

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360095

研究課題名(和文)大規模詳細反応機構の革新的簡略化法の開発と燃焼シミュレーションへの応用

研究課題名(英文)Development of reduction method of detailed chemical kinetics and its application to reactive flow simulation

研究代表者

越 光男 (Koshi, Mitsuo)

横浜国立大学・環境情報研究院・非常勤教員

研究者番号：20133085

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,900,000円、(間接経費) 3,270,000円

研究成果の概要(和文)：自動車エンジンのノッキングやガスタービンの振動燃焼の解析には化学反応方程式と流体力学方程式を同時に解く必要があるが、燃焼反応には数百もの化学種が関与するためにこのようなシミュレーションは不可能であった。これを可能とするために、燃焼反応の特性を損なわずに解析に必要な変数の数を大幅に減少させる方法を開発した。また反応法式的超高速積分法も開発した。これにより、化学反応と流体现象がカップリングする現象の解析が初めて可能となった。

研究成果の概要(英文)：Reactive flow analysis for complex system such as automobile engine knocking and vibratory combustion in gas turbine needs fluid dynamic simulation coupled with detailed chemical kinetics. Because of very large numbers of chemical species involved in combustion, such reactive flow analysis is extremely difficult. We successfully developed a new method for the reduction of number of chemical species. In addition, an ultra fast solver of chemical kinetic equations is also developed and implemented into compressible CFD (computer fluid dynamics) code. As a result, reactive flow analysis now become possible for automobile engine knocking.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：燃焼 詳細反応機構 数値流体計算 簡略化 自着火 圧縮性流体計算 エンジン燃焼

1. 研究開始当初の背景

これまで高効率・クリーンな燃焼を実現するための燃焼制御は主として流れや混合などの物理的過程を制御することによっておこなわれてきた。しかしながら、たとえば内燃機関においてはスワールやタンプルの制御といった流れの制御に基づく燃焼制御はすでに限界に来ている。超希薄条件下での着火タイミング制御などは物理的制御のみでは達成できず、化学反応機構の理解を前提とする制御が必要である。近年、実用燃料を模擬する炭化水素(サロゲート燃料)の化学反応機構に関する研究が精力的に実施されており、その結果、アルカンに関してはかなり理解が進み、反応機構を自動生成することができるようになってきている。たとえば三好により開発された反応機構の自動生成プログラム KUCRS は、任意のアルカン混合燃料の反応機構を精度よく生成することができる。数年先には多様化する燃料に対応できる、サロゲート燃料の反応機構の自動生成が可能となると予想される。

一方で、燃料の化学反応機構が明らかになるにつれ、新たな問題が出てきた。サロゲート燃料は炭素数の多い炭化水素を含み、その燃焼反応機構は数千の化学種と数万の素反応を含む。たとえばディーゼル燃料のサロゲートである n-セタン(n-C16H34)と i-セタン(i-C16H34)の混合燃料の燃焼反応機構を KUCRS により構築すると 6907 化学種、27033 素反応からなる反応機構が得られる。このような超大規模燃焼反応機構は、HCCI(予混合圧縮自着火)燃焼のように空間的に均一であるとみなせる場合には自着火タイミングの予測など有用な情報を与えてきた。しかしながら実用燃焼器におけるシミュレーションでは流れと化学反応を同時に解く必要がある。化学反応を流体シミュレーション組み込む場合、次の二つが問題となる。

(1) 大規模詳細反応の場合、含まれる化学種の数だけ従属変数が増え、計算負荷が増大する。Fluent などの市販の流体計算ソフトに詳細反応機構を組み込む場合、現状での実用的な化学種の高々50程度、大規模計算の場合でも高々100-300程度である。

(2) 詳細反応機構に基づく化学反応方程式(微分方程式)は極めて「stiff」である。このために数値計算に必要とされる時間刻みは極めて小さくなってしまふ。

これらの問題を解決するために、さまざまな方法が提案され、また現在でも世界中で活発に研究がおこなわれているが、未だディーゼルサロゲート燃料の反応機構のような大規模詳細反応機構を精度よく LES などの高解像度流体シミュレーションに組み込む方法は存在しない。

