

仮定確率密度関数法における機械学習を用いた 平均反応速度高速計算手法の確立

High-speed computing of mean reaction rate obtained from assumed probability
density function method using machine learning

研究代表者 徳島大学大学院社会産業理工学研究部 (理工学域) 准教授 名田譲

Yuzuru Nada

In the present study, we clarified the effects of training data used during machine learning combined with Deep Neural Network (DNN) for predicting mean reaction rates, and investigated the conservation of atom mass among reactions predicted from the DNN. The use of training data obtained from opposed diffusion flames and perfect stirred reactors resulted in the over-prediction of reaction rate. In contrast, the linearization proposed in the present study allowed the high-accurate prediction of reaction rate. A DNN combined with data preprocessing based on sub-DNN and additional features was capable of predicting the production rate of species participating in multi-step kinetics mechanism. In addition, the DNN was able to suppress the error of the budget of atom mass within 3%.

要旨

本研究では、反応速度計算に用いるディープニューラルネットワーク (DNN) の機械学習に用いる教師データの影響と、DNN から得られる反応速度の原子質量保存について検討した。対向流拡散火炎や PSR の結果を教師データとして用いた場合では、反応速度の予測精度が悪化するため、シミュレーションが発散する、もしくは温度を過大評価する。本研究で提案する線形化法の前処理を用いた場合、高い精度で反応速度を予測できる。また、多段反応を考慮した DNN では、サブ DNN の使用と特徴量の追加により、反応速度を高い精度で予測できる。この際、原子の質量保存の誤差を 3% 以内に抑えることができる。

1. まえがき

近年の環境問題から、既燃ガスによる希釈効果を利用した燃焼技術⁽¹⁾が用いられている。これらの技術では、燃料および燃焼用空気を希釈することで、反応物の濃度を下げ、燃焼温度を低下させる。これにより、窒素酸化物の排出量を抑制する。

仮定確率密度関数法 (仮定 PDF 法)⁽²⁾は反応速度を直接計算するため、希釈効果による反応物濃度の低下を考慮できる手法である。しかし、仮定 PDF 法では、平均反応速度の計算で確率密度関数 (PDF) を多重積分するため、計算負荷は高くなる。そこで本研究では、計算負荷低減のために、積分により得られる平均反応速度を学習したディープニューラルネ

ットワーク (DNN) を用いる。これにより、平均反応速度の計算負荷を大幅に短縮でき、実用燃焼器のシミュレーションに仮定 PDF 法が適用可能となる。

仮定 PDF 法に機械学習を適用する際に、解決すべき問題が二つ生じる。一つは、教師データの作成である。シミュレーションの前に教師データを基に学習させる必要があるため、シミュレーションの解に適した教師データを用意する必要がある。二つ目として、学習により予測した化学種反応速度は、原子質量の保存を厳密に満足しない点である。質量保存に関する誤差の蓄積は化学種濃度と温度の予測精度を悪化させるだけでなく、計算自体を破綻させる可能性がある。

本研究では、これら二つの点を中心に仮定 PDF 法の計算負荷低減のための機械学習法を検討した。まず、教師データの作成方法に関しては、水素と空気の一段総括反応を用いて、シミュレーション結果、対向流拡散火炎、Perfect Stirred Reactor (PSR) の三種類の教師データを作成し、教師データとシミュレーション結果の関係を調べた。また、原子の質量保存に関しては、メタンと空気の 4 段総括反応を用いたシミュレーション結果を教師データとして、検討を行った。

2. シミュレーション結果に対する教師データの 影響

2.1 計算対象バーナーと計算方法

本研究では、水素と窒素の混合気を燃料とする同軸噴流型乱流拡散火炎である H3 flame⁽³⁾を対象にシミュレーションを行った。支配方程式はレイノルズ平均された、運動量、化学種質量分率およびエンタルピーの保存式 (RANS) であり、それぞれ低マッハ数近似と境界層近似が施されている。これらの保存式は以下の一般形で表される。

$$\frac{\partial \bar{\rho} \bar{u} \varphi}{\partial x} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \left(\bar{\rho} \bar{v} \varphi - \Gamma_\varphi \frac{\partial \varphi}{\partial r} \right) = S_\varphi \quad (1)$$

