

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17992

研究課題名(和文) 固体燃焼場における粒子状物質(PM)生成・酸化プロセスのモデリング

研究課題名(英文) Modeling

研究代表者

橋本 望 (Hashimoto, Nozomu)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：70392751

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：固体燃焼場の非定常シミュレーションを対象として、粒子から揮発分が放出され、揮発分からPM(すす)が生成される現象を再現できる高精度なモデルを開発した。タールを含む13の化学種を揮発分として仮定し、粒子の昇温速度に応じて揮発分の放出量および放出速度が変化する現象を再現できるモデルとした。開発したモデルを数値解析コードへ組み込み、4 kWの微粉炭燃焼場を対象としたラージ・エディ・シミュレーションを実施した。数値シミュレーションにより予測されたすす粒子濃度分布の傾向は、光学計測により取得したすす粒子の濃度分布の傾向と非常に良く一致し、開発したモデルの計算精度が高いことが検証された。

研究成果の概要(英文)：A model that can reproduce the phenomena of soot formation from the volatile matter evolved from solid particles for the unsteady numerical simulation of solid combustion field has been developed. 13 species including tar are postulated as volatile matter. The model can take into account the effect of particle heating rate on the amount of volatile matter and its evolution rate. The large eddy simulation of the 4 kW coal combustion field with the developed model was conducted. As a result, the tendency of the soot volume fraction distribution predicted by the numerical simulation was consistent with that obtained by the optical measurement. The high accuracy of the developed model was validated by the comparison.

研究分野：燃焼工学

キーワード：微粉炭燃焼 数値シミュレーション 揮発分 熱分解 すす 非定常解析 固体粒子

1. 研究開始当初の背景

燃焼場中における粒子状物質 (PM) の生成・酸化特性は、大気汚染防止の観点および適切な工業プロセス設計において非常に重要である。PMのうち、粒径が 2.5 μm 以下の小さな粒子は PM2.5 と呼ばれ、健康への悪影響が特に大きいと考えられており、その排出抑制は大きな課題である。PM2.5 の発生源は種々挙げられているが、燃焼場中で生成された多環芳香族炭化水素 (PAHs) 等が大気中で反応し、二次生成粒子となるもの、および、燃焼場中において PAHs の反応が進行してすす粒子となって排出されるものが大きな発生源として挙げられている。

燃焼場における PAHs およびすす粒子の生成に関する基礎的な研究は、長年にわたって数多くの研究者らによって研究が行われてきている。気相析出型のすす粒子は、ベンゼンやアセチレン等の分子量の小さい燃料成分から、すす粒子の前駆体である PAHs が生成され、さらに反応が進んですす粒子になると考えられている。このようなすす粒子生成の詳細な反応過程に関する研究は、エチレンバーナ等のガス燃料を使用したバーナを用いて行われているものが多い。実用的な燃焼場におけるすす粒子の研究としては、ディーゼルエンジンに関するものが数多く行われており、申請者らの研究グループも、噴霧火炎を対象として、レーザ計測手法を用いたすす粒子体積濃度計測や直接数値解析 (DNS) によるふく射とすす粒子生成特性に関する研究等を実施してきた。

これまで、ガス火炎および噴霧火炎を対象としたすす粒子生成の数値解析に関する研究は多数実施されている一方、固体燃料燃焼場を対象とした PAHs およびすす粒子生成に関する研究例は非常に少ない。固体燃料の中でも石炭は燃料成分中に芳香族を多量に含むため、その燃焼場では PAHs およびすす粒子が特に生成されやすいと推察される。

2. 研究の目的

本研究では、申請者らが実施してきた微粉炭粒子の揮発放出に関する新しいモデルの開発経験を最大限活用しながら、レーザ計測手法等を使用したこれまでの研究により取得してきた微粉炭燃焼場における PAHs やすす粒子の濃度分布等のデータを基に、PM2.5 の発生源となる PAHs およびすす粒子の生成・酸化モデルを開発する。開発したモデルの精度検証を行い、モデルの有効性を確認する。