2. 研究の目的

超大規模詳細反応機構に基づいた数値流体シミュレーションを実現するための革新的アルゴリズムを確立し、これを実証するためのソフトウェアを開発する。詳細反応機構の統合化や素反応の省略により簡略化する方法とは質的に異なる、化学反応機構の詳細な情報を失うことなく数値流体シミュレーションを実施することが可能な方法を新規に開発する。具体的には次の2項の研究を実施する。

2.1 詳細反応機構簡略化法を完成させ、任意の燃料系に対して自動簡略化を行う方法を開発する。

2.2 流体計算に組み込むことが可能な、陽解法に基づく超高速反応方程式積分法を開発し、大規模詳細反応機構に基づく流体シミュレーションを実施する。

3. 研究の方法

3.1 詳細反応機構の簡略化法の開発

Rate-Controlled Constrained Equilibrium (RCCE)法を Index0 の微分代数方程式として定式化し、これを炭化水素燃料の燃焼反応に適用する。

3.2 超高速反応方程式の解法の開発とその流体計算への組み込み

近年提案された陽解法である dynamic multi-timescale (MTS) 法を導入し、多次元圧縮性流体解析と詳細反応機構を連成させ、ブタンの予混合圧縮自着火(ノッキング)シミュレーションに適用する。

4. 研究成果

4.1 RCCE 法の開発とその応用

RCCE 法は与えられた束縛条件の下での最も確からしい状態(ここでは化学種の濃度分布)を、エントロピーを最大(あるいは自由エネルギーを最小)にすることにより求める方法である。ここでは定圧、断熱条件(圧力 p およびエンタルピー h が一定)での化学反応を Jones らの方法に従って定式化した。定式化した結果の DAE (微分代数方程式)は DASPK を用いて解いた。反応機構の入力には ChemkinII のサブルーチンパッケージを利用した。これにより Chemkin の入力形式の反応機構をそのまま利用することができる。また、比較のために通常の h, p 一定の条件下での反応方程式の直接積分法によるプログラムも DASPK を用いて作成し、直接積分の結果と RCCE 法による結果の比較検討を行った。また、現在標準的に用いられている簡略化法(DRG法)との比較も行った。これらの方法を炭化水素燃料について適用した。

<CH₄の詳細反応機構の簡略化>

CH₄の燃焼反応機構は数多く発表されているが、本研究では三好により開発された k311 をベースメカニズムとして採用した。この反応機構は68化学種、334素反応から構成され、

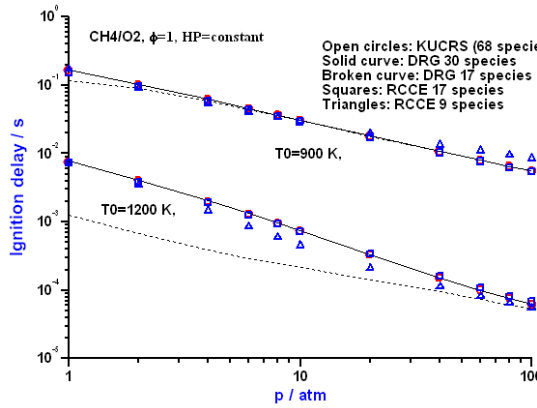


図1 CH₄/O₂系の着火誘導時間の圧力依存性

特に高圧の CH₄/O₂ に対して広い当量比範囲で使用することを目的として構築された。常圧の燃焼速度、高圧の衝撃波管による着火誘導時間などの広範な実験値に対して検証されている。

