

化学反応を伴う乱流拡散および混合現象 に関する研究

渡邊 智昭

化学反応を伴う乱流拡散および混合現象 に関する研究

平成26年1月

渡邊 智昭

目次

第 1 章	緒論	1
1.1	はじめに	1
1.2	反応性乱流の数値的研究	2
1.2.1	反応性乱流の数値計算手法について	2
1.2.2	Conditional Moment Closure (CMC) 法	3
1.2.3	確率密度関数法	4
1.2.4	Large Eddy Simulation について	6
1.3	反応性乱流の実験的研究	8
1.3.1	気相の反応性乱流の実験的研究	8
1.3.2	液相の反応性乱流の実験的研究	8
1.3.3	実験結果を用いた反応性乱流の数値計算手法の検証	8
1.3.4	本論文の構成	9
第 2 章	液相二次元噴流中で生じる化学反応に関する実験的研究	10
2.1	緒言	10
2.2	化学反応を伴う液相二次元噴流	10
2.2.1	実験装置および実験条件について	10
2.2.2	化学反応の特性	11
2.2.3	物質 B の生成方法	12
2.3	濃度計測手法	16
2.3.1	吸光光度法による多成分瞬時濃度測定	16
2.3.2	保存スカラ理論	17
2.3.3	光ファイバプローブの検定	23
2.4	反応性物質濃度と速度の同時計測	25
2.4.1	濃度・速度同時計測用複合プローブ	25
2.4.2	速度・混合分率の統計量	32
2.4.3	反応性物質濃度の統計量	35
2.4.4	反応性物質濃度と速度の結合統計量	43

2.4.5	反応性物質濃度に対すこう配拡散モデル	53
2.5	反応速度に関する統計量	62
2.5.1	平均反応速度と濃度相関項について	62
2.5.2	平均反応速度	62
2.5.3	反応物質の濃度相関	63
2.5.4	反応項に対するモデル	67
2.6	混合分率に対する条件付統計量	77
2.6.1	Conditional Moment Closure 法	77
2.6.2	条件付統計量の計測結果	77
2.6.3	CMC 方程式の評価によるスカラ散逸率の算出	90
2.7	結言	103
第 3 章	反応性二次元噴流の直接数値計算	106
3.1	緒言	106
3.2	計算対象	106
3.3	計算手法	108
3.4	反応場の可視化	111
3.5	流れ場・無反応物質拡散場の統計的性質	114
3.5.1	平均速度・平均混合分率	114
3.6	反応性物質拡散場の統計的性質	119
3.6.1	平均濃度	119
3.6.2	平均反応速度	120
3.7	結言	126
第 4 章	Approximate Deconvolution Model を用いた LES–PDF 法による反応性乱流の数値計算	127
4.1	緒言	127
4.2	Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた LES–PDF 法	128
4.2.1	Large Eddy Simulation (LES)	128
4.2.2	Approximate Deconvolution Model を用いた LES とフィルタ操作による LES	129
4.2.3	ADM を用いた LES–PDF 法	131
4.2.4	分子混合モデル	133
4.3	ADM を用いた LES–PDF 法による化学反応を伴う噴流の数値計算	136
4.3.1	化学反応を伴う二次元噴流	136
4.3.2	分子混合モデルの混合時間スケールについて	136

4.3.3	計算手法	138
4.3.4	DNS-PDF 法による混合分率の計算結果	143
4.3.5	ADM を用いた LES-PDF 法による反応性二次元噴流の計算結果 . .	144
4.4	ADM を用いた LES-PDF 法による化学反応を伴う液相スカラ混合層の数 値計算	158
4.4.1	化学反応を伴う液相スカラ混合層	158
4.4.2	計算手法	158
4.4.3	LES-PDF 法による化学反応を伴う液相スカラ混合層の計算結果 . .	162
4.5	結言	174
第 5 章	結論	175
	謝辞	179
	参考文献	180

第1章

緒論

1.1 はじめに

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^[1]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^[2]。超微粒子の製造を行う反応晶析器^[3]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子径を持つ微粒子を製造する過程で不可欠なものとされている^[4]。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^[5]。

本研究では、化学反応を伴う乱流現象の特性を実験・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する。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^[6-10]。また、実験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^[11-13]。さらに、化学反応を伴う二次元噴流の直接数値計算法 (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^[14,15]。そして、Large Eddy Simulation (LES) を用いた反応性乱流の計算手法として、Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた LES を確率密度関数 (PDF) 法と組み合わせた数値計算手法を提案し、二次元噴流と液相スカラ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^[16]。以下に本研究に関連する研究についてまとめ、緒論とする。

1.2 反応性乱流の数値的研究

1.2.1 反応性乱流の数値計算手法について

化学反応を伴う乱流現象を最も正確に予測する手法は、流れ場の支配方程式を化学種の瞬時濃度の輸送方程式と連立させ、有限差分法やスペクトル法を用いて解く直接数値計算法 (DNS) である。流体の密度が一定であるとし、分子拡散流束に対して Fick の拡散法則が成り立つとすると、反応性物質 α のモル濃度 Γ_α の輸送方程式は次式により表される。

$$\frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial U_j \Gamma_\alpha}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D_\alpha \frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial x_j} \right) + S_\alpha \quad (1.1)$$

ここで、 U_i は i 方向流速、 D_α は物質 α の分子拡散係数、 S_α は化学反応による物質 α の生成速度を表す。本論文では反応物質や反応による生成物質などの反応に関わる物質をまとめて反応性物質と呼ぶ。DNS は多大な計算時間を必要とすることが多く、複雑な流れ場や高 Reynolds 数・高 Schmidt 数の流れ場への適用は難しい。しかし、これまでに DNS は、ブルーム中^[17,18]、スカラ混合層^[19]などの様々な流れ場で生じる化学反応に対して行われ、化学反応を伴う乱流現象の特性の調査や、反応性乱流の数値計算手法の精度を検証するための比較対象として用いられている。DNS の適用が難しい流れ場や拡散場を計算する手法の例として、速度やスカラ量の Reynolds 平均値に対する方程式を解く手法 RANS (Reynolds Averaged Navier Stokes equations) や LES (Large Eddy Simulation) が挙げられる。

式 (1.1) の Reynolds 平均をとることで、平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ に対する輸送方程式が以下のようになれる。

$$\frac{\partial \langle \Gamma_\alpha \rangle}{\partial t} + \frac{\partial \langle U_j \rangle \langle \Gamma_\alpha \rangle}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D_\alpha \frac{\partial}{\partial x_j} \langle \Gamma_\alpha \rangle \right) - \frac{\partial}{\partial x_j} \langle u_j \gamma_\alpha \rangle + \langle S_\alpha \rangle \quad (1.2)$$

$u_i \equiv U_i - \langle U_i \rangle$, $\gamma_\alpha \equiv \Gamma_\alpha - \langle \Gamma_\alpha \rangle$ はそれぞれ速度変動、濃度変動を表す。RANS では式 (1.2) を平均速度場 $\langle U_i \rangle$ の支配方程式と連立させて解くことで平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ を予測する。式 (1.2) を解くためには、乱流流束 $\langle u_i \gamma_\alpha \rangle$ および反応項の平均値 $\langle S_\alpha \rangle$ をモデル化する必要がある。乱流流束に対するモデルとしてはこう配拡散モデル^[20,21]が広く用いられている。化学反応が $A + B \rightarrow P$ により表されるとき、生成物質 P の生成速度 S_P は反応速度定数 k を用いて $S_P = k \Gamma_A \Gamma_B$ と表される。したがって、生成速度の平均値 $\langle S_P \rangle$ は平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ と濃度変動 γ_α を用いて次式のように書ける。

$$\langle S_P \rangle = k \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle + k \langle \gamma_A \gamma_B \rangle \quad (1.3)$$

平均反応速度をモデル化するとき、 $\langle S_P \rangle$ を直接与えるのではなく、濃度相関項 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ をモデル化する手法が多く研究されている^[22–26]。

LES では空間的なフィルタ操作を変数に施すことにより，変数を大スケール成分 (Grid Scale, GS) と小スケール成分 (Sub Grid Scale, SGS) に分離する．そして，大スケール成分に対する支配方程式を解くことで流れ場や拡散場の予測を行う．この際，小スケール成分の大スケール成分に対する影響をモデル化 (SGS モデルと呼ばれる) する必要がある．LES で用いられるフィルタ操作を施した反応性物質濃度 $\overline{\Gamma_\alpha}$ に対する輸送方程式は以下のよう書ける．

$$\frac{\partial \overline{\Gamma_\alpha}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{U_j \Gamma_\alpha}}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D_\alpha \frac{\partial}{\partial x_j} \overline{\Gamma_\alpha} \right) + \overline{S_\alpha} \quad (1.4)$$

ここで， $\overline{\cdot}$ はフィルタをかけられた変数を表す．式 (1.4) をフィルタ操作を施した速度場 $\overline{U_i}$ の支配方程式と連立させて解くことで，反応性物質濃度 $\overline{\Gamma_\alpha}$ の時間・空間発展を計算する．式 (1.4) を解いて反応性物質濃度場の数値計算を行うには，左辺第二項の対流輸送項に現れる $\overline{U_i \Gamma_\alpha}$ やフィルタをかけられた反応項 $\overline{S_\alpha}$ に対するモデルが必要となる．RANS の場合と同様に，対流輸送項に対してはこう配拡散モデルが広く用いられている．また， $A + B \rightarrow P$ の化学反応に対しては，フィルタをかけられた反応速度 $\overline{S_\alpha}$ は，GS の濃度 $\overline{\Gamma_\alpha}$ と SGS の濃度変動 $\gamma'_\alpha \equiv \Gamma_\alpha - \overline{\Gamma_\alpha}$ を用いて次式のように分解できる．

$$\overline{S_P} = k \overline{\Gamma_A \Gamma_B} + k \overline{\gamma'_A \gamma'_B} \quad (1.5)$$

