

平成 22 年 6 月 3 日現在

研究種目：基盤研究(B)  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19360092  
 研究課題名（和文） 超臨界燃焼流れにおけるメゾスケール熱物性モデル・  
 燃焼反応モデルの開発  
 研究課題名（英文） Development of Mezzo-Scale Thermo-Physical Model and Chemical  
 Reaction Model for Supercritical Combustion Flow  
 研究代表者  
 坪井 伸幸 (TSUBOI NOBUYUKI)  
 九州工業大学・工学研究院・准教授  
 研究者番号：40342620

## 研究成果の概要（和文）：

高圧条件下での酸水素の超臨界燃焼流体に対する熱力学的・流体力学的特性，燃焼過程を明らかにするために，マルチスケール手法に基づき(1)物性データおよび状態方程式の構築(2)燃焼反応モデルの構築(3)圧縮性粘性流解析コードの低速流れへの改良 の3つを実施した。そして，(1)については古典分子動力学法により水素の気液共存線を NIST データと比較し，分子の回転量子効果が小さい条件では一致することが示された。また，(2)については燃焼反応モデルの改良により，着火遅れ時間や層流火炎速度などに関する高圧の実験データと計算結果の一致が示された。さらに，(3)については圧縮性粘性流解析コードに前処理法を導入し，従来の圧縮性コードでは難しかった円柱や翼型周りの低速流れの解析が可能になった。

## 研究成果の概要（英文）：

The multi-scale method for the hydrogen/oxygen supercritical combustion flow under high pressure is applied to understand the thermo-physical phenomena. The present study is focused on (1) the construction of thermo-physical properties and equation of state, (2) the modification of the chemical reaction model, and (3) the improvement of the compressible Navier-Stokes solver by using the preconditioning method. For the first task, the temperature and density saturation curve for the molecular dynamics simulations were compared with those for NIST data to show the agreement under the small rotational quantum effects. For the second task, the chemical reaction model was improved to show that the ignition delay times and the laminar flame velocities for the present model agreed well with the experimental data. For the third task, the compressible flow solver with the preconditioning method showed the ability to solve such the low speed flow around a cylinder and an aerofoil.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2008年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2009年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
年度			
総計	15,100,000	4,530,000	19,630,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・反応流

キーワード：反応流，超臨界流体，マルチスケール，燃焼，熱物性

### 1. 研究開始当初の背景

近年の噴霧を用いた高負荷エンジンは高い効率を得るために高圧化に向かいつつあり，燃焼室内部の気体の状態は噴射液体燃料や酸化剤の熱力学的臨界点を超えるものが多い．しかし，従来までのロケットエンジンやディーゼルエンジンの燃焼技術は大気圧下での噴霧の知識に基づいて試行錯誤の積み重ねによって開発されてきた．熱力学的臨界点付近では，比熱，熱伝導率などが急激に変化，音速が極小，反応速度が極大などの特徴を有する．そして臨界点を超えると液体的な高密度・溶媒としての性質，気体的な高拡散性を同時に有し，気体や液体とは異なった第3の流体（超臨界流体）として振る舞うことが知られる．これらの熱力学的・流体力学的特性が実際に噴射された液体燃料と酸化剤の微粒化・混合・燃焼過程にどのような影響を与えるのか，まだ十分に明らかにされていない．

このような超臨界流体そのものについての研究は，水や二酸化炭素について行われており，水については反応媒体や分離・抽出媒体など，二酸化炭素については有機系有害物質の処理などで使われている．しかし，燃焼反応を伴う超臨界流体に関しては，酸水素ロケットエンジンが有名な例であるが，物理現象が正確に理解されていない．国産のH-IIAの第一段エンジンは燃焼器内部の燃焼圧がおよそ10MPaを超える．このエンジンの燃料の水素(GH2)は臨界圧力・臨界温度よりも高い圧力・温度で流入するために超臨界流体の状態で，酸素(LOX)は温度が臨界温度よりも低い液体状態で流入する．通常のエンジンとは異なり，LOX(流速約20m/s)を取り巻くように燃料のGH2が流速400m/sで平行に噴射される構造を持っており，強い剪断力により液体酸素の微粒化を促進しながら混合・燃焼へと移る．燃焼は拡散火炎と見なすことができる．また，GH2,LOXは共に超臨界”圧”状態であるが，燃焼生成物である水蒸気に関しては臨界圧力20MPaより低いために亜臨界圧状態となる．実際の例から，超臨界圧環境下ではLOXの境界面が不明確になり，GH2と気体同士の混合と見なせるようになる．また，噴射器のわずかな形状の変化が流れ場・燃焼場に大きな影響を与え，状況によっては燃焼振動により燃焼器を破損させてしまう重大な事故にもつながる．この根

