化学反応を伴う乱流噴流拡散の研究*

(第1報, 多成分変動濃度測定システムの有効性)

酒井 康彦^{*1}, 久保 貴^{*2}, 中村 育雄^{*1}

A Study of the Turbulent Jet Diffusion with Chemical Reaction (1st Report, Validity of a Concentration Fluctuation Measuring System of Multiple Species)

Yasuhiko SAKAI, Takashi KUBO and Ikuo NAKAMURA

The aim of this study is to elucidate experimentally the effect of chemical reaction on the diffusion process in a turbulent liquid jet. The second-order and irreversible reaction ($R+B \rightarrow S$) of which kinetics is well known was used here. The instantaneous concentrations of two species (R and S) were measured simultaneously by the light absorption spectrometric method, then the conserved scalar was determined by using the conserved scalar theory. To ascertain the validity of the concentration measuring system, a comparison between statistics of conserved scalar and those of non-reactive scalar was made. It was found that the radial and axial distributions of the statistics of conserved scalar show good agreements with those of non-reactive scalar and past other researcher's data. So, it is concluded that reactive scalars can be measured accurately by the present measuring system of multiple species.

Key Words: Turbulence, Jet, Diffusion, Chemical Reaction, Light Absorption Spectrometric Method, Conserved Scalar

1. 緒 論

乱流中で物質が混合されながら化学反応する現象の解明は、工学的応用上きわめて重要である⁽¹⁾。例えば、流体流動状態の制御は、微粒子製造用反応晶析器の性能向上⁽²⁾、反応容器内での高分子生成重合反応をはじめとする各種液体-液体反応の促進に大きな効果をもつ⁽³⁾。また最近では、大気や海洋での汚染物質の生成、拡散過程の研究は環境アセスメントの一環として、社会的にも注目されてきている⁽⁴⁾。

本研究では、上記のように化学反応を伴う乱流現象の解明の工学的重要性と社会的な注目度が高まってきていること、自然界で起きている化学反応の90%以上が液中反応であるといわれていること⁽⁵⁾、さらに近年新しい分野として発展してきている生物工学に関連した化学反応あるいは生体反応のほとんどすべてが液中で起きていること⁽⁶⁾などを考慮して、特に液相における化学反応過程に注目し、化学反応が乱流拡散場を与える効果を明らかにすることを目的とした。

液相における化学反応過程では、Schmidt 数が大きいために乱流混合の影響が重要となる。また、濃度変動の最小スケールである Batchelor スケールが気相に比べて小さくなるため、より高分解能の測定装置の開発が将来的にも望まれている。

液相乱流におけるこのような問題に対する研究には、過去に Breidenthal⁽⁷⁾ や Koochesfahani ら⁽⁸⁾ の混合層の遷移過程の実験、Mehta ら⁽⁹⁾ や著者ら⁽¹⁰⁾ による格子乱流や乱流噴流中の連続競争反応の実験、Ben-nani ら⁽¹¹⁾ や Komori ら⁽¹²⁾ による格子乱流中の予混合されていない2物質の二次反応に関する研究、さらに最近では、長田ら⁽¹³⁾ による格子乱流ではあるが不安定温度成層とシアアがある場合について、それらの乱流混合と化学反応に及ぼす効果を実験的に調べた報告がある。しかしながら、せん断乱流中の反応場で、反応物質あるいは反応生成物に関する多成分変動濃度を同時測定した例は、Komori ら⁽¹²⁾、長田ら⁽¹³⁾ の研究と、著者ら⁽¹⁰⁾ の実験などがおもで非常に少ないのが現状である。反応を伴う乱流濃度場の実用的数値モデルの将来の発展のためには、各種せん断乱流中での系統的な実験的研究の必要性がますます高まるものと思われる。

そこで本研究では、研究の第1歩として基本的かつ

* 原稿受付 1997年12月24日。

^{*1} 正員, 名古屋大学大学院工学研究科(〒464-8603 名古屋市千種区不老町)。

^{*2} 准員, 名古屋大学大学院。

実用上よく見られるせん断流として軸対称乱流噴流を選び、そこでの予混合のない二次反応の問題を扱うことにする。本研究で対象とした化学反応は次の不可逆二次反応である。

ここで、R はモノアゾ染料(赤色)、B はジアゾベンゼンスルホン酸、S はジアゾ染料(赤紫色)である。また、 k は反応速度定数を表す。B を含む主流に R の水溶液をノズルから噴出し、染料である R と S の濃度を吸光スペクトル法⁽¹⁴⁾ により同時測定した。B の濃度は質量保存則から求めることができる。ただし、 Na_2CO_3 と NaHCO_3 のアルカリ緩衝塩を噴流に含ませて反応を進行させた。