RCCE 法を適用する場合、束縛条件をどのように与えるかによって結果が大きく左右される。まず一つの束縛条件に一つのみの化学種を対応させる最も単純な方法を試みた。束縛条件として CH₄, O₂, CO₂, CO, H₂O, H, O, OH, HO₂, CH₃, CH₃OO, CH₂O, および CH₃OOH の 13 の化学種を用いた場合 (RCCE13) の計算値を図1に示すが、オリジナルの k311 の計算結果とほとんどオーバーラップしている。単一の化学種を一つの束縛条件とした場合には 13 化学種が最小の反応機構である。さらに束縛条件を減らすために、化学種の線形結合により束縛条件を表わすことを試みた。どのような化学種の線形結合を作るかについては一般論がないが、CH₄, O₂, H, OH+O+HCO, CH₃O, HO₂+CH₃OO, H₂O₂+CH₃OOH, CH₂+CH₃OH, M の 9 個の束縛条件を用いた場合の計算結果 (RCCE9) を図1に示す。M はすべての化学種の濃度の和である。RCCE 法を適用することにより、68 化学種の反応機構を 9 個の化学種に関する束縛条件と 3 個の元素 (H, C, O) に対する束縛条件で表現できることが分かった。なお、図1には DRG 法による簡略化の結果も示した。

<C₂H₆ への適用>

CH₄ についての結果をさらに拡張するために C₂H₆ の反応機構に対して RCCE 法を適用した。C₂H₆ のマスターメカニズムは三好により開発された反応機構自動生成プログラム KUCRS で用いられているマスターメカニズムを用いた。KUCRS では C₂ 以下のアルカンの反応機構をマスターメカニズムとして持っている。このメカニズムは 48 の化学種、249 の化学種より構成されている。このメカニズムにより HP=一定、P=10atm の当量比の C₂H₆ について計算した着火誘導時間を図2に示す。この条件をターゲットとして DRG により簡略化を行うと、化学種を 40 まで減らすことができる。もとのマスターメカニ

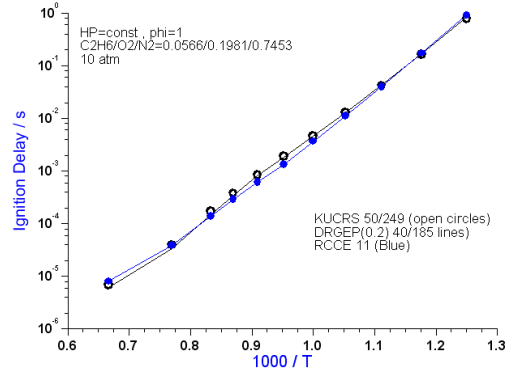


図2 C₂H₆/Air (当量比) の着火誘導時間。白丸は KUCRS のベースメカニズムによる計算値。実線は DRG による簡略化機構 (40 化学種、185 反応) 青線は 11 束縛条件による RCCE の計算

μ を RCCE の流力反応機構として用いて様々な束縛条件を設定し検討した。その結果、11 の束縛条件により精度よくマスターメカニズムの計算値を再現できることが分かった。<C₄H₁₀ への適用>

n-C₄H₁₀ の反応機構を KUCRS により生成した。このメカニズムは 113 化学種、416 反応からなる。DRG 法による簡略化を行うと化学種 88、338 反応まで簡略化できる。図3に示すようにこのメカニズムはオリジナルの機構の計算とほぼ完全に一致する (図3の黒の実線)。さらに簡略化すると 69 化学種、291 反応の機構が構築できるが、この場合は高温ではオリジナルと一致するが、低温酸化反応が重要になる 900K 以下では大幅に異なる。(図3破線) 化学種 88 の機構を RCCE の入力として反応機構の簡略化をおこなった。36 の束縛条件を用いた場合、図3に示されるようにオリジナルのメカニズムとの一致は比較的良好である。

i-C₄H₁₀ については、KUCRS による反応機構は 89 化学種、374 反応である。これを DRG で簡略化すると 66 化学種、266 反応、および 56 化学種、179 反応の機構が得られた。56 化学種の機構ではオリジナルとの違いが大き

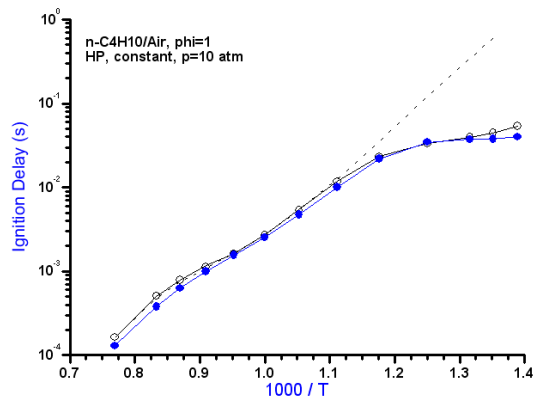


図3 n-C₄H₁₀ の着火誘導時間。白丸: KUCRS (113 化学種/416 反応) 黒実線: DRG (88 化学種/338 反応) 点線: DRG (69 化学種/291 反応) 青線: RCCE (36 束縛条件)