本的な原因となる熱力学的・流体力学的特性，燃焼過程の状況が不明確なままであり，ロケットエンジンの信頼性を著しく損なっている．

### 2. 研究の目的

本研究は，超臨界燃焼流体における熱力学的・流体力学的特性，燃焼過程を明らかにするために，まず最も基本となる以下の2つについてテーマを絞り，研究を行った．

(1) 酸水素燃焼系における物性データおよび状態方程式の構築

(2) 酸水素燃焼反応モデルの構築

そして，このモデルが構築されて数値流体解析に利用する場合，stiffnessであるために効率的な高圧・低速流れの解法を構築することが重要である．したがって，3つめのテーマとしては，

(3) 効率的な高圧・低速流れの圧縮性解析手法の構築

とし，研究を行った．

### 3. 研究の方法

3つの研究目的に対して行った方法は以下の通りである．

(1) 熱物性データや状態方程式の構築については，まずGAUSSIAN03を用いて水素に対する分子軌道計算を行い，高精度の非経験的な分子間ポテンシャル関数を構築した．続いて，このポテンシャル関数を用いた熱物性推算を分子動力学計算により実施し，既存の経験的なポテンシャルモデルに基づいた推算結果と比較した．以上により，分子間ポテンシャルの精度が水素の熱物性データの再現性に与える影響を詳細に評価した．

(2) 100気圧付近の高圧燃焼特性を把握するために，これまで構築してきた酸水素詳細反応モデルについて，CHEMKINを用いて着火誘導時間や層流火炎速度を引き続き計算し，実験結果との比較や反応速度定数の改良を進めた．

(3) マッハ数0.1以下の圧縮性低速流れの解析を可能とするために，時間積分と流束計算にそれぞれ非定常前処理法を導入し，2次元円柱およびNACA0012翼型周りの解析を行った．

### 4. 研究成果

(1) Lennard-Jonesポテンシャル，2 Center

Lennard-Jones ポテンシャル, および exp-6 ポテンシャルの, 3 つの代表的かつ経験的な分子間ポテンシャル関数に対して, 低温水素の熱物性の再現性を評価した. 具体的には, 様々な温度 - 密度における圧力と内部エネルギーを古典分子動力学法により求めることで, それぞれの経験的なポテンシャルモデルが表す流体の状態方程式を構築した. そのうえで算出された各モデル流体に対する気液共存線と, 実際の水素の気液共存線 (NIST データ) との比較を図 1 に示す.

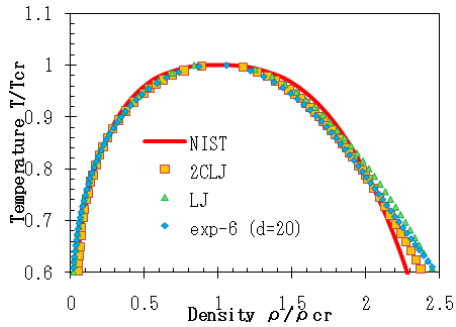


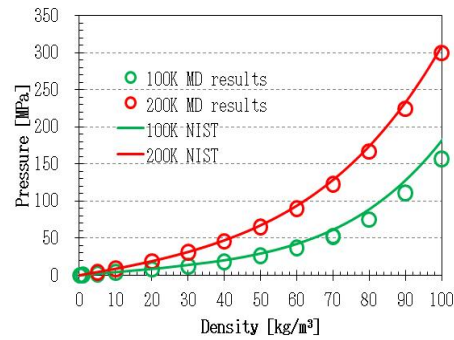
図 1 各経験的ポテンシャルによるモデル流体の気液共存線と NIST データ (水素の気液共存線) の比較

図 1 より, 特に高密度領域において, 各ポテンシャルモデルが表す流体の気液共存線は, 実際の水素のデータとは合致しない事がわかる. これには複数の要因が考えられるが, 少なくとも経験的なポテンシャルモデルが実際の水素の分子間相互作用を表し得ていないことは, その一因である. そこで, GAUSSIAN03 を用いた分子軌道計算により, 水素に対する高精度の非経験的分子間ポテンシャルを求め, このポテンシャル流体に対する物性推算を実施した. その結果 (複数の温度における等温線) と実際の水素の等温線 (NIST データ) との比較を図 2 に示す.

