

令和元年6月6日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06125

研究課題名(和文) 微粉炭の物理的および化学的構造に基づく混相乱流素反応モデリング

研究課題名(英文) Turbulent multiphase elementary reaction modeling of pulverized coal based on physical and chemical structures

研究代表者

渡邊 裕章 (Watanabe, Hiroaki)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：60371598

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：微粉炭粒子の運動を模擬可能な非球形粒子運動モデルを開発し、これを組み込んだ数値計算によりモデルの妥当性を実験との比較から検証するとともに、粒子径や形状に依存して乱流中に特徴的な粒子分散構造が形成されることを明らかにした。また、ピリジン、ピロール、および4級アミン等の窒素化合物を含む石炭揮発分の二次的気相分解挙動を詳細化学反応機構を用いた素反応解析に基づいて明らかにするとともに、数値解析に適用可能な簡略化反応機構を構築した。さらに、小型噴流微粉炭火炎を対象に簡略化反応機構を用いたLESを実施し、実験との比較によりその有効性を確認するとともに、火炎構造の詳細を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微粉炭粒子の燃焼は、非球形微粒子の乱流中分散、粒子加熱による窒素化合物を含む揮発分の放出、揮発分の気相中の着火と燃え広がり、および固気燃焼等、極めて複雑な現象を含んでいる。本研究では、これらの現象について数値解析において使用可能なモデル化を図るとともに、実験との比較により、その妥当性の検証を行った。特に、非球形粒子の運動モデルや窒素化合物を含む揮発分の簡略化反応機構について、詳細な物理的、または化学的挙動に基づく物理モデルを初めて提案し、その有効性を確認した。これらの成果により、今後、微粉炭燃焼数値解析のより一層の精度向上を期待することができる。

研究成果の概要(英文)：Non-spherical particle motion model was developed to simulate the motion of pulverized coal particle and the model was validated by comparing with the experiment. It was also found that the ring-like structure of the particle dispersion in the turbulent flow was formed by the dependence of the particle size and the shape.

In addition, the behavior of the secondary decomposition of the volatile matter of coal including pyridic-N, pyrrolic-N and quaternary-N were clarified by the elementary reaction analysis with the detailed chemistry and the simplified mechanism was generated by extracting the major species and reactions.

Moreover, the numerical simulation with the simplified mechanism on the laboratory-scale coaxial jet burner was performed to validate the model and to clarify the detailed structure of the coal flame.

研究分野：機械工学，熱工学，燃焼工学

キーワード：混相流 乱流 燃焼 非球形粒子 着火 窒素化合物 直接数値計算 ラージ・エディ・シミュレーション

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

微粉炭燃焼ボイラや石炭ガス化炉は、エネルギー・化学プラント多く用いられており、それら機器特性の数値予測は長年の研究対象である。既存の数値解析は、計算負荷低減のため、レイノルズ平均ナビエ・ストークス (RANS) 法がベースであり、種々の数値モデルには物理的な意味が曖昧な調整パラメータが多く、汎用性が低い。一方、計算機性能の飛躍的向上により、極めて複雑な混相乱流燃焼の高精度な数値予測への期待から、現象の解明やモデル化に関する研究も増えてきている。申請者らは、噴霧火炎の実験と直接数値計算 (DNS) を行い、噴霧の群燃焼、ラジカルや炭化水素およびすすの生成挙動を解明するとともに、そこで開発した乱流燃焼モデルを実規模燃焼器のラージ・エディ・シミュレーション (LES) に適用してきた。これらの研究は、数百の化学種と千を超える素反応式を考慮する高精度な LES を実現するものであるが、未だその対象は液滴蒸発とガス燃焼が支配する噴霧燃焼に限定されており、物理的・化学的構造が複雑な微粉炭粒子の熱分解に伴う揮発分放出や多様な揮発成分の二次気相反応を有する微粉炭の反応場の研究例は限られる。