LES では $\overline{S_P}$ を求めるために， $\overline{\gamma'_A \gamma'_B}$ に対するモデルが用いられる^[27–29]．

反応性乱流の RANS や LES で必要となる化学反応速度に関連する項のモデルの研究が過去に多く行われているが，流れ場や化学反応の特性によらず適用可能なモデルは未だ存在していない．そのため，式 (1.3) や式 (1.5) に対するモデルを用いて RANS や LES を反応性乱流に適用するのではなく，速度場を計算する RANS や LES を反応場を取り扱うための別の計算手法と組み合わせることで反応性乱流を計算する手法が研究されている^[30–32]．反応場を取り扱う手法にはいくつかあるが，ここでは Conditional Moment Closure (CMC) 法^[33] と確率密度関数 (PDF) 法^[34, 35] について述べる．

1.2.2 Conditional Moment Closure (CMC) 法

反応物質を別々に含む二つの流体の混合により化学反応が生じるとき，反応場の特性は混合分率に強く依存する．例えば，Masri ら^[36] は，メタノールを燃料とした予混合のない噴流火炎中で温度や複数の化学種の濃度を計測し，温度や化学種の濃度が混合分率に依存することを示している．CMC 法では，混合分率で条件付けした反応性物質の平均濃度 (条件付平均濃度) に対する方程式^[37, 38] (CMC 方程式) を解くことで反応場を計算する．反応性物質 α の濃度 Γ_α の混合分率 ξ に対する条件付平均値 Q_α は以下のように定義される．

$$Q_\alpha \equiv \langle \Gamma_\alpha \mid \xi = \eta \rangle \equiv \langle \Gamma_\alpha \mid \eta \rangle \quad (1.6)$$

$\langle \mid * \rangle$ は条件 $*$ を満たす集合の期待値 (通常はアンサンブル平均) を取ることを表す．また, 式 (1.6) 中の η は混合分率 ξ に対するサンプル変数である． Q_α に対する方程式 (CMC 方程式) は Bilger^[37] と Klimenko^[38] により別々に導かれており, 以下のように表される．

$$\frac{\partial Q_\alpha}{\partial t} + \langle U_i \mid \eta \rangle \frac{\partial Q_\alpha}{\partial x_i} - \langle N \mid \eta \rangle \frac{\partial^2 Q_\alpha}{\partial \eta^2} = \langle S_\alpha \mid \eta \rangle \quad (1.7)$$

ここで, N は混合分率のスカラー散逸率であり, $N \equiv D(\partial \xi / \partial x_j)^2$ と定義される．ここで, D は混合分率に対する拡散係数である．条件付平均速度 $\langle U_i \mid \eta \rangle$, 条件付スカラー散逸率 $\langle N \mid \eta \rangle$ および条件付反応速度項 $\langle S_\alpha \mid \eta \rangle$ に対するモデルを用いて式 (1.7) を解き, 条件付平均濃度 Q_α を計算する．条件付きでない平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ は条件付平均濃度 Q_α と混合分率の確率密度関数を用いて計算される． $A + B \rightarrow P$ の化学反応では, 条件付反応速度項 $\langle S_\alpha \mid \eta \rangle$ を $\langle S_P \mid \eta \rangle = -\langle S_A \mid \eta \rangle = -\langle S_B \mid \eta \rangle = kQ_A Q_B$ により近似するモデルが用いられている．このモデルは非常に単純なモデルであるが条件付き反応速度を精度よく近似できることが知られている．このように, 反応項のモデル化が容易であることが CMC 法を用いる利点の一つである．また, CMC 法は RANS のようなモーメントクロージャ法であるため, 後述する確率密度関数法と比較して計算負荷が低いことも CMC 法の長所として挙げられる．

1.2.3 確率密度関数法

確率密度関数 (PDF) 法^[34,35] では反応性物質濃度の結合 PDF (あるいは速度と濃度の結合 PDF) に対する輸送方程式を解くことで反応場を計算する．PDF に対する輸送方程式において反応項は閉じた形で現れるため, PDF 法では反応速度に関連したモデルを必要としない．そのため, 化学反応を伴う流れ場の数値計算手法として PDF 法が有効であることが知られている．PDF 法により計算する N_S 個のスカラー量を $\Phi = (\phi_1, \dots, \phi_\alpha, \dots, \phi_{N_S})$ とすると, 点密度^[34] (Fine-Grained Density) $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ はデルタ関数を用いて次式のように定義される．

$$f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t) \equiv \delta(\Psi - \Phi) \equiv \prod_{\alpha=1}^{N_S} \delta(\psi_\alpha - \phi_\alpha). \quad (1.8)$$

$\Psi = (\psi_1, \dots, \psi_\alpha, \dots, \psi_{N_S})$ は Φ に対するサンプル空間変数である．スカラー量 ϕ_α は式 (1.1) により表される輸送方程式に従うものとする．Pope^[39] により点密度 $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ の輸送方程式が次式のように得られている．

$$\frac{\partial f_\Phi}{\partial t} + U_j \frac{\partial f_\Phi}{\partial x_j} = - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} \left[D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} f_\Phi \right] - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} [S_\alpha f_\Phi]. \quad (1.9)$$

ここで, 右辺各項は α についての総和をとる． $\Phi = (\phi_1, \dots, \phi_\alpha, \dots, \phi_{N_S})$ の確率密度関数 $p_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ は点密度 f_Φ の期待値として得られ, $p_\Phi = \langle f_\Phi \rangle$ となる．確率密度関数 p_Φ の輸

送方程式は式 (1.9) の期待値として得られ、次式により表される。

$$\frac{\partial p_{\Phi}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} [\langle U_j | \Psi \rangle p_{\Phi}] = - \frac{\partial}{\partial \psi_{\alpha}} \left[\left\langle D_{\alpha} \frac{\partial^2 \phi_{\alpha}}{\partial x_j \partial x_j} | \Psi \right\rangle p_{\Phi} \right] - \frac{\partial}{\partial \psi_{\alpha}} [S_{\alpha} p_{\Phi}] \quad (1.10)$$

ここで、 $\langle * | \Psi \rangle$ は条件 $\Phi = \Psi$ の下で条件付期待値をとることを表す。なお、確率密度関数 p_{Φ} の輸送方程式は、Navier–Stokes 方程式とスカラの輸送方程式から導かれる速度とスカラの結合 PDF の輸送方程式を速度空間で積分することによっても得ることができる。速度場 U_i が既知である場合、式 (1.10) を解くためには分子拡散項（右辺第一項）に対するモデル（分子混合モデルと呼ばれる）が必要となる。 p_{Φ} は位置 x 、時間 t 、スカラ量 $\Phi = (\phi_1, \dots, \phi_{\alpha}, \dots, \phi_{N_S})$ を引数とする関数となる。式 (1.10) を有限差分法により解く場合、その計算コストは扱うスカラ量の数 ϕ_{N_S} の増加とともに指数的に増加する。そのため、多数のスカラ量を扱う反応性乱流の計算では有限差分法により確率密度関数に対する輸送方程式を解くことは困難となる。

式 (1.10) の解析には多数の計算粒子を用いた Monte Carlo 法が用いられる。各計算粒子は位置とスカラ量についての情報 $x^{(n)}$ 、 $\Phi^{(n)}$ をもつ。ここで、上付き文字 (n) は n 番目の計算粒子に関連した変数であることを示している。この計算粒子はスカラ量の情報を付加された流体粒子として扱われる。したがって、 $x^{(n)}$ 、 $\Phi^{(n)}$ の時間発展は次式により表される。

$$\frac{\partial x^{(n)}}{\partial t} = U(x^{(n)}, t), \quad (1.11)$$

$$\frac{\partial \phi_{\alpha}^{(n)}}{\partial t} = \left[D_{\alpha} \frac{\partial^2 \phi_{\alpha}}{\partial x_j \partial x_j} \right]^{(n)} + S_{\alpha}(\Phi^{(n)}). \quad (1.12)$$

ここで、式 (1.12) の右辺第一項は分子拡散項によるスカラ量の変化を表しており、式 (1.12) の左辺はスカラ量 ϕ_{α} の物質微分 $D\phi_{\alpha}/Dt$ と等しい。式 (1.11)、(1.12) は Fokker–Plank 方程式を通して式 (1.9) に関連付けられる。

PDF 法は平均速度場を計算する RANS と組み合わせることで反応性乱流に対して適用されてきた^[34,35]。非定常な流れ場の計算が可能な LES と PDF 法を組み合わせた数値計算手法は Givi^[40] により提案された。LES と PDF 法による反応性乱流の数値計算は Filtered Density Function^[41] (FDF) を用いて行われてきた。FDF は式 (1.8) の点密度に対して LES で用いるフィルタをかけたものとして定義される。Colucci ら^[42] は LES–FDF 法による反応性乱流の数値計算を行い、LES と FDF 法により反応性乱流場を精度よく計算できることを示した。その後、LES と FDF 法を用いた数値計算は拡散火炎などの様々な反応性乱流に適用されている^[43–46]。従来の LES と FDF 法による数値計算では、LES で用いる計算格子一つに対して十から数百個を超える計算粒子が用いられていた。この条件を満たす FDF 法や PDF 法の数値計算は Intensive-Lagrangian Simulation^[47,48] と呼ばれる。Intensive-Lagrangian Simulation では計算粒子数が非常に多くなるため、LES と FDF 法