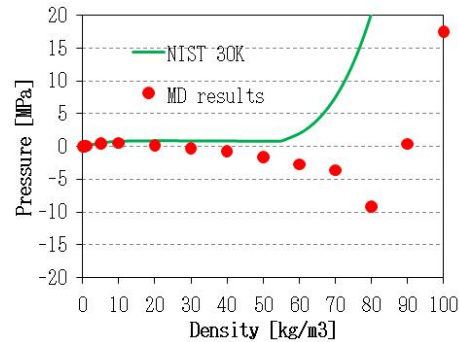
これより, 少なくとも 100K 以上の温度領域においては, 実際の水素の熱物性を十分に再現できることがわかる. 一方, 30K 以下の温度領域においては, 実際よりも液相密度をより高密度側に見積もることがわかった. この傾向は, 図 1 に示した代表的な経験的ポテンシャルの場合と全く同じであり, 低温水素の熱物性を再現するうえでは, 分子間相互作用の再現性以上に, 無視できない重要な因子があることがわかった. その重要な因子とは, “分子の回転運動に対する量子効果” である. この考察は, 今回の物性推算が量子効果を一切考慮しない古典力学的手法によるものであったことから導かれている.

以上より, 本研究での成果は, 酸水素系の物性データや状態方程式を微視的に構築するうえで, 低温水素の量子効果が極めて重要であることを定性的かつ定量的な比較結果

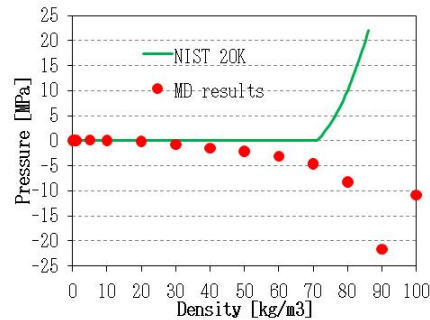
と併せて明確に示した点にある.



(a) 100K, 200K



(b) 30K



(c) 20K

図 2 非経験的ポテンシャルに基づいた水素の等温線 (本計算結果) と NIST データ (実際の水素の等温線) との比較

(2) 燃焼反応モデルについては, 高圧における信頼性が高い詳細化学反応モデルの一つである越教授が提案しているモデルを, より高圧力条件でも実験データを再現するように改良して UT-JAXA1.0 として公表した.

アルゴンで希釈した高圧の酸水素予混合気について, Petersen らが衝撃波管を使用して計測した着火遅れ時間と計算結果と比較した. 当初は実験データと一致しなかったが, 感度解析により, 第二爆発限界で顕著になる  $H+O_2+Ar=HO_2+Ar$  と  $H+O_2=HO_2$  の 2 つの反応が支配的であることが分かった. 従って,  $H+O_2+Ar=HO_2+Ar$  の反応速度定数を見直した結果, 図 3 に示すように, 実験データとほぼすべての圧力で一致した.

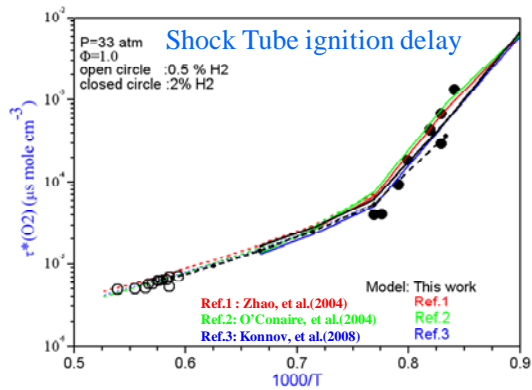


図 3 Ar 希釈の酸水素予混合気に関する着火遅れ時間の比較

次に、大気圧条件下における水素/空気の層流火炎速度について、実験データと比較を行った。その際、Soret 効果を反応モデルに考慮している。比較の結果を図 4 に示す。実験データや Konnov のモデルと比較しても、本モデルは良好に一致していることが分かる。