申請者らは、微粉炭旋回火炎に対して LES を適用し、固体炭素分の燃焼特性に加え NO_x 生成特性についても実験値と定性的な一致を見ている。しかしながら、これらの数値解析は噴霧燃焼 LES 同様、球形粒子の運動方程式を用いるとともに、総括反応式による反応計算を行っており、微粉炭の反応場に特有の物理現象について考慮されているわけではない。また、小型噴流微粉炭火炎を対象に、Mie 散乱による粒子分散、LIF による OH ラジカルや多環芳香族炭化水素 (PAH)、および LII によるすす濃度の同時計測を実現し、微粉炭火炎の詳細な構造を実験的に解明してきたが、これを再現する数値モデルは存在しない。レーザー計測や DNS による乱流構造と微粉炭火炎構造の関係の解明や素反応のモデル化、計算負荷低減に関する研究は端緒に終わったばかりであり、その多くは未解明であり、妥当性の検証が十分でないため、これらの物理的・化学的な多くの素過程を考慮可能な LES の実現に至っていない。

2. 研究の目的

基礎実験や数値解析により、乱流中の粒子分散挙動、粒子から放出されるタールや窒素分を含む揮発ガスの放出、周囲の酸化剤との混合、着火から燃え広がりに至る素過程を明らかにするとともに、高精度数値モデルの開発を行う。本研究は、微粉炭燃焼・石炭ガス化技術の高効率化・クリーン化に活用可能であり、極めて実施価値が高いと考えられる。

3. 研究の方法

(1) 微粉炭粒子の乱流中の分散挙動の解明とモデル化

非球形粒子の振動・回転運動を、6 自由度運動 DNS の計算結果に基づいて確率密度関数による非定常抗力式としてモデル化を図る。また、これを質点近似による一様等方性乱流場、および噴流微粉炭火炎の LES により数値モデルの検証を行う。さらに、非球形微粉炭粒子の着火挙動について、6 自由度運動 DNS により明らかにする。

(2) 石炭化学構造に基づく熱分解モデルの構築

石炭の化学構造を多環芳香族炭化水素 (Polycyclic Aromatic Hydrocarbon, PAH) モノマーと官能基から構成されるベータ構造として素反応式を構築した拡張 Chemical Percolation Devolatilization (CPD) モデルを数値解析コードに導入する。気相反応についても、PAH の重合・分解反応を考慮する詳細化学反応機構を導入するとともに、併せてモーメント法によるすす生成モデルとのカップリングを図り、タールの放出から重合・分解反応に至る一連の微粉炭粒子の特性を解明する。

(3) 大規模 LES に向けた簡略化素反応モデルの開発

実機規模の大規模 LES のため、詳細化学反応機構に基づく簡略化反応機構を構築する。また、ピリジン、ピロール、および 4 級アミン等の窒素化合物の気相反応を考慮し、NO_x 生成計算のための簡略化反応機構へと拡張する。さらに、小型噴流微粉炭火炎実験との比較により妥当性を検証する。また、揮発分放出からタール生成、すす化に至る複雑な火炎構造について、簡略化反応機構による LES により明らかにする。

4. 研究成果

(1) 微粉炭粒子の乱流中の分散挙動の解明とモデル化

1. 非球形粒子の 6 自由度運動モデルの開発

非球形粒子の気流中における回転や振動の影響をモデル化するにあたり、まず単一粒子の 6 自由度運動を DNS により分析し、その運動特性を把握した。DNS には Arbitrary Lagrangian and Eulerian (ALE) 法を用いることで、粒子周りに作成した解析格子が流体速度と相対速度をもって移動できるようにした。まず、ALE 法の DNS コードの検証のため、球の抗力係数の粒子 Re 数依存性が既存の実験値や種々提案されている相関式との一致することを確認した。その上で、X 線 CT スキャナで取得した石炭粒子形状に基づく非球形粒子、ならびにこれと等価体積球、等価体積楕円体、等価表面積球、等価表面積楕円体、および同真球度楕円体の粒子周り格子を作成した。均一流れ気流中の 6 自由度運動計算をそれぞれの粒子条件に対して行い、等価体積楕円

体が非球形粒子の挙動を良く模擬することを見出した。等価体積楕円体の抗力係数の変動についての PDF に基づき、次式のような定式化を行った (図 1)。

$$\log_{10} C_D = \log_{10} C_{D_{min}} + (\log_{10} C_{D_{max}} - \log_{10} C_{D_{min}}) * \frac{\sin(2\pi\theta) + 1}{2} \quad (1)$$

式(1)を用いた質点近似を用いる一様等方性乱流中の粒子分散計算を行ったところ、楕円体の分散挙動は真球度や粒子ストークス数の影響により、球の分散挙動とは大きく異なることを見出した (図 2)。