ここで、 x と r は流れ方向座標と半径方向座標を、 ρ は密度、 u と v は流れ方向と半径方向の流速であり、 $\bar{\cdot}$ と $\tilde{\cdot}$ はレイノルズ平均とファブレ平均を表している。 φ は保存量を表しており、

$$\varphi = [\bar{\rho}, \tilde{u}, \tilde{Y}, \tilde{h}, \sigma_Y, \sigma_h, k, \varepsilon]^T \quad (2)$$

となる。ここで、 Y と h は化学種質量分率と sensible エンタルピーであり、 σ_Y は化学種質量分率の変動の和、 σ_h はエンタルピーの変動を表している。また、本研究では乱流モデルとして標準 k - ε モデルを用いており、式(2)の k と ε は乱流エネルギーとその散逸率である。また、 Γ_φ はそれぞれの保存式の拡散係数であり、

$$\Gamma_\varphi = \begin{bmatrix} 0 \\ \mu + \mu_t \\ \bar{\rho}(D + D_t) \\ \bar{\rho}(\alpha + \alpha_t) \\ \bar{\rho}(D + D_t) \\ \bar{\rho}(\alpha + \alpha_t) \\ \mu + \mu_t / \sigma_k \\ \mu + \mu_t / \sigma_\varepsilon \end{bmatrix} \quad (3)$$

となる。ここで、 μ と μ_t は粘性係数および渦粘性係数、 D と D_t は拡散係数および乱流拡散係数、 α と α_t は熱拡散係数および乱流熱拡散係数である。また、 S_φ は以下の式(4)で表される生成項である。ここで、 $h_{form,\alpha}$ は化学種 α の標準生成エンタルピーを、 \bar{S}_α は平均反応速度である。

$$S_\varphi = \begin{bmatrix} 0 \\ -\bar{\rho}g \\ \bar{S}_\alpha \\ -\sum_{\alpha=1}^{N_s} h_{form,\alpha} \bar{S}_\alpha \\ 2\bar{\rho}D_t \left(\frac{\partial \tilde{Y}_\alpha}{\partial r} \frac{\partial \tilde{Y}_\alpha}{\partial r} \right) - \bar{\rho}\tilde{\chi} \\ 2\bar{\rho}\alpha_t \left(\frac{\partial \tilde{h}}{\partial r} \frac{\partial \tilde{h}}{\partial r} \right) - \bar{\rho}\tilde{\chi} \\ \mu_t \left(\frac{\partial u}{\partial r} \right) \left(\frac{\partial u}{\partial r} \right) - \bar{\rho}\tilde{\varepsilon} \\ \left(C_{\varepsilon 1} \mu_t \left(\frac{\partial u_z}{\partial r} \right) \left(\frac{\partial u_z}{\partial r} \right) - C_{\varepsilon 2} \bar{\rho}\tilde{\varepsilon} \right) \frac{\tilde{\varepsilon}}{\bar{k}} \end{bmatrix} \quad (4)$$

また、エンタルピーの変動 σ_h から、以下の近似式により温度の変動 σ_T が計算される。

$$\sigma_T = \sigma_h / C_p^2 \quad (5)$$

ここで、 C_p は定圧比熱である。その他のパラメータについては文献⁽⁴⁾を参考にされたい。

仮定 PDF 法では、乱流運動による化学種濃度および温度の変動をベータ関数で仮定した PDF で表す。平均反応速度 \bar{S}_α は、ベータ関数で重みづけされた反応速度を積分することで計算される。

$$\bar{S}_\alpha = \nu_\alpha M_\alpha w \quad (6)$$

$$w = \int_0^1 \int_{T_{min}}^{T_{max}} S_\alpha(\hat{T}, \hat{Y}) P_T(\hat{T}) P_Y(\hat{Y}) d\hat{T} d\hat{Y} \quad (7)$$

