温度制御可能な衝撃波管による気液非平衡状態での メタノール蒸気の凝縮係数測定*

藤川 重雄^{*1}, 葉山 眞治^{*2}, 小谷 正直^{*3}
阿部 稔弘^{*4}, 井奈波 晃^{*5}

The Measurement of Condensation Coefficient of Methanol Vapor in Nonequilibrium States by a Temperature-Controllable Shock Tube

Shigeo FUJIKAWA^{*6}, Shinji HAYAMA, Masanao KOTANI,
Toshihiro ABE and Akira INABA

^{*6} Division of Mechanical Science, Hokkaido University,
N 13 W 8, Kita-ku, Sapporo-shi, Hokkaido, 060-8628 Japan

A shock tube available in a state from initially normal to high temperatures is made and it is used for the measurement of the growth of a liquid film formed on the endwall surface of the tube in a shock wave reflection region. It is found that the shock tube satisfies requirements for the experiment and the liquid film grows uniformly on the wall surface at an initially high temperature. The condensation coefficient of methanol vapor is determined from the growth of liquid films at initially normal temperatures (286.3 K~299.6 K) and higher ones (323.3 K~324.4 K). It is clarified that the condensation coefficient is strongly dependent on both by the ratio of vapor and liquid temperatures and by the ratio of number densities of vapor and saturated vapor at the vapor/liquid interface. For the same temperature and number density ratios, the higher is the liquid temperature, the smaller becomes the condensation coefficient, and it decreases with the increase of the number density ratio.

Key Words: Shock Tube, Shock Wave, Temperature Control, Nonequilibrium Vapor/Liquid Phase Change, Condensation, Condensation Coefficient

1. 緒 論

流体の「気相・液相間の」あるいは「気液界面における」相変化は、理工学における基礎的問題の一つとして古くから多くの研究者により取り上げられてきた⁽¹⁾。近年、特に異相界面での熱・物質輸送現象のミクロ機構解明の要請と相まって、非平衡状態にある気液界面での相変化速度や温度境界条件の研究が注目されている⁽²⁾。相変化速度および温度境界条件は、分子気体力学において Boltzmann 方程式からかなり厳密に導かれてはいるが、これらの中には、界面に衝突する蒸気分子流束に対する実際に凝縮する分子流束の比が未知パラメータとして導入されている⁽³⁾。

この未知パラメータは凝縮係数と呼ばれており、蒸

気の種類、蒸気の熱力学的状態、界面の物理化学的状态等に依存している物性値と考えられている。これまでにさまざまな蒸気に対して凝縮係数の値を決定する実験的および理論的研究が半世紀以上にもわたってなされてきた^{(4)~(6)}。しかし、その決定には多くの困難が伴い、限られた条件下ではあるが一部の蒸気に対して精度のよい実験ができるようになり、また理論的にも扱えるようになったのは最近のことである。

例えば、藤川らは蒸気中の衝撃波が気液界面で反射した後に界面近傍に形成される気液非平衡状態において、メタノールおよび酢酸蒸気の凝縮係数の値を精度よく決定するとともに^{(7)~(9)}、気体力学に基づく液膜成長の理論を展開して彼らの実験方法に理論的根拠を与えた⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。メタノール蒸気を用いた理由は強い水素結合のために単純液体とは大きく異なった表面物性を示し、相変化が著しく影響を受けると予測されたためである。その結果、界面での液体温度に対するそこで蒸気温度の比が大きいほど凝縮係数の値は大きく、液体温度での飽和蒸気数密度に対する界面での蒸気数密度の比が大きいほど凝縮係数の値は小さくなることを明らかにした⁽⁸⁾。この場合、凝縮係数の値はこれらの比に依存して 0.09~0.52 の範囲で変化していた。