2. 非球形粒子運動モデルによる粒子分散 LES

乱流噴流中を分散する非球形多分散の微粉炭粒子と球形単分散のポリマー粒子の挙動を PIV で実験的に明らかにするとともに、前述の非球形運動モデルを用いる LES により、数値解析の妥当性について比較検証を行った。図 3 に、微粉炭粒子とポリマー粒子の瞬間分布の実験値と解析結果との比較を示す。図より、微粉炭粒子に対応する多分散楕円体、およびポリマー粒子に対応する単分散球形粒子の分散挙動が実験と良く一致することから、モデルの妥当性が確認できる。また、多分散と単分散、球形と非球形の違いにより、粒子濃度のピーク値の出現位置が変化する等、それぞれの特性粒子径の相違により見かけの粒子ストークス数に違いが生じ、分散挙動が異なることが示唆された。さらに、次式の RDF (Radial distribution function) 値の分析を行うことにより、例えば上流では分散粒子間距離の特性長さが一致している単分散球形粒子と単分散楕円体は、下流に行くに従い特性長さに差異が生じる等、粒子形状が特性長さに及ぼす影響を明らかにした。

$$g(r_i) = \frac{N_P(i)/\Delta V_i}{N_p/V} \quad (2)$$

3. 気流中 6 自由度運動単一粒子の着火挙動の解明

前述の ALE 法を用いる単一粒子運動の DNS により、単一粒子の着火挙動について検討を行った。DNS は、下方より流入する高温空気の一様流中に水平方向右方へ向けて粒子を射出し、着火の過程を観察する実験を対象に行った。粒子の射出 3.95ms 後、粒子の左上方に形成されるウエーク領域内において着火し、上流に向かって粒子を取り囲むように火炎伝播していき、やがて粒子を取り囲む球状の火炎形状に変化していくことがわかる。Flame Index 分析によると、ウエーク領域の予混合濃度分布と拡散的濃度分布の境界付近から着火した後、粒子の周囲を上流側へ向かって予混合燃焼の火炎伝播が起こっていることがわかる。そして最終的には粒子の周囲を取り囲む拡散火炎が形成される。本解析により、これらの単一粒子の着火挙動の詳細を明らかにすることができた (図 4, 5)。

(2) 石炭化学構造に基づく熱分解モデルの構築

報告者らが開発を進めてきた石炭の化学構造を PAH モノマーと官能基から構成されるベータ構造として固相内素反応モデルを構築した拡張 CPD モデルを数値解析コードに導入した。これと PAH を含む揮発分の酸化反応に関する詳細化学反応機構をベースにした簡略化反応機構をカップリングし、反応系を素反応モデルにより構築した。また、すす生成計算について、核生成、凝集、表面成長、および酸化反応の各生成項をもつ 2 方程式モデルを採用し、気相反応モデルとのカップリングを行った。これらにより、石炭ガス化炉内のラジカル種を含む詳細な反応特性やすす生成特性を明らかにすることが可能となった。解析条件は、酸素比がおよそ 0.52~0.55 の条件で、ガス化剤組成 N₂/O₂/CO₂ が Case 1:75/25/0, Case 2:60/25, 15, Case 3:50/25/25 である。図 6 に中心軸上温度分布の実験との比較を示す。定性的に良い一致をみていることがわかる。図 7 にすすの体積分率分布を示す。本解析により、ガス化剤中 CO₂ 濃度が増加するに従い、炉内のすす濃度が低下する傾向にあることがわかった。

(3) 大規模 LES に向けた簡略化素反応モデルの開発

1. 簡略化反応機構を用いた LES

PAH を含む 257 化学種 1107 素反応からなる詳細化学反応機構を、Direct Relation Graph with Error Propagation (DRGEP) 法と Computational Singular Perturbation (CSP) 法を組み合わせた簡略化手法によって簡略化を施し、64 化学種 204 素反応の簡略化反応機構を構築した。この簡略化反応機構を用いた同軸噴流微粉炭火炎の LES を実施することで、Mie 散乱-PAH LIF-LII の 3 種の同時計測データにより明らかとなってきた微粉炭火炎内の微粉炭粒子、すす前駆体、およびすす粒子の複雑な構造を再現することに成功した (図 8)。