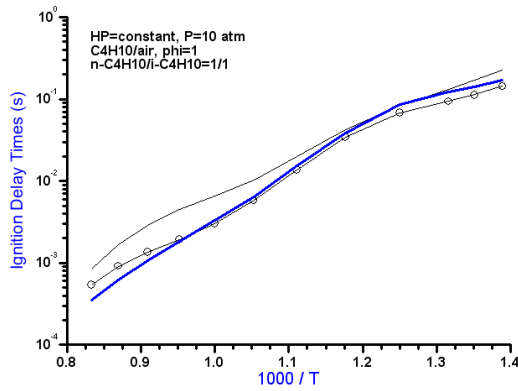


図4 n-C₄H₁₀/i-C₄H₁₀ 混合燃料の着火誘導時間。白丸：KUCRS (146 化学種/554 反応) 黒実線：DRG(118 化学種/478 反応、および 94 化学種/340 反応)

いが 66 化学種の機構ではほぼオリジナルと一致している。これを RCCE の入力とした。32 の束縛条件を用いた時にオリジナルとのよい一致がえられた。

n-C₄H₁₀/i-C₄H₁₀ 混合燃料についても検討を行った。KUCRS による反応機構は 146 化学種、554 反応である。これを DRG で簡略化すると 118 化学種、478 反応、更に簡略化した 94 化学種、340 反応の機構が構築された。図 4 に示すように、94 化学種まで簡略化するとオリジナルとの違いは大きくなる。118 化学種の機構を RCCE への入力として束縛条件を検討した。

束縛条件は分子構造グループに基づいて決めたが、C₄ の R,ROO,QOOH,および HOOQOO についてはすべて独立の束縛条件とする必要があった。その結果、46 の束縛条件が得られた。結果を図 4 に示すが、1000K 以上の高温と 700K 以下の低温では若干の不一致が見られる。

<密度と温度が与えられた場合の RCCE >

これまでは断熱・定圧条件での燃焼に RCCE 法を適用してきた。流体シミュレーションに RCCE を組み込む場合、次に述べるように密度と温度が与えられている場合が多い。密度と温度が与えられている場合には与えられた束縛条件のもとで Helmholtz の自由エネルギーを最小にすればよい。この場合の定式化とプログラム開発もすでに行っている。

密度と温度が初期条件として与えられていて断熱条件 (U=一定) の場合の RCCE 法の例として n-C₇H₁₆/Air 燃焼の着火誘導時間を計算した例を図 5 に示す。黒丸は KUCRS により生成した詳細反応機構 (373 化学種/1071 反応) を用いた結果、青線が 33 個の束縛条件を用いた場合である。完全な一致は得られていないものの、負温度領域はよく再現されている。

<まとめ>

CFD 計算に組み込むことを目的として、RCCE 法を Index0 の微分代数方程式として定

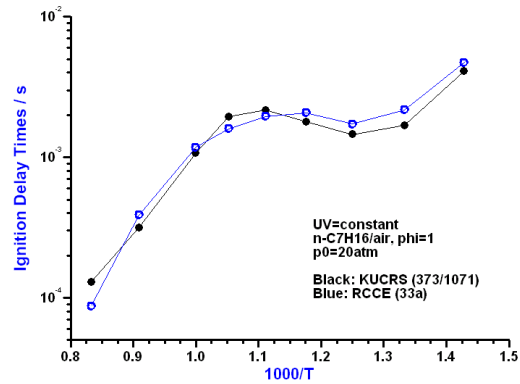


図5 n-C₇H₁₆ の着火誘導時間。黒丸：KUCRS(373 化学種/1071 反応)、青丸：RCCE(33 束縛条件)