一方、松本⁽¹²⁾は気液平衡状態にあるアルゴン、水、

* 原稿受付 2001年7月19日。

^{*1} 正員、北海道大学大学院工学研究科(☎ 060-8628 札幌市北区北13条西8)。

^{*2} 正員、富山県立大学工学部(☎ 939-0398 富山県射水郡小杉町・黒河5180)。

^{*3} 正員、(株)日立製作所機械研究所(☎ 300-0013 土浦市神立町502)[元：富山県立大学大学院]。

^{*4} 理想科学工業(株)(☎ 300-1156 茨城県稲敷郡阿見町福田谷の沢127-7)[元：富山県立大学大学院]。

^{*5} (株)フジマック(☎ 462-0043 名古屋市中区八代町1-93-2)[元：富山県立大学大学院]。

E-mail: fujikawa@eng.hokudai.ac.jp

メタノール、酢酸に対して蒸発・凝縮の分子動力学シミュレーションを行い、これらの凝縮係数の値が温度の上昇とともに小さくなることを明らかにした。また、Chekmarev⁽¹³⁾は凝縮係数の半経験的理論を提示したが、二つの未知パラメータを凝縮係数の実験値との比較を通して決定しなければならず、パラメータの検討のためにさらに広い温度範囲における凝縮係数の実験値が必要とされている。

本研究では、以上述べたことを背景として、凝縮係数の温度および数密度依存性を調べるために、蒸気の初期温度を制御することができる衝撃波管を製作し、その性能評価を行うとともに、これを用いてメタノール蒸気の凝縮係数の値を常温以上の温度において測定する。

2. 主要記号

- $\langle n_v \rangle$: 気液界面での蒸気数密度の時間平均値 m^{-3}
- $\langle n_v^* \rangle$: 飽和蒸気数密度の時間平均値 m^{-3}
- $n_{v\infty}$: 反射衝撃波背後の一樣状態での蒸気数密度 m^{-3} (ランキン・ウゴニオの式による数密度)
- p_{v0}^* : 初期温度での飽和蒸気圧 Pa
- $p_{v\infty}$: 反射衝撃波背後の一樣状態での蒸気圧 Pa
- $\langle T_l \rangle$: 気液界面での液体温度の時間平均値 K
- $\langle T_v \rangle$: 気液界面での蒸気温度の時間平均値 K
- T_{v0} : 衝撃波入射以前の蒸気の初期温度 K
- $T_{v\infty}$: 反射衝撃波背後の一樣状態での蒸気温度 K (ランキン・ウゴニオの式による温度)
- α : 分子気体力学境界条件中の凝縮係数

3. 反射衝撃波背後・衝撃波管管端面での凝縮現象

図1は衝撃波の作用による蒸気の熱力学的状態変化を示したものである。初期状態1の蒸気は不飽和状態にあるものとする。主流領域の蒸気は入射および反射衝撃波の作用を受けて状態1から状態2へと不可逆断熱的に変化する。このとき、状態2の蒸気は不飽和状態のまま保たれる。一方、管端面に接している蒸気は、圧力が状態2での値に保たれながら、状態1から状態2Wへとほぼ等温的に変化する。したがって、適当な蒸気の初期圧力を選ぶことにより、状態2Wにある蒸気を過飽和状態にすることができる。

このとき、状態2Wの蒸気は管端面上で凝縮し、液膜が形成される。また、液面付近の蒸気中には熱境界層が形成され、時間とともに主流領域へと発達していく。本研究では、管端面上で成長する液膜厚さの時間変化を光学的方法により測定し⁽⁷⁾、これを実験に対応

Fig. 1 Change of thermodynamic states of vapor

する液膜成長の理論^{(9)~(11)}と比較することにより凝縮係数を決定する。ただし、本研究では、気液界面での分子気体力学境界条件として會根・青木の式⁽³⁾を用いた。

4. 実験装置および実験方法

4.1 衝撃波管の構造および作動原理 図2は衝撃波管および液膜厚測定用光多重反射干渉計の概略を示したものである。衝撃波管は全長5.3 m (高圧部: 2 m, 低圧部3.3 m)の横形であり、低圧部は非加熱部(1.6 m)および加熱部(1.7 m)からなっている。非加熱部は一辺60 mmの正方形断面、一方、加熱部は非加熱部と同じ断面積を有する円管で、これらの接続部は正方形断面から円形断面へと断面積を一定に保って滑らかに変化している。

加熱部には、蒸気の初期温度を最高470 Kまで加熱可能な温度制御装置付ヒータが取付けられている。ヒータは、管端から1.1 mの低圧管を加熱するもの(I)、管端から0.3 m延長して取付けた円管を加熱するもの(II)、さらに隔膜側0.3 mの円管を加熱するもの(III)の三つの部分からなり、これらは独立に常温から470 K付近まで温度制御できるようになっている。独立に温度制御できるようにした理由は、(I)の領域で入射衝撃波のマッハ数測定を行うため、この領域の温度をできるだけ一様にする必要があるためである。管内軸方向温度分布の測定結果については5.2節で述べる。さらに、470 K付近まで加熱した場合、衝撃波管架台の温度上昇が著しくなり、測定等への影響が予想されるため、架台に衝撃波管を取付けている支柱の内部に冷却水を循環させて架台の温度上昇を抑えることができるようになっている。ただし、今回の実験では蒸気の初期温度を常温(286.3~299.6 K)および