ここで、 ν_α は反応次数、 M_α は分子量、 w は反応式の反応速度 (mol/m³/s) である。また、 P_Y と P_T は、それぞれ化学種と温度の PDF を、上付きの $\hat{\cdot}$ は確率変数を示す。PDF はベータ関数で仮定され、 P_Y は多変数ベータ関数である。それぞれのベータ関数の形状は、平均値 (\tilde{Y} または \tilde{T}) と変動 (σ_Y または σ_T) により決定される。

用いた反応機構は、以下の一段総括反応⁽⁵⁾である。



総括反応の反応速度はアレニウス式により記述され、

CGI 単位系において、頻度係数は 2.09×10^{11} 、活性化エネルギーは 4.9 kcal/mol である。

計算対象は同軸乱流噴流火炎である H3flame⁽³⁾とした。燃料は水素と窒素の混合気であり、水素の濃度は 50 vol. \% である。図 1 に計算対象の模式図を示す。計算領域は軸対象二次元領域であり、図中、下部から燃料、パイロットガス、空気が流入する。パイロットガスは 2100 K の既燃ガスであり、着火のために与えた。燃料と空気の温度は 298 K としている。燃料の流入速度分布は対数則に従い、最高速度は 42.9 m/s である。パイロットガスと空気の速度は一定であり、それぞれ 0.3 m/s と 0.2 m/s である。

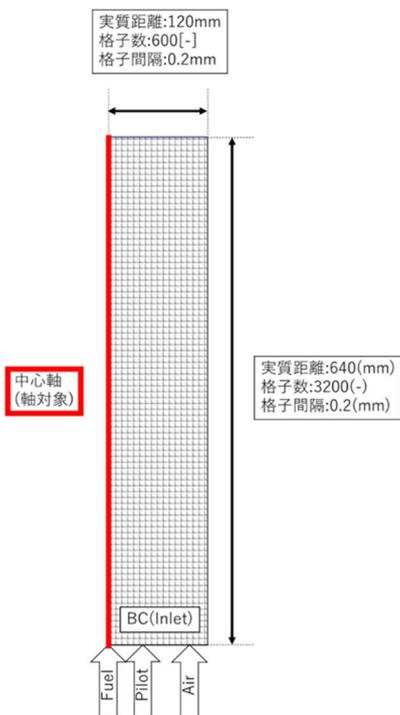


図 1 計算領域模式図

計算は古典的な手法であるマーチングステップ法⁽⁶⁾により行われた。離散化には対流拡散公式⁽⁷⁾を用いている。中心軸と側面の境界条件として、勾配一定の条件を課した。

2.2 機械学習

本研究では、式(7)の積分計算を事前に行い、その結果を DNN に学習させた。図 2 にネットワークの構造図を示す。ネットワークの隠れ層は 8 層であり、各層のノード数はそれぞれ 10, 20, 20, 40, 40, 20,

20, 6 とした。活性化関数には ReLU 関数を用いている。入力である特徴量は前処理済みの密度 ρ^* 、化学種の平均質量分率 \mathbf{Y}^* 、化学種変動の和 σ_Y^* 、平均温度 T^* 、および温度の変動 σ_T^* とした。前処理方法については後述する。出力は反応式の反応速度 \mathbf{w}^* である。また、DNN の学習には Keras⁽⁸⁾ と Tensorflow⁽⁹⁾ を用いた。

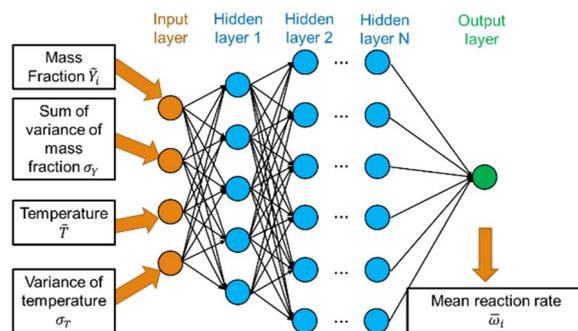


図 2 DNN の模式図

本研究では、教師データとして 3 種類を用いた。一つは、一段総括反応を用いて式(7)の積分計算を直接行いながら RANS シミュレーションを行い、その結果を教師データとした。

