

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18K03980

研究課題名(和文)連鎖反応機構の系統的縮約と燃焼制御

研究課題名(英文)Systematic contraction of chain reaction mechanisms and combustion control

研究代表者

三好 明 (Miyoshi, Akira)

広島大学・先進理工系科学研究科(工)・教授

研究者番号：60229903

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、燃焼の連鎖反応機構の系統的な縮約の手法を検討することで、燃焼制御のモデリング研究に資することを目的としたものである。1～3年度は主に縮塊による化学種の削減を手作業で行うことでその効率と意義を検討した。まず比較的類似した中間生成物の多いアルカンに関する縮約の手法を検討し、続いてトルエンに関する縮約を試みたが、中間生成物が少ないために縮塊の効果は小さいことがわかった。4年度目はDRG法などの既存簡略化手法を縮塊とともに複数回用いることが効果を示すことを示した。最終年度は反応機構の自動生成に組み込まれる速度測ルールを簡潔にする手法を開発することでさらなる縮約の方向性を探索した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

燃焼の技術開発において、詳細反応機構を用いることは、モデリングに過大な計算機資源を必要とするだけでなく現実的な時間での計算を不可能にする場合も多い。本研究の目的は、燃焼連鎖反応機構の縮約によって、この計算機負荷を低減することであり、得られた成果は、計算機負荷を一定の割合で低減できるレベルのものである。残された課題は、この手法のさらなる汎用化にあると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this work, for the purpose of the combustion control, systematic reduction methods for the kinetic models has been investigated. During 1st to 3rd FY, manual lumping methods have been investigated firstly for alkanes and secondary for toluene for which the lumping was found to be inefficient due to the originally small number of intermediates. In the 4th FY, hybrid methods with DRG method etc. has been investigated. In the last FY, the automatic generation rate rules has been reinvestigated for further lumping.

研究分野：燃焼化学

キーワード：反応機構簡略化 ランピング 着火遅れ時間 層流火炎伝播速度 燃焼詳細反応機構 消炎限界火炎伸張

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

「連鎖反応機構の系統的縮約と燃焼制御」

1. 研究開始当初の背景

燃焼を始めとする気相反応はラジカル連鎖反応によって進行する。原子・分子レベルの素反応過程を正しく記述することで、H₂-O₂ 混合気体の爆発第二限界のような、一見、奇妙な現象が見事に説明されてきた。この成功以来、素過程から現象を正しく記述することは、奇妙や制御不能に見える燃焼現象を、理解し制御するために不可欠の基盤科学であると考えられてきた。少数の素過程で記述される水素の燃焼 (8 化学種・20 反応素過程) であれば、当時でも定常状態近似などにより連立微分方程式の数学的・直観的な理解が可能であった。しかしながら、実用燃料は非常に多くの種類の炭化水素の混合物であり、その酸化過程で出現する中間体の数も膨大である。炭素数 4 (C₄) の n-ブタン単成分の燃焼反応機構は約 100 の化学種と数百の素過程を含み、C₁₆ の n-セタンの燃焼機構は約 4000 の化学種と 10000 を超える素過程から成る。さらにガソリンは数百、軽油は千以上の炭化水素の混合物であるため、反応機構の構築そのものも困難を伴い、詳細反応機構の数値計算による燃焼モデリングは比較的小さな炭化水素の少数の混合物に限定されている。

2. 研究の目的

このような反応機構を手作業で構築することには限界があるため、研究代表者は、さまざまな炭化水素の反応機構の構築を経験則に基づいて自動化する方法論を確立し、ソフトウェアに実装してきた。さらに、反応モデリングの計算負荷を減らす方法の一つとして、実用燃料を比較的少数の代表成分の混合物 (サロゲート混合物) で模擬する試みを行ってきた。これにより化学種数 1800 程度の反応機構でガソリンの主要な燃焼特性を模擬することが可能になっている。しかしこれでも 3 次元の数値流体力学 (CFD) 計算との連成は現実的ではない。多くの先行研究で指摘されているように、反応機構の簡略化は有効な方向の一つであると考えられる。

上述のように、計算負荷低減は重要な課題であるが、現代の燃焼技術開発におけるもう一つの困難は、たとえ数値計算が可能だとしても、反応機構がブラックボックスである限りは直観的に燃焼技術には直結しないことである。本研究は研究代表者の先行研究 (H₂₆-28 基盤研究(C)「化学反応の直観的理解に基づく燃焼技術開発基盤に構築」) を発展させることで、化学反応の物理・化学的理解と詳細反応機構の縮約 (簡略化) を同時に達成することをめざすものである。

3. 研究の方法

本研究では初年度から 3 年度目にかけては、手動の縮塊 (ランピング) 手法を適用することによる、簡略化の可能性を探索した。まず、比較的類似した化学種が多いと考えられるアルカンを対象にランピングを行い、続いて類似化学種が少ないトルエンについてのランピングを行うこととした。ランピングに用いる反応機構はあらかじめ DRG 法と DRGEP 法による簡略化を施したものをを用いた。

4 年度目は DRG 法などとランピングを複数回実行することによる効果を検討した。最終年度には、反応機構の自動生成に組み込まれる速度測ルールを簡潔にする手法を開発することでさらなる縮約の方向性を探索することとした。

