって、燃焼反応領域が広い MILD combustion 状態の火炎において、同条件の付着した逆拡散火炎と比較して NO_x 濃度が高い結果となったと考えられる。

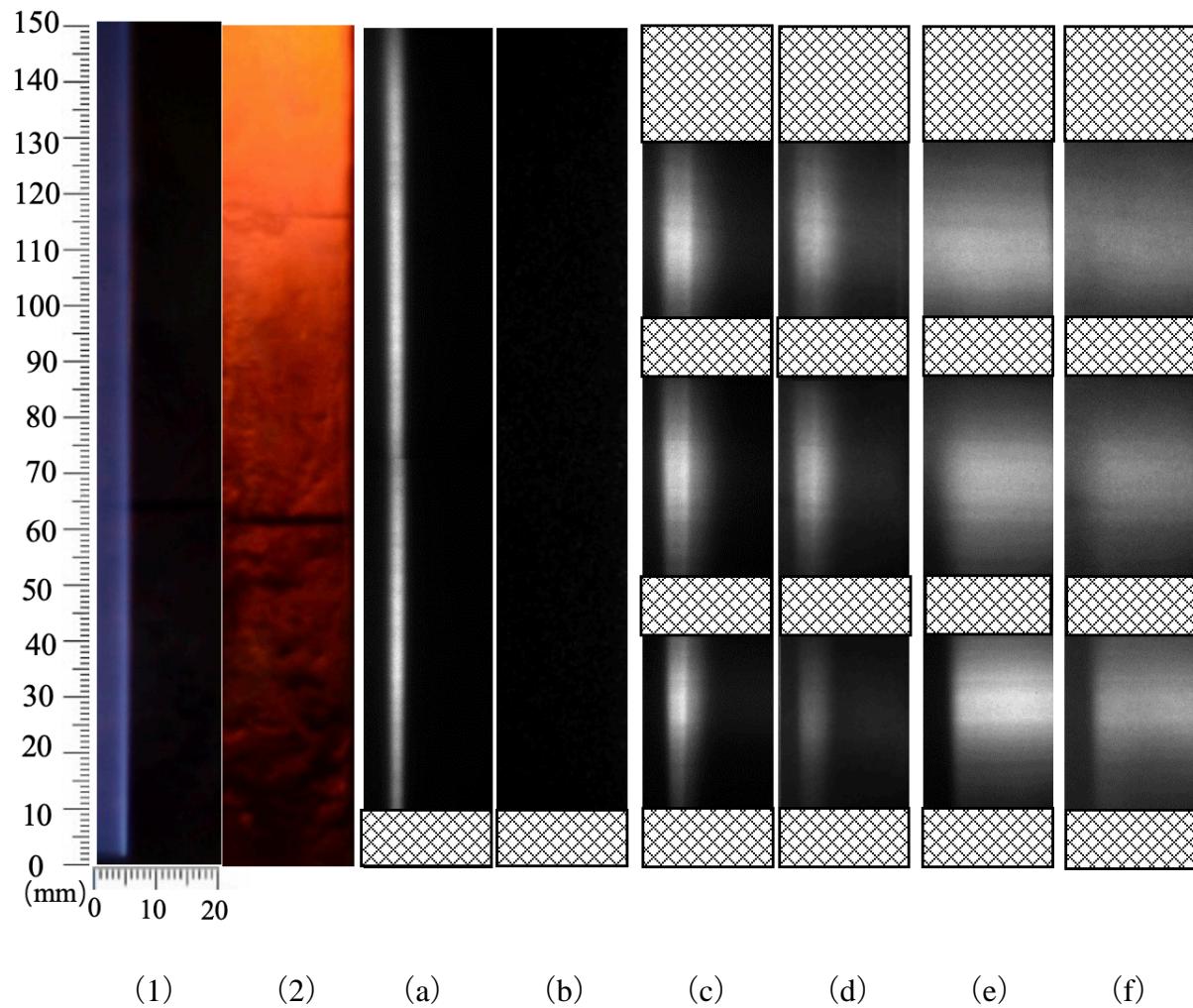


Fig. 4.9 Time averaged of NO-PLIF & OH-PLIF intensity in inverse diffusion flame and MILD combustion with NH₃ & without NH₃. (1) Photo of IDF (2) Photo of MILD (a) OH-PLIF of IDF (b) OH-PLIF of MILD (c) NO-PLIF of IDF with NH₃ (d) NO-PLIF of IDF without NH₃ (e) NO-PLIF of MILD with NH₃ (f) NO-PLIF of MILD without NH₃ (g) NO-PLIF & OH-PLIF intensity (h) The vertical axis is enlarged in the condition of MILD without NH₃ NO-PLIF

