

# 大規模詳細反応を考慮した流体の高速・高効率計算法の開発： ダイナミックマルチタイムスケール法の適用

寺島洋史, 越光男 (東大), 森井雄飛 (総研大)

## A fast and efficient method for simulations of reacting flows with large detailed chemical kinetics: application of a dynamic multi-timescale method

Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi (Univ. of Tokyo), and Youhi Morii (Grad. Univ. for Advanced Studies)

### ABSTRACT

A dynamic multi-timescale (MTS) method is introduced to a well-validated computational fluid dynamic (CFD) solver, aiming at development of a fast and efficient method for simulations of reacting flows with large detailed chemical kinetics. The performance and capability of the MTS method are validated for several reaction systems and a wide range of pressure and temperature conditions, showing its accuracy and dramatic reduction of computational time, relative to a conventional direct integration method (VODE). Shock tube problems are used to examine the performance of the MTS method on the CFD solver, demonstrating its potential of handling reactive flow simulations with large detailed chemical kinetics efficiently.

### 1. Introduction

複雑な燃焼反応系に対する詳細化学反応機構の自動生成 [1, 2] が可能になってきた現在, 新たな燃料設計や高効率・低公害燃焼器開発 (着火特性や消炎現象の予測) を行う上で, 大規模詳細反応機構を数値流体解析 (CFD) に取り込むことが強く要望されている。

しかし, 大規模詳細化学反応機構を CFD 解析に組み込む場合, 次の 3 点が大きな問題になると考えられる: 1) 化学反応方程式の強い硬直性, 2) 化学種移流方程式の増加, 3) 混合輸送係数の計算時間増加. これらの問題から, 数百数千の化学種, 数千数万の素反応から構成される大規模詳細化学反応機構を CFD 解析コードに取り込むことは容易でなく, 非常に挑戦的な課題となっている. 実際, 大学や研究所で開発されたコードをはじめ, 商用汎用コードにおいても, 大規模詳細化学反応機構を適用できる CFD 解析コードは未だ無く, 開発途上といえるだろう。

1 目目の硬直性の問題は, 化学種間の特性時間が大きく異なることが原因である. 例えば, 高圧水素燃焼では, 陽解法を使用した場合, 時間刻み幅として  $\Delta t = 10^{-12} \sim 10^{-13}$  s 程度が必要という報告もあり [3], そのような時間刻み幅を用いて CFD 解析を行い, 結果を得ようとするのは非現実的である. また, 通常の CFD 解析では, 化学種の数だけ移流方程式を解かなければいけない. 数千の化学種の移流方程式を解くことはやはり現実的ではない. これが 2 目目の問題点である. 3 目目の問題は, あまり取り上げられないが, 化学種数が 20 を超えると, 混合気体の輸送係数の評価が反応性流体計算の律速になるという問題として知られている [4].

これらは, いずれも解決しなければいけない問題であるが, 本研究では 1 目目の問題に焦点を当てる. 方程式の硬直性を避けるには, 陰解法の使用や速い反応プロセスの除去, 例えば, Intrinsic low-dimensional manifold (ILDM) [5] の適用などが行われる. 実際, ソフトウェアとして提供されている VODE (後退微分公式法により硬い微分方程式を解く) [6] や DASPK (後退微分公式に基づき, 硬い常微分方程式と同様に微分代数方程式も扱える) [7] は, 0 次元問題に対しては非常に強力かつ高速な手法であるが, 化学種数の増加に伴い, 初期化と行列計算の必要性から, 多次元 CFD 解析への適用が困難となる. ILDM 法も効率的な方法であるが, 低次元の manifold 作成など, 複雑な炭化水素系では未だ適用が困難である。

そこで, 本研究では, 計算負荷や多次元 CFD 解析への応用容易性を考え, 最近, Gou et al. [8] により提案された dynamic multi-timescale (MTS) 法に注目した. 本論文では, MTS 法を幅広い条件で計算速度や精度を確認し, 実際に CFD 解析との連成を行うことで, その可能性を示す。

我々は, 2 目目の問題に対しても, 解くべき方程式の劇的な削減を目指し別途研究を進めており [9], 最終的には大規模詳細化学反応機構を CFD 解析に組み込める高速・高効率アプローチの開発を目指している。