二つ目は、水素・空気対向流拡散火炎である。計算には Cantera⁽¹⁰⁾ を用い、用いた燃料と酸化剤は H3flame と同じ成分と温度を与えた。対向ノズルの間隔と流速差から定義されるひずみ速度を $10/s$ から $3000/s$ まで変化させ、49 通りの計算を行った。さらに、温度と化学種の変動をそれぞれ、 1.0×10^{-4} から 2.5×10^6 まで変化させ、合計で 165888 の教師データを得た。

三つ目は、PSR⁽¹⁰⁾ である。燃料と酸化剤は同じものとし、当量比を 0.6 から 2.0 、滞留時間を 0.1 から 8.6×10^{-5} までに設定し、754 通りの計算を行った。考慮した温度と化学種の変動の範囲は対向流拡散火炎の場合と同じとし、合計 152000 の教師データを用意した。

研究では、前処理方法として、以下の二つを用いた。一つは、標準化と正規化に基づく手法であり、 $\rho, \mathbf{Y}, T, \sigma_Y, \sigma_h$ に関しては、

$$\varphi^* = \frac{\varphi - \varphi_{mean}}{\varphi_{std}} \quad (8)$$

とし、反応式の反応速度は

$$w^* = \frac{\ln(w+1) - \ln(w+1)_{min}}{\ln(w+1)_{max} - \ln(w+1)_{min}} \quad (9)$$

とする。ここで、下付きの mean と std は教師データの平均値と分散値、max と min は最大値と最小値である。

二つ目の手法として、対数値に基づく前処理方法を提案する。詳細は文献⁽¹¹⁾を参照されたい。この前処理法を用いることで、反応速度のアレニウスの式を線形化できる。以下、式(8)と式(9)による前処理を標準化法、対数値に基づく前処理方法を線形化法と呼ぶ。

2.3 計算結果

図3はPSRの教師データと標準化法を用いた場合の学習結果を示している。横軸は学習済みDNNによる予測結果を、縦軸は教師データを示している。両者の間には明確な相関が存在しており、相関係数は0.9997である。その他の教師データと線形化法を用いた場合においても、同様の結果が得られている。

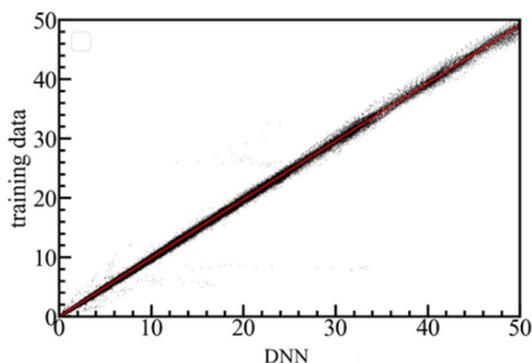


図3 DNNによる予測結果

図4は標準化法により学習させたDNNを用いた場合のシミュレーション結果を示している。図に示した例は燃料ノズル軸上の温度分布 ($r=0$) であり、プロットは実験結果を、図中の線がシミュレーション結果を示している。また、Integration はシミュレーション中に式(7)を直接積分した結果を、DNN(RANS)は直接積分した結果を学習させたDNNの

結果、DNN(ODF)は対向流拡散火炎を教師データとした結果、DNN(PSR)はPSRを教師データとした結果を示している。

DNN(RANS)の結果は直接積分した結果(Integration)と一致しており、一つの曲線に見える。これは、本研究で用いたDNNが適切な教師データを与えれば、正確に反応速度を予測できることを示している。一方で、対向流拡散火炎を用いた場合の温度(ODF)は $x/D=20$ 程度で2000Kを超え、その後発散した。また、PSRを用いた結果においても $x/D=15$ 付近から温度を過大に予測し始める。