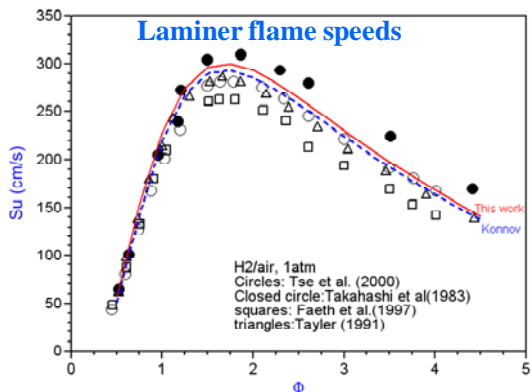


図 4 1atm の水素/空気における層流火炎速度の比較

さらに、質量燃焼速度における圧力の感度について、実験データとの比較を行った。その結果を図 5 に示す。15 気圧以上では、どのモデルも実験で得られた質量燃焼速度の減少を再現できていないことが分かる。しかし、今回提案しているモデルは、15 気圧以上で質量燃焼速度の低下が再現できている。

最後に、水蒸気で希釈された酸水素予混合気の層流燃焼速度に関して、実験データとそれぞれの反応モデルの比較を図 6 に示す。図中、 $H+OH(+M)=H_2O(+M)$  に関して理論的に得られた反応速度定数を使用した結果を A2 として示す。どの反応モデルも実験データと同様に、高圧になると層流火炎速度が低下する傾向は見られるが、実験結果と比較して一致するモデルはないことがわかる。高圧における適切な反応速度定数の選定は、実験データが少ないことや理論解析が非常に困難である

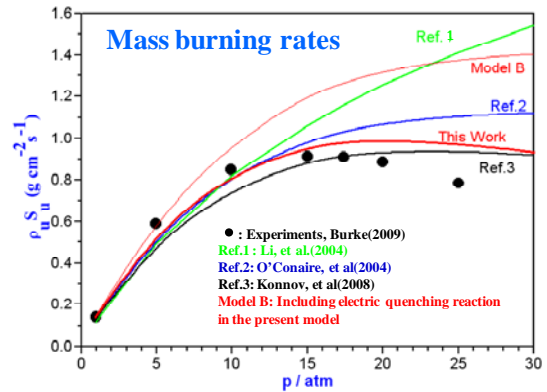


図 5 当量比 2.5,  $H_2+O_2+9.5Ar$  における質量燃焼速度の比較

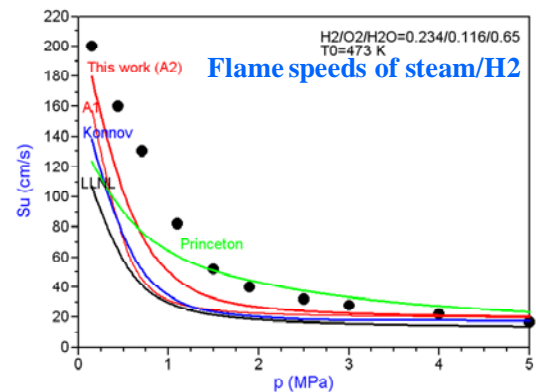


図 6 水蒸気希釈の酸水素予混合気における層流燃焼速度の比較

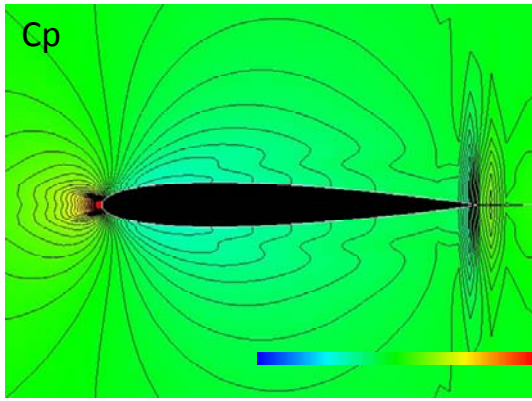
ことから、今後も継続して研究を行う必要がある。

一方で、これらのモデルはきわめて stiffness になることが分かっている。そこでこの stiffness を改善するために、Rate-Controlled Constrained Equilibrium (RCCE) method を酸水素燃焼およびメタン酸素燃焼に対して検討を行い、どちらも stiffness を改善するには効果的であることが示された。