### 2. Numerical method

本研究では, 非粘性反応流を考え, オイラー方程式を支配方程式とする (記述は 1 次元とし, 粘性, 熱伝導, 拡散は無視する):

$$\frac{\partial Q}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial x} = S, \quad (1)$$

ここで、保存量ベクトル  $\mathbf{Q}$ 、流束ベクトル  $\mathbf{E}$ 、そして生成ベクトル  $\mathbf{S}$  はそれぞれ、

$$\mathbf{Q} = \begin{pmatrix} \rho \\ \rho u \\ E \\ \rho Y_i \end{pmatrix}, \quad \mathbf{E} = \begin{pmatrix} \rho u \\ \rho u + p \\ (E + p)u \\ \rho u Y_i \end{pmatrix}, \quad \mathbf{S} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ \omega_i \end{pmatrix}, \quad (2)$$

と構成され、密度  $\rho$ 、速度  $u$ 、全エネルギー  $E$ 、圧力  $p$ 、化学種  $i$  の質量分率  $Y_i$ 、質量当たりの反応生成速度  $\omega_i$  である。理想気体の状態方程式を用いる。よって、全エネルギーと圧力は、

$$E = -p + 0.5\rho u^2 + \sum \rho Y_i h_i, \quad (3)$$

$$p = \rho \left( \sum Y_i R / M_i \right) T, \quad (4)$$

と定義される。ここで、 $R$  は気体定数、 $h_i$  はエンタルピー、そして  $M_i$  は分子量である。

流体と反応の時間スケールの違いを考慮し、式 (1) に対し、流体移流項と反応生成項を別々に解く splitting を適用する。つまり、保存量  $\mathbf{Q}$  の更新は、

$$\mathbf{Q}^{n+1} = L_F L_R \mathbf{Q}^n, \quad (5)$$

ここで、流体オペレーター  $L_F$ 、反応オペレーター  $L_R$  をそれぞれ次のように定義する：

$$L_F : \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial x} = 0, \quad (6)$$

$$L_R : \frac{d\mathbf{Q}}{dt} = \mathbf{S}. \quad (7)$$

式 (7) では、密度と内部エネルギーは一定であると仮定して反応方程式のみを解く。式 (5) は系として時間 1 次精度に限定されるが、Splitting における精度向上には、Strang-type [10] の適用などが考えられる。

### Numerical method for fluid dynamics

流体方程式 (6) に対して、数値流束を AUSM [11] で評価し、MUSCL で高次精度化し、minmod 制限関数を使う。また、時間積分には TVD Runge-Kutta 法 [12] を使用した。

### Numerical method for reactions

移流を無視し、密度と内部エネルギーが一定であると仮定した化学反応方程式 (7) は、次のように書くことができる：

$$\frac{dY_i}{dt} = \frac{\omega_i}{\rho}, \quad (8)$$

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{\sum e_i \omega_i}{\rho c_v}, \quad (9)$$

ここで、 $T$  は温度、 $e_i$  は化学種  $i$  の内部エネルギー、そして  $c_v$  は質量当たりの定積比熱である。ちなみに、CFD 解析から得られた密度、速度、内部エネルギーから、温度は、式 (3) と (4) により、

$$T = \frac{-E + 0.5\rho u^2 + \rho h(T)}{\rho \sum Y_i R / M_i}, \quad (10)$$

と与えられ、反復法で算出される。

式 (8) と (9) を時間積分する際に問題となるのが、化学種間の特性時間の違いによる硬直性である。本研究では、時間刻み幅の制限を避けるため、MTS 法 [8] を適用する。

MTS 法では、化学種の特性時間を減少速度  $D_i$  (反応速度は、 $\omega_i = P_i - D_i$  と書くことができ、 $P_i$  は生成速度である) を用いて評価し、その特性時間に応じて化学種をグループ分けし、グループごとに適切な時間刻み幅を設定して時間積分する。

概念図を図 1 に示す。例えば、fast mode と判断されたグループは小さな時間刻み幅で積分され、収束した時点で計算を終了する (収束したグループの化学種質量分率  $Y_i$  は凍結する、また fast mode ほど速い収束が期待できる)。収束判定は式 (17)、(18) により行う。順に、intermediate mode へと移り、最終的に、slowest mode が、設定された  $\Delta t_{base}$  まで時間積分される。ここで、特性時間が短いグループが時間積分されている間、特性時間が長いグループも、同じ時間刻み幅で積分されていることに注意していただきたい。MTS 法では、全ての化学種が何ら仮定無く積分されるので、準定常法や部分平衡のような仮定が入らないことも利点である。