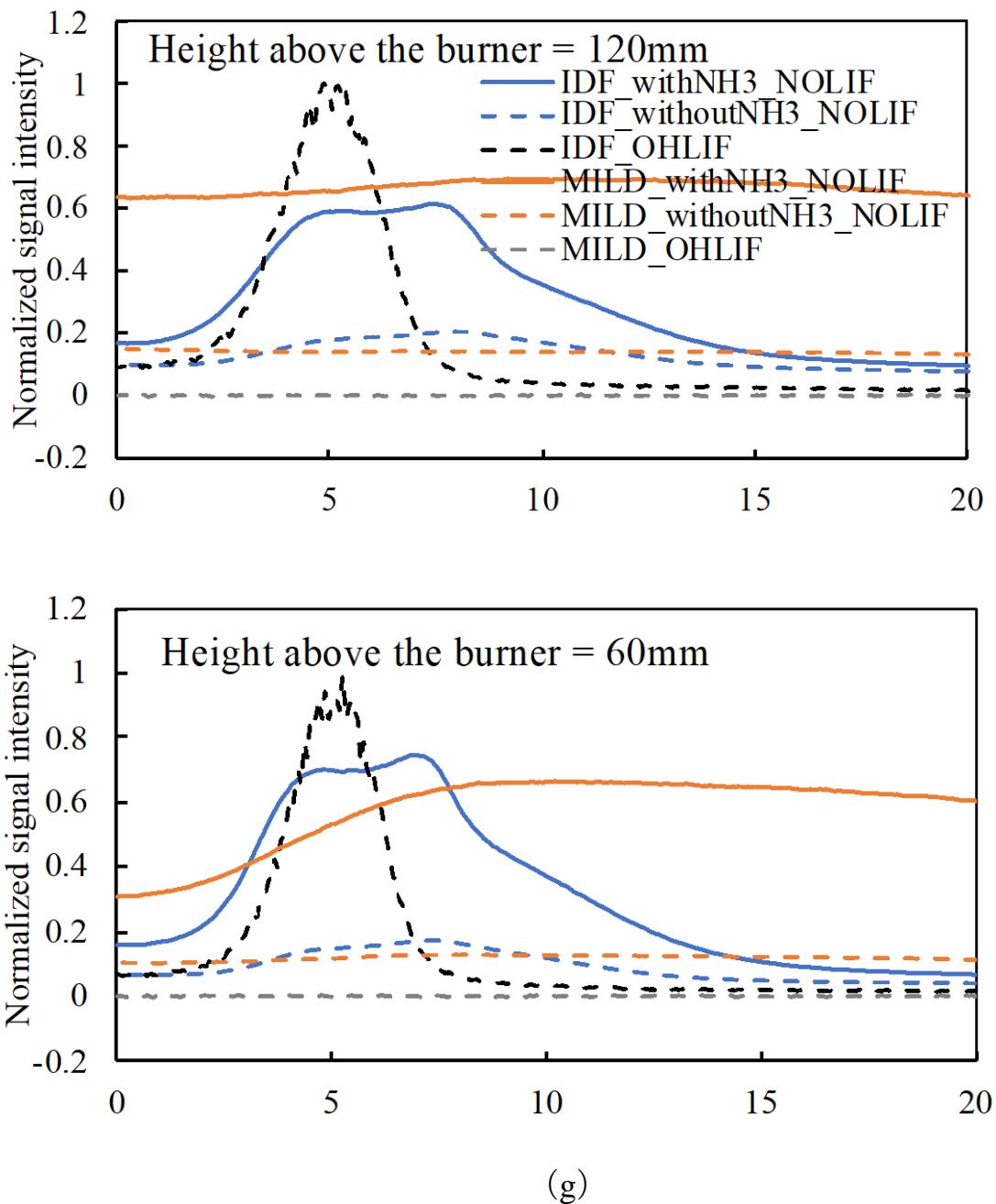
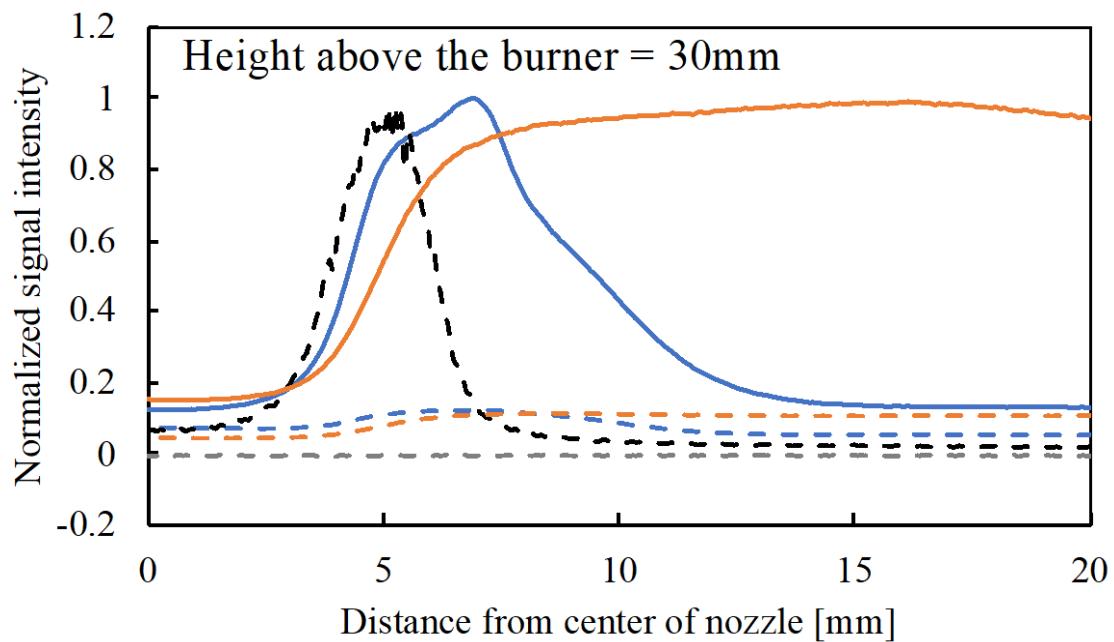