著者ら⁽¹⁰⁾ は、以前に式(1)を第2反応として含む連続競争反応⁽¹⁵⁾ $[A + B \rightarrow R, R + B \rightarrow S: A \text{ は } 1\text{-ナフトール}, R, B, S \text{ は式(1)と同様}]$ について、乱流噴流中の反応生成物 R と S の2成分変動濃度の同時測定を行ったが、反応物 A と B については調べられていない。しかしながら、今回の研究では第2反応のみを扱い、反応に関与するすべての物質の濃度を決定することができるため、実用上重要となる反応物質2成分の濃度に関する統計量(例えば、濃度相関や混合度)の分布を調べることが可能となった。また液相の噴流中で、式(1)のような二次反応を対象とした実験は本研究が初めてのようである。

本報では、まず保存スカラ理論⁽¹⁶⁾ を本問題に適用する。次に噴流速度場の基本的性質を調べる。さらに、反応濃度場の測定データより保存スカラ理論を用いて得られる保存スカラの各種統計量を、無反応濃度拡散場と比較することにより、理論(あるいはその仮定)を検証し、本研究で用いた多成分変動濃度測定システムの反応濃度場測定に対する有効性を確認する。本装置を用いた、反応濃度場における化学反応と濃度変動の干渉の研究については次報で報告する。

おもな記号

x, r : 噴流軸方向および半径方向の座標
 ν : 動粘性係数
 D : 分子拡散係数
 b_U, b_F : 平均速度および混合分率の平均値の半値幅
 d : ノズル内径
 F, f : 混合分率の瞬時値および変動値
 F_S : 混合分率の化学量論値
 k : 反応速度定数
 Da, Re, Sc : Damköhler 数, Reynolds 数, Schmidt

数

U, u : 噴流軸方向速度の瞬時値および変動値

Γ, γ : 各種物質の瞬時濃度値および変動値

β : 初期濃度比

上付き添字

—: 平均値を表す

—: rms 値を表す

下付き添字

o : 初期濃度に関する量を表す

c : 噴流中心軸上における量を表す

その他の記号については、本文中で説明する。

2. 保存スカラ理論

この節では Bilger ら⁽¹⁶⁾ の方法に基づき、本反応場に対して保存スカラ理論を適用する。保存スカラ理論を用いることにより、反応場に対する2成分同時測定から、化学反応の影響を受けない保存スカラが得られる。そして、この保存スカラ場と無反応濃度拡散場を比較することにより得られる結論について述べる。

図1に本研究の化学反応を伴う乱流噴流拡散場の様子を示す。主流には、初期濃度 $\Gamma_B = \Gamma_{B0}$ の物質 B を一様流速 U_M で流す。噴流には、初期濃度 $\Gamma_R = \Gamma_{R0}$ の物質 R をノズル出口平均流速 U_N で噴出する。そしてノズル下流には、反応物質 B, R および生成物質 S から成る乱流噴流拡散場が形成される。後で述べるように、主流は反応生成物を排出する目的で流すため $U_M \ll U_N$ であり、実際上は主流の影響はほとんど無視できる。

非圧縮性流体を考え、各物質の分子拡散フラックスに対して等しい拡散係数 D をもつ Fick の拡散法則を仮定すると、位置 $\mathbf{x}$, 時刻 t での物質 i の濃度 $\Gamma_i = \Gamma_i(\mathbf{x}, t)$ に対する保存方程式は、次式で与えられる。

$$\frac{\partial \Gamma_i}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla \Gamma_i - D \nabla^2 \Gamma_i = w_i \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 $\mathbf{U}$ は速度ベクトル、 w_i は反応項、 ∇ は空間の

Fig. 1 Schematic diagram of the turbulent reacting jet

こう配演算子を表す。ここでは、式(1)のような不可逆二次反応を考えるため、反応項は次式で与えられる。

$$w_R = w_B = -w_S = -k\Gamma_R\Gamma_B \quad (3)$$

保存スカラ $\hat{\beta}^{(j)} = \hat{\beta}^{(j)}(\mathbf{x}, t)$ は、上式の反応項が零になるように次式で定義される。

$$\hat{\beta}^{(1)} = (\Gamma_R - \Gamma_B + \Gamma_{B0}) / (\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0}) \quad (4\cdot a)$$

$$\hat{\beta}^{(2)} = (\Gamma_R + \Gamma_S) / \Gamma_{R0} \quad (4\cdot b)$$

$$\hat{\beta}^{(3)} = -(\Gamma_B + \Gamma_S - \Gamma_{B0}) / \Gamma_{B0} \quad (4\cdot c)$$