Fig. 2 Shock tube and optical interferometer

(323.3~324.4 K)としたため、冷却は行わなかった。加熱部管内の蒸気の温度は0.5 mの間隔で管壁に取付けられた同一性能を有する3本の熱電対(測定誤差0.2°C)により測定する。また管端には、液膜の成長を観測するための石英製の光学ガラス[有効直径19.9 mm, 厚さ14 mm, 平面度 $\lambda/20$ ($\lambda=632.8$ nm), 平行度5 s以内]が管内面と面一に取付けられている。

衝撃波管の高圧部と低圧部はアルミニウムはくの隔膜により仕切られている。高圧部に駆動ガスを導入し、圧力差により隔膜を破ることにより、低圧部蒸気中に衝撃波を発生させる。この衝撃波の圧力を上記(I)の部分に1 m間隔で取付けられた同一サイズ、同一感度の2個の圧力計(立上り時間6 μ s)で測定し、デジタルストレージオシロスコープに取り込み、コンピュータで処理する。入射衝撃波のマッハ数は衝撃波が2個の圧力計を通過する時間間隔をユニバーサルカウンタにより測定し、これと圧力計間の距離との関係から求める。入射衝撃波のマッハ数の測定誤差は圧力計の直径と距離の関係から1.8%以下である。

4.2 光多重反射干渉計および測定原理 液膜の厚さを測定する光多重反射干渉計については、藤川らの論文⁽⁷⁾に詳細に記述されているので省略する。

5. 実験結果および考察

5.1 到達真空度測定および漏れ試験 図3は衝撃波管低圧部(試料蒸気を封入する部分)が最高到達真空圧力に達した後、管外から管内への空気の漏れにより管内空気圧が時間の経過とともに上昇するようすを示したものである。試験は管内壁温度が300.2, 323.2, 353.2, 383.2 Kの四とおりに対して行った。

Fig. 3 Time variation of vacuum pressure

図3より、管内圧力および漏れ速度は温度に依存せず、それぞれ0.02 Paおよび約0.05 Pa/minであることがわかる。通常、相変化の実験は0.7 kPa以上の初期圧力で行われ、試料蒸気を導入後、光学系の面調整等のために約10 minの時間を要する。このときの試料蒸気に対する漏れ空気の割合は約0.07%となるが、この程度の空気は凝縮係数の測定に何ら影響を及ぼさないことが数値シミュレーションにより明らかにされている⁽¹⁴⁾。

5.2 管内管軸方向温度分布測定 蒸気中を伝ばする衝撃波の速度変動を小さく抑えるために、低圧部加熱管内の温度をできるだけ一様にする必要がある。図4は管内気体温度を323.3 Kに設定した場合の管軸方向の管内壁近傍の温度分布を示したものである。試料気体はアルゴンガスである。図4より、管軸方向の最大温度差は ± 3 K以内であり、この程度の温度の変化に対する音速の変化は $\pm 0.5\%$ 以内であることから考えて、衝撃波マッハ数の変動も同程度であろうと推定される。

5.3 衝撃波の圧力測定 衝撃波の圧力に関しては、従来どおり^{(7)~(9)} キスラー圧力計を用いて測定した。入射および反射衝撃波の通過に伴う蒸気の圧力変化はランキン・ウゴニオの関係式によって求めたものとよく一致することを確認した。なお、圧力測定は各実験ごとに行い、5.5節で述べる凝縮係数の圧力補正に用いた。

5.4 光多重反射干渉計の出力 図5は衝撃波の反射によって光学ガラス上に形成された液膜厚さの時間変化によるフォトダイオード出力の時間変化を示したものである。実験条件は図5中に示してある。ここで、初期温度とは蒸気を衝撃波管に導入した後の蒸気温度であり、温度測定誤差内で管端の光学ガラスの温度と一致していた。

衝撃波が管端(光学ガラス)面で反射した瞬間から蒸気が凝縮してそこに液膜が形成され、液膜の厚さが時間とともに増加するにつれて、フォトダイオードの出力が最大値と最小値の間を交互に変化している。この結果は、一様な液膜内での光の多重反射の光学理論の結果と一致しており⁽¹⁵⁾、このことから液膜が管端面上で一様に成長していることが推察される。