3. 研究の方法

本研究では、固体燃焼場における多環芳香族炭化水素 (PAHs) およびすすの生成・酸化プロセスをモデル化し、数値解析コードに組み込む。すすの前駆物質である固体粒子から放出される揮発分は、すすの生成特性に大きな影響を及ぼすと考えられる。そこで、揮発

分放出モデルとして、タールを含む 13 の化学種を揮発分として仮定し、粒子の昇温速度に応じて揮発分の放出量および放出速度が変化する現象を再現できるモデルを開発する。更に、放出された揮発分のタール成分からすすが生成されるモデルを開発する。開発したモデルを組み込んだ数値解析コードを用いて、小型微粉炭ジェットバーナ (0.5 kg-coal/h) の燃焼場 (図 1) を対象とした数値解析を実施する。同バーナを対象として、申請者らの研究グループでは、Shadow Doppler particle anemometry (SDPA) や Laser Doppler velocimetry (LDV) を用いた粒子速度分布計測 (図 2), Laser Induced Incandescence (LII) を用いたすす粒子濃度分布計測等を実施してきた。数値解析結果と、これまでの研究により取得してきた粒子速度分布、および、すす粒子の濃度分布等の詳細な実験データと比較することにより、開発したモデルの精度検証を行う。

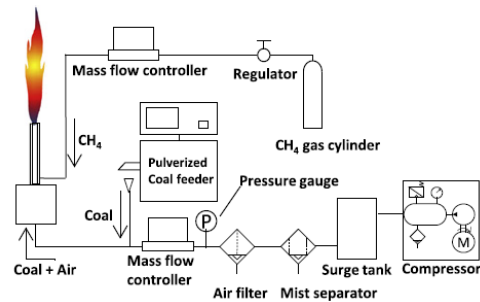


図 1 0.5 kg-coal/h 小型微粉炭ジェットバーナ

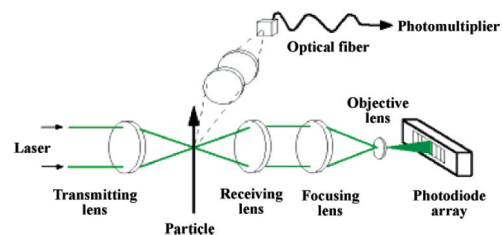


図 2 SDPA システム詳細

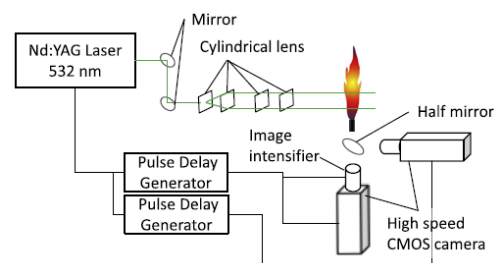


図 3 LII 計測システム詳細

#### 4. 研究成果

##### (1) TDP モデルの LES への適用

本研究では、微粉炭燃焼場を対象としたラージエディシミュレーション (LES) 用の揮発分放出モデルとして、タールを含む 13 の化学種を揮発分として仮定し、粒子の昇温速度に応じて揮発分の放出量および放出速度が変化する現象を再現できる Tabulated Devolatilization Process (TDP) モデルを開発した。TDP モデルでは、予め揮発分放出データベースを用意する。図 4 に示すように、揮発分データベースには、粒子の昇温速度とその昇温速度に対して適切な揮発分放出速度パラメータと粒子中の揮発分質量割合に

Data No.	Heating rate (K/s)	$A_v$ (1/s)	$E_v$ (J/mol)	$m_{volat}$ (-)
1	$1.50 \times 10^7$	$3.53 \times 10^6$	$4.95 \times 10^4$	0.545
2	$1.29 \times 10^7$	$2.32 \times 10^6$	$5.16 \times 10^4$	0.545
3	$1.08 \times 10^7$	$2.97 \times 10^6$	$5.12 \times 10^4$	0.553
4	$3.34 \times 10^6$	$7.42 \times 10^5$	$4.24 \times 10^4$	0.513
5	$2.72 \times 10^6$	$1.77 \times 10^5$	$2.01 \times 10^4$	0.500