による数値計算コストは通常の LES を大きく上回る．一方，LES で用いる計算格子数よりも少ない数の計算粒子を用いた FDF 法や PDF 法による数値計算は Sparse-Lagrangian Simulation^[47, 48] と呼ばれる．従来の PDF 法や FDF 法の計算コストの高さの問題を解決する手法として，Sparse-Lagrangian Simulation が有効であると考えられる．

1.2.4 Large Eddy Simulation について

LES と PDF 法 (FDF 法) による数値計算手法は，LES により速度場を計算するために Smagorinsky モデル^[49] (ダイナミック Smagorinsky モデル^[50]) を用いる形で発展してきた．LES と PDF 法 (FDF 法) による数値計算手法では，LES により計算した保存スカラー量である混合分率を分子混合モデルの計算に用いる場合もある．LES により混合分率 ξ を計算するには SGS スカラ流束に対するモデルが必要となる．Smagorinsky モデルやダイナミック Smagorinsky モデルが速度場の計算に用いられた場合には，SGS スカラ流束に対してこう配拡散モデルを用いることが一般的である．こう配拡散モデルでは，SGS の乱流 Schmidt 数 (乱流 Prandtl 数) をパラメータとして与える必要がある^[51]．Smagorinsky モデルとこう配拡散モデルを LES に用いる場合，フィルタをかけられた Navier–Stokes 方程式と混合分率の輸送方程式は次式のような形で用いられる．

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \frac{\partial \bar{U}_j \bar{U}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} - \nu \frac{\partial^2 \bar{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} = - \frac{\partial (\bar{U}_j \bar{U}_i - \bar{U}_j \bar{U}_i)}{\partial x_j} \quad (1.13)$$

$$\frac{\partial \bar{\xi}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{U}_j \bar{\xi}}{\partial x_j} - D \frac{\partial^2 \bar{\xi}}{\partial x_j \partial x_j} = - \frac{\partial (\bar{U}_j \bar{\xi} - \bar{U}_j \bar{\xi})}{\partial x_j} \quad (1.14)$$

そして，式 (1.13), (1.14) ではそれぞれ右辺を Smagorinsky モデルとこう配拡散モデルを用いてモデル化する．こう配拡散モデルでは $\bar{U}_j \bar{\xi} - \bar{U}_j \bar{\xi}$ を以下のように与える．

$$\bar{U}_i \bar{\xi} - \bar{U}_i \bar{\xi} = -D_t \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial x_i} = -\frac{\nu_t}{Sc_t} \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial x_i} \quad (1.15)$$

ここで， ν_t は SGS 渦動粘性係数であり Smagorinsky モデルなどにより得られる．また， D_t は SGS 乱流拡散係数であり，SGS Schmidt 数 Sc_t と ν_t により決定される． Sc_t を流れ場の位置や時間によらない一定値とする手法と，位置と時間の関数として動的に決定する手法がある^[51]．

LES で用いる SGS モデルは大まかに二つの種類に分類することができる．一つは SGS 渦粘性モデルと呼ばれるモデルであり，Smagorinsky モデル^[49]，ダイナミック Smagorinsky モデル^[50] や構造関数モデル^[52] などが SGS 渦粘性モデルに基づくモデルの例として挙げられる．もう一つは変数の GS 成分を用いて SGS 成分を予測することで，SGS 成分の GS 成分への影響をモデル化する手法であり，その代表的なモデルとしてスケール相似則モデル^[53] が挙げられる．Stolz ら^[54] は，LES で変数に施すフィルタの逆フィルタ (Inverse

Filter, Deconvolution Filter) を近似的に求めることで, GS 成分から SGS 成分を予測する Approximate Deconvolution Model (ADM) を提案した. ADM を用いた LES は, 小スケールの変動のみを選択的に流れ場から除去する空間的なフィルタを用いて, SGS で生じるエネルギー散逸をモデル化する LES の計算手法と等価であることが Mathew ら [55, 56] により指摘されている. ADM を用いた LES やフィルタ操作を用いた LES は様々な流れ場へ応用されている [57–64].

Smagorinsky モデルには散逸を過大評価する傾向があり, 非乱流から乱流へと遷移する流れ場では流れを非乱流状態へと戻してしまうことが知られている. また, ダイナミック Smagorinsky モデルでは Smagorinsky モデルに見られた欠点のいくつかが改善されているものの, 数値的不安定性を防ぐため, SGS 渦動粘性係数を決めるための計算パラメータに対して空間平均をとる操作が用いられる [65, 66]. SGS 渦動粘性係数は乱流中と非乱流中とで大きく変わると考えられるため, 非乱流から乱流への遷移を伴う流れにおいて空間平均をとる操作は望ましくない. また, 渦粘性モデルによりモデル化された項は粘性項と同様の形で表されるため, 渦粘性を導入することにより流れ場の実効 Reynolds 数を下げることが報告されている [60]. こうした渦粘性モデルに起因する Smagorinsky モデルやダイナミック Smagorinsky モデルの欠点は ADM やフィルタ操作による LES には存在しない. ADM ではモデルの調整をすることなく非乱流・乱流領域の両方を扱うことができる [59]. また, ADM やフィルタ操作による LES では実効 Reynolds 数が小さくならないことが軸対称噴流の LES により確認されている [60].

速度場の LES に Smagorinsky モデルやダイナミック Smagorinsky モデルを用いた場合, スカラ場の LES では SGS 乱流流束に対してこう配拡散モデルを用いられる. こう配拡散モデルでは式 (1.15) に現れる SGS 乱流 Schmidt 数 Sc_t を適切に設定しなければならない. SGS 乱流 Schmidt 数 Sc_t は拡散物質の分子拡散係数によって変化する可能性があり, 高 Schmidt 数の流れ場へのこう配拡散モデルの適用には注意を要する [51]. これに対して, ADM やフィルタ操作による LES では Sc_t のような流れ場や拡散場の性質に依存した数値計算パラメータを設定する必要がないため, 分子拡散係数の異なる拡散場を同一のモデルにより計算することが可能である. Schwertfirm ら [67] は平行平板間乱流中の高 Schmidt 数スカラ拡散場 ($Sc = 1 \sim 1,000$) を, 速度場の DNS とスカラ場の ADM による LES を組み合わせることで計算し, 計算されたスカラ場の統計量が Sc によらず過去に行われた DNS の結果 [68] とよく一致することを示している. このように, ADM を用いたスカラ場の LES には, モデルパラメータの調節をすることなく分子拡散係数の異なる拡散場を計算できるという利点がある.

1.3 反応性乱流の実験的研究

1.3.1 気相の反応性乱流の実験的研究

気相の反応性乱流に対する研究として Bilger らの研究^[69–72]が挙げられる．これらはいずれもケルミネッセンス法に基づく吸引サンプル測定により、近似的に NO と O₃ の瞬時濃度を測定したものである．気相における化学反応を伴う流れ場の実験による計測は燃焼の分野で数多く行われている．例えば、燃焼流において Planar Laser Induced Fluorescence (PLIF) 法を用いて化学種の濃度計測を行っている研究例^[73–75]が数多く存在する．

1.3.2 液相の反応性乱流の実験的研究

液相における乱流中の物質拡散では分子拡散係数 D と動粘度 ν により $Sc = \nu/D$ と定義される Schmidt 数が多い．速度変動の最小スケールである Kolmogorov スケールは動粘度 ν とエネルギー散逸率 ϵ を用いて $\eta_K = (\nu^3/\epsilon)^{1/4}$ と定義される．Schmidt 数が多い液相では濃度変動の最小スケールである Batchelor スケール $\eta_B = \eta_K/Sc^{1/2}$ が気相の流れ場よりも小さくなるため、実験による反応性物質の濃度計測には高分解能の測定装置が必要になる．液相における反応性乱流に対する研究には、Bennani ら^[76]により行われた格子乱流中の拡散場における水酸化ナトリウムとギ酸メチルの二次反応に対する電気伝導法を用いた濃度測定や、Mehta ら^[77]による格子乱流中での連続競争反応の実験が例として挙げられる．また、Komori ら^[78]は格子乱流中の予混合のない混合層で、無反応、適度に速い反応および瞬間反応の各種反応速度をもつ二次反応に対し、Laser Induced Fluorescence (LIF) 法、ミー散乱法、電気伝導法を組み合わせることで二成分の瞬時濃度の測定を行っている．Chorny ら^[79,80]は酸と塩基の中和反応を伴う流れに対して PLIF を用いた濃度計測を行っている．久保ら^[81]は赤色のモノアゾ染料が生成する二次の化学反応に対して、吸光光度法^[82]と保存スカラ理論^[69]を組み合わせることにより、液相二次元噴流中で反応に関わる全物質の瞬時濃度を同時計測している．