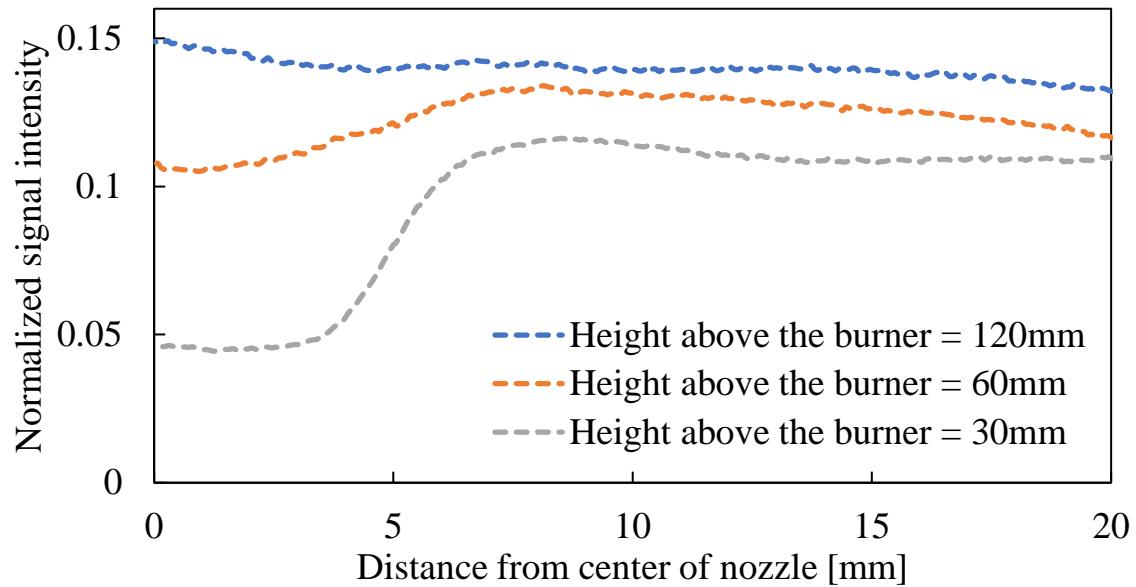