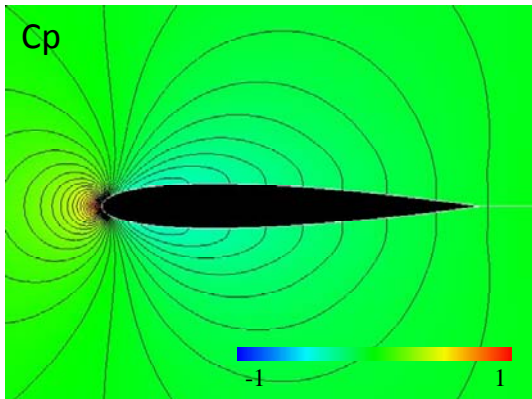
(3) 流体解析手法の改良として、既存の 2 次元圧縮性粘性解析コードを低速流れにも対応できるように、前処理法を導入した。時間積分における陽解法は 2 段階ルンゲクッタ法、陰解法は LU-SGS であり、流束計算には前処理型 AUSMDV および AUSM++up を採用した。

まず、定常計算として、NACA0012 翼型、マッハ数 0.01、迎角 0 度、 $Re=2000$  の計算を実施した。その結果を図 7 に示す。前処理を使用していない場合にくらべて、使用した場合は圧力係数の分布が滑らかになっていることが分かる。





(a) 前処理なし (RK2+AUSMDV)



(b) 前処理なし (pRK2+pAUSMDV)

図 7 NACA0012 翼型周りの Cp 分布の比較

次に、非定常前処理法の精度の確認を行うために、2次元円柱周りのカルマン渦の解析を行った。一様流速が 1m/s,  $Re=100\sim 1000$  である。まず、図 8 に円柱周りの瞬間圧力分布を示す。 $Re=200$  においては、内部ループ数の依存性が見られなくなる回数は 60 であることが示された。また、使用する流束計算法にもよらないことが確認できた(図 9)。

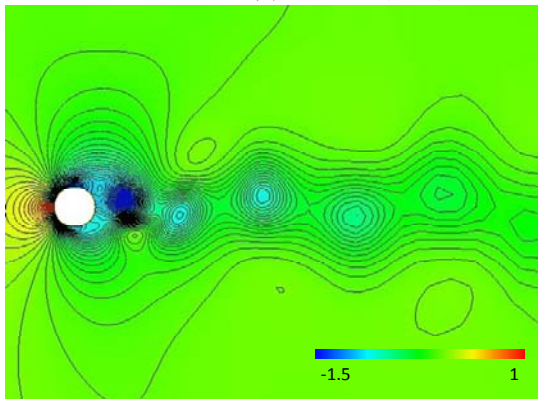


図 8 円柱周りの瞬間 Cp 分布 (pRK2+pAUSMDV)

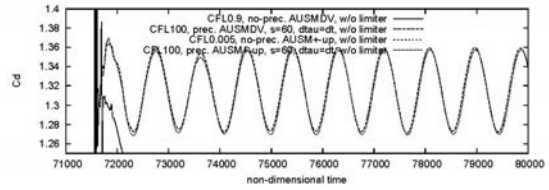


図 9  $Re=200$  における抵抗係数の比較

最後に、抵抗係数の平均値を実験結果と比較したものを図 10 に示す。比較の対象とした計算は、非圧縮性解析である。この結果から、 $Re < 400$  までは本計算結果は実験結果や他の計算結果と良好に一致している。しかし、 $Re > 400$  になると実験結果と一致しなくなる。その理由は、 $Re > 400$  では流れ場の 3次元性が大きく影響するためである。今後は 3次元非定常解析を行って、さらに検証する必要がある。

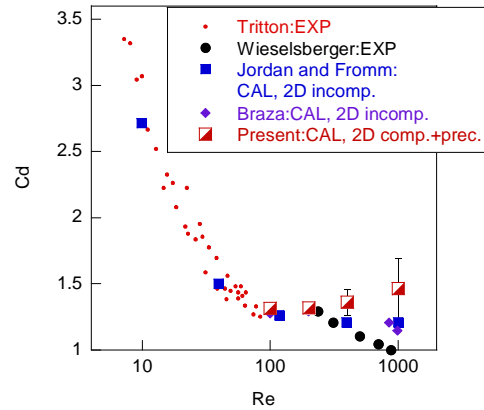


図 10 抵抗係数における実験結果と計算結果の比較

## 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)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① Morii, Y., Tsuboi, N., Koshi, M., Ogawa, H., Hayashi, A.K., Shimizu, T., The Determination of the Third Body Efficiencies for the  $H+O_2+M=HO_2+M$  reaction ( $M=Ar, H_2O$ ), Science and Technology of Energetic Materials, Vol.70, No.5, pp.117-121, 2009, 査読有