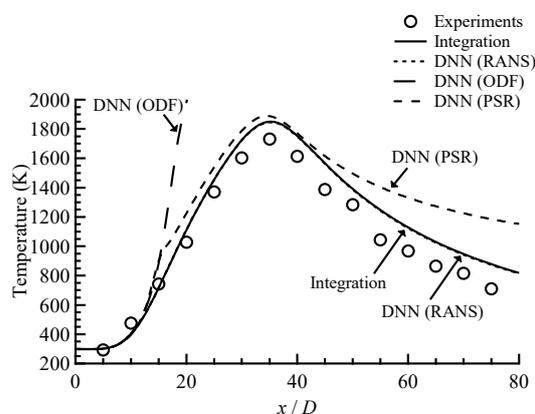


図4 標準化を用いた場合の軸上の温度分布

図5は $x/D=15$ における半径方向 H_2O 生成速度分布を示している。教師データはPSRの結果である。 $r/D < 1$ の領域でDNNは反応速度を過大に評価していることがわかる。同様の傾向が対向流拡散火炎を用いた場合においても観察された。これらのことから、標準化に基づくDNNは反応速度の低い場合の値を過大に評価すると言える。この過大評価が図4に示す温度の過大評価や発散の原因となる。

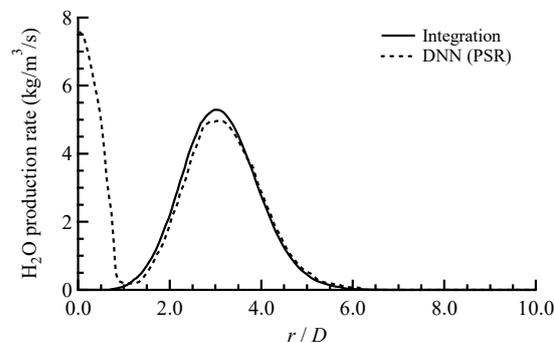


図5 標準化を用いた場合の H_2O 生成速度の半径方向分布

図6は線形化法を用いた場合の軸方向温度分布を示している。線形化法と対向流拡散火炎の結果を組み合わせた場合、温度分布は積分計算をした結果とよく一致し、1本の曲線に見える。PSRを用いた場合、温度分布はほぼ一致するが、 $x/D=35$ 付近で若干の温度の過小評価が見られる。

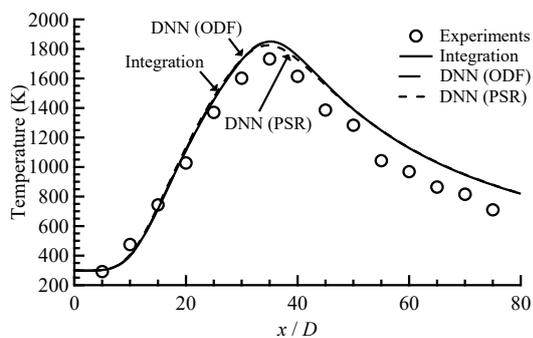


図6 線形化を用いた場合の軸上の温度分布

図7は $x/D=15$ における H_2O 生成速度の半径方向分布を示している。直接積分した場合と比べて、ピーク値はわずかに過小評価し、分布は中心軸方向にずれている。さらに、 $r/D=5$ 付近において、過大評価が見られる。しかし、図5に示した標準化を用いた場合と異なり、 $r/D < 1$ の領域における反応速度の過大評価は現れない。これらの結果から、線形化に基づく前処理方法は、教師データの影響を最小限に抑える役割を果たすことがわかる。なお、DNNを用いた場合の計算時間は、積分計算を用いた場合と比べて1/5に短縮できた。以上の結果から、線形化に基づく前処理方法は計算精度を維持しながら、計算時間を短縮できる手法であると言える。