Fig. 4.9 Time averaged of NO-PLIF & OH-PLIF intensity in inverse diffusion flame and MILD combustion with NH_3 & without NH_3 . (1) Photo of IDF (2) Photo of MILD (a) OH-PLIF of IDF (b) OH-PLIF of MILD (c) NO-PLIF of IDF with NH_3 (d) NO-PLIF of IDF without NH_3 (e) NO-PLIF of MILD with NH_3 (f) NO-PLIF of MILD without NH_3 (g) NO-PLIF & OH-PLIF intensity (h) The vertical axis is enlarged in the condition of MILD without NH_3 NO-PLIF



(g)



(h)

Fig. 4.9 Time averaged of NO-PLIF & OH-PLIF intensity in inverse diffusion flame and MILD combustion with NH_3 &without NH_3 . (1) Photo of IDF (2) Photo of MILD (a) OH-PLIF of IDF (b) OH-PLIF of MILD (c) NO-PLIF of IDF with NH_3 (d) NO-PLIF of IDF without NH_3 (e) NO-PLIF of MILD with NH_3 (f) NO-PLIF of MILD without NH_3 (g) NO-PLIF & OH-PLIF intensity (h) The vertical axis is enlarged in the condition of MILD without NH_3 NO-PLIF

4.5 まとめ

本研究では、ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域に形成される火炎中の NO 生成特性を明らかにする目的から、予熱された燃料中に噴出される酸化剤によって形成される火炎形態および燃焼場の NO を直接撮影と平面レーザー誘起蛍光法 (NO-PLIF 法) により評価した。さらに、被焼却物中に窒素成分が含まれていることを考慮して、燃料模擬ガスへのアンモニア添加の有無が排気中の NO_x 生成に与える影響を評価した。また、レーザー光を受けて NH₃ が分解される影響を考察するために、NH₃ と等量の N 原子の数となるホルムアミドを置換して NO-PLIF 計測を行った。得られた結論を以下に示す。

- (1) MILD combustion 状態の火炎の温度分布は逆拡散火炎の温度分布に比べて、半径方向に均一な分布を持ち、最高温度が低い。
- (2) アンモニア添加 (1000 ppm) の場合、NO-PLIF 計測に及ぼすレーザー光によるアンモニアの分解の影響は無視できる。
- (3) 逆拡散火炎の NO-PLIF と OH-PLIF 計測結果を比較することにより、火炎帶外側に NO-PLIF 信号強度が高いことが分かった。
- (4) 燃料模擬ガス中にアンモニアを 1000 ppm 含む場合、アンモニア添加なしの場合と比較して、NO-PLIF 信号強度が高くなる。
- (5) 燃料模擬ガス中にアンモニア添加なしの場合、MILD combustion 状態の火炎は逆拡散火炎より NO-PLIF 信号強度が弱く、NO 分子の生成量が低いと考えられる。また、アンモニア添加なしの場合は、燃焼形態と関係なく酸化剤ノズル近傍と比較して下流の方が NO-PLIF 信号強度が高くなる。なお、燃料模擬ガス中にアンモニアを 1000 ppm 添加した場合には、その大小関係が逆転する。これは、MILD combustion 状態の火炎は逆拡散火炎より NO-PLIF 信号強度分布が空間的に広く分布するため、NO 分子の生成量が高くなつたことに起因する。さらに、アンモニア添加の場合には、燃焼形態と関係なく酸化剤ノズル近傍より下流の方が NO-PLIF 信号強度が低くなる。