図 4 揮発分放出データベースの例

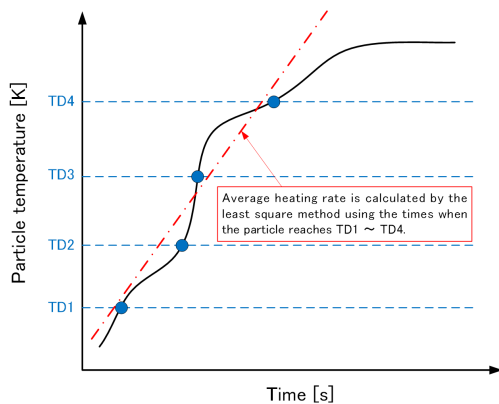


図 5 粒子昇温速度計算の概念

関する情報が格納されている。本研究では、FLASHCHAIN モデルによる微粉炭の揮発分放出挙動を再現できる PC Coal Lab を用いて作成した揮発分放出データベースを使用した。微粉炭燃焼場を対象とした LES を実行する際には、図 5 に示すように、ある 4 点の温度を設定し、粒子温度がそれぞれの温度に到達する時刻から、最小二乗法によって各粒子の昇温速度を求める。各初期粒子径毎にある粒子数に対して昇温速度の平均値を計算し、揮発分放出データベース中のデータの中から、計算された平均昇温速度に最も近い値のデータを、次のタイムステップから計算領域に新たに投入される粒子の揮発分放出パラメータおよび粒子中の揮発分質量割合を設定する。初期粒子径毎の平均粒子昇温速度の計算と揮発分放出パラメータおよび粒子中の揮発分質量割合の再設定は、シミュレーションの実施中に常に自動的に行われる。

図 6 に、本研究で用いた小型微粉炭ジェツ

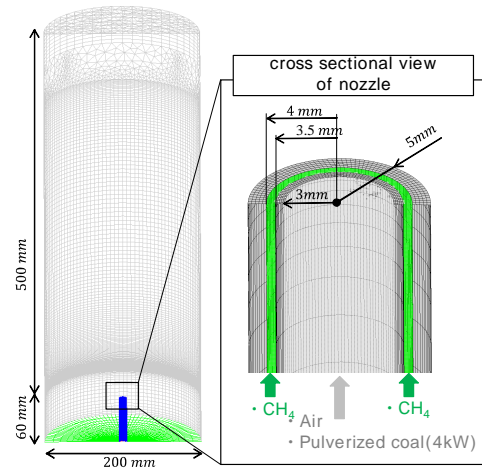


図 6 計算格子詳細

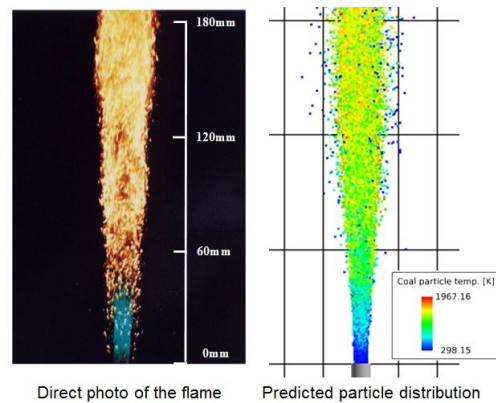


図 7 実験で取得した火炎の直接写真とシミュレーションで計算された微粉炭粒子分布の比較 (色は粒子温度を示す)

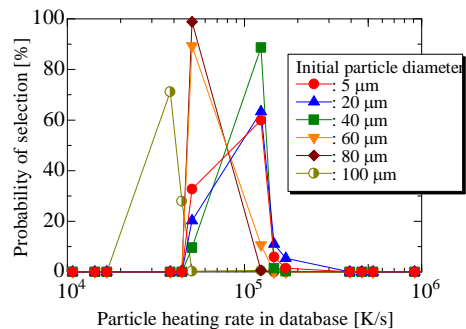


図 8 揮発分放出データベース中の粒子昇温速度が TDP モデルの計算により選択された頻度

トバーナ燃焼場数値シミュレーション用の計算格子を示す。バーナ中央から微粉炭と搬送用の空気が供給され、外側のスリットから保安用のメタンが供給される。計算セル数は約 200 万である。開発したモデルを用いて、この計算格子を対象に、微粉炭燃焼の LES を実施した。

