



## 躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

# Flamelet approachに基づく 化学反応を伴う熱流体解析

Computational Thermo-fluid Dynamics with Chemical Reactions  
Based on Flamelet Approach

松下洋介 東北大学  
大学院工学研究科 化学工学専攻  
准教授  
Yohsuke Matsushita

## 1 はじめに

この度、本稿を執筆させていただく機会をいただき、関係者に感謝し、厚くお礼お礼申し上げますとともに、著者が取り組んでいる研究テーマの1つである Flamelet approach<sup>1,2)</sup>に基づく化学反応を伴う熱流体解析について紹介させていただきます。なお、本研究テーマは著者が東北大学の研究大学強化促進事業「若手リーダー研究者海外派遣プログラム」に採択いただき、2014年10月から2015年9月までの1年間、英国 Loughborough 大学の Prof. Malalasekera を訪問したことを機会に始めた研究であり、帰国後の現在も引き続き同教授と国際共同研究を実施しているテーマです。

## 2 化学反応を伴う熱流体解析の難しさ

そもそも、化学反応を伴う熱流体解析では、熱流体の運動に加えて、ショックチューブや量子化学計算から構築された最も信頼性が高い詳細化学反応機構を用い、これに含まれる化学反応により生成・消失する化学種の保存式を解く熱・物質移動をそのまま直接解くのが直感的であり、理想的である。ここで、燃焼などに代表される化学反応を伴う熱流体解析の難しさは大別して3つあり、1つ目は解くべき化学種の保存式の数の多さ、2つ目は化学反応と熱流体の運動の時間スケールの差、3つ目は乱流燃焼を対象とする場合の Reynolds-Averaged Navier-Stokes (RANS)<sup>3)</sup>あるいは Large Eddy Simulation (LES)<sup>4)</sup>における化学反応速度の推算である。1つ目の解くべき化学種の保存式の数の数について、最も単純な低級炭化水素であるメタンの燃焼でさえ、現在最も支持されている GRI-Mech 3.0<sup>5)</sup>には53の化学種と325の化学反

応が含まれ、高級炭化水素では数百から数千の化学種、数千から数万の化学反応がそれぞれ含まれる。これら化学種の保存式すべてを解くのは計算負荷の観点から現実的ではないことが容易にわかる。2つ目の化学反応と熱流体の運動の時間スケールの差について、化学反応の時間スケールはナノ秒から数秒オーダーと幅広いのに対し、熱流体の運動の時間スケールはマイクロ秒オーダーである<sup>6)</sup>。燃焼に関与する化学反応の時間スケールはNO生成など一部の反応を除き極めて小さいことを考えると、比較的長時間スケールの小さい化学反応と時間スケールの大きい熱流体の運動を連成する、いわゆるマルチスケールとなることになる。そのため、化学反応の時間スケールに合わせて解析を実施し、時間平均値を求めようとすると、計算すべきステップ数が増加することでやはり計算負荷が膨大となってしまうことが予想できる。3つ目のRANSあるいはLESにおける化学反応速度の推算について、一般に化学反応速度はアレニウス型の反応速度式に従うとして推算されるが、この化学反応速度をRANSで用いる時間平均あるいはLESで用いる空間平均を施す方法論が確立されていない。これは反応速度が温度に対して極めて非線形に変化するためであり、RANSやLESとともにアレニウス型の反応速度式をそのまま用いることができないことがわかる。RANSやLESとともにアレニウス型の反応速度式を用いた研究を目にするが、これらは厳密にはすべて間違いである。