ただし、ノズル出口で $\hat{\beta}^{(j)} = 1$ 、主流中で $\hat{\beta}^{(j)} = 0$ となるように無次元化してある。したがって、保存スカラに対する保存方程式は、

$$\frac{\partial \hat{\beta}^{(j)}}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla \hat{\beta}^{(j)} - D \nabla^2 \hat{\beta}^{(j)} = 0 \quad (5)$$

となる。

Bilger⁽¹⁷⁾ によると、過渡的な初期の時刻を除いてすべての保存スカラは等しくなるため、次のように置く。

$$\hat{\beta}^{(1)}(\mathbf{x}, t) = \hat{\beta}^{(2)}(\mathbf{x}, t) = \hat{\beta}^{(3)}(\mathbf{x}, t) = F(\mathbf{x}, t) \quad (6)$$

ここで、 $F = F(\mathbf{x}, t)$ は混合分率とも呼ばれる。すると、式(4・a)～(4・c)および式(6)から次式が得られる。

$$\Gamma_R - \Gamma_B = F(\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0}) - \Gamma_{B0} \quad (7\cdot a)$$

$$\Gamma_R + \Gamma_S = F\Gamma_{R0} \quad (7\cdot b)$$

$$\Gamma_B + \Gamma_S = (1 - F)\Gamma_{B0} \quad (7\cdot c)$$

本実験では、染料である物質 R と S の濃度を測定できるため、混合分率として式(7・b)を選ぶ。

$$F = (\Gamma_R + \Gamma_S) / \Gamma_{R0} \quad (8)$$

すると、式(7・c)より直接測定されない物質 B の濃度を次式で計算することができる。

$$\Gamma_B = (1 - F)\Gamma_{B0} - \Gamma_S \quad (9)$$

ここで、上式はモル分率で濃度を表したときの保存則：

$$\frac{\Gamma_R}{\Gamma_{R0}} + \frac{\Gamma_B}{\Gamma_{B0}} + \frac{\Gamma_S}{\Gamma_{S0}} = 1 \quad (10)$$

と同じことを表していることに注意する。ここで、

$$\Gamma_{S0} = \Gamma_{R0}\Gamma_{B0} / (\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0}) \quad (11)$$

である。

次に、ノズル内径 d 、ノズル出口平均速度 U_N および初期濃度 Γ_{i0} を用いて、各変数を次のように無次元化する。

$$\begin{aligned} \hat{x}_j &= x_j / d, & \hat{U}_j &= U_j / U_N, & \hat{t} &= t U_N / d, \\ \hat{\Gamma}_i &= \Gamma_i / \Gamma_{i0} \end{aligned} \quad (12)$$

すると、保存方程式(2)は次のようになる。

$$\frac{\partial \hat{\Gamma}_i}{\partial \hat{t}} + \hat{\mathbf{U}} \cdot \nabla \hat{\Gamma}_i - \frac{1}{ReSc} \nabla^2 \hat{\Gamma}_i = \hat{w}_i \quad (13)$$

ここで、

$$\hat{w}_R = -DaF_S\hat{\Gamma}_R\hat{\Gamma}_B \quad (14\cdot a)$$

$$\hat{w}_B = -Da(1 - F_S)\hat{\Gamma}_R\hat{\Gamma}_B \quad (14\cdot b)$$

$$\hat{w}_S = Da\hat{\Gamma}_R\hat{\Gamma}_B \quad (14\cdot c)$$

である。さらに、上式に含まれる無次元パラメータはそれぞれ

$$Da = \frac{k(\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0})}{U_N/d} \quad (\text{Damköhler 数}) \quad (15)$$

$$F_S = \Gamma_{B0} / (\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0}) \quad (\text{混合分率の化学量論値}) \quad (16)$$

$$Re = U_N d / \nu \quad (\text{Reynolds 数}) \quad (17)$$

$$Sc = \nu / D \quad (\text{Schmidt 数}) \quad (18)$$

で定義される。

式(13)において、 $Da \rightarrow 0$ (Frozen limit と呼ばれる無反応の極限) を考えると、右辺は $\hat{w}_i = 0$ となり、式(7・b)、(7・c)で $\Gamma_S = 0$ とすることにより、 F に線形な次の解が得られる。

$$\lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_R = \Gamma_R^0 = F\Gamma_{R0} \quad (19\cdot a)$$

$$\lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_B = \Gamma_B^0 = (1 - F)\Gamma_{B0} \quad (19\cdot b)$$

$$\lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_S = \Gamma_S^0 = 0 \quad (19\cdot c)$$