参考文献

1. Grieco, E. and Baldi, G., Analysis and modelling of wood pyrolysis, Chemical Engineering Science, Vol. 66, No. 4 (2011) , pp. 650-660.
2. Ouimbinga, S. K., Rogaume, T., Sougoti, M., Commandre, J. M. and Koulidiati, J., Experimental characterization of gaseous species emitted by the fast pyrolysis of biomass and polyethylene, Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, Vol. 82, No. 2 (2009) , pp. 260-268.
3. Yasuda, T., Shigemasa, S., Furubayashi, M., Tomiyama, S., Numerical Prediction of Waste Bed Combustion in Municipal Solid Waste Incinerator, Journal of High Temperature Society, Vol. 31, No. 1 (2005) , pp. 69-75.
4. Shiraishi, Y., Nakatsuka, N., Miyauchi, T., Hayashi, J. and Akamatsu, F., Numerical study on effects of devolatilization gas composition to reducing Fuel NO_x in municipal solid waste incinerator using detailed chemical kinetics, Transactions of the JSME (in Japanese) , Vol. 82, No. 838 (2016) , DOI: 10.1299/transjsme.15-00601.
5. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Sajiki, K., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., Numerical Simulation of Stoker-type Incinerator including Waste Bed Combustion and NO_x Prediction using a Detailed Chemical Kinetics Mechanism, Journal of the Japan Society Material Numerical Cycles and Waste Management, Vol. 29 (2018) , pp. 80-91.
6. Shiraishi, Y., Nakataya, N., Hama, T., Furubayashi, M., Nakatsuka, N., Hayashi, J., Akamatsu, F., A Study of Kinetic Analysis and Nitrogen Emission Behavior of Municipal Solid Waste in Thermal Decomposition, Journal of the Society of Environmental Instrumentation Control and Automation, Vol. 21 (2016) , pp. 145-151.
7. Suzuki, M., Development of High-Temperature Air Combustion Technology for Stoker-Type Waste Incineration Process, Journal of the Combustion Society of Japan, Vol. 49 No. 147 (2007) , pp. 29-37.
8. Okuno, K., Sano, T., Saitoh, H., Yoshikawa, N. and Hayashi, S., Measurements of temperature and concentration of nitrogen monoxide in flame by LIF imaging spectroscopy with standard addition method, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 72, No. 723 (2006) , pp. 2733-2740 (in Japanese) .
9. Luque, J. and Crosley, D. R., Database and spectral simulation for OH A-X, OD A-X, NO A-X, B-X, D-X, CH A-X, B-X, C-X, CN B-X, SiH A-X and CF A-X, SRI Report, No. MP99-009 (1999) .
10. Horie, R., Ando, C., Zhu, X. L., Nishioka, M. and Takeno, T., Measurement of NO in a coflow diffusion flame by PLIF, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 65, No. 629 (1999) , pp. 62-70 (in Japanese) .

11. Tian, S., Nakatsuka, N., Hori, T., Hayashi, J. and Akamatsu, F., The research on NO generation mechanism in MILD combustion of primary combustion gas of waste incinerator by NO-PLIF method, Transactions of the JSME (in Japanese) , No.21-00130, DOI:10.1299/transjsme.21-00130.
12. Takeyama, A., Kambara, S., Kondou, M., Hishinuma, N., Masui, M., Murata, Y. and Moritomi, H., Non-Catalytic deNO_x using activated ammonia generated by vacuum ultra violet. Transactions of the JSME (in Japanese) , Vol. 82, No. 801 (2013) , pp. 791-795.
13. Takeishi, H., Hayashi, J. and Akamatsu, F., Fundamental Characteristics of the Laminar Premixed Flame of Ammonia Fuel, Journal of the Combustion Society of Japan, Vol. 58, No. 185 (2016) , pp. 160-166.
14. Mizutani, Y., Combustion 3rd, (2021) . pp.217-218.
15. 笠岡成光, 笠岡英司, 長広盛彦, 川上喜好, 無触媒下における酸化窒素のアンモニアによる還元反応およびアンモニアの酸素による酸化反応, 日本化学会誌, Vol. 1979, No. 1 (1979) , pp. 138-144.
16. Kobayashi, H., Hayakawa, A., Kunkuma, K. D., Somarathne, A. and Ekenechukwu C. O., Science and technology of ammonia combustion, Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 37, Issue 1 (2019) , pp. 109-133.