4. 研究成果

初年度および 2 年度目は PRF (Primary Reference Fuel, オクタン価の一次標準燃料でイソオクタンと n-ヘプタンの混合物) の混合物を用いた。

表 1. 初期反応機構

	DRG		DRGEP	
	化学種数	反応式数	化学種数	反応式数
PRF0	163	585	137	474
PRF100	132	459	135	518
PRF50	186	625	229	816

初期反応機構の大きさと縮約後の反応機構の大きさを表 1 および表 2 に示す。

表 2. ランピングによる削減結果

	ランピング前			ランピング後	
	化学種数	反応式数		化学種数	反応式数
PRF0	137	474	→	109	413
PRF100	132	459	→	120	417
PRF50	186	625	→	148	522

3 年度目はトルエンの縮約を試みたが、類似した中間生成物が少なく、限定的な結果となった。

4 年度目は初期反応機構としてトルエンを含むガソリンサロゲート (TRF) を用いて簡略化の効果を、最適化手法を含めながら行った。結果を表 3 に示す。トルエンを含む反応機構であるため、許容誤差を小さくすると、簡略化の効果は小さかったが、最適化手法を併用することで、170 化学種程度までの簡略化が可能であった。これは表 2 で PRF50 について達成された簡略化とほぼ同じサイズの反応機構である。

表 3. TRF の簡略化結果

rel. tol. = 1%		rel. tol. = 3%		rel. tol. = 10% (n_{rxns})	
method	n_{spcs}	method	n_{spcs}	method	n_{spcs}
0:(original)	897 (2765)	0:(original)	897 (2765)	0:(original)	897 (2765)
1:DRGEP	537	1:DRGEP	467	1:DRGEP	428
2:DRG	525	2:DRG	441	2:DRG	408
3:lumping	525	3:lumping	441	3:lumping	408
4:DRGPFA	509	4:DRGPFA	300	4:DRGPFA	277
5:DRGEP+sens	501	5:DRGEP+sens	293	5:DRGEP+sens	239
6:DRG+sens	489	6:DRG+sens	264	6:DRG+sens	208
7:DRGPFA+sens	470 (1683)	7:DRGPFA+sens	246 (889)	7:DRGPFA+sens	186 (673)
				8:DRGEP+opt	179
				9:DRG+opt	178
				10:DRGPFA+opt	165 (619)

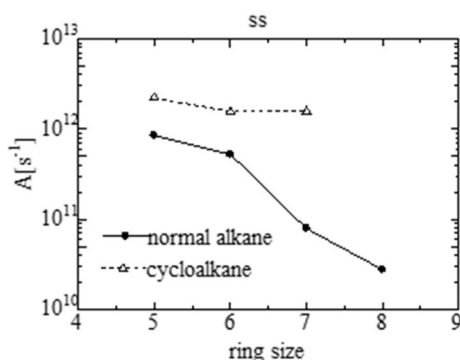


図 1. シクロアルカンの低温酸化反応の速度則の計算結果 (前指数因子)

最終年度は、さらなる簡略化のための反応速度則を簡潔にするための量子化学計算による検討を行った。図 1 には未検討であった、シクロアルカンの低温酸化反応過程の一つの速度則を検討した例を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 葛 晰遥, 三好 明, 大野 諒平, 原田 雄司,	4. 巻 52
2. 論文標題 NO2添加の低温酸化・着火遅れに与える影響についての化学反応論的研究(第2報)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 自動車技術会論文集	6. 最初と最後の頁 269-274
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11351/jsaeronbun.52.269	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 三好 明	4. 巻 51
2. 論文標題 H02 ラジカル生成抑制による自着火制御の可能性に関する検討	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 自動車技術会論文集	6. 最初と最後の頁 849 ~ 855
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11351/jsaeronbun.51.849	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Akira Miyoshi	4. 巻 2019-01
2. 論文標題 SI Combustion Characteristics of Cyclopentane - Detailed Kinetic Mechanism	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 SAE paper	6. 最初と最後の頁 2305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4271/2019-01-2305	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 三好 明	4. 巻 50
2. 論文標題 オクタン価向上剤が燃焼特性に与える影響の反応論的解析	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 自動車技術会論文集	6. 最初と最後の頁 1284-1287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11351/jsaeronbun.50.1284	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 三好 明
2. 発表標題 燃料の輸送係数と点火着火特性の関係
3. 学会等名 第59回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三好 明
2. 発表標題 フランの燃焼反応機構
3. 学会等名 第58回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 三好 明
2. 発表標題 SI燃焼への燃料添加剤の効果
3. 学会等名 第30回内燃機関シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三好 明
2. 発表標題 燃料の火炎伸張消炎特性とSI燃焼特性の関係について
3. 学会等名 第57回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三好明
2. 発表標題 環状炭化水素の燃焼特性に関する基礎的検討
3. 学会等名 第56回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 村田淳矢・三好明
2. 発表標題 プロバルギルラジカル誘導体からの芳香環形成過程の理論的検討
3. 学会等名 第56回燃焼シンポジウム
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関