さらに、 $Da \rightarrow \infty$ (Equilibrium limit と呼ばれる瞬間反応の極限) を考えると、式(13)右辺の有界性から $\hat{\Gamma}_R\hat{\Gamma}_B = 0$ が成り立たなければならない。この条件は、 $\hat{\Gamma}_R = 0$ あるいは $\hat{\Gamma}_B = 0$ の場合か、または $\hat{\Gamma}_R = \hat{\Gamma}_B = 0$ の場合に満たされる。すると、式(7・a)～(7・c)から次式が得られる。

$$\begin{aligned} \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_R &= \Gamma_R^\infty \\ &= (\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0})(F - F_S)H(F - F_S) \end{aligned} \quad (20\cdot a)$$

$$\begin{aligned} \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_B &= \Gamma_B^\infty \\ &= (\Gamma_{R0} + \Gamma_{B0})(F_S - F)H(F_S - F) \end{aligned} \quad (20\cdot b)$$

$$\begin{aligned} \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_S &= \Gamma_S^\infty = \Gamma_{B0}(1 - F)H(F - F_S) \\ &\quad + \Gamma_{R0}FH(F_S - F) \end{aligned} \quad (20\cdot c)$$

ここで、 $H(z)$ は Heaviside の単位ステップ関数で、 $z \leq 0$ で 0、 $z > 0$ で 1 である。

保存スカラ理論の仮定(すなわち各物質の分子拡散係数を等しいとする仮定)が成り立つならば、式(8)から得られる混合分率 F と無反応濃度場の各種統計量が一致しなければならない。以下の5・2節で、このことを確認する。

3. 化学反応

ここでは、本研究で用いた式(1)で表される化学反

応の基本的性質について述べる。この反応において過剰に物質Bが存在する場合、次式に示すような反応⁽⁹⁾：

が起こり物質SがBと反応して、物質P₁あるいはP₂に変化する。この物質Sが変化する反応はSide-reactionと呼ばれ、過剰なジアゾニウムイオンがSを破壊することや、反応場に局所的にpHの低下した部分が発生することなどが原因とされている⁽¹⁵⁾。Side-reactionは温度依存性を示し、温度が低いほどその影響が小さくなる。本研究ではこのことを考慮して水温10.5~13°Cで実験を行った。さらに、Bourne^ら⁽¹⁵⁾は物質Bと物質Rの初期濃度比 $\beta = \Gamma_{B0}/\Gamma_{R0}$ が0.25を超えなければ、Side-reactionの影響は無視できるとしている。そのため本研究では、 $\beta = 0.11$ とした。

反応速度定数 k は温度依存性を示し、一般に次のArrheniusの式で表される。

$$k = Z \exp\{-E/(RT)\} \quad (22)$$

ここで、 Z は頻度因子、 E は活性化エネルギー、 R は気体定数 $[R = 8.3143 \text{ J}/(\text{K} \cdot \text{mol})]$ 、 T は絶対温度であり、Bourne^ら⁽¹⁵⁾により $Z = 1.063 \times 10^7 \text{ m}^3/(\text{mol} \cdot \text{s})$ および $E = 3.874 \times 10^4 \text{ J/mol}$ が与えられている。したがって、本実験を行った水温の代表値を12°Cとすると、 $k = 0.851 \text{ m}^3/(\text{mol} \cdot \text{s})$ となる。

さらに、この反応ではpHも重要な因子となる。本研究では、噴流に炭酸ナトリウム(Na_2CO_3)と炭酸水素ナトリウム(NaHCO_3)それぞれ100 mol/m³を緩衝塩として加え、溶液のpHをpH=10の一定値に保った。Bourne^ら⁽¹⁸⁾によると、pH=10のとき反応速度が最大となる。

4. 実験装置および測定方法

4.1 吸光スペクトル法による多成分濃度測定
本研究では、式(1)における物質RとSの瞬時濃度を吸光スペクトル法による多成分変動濃度計⁽¹⁴⁾を用いて同時測定する。まず、吸光スペクトル法⁽¹⁴⁾による多成分変動濃度測定について簡単にまとめる。一般に単成分の吸光物質に波長 λ の光を入射した場合、その吸光度はBeer-Lambertの法則により次式で表される。

$$-\ln\{I(\lambda)/I_0(\lambda)\} = \alpha(\lambda)l\Gamma \quad (23)$$

ここで、 I_0 は検査部(長さ l)への入射光強度、 $I(\lambda)$ は検査部を通過した瞬時の透過光強度、 Γ は物質の瞬時濃度、 α は比例係数で λ の関数である。いま、次式で定義される $P(\lambda)$ と $k(\lambda)$ を導入する。

$$P(\lambda) = -\ln\{I(\lambda)/I_0(\lambda)\} \quad (24)$$

$$k(\lambda) = \alpha(\lambda)l \quad (25)$$

すると、式(23)より $P(\lambda)$ と $k(\lambda)$ の間には次式のような簡単な線形関係が成立する。

$$P(\lambda) = k(\lambda)\Gamma \quad (26)$$

$P(\lambda)$ と $k(\lambda)$ に特定の呼び方はないが、ここでは説明の便宜上 $P(\lambda)$ および $k(\lambda)$ をそれぞれ波長 λ における吸光スペクトル値および吸光係数と呼ぶことにする。

