

報告番号	※ 甲 第 10628 号
------	---------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 化学反応を伴う乱流拡散および混合現象に関する研究

氏 名 渡邊 智昭

論 文 内 容 の 要 旨

乱流中で複数の反応性物質が混合されながら化学反応する現象は多くの科学分野で見られる。工学において、溶鉱炉やエンジン内での燃焼における熱輸送や汚染物質の生成、また化学反応炉での物質の生成などにおいてこのような現象がみられ、化学反応を伴う乱流現象の解明は工学的に極めて重要となっている。また、環境科学の分野においては、光化学スモッグの酸化物の生成や汚染物質の変質の問題にもみられる。超微粒子の製造を行う反応晶析器の流れの中などにも同様の現象が見られ、乱流混合機構の解明と制御を行うことが理想の均一粒径を持つ微粒子を製造する過程で不可欠なものとなっている。乱流中で生じる化学反応では乱流混合の特性が反応場に対して大きな影響を与えるため、乱流現象と化学反応の関係を解明することが重要となる。本論文では、化学反応を伴う乱流拡散および混合現象の特性を実験・数値計算により明らかにすることおよび、乱流中で生じる化学反応挙動の予測手法を確立することを目的として行った研究についてまとめた。

実験では、研究例が少なく未解明な点が多く残されている液相で生じる化学反応を研究対象とした。液相二次元噴流中で生じる化学反応 $A + B \rightarrow R$ を対象とした実験を行い、液相噴流中で生じる化学反応の特性を調査した。ここで、反応物質 A, B はそれぞれ 1-ナフトール、ジアゾベンゼンスルホン酸であり、生成物質 R は赤色のモノアゾ染料である。反応物質 A と無反応物質 C (青色の染料) を含む溶液を、反応物質 B が含まれる流体中に二次元噴流として流して実験を行った。流れ場に含まれる染料物質 R, C の瞬時濃度を吸光度法に基づく光ファイバプローブにより計測し、染料物質 R, C の瞬時濃度を用いて物質 A, B の瞬時濃度を化学種の質量保存則から算出した。濃度測定用の光ファイバプローブを I 型熱膜プローブと組み合わせることにより、濃度と流れ方向速度の同時計測を行った。そして、速度と濃度の同時計測結果を用いて、反応性乱流の数値計算手法に用いられる数値計算モデルについての検証を行った。

流れ場やスカラ拡散場を数値計算により予測する場合、Reynolds 平均を施した支配方程式を解く手法が広く用いられている。この手法を化学反応を伴う流れ場に適用する場合、乱流流束と平均反応速度に対するモデルが必要となる。乱流流束に対するモデルとしてはこ

う配拡散モデルが広く用いられている。本実験結果から、こう配拡散モデルのパラメータである乱流 Schmidt 数は化学反応によって大きく変化することがわかった。そのため、乱流 Schmidt 数を化学反応によらない一定値と仮定した場合、こう配拡散モデルにより求められる反応性物質の乱流物質流束には大きな誤差が含まれることが予想される。本研究で対象とした化学反応 $A + B \rightarrow R$ の平均反応速度のモデル化には、反応物質 A および B の濃度相関に対するモデルが用いられる。本実験による濃度相関の計測結果を用いて、濃度相関に対して過去に提案された Toor のモデルと 3 Environmental (3E) モデルの検証を行った。その結果、Toor のモデルは濃度相関の大きさを実験値よりも小さく見積もることがわかった。濃度相関の値は化学反応によって変化する。化学反応による濃度相関の変化が小さい位置では 3E モデルにより予測された濃度相関は実験値に近い値となるが、化学反応による濃度相関の変化が大きくなるにつれて、3E モデルと実験値の差が大きくなることがわかった。