図 7 に、実験で取得した火炎の直接写真と

シミュレーションで計算された微粉炭粒子分布の比較（色は粒子温度を示す）を示す。写真中の火炎の拡がりやシミュレーションで計算された粒子分布の拡がりの傾向は良く一致していることが分かる。

図8に、揮発分放出データベース中の粒子昇温速度がTDPモデルの計算により選択された頻度を示す。初期粒子径の大きな粒子に比べ、初期粒子径の小さな粒子に対して高い粒子昇温速度のデータが選択されていることが分かる。すなわち、初期粒子径の小さな粒子では、粒子中の揮発分質量割合が大きく、また、より高い放出速度で揮発分が放出される。

### (2) 粒子速度分布の比較

図9に、実験時に計測された粒子速度の半径方向分布とシミュレーションにより計算された粒子速度の半径方向分布の比較を示す。計算された粒子速度分布の傾向は計測された粒子速度分布の傾向と非常に良く一致しており、計算によって微粉炭粒子の挙動が

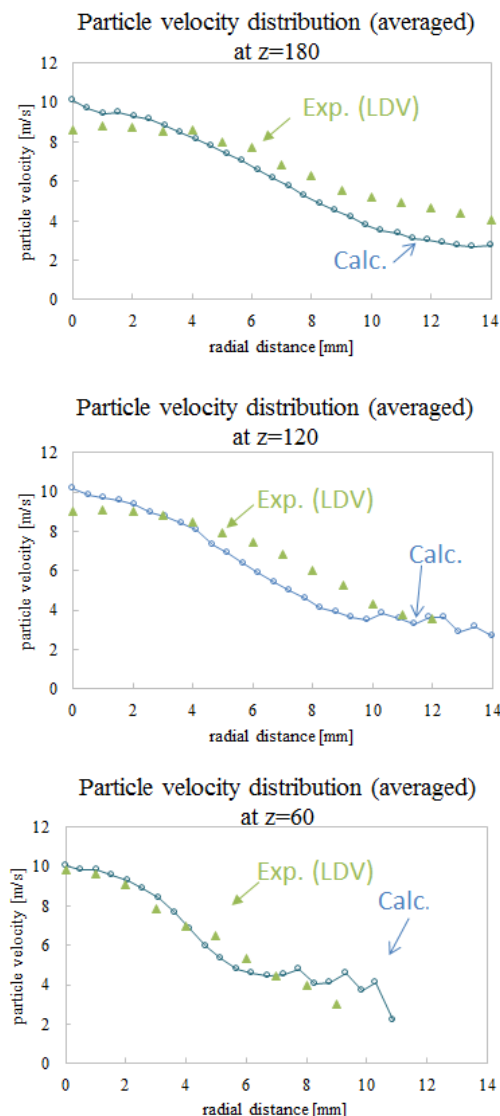


図9 微粉炭粒子速度分布の比較

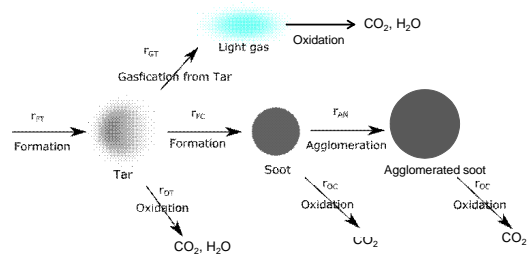


図10 すず生成・酸化モデルの概要

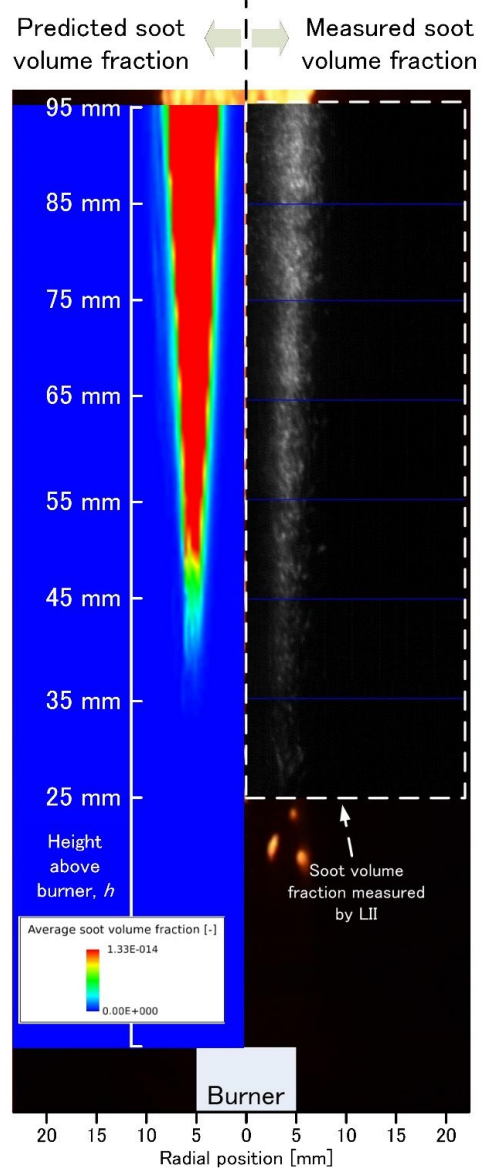


図10 すず粒子体積分率分布の比較。左側が数値シミュレーションによるすず体積分率分布予測結果、右側が実験時にLIIにより取得したすず体積分率分布の計測結果。

精度良く再現されていることが分かる。

### (3) すず生成・酸化モデル

本研究では、図10に示すように、微粉炭