溶液が多成分の物質を含む場合、その吸光スペクトル値は、各成分がそれぞれ単独にその溶液中に存在するときの吸光スペクトル値の和になる。これは加成性と呼ばれる。本研究のような2成分濃度測定の場合、Beer-Lambertの法則と加成性から、波長 λ_1, λ_2 に対する混合溶液の吸光度は次のように表すことができる。

$$P_1(\lambda_1) = -\ln\{I_1(\lambda_1)/I_{10}(\lambda_1)\} \\ = k_{R1}\Gamma_R + k_{S1}\Gamma_S \quad (27 \cdot a)$$

$$P_2(\lambda_2) = -\ln\{I_2(\lambda_2)/I_{20}(\lambda_2)\} \\ = k_{R2}\Gamma_R + k_{S2}\Gamma_S \quad (27 \cdot b)$$

ここで、添字1, 2はそれぞれ波長 λ_1, λ_2 に対する値を表す。 $k_{R1}, k_{R2}, k_{S1}, k_{S2}$ は単色光に対する吸光係数で、単独液による検定により決定される。したがって、乱流濃度変動を伴う混合液の瞬時吸光スペクトル値 P_i 、

Fig. 2 Absorption spectra of monoazo dye(R) and bisazo dye(S)

Fig. 3 Schematic diagram of measuring system

P_2 を吸光度計で測定し式(27・a), (27・b)を解くことにより, 混合液の2成分瞬時濃度を求めることができる。

図2に本研究で用いた2種類の染料[モノアゾ染料(R)とジアゾ染料(S)]の吸光スペクトル値(ただし I/I_0 に常用対数をとったもの)の分布を示す。物質Rについては, 分光光度計(日本分光社製 Ubest-55)を用いて, その濃度を 0.1 mol/m^3 とし, 厚さ $l=10 \text{ mm}$ の吸光セルで測定したものである[化学の分野では, $l=10 \text{ mm}$ の場合, $A(\lambda)=-\log\{I(\lambda)/I_0(\lambda)\}$ を吸光度(absorbance)と呼ぶのが一般的である]。また吸光セル内には, 緩衝塩(NaHCO_3 , Na_2CO_3 ともに 10 mol/m^3)も加えてある。物質Sについては, Bourneら⁽¹⁵⁾による測定値を示した。本研究では, 物質Rの吸光スペクトル値がピークをとり, 物質Sの吸光スペクトル値が極小値をとる付近の 520 nm と, 物質Rの吸光スペクトル値が小さい 600 nm を分光波長 λ_1, λ_2 として選んだ。

図3は濃度測定システムの全体図である。ハロゲンランプを出た白色光は, 光ファイバ入射光光学系, ライトガイド(ファイバ結束径 0.5 mm)を通して検査部(プローブ間距離約 0.7 mm , 検査体積 0.14 mm^3 , プローブ形状の詳細は図4を参照)に導かれる。検査部で, 物質の吸光特性に応じて光強度が減衰し, 減衰された光はもう一方のライトガイド, ファイバ出射光光

Fig. 4 Schematic sketch of light probe

Fig. 5 Chemical reactor

学系を経て分光器により三つの異なる波長に分光される。ただし, 本研究では2成分の同時測定を行ったため, 実際に使用したのは, $520, 600 \text{ nm}$ の二つの分光波長である。分光された光の強度はそれぞれ光電子増倍管で電圧信号に変換され, A-D変換器を通してパーソナルコンピュータで処理される。その際, サンプルリング周波数は 5 kHz で, 測定点1点につき約 26 s 測定を行った。

なお, RとSの濃度が既知の静止混合溶液に対して測定を行った結果, RとSともに測定誤差は約1%であった。またこのとき, ノイズとして静止混合溶液における測定濃度のrms値を考えると, 物質Rについては約 $0.3 \times 10^{-3} \text{ mol/m}^3$, 物質Sについては約 $0.5 \times 10^{-3} \text{ mol/m}^3$ であった。

4.2 実験装置 図5に本研究で用いた化学反応用水路を示す。噴流ノズルを境にして, 下が主流整流部と絞り部, 上が測定部である。整流部は乱れの少ない主流を供給するために, 塩化ビニル削りくず, ハニカムおよび金網で構成される。