2. 石炭中窒素化合物の熱分解・気相反応の総括反応モデル構築

前述の 257 化学種 1107 素反応からなる詳細化学反応機構と、ピリジンおよびピロールの熱分解・酸化反応に関する詳細化学反応機構を統合し、石炭中窒素化合物の熱分解過程における挙動モデルを構築した。また、この統合反応機構を用いた完全混合反応器モデルによる素反応解析データを基に総括反応モデルの反応速度パラメータを決定した。これら検討により、12 化学種 6 総括反応からなる総括反応モデルを得た。統合反応機構を用いる素反応解析の結果との比較から、構築された総括反応モデルは前者の定性的な傾向を捉えられることを確認した (図 9)。

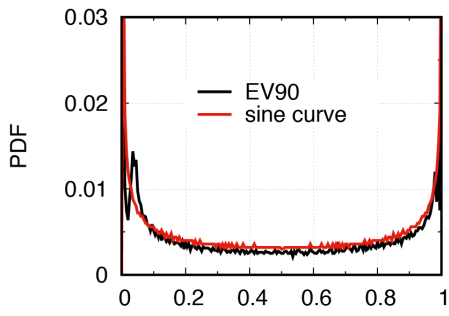


図1 等価体積楕円体の抗力係数のPDF (最大値で正規化)

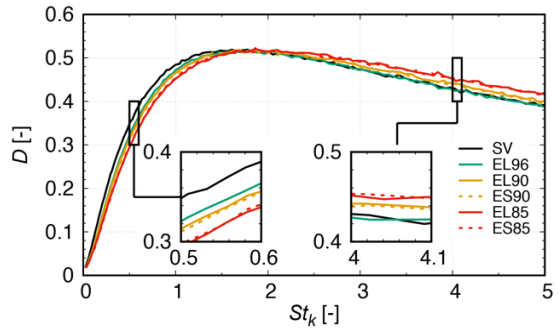


図2 D 値の比較 (SV:球, EL96:楕円体大真球度 0.96, EL90:楕円体大真球度 0.90, ES90:楕円体小真球度 0.90, EL85:楕円体小真球度 0.85, ES85:楕円体小真球度 0.85)

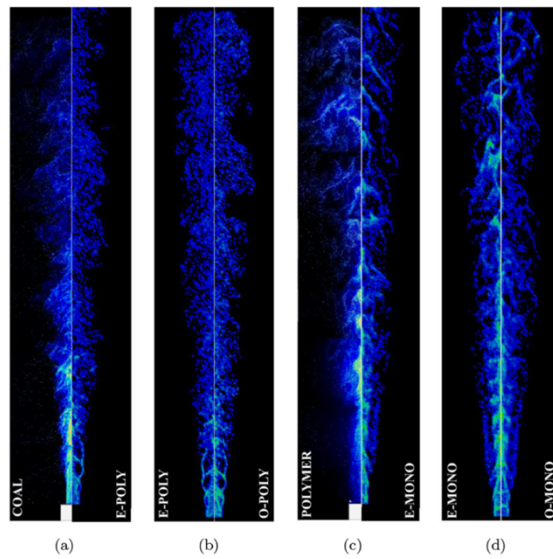


図3 粒子瞬間分布 (a)左:石炭粒子実験,右:多分散球解析, (b)左:多分散球解析,右:多分散楕円体解析, (c)左:ポリマー粒子実験,右:単分散球解析, (d)左:単分散球解析,右:単分散楕円体解析

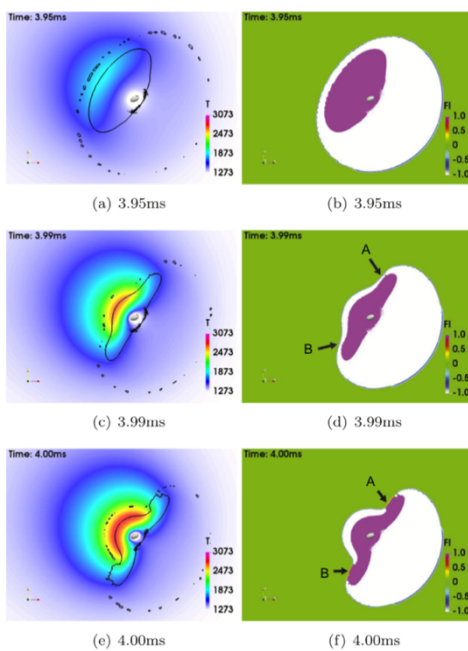


図4 粒子周りの温度分布およびFlame Index 分布 (3.95 ms - 4.00 ms)