式化し、これを炭化水素の燃焼反応に適用した。温度、圧力および各化学種の平衡値は厳密に直接積分法の結果と一致した。CH₄, C₂H₆, C₄H₁₀, C₇H₁₆ などの炭化水素燃料の着火誘導時間は定性的には予測できることが示された。

4.2 超高速反応方程式の解法の開発とその流体計算への組み込み

自動車エンジンなど内燃機関で発生するノッキングは、局所かつ急激な高圧高温状態を作り出し、シリンダーヘッドやピストンなどエンジン構造に大きなダメージを与える。ノッキングに至る現象は、非常に短時間の現象であり正確な把握は未だ難しい。ノッキングに関連した火炎伝搬と末端ガスにおける熱、流体、化学反応の相互作用は未だ不明点も多く、ノッキング予測また現象論の観点から非常に興味深い研究対象である。この相互作用を明らかにするには、詳細な反応機構、流体では圧縮性の考慮が必要となるが、これらを考慮した詳細な解析例は非常に少ない。本研究では、詳細反応機構を用いた圧縮性流体解析を適用することで、ノッキングに至る現象、それに誘起される大振幅振動現象を明確にする。

<数値解析法>

支配方程式は、各化学種保存式を加えた圧縮性 Navier-Stokes 方程式である。流体と反応を分離し、時間方向に交互に解き進める時間分離法を採用した。体積と内部エネルギーが一定と仮定した反応方程式を用いる。流体方程式の解法は、数値流束を HLLC/HLL hybrid 法で評価し、粘性項などの 2 階微分項は 2 次精度中心差分法を用い、時間積分は 3 次精度 TVD Runge-Kutta 法で行った。混合気体の輸送係数計算を効率的に行うため、粘性係数や熱伝導率には簡易経験式を用いた。反応方程式の時間積分法には、森井らによる堅牢な陽解法 ERENA を用いた。陽解法の使用により、陰解法に比べ条件によっては 2 桁近く高速に時間積分を行うことが可能となる。n-C₄H₁₀ の詳細反応機構は、KUCRS により生成し、113 化学種、426 反応式から成る。

<計算条件>

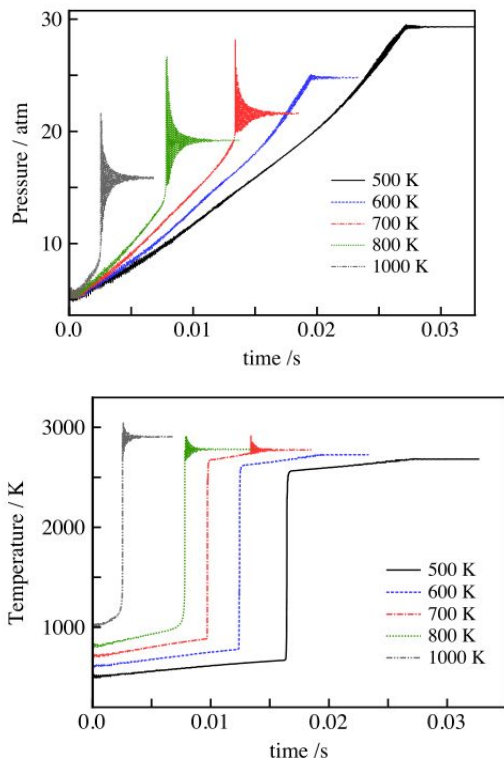


図6 $x=3.2\text{cm}$ における圧力(上)と温度履歴

まず1次元を仮定して計算を行った。本解析では、 $n\text{-C}_4\text{H}_{10}$ と空気の当量比1.0の予混合気を用いた。計算領域を $L=4\text{cm}$ とし、左境界を対称、右境界を断熱壁とした。初期圧は、全領域 $p_0=5\text{atm}$ と設定した。左側の対称境界から $L/40$ の領域に初期点火源として $T_i=1400\text{K}$ の高温源を配置した。この部分が着火し、火炎が左から右へと伝搬する。以上の条件を固定し、高温点火源以外の初期温度を $T_0=500, 600, 700, 800, 1000\text{K}$ と変化させ、末端ガス着火やノック振動現象への影響を調べた。