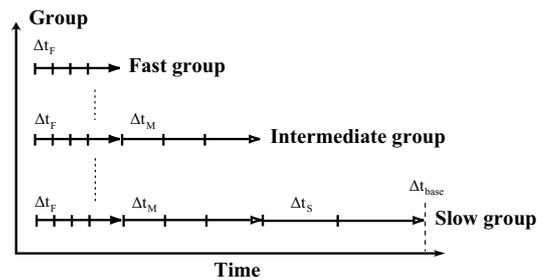


Figure 1: Schematic of MTS method: time integration process.

それぞれのグループの時間刻み幅を  $\Delta t_g$  とすると、式 (8) と (9) は単純な Euler 陽解法を用いて、

$$Y_i^{m+1} = Y_i^m + \Delta t_g \frac{\omega_i}{\rho}, \quad (11)$$

$$T^{m+1} = T^m + \Delta t_g \frac{-\sum e_i \omega_i}{\rho c_v}, \quad (12)$$

と積分される。  $m$  は化学反応式の内部反復ステップを意味し、収束、もしくは  $\Delta t_{base}$  に到達した時点で  $Y_i$  や  $T$  が CFD 解析に受け渡される。

各グループに対する適切な時間刻み幅  $\Delta t_g$  をどのように決めるかが重要となる。まず、化学種の特性時間  $\tau_i$  は、

$$\tau_i = \frac{Y_i}{D_i} \quad (13)$$

と計算することができ、これを基に、生成される全グループ数  $N_T$  とどの化学種がどのグループに所属するかを示すインデックス  $N_i$  を以下のように定義する（グループは  $O(10)$  範囲で分けられる）：

$$N_T = \log_{10} \left( \frac{\Delta t_{base}}{\tau_{min}} \right) + 1, \quad (14)$$

$$N_i = \log_{10} \left( \frac{\Delta t_{base}}{\tau_i} \right) + 1, \quad (15)$$

ここで、 $\tau_{min}$  は最も小さな特性時間であり、原論文では言及されていないが、本研究では、ゼロ割を避けるため、適当な小さな値（例えば  $10^{-14}$ ）で制限している。最終的に、各グループの時間刻み幅は、式 (15) に対応して、

$$\Delta t_g = \alpha \frac{\Delta t_{base}}{10^{N_g-1}} \quad (16)$$

と定義する。  $N_g$  はグループ番号である（例えば、 $N_g = 1$  のとき、 $\Delta t_g = \alpha \Delta t_{base}$ ）。係数  $\alpha$  は、これも原論文では述べられていないが、本研究で導入した  $\alpha \leq 1.0$  の任意の定数であり、計算安定のため  $\alpha = 0.25$  を用いている。

ここで、以上の手順をまとめる。

1. CFD 解析から、 $Y_i$ ,  $T$ ,  $p$  を得る
2. 式 (13) により、化学種の特性時間  $\tau_i$  を評価する
3. 式 (15) により、化学種をグループに分ける
4. 式 (16) で定義される時間刻み幅で式 (11) と (12) に従い、各グループを時間積分する
5. 収束判定は、グループごとに行い、収束したグループはその時点で化学種質量分率  $Y_i$  を凍結する
6.  $\Delta t_{base}$  まで積分後、 $Y_i$ ,  $T$ ,  $p$  を CFD 解析に渡す

先にも書いたが、時間積分は、それぞれのグループが、収束、もしくは  $\Delta t_{base}$  に到達した時点まで行う。すなわち、条件によっては、上位（特性時間が短い）グループが収束せずに、 $\Delta t_{base}$  に到達することもあり得る。その場合、下

位グループを積分する必要はなくなる。収束判定は、以下のように行い、

$$\sum_i^{N_{s,g}} \frac{dY_i/dt}{ATOL + RTOL|Y_i|} < 1.0, \quad (17)$$

かつ、

$$\frac{dT/dt}{ATOL + RTOL|T|} < 1.0, \quad (18)$$

ここで、 $N_{s,g}$  はあるグループに属する化学種数である。また、絶対誤差 ATOL が  $10^{-13}$ 、相対誤差 RTOL が  $10^{-4}$  と設定した。