1.3.3 実験結果を用いた反応性乱流の数値計算手法の検証

反応性乱流中で濃度などの反応に関わる物理量を計測した結果は、乱流中で生じる化学反応の特性の調査だけではなく、既存の数値計算モデルの評価や数値計算において重要な物理量の特性の調査にも用いられる．例えば、Komori ら^[83]は格子乱流中の反応を伴う液相スカラ混合層において反応性物質の濃度を計測し、過去に提案された濃度相関項のモデルによる予測値を実験による測定結果と比較し評価している．また、Chorny ら^[79]は液相の拘束噴流中で生じる化学反応に対して濃度計測を行い、平均反応速度に対するモ

デルについて検証をしている．乱流流束 $\langle u_i \gamma_\alpha \rangle$ に対するこう配拡散モデルについて検証するため，格子乱流中の反応を伴うスカラ混合層中の乱流拡散係数や乱流 Schmidt 数の実験による計測が Bilger ら^[69] や Komori ら^[78] により行われている．反応性乱流中で反応性物質の濃度や速度を同時計測することは容易でないため，反応性物質濃度の乱流流束の実験値とモデルによる予測値の比較を行った研究例は限られている．

CMC 法では混合分率に対する条件付統計量の特性が重要となる．条件付統計量を計測するためには混合分率とともに反応性物質の濃度や速度を同時測定する必要がある．燃焼の分野では，Masri ら^[36] や Barlow ら^[84,85] などにより噴流火炎中での条件付平均温度や反応性物質の条件付平均濃度の計測が行われている．また，Bilger^[37] は，気相での二次反応を伴うスカラ混合層での反応性物質の濃度測定結果^[69] から反応物質の条件付平均濃度を算出している．さらに，Li ら^[86] により，気相でのスカラ混合層において反応性物質の条件付濃度変動の分散が計測されている．Brown ら^[72] は，格子乱流中でのプルームによる反応性物質拡散場において，反応性物質の条件付統計量を計測している．こうした条件付統計量の計測結果は，CMC 法による条件付統計量の予測精度の検証のために用いられてきた．このように条件付統計量の計測例はいくつかあるが，測定のほとんどが気相の流れ場で行われたものである．また，気相での条件付統計量の研究例の多くは，流れ場の時間スケールの化学反応の時間スケールに対する比を表す Damköhler 数が大きい燃焼反応を対象として行われたものである．

1.3.4 本論文の構成

以上，反応性乱流に関する実験による研究例や，数値計算による反応性乱流の予測手法について簡単にまとめた．以下に本論文の構成を示す．

第二章では，化学反応 ($A + B \rightarrow R$) を伴う液相二次元噴流に対して行った実験について述べる．実験では反応性物質濃度と流れ方向速度の同時計測を行った．実験で用いた拡散物質の Schmidt 数は約 600 である．計測結果を用いて反応性物質濃度や速度の統計量や混合分率で条件付けされた統計量の特性について調べたほか，こう配拡散モデルなどの数値計算で用いられるモデルについての検証を行った．第三章では，DNS により化学反応を伴う二次元噴流の数値計算を行い，噴流中で生じる化学反応について調査した結果について述べる．DNS による数値計算は拡散物質の Schmidt 数を 1 として行われた．第四章では，ADM を用いた LES を PDF 法と組み合わせた反応性乱流の数値計算手法を提案し，計算手法の有効性について検証した．最後に第五章で本論文で得られた結論をまとめた．

第2章

液相二次元噴流中で生じる化学反応に関する実験的研究

2.1 緒言

本章では、化学反応を伴う液相二次元噴流を対象として行った実験について述べる。化学反応として、1-ナフトール (物質 A) とジアゾベンゼンスルホン酸 (物質 B) が反応しモノアゾ染料 (赤色, 物質 R) が生成する化学反応を扱う。反応物質 A を含む溶液を反応物質 B を含む溶液中に二次元噴流として噴出し、二次元噴流中で化学反応を生じさせた。噴流溶液中には上記反応と無関係な染料 C (青色, Acid Blue 9) を加えた。流れ場に含まれる染料物質 R および C の瞬時濃度を吸光光度法に基づく光ファイバプローブで同時計測し、保存スカラ理論を用いて反応物質 A, B の濃度を算出することにより、反応に関わる全物質の瞬時濃度を同時計測した。さらに、光ファイバプローブを速度測定用 I 型熱膜プローブと組み合わせて用いることにより、反応性物質の濃度と噴流の流れ方向速度の同時計測を行った。反応性物質の濃度と速度の同時計測結果から、濃度と速度の統計量、反応速度に関する統計量、混合分率で条件付けした統計量について調査した。

2.2 化学反応を伴う液相二次元噴流

2.2.1 実験装置および実験条件について

本研究では二次の化学反応 $A + B \rightarrow R$ を伴う液相二次元噴流を対象とした実験を行う。ここで、物質 A は 1-ナフトール、物質 B はジアゾベンゼンスルホン酸、物質 R は赤色のモノアゾ染料であり、化学反応についての詳細は次項で述べる。図 2.1 に実験対象とした化学反応を伴う二次元噴流を示す。噴流出口中心を原点とし、流れ方向に x 軸を、噴流の広がり方向に y 軸を、スパン方向に z 軸をとった。図 2.2 に実験装置の全体図を示す。周囲流として流す溶液用、噴流溶液用にそれぞれタンク T1, T2 を用意した。それぞれの溶液はポンプによりヘッドタンク H1, H2 へ供給される。ヘッドタンクは溶液の供給量が

ある値をこえるとオーバーフローする仕組みとなっており，オーバーフローした溶液は再びタンクへ戻される．このようにしてヘッドタンクにおける水位を一定に保つことで，溶液を測定部に一定の流量で供給した．測定部の流路の断面は $160 \text{ mm} \times 40 \text{ mm}$ ($y \times z$) の長方形であり，測定部の高さは 300 mm である．また，噴流出口の幅は $d = 2 \text{ mm}$ である．流路の最上部ではオーバーフローにより溶液を排出させた．

化学反応の影響を受けない物質 C (Acid Blue 9) と反応物質 A を含む溶液を，反応物質 B を含む周囲流体中に二次元噴流として流した．さらに，pH の変化が化学反応に与える影響を防ぐため，炭酸ナトリウム Na_2CO_3 と炭酸水素ナトリウム NaHCO_3 を緩衝塩として噴流溶液に加えることで噴流中の pH を一定 ($\text{pH} = 10$) に保った．物質 A, B, C の初期濃度をそれぞれ， $\Gamma_{A0} = 0.4 \text{ mol/m}^3$ ， $\Gamma_{B0} = 0.2 \text{ mol/m}^3$ ， $\Gamma_{C0} = 0.1 \text{ kg/m}^3$ とした．また，緩衝塩 (Na_2CO_3 と NaHCO_3) の初期濃度を 15 mol/m^3 とした．噴流出口での平均流速を $U_J = 1.29 \text{ m/s}$ ，周囲流体の平均流速を $U_M = 0.073 \text{ m/s}$ とした．噴流の Reynolds 数 $Re = (U_J - U_M)d/\nu$ を 2,200 として実験を行った．ここで， ν は動粘度である．また，物質 C の分子拡散係数 D に基づく Schmidt 数 $Sc = \nu/D$ は約 600 である．化学反応の pH 依存性や反応速度定数などが Bourne ら^[87] により調べられており，上記化学反応の反応速度定数は $k = 12,000 \text{ m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$ と推定されている．したがって，流れ場の時間スケールの化学反応の時間スケールに対する比を表す Damköhler 数 $Da = k(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})d/(U_J - U_M)$ は本実験条件で 11.8 となる．

2.2.2 化学反応の特性

本研究で対象とした化学反応は Bourne ら^[87] により基本的性質が調べられている連続競争反応の第一反応である．連続競争反応は次式からなり，その詳細は図 2.3 により表される．



ここで，A は 1-ナフトール，B はジアゾベンゼンスルホン酸，R は赤色のモノアゾ染料，S はジアゾ染料である．本研究の実験条件 (水温約 16°C) において，第一反応の反応速度定数は $k = 12,000 \text{ m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$ ，第二反応の反応速度定数は $k = 1.06 \text{ m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$ である^[87]．本実験では連続競争反応の第一反応のみを対象としており，第二反応が起こらないと仮定している．実験では物質 R の濃度を計測する．そのため，第二反応が多く起こり物質 S の生成量が増えると物質 R の正確な濃度測定ができなくなる．ただし，第一反応と第二反応の反応速度定数の差が十分大きいと，過剰な物質 B が存在しない限り第二反応はほとんど起こらないと考えられる．本研究では，物質 A と物質 B の初期濃度比は

$\Gamma_{B0}/\Gamma_{A0} = 0.5$ であるため第一反応後の物質 B の濃度は小さく、物質 S の生成はほとんど無視できると考えられる。また、本実験と同じ反応を用いて行われた Mehta らの実験^[77]と同様に、各反応物質の濃度が小さいことから反応による水温の変化やそれに伴う反応速度定数の変化は無視できると考えられる。

式 (2.1a), (2.1b) の反応では pH が重要となる。本研究では pH を一定に保つため、炭酸ナトリウム Na_2CO_3 と炭酸水素ナトリウム NaHCO_3 を緩衝塩として加えた。緩衝塩の濃度は染料の吸光特性にも影響を与える。溶液中の Na_2CO_3 と NaHCO_3 の濃度がそれぞれ 1.5 mol/m^3 以上となっているとき、緩衝塩の濃度によって吸光物質 R の吸光特性が変化しないことが確かめられている^[88]。本研究では噴流溶液に緩衝塩を含ませた。噴流物質の濃度は噴流下流に行くにつれて小さくなることを考慮し、緩衝塩 Na_2CO_3 と NaHCO_3 のそれぞれの初期濃度を 15 mol/m^3 と設定した。