## 3 Flamelet approachに基づく 化学反応を伴う熱流体解析

### 3.1 Flamelet approachの概要

Flamelet approachでは、目的とする三次元の燃焼シミュレーションに先立ち、詳細化学反応機構を用いることが可能

な一次元の予混合火炎や対向流拡散火炎などの単純な系を対象に、燃焼シミュレーションを実施する。Flamelet approachの一種であり、近年報告の多い予混合火炎を対象とするFlamelet-Generated Manifolds method (FGM)<sup>7)</sup>や拡散火炎を対象とするFlamelet/Progress-Variable approach (FPV)<sup>8)</sup>では、酸化剤と燃料の混合を表す混合分率 $Z$ と反応全体の進行を表すControlling VariableあるいはProgress Variable (PV)と呼ばれる反応進行変数 $C$ に対して一次元の燃焼シミュレーションの定常状態における数値解である化学種の化学種の濃度や温度、混合気の物性値や反応進行変数の正味の生成速度などをFlamelet tableと呼ばれるデータベース $f(Z, C)$ に保存する。なお、先に述べたとおり、これは燃焼に関与する化学反応の時間スケールは熱流体の運動と比較して極めて小さいため、熱流体の運動に基づく時間刻みにより決定される各時刻では化学反応は定常状態に達していると仮定できるためである。目的とする三次元の燃焼シミュレーションでは、連続の式とNavier-Stokes式に加えて混合分率と反応進行変数2つの保存式を解き、あらかじめ作成したFlamelet tableを参照することでその他すべての変数を定めることで間接的ではあるものの詳細化学反応を考慮した断熱火炎の燃焼シミュレーションが実現可能となる。近年では、同じ解析対象に対してFGMとFPV両方のFlamelet tableを作成し、目的の三次元の燃焼シミュレーションにおいてFlame Indexと呼ばれる局所の燃焼モードを識別可能なパラメータを考え、予混合火炎と拡散火炎をシームレスにモデル化する試みもなされている<sup>9)</sup>。

### 3.2 Flamelet approachにおける熱損失の取り扱い

壁面がなくふく射伝熱による熱損失も極めて小さい一部のターゲットフレームを除き、一般的な燃焼場では壁からあるいはふく射伝熱による熱損失は無視できないほど大きい。著者の知る限り、Flamelet approachで熱損失 $H$ を表現する方法は大別して2つあり、Flamelet tableを構築する際の一次元の燃焼シミュレーションにおいて、系全体に一律な熱損失を与える方法<sup>10)</sup>および正味の熱発生速度あるいはふく射熱流束の発散に係数を乗じて系から熱損失を表現する方法<sup>11)</sup>である。前者では、系全体から一律に熱損失を与えるため、数値解を $f(Z, C, H)$ とそのままFlamelet tableに保存することができるものの、与えられる熱損失の大きさに限界がある。一方、後者では、反応によって系内に与える熱損失の分布が生じるため反応の生じない一部領域に熱損失を与えられないものの、究極的には失火に至るまでの大きな熱損失を与えることができる。

### 3.3 Flamelet approachにおける乱流変動の取り扱い

乱流燃焼を対象とする場合、一般に乱流流れの解析手法にはRANSやLESが広く用いられるが、時間平均あるいは空間

平均操作により失われる乱流流れによる変動成分をモデル化する必要がある。一般には、変動成分の統計量の確率密度分布 (Probability Density Function, PDF) を考え、PDFをあらかじめ定めるいわゆるPresumed PDFとPDFの輸送方程式を解く方法に大別されるが、PDFの輸送方程式を解く方法は計算負荷が極めて高く、また計算が不安定になりやすいため、Presumed PDFが広く用いられている。この場合、混合分率、反応進行変数、エンタルピーのうち、反応進行変数やエンタルピーと比較して混合分率の変動が大きいと、混合分率の変動のみを考慮する場合がほとんどである。なお、混合分率の変動のPDFには $\beta$ 関数が用いられる場合が多い。LESの解像度が高いほど、モデル化される変動成分が小さくなり、PDFの形状もさほど重要とはならないことから、近年ではFlamelet tableの容量を削減するために、PDFにTop hat関数を用いた研究も報告されている<sup>12,13)</sup>。

## 4 Flamelet approachを用いた燃焼シミュレーション結果

Turbulent Non-premixed Flame (TNF) のターゲットフレームの1つであるSandia Flame D<sup>14,16)</sup>を対象に、燃焼モデルにFPVを用いたLESを実施したシミュレーション結果を紹介する。図1<sup>17)</sup>に経過時間0.2 sにおける速度、混合分率、温度、CO、CO<sub>2</sub>、OHの質量分率の瞬時値の空間分布をそれぞれ示す。パイロット火炎によって保炎されたメタン/空気の部分予混合火炎の様子が示されている。また、メタンのジェットは下流に向かって減衰しながら、周囲の空気と混合することで高温場が形成されるとともに、燃焼生成物であるCO<sub>2</sub>だけでなく、中間生成物であるCOやOHの分布も表現されている。