〔学会発表〕(計 30 件)

- ① H. Nagashima, T. Tokumasu, S. Tsuda, N. Tsuboi, A.K. Hayashi, Reliability of Classical Molecular Dynamics Method

- to Thermodynamic Properties of Hydrogen, AIAA-2010-991, 48th AIAA Aerospace Sciences Meeting, Orlando, USA, 2010.
- ② Mitsuo Koshi, Kazuya Shimizu, Shinichi Tsuda, Estimation of thermodynamic properties of hydrogen oxygen mixtures based on intra-molecular interactions for rocket engine combustion flow analysis, AJCPP2010-153, Asian Joint Conference on Propulsion and Power 2010, Miyazaki, 2010.
- ③ Mitsuo Koshi, Kazuya Shimizu, Development of efficient and stable time integration method for detailed chemical kinetics by using Rate-Controlled Constrained Equilibrium (RCCE) concept, AJCPP2010-151, Asian Joint Conference on Propulsion and Power 2010, Miyazaki, 2010.
- ④ Youhi Morii, Nobuyuki Tsuboi, Mitsuo Koshi, Hiroyuki Ogawa, A. Koichi Hayashi, Taro Shimizu, Construction of a reliable reduced CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub> chemical reaction model under high pressure states, AJCPP2010-084, Asian Joint Conference on Propulsion and Power 2010, Miyazaki, 2010.
- ⑤ Nobuyuki Tsuboi, Katsuyoshi Fukiba, Toru Shimada, Numerical Simulation on Unsteady Compressible Low-Speed Flow Using Preconditioning Method: Comparison between AUSMDV and AUSM+-up, AJCPP2010-088, Asian Joint Conference on Propulsion and Power 2010, Miyazaki, 2010.
- ⑥ K. Shimizu, H. Hibi, M. Koshi, Y. Morii, N. Tsuboi, A Noble Kinetic Model of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> System Applicable to Liquid Rocket Engine Combustion, 45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, AIAA-2009-4968, Denver, USA, 2009.
- ⑦ S. Tsuda, N. Yamanishi, T. Tokumasu, N. Tsuboi, Y. Matsumoto, A Modeling of Thermal Properties of Hydrogen/Oxygen System Using Molecular Simulations, AIAA 2009-1601, 47th AIAA Aerospace Sciences Meeting, Orlando, USA, 2009.
- ⑧ K. Shimizu, T. Shimizu, N. Tsuboi, Study on Development of Unified Simulation Method for Atomization and Combustion in a Coaxial Injector Flow, AIAA paper 2008-1021, 46th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, Reno, USA, Jan., 2008.
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
坪井 伸幸 (TSUBOI NOBUYUKI)  
九州工業大学・工学研究院・准教授  
研究者番号：40342620
- (2) 研究分担者  
越 光男 (KOSHI MITSUO)  
東京大学・工学系研究科・特任教授  
研究者番号：20133085
- 林 光一 (HAYASHI A. KOICHI)  
青山学院大学・理工学部・教授  
研究者番号：60156437
- 清水 太郎 (SHIMIZU TARO)  
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・  
情報・計算工学センター・研究員  
研究者番号：00446600
- 清水 和弥 (SHIMIZU KAZUYA)  
東京大学・工学系研究科・特任助教  
研究者番号：80373447
- 津田 伸一 (TSUDA SHINICHI)  
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・  
情報・計算工学センター・研究員  
研究者番号：00466244
- 山田 英助 (HAYASHI A. KOICHI)  
青山学院大学・理工学部・助教  
研究者番号：60453487
- 徳増 崇 (TOKUMASU TAKASHI)  
東北大学・流体科学研究所・准教授  
研究者番号：10312662
- (3) 連携研究者  
松本 洋一郎 (MATSUMOTO YOICHIRO)  
東京大学・工学系研究科・教授  
研究者番号：60111473
- 高木 周 (TAKAGI SHU)  
独立行政法人理化学研究所・臓器全身スケ  
ール研究開発チーム・チームリーダー  
研究者番号：30272371
- 山西 伸宏 (YAMANISHI NOBUHIRO)  
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・  
情報・計算工学センター・研究員  
研究者番号：70450715