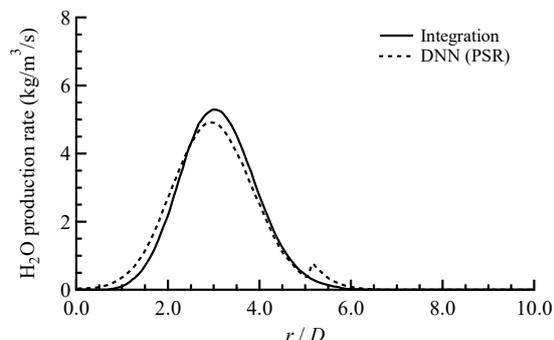


図7 線形化を用いた場合の H_2O 生成速度の半径方向分布

3. 化学種の原子質量保存に関する検討

3.1 対象バーナーと計算方法

化学種の原子質量保存に関する検討を行うにあたり、JHCバーナーを対象に予定していた。しかし、変動の影響が小さいため、Sandia Flame D⁽¹²⁾に変更した。ただし、このバーナーでは、メタンと空気の予混合気を燃料としているため、仮定PDF法を用いたシミュレーションでは非現実的な過濃予混合火炎が形成される。このため、温度を過大に評価する傾向にある。本研究では、直接式(7)を積分する方法とDNNによる方法の比較に集中し、実験結果との比較は行わない。

Sandia Flame Dのシミュレーションでは、式(1)から式(7)に示す保存式および平均反応速度を用いる。反応機構はWangら⁽¹³⁾によって提案された4段の総括反応機構である。

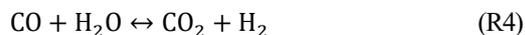
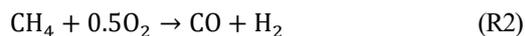


表1にR2からR5の各反応の頻度係数 A 、活性化エネルギー E 、温度乗数 n を示す。ここで、反応の f と b は正反応と逆反応である。

表1 各反応のパラメータ (単位はCGI系)

	E	A	n
R2	1.255×10^8	2.47×10^{11}	0
R3	1.255×10^8	3.00×10^8	0
R4f	8.368×10^7	2.75×10^9	0
R4b	1.138×10^8	6.71×10^{10}	0
R5f	1.464×10^8	2.50×10^{12}	0
R5b	3.983×10^8	3.48×10^{15}	0

Sandia Flame Dでは、中央に内径7.2 mmの燃料ノズルが設置されており、その周囲内径18.2 mmのノズルからパイロットガスが流れる。パイロットガ

スの外側は空気である。それぞれの温度、成分、および流速を表2に示す。計算領域は図1に似た二次元円筒座標系の領域であり、流れ方向に1000 mm、半径方向に150 mmとした。流れ方向の格子間隔は0.25 mm、半径方向は0.15 mmである。半径方向の領域の大きさは300 mmとした。境界条件はH3 flameと同じである。

表2 ガスの温度、成分および流速

	温度 (K)	成分 (vol. %)	流速 (m/s)
燃料	300	CH ₄ 0.25, Air 0.75	49.6
パイロット	1880	O ₂ 0.05, CO ₂ 0.07, H ₂ O 0.15, N ₂ 0.73	11.4
空気	300	Air (O ₂ 0.21, N ₂ 0.79)	0.9

3.2 機械学習

本研究では、式(7)の積分計算を事前に行い、各化学種の生成速度をDNNに学習させた。ネットワークの隠れ層は8層であり、各層のノード数はそれぞれ50, 100, 100, 200, 200, 100, 100, 50とした。また、 $Y_{CH_4} < 10^{-20}$ となるデータには別途サブDNNを用意し、学習させた。活性化関数にはReLU関数を用いている。入力である特徴量は前処理済みの密度 ρ^* 、化学種の平均質量分率 \mathbf{Y}^* 、化学種変動の和 σ_Y^* 、平均温度 T^* 、および温度の変動 σ_T^* とした。また、乱流変動を考えない、すなわち、ファブレ平均値からのみ算出した反応速度 $S_\alpha(\tilde{T}, \tilde{Y})^*$ を追加した。特徴量の前処理方法は以下の正規化とする。

$$\varphi^* = \frac{\varphi - \varphi_{min}}{\varphi_{max} - \varphi_{min}} \quad (16)$$