図2<sup>14,17)</sup>に中心軸上の混合分率の時間平均値とその変動、温度、CH<sub>4</sub>、CO、CO<sub>2</sub>、OH、H<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>Oの質量分率の時間平均値を実験結果とともに示す。混合分率の時間平均値とその分散は実験値とほぼ完全に一致している。そのため、熱流体の乱流流れと混合分率を正確に再現できていると考える。混合分率、その分散と反応進行変数をパラメータとしてFlamelet tableから求めた温度と各化学種の質量分率の時間平均値も実験結果とほぼ完全に一致している。そのため、Flamelet tableが妥当であり、FPVがSandia Flame Dを表現可能な優れた燃焼モデルであることがわかる。

## 5 おわりに

本稿では、著者が近年実施しているFlamelet approachに基づく燃焼シミュレーションについて紹介した。Flamelet

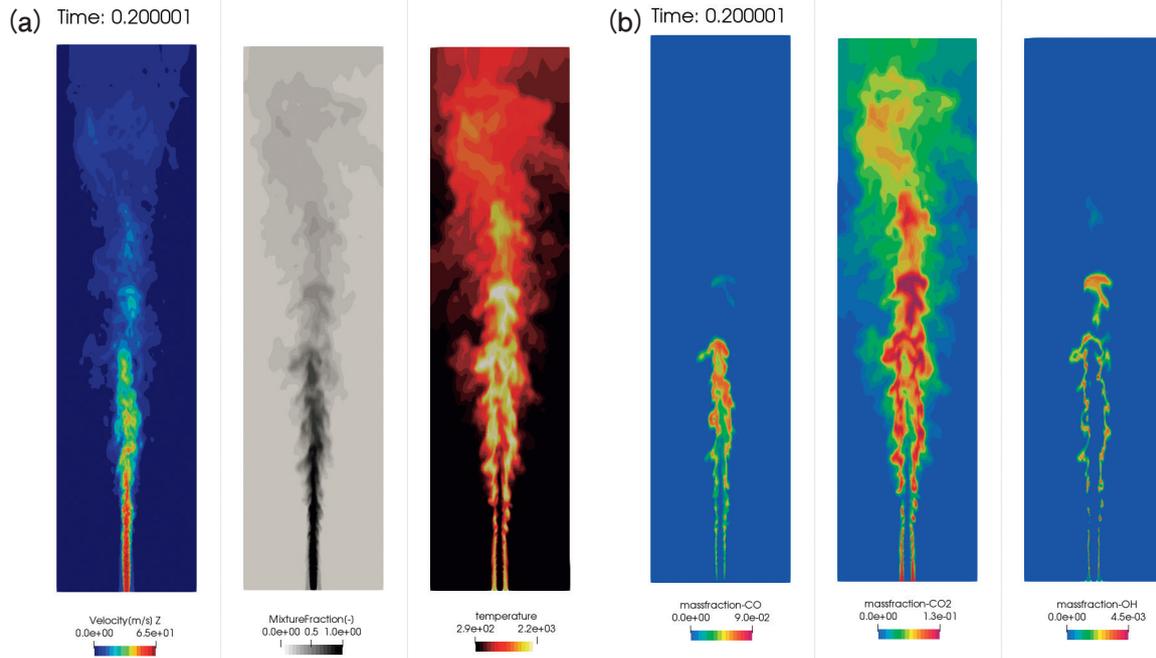