以下の結果では、全ての計算で、 $\Delta t_{base} = 1 \times 10^{-8}$  s と設定した。圧縮性 CFD 解析で陽解法を使った場合を想定すると、典型的な時間刻み幅と考えられる。

### 3. Validation and performance of MTS

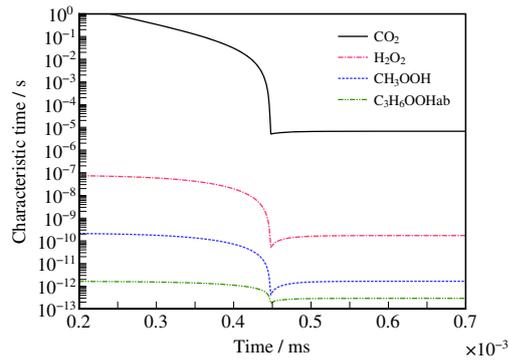
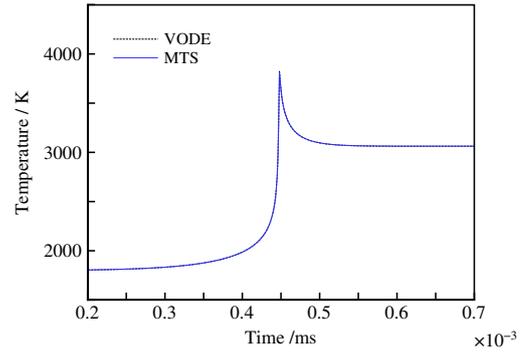
まず、硬直性の例を示すため、化学種特性時間  $\tau_i$ （式 (13)）とグループの変遷（式 (15)）を図 2 に示す。当量比 1 の  $\text{CH}_4/\text{O}_2$  の着火問題で、初期圧力 0.1 atm、温度 1800 K とした。反応機構は、KUCRS [2] で生成され、68 化学種、334 反応から成る。温度履歴は、図 3(a) に示される。

代表的な 4 化学種の結果を示しているが、各化学種の特性時間がダイナミックに変化し（着火時  $t = 0.45$  ms あたりで小さくなる）、それらの値も化学種間で大きく異なっていることがわかる。例えば、 $\text{H}_2\text{O}_2$  は、 $\text{CO}_2$  よりも小さな特性時間を有し、それに応じた時間刻み幅の必要性が示唆される。また、ここで重要なことは、着火後の平衡状態においても、特性時間は決して大きくはならないことである（ $\omega_i \approx 0$  であるが、反応は起こっており、 $D_i$  は値を持つことを意味している）。

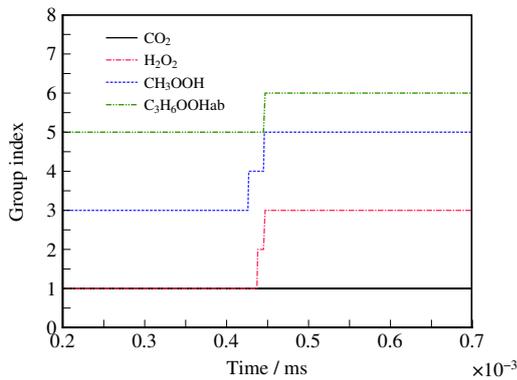
図 2(b) に示されるように、グループ数も時間と共に動的に変化していることがわかる。式 (15) に従ったグループ生成では、最終的に最大 6 つのグループが生成される。この例では、fastest group は、 $\text{C}_3\text{H}_6\text{OOHab}$ 、 $\text{C}_3\text{H}_6\text{OOHba}$ 、 $\text{CHOC}_2\text{H}_4\text{OOHb}$ 、 $\text{CHOC}_2\text{H}_4\text{OOHc}$ 、 $\text{CH}_3\text{COCH}_2\text{OOH}$  から構成されている。

この問題を VODE 法（後退微分公式法を基にした直接積分法）[6] と比較したものを図 3 に示す。MTS 法の結果は、着火遅れ時間や温度履歴、 $\text{CO}_2$  と  $\text{OH}$  のモル分率、いずれも VODE 法の結果とほぼ完全に一致する。