主流および噴流はヘッドタンクから一定の流量で供給される。主流は反応生成物排出のため, 平均速度を $U_M=0.4 \text{ cm/s}$ とした。噴流ノズルは内径 $d=2 \text{ mm}$ で, ノズル出口平均速度を $U_N=1.6 \text{ m/s}$ とした。したがって噴流 Reynolds 数 Re は約 2600 である。噴流 Reynolds 数をこのように設定したのは, ヘッドタンクからの噴流の供給能力と, 後で述べる乱流スケールを大きくするためである。また座標系はノズル出口を原点として, 噴流軸方向に x 軸, 半径方向に r 軸をとる。

濃度に関する条件としては, 主流の物質Bの初期濃度を $\Gamma_{B0}=0.3 \text{ mol/m}^3$ とし, 噴流の物質Rの濃度を $\Gamma_{R0}=2.7 \text{ mol/m}^3$ とした。このように初期濃度を選んだのは, Γ_{B0} をある程度大きくしないと, 生成される物質Sの濃度が小さくなり, 相対的にノイズの影響が大きくなるからである。さらに, Side-reactionの影響をできるだけ小さくするために, 初期濃度比を $\beta=\Gamma_{B0}/\Gamma_{R0}=0.11$ とした。このとき, 式(15), (16)および式(18)で定義される無次元数は, 以下のとおりである。

$$Da=3.2 \times 10^{-3}, \quad F_s=0.1, \quad S_c \approx 1300$$

なお, Schmidt 数は Angström⁽¹⁹⁾によって得られた各物質に対する平均値である。

ここで, 本実験で用いた光ファイバプローブの空間分解能と各種乱流スケールの関係について述べておく。噴流の中心軸上における各種乱流スケールの評価に Friehe⁽²⁰⁾によって提案された実験式を用いる

と, Kolmogorov の長さスケール η と Taylor のマイクロスケール λ_r はそれぞれ,

$$\eta = (48Re^3)^{-1/4}x \quad \dots\dots\dots (28)$$

$$\lambda_r = 0.88(Re)^{-1/2}x \quad \dots\dots\dots (29)$$

で与えられる。これらの式は, $10^4 \leq Re \leq 5 \times 10^5$ に対して提案されたものであるが, 本実験の $Re = 2600$ に対しても大まかなスケールの評価には役立つと考えられる。

本実験の測定範囲 $20 \leq x/d \leq 80$ では, これらのスケールはそれぞれ, $0.042 \text{ mm} \leq \eta \leq 0.17 \text{ mm}$, $0.69 \text{ mm} \leq \lambda_r \leq 2.8 \text{ mm}$ となる。プローブの空間分解能としてプローブ間距離 0.7 mm を選ぶと, これは測定範囲内ではほぼ Kolmogorov スケールと Taylor のマイクロスケールの間にあり, Kolmogorov スケールの 4~17 倍程度の分解能である。この程度の分解能が得られれば, 濃度変動 rms 値やひずみ度といった確率密度関数(p.d.f.)分布の比較的低次のモーメントおよび p.d.f. の形状といった, いわば濃度の大きさのみの情報を含んだ統計量については信頼性のある測定が可能であると考えられる。

Fig. 6 Downstream variation of the mean velocity on the jet axis

Fig. 7 Radial profiles of the mean velocity

5. 実験結果および考察

5.1 速度場 速度場測定は, 定温度形熱線流速計(ハヤカワ計測研究所 MODEL HC-30)を用いて行った。また, センサは熱膜プローブ(KANOMAX MODEL 1210-60 W, センサ部直径 $152 \mu\text{m}$, 長さ 2 mm)を使用し噴流軸方向(x 方向)についてのみ測定した。

図6に中心軸上における平均速度 $\bar{U}_c$ とその逆数の変化を示す。縦軸はノズル出口速度 U_N で, 横軸はノズル内径 d で無次元化してある。軸対称噴流の平均速度場において, 自己保存領域では中心軸上の平均速度の逆数が x の一次関数で表される⁽²¹⁾。本実験では $x/d > 15$ でこの傾向が見られる。図6中の直線はこの領域で最小二乗近似により求めたもので次式で表される。

$$U_N/\bar{U}_c = 0.160\{(x/d) + 0.871\} \quad \dots\dots\dots (30)$$

図7に平均速度 $\bar{U}$ の半径方向分布を示す。縦軸は中心軸上の平均速度 $\bar{U}_c$ で, 横軸は速度半値幅 b_U で無次元化してある。図7からも $x/d > 15$ の領域で自己保存性を示し, 平均速度が Gauss 分布で近似される

Fig. 8 Downstream variation of the velocity fluctuation r.m.s. value on the jet axis