2.2.3 物質 B の生成方法

反応物質 B (ジアゾベンゼンスルホン酸) は現在市販されていないため、本研究では独自に物質 B を調製した^[89]。そこで、物質 B の生成方法 (0.020 mol) について以下にまとめる。物質 B の生成では pH が重要となる。そのため、生成量を変更する場合においても使用する試薬の比率は以下と同じにする必要がある。

・装置・器具

ビーカ、メスシリンダ、メスピペット、ユニットクールサーモ (恒温水槽)

・試薬

スルファニル酸、無水炭酸ナトリウム、亜硝酸ナトリウム、濃塩酸

(1) スルファニル酸の溶解

ビーカにスルファニル酸 3.46 g (0.020 mol) と無水炭酸ナトリウム (Na_2CO_3) 1.15 g をとり、攪拌しながら徐々に水 40 ml を加える。

(2) ジアゾ化

恒温水槽 (ユニットクールサーモ) を 5°C に保ち、(1) のビーカを冷却しながら、濃塩酸 4.6 ml を滴下する。なお、濃塩酸は揮発性があるので、安全のため濡らしたマスクを着用する (可能であればドラフト内で行う)。さらに亜硝酸ナトリウム 1.38 g を 7.7 ml の水に溶かし、冷溶液に徐々に滴下する。反応中は 15°C 以上にならないように冷却、攪拌を続ける。約 10 分間でジアゾ化は完結し、p-ジアゾベンゼンスルホン酸 (物質 B, 分子量: 184.17) 0.020 mol 分が無色結晶性沈殿となって析出する (物質 B は水溶性であるが、作成時の濃度が溶解度を超えているため沈殿する)。

以上が物質 B の生成方法である。物質 B は不安定な物質であるため、長期に保存しておくとは分離してしまうが、冷蔵庫に入れるなどして、低温で保存すれば 1~2 日程度保存しておくことは可能である。調製後の物質 B を含む溶液は無色であるが、時間の経過とともに徐々に黄色味を帯びてくる。こうした変化が実験結果に影響を与える可能性を考慮し、本研究では実験の直前に物質 B の生成を行った。また、実験で使用する物質 B の濃度は 0.2 mol/m^3 である。そこで、上で説明した手法で調製される 0.020 mol の十倍に相当する 0.20 mol の物質 B を調製し、 1.0 m^3 の水に溶かして十分に攪拌した後に使用した。

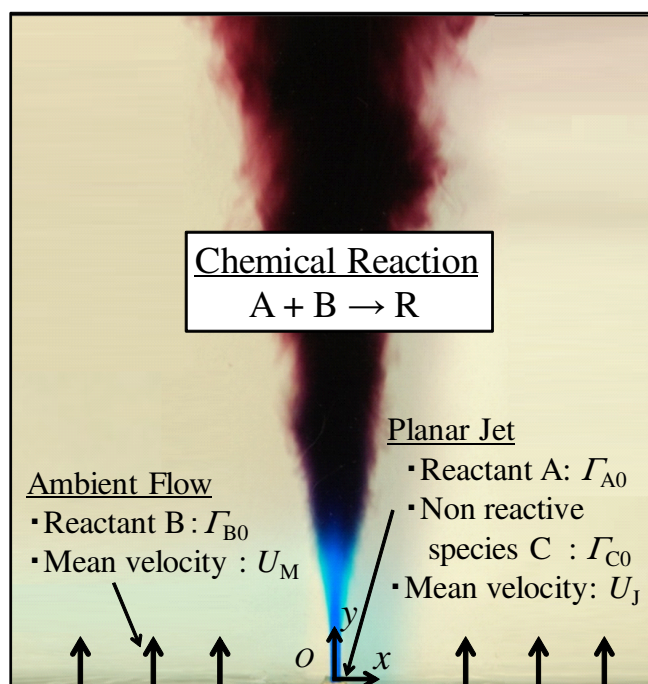


図 2.1 化学反応を伴う二次元噴流

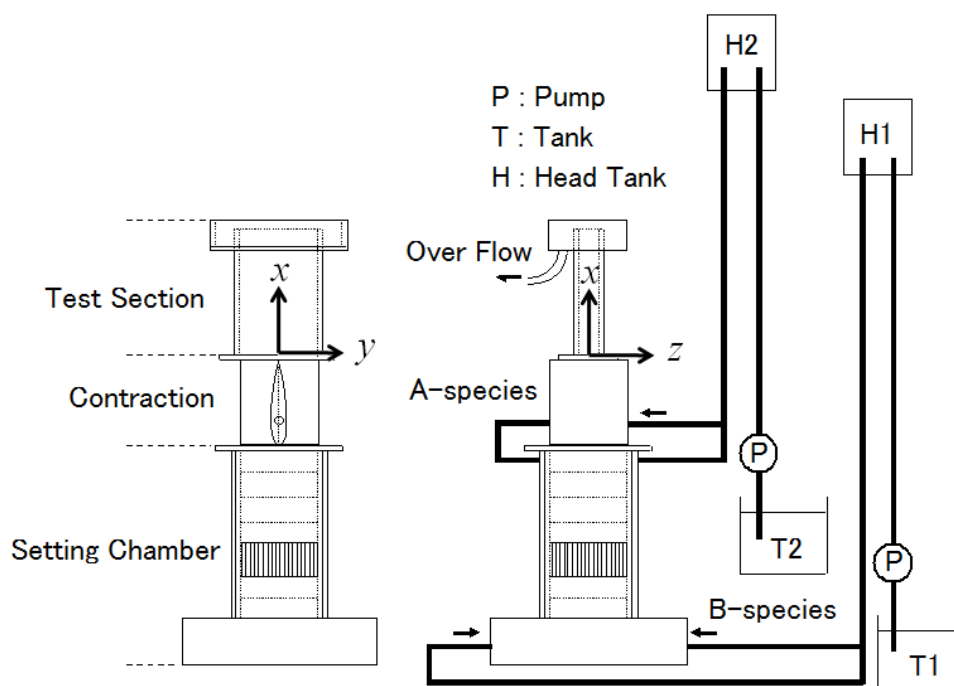
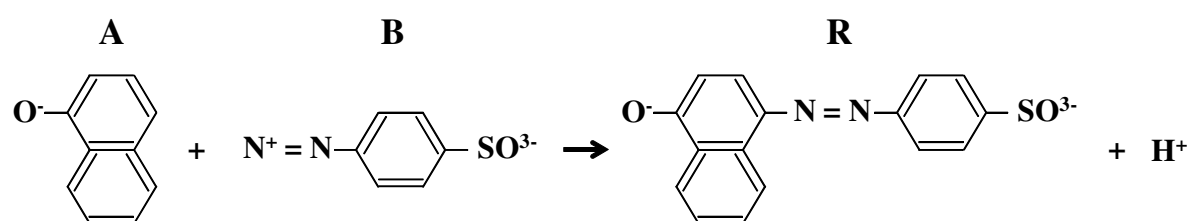
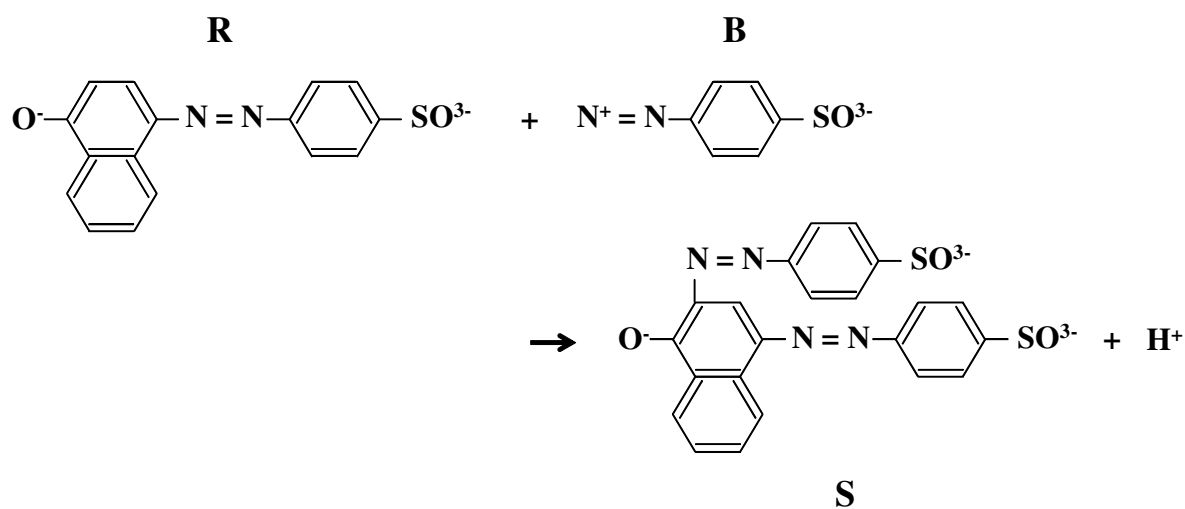


図 2.2 実験条件の概略図



(a) 第一反応



(b) 第二反応

図 2.3 連続競争反応

2.3 濃度計測手法

2.3.1 吸光光度法による多成分瞬時濃度測定

本研究では, 染料物質 C と R の瞬時濃度を吸光光度法^[82] によるファイバ型多成分変動濃度計を用いて同時測定する. 以下に吸光光度法による多成分濃度測定方法についてまとめる.