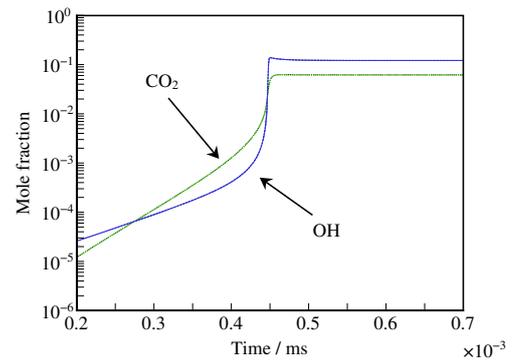
他の例として、当量比 1 の  $\text{nC}_7\text{H}_{16}/\text{O}_2$  の着火問題の結果を図 4 に示す。初期圧力 0.1 atm、温度 1500 K の例である。反応機構は、先と同様に KUCRS で生成され、373

(a) Characteristic time  $\tau_i$ 

(a) Temperature



(b) Group index generated



(b) Mole fraction

Figure 2: Properties on  $\text{CH}_4/\text{O}_2$  ignition problem.Figure 3: Comparison between MTS and VODE for  $\text{CH}_4/\text{O}_2$ .

化学種, 1071 反応から成る. この結果からも, MTS 法により, VODE 法の結果がほぼ再現できることがわかる.

表 1 に, MTS 法と VODE 法による計算時間の比較を示す. 上記の例に加えて,  $\text{H}_2/\text{O}_2$  (初期圧力 0.1 atm, 温度 1000 K, 当量比 1) と  $\text{nC}_4\text{H}_{10}/\text{O}_2$  (初期圧力 0.1 atm, 温度 1500 K, 当量比 1) のケースも示している. 化学種数が増えるにつれて, MTS 法の効率性が VODE 法に比べ劇的に良くなることがわかる. これは, VODE 法などの陰解法が行列演算の必要性から, 少なくとも  $O(N^2)$  (化学種数  $N$ ) で演算量が増えるのに対して, MTS 法は  $O(N)$  で済むためである. この結果により, MTS 法が非常に効率的であり, 多次元 CFD 解析への応用に適した手法であることが示唆される.

最後に, 当量比 1 の  $\text{CH}_4/\text{Air}$  に対し, 異なる初期圧力と温度で着火遅れ時間と平衡温度を比較した結果を図 5 に示す. ここでは, 原論文ではカバーしていない低圧 0.1 atm と高圧 100 atm も含めた. MTS 法の結果は, どの条件においても VODE 法とほぼ一致し, 表 1 に示されたように,  $\text{CH}_4$  の場合, 約 5 ~ 6 倍計算速度が速い.

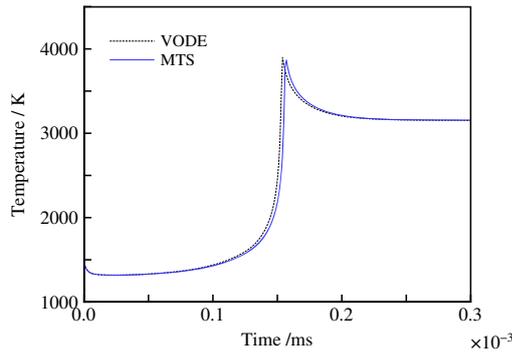
#### 4. Coupling with CFD: a shock tube problem

CFD 解析との連成の例として, 1 次元衝撃波管問題を取り上げた. 当量比 1 の  $\text{H}_2/\text{O}_2$  予混合気を考え, 初期温度 1000 K, 圧力を左半分領域  $p_L = 1.0$  atm, 右半分領域  $p_R = 0.3$  atm と設定した. 計算領域は, 20 cm で, 201 点で解像している.

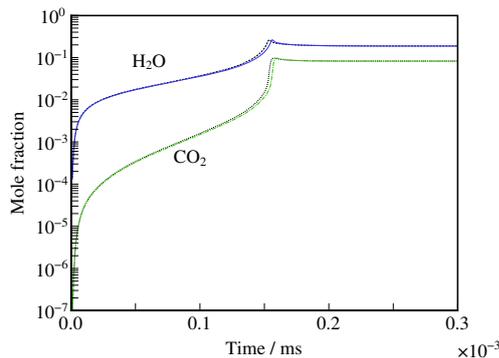
図 6 は, 0.07 ms 後の温度プロファイルを VODE と MTS 法で比較したもので, 衝撃波背後の温度や膨張波領域の温度分布など, ほぼ同様の結果が得られている.