Fig. 9 Radial profiles of the velocity fluctuation r.m.s. value

Fig. 10 Downstream variation of mean mixture fraction on the jet axis

Fig. 12 Downstream variation of r.m.s. mixture fraction

Fig. 11 Radial profiles of mean mixture fraction

Fig. 13 Radial profile of r.m.s. mixture fraction

ことがわかる。また図には示さないが、速度半値幅 b_u は自己保存領域で直線的に増加し、最小二乗近似により次式で表されることがわかっている。

$$b_u/d = 0.0869\{(x/d) + 5.64\} \quad \cdots \cdots (31)$$

図8は中心軸上における速度変動 rms 値 u'_c とその逆数の変化を示したものである。縦軸はノズル出口流速で無次元化してある。図8から、多少のばらつきはあるものの $x/d > 50$ の領域で u'_c の逆数が直線的に変化していることがわかる。図8中の直線は、この領域で最小二乗近似により求めたもので次式で表される。

$$U_N/u'_c = 0.963\{(x/d) - 5.69\} \quad \cdots \cdots (32)$$

図9に速度変動 rms 値 u' の半径方向分布を示す。縦軸は中心軸上での速度変動 rms 値 u'_c で、横軸は速度半値幅 b_u で無次元化してある。速度 rms 値の最大値は、中心軸から離れた位置で得られる。さらにこの最大値は、ノズルから離れた断面になるとともに小さくなり、その位置が中心軸方向に移動する。また $x/d > 40$ の断面ではほぼ相似な分布となっている。

以上のことから、本研究で用いた噴流は、Reynolds 数が多少小さいものの標準的な軸対称乱流噴流と同様の特性をもつことがわかる。

5・2 保存スカラ場 この節では式(8)から求められる混合分率を無反応濃度拡散場と比較し、保存スカラ理論の仮定と測定システムの検証を行う。無反応濃度場の測定には、拡散物質として、モノアゾ染料(R)に近い吸光特性をもつ直接染料ローズリンレッド B(C.I. 29100)を用いた。

図10は中心軸上における混合分率の平均値 $\bar{F}_c$ とその逆数の下流方向変化を示したものである。無反応濃度場の平均濃度 $\bar{F}_c$ はノズルからの噴出濃度 F_0 で無次元化してある(図10中●印)。また、図10中の実線は無反応の平均濃度場が自己保存となる $x/d > 10$ の領域で、その逆数を最小二乗近似したもので、次式で与えられる。

$$F_0/\bar{F}_c = 0.247\{(x/d) + 0.606\} \quad \cdots \cdots (33)$$

図10から本実験の反応場に対する測定範囲 $20 \leq x/d \leq 70$ で、混合分率の平均値が無反応濃度場の平均値とよく一致していることがわかる。

図11に混合分率の平均値 $\bar{F}$ の半径方向分布を示す。横軸は、混合分率の半値幅 b_F で無次元化してある。ノズルから最も離れた断面 $x/d = 70$ や中心軸から離れた点では多少のばらつきがあるものの、Gauss 分布で近似されることがわかる。また簡単のため図11には示さなかったが、無反応の場合の平均濃度も

Fig. 14 Radial profile of skewness of mixture fraction

Fig. 15 Radial profile of kurtosis of mixture fraction

Gauss 分布で近似できることがわかっている。さらに図には示さないが、混合分率の半径方向分布の半値幅 b_F の下流方向変化を調べた結果、 b_F の変化は無反応の場合の濃度半値幅 b_r の変化と非常によく一致することが確かめられている。なお、 b_r の変化は最小二乗近似により、次式で与えられる。

$$b_r/d = 0.113\{(x/d) + 1.42\} \dots\dots\dots (34)$$

次に、混合分率の rms 値の分布を示していく。図 12 は中心軸上における混合分率の rms 値 f_c とその逆数の下流方向変化を示したものである。また図 12 中の無反応の場合のデータ (図 12 中 ● 印) は中心軸上の濃度変動 rms 値 γ_c を Γ_0 で無次元化した値を示す。さらに実線は $x/d > 15$ の領域で γ_c/Γ_0 の逆数を最小二乗近似したもので、次式で与えられる。

$$\Gamma_0/\gamma_c = 0.820\{(x/d) + 11.75\} \dots\dots\dots (35)$$

図 13 は混合分率の rms 値 f' の半径方向分布である。図 13 中には、本研究における無反応場の rms 値 (実線)、吸光度法により直接染料 D.F. オレンジの濃度を測定した酒井の実験⁽²²⁾ (破線)、光散乱法により油滴煙粒子濃度の測定をした Becker らの実験⁽²³⁾ (一点鎖線)、およびレーザラマン散乱法によりメタンガス濃度場の測定をした Birch らの実験⁽²⁴⁾ (点線) の結果についても示してある。図 12, 13 から、混合分率の

rms 値も無反応の場合や、他の研究者らの実験データとよく一致していることがわかる。

図 14 に混合分率の p.d.f. のひずみ度 S_F の半径方向分布を示す。また、図 15 は混合分率の p.d.f. のとがり度 K_F の半径方向分布を示したものである。図 14, 15 から混合分率のひずみ度ととがり度が無反応場とよく一致していることがわかる。