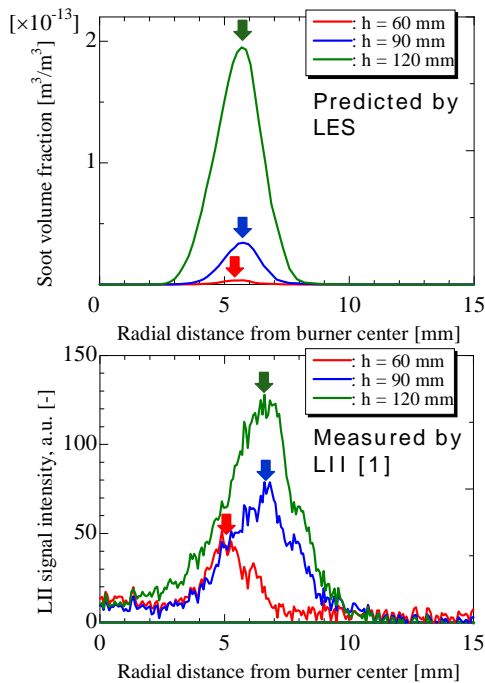


図 1 2 すず粒子体積分率半径方向分布の比較．上段が数値シミュレーションによるすず体積分率分布予測結果，下段が実験時に LII により取得したすず体積分率分布の計測結果．

粒子から放出される揮発分のうち，タールがすず生成の前駆物質となると仮定したモデルを構築した．タールが直接酸化される速度とすずに変換される速度は競合し，周囲の温度や酸素濃度によってそれぞれの速度が決定される．同様に，生成されたすずが酸素によって酸化される速度と，すず同士が凝集して粒子径が成長する速度も競合し，周囲温度，酸素濃度およびすず粒子濃度によってそれぞれの速度が決定される．

#### (4) すず粒子分布の比較

図 1 1 に，実験時に LII により取得されたすず粒子体積分率分布の計測結果と，LES により計算されたすず粒子体積分率分布の比較を示す．左側半分が数値シミュレーションによる予測結果，右側半分が実験時の計測結果である．両者のすず粒子体積分率分布の形状は非常に良い一致を示しており，数値シミュレーションによってすず粒子体積分率分布が精度良く再現されていることが分かる．

図 1 2 に，実験時に LII により計測されたすず粒子体積分率の半径方向分布と，シミュレーションで計算されたすず粒子体積分率の半径方向分布の比較を示す．上段が数値シミュレーションによる予測結果，下段が実験時に取得された計測結果である．多少の誤差はあるものの，両者の傾向は良く一致していることがわかる特に，すず体積分率のピーク