5.5 液膜厚さの時間変化と凝縮係数 図6は液

Fig. 4 Axial temperature distribution of heated section

Fig. 5 Reflectance history

膜厚さの時間変化を示したものである。縦軸は衝撃波の反射によって管端で凝縮が始まった瞬間からの液膜厚さの変化分である。○印は測定結果、実線は凝縮係数 $\alpha=0.10, 0.12, 0.14, 1$ に対する理論曲線を表している。この実験条件でのメタノールの凝縮係数の値は1より有意に小さな値を示していることがわかる。また、凝縮係数の値は0.10~0.14の範囲にあることがわかる。

凝縮係数の値の決定精度はおもに反射衝撃波背後の圧力に依存するため、その決定に当たってはこれまでと同様⁽⁷⁾、次のようなパラメータ Z により圧力補正を行った。

$$Z = \frac{p_{v\infty}^{\text{exp}} - p_{v0}^*}{p_{v\infty} - p_{v0}^*} \quad (1)$$

ここで、 $p_{v\infty}^{\text{exp}}$ は反射衝撃波背後の圧力の実験値である。図6の条件の場合、 $Z=1.00$ であり、凝縮係数の値は図6に示される実験値の最確値0.12となる。なお、本実験における凝縮係数測定のトータルな誤差はおおよそ $\pm 5\%$ と見積もられた。

5.6 凝縮係数の温度・数密度依存性 図7は凝縮係数の値を気液界面での蒸気の温度 T_v および数密

Fig. 6 Time variation of liquid film thickness

Fig. 7 Condensation coefficient in thermodynamic nonequilibrium conditions

度 n_0 について整理したものである。これらの温度および数密度は藤川らの理論^{(9)~(11)}により求められたものである。これらは時間とともに変化しているため測定時間で時間平均(記号 $\langle \rangle$ で表す)されており、さらに非平衡状態での実験結果であることを考慮して気液界面での液体温度 T_l およびその温度での飽和蒸気数密度 n_s^* の時間平均値でそれぞれ無次元化してある⁽⁸⁾。

図7中のI(○, ●印)およびII(△, ▲印)は衝撃波入射以前の蒸気の初期温度 T_{v0} がそれぞれ常温(286.3~299.6 K)および323.2~324.4 Kにおける実験結果である。参考のために、表1に図7の各点における詳細なデータを示してある。図7中の温度比($\langle T_v \rangle / \langle T_l \rangle$)は表1中の温度比を小数点以下3けたを四捨五入して示してある。凝縮係数の値が温度比($\langle T_v \rangle / \langle T_l \rangle$)の増加に伴い大きくなり、数密度比($\langle n_v \rangle / \langle n_s^* \rangle$)の増加に伴い小さくなることはKotani

ら⁽⁸⁾によりすでに明らかにされているが、本研究によりさらに定量的にしかも異なる初期温度の下で明らかにされたことになる。

凝縮係数の温度依存性については、気液平衡状態の場合には、分子動力学シミュレーションにより詳細に調べられており⁽¹²⁾⁽¹⁶⁾、温度が高いほど凝縮係数の値は小さくなることが明らかにされている。長山ら⁽¹⁶⁾はこの理由を、温度の上昇とともに界面での分子の運動が活発となり、界面から蒸気中に出ていく分子と入射蒸気分子との衝突の際の抵抗が増大するために凝縮係数の値が低下すると説明している。図7の同じ温度比の結果(○, △印)を比較すると、気液非平衡状態の場合にも初期温度が高い場合のほうが低い場合よりも凝縮係数の値が小さくなっており、平衡状態での分子動力学シミュレーション結果と定性的に一致している。温度上昇に伴う凝縮係数の値の低下は、最近、水⁽¹⁷⁾ およびヘリウムII⁽¹⁸⁾ についても報告されてい