着火過程を示したのが図 7 であり, T2 から T3 にかけて着火が生じ, T3 では燃焼波面が確認できる. T4 にかけて, 燃焼波面が衝撃波に追いつこうとする様子が見られ, このまま計算を続けると爆轟波に移行することが予想される.

同様に, 当量比 1 の  $\text{CH}_4/\text{Air}$  予混合気 (68 化学種) での衝撃波管問題の結果 (温度分布) を図 8 に示す. 領域は, 50 cm で, 201 点を使用する. 左半分では, 初期温度を 1000 K, 圧力を 1 atm とし, 右半分では, 温度 2000 K, 圧力 0.3 atm とした. このケースでは, T3 から T4 にか



(a) Temperature



(b) Mole fraction

Figure 4: Comparison between MTS and VODE for  $nC_7H_{16}/O_2$ .

けて、燃焼波面が衝撃波に追いつき、爆轟波となって伝搬していることがわかる。

CFD 解析との連成における計算時間の効率性は、表 1 に示した 0 次元計算の場合とほぼ同じ程度であることを明記する。

## 5. Conclusions

大規模詳細化学反応機構を CFD 解析に効率的に組み込むことを目的とし、近年提案された MTS 法を導入し、その性能評価や CFD 解析への適用を行った。MTS 法により、通常用いられる直接積分法 VODE に比べて、特に大きな反応系で、劇的に計算時間を削減できることを確認した。各反応系や低圧から高圧まで幅広い条件で、着火特性を再現できることを示した。また、衝撃波管問題によって、CFD 解析への適用を行い、妥当性を検証した。今後の検討課題としては、より大きな時間刻み幅を用いた場合の MTS 法の計算安定性や多次元 Navier-Stokes 方程式への拡張が挙げられる。化学種移流方程式の削減と併せ [9],

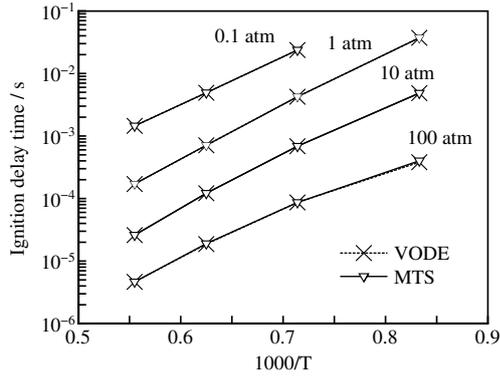
Table 1: CPU time comparison on iMac (Intel core i7), where the Saving is estimated with  $(VODE-MTS)/VODE \times 100$ .

	N	CPU time, s	Saving, %
	MTS/VODE		
$H_2$	11	7.99/9.53	16.1
$CH_4$	68	40.26/231.3	82.6
$nC_4H_{10}$	146	53.67/537.7	90.0
$nC_7H_{16}$	373	100.03/2424.0	95.8

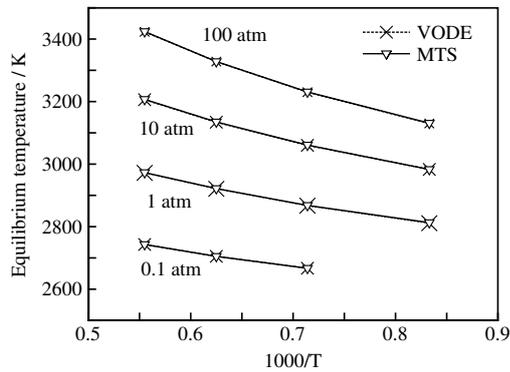
大規模詳細化学反応を考慮した高速・高効率な反応性流体解析ツールを開発する予定である。