図1 (a) 軸方向速度成分, 混合分率, 温度の瞬時値、(b) CO, CO<sub>2</sub>, OHの質量分率の瞬時値

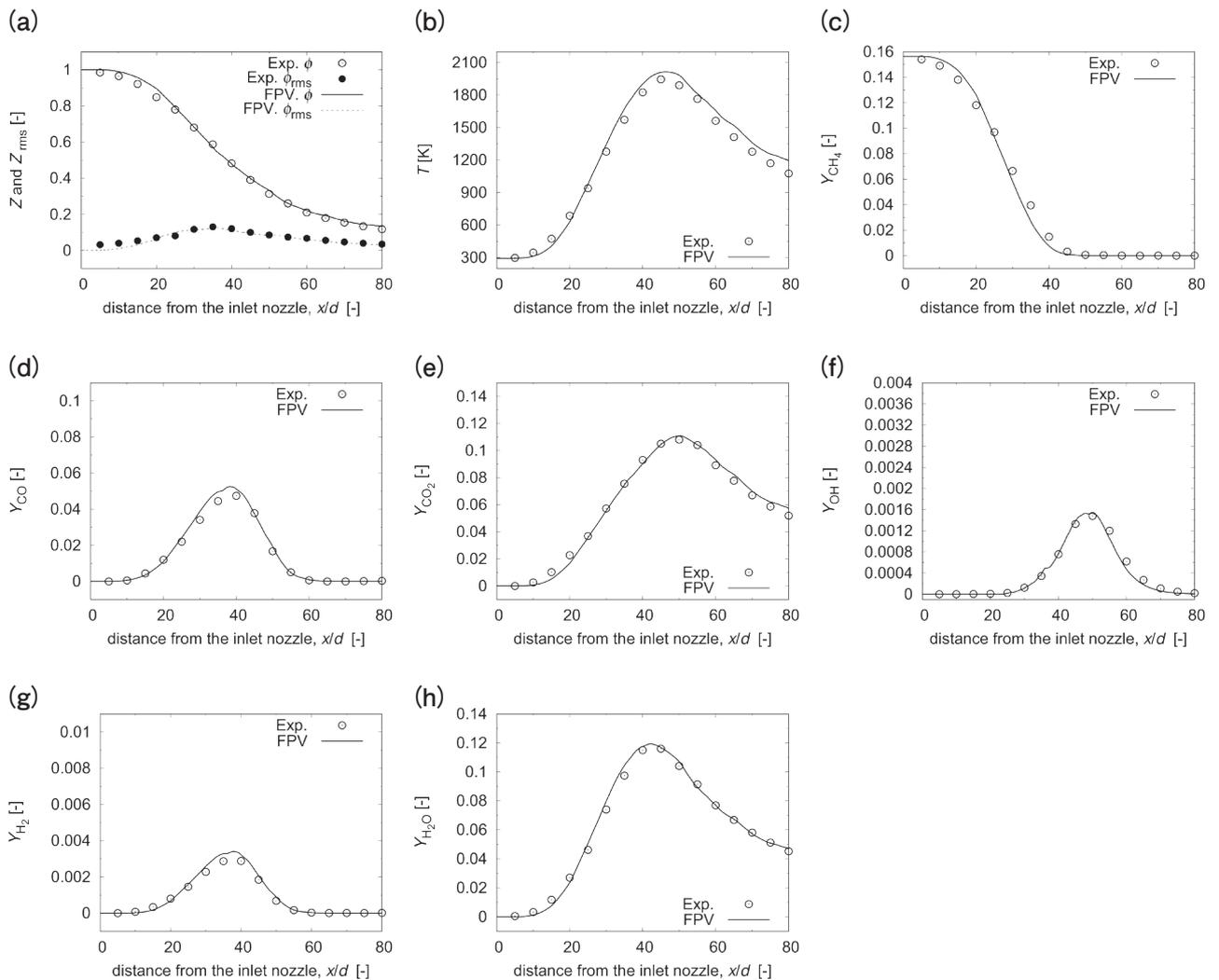


図2 中心軸上の時間平均値  
 (a) 混合分率、(b) 温度、(c) CH<sub>4</sub>の質量分率、(d) COの質量分率、(e) CO<sub>2</sub>の質量分率、(f) OHの質量分率、(g) H<sub>2</sub>の質量分率、(h) H<sub>2</sub>Oの質量分率

approachは詳細化学反応機構の情報を失うことなく現実的な計算負荷で燃焼シミュレーションを実施可能な魅力的な燃焼モデルである。そのため、Flamelet approachはガス燃焼だけでなく、噴霧燃焼や近年では微粉炭燃焼にも適用されつつある<sup>18-21)</sup>。ただし、境界条件を変更するたびにFlamelet tableを作成しなければならないため、Flamelet approachは産業界ではさほど用いられていないように思える。Flamelet approachを産業界で用いるためにはFlamelet tableを自動的に作成するなどの工夫が必要であろう。