反応性物質を別々に含む予混合のない二つの流れが混合することにより生じる反応場の数値計算には、混合分率で条件付けされた統計量に対する支配方程式を解く Conditional Moment Closure 法 (CMC 法) が有効であることが知られている。CMC 法では混合分率に対する条件付平均流速、条件付平均反応速度、条件付平均スカラ散逸率に対するモデルが必要となる。本実験結果から、拡散物質の Schmidt 数が大きい液相で生じる化学反応においても条件付平均反応速度が反応物質の条件付平均濃度の積を用いて精度良く近似されること、噴流中心上において条件付平均流速が混合分率の一次式で近似されることがわかった。計測された条件付統計量を用いて、生成物質 R の条件付平均濃度の輸送方程式から条件付平均スカラ散逸率を算出した。その結果、条件付平均スカラ散逸率は、噴流上流域では混合分率に対して一つの極大値を持つ分布となるが、下流に行くにつれて値が小さくなるとともに二つの極大値を持つ分布となることがわかった。

また本論文では、化学反応 $A + B \rightarrow P$ を伴う二次元噴流の直接数値計算法 (Direct Numerical Simulation, DNS) による数値計算を行い反応場の可視化や統計量を算出することで、噴流中で生じる化学反応について調査した。ここで、拡散物質の Schmidt 数を 1 とした。DNS はダムケラ数の異なる三種類の化学反応に対して行われた。生成物質 P の瞬時濃度の可視化結果より、噴流ノズル付近において生成物質 P は噴流と周囲流体の境界付近のみに存在するが、噴流下流域の生成物質 P は噴流内部に全体に分布することがわかった。また、反応速度の瞬時値を可視化した結果、ダムケラ数が大きい場合には噴流と周囲流体の境界付近で反応が活発に生じるが、ダムケラ数が小さい場合には噴流と周囲流体の境界付近だけでなく噴流内部でも反応が生じることがわかった。

さらに、Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた速度場と混合分率 (保存スカラ) の Large Eddy Simulation (LES) を反応場を計算する確率密度関数 (PDF) 法と組み合わせた反応性乱流の計算手法 (LES-PDF 法) を構築した。本計算手法では、Approximate Deconvolution フィルタを用いて速度場を計算することにより確率密度関数の輸送方程式中の対流輸送項をモデル化する。ADM を用いた LES-PDF 法により反応性物質拡散場を計算することが可能であることを確かめるため、本研究で DNS を行ったものと同じ二次元噴流中の反応性物質拡散場に対して、ADM を用いた LES-PDF 法を適用した。まず、LES の代わりに DNS による速度場と混合分率の数値計算結果を用いて、PDF 法による二次元噴流の

数値計算 (DNS-PDF 法) を行った。その結果、二つの混合粒子の混合分率の分散とスカラー散逸率の二つの混合粒子の平均値を用いて計算される分子混合モデルの時間スケールにより、PDF 法の計算に用いる計算粒子数によらず分子混合モデルの混合時間スケールを正確に見積もることができることがわかった。また、ADM を用いた LES-PDF 法により得られた反応性物質の濃度統計量が反応場の DNS の結果とよく一致し、ADM を用いた LES-PDF 法により反応性物質の濃度統計量を精度よく予測することが可能であることがわかった。さらに、ADM を用いた LES-PDF 法を高 Schmidt 数の反応性スカラー拡散場に対して適用することを試みた。ADM を用いた LES-PDF 法による液相スカラー混合層の数値計算を行い、計算結果を過去の実験結果と比較した。その結果、ADM を用いた LES により得られた混合分率の統計量が実験値と良好に一致し、ADM を用いた LES により高 Schmidt 数の無反応物質拡散場の数値計算が可能であることがわかった。また、LES-PDF 法により得られた反応性物質の濃度統計量についても実験値と良く一致し、ADM を用いた LES-PDF 法により化学反応を伴う高 Schmidt 数スカラー拡散場を精度よく予測できることがわかった。従来の Smagorinsky モデルと渦配拡散モデルを用いた手法と異なり、ADM を用いた LES ではモデルパラメータを調整することなく分子拡散係数の異なる物質拡散場を扱うこと可能である。そのため、ADM を用いた LES を化学反応項に対するモデルを必要としない PDF 法と組み合わせた LES-PDF 法は高 Schmidt 数スカラー拡散場で生じる化学反応に対して有効な手法となる。以上のように、二次元噴流と液相スカラー混合層中で生じる化学反応場の数値計算を行うことで計算手法の有効性を示した。