吸光物質 α を含む溶液に波長 λ の光が入射するとき, 検査部 (長さ l) へ入射する光の強度 $I_0(\lambda)$ と検査部を通過した瞬時の透過光強度 $I(\lambda)$ の間に次式の関係が成り立つ (Beer-Lambert の法則).

$$-\ln \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = C_\alpha(\lambda) l \Gamma_\alpha \quad (2.2)$$

ここで, Γ_α は検査部中の吸光物質の瞬時濃度, $C_\alpha(\lambda)$ は吸光物質 α の特性によって決まる λ の関数である. 次式で定義される $P(\lambda)$ と $k_\alpha(\lambda)$ を導入する.

$$P(\lambda) \equiv -\ln \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \quad (2.3)$$

$$k_\alpha(\lambda) \equiv C_\alpha(\lambda) l \quad (2.4)$$

$P(\lambda)$ と $k_\alpha(\lambda)$ を用いると, 式 (2.2) は次式のように書ける.

$$P(\lambda) = k_\alpha(\lambda) \Gamma_\alpha \quad (2.5)$$

複数の吸光物質を含む溶液の $P(\lambda)$ は各物質がそれぞれ単独で溶液中に存在するときの $P(\lambda)$ の和になる. 二つの吸光物質 C, R が溶液に含まれるとき, 波長 λ_1, λ_2 に対して $P(\lambda_1), P(\lambda_2)$ は次のように表される.

$$P(\lambda_1) \equiv -\ln \frac{I(\lambda_1)}{I_0(\lambda_1)} = k_R(\lambda_1) \Gamma_R + k_C(\lambda_1) \Gamma_C \quad (2.6)$$

$$P(\lambda_2) \equiv -\ln \frac{I(\lambda_2)}{I_0(\lambda_2)} = k_R(\lambda_2) \Gamma_R + k_C(\lambda_2) \Gamma_C \quad (2.7)$$

波長 λ に対する $k_C(\lambda), k_R(\lambda)$ は, 物質 C, R を単独に含む溶液に対する値と同一であり, 濃度計測装置の検定により調べることができる. したがって, 混合溶液の $P(\lambda_1), P(\lambda_2)$ を多成分変動濃度計で測定し, 式 (2.6), (2.7) を解くことにより二つの物質 C, R の瞬時濃度を求めることができる.

図 2.4 に濃度測定システムの全体図を示す. 計測に用いる多波長光源としてハロゲンランプを用いた. ハロゲンランプを出た白色光は光ファイバプローブ中の光ファイバ (ファイバ結束径 0.5 mm) を通して検査部に導かれる. 検査部の長さは約 0.7 mm であり, 検査体積は 0.14 mm³ となる. プローブ形状の詳細は図 2.5 に示されている. 吸光物質を含む

検査部を光が通過することで光強度の減衰が生じる．減衰された光は分光器により二つの異なる波長 (520 nm , 600 nm) に分光される．それぞれの波長の光の強度は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．計測した $P(\lambda_1)$, $P(\lambda_2)$ の瞬時値と, 検定により求めておいた $k_C(\lambda_1)$, $k_C(\lambda_2)$, $k_R(\lambda_1)$, $k_R(\lambda_2)$ を用いて, 式 (2.6), (2.7) より吸光物質 C, R の瞬時濃度 Γ_C, Γ_R を算出した．

図 2.6 に吸光物質 C, R の吸光度の波長 λ に対する分布を示す．本研究における濃度測定では, 物質 R の吸光度がピークをとる 520 nm を λ_1 とした．また, λ_2 を物質 R の吸光度が小さく, 物質 C の吸光度が大きい 600 nm を λ_2 として選んだ．

2.3.2 保存スカラ理論

Bilger ら^[69]の方法に基づいて反応場に保存スカラ理論を適用し, 吸光物質 C, R の濃度計測結果から直接計測できない物質 A, B の瞬時濃度を求める方法について説明する．

非圧縮性流体を考え, 各物質の分子拡散係数 D が等しいことと, 物質の濃度が希薄で流れ場全体で密度やその他の流体の性質が一定であることを仮定する．このとき, 位置 x , 時刻 t での物質 α の瞬時濃度 Γ_α に対する輸送方程式は次式により与えられる．

$$L(\Gamma_\alpha) \equiv \frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial U_j \Gamma_\alpha}{\partial x_j} - \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D \frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial x_j} \right) = S_\alpha \quad (2.8)$$

ここで, U_i は i 方向速度, S_α は反応項を表す．本研究で扱う二次の不可逆反応 $A + B \rightarrow R$ に対して反応項は次式で与えられる．

$$S_R = -S_A = -S_B = k\Gamma_A\Gamma_B \quad (2.9)$$

また, 無反応物質 C に対する反応項は $S_C = 0$ となる．したがって, 反応によって値が変化しない保存スカラ $\beta^{(j)}$ を次式により定義できる．

$$\beta^{(1)} \equiv \Gamma_A + \Gamma_R \quad (2.10a)$$

$$\beta^{(2)} \equiv \Gamma_B + \Gamma_R \quad (2.10b)$$

$$\beta^{(3)} \equiv \Gamma_A - \Gamma_B \quad (2.10c)$$

$$\beta^{(4)} \equiv \Gamma_C \quad (2.10d)$$

噴流ノズル内で $\hat{\beta}^{(j)} = 1$, 周囲流体中で $\hat{\beta}^{(j)} = 0$ となるように無次元化された保存スカラ

$\hat{\beta}^{(j)}$ は以下のように表される .

$$\hat{\beta}^{(1)} = \frac{\Gamma_A + \Gamma_R}{\Gamma_{A0}} \quad (2.11a)$$

$$\hat{\beta}^{(2)} = \frac{\Gamma_{B0} - \Gamma_B - \Gamma_R}{\Gamma_{B0}} \quad (2.11b)$$

$$\hat{\beta}^{(3)} = \frac{\Gamma_A - \Gamma_B + \Gamma_{B0}}{\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (2.11c)$$

$$\hat{\beta}^{(4)} = \Gamma_C / \Gamma_{C0} \quad (2.11d)$$

式 (2.8) で定義した演算子 L を用いると , 保存スカラ $\hat{\beta}^{(j)}$ の輸送方程式は $L(\hat{\beta}^{(j)}) = 0$ となる . また , その境界条件は , 噴流ノズル内で $\hat{\beta}^{(j)} = 1$, 周囲流体中で $\hat{\beta}^{(j)} = 0$ となる . さらに , Bilger ら^[69] に従うと , 全ての保存スカラ $\hat{\beta}^{(j)}$ が互いに等しくなることから , 以下の式が成り立つことが導かれる .

$$\hat{\beta}^{(1)} = \hat{\beta}^{(2)} = \hat{\beta}^{(3)} = \hat{\beta}^{(4)} \equiv \xi \quad (2.12)$$

ここで , ξ は混合分率と呼ばれる . 式 (2.11), (2.12) より各物質の濃度と混合分率の関係を表す次式が得られる .

$$\Gamma_A + \Gamma_R = \xi \Gamma_{A0} \quad (2.13a)$$

$$\Gamma_B + \Gamma_R = (1 - \xi) \Gamma_{B0} \quad (2.13b)$$

$$\Gamma_A - \Gamma_B = \xi(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}) - \Gamma_{B0} \quad (2.13c)$$

$$\Gamma_C = \xi \Gamma_{C0} \quad (2.13d)$$

本実験では生成物質 R および無反応物質 C の濃度を測定している . したがって , 式 (2.13d) より混合分率 ξ を以下のように算出できる .

$$\xi = \Gamma_C / \Gamma_{C0} \quad (2.14)$$

さらに , ξ および Γ_R が既知であるとき , 式 (2.13a), (2.13b) より得られる次式から反応物質 A, B の濃度を求めることができる .

$$\Gamma_A = \xi \Gamma_{A0} - \Gamma_R \quad (2.15a)$$

$$\Gamma_B = (1 - \xi) \Gamma_{B0} - \Gamma_R \quad (2.15b)$$

本研究では , 吸光光度法により計測した生成物質 R および無反応物質 C の濃度と式 (2.15) を用いて反応物質 A, B の濃度を求めた .

式 (2.13a), (2.13b) から次の質量保存則を導くことができる .

$$\frac{\Gamma_A}{\Gamma_{A0}} + \frac{\Gamma_B}{\Gamma_{B0}} + \frac{\Gamma_R}{\Gamma_{R0}} = 1 \quad (2.16)$$

ここで, Γ_{R0} は次式により定義される.

$$\Gamma_{R0} \equiv \frac{\Gamma_{A0}\Gamma_{B0}}{\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (2.17)$$

また, 混合の状態が化学量論となる混合分率 ξ_S は次式のように表される.

$$\xi_S = \frac{\Gamma_{B0}}{\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (2.18)$$

式 (2.17) により定義される Γ_{R0} は量論混合 ($\xi = \xi_S$) のときの生成物質濃度の最大値を表している. 本研究の実験条件において, $\Gamma_{R0} = 0.133 \text{ mol/m}^3$, $\xi_S = 0.333$ である.