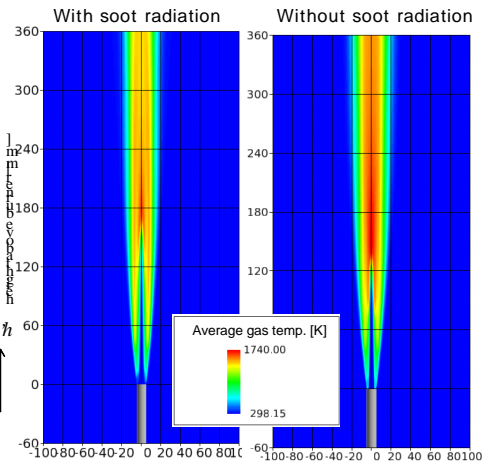


図 1 3 すず粒子のふく射がガス温度の予測値に与える影響．

の位置がシミュレーション結果と計測結果で良く一致しており，本研究で開発した微粉炭燃焼場中のすず生成モデルにより，すず体積分率分布を高精度に予測できることが分かった．

図 1 3 に，すず粒子のふく射がガス温度分布の予測結果に与える影響を示す．左側はすず粒子のふく射を考慮した場合のガス温度分布計算結果，右側はすず粒子のふく射を考慮しない場合のガス温度分布計算結果である．すず粒子ふく射の考慮の有無は，ガス温度の計算結果に大きな影響を与えることがわかる．両者の最大ガス温度の予測値には 100 K 以上の違いが現れることが分かった．

以上，本研究による固体年燃料燃焼場中におけるすず生成モデルの開発により，微粉炭燃焼場中のすず生成を精度良く再現することが可能となった．本モデルを用いた数値シミュレーション技術により，ボイラやごみ焼却炉等の固体燃料を使用する工業機器の PM2.5 排出抑制技術および適切な熱設計に活用されることが期待される．

#### 5．主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔学会発表〕(計 5 件)

高橋弥楊，橋本望，渡邊裕章，黒瀬良一，藤田修，非定常微粉炭燃焼数値解析における揮発分放出モデルの高度化，日本機械学会北海道支部第 45 回学生員卒業研究発表講演会，函館工業高等専門学校（函館市），2016/3/7.

高橋弥楊，橋本望，渡邊裕章，黒瀬良一，藤田修，小型微粉炭ジェットバーナ燃焼場を対象とした非定常解析への TDP モデルの適用，日本エネルギー学会第 25 回大会，工学院大学（東京），5-1-2，2016/8/10.

Nozomu Hashimoto, Hiroyasu Takahashi, Hiroaki Watanabe, Ryoichi Kurose, Osamu

Fujita, Large eddy simulation of pulverized coal jet flame employing tabulated-devolatilization-process (TDP) model, Impacts of Fuel Quality on Power Production, The 26th International Conference, Prague, Czech Republic, 2016/9/20.

Nozomu Hashimoto, Hiroyasu Takahashi, Hiroaki Watanabe, Ryoichi Kurose, Osamu Fujita, Soot formation prediction of the combustion field of 4 kW pulverized coal jet burner by the large eddy simulation with the tabulated-devolatilization-process (TDP) model, Sixteenth International Conference on Numerical Combustion, CP23, Orland, Florida, USA, 2017/04/05.

Hiroyasu Takahashi, Nozomu Hashimoto, Hiroaki Watanabe, Ryoichi Kurose, Osamu Fujita, Prediction of soot formation in 4 kW coal jet flame by large eddy simulation employing the TDP model, The Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, Okinawa Convention Center, Okinawa, Japan, 2017/10/27-30.

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

橋本 望 (HASHIMOTO, Nozomu)  
北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：70392751

### (3)連携研究者

渡邊 裕章 (WATANABE, Hiroaki)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：60371598

黒瀬 良一 (KUROSE, Ryoichi)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：70371622

藤田 修 (FUJITA, Osamu)  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号：10183930

### (4)研究協力者

高橋 弥楊 (TAKAHASHI, Hiroyasu)