<末端ガス・振動現象に対する初期温度の影響>

初期温度を変化させて得られた $x=3.2\text{cm}$ における圧力と温度履歴を図6に示す。まず、両履歴からいずれの初期温度条件においても初期高温源から発生した火炎により火炎前方の末端ガスが断熱圧縮され、火炎の移動(既燃部の増加)と共に、圧力・温度が上昇する様子がとらえられている。初期温度が $T_0=700\text{K}$ 以上の場合、圧力や温度上昇の後大振幅振動が発生する一方で、 600K 以下では大きな振動を伴わず、ある一定値へと収束していることがわかる。大振幅振動は、初期高温源から発生・伝搬する火炎が右壁に到達する前に、火炎前方の末端ガスが着火したことを、振動が無い場合は末端ガスが着火する前に火炎が右壁に到達したことを、それぞれ意味する。図6の温度履歴を見ると、初期温度 $T_0=800, 1000\text{K}$ の場合、 $L=3.2\text{cm}$ に火炎が伝搬する前にこの地点が着火していることがわかる。一方、 700K の場合には、まず火炎が通過することで温度が上昇し、その後、

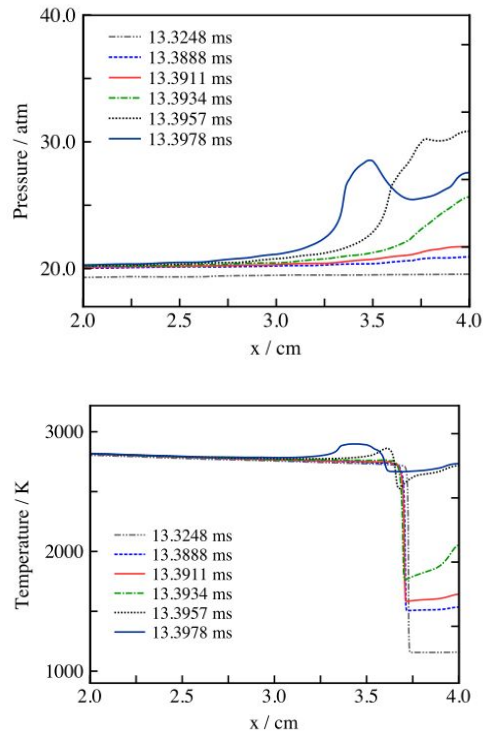


図7 $T_0=700\text{K}$ での圧力(上)温度(下)の空間分布

$L=3.2\text{cm}$ と右壁間の予混合気が着火することにより発生した振動が伝搬してきたことがわかる。

図7に、初期温度 $T_0=700\text{K}$ における末端ガス着火と振動発生時における圧力と温度の空間分布を示す。各分布の時間間隔は最初と次の分布以外は、 $\Delta t=2.28\mu\text{s}$ である。図7の温度分布をみると火炎前方の末端ガスが着火し温度が上昇していくが、この間、火炎の動きは停滞し若干後退していく様子がわかる。また着火に伴う急激な圧力と温度上昇は末端ガス全体で一様に起きるわけではなく、断熱壁近傍から急激な上昇が発生することも確認できる。圧力分布を見ると、着火に伴い、急激な圧力変化(気体の膨張)が生じることで、急峻な圧力波が左方向に伝搬していくことがわかる。これが図6で見られた大振幅圧力変動の原因となる。この末端ガスが着火したことにより発生した圧力波のスペクトル解析を行うと、得られた1次モードは約 13000Hz であり、領域内平均音速による音響1次モードとほぼ一致する。また、振動数が2倍の2次、3倍の3次モードと非常に規則的なモードから構成される圧力波であることがわかった。

<まとめ>

詳細反応機構を用いた圧縮性流体解析法によって、 $n\text{-C}_4\text{H}_{10}$ /空気の定容容器内末端ガス着火・振動の1次元シミュレーションを行った。本解析法により、末端ガス着火、それにより誘導される大振幅振動をとらえることができた。末端ガスが着火する際には、前方から伝搬する火炎は一時停滞すること、着火に伴う圧力や温度上昇は末端ガス