$Da \rightarrow 0$ (以下では Frozen limit, 無反応極限と呼ぶ) の極限を考える. 反応が生じないとき $\Gamma_R = 0$ となるので, 式 (2.15a), (2.15b) より, 無反応極限における各物質の瞬時濃度 Γ_α^0 が以下のように得られる ($\alpha = A, B, R$).

$$\Gamma_A^0 \equiv \lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_A = \xi \Gamma_{A0} \quad (2.19a)$$

$$\Gamma_B^0 \equiv \lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_B = (1 - \xi) \Gamma_{B0} \quad (2.19b)$$

$$\Gamma_R^0 \equiv \lim_{Da \rightarrow 0} \Gamma_R = 0 \quad (2.19c)$$

次に, $Da \rightarrow \infty$ (以下では Equilibrium limit, 瞬間反応極限と呼ぶ) の極限を考える. 瞬間反応極限において反応物質 A, B の瞬時濃度のいずれか, あるいはその両方が 0 となる. したがって, 式 (2.13a) ~ (2.13c) より瞬間反応極限における各物質の瞬時濃度 Γ_α^∞ が以下のように得られる ($\alpha = A, B, R$).

$$\Gamma_A^\infty \equiv \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_A = (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})(\xi - \xi_S)H(\xi - \xi_S) \quad (2.20a)$$

$$\Gamma_B^\infty \equiv \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_B = (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})(\xi_S - \xi)H(\xi_S - \xi) \quad (2.20b)$$

$$\Gamma_R^\infty \equiv \lim_{Da \rightarrow \infty} \Gamma_R = \begin{cases} \Gamma_{A0}\xi & (\xi < \xi_S) \\ \Gamma_{B0}(1 - \xi) & (\xi \geq \xi_S) \end{cases} \quad (2.20c)$$

ここで, $H(z)$ は Heaviside の単位ステップ関数で, $z < 0$ のとき $H(z) = 0$, $z \geq 0$ のとき $H(z) = 1$ である.

また, 各物質の瞬時濃度とこれら二つの極限での瞬時濃度の間には, 次の関係が成り立つ.

$$\Gamma_A^\infty \leq \Gamma_A \leq \Gamma_A^0 \quad (2.21a)$$

$$\Gamma_B^\infty \leq \Gamma_B \leq \Gamma_B^0 \quad (2.21b)$$

$$\Gamma_R^0 \leq \Gamma_R \leq \Gamma_R^\infty \quad (2.21c)$$

無反応極限での濃度から算出した統計量を化学反応が生じない場合の濃度統計量として, 瞬間反応極限での濃度から算出した統計量を反応が非常に速い場合の濃度統計量として

扱い, 実験結果との比較に用いた. 本実験と同様の条件で反応性物質 A, B, R と無反応物質 C の濃度計測が過去に行われている^[90]. その結果, 計測された反応性物質の瞬時濃度に式 (2.21) の関係が成り立つことが確かめられている. また, 拡散物質を含まない周囲流体中に染料物質 R のみを含む溶液を噴流として流して行った実験での濃度計測結果と, 染料物質 C のみを含む溶液を噴流溶液として用いた実験での濃度計測結果の比較がなされている^[90]. その結果, 染料物質 R の濃度統計量 (変動 rms 値など) と染料物質 C の濃度統計量が良く一致することが確かめられている. これらの実験結果は, 保存スカラ理論が成り立ち, 式 (2.15) により反応物質 A, B の瞬時濃度が求められることを示している.