第5章 結論

近年、世界人口の増加や新興国の工業化などを背景に化石燃料の消費量が増加したことによって、二酸化炭素 (CO₂) の排出量が増加している。CO₂ は地球温暖化の主な原因物質とされ、国際的な排出削減に向けた取り組みが行われている。2018年に開催された第24回気候変動枠組条約締約国会議 (COP24)において取りまとめられたコペンハーゲン合意では、先進国に対して温室効果ガスの排出削減を求めていた。そのために、再生可能エネルギー導入の推進が温室効果ガス削減と一次エネルギーの自給率向上という日本が抱える大きな2つの課題への解になり得る。また、再生可能エネルギー固定価格買取制度が2012年7月に創設され、太陽光、風力、中小水力、地熱およびバイオマスを用いて発電された電気を国が定める固定価格で一定の期間電気事業者が調達することが義務づけられた。このような情勢の中で、ごみ発電は、再生可能エネルギーの中でも比較的安定した電力を供給可能であることから、地域分散型のエネルギー供給源としての役割が期待されており、環境に対する負荷の少ない設備の運用や開発が求められている。都市部における代表的な廃棄物は都市ごみであり、環境負荷の少ない都市ごみの燃焼方式に関して数多くの研究が行われてきた。

ストーカ式焼却炉は代表的な都市ごみ燃焼炉の一つであり、焼却炉出口において、都市ごみに含まれる Fuel N 源由来の窒素酸化物 (NO_x) の排出量を低減することが重要な開発要求となっている。ストーカ式焼却炉では、燃料を完全燃焼させるために必要な量の酸化剤を二箇所に分けて供給する“二段燃焼”と呼ばれる手法が、低 NO_x 化のために有効であることが知られている。都市ごみのストーカ式焼却炉の一次燃焼領域では、酸化剤が不足した状態での燃焼により、二酸化炭素や水蒸気などによって希釈された高温の多成分燃料ガスが生成され、その燃料ガス中には、都市ごみに含まれるタンパク質などの熱分解により Fuel N 源が含まれる。一次燃焼領域の後段において二次酸化剤が吹き込まれることで二次燃焼領域が形成される。火炎が二次酸化剤の吹き込み用ノズルに付着した場合には、通常の拡散火炎とは燃料と酸化剤の配置が逆転した“逆拡散火炎”が、火炎がノズルから浮き上がった場合には、MILD combustion 状態の燃焼場が形成されることが想定される。しかしながら、その二次燃焼領域の詳細構造や NO_x 生成特性は明らかにされていない。

そこで本研究では、ストーカ式都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域を模擬することができる実験装置を構築し、光学計測を適用して燃焼場の詳細構造を観察するとともに、アンモニア添加の有無が NO_x 生成特性に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。R 型熱電対を用いた燃焼場の温度分布計測に加えて、非接触の光学計測法である OH 平面レーザー誘起蛍光 (OH-Planar Laser Induced Fluorescence; PLIF) 法と NO-PLIF 法により火炎断面の OH と NO の濃度分布を計測した。

以下に本論文で得られた知見を示す。

- (1) 燃料組成および酸化剤流量を一定とした状態で, ノズルに付着した逆拡散火炎と MILD combustion 状態の火炎を選択的に形成することが可能である。
- (2) 模擬燃料ガス中の Fuel N 源としてのアンモニアの添加の有無に関わらず, MILD combustion 状態の火炎では, 逆拡散火炎と比較して半径方向に均一な温度分布を持ち, 温度の最大値が低い。
- (3) 模擬燃料ガス中の Fuel N 源としてのアンモニアの添加の有無に関わらず, 逆拡散火炎では, 中心軸の近傍に存在する燃焼反応領域の外側に NO 生成領域が存在し, 特に火炎帶より半径方向外側の領域において NO 濃度の高い領域が存在する。 MILD combustion 状態の火炎では, 燃焼器内全域において燃焼反応領域, NO 生成領域が広く分布する。
- (4) 燃料模擬ガス中に実都市ごみ焼却炉と同条件となるようにアンモニアを 1000 ppm 添加した場合には, MILD Combustion 状態の火炎と逆拡散火炎で, 煙道における NOx 生成量の大小関係が, 模擬燃料ガス中にアンモニアを添加しない場合のそれと逆転する。これは, アンモニアを添加した場合には, MILD combustion 状態の火炎では, 逆拡散火炎と比較して空間的に広い燃焼反応領域を有するため, 生成過程の温度依存性が低い Fuel NOx の生成量が多くなるためである。アンモニアを添加しない場合には, MILD combustion 状態の火炎では, 逆拡散火炎と比較して最高温度が低いため, 生成過程の温度依存性が高い Thermal NOx の生成量が少なくなるためである。