全体で起きるのではなく、断熱壁近傍から発生することがわかった。振動を伴わない場合には、末端ガスは自着火の傾向を示すものの、自着火前に高温火炎が通過することで、振動が抑制されることが示された。代表的な化学種時間変化においても、振動を伴わない場合には火炎通過による急激な変化が見られ、自着火し大振幅振動を伴う場合との差異が見られた。

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 4 件)

森井雄飛、寺島洋史、越光男、清水太郎「剛直性の強い化学反応方程式に対する高速時間積分法の評価」日本燃焼学会誌、印刷中 (2014) 査読有。

寺島洋史、越光男「大規模詳細反応機構を考慮した圧縮性燃焼流シミュレーションを可能とする高速・高効率な数値解析手法の開発とその評価」日本燃焼学会誌 55、411-421、(2014) 査読有。

Y.Daimon, H.Terashima, M.Koshi, "Chemical kinetics of hypergolic ignition in N₂H₄/N₂O₄-NO₂ gas mixtures", J. Propulsion and Power, in press, (2014) 査読有。

H.Terashima, M.Koshi, C.Miwata, T.Mogi, R.Dobashi, "Effects of initial diaphragm shape on spontaneous ignition of high pressure hydrogen in a two-dimensional duct", International Journal of Hydrogen Energy, in press (2014) 査読有。

[学会発表](計 11 件)

森井雄飛、寺島(石原)洋史、越光男、清水太郎、障害物を含む管内高圧水素放出における自着火メカニズム、平成 25 年度衝撃波シンポジウム、相模原、2014。

谷洋海、寺島(石原)洋史、大門優、越光男、常温下におけるヒドラジン/NO₂ 同軸噴流の自着火メカニズム、第 51 回燃焼シンポジウム、東京、2013

森井雄飛、寺島(石原)洋史、越光男、清水太郎、流体解析における化学反応方程式のシンプルかつロバストな高速時間積分法、第 51 回燃焼シンポジウム、東京、2013。

寺島(石原)洋史、越光男、詳細反応機構/圧縮性流体解析法による定容容器内末端ガス自着火・振動現象のシミュレーション、第 51 回燃焼シンポジウム、東京、2013。

佐藤圭峰、藤本英史、寺島(石原)洋史、草鹿仁、森井雄飛、詳細な素反応過程を考慮したエンジン燃焼シミュレーション、第 51 回燃焼シンポジウム、東京、2013。

H. Terashima, M. Koshi, C. Miwada, T. Mogi and R. Dobashi, "Numerical Simulations of spontaneous ignition of high-pressure hydrogen based on detailed chemical kinetics," 5st International Conference on Hydrogen Safety (ICH2013), Brussels, Belgium, September

(2013).

寺島(石原)洋史、大規模詳細反応機構を考慮した高速・高効率反応性流体解析技術の構築、日本機械学会「RC255 先進的な計測技術と解析手法による燃焼現象の解明と技術進展に関する国際協力研究分科会」、第 7 回分科会、東京、2013。

寺島(石原)洋史、反応性熱流体シミュレーション技術の新展開：超大規模詳細反応機構の組み込み論確立とその適用、筑波大学構造エネルギー工学セミナー、つくば、2013。

森井雄飛、寺島(石原)洋史、越光男、清水太郎、数値流体解析を用いた壁面形状が高圧水素自着火に与える影響の調査、日本流体力学学会年会、東京、2013。

森井雄飛、寺島(石原)洋史、越光男、清水太郎、流体との連成を可能とする大規模反応方程式高速時間積分法の評価、自動車技術会 2013 年秋季大会、名古屋、2013。

寺島(石原)洋史、森井雄飛、越光男、茂木俊夫、土橋律、管内高圧水素放出に誘起される自着火現象の数値解析：初期膜形状の影響、第 27 回数値流体力学シンポジウム、名古屋、2013。

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

越光男 (Koshi Mitsuo)

横浜国立大学環境情報研究院・非常勤職員
研究者番号：20133085

(2)研究分担者

石原(寺島)洋史 (Terashima Hiroshi)

東京大学工学系研究科・准教授

研究者番号：20415235