Table 1 Details of all points shown in Fig. 7

	$T_{v0}(K)$	$\langle T_l \rangle (K)$	$\langle T_v \rangle (K)$	$T_{v\infty}(K)$	$\langle n_v^* \rangle (m^{-3})$	$\langle n_v \rangle (m^{-3})$	$n_{v\infty}(m^{-3})$	$\langle T_v \rangle / \langle T_l \rangle$	$\langle n_v \rangle / \langle n_v^* \rangle$	α
I	292.5	294.1	309.1	425.5	3.371E+24	5.190E+24	3.768E+24	1.051	1.540	0.58
	289.0	290.5	304.0	443.0	2.792E+24	4.403E+24	3.021E+24	1.047	1.580	0.50
	287.7	289.1	304.1	383.9	2.599E+24	4.384E+24	3.467E+24	1.052	1.690	0.46
	297.6	299.9	314.0	559.3	4.478E+24	8.416E+24	4.723E+24	1.047	1.880	0.39
	295.8	298.2	313.6	472.4	4.127E+24	8.820E+24	5.852E+24	1.052	2.140	0.32
	293.5	295.8	311.4	577.6	3.665E+24	8.369E+24	4.510E+24	1.053	2.280	0.30
	292.2	294.5	309.0	586.9	3.439E+24	7.976E+24	4.198E+24	1.049	2.320	0.28
	295.4	297.8	311.7	530.8	4.047E+24	9.841E+24	5.777E+24	1.047	2.430	0.24
	299.6	304.0	319.2	667.5	5.442E+24	1.512E+25	7.221E+24	1.050	2.780	0.23
	288.6	289.9	298.8	439.7	2.719E+24	3.876E+24	2.634E+24	1.030	1.430	0.48
	295.1	296.6	305.2	412.8	3.803E+24	5.427E+24	4.010E+24	1.029	1.430	0.47
	288.1	289.7	298.9	446.0	2.679E+24	4.819E+24	3.229E+24	1.032	1.800	0.28
	286.3	287.8	296.3	396.4	2.426E+24	4.407E+24	3.293E+24	1.029	1.820	0.26
	293.1	295.3	303.6	581.7	3.565E+24	7.575E+24	3.952E+24	1.028	2.120	0.20
	296.9	299.0	308.5	454.6	4.284E+24	9.118E+24	6.124E+24	1.032	2.130	0.22
	297.5	299.9	308.3	528.2	4.480E+24	9.786E+24	5.709E+24	1.028	2.180	0.19
	292.2	294.6	302.5	536.6	3.443E+24	9.069E+24	5.111E+24	1.027	2.630	0.14
II	324.2	328.4	338.0	513.7	1.872E+25	2.610E+25	1.718E+25	1.029	1.394	0.31
	323.3	327.6	337.4	513.4	1.831E+25	2.593E+25	1.704E+25	1.030	1.416	0.31
	323.7	329.2	339.6	506.2	2.097E+25	3.135E+25	2.104E+25	1.032	1.495	0.27
	323.7	328.7	338.9	520.0	1.884E+25	2.967E+25	1.934E+25	1.031	1.575	0.28
	323.5	329.5	337.6	532.3	1.967E+25	3.347E+25	2.123E+25	1.025	1.702	0.20
	323.7	327.0	330.7	532.7	1.663E+25	2.199E+25	1.366E+25	1.011	1.322	0.20
	324.0	327.5	331.5	502.9	1.743E+25	2.339E+25	1.542E+25	1.012	1.342	0.19
	324.2	328.5	332.0	560.7	1.888E+25	2.648E+25	1.569E+25	1.011	1.403	0.14
	323.7	327.5	331.1	512.7	1.730E+25	2.443E+25	1.578E+25	1.011	1.412	0.15
	324.0	327.7	331.0	506.8	1.773E+25	2.576E+25	1.751E+25	1.009	1.453	0.11
	323.9	329.0	332.6	529.0	1.928E+25	2.982E+25	1.875E+25	1.011	1.547	0.11
	323.5	329.2	333.1	531.6	1.915E+25	3.211E+25	2.087E+25	1.012	1.677	0.11
	324.0	329.8	333.1	526.3	1.918E+25	3.331E+25	2.109E+25	1.010	1.737	0.09
	323.3	329.0	331.4	551.9	1.754E+25	3.123E+25	1.876E+25	1.007	1.780	0.07
	324.4	328.4	330.9	541.3	1.417E+25	2.587E+25	1.582E+25	1.008	1.826	0.10

る。また、同じ初期温度の場合(○印と●印, △印と▲印), 温度比が大きい場合ほど凝縮係数の値が大きくなっている。これは, アルゴン分子のアルゴン液体表面への衝突に関する Tsuruta ら⁽¹⁹⁾ の分子動力学シミュレーションで明らかにされているように, 界面での蒸気温度が高いほど蒸気分子が大きな並進運動エネルギーをもっているため, 界面のポテンシャルエネルギー障壁を通過しやすくなるためであると考えられる。