本研究では, ストーカ式焼却炉の二次燃焼領域で形成されることが可能な火炎形態が NOx 排出特性に与える影響について詳細に考察を加えた。本研究で得られた結果により, 本研究で想定した都市ごみ焼却炉の二次燃焼領域のように, Fuel N 源を含む高温の希釈された多成分燃料の場合には, 既往研究において示されている MILD combustion による NOx の排出量低減効果は現れず, MILD combustion により燃焼反応領域が広くなることで, NOx の生成量が増加する条件が存在することが明らかとなつた。

研究業績

学術論文

- [1] 田畠, 中塚記章, 堀司, 林潤, 赤松史光, 都市ごみ焼却炉一次燃焼ガスに対する MILD combustion 状態の火炎の NOx 生成特性に関する研究, 日本機械学会論文集, No.21-00130, DOI:10.1299/transjsme.21-00130.
- [2] 田畠, 中塚記章, 堀司, 林潤, 赤松史光, NO-LIF 法を用いた都市ごみ焼却炉一次燃焼ガスに対する MILD Combustion 状態の燃焼場における NO 生成機構に関する研究, 日本機械学会論文集, No.22-00068, DOI:10.1299/transjsme.22-00068

国際学会発表

- [1] Shuo TIAN, Noriaki NAKATSUKA, Tsukasa HORI, Jun HAYASHI, and Fumiteru AKAMATSU, NOx formation characteristics in primary combustion gas in waste incinerator, 1109, Extended Abstracts of the Second Asian Conference on Thermal Sciences, 2nd ACTS October 3-7, 2021.

国内学会発表

- [1] 田畠, 中塚記章, 堀司, 赤松史光, LIF 法を用いた平面火炎中の NO 濃度分布計測, 日本機械学会関西支部第 94 期定時総会講演会, 199, 滋賀, 2019 年 3 月 12 日.
- [2] 田畠, 中塚記章, 堀司, 林潤, 赤松史光, 木質バイオマスガス化ガスに対する MILD Combustion 状態の火炎の NOx 生成特性, 第 58 回燃焼シンポジウム, (2020).
- [3] 田畠, 中塚記章, 堀司, 林潤, 赤松史光, 廃棄物焼却炉の熱分解ガス中に含まれるアンモニアが NOx 生成に及ぼす影響, 第 60 回燃焼シンポジウム, (2022).

謝 辞

本研究は、大阪大学大学院工学研究科 機械工学専攻 熱流動態学系 燃焼工学領域 教授 赤松史光 先生、講師 堀 司 先生、特任研究員 中塚記章 先生及び京都大学 エネルギー科学研究所 エネルギー変換科学専攻 エネルギー変換システム学講座 教授 林 潤 先生のご指導のもとで行なった研究成果をまとめたものです。

本論文をまとめるにあたり、丁寧なご校閲とご指導を賜りました本工学研究科 教授 芝原正彦 先生、教授 津島将司 先生に厚く御礼を申し上げます。

本講座 教授 赤松史光 先生には、研究内容に関する有用な指摘のほかに、研究者としての考え方など大切なことを学びました。ここに心からの感謝を示します。

本講座 講師 堀 司 先生、特任研究員 中塚記章 先生、京都大学 エネルギー科学研究所 エネルギー変換科学専攻 エネルギー変換システム学講座 教授 林 潤 先生には、研究の方針、光学計測の構築、学術論文の執筆等で、多くの助言を頂きました。ここに記して深く感謝いたします。

燃焼工学研究室の学生の皆様には感謝いたします。皆様のおかげで厳しい研究生活も楽しく過ごすことができ、乗り越えることができました。

特任事務職員 山田恵美 様には事務手続き等の研究活動に関するサポートしていただきました。ここに記して深く感謝いたします。

最後に私の長い留学生活を支え、見守ってくれた実家の父 田 興壯、母 郝 淑慧、長い留学生活を共にし、嬉しいことも悲しいことも乗り越えてきた妻 王 相宜、および、家族に笑顔と癒しを沢山くれる愛犬のドビーとバンバンに心から感謝の意を表します。

田 碩