## 参考文献

- [1] G. Come, Gas-phase thermal reactions: chemical engineering kinetics, Springer, 2001.
- [2] 三好明, 燃焼詳細反応機構自動生成システムの開発, Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan 36 (5) (2005) 35–40.
- [3] K. Shimizu, M. Koshi, Basic study about stable time integration method and application to CFD of hydrogen oxygen kinetics mechanism, Proceedings of the 2009 annual meeting of JSFM (2009) 194.
- [4] T. Lu, C. Law, C. Yoo, J. Chen, Dynamic stiffness removal for direct numerical simulations, Combustion and Flame 156 (8) (2009) 1542–1551.
- [5] U. Maas, S. Pope, Simplifying chemical kinetics: intrinsic low-dimensional manifolds in composition space, Combustion and Flame 88 (3-4) (1992) 239–264.
- [6] P. Brown, G. Byrne, A. Hindmarsh, VODE: A variable-coefficient ode solver, SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing 10 (5) (1989) 1038–1051.
- [7] P. Brown, A. Hindmarsh, L. Petzold, A description of DASPK: A solver for large-scale differential-algebraic systems, Lawrence Livermore National Report UCRL.
- [8] X. Gou, W. Sun, Z. Chen, Y. Ju, A dynamic multi-timescale method for combustion modeling with detailed and reduced chemical kinetic mechanisms, Combustion and Flame 157 (6) (2010) 1111–1121.
- [9] M. Koshi, K. Shimizu, Development of efficient and stable time integration method for detailed chemical



(a) Ignition delay time



(b) Equilibrium temperature

Figure 5: Comparison between MTS and VODE for a wide range of initial pressure and temperature in case of  $\text{CH}_4/\text{Air}$ .

kinetics by using rate-controlled constrained equilibrium (RCCE) concept, The Asian Joint Conference on Propulsion and Power 2010 AJCPP2010-151.

- [10] M. Crandall, A. Majda, Monotone difference approximations for scalar conservation laws, *Math. Comp* 34 (149) (1980) 1–21.
- [11] M. Liou, C. Steffen, A new flux splitting scheme, *Journal of computational physics* 107 (1) (1993) 23–39.
- [12] S. Gottlieb, C. Shu, Total variation diminishing runge-kutta schemes, *Mathematics of Computation* 67 (221) (1998) 73–85.

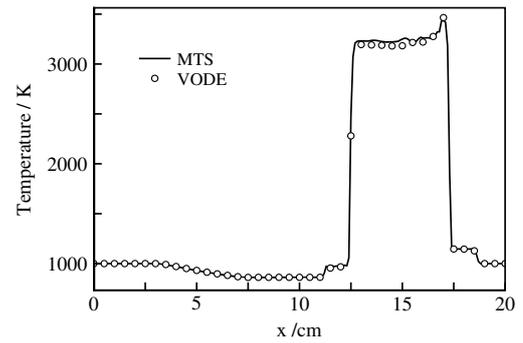


Figure 6: Comparison of temperature profile at 0.070 ms between MTS and VODE for  $\text{H}_2/\text{O}_2$  premixed shock tube problem.

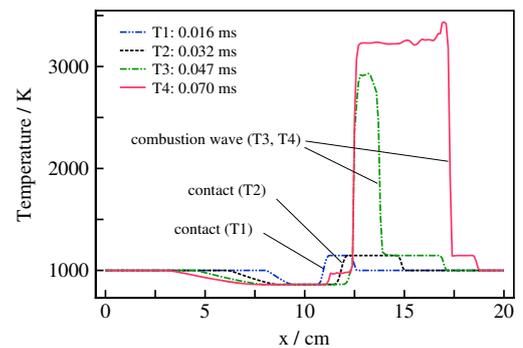


Figure 7: Time histories of temperature profile.

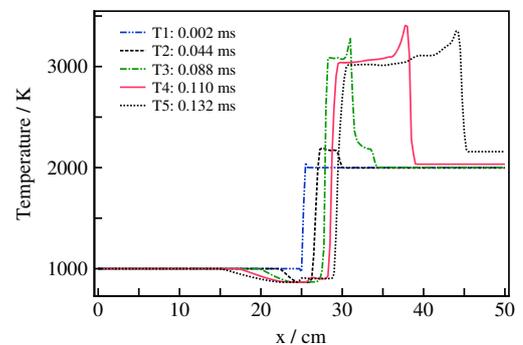


Figure 8: Time histories of temperature profile for  $\text{CH}_4/\text{Air}$  premixed gas.