#### 参考文献

- 1) N.Peters : Prog. Energy Combust. Sci., 10 (1984), 319.
- 2) N.Peters : Symposium (International) on Combustion, 21 (1988) 1, 1231.
- 3) W.P.Jones and B.E.Launder : Int. J. Heat Mass Transf., 15 (1972), 301.
- 4) J.Smagorinsky : Mon. Weather Rev., 91 (1963), 99.
- 5) G.P.Smith, D.M.Golden, M.Frenklach, N.W.Moriarty, B.Eiteneer, M.Goldenberg, C.T.Bowman, R.K.Hanson, W.C.Soonho Song, J.Gardiner, V.V.Lissianski and Z.Qin : GRI-Mech 3.0. [Online]. Available : [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/)
- 6) U.Maas and S.B.Pope : Combust. Flame, 88 (1992), 239.
- 7) J.A.V.Oijen and L.P.H.De Goey : Combust. Sci. Technol., 161 (2000), 113.
- 8) C.D.Pierce and P.Moin : J. Fluid Mech., 504 (2004), 73.
- 9) X.Wen, Y.Luo, K.Luo, H.Jin and J.Fan : Fuel, 188 (2017), 661.
- 10) M.Hossain, J.C.Jones and W.Malalasekera : Flow, Turbul. Combust., 67 (2001), 217.
- 11) P.Wollny, B.Rogg and A.Kempf : Fuel, 216 (2018), 44.
- 12) J.Floyd, A.M.Kempf, A.Kronenburg and R.H.Ram : Combust. Theory Model., 13 (2009), 559.
- 13) C.Olbricht, O.T.Stein, J.Janicka, J.A.v.Oijen, S.Wysocki and A.M.Kempf : Fuel, 96 (2012), 100.
- 14) R.S.Barlow and J.H.Frank : Symp. Combust., 27 (1998), 1087.
- 15) R.Barlow, J.Frank, A.Karpets and J.Chen : Combust. Flame, 143 (2005), 433.
- 16) C.Schneider, A.Dreizler, J.Janicka and E.P.Hassel : Combust. Flame, 135 (2003), 185.
- 17) 赤尾津翔大, 松下洋介, 青木秀之 : SENAC, 52 (2019) 3, 1.
- 18) J.Watanabe and K.Yamamoto : Proc. Combust. Inst., 35 (2015), 2315.
- 19) J.Watanabe, T.Okazaki, K.Yamamoto, K.Kuramashi and A.Baba : Proc. Combust. Inst., 36 (2017), 2155.
- 20) S.Akaotsu, Y.Matsushita, H.Aoki and W.Malalasekera : Adv. Powder Technol., 31 (2020), 1302.
- 21) S.Akaotsu, Y.Matsushita, H.Aoki and W.Malalasekera : Adv. Powder Technol., 31 (2020), 4253.

(2020年11月24日受付)

## 先輩研究者・技術者からのエール

東北大学 大学院工学研究科 化学工学専攻 教授

塚田 隆夫

松 下先生の化学反応を伴う熱流体解析に関する原稿を大変興味深く拝見し、燃焼の数値モデル化そして数値シミュレーションに対する松下先生の熱意と情熱に感銘を受けました。私は、松下先生と同じ専攻に所属しており、先生ご自身あるいは先生がご指導された学生の修士論文、博士論文を通して先生の研究内容、研究への考え方・取り組み方等を長年拝見してきましたので、燃焼シミュレーション分野で既に国内外で高く評価されている松下先生ですが、少しだけコメントさせていただきます。