DNNの学習にはKeras⁽⁸⁾とTensorflow⁽⁹⁾を用いた。

3.3 計算結果

図8は $x/D=15$ における半径方向温度分布を示している。図中、Integrationは積分を、DNNは上記手法による予測値を用いたシミュレーション結果を示している。積分計算を行った場合とDNNを用いた場合で、得られる結果は一致しており、一本の曲線に見える。他の x/D においても同様の結果が得られた。

DNNを用いた場合の計算時間は積分計算を行う場合と比べて1/50に短縮される。

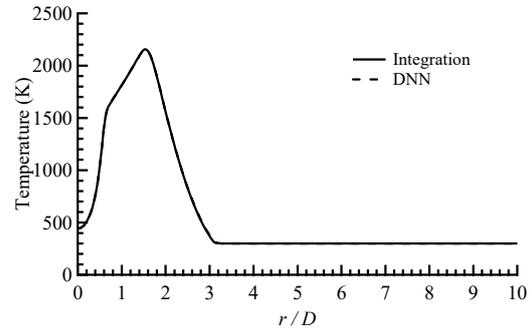


図8 温度の半径方向分布 ($x/D=15$)

本研究で用いたDNNでは、サブDNNを導入し、 $S_\alpha(\tilde{T}, \tilde{Y})^*$ を特徴量として追加している。これらの影響を明らかにするために、表3に示すように、処理を省略した追加計算を行った。

表3 追加計算の項目

条件名	考慮しない処理
w/o_subDNN	サブDNN
w/o_Sa	$S_\alpha(\tilde{T}, \tilde{Y})^*$ の追加

図9は $x/D=15$ におけるCO₂生成速度の半径方向分布を示している。直接積分した場合(Integration)とDNNの結果はほぼ一致している。これに対して、特徴量を追加しない場合(w/o_Sa)では反応速度が大きく異なる。紙面の都合上、w/o_Saの温度分布は図示していない。この条件では800 Kから1500 K程度温度を過大に予測する。また、サブDNNが無い場合(w/o_subDNN)では、計算が発散した。

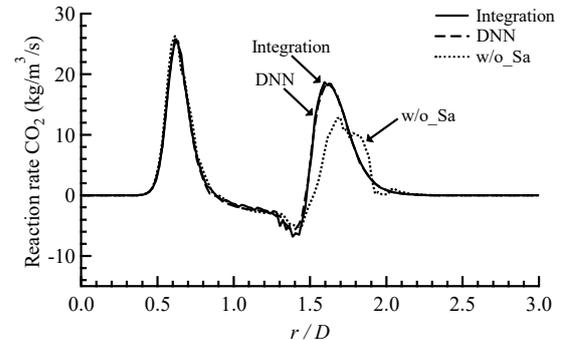


図9 CO₂生成速度の半径方向分布 ($x/D=15$)

図10は図9と同じ x/D における反応速度のC原子質量の収支を示している。積分計算を行う場合 (Integration), 個々の反応を個別に解くため, C原子の質量は保存される。このため, 収支は全域にわたってゼロとなる。一方, 図8に示すように積分計算を行う場合と良い一致を示したDNNにおいても, 第一章で指摘したとおり, 収支は $\pm 0.7 \text{ kg/m}^3/\text{s}$ の変動を示す。 CO_2 の反応速度の最高値 ($25.8 \text{ kg/m}^3/\text{s}$)を基準にすると, 3%程度の変動である。また, w/o_Saでは, 全体的に正の収支, すなわち, C原子が増加する傾向を示し, この断面における収支絶対値の最高は $1.7 \text{ kg/m}^3/\text{s}$ である。これは反応速度の7%に相当する。