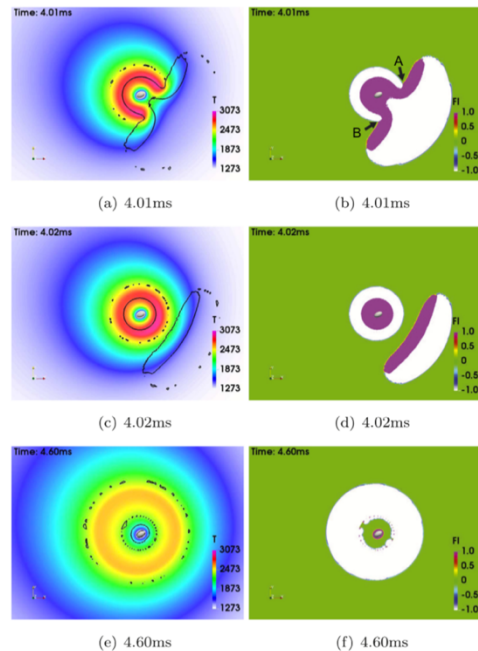


図5 粒子周りの温度分布およびFlame Index 分布 (4.01 ms - 4.60 ms)

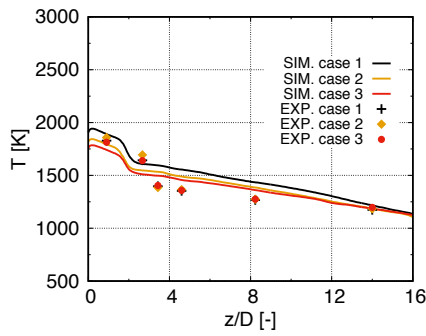


図6 中心軸上温度分布の実験との比較

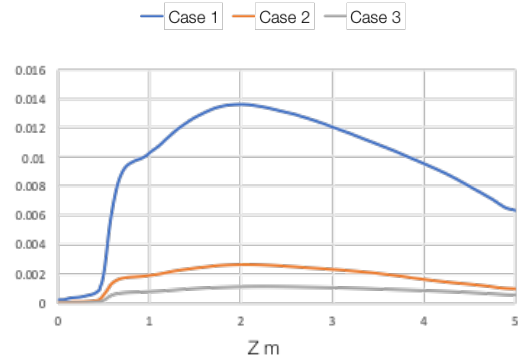


図7 すず体積分率分布

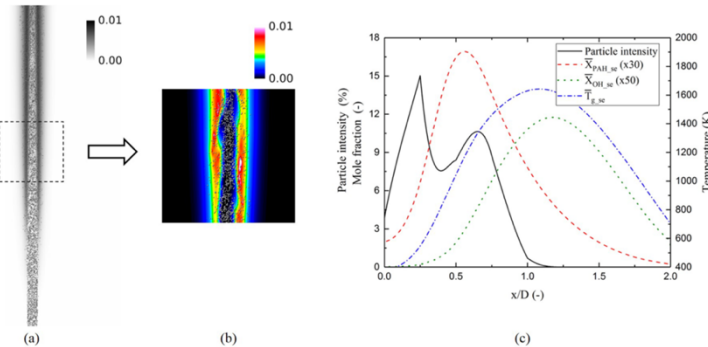


図8 同軸噴流微粉炭火炎の数値解析 (a) 粒子と PAH 濃度の瞬間分布, (b) (a) の拡大図, (c) ガス温度, PAH 濃度, OH 濃度および粒子濃度の半径方向分布

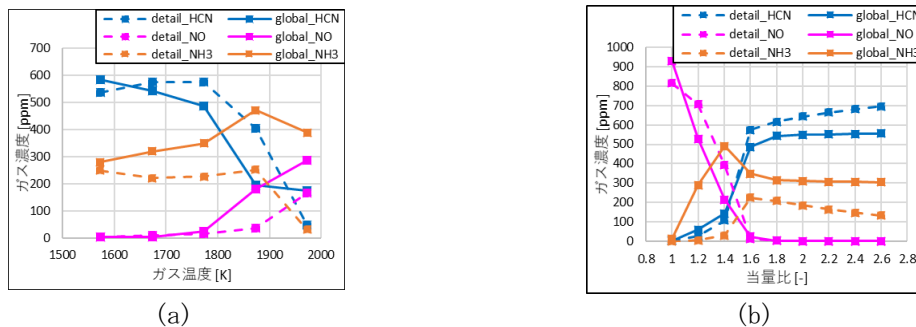


図9 詳細化学反応機構と総括反応モデルの比較 (a) ガス温度依存性, (b) 当量比依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 7 件)