以上のように、反応場から得られた混合分率の各種統計量が、無反応場や過去の研究の実験データとよく一致していることから、本実験に対して保存スカラ理論が有効であること (あるいは、理論の基となる各物質の分子拡散係数を等しいとする仮定が正しいこと) が検証された。

6. 結 論

基本的なせん断流として軸対称乱流噴流を選び、化学反応が乱流拡散場に与える影響を明らかにすることを目的として、二次の化学反応拡散場の実験的研究を行った。特に本報では、まず本反応性噴流拡散場に保存スカラ理論を適用した。次に実験により噴流速度場の基本的性質を調べた。また保存スカラの各種統計量の分布を無反応濃度場と比較することにより、保存スカラ理論の有効性を検証した。本報におけるおもな結論は以下のとおりである。

(1) 速度場の測定結果より、本噴流は噴出 Reynolds 数が約 2 600 と多少小さいものの、平均速度、速度変数 rms 値ともに標準的な軸対称乱流噴流と同様の特性をもつことを確認した。

(2) 保存スカラ理論を用いて反応場に対する測定から得られた混合分率の各種統計量は、無反応場に対するデータとよく一致し、保存スカラ理論の仮定が成り立つことを確認した。したがって、本濃度測定システムは反応濃度場の研究に対しても有効である。

本実験を行うにあたり、名古屋大学大学院博士前期課程の有沢秀則氏および太田功氏のご協力を得た。ここに謝意を表す。

文 献

- (1) 小森悟 (日本流体力学会編), 流体力学の世界, (1990), 140, 朝倉書店。
- (2) Garside, J., *Chem. Eng. Sci.*, **40** (1985), 3-26.
- (3) Tovlarides, L. L. (Ulbrecht, J. J. and Patterson, G. K., eds.), *Mixing of Liquids by Mechanical Agitation.*, (1985), 239, Gordon and Breach Sci. Pub.
- (4) 例えば, 市川陽一, 機習教, No. 95-55 (1995), 25-31.
- (5) 大瀧仁志, 溶液の化学, 日本化学会編新化学ライブラリー, (1987), 205, 大日本図書。
- (6) 例えば, 福成寺誠也・ほか 4 名, 日立評論, **69-4** (1987), 289-294.

- (7) Breidenthal, R., *J. Fluid Mech.*, **109** (1981), 1-24.
- (8) Koochesfahani, M. H. and Dimotakis, P. E., *J. Fluid Mech.*, **170** (1986), 83-112.
- (9) Mehta, R. V. and Tarbell, J. M., *AIChE J.*, **33** (1987), 1089-1101.
- (10) Sakai, Y., ほか2名, *Proc. 11th Symp. Turbulent Shear Flows*, Université Joseph Fourier, (1997), 18.19-18.24.
- (11) Bennani, A., ほか2名, *AIChE J.*, **31** (1985), 1157-1166.
- (12) Komori, S., ほか2名, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **27** (1994), 742-748.
- (13) 長田考二・小森悟, 機論, **63**-612, B (1997), 2868-2875.
- (14) 酒井康彦・ほか3名, 機論, **56**-522, B (1990), 518-522.
- (15) Bourne, J. R., ほか2名, *Chem. Eng. Commun.*, **37** (1985), 293-314.
- (16) Bilger, R. W., ほか2名, *J. Fluid Mech.*, **233** (1991), 211-242.
- (17) Bilger, R. W., *Combust. Sci. Technol.*, **13** (1976), 155-170.
- (18) Bourne, J. R., ほか2名, *Chem. Eng. Sci.*, **36** (1981), 1643-1648.
- (19) Angst, W., ほか2名, *Chem. Eng. Sci.*, **39** (1984), 335-342.
- (20) Friehe, C. A., ほか2名, *Turbulent Shear Flows, AGARD Conf. Proc.*, **93** (1972), 18.1-18.7.
- (21) 例えば, Hinze, J. O., *Turbulence*, 2nd ed., (1975), 520. McGraw-Hill.
- (22) 酒井康彦, 名古屋大学工学部博士学位論文, (1984).
- (23) Becker, H. A., ほか2名, *J. Fluid Mech.*, **30** (1967), 285-303.
- (24) Birch, A. D., ほか3名, *J. Fluid Mech.*, **88** (1978), 431-449.