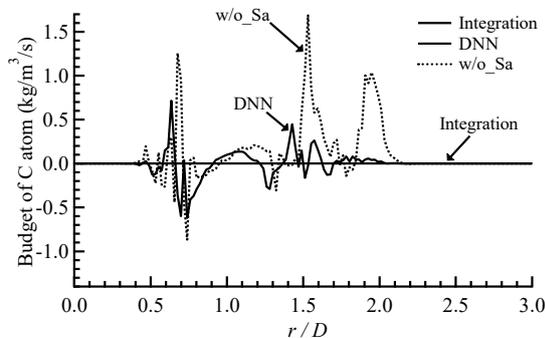


図10 C原子の収支 ($x/D=15$)

このように, ニューラルネットワークを用いた場合, 前処理方法および構造によっては原子質量の収支を悪化させる。この結果, 極端な温度の過大または過小評価, さらに計算の破綻につながる。本研究で用いた処理の組み合わせにより, 原子質量の保存に関する誤差を抑え, 計算の精度向上と破綻の防止を達成できると言える。

4. 結論

本研究では, 仮定PDF法を用いた乱流拡散火炎のシミュレーションの高速化を目的として, 反応速度計算に用いるディープニューラルネットワークの機械学習に関して, 教師データの作成方法と原子質量の保存の観点から検討を行い, 以下の結論を得た。

(1) 対向流層流火炎とPSRから得られた教師データと標準化に基づく前処理を組み合わせる場合, 反応

速度を過大評価する。これは計算の発散や温度の過大評価の原因となる。

(2) 前処理として線形化法を提案した。この手法を用いた場合, 対向流層流火炎とPSRから得られた教師データを用いた場合においても, 高い精度で反応速度を予測できる。

(3) サブネットワークと乱流変動を考慮しない反応速度の追加により, 多段反応機構における化学種の生成速度を予測できる。この際, 原子質量の保存の誤差を3%以内に抑えることができる。

発表論文

無し

口頭発表, 受賞等

西尾 亮祐, 中西 一貴, 名田 謙, 木戸口 善行, 乱流拡散火炎のRANSシミュレーションにおける機械学習の前処理方法, 日本機械学会 中国四国学生会 第54回学生員卒業研究発表講演会, 2024年3月。

参考文献

- (1) Katsuki M, Hasegawa T. The science and technology of combustion in highly preheated air. Symposium (International) on Combustion 1998; 27: 3135-3146.
- (2) Gerlinger P. Investigation of an assumed pdf approach for finite-rate Chemistry. Combustion Science and Technology 2003; 175: 841-872.
- (3) https://www.dlr.de/vt/en/desktopdefault.aspx/tabid-3067/4635_read-6728/
- (4) 名田謙, 藤阪聖人, 山室国彦, 野田進, 多変数 β 関数を用いた仮定確率密度関数法に基づく乱流拡散火炎のモデリング, 日本機械学会論文集B編, 75巻, 第759号(2009), pp. 2321-2328.
- (5) Coffee TP, Kotlar AJ, Miller MS. The overall reaction concept in premixed, laminar, steady-state flames. II. Initial temperatures and pressures. Combustion and Flame 1984; 58: 59-67.
- (6) Pope SB. PDF methods for turbulent reactive flows. Progress in Energy and Combustion Science 1985; 11: 119-192.
- (7) バタンカー原著, 水谷幸夫, 香月正司共訳, コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 森北出版, 1985.
- (8) <https://keras.io/>
- (9) <https://www.tensorflow.org/>
- (10) <https://cantera.org/>
- (11) 西尾 亮祐, 中西 一貴, 名田 謙, 木戸口 善行, 乱流拡散火炎のRANSシミュレーションにおける機械学習の前処理

方法, 日本機械学会 中国四国学生会 第54回学生員卒業研究発表講演会, 2024年3月.

(1 2) <https://tnfworkshop.org/data-archives/pilotedjet/ch4-air/>

(1 3) Wang L, Liu Z, Chen S, Zheng C. Comparison of different global combustion mechanisms under hot and diluted oxidation conditions. *Combustion Science and Technology* 2012; 184: 259-276.