松下先生は、大学院生の頃から燃焼に関わる数値シミュレーションの研究をされてきました。常に、ご自身あるいは共同研究により獲得された実験結果、特に実機による実験結果との比較を通して、「使える・役立つ数値シミュレーション」を目指してこられたように思います。工学におけるシミュレーションは、現象解明だけでなく、定量的な解析を通してプロセスの設計・最適化に貢献することが不可欠ですから、重要な取り組みかと思えます。「使える・役立つ数値シミュレーション」には、乱流モデルや反応モデルをはじめとする数値モデルの精緻化はもちろんです。現実的な計算時間で結果が得られることも極めて重要です。今回紹介されたガス燃焼シミュレーションへのFlamelet approachの導入においても、燃焼過程で生じる複雑な化学反応をできる限り正確かつ効率的に予測するかを考慮しての選択であったと思

います。特に、Flamelet approachの各種方法の定量的比較やFlamelet tableの作成、引用法等の工夫を通して最適なモデル構築に努められ、従来にない計算結果と実験結果の完全な一致を示されたことは、松下先生のモデル化への熱意の表れかと思えます。また、松下先生は、数値モデルに限らず、並列マシンの導入やプログラムの並列化を積極的に行い、モデル、ハード・ソフトの面から効率化を図られています。なお、松下先生は、当該研究のスタートは英国への留学がきっかけと述べられていましたが、松下先生の豊かな想像力をもってすれば、留学が無くとも、本研究は構想・実行されていたものと想像します。

本文中にも述べられていましたが、松下先生は、ガス燃焼に限らず、噴霧燃焼や微粉炭燃焼といった化学反応を伴う多相系熱流体シミュレーションへのFlamelet approachの導入を現在展開されています。さらに、燃焼に限らず、松下先生のシミュレーションに関わる知識や技術を、新材料開発をはじめとする他分野へも積極的に展開していただきたいと思えます。数値シミュレーションは、現状海外の方がリードしているようにも思えます。ぜひ、世界をリードする、そして産業界でも「使える・役に立つ数値シミュレーション」技術の開発を大いに期待します。

松下先生の益々のご発展を祈念します。

JFEスチール(株)スチール研究所 主席研究員

佐藤 道貴

松 下先生が燃焼や流体解析・シミュレーション分野での第一人者であることは存じ上げておりましたが、先生との交流を深めるきっかけとなったのは、微粉炭燃焼などに関する助言を頂くため、2015年に英国のLoughborough大学に留学中の先生をお訪ねしたことだったと思います。共同研究者のProf.Malalasekeraは流体解析等の分野では世界的権威であり、このような先生とどのような研究をなさるのか、大きな興味を持って訪問したことを良く覚えております。

その後のご活躍については周知の通りですが、本稿でご紹介のFlamelet approachも上述の共同研究から発展した技術の一つと理解しております。この方法は、詳細な化学反応メカニズムを考慮しつつ精緻な熱流体解析を行うことを可能としたもので、本文中の計算結果にも示されていますように、極めてリアルで精度の高い解析結果が得られています。特に図1は現実と見紛うばかりの美しさで、科学者というより芸術家の手によるものようです。

ここに至るまでには大変なご苦勞があったことと拝察致します。何千、何万もの化学反応の中から、いかに本質を損なわずに主要な反応を抽出するのか、乱流場の計

算を実用的な時間内で如何にして解くかなど、一つ一つ熟考し工夫を重ね、また問題に直面する度、ひた向きに、むしろ嬉々として取り組み、先生独自のセンスにより解決に導いてきた様子が目に浮かぶようです。このような先生の研究姿勢があったからこそこの偉業だと思います。

鉄鋼業は今、CO<sub>2</sub>問題などを背景にゼロカーボンスチールへの急激な転換が迫られています。従来の還元材である微粉炭やコークスに代わり、これまで経験のない水素や天然ガスなど水素系ガスの使用が加速していくことが予想されています。従って、微粉炭と水素系ガスの高温・高圧場における混合燃焼といった、非常に複雑な(我々の手には負えない!)現象の解明はこれからの検討課題としてそのまま残されています。

松下先生は、間違いなく今後20年間、燃焼や流体解析の分野を牽引して行かれる方でしょう。Flamelet approachを上記混合燃焼場の解析に適用することも是非ご検討いただきたく存じますが、それに拘ることなく、今後とも解析技術を通してゼロカーボン実現にお力添え頂きたいと思っております。

最後になりますが、松下先生の益々のご活躍を心から祈念するとともに、エールを贈らせて頂きます。