一方, 凝縮係数の数密度依存性については, 分子動力学シミュレーション等による解析結果がないため詳しい議論はできないが, Chekmarev の理論により解釈するなら⁽⁹⁾⁽¹³⁾, 蒸気の数密度の増加により液面での蒸気分子の衝突頻度が増加し, ホットスポット(1個の蒸気分子が凝縮した際にその周辺の液体温度が高くなる部分)からの誘導蒸発の程度が大きくなって, 見掛け上凝縮する割合が低くなり, 凝縮係数が小さくなるものと理解される。

6. 結 論

蒸気の初期温度を制御することのできる衝撃波管を製作し, その性能試験を行うとともに, 初期温度が I : 常温(286.3~299.6 K)および II : それより高い場合(323.3~324.4 K)についてメタノール蒸気の凝縮係数を測定した。結果をまとめると以下のようなになる。

(1) メタノール蒸気の凝縮係数の値は, 気液界面での液体温度が高い II の場合のほうが I の場合よりも小さい。

(2) I, II いずれの場合にも, 温度比 $\langle T_v \rangle / \langle T_l \rangle$ が大きいほど, 凝縮係数の値は大きい。

(3) I, II いずれの場合にも, 同一温度比に対して, 数密度比 $\langle n_v \rangle / \langle n_l^* \rangle$ が大きくなると, 凝縮係数の値は小さくなる。

本研究の一部は, 平成 11~13 年度日本学術振興会

科学研究費補助金[基盤研究(C)(2)]「広範囲な熱的非平衡状態における蒸気の相変化現象に関する分子流体力学的研究」(研究代表者 藤川重雄)]によりなされたものである。ここに記して関係各位に感謝申し上げます。

文 献

- (1) 例えば, Hirth, J. P. and Pound, G. M., *Condensation and Evaporation (Nucleation and Growth Kinetics)*, (1963), Pergamon Press.
- (2) P-SC 297 研究分委会(主査深野徹), 「界面現象の物理」成果報告書, (2001), 日本機械学会.
- (3) 會根良夫・青木一生, 分子気体力学, (1994), 219-222, 朝倉書店.
- (4) Mortensen, E. and Eyring, H., *J. Phys. Chem.*, **64** (1960), 846-849.
- (5) Mills, A. F. and Seban, R. A., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **10** (1967), 1815-1827.
- (6) 幡宮重雄・田中宏明, 機論, **52-477**, B (1986), 2214-2221.
- (7) 藤川重雄・松本充弘・小谷正直・佐藤博, 機論, **61-581**, B (1995), 215-222.
- (8) Kotani, M., Tsuzuyama, T., Fujii, Y. and Fujikawa, S., *JSME Int. J., Ser. B*, **41-2** (1998), 436-440.
- (9) 藤川重雄・小谷正直・葛山達夫, 機論, **66-649**, B (2000), 2384-2389.
- (10) 藤川重雄, 機論, **61-582**, B (1995), 635-643.
- (11) 藤川重雄・小谷正直・高杉信秀, 機論, **62-596**, B (1996), 148-207.
- (12) Matsumoto, M., *Proc. Int. Conf. Fluid Eng., JSME*, **3** (1997), 1497-1502.
- (13) Chekmarev, S. F., *AIChEJ.*, **42-9** (1996), 2467-2475.
- (14) Maerefat, M., Fujikawa, S. and Akamatsu, T., *Fluid Dyn. Res.*, **6-1** (1990), 25-42.
- (15) Maerefat, M., Fujikawa, S., Akamatsu, T., Goto, T. and Mizutani, T., *Exp. Fluids*, **7** (1989), 513-520.
- (16) 長山暁子・鶴田隆治, 機論, **67-656**, B (2000), 1041-1048.
- (17) Haynes, D. R., Tro, N. J. and George, S. M., *J. Phys. Chem.*, **96-21** (1992), 8502-8509.
- (18) 古川徹・村上正秀・飯田光人, なかれ, **19-4** (2000), 247-252.
- (19) Tsuruta, T., Tanaka, H., Tamashima, K. and Masuoka, T., *Proc. Int. Center Heat Mass Transf. Symp.*, **1** (1996), 243-254.