- (1) Wei Zhang, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Direct numerical simulation of ignition of a single particle freely moving in a uniform flow, *Advanced Powder Technology*, 28 (2017), 2893-2902.
- (2) Seongyool Ahn, Kenji Tanno, Hiroaki Watanabe, Numerical analysis of particle dispersion and combustion characteristics on a piloted coaxial pulverized coal jet flame, *Applied Thermal Engineering*, 124 (2017), 1194-1202.
- (3) Wei Zhang, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Numerical investigation of effects of particle shape on dispersion in an isotropic turbulent flow, *Advanced Powder Technology*, 29 (2018), 2048-2060.
- (4) Wei Zhang, Kazuki Tainaka, Seongyoo Ahn, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Experimental and numerical investigation of effects of particle shape and size distribution on particles' dispersion in a coaxial jet flow, *Advanced Powder Technology*, 29 (2018), 2322-2330.
- (5) Seongyool Ahn, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Effect of devolatilization model on flame structure of pulverized coal combustion in a jet-burner system, *Journal of Mechanical Science and Technology*, 33 (2019), 1973-1979.
- (6) Seongyool Ahn, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Numerical investigation on the detailed structure of a coaxial coal jet flame using large-eddy simulation with

- elementary reactions, Energy and Fuels, 33 (2019), 4621-4631.
- (7) Seongyool Ahn, Kazuki Tainaka, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Experimental and numerical analysis of turbulent pulverized coal flame in a coaxial burner, Energy, 179 (2019), 727-735.

[学会発表] (計 9 件)

- (1) Wei Zhang, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Direct numerical simulation of ignition of a single particle freely moving in a uniform flow, WIPP the 36th Symposium (International) on Combustion, 2016.7.31-8.5, Seoul, Korea.
- (2) Seongyool Ahn, Hiroaki Watanabe, Kenji Tanno, Numerical analysis of formation and decomposition behavior of PAH species in a pulverized coal jet flame with an elementary kinetic mechanism, WIPP the 36th Symposium (International) on Combustion, 2016.7.31-8.5, Seoul, Korea.
- (3) 渡邊裕章, チョウイ, 泰中一樹, Seongyool Ahn, 北川敏明, 粒子形状が気流中粒子分散挙動に及ぼす影響, 粉体工学会 2017 年春期研究発表会, 2017.5, 東京.
- (4) チョウイ, 渡邊裕章, 北川敏明, 乱流中粒子分散に関する考察, 粉体工学会第 53 回夏期シンポジウム, 2017.8, 大阪.
- (5) Seongyool Ahn, Kenji Tanno, Hiroaki Watanabe, An investigation of particle dispersion and combustion characteristics on pulverized coal jet flame using LES, The 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference (FFEC9), 2017.10.27-30, Okinawa, Japan.
- (6) Seongyool Ahn, Gyungmin Choi, Hiroaki Watanabe, Numerical analysis on an effect of turbulent intensity for a dual swirl pulverized coal combustion flame, The 55th KOSCO Symposium, 2017.11.9-11, Yeosu, Korea.
- (7) Seongyool Ahn, Hiroaki Watanabe, Toshiaki Kitagawa, Large-eddy simulation of a coal jet flame with a skeletal mechanism, 第 46 回可視化情報シンポジウム, 2018.9.14-16, 東京.
- (8) Seongyool Ahn, Panlong Yu, Hiroaki Watanabe, Ryoichi Kurose, Toshiaki Kitagawa, Flamelet LES for two-phase combustion in a pilot scale turbulent pulverized coal combustion furnace, 第 32 回数値流体力学シンポジウム, 2018.12.11-13, 東京.
- (9) Seongyool Ahn, Kenji Tanno, Hiroaki Watanabe, Numerical investigation of gasification characteristics on an oxy-fuel gasifier, International Conference on Polygeneration, 2019.5.15-17, Fukuoka.

[その他]

ホームページ等

反応性ガス力学研究室

<http://www.mech.kyushu-u.ac.jp/~rgd/index-j.html>

九州大学研究者情報

<http://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K005584/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：則永行庸

ローマ字氏名：Koyo Norinaga

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：大学院工学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：00312679

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：泰中一樹

ローマ字氏名：Kazuki Tainaka

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。