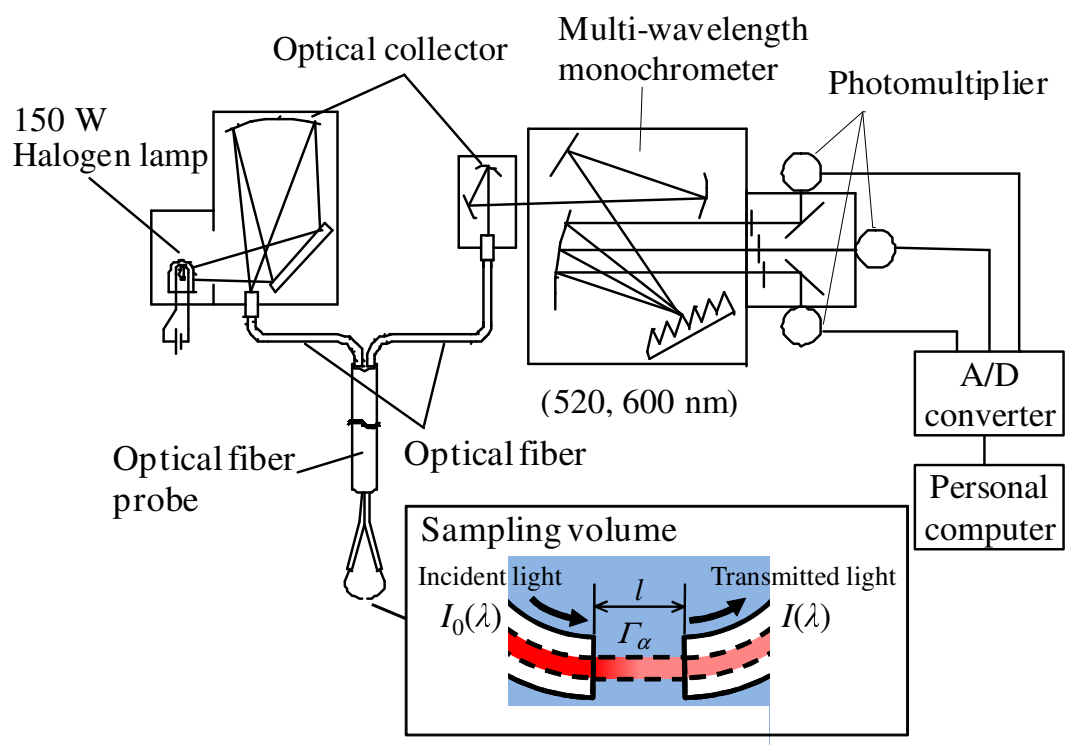


図 2.4 光学系測定システムの概要

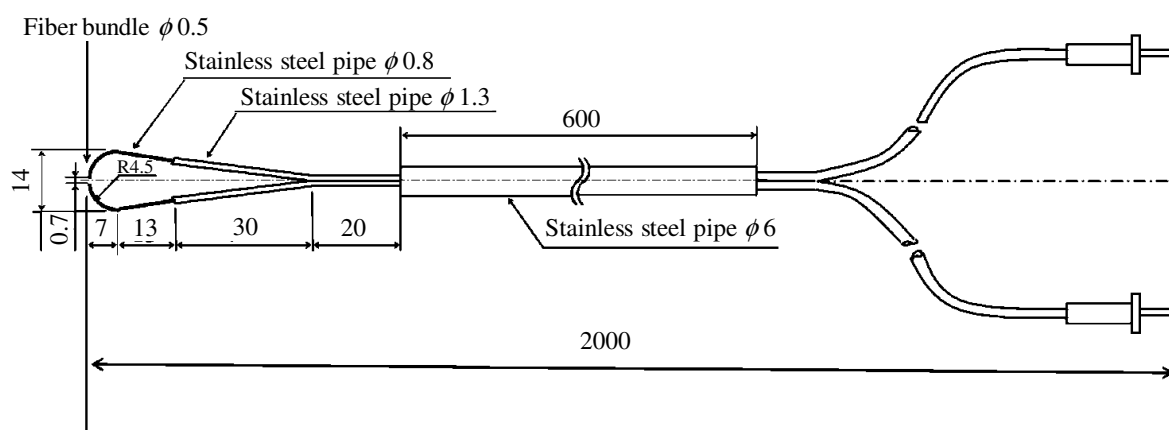


図 2.5 光ファイバプローブの詳細

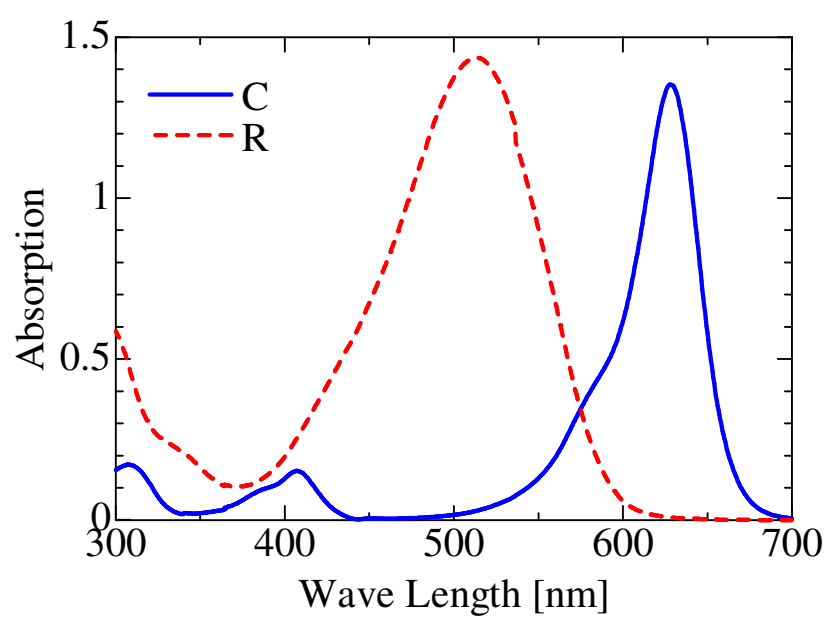


図 2.6 染料 C , R の吸光度の分布

2.3.3 光ファイバプローブの検定

濃度が既知の溶液に対して $P(\lambda)$ を光ファイバプローブにより計測し, $P(\lambda)$ と濃度の関係を調べることで光ファイバプローブの検定を行った. 検定は物質 R, C のそれぞれに対して行った. 検定に用いた物質 R の溶液を次のように調製した. まず, 三つのビーカーにそれぞれ, 0.42 mol/m^3 の物質 A と緩衝塩 (Na_2CO_3 と NaHCO_3 各 15 mol/m^3) を含む溶液を (1) 500 ml, (2) 400 ml, (3) 300 ml 作成した. 次に, 別の三つのビーカーにそれぞれ, (4) 500 ml (0.4 mol/m^3), (5) 600 ml (0.267 mol/m^3), (6) 700 ml (0.171 mol/m^3) の物質 B を用意した. その後, (1), (2), (3) の溶液に (4), (5), (6) の溶液をそれぞれ滴下することで, $0.2, 0.16, 0.12 \text{ mol/m}^3$ の物質 R を生成した. この際, 物質 A の混合溶液中に物質 B をスポイトを用いて徐々に滴下し, 物質 S が生じないように注意した. 物質 R の調製は, 恒温水槽 (10 以下) 中でビーカーを冷却しながら行われた. その後, $0.2, 0.16, 0.12 \text{ mol/m}^3$ の物質 R をそれぞれ 2 倍, 4 倍に希釈し, 物質 R のサンプル濃度を, $0.2, 0.16, 0.12, 0.1, 0.08, 0.06, 0.05, 0.04, 0.03 \text{ mol/m}^3$ として検定を行った.

物質 C の検定は, サンプルの濃度を $0.1, 0.08, 0.06, 0.05, 0.04, 0.03, 0.025, 0.02, 0.015 \text{ g/l}$ (kg/m^3) として行った. さらに, 各サンプルには緩衝塩を加え, 緩衝塩 (Na_2CO_3 と NaHCO_3) の濃度が各 1.5 mol/m^3 以上になるようにした. 各サンプルに対して $P(\lambda_1)$, $P(\lambda_2)$ (波長 $\lambda_1 = 520 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 600 \text{ nm}$) を計測することで, それぞれの波長に対する吸光係数 k_R, k_C を求めた.

物質 R の検定結果を図 2.7 に, 物質 C の検定結果を図 2.8 に示す. これらの図から物質 R および物質 C について Beer-Lambert の法則が成立していることが確認できる. また, 最小二乗法によりそれぞれの吸光係数が次のように得られた.

$$k_R(\lambda_1) = 7.09 \text{ m}^3/\text{mol} \quad (2.22)$$

$$k_R(\lambda_2) = 0.38 \text{ m}^3/\text{mol} \quad (2.23)$$

$$k_C(\lambda_1) = 0.85 \text{ m}^3/\text{kg} \quad (2.24)$$

$$k_C(\lambda_2) = 15.1 \text{ m}^3/\text{kg} \quad (2.25)$$

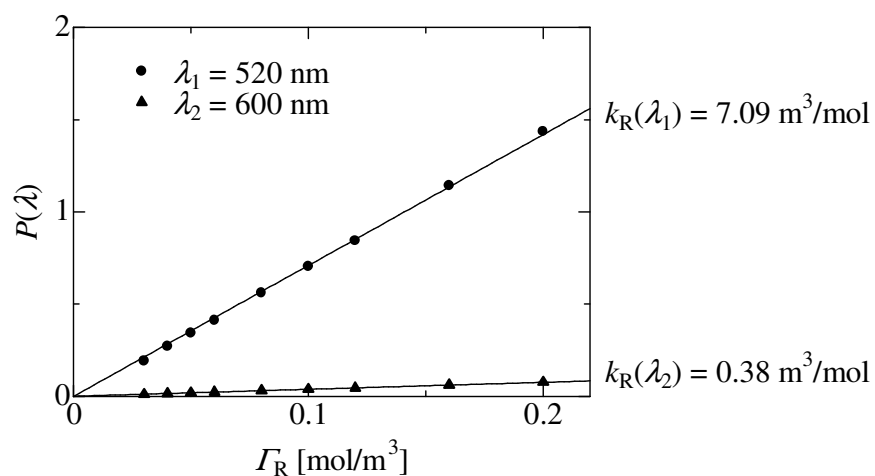


図 2.7 物質 R(緩衝塩を含む溶液) に対する光ファイバプローブの検定結果

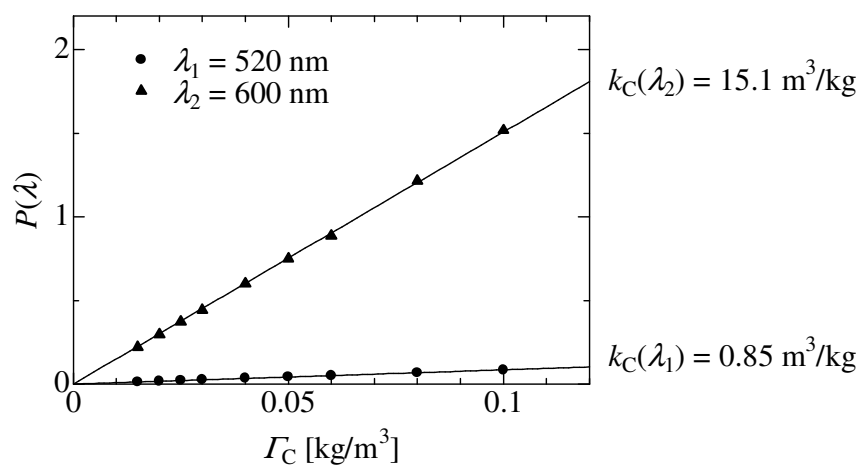


図 2.8 物質 C(緩衝塩を含む溶液) に対する光ファイバプローブの検定結果

2.4 反応性物質濃度と速度の同時計測

2.4.1 濃度・速度同時計測用複合プローブ

速度測定系

多成分変動濃度計に用いた光ファイバプローブを速度測定用I型熱膜プローブと組み合わせることで反応性物質濃度と流れ方向速度の同時計測を行った。図2.9に速度測定に使用したI型熱膜プローブ(TSI製 MODEL 1210-20W)の概略図を示す。この熱膜プローブの受感部は白金製の円筒形で、受感部の直径は $50.8\ \mu\text{m}$ 、長さは $1.02\ \text{mm}$ である。熱線流速計にハヤカワ計測研究所 MODEL HC-30を用いて速度計測を行った。液体中で熱膜プローブを使用する場合、液体中に含まれる塵埃、繊維質、微生物などの受感部への付着は正確な流速の測定の妨げになる。水中の塵埃などがプローブ受感部に付着するとセンサの熱放出を妨げ、結果的に流速を小さく測定することになるため、測定毎に受感部から塵埃を除去する必要がある。プローブ受感部に付着した塵埃などを除去する方法には、羽毛製のクリーナーを用いる方法や水流ジェットを当てる方法がある^[91]。本研究においても塵埃の除去を行わずに測定を続けた場合、測定される流速が実際の流速よりも小さくなることが確認された。そこで、測定する毎にスポイトを用いて水流をプローブの受感部に当て塵埃の除去を行った。

濃度・速度同時計測用複合プローブ

濃度計測用の光ファイバプローブとI型熱膜プローブを図2.10のように組み合わせた複合プローブにより反応性物質濃度と流れ方向速度の同時計測を行った。光ファイバプローブは回転ステージに、I型熱膜プローブは二軸微動装置にそれぞれ固定されており、二つのプローブの先端部の間の距離 Δ を調整することが可能となっている。複合プローブを用いて濃度と速度の同時測定をする際、プローブ間距離をどのように設定するかが重要となる。測定精度を上げるためにはプローブ間距離を小さくする必要があるが、二つのプローブが近づき過ぎると隣接するプローブが干渉し測定信号に影響を与えることが予想される。以下では、濃度と速度の同時計測に用いる複合プローブのプローブ間距離の決定方法について述べる。なお、プローブ同士の接触による熱膜プローブの破損を防ぐため、プローブ間距離の最小値を $\Delta = 0.4\ \text{mm}$ とした。

プローブ間距離 Δ を $0.4\ \text{mm}$ から $1.0\ \text{mm}$ まで変化させて、複合プローブによる染料Cの濃度と流れ方向の流速の測定を行い、プローブ間距離 Δ が計測結果に対して与える影響について考察する。濃度 $0.1\ \text{kg/m}^3$ の染料Cを含ませた溶液を噴流として周囲流中に噴出させ、噴流の中心軸上の $x/d = 20$ の位置で測定を行った。プローブ間距離を決定するため、酒井ら^[92]に従い、速度と濃度の確率密度関数と自己相関係数、速度と濃度の二

点空間相関を測定した。プローブ間隔を変えて測定するとき、光ファイバプローブを噴流中心軸上に置き、それに対して熱膜プローブを近づけていく場合と、熱膜プローブを噴流中心軸上に置き、それに対して光ファイバプローブを近づけていく場合の二通りについて測定を行った。速度、濃度の確率密度関数と自己相関係数の考察には、それぞれの測定用のプローブを中心軸上に置いた場合の測定結果を用い、各プローブを単独に用いて計測した結果と比較した。

・自己相関係数

図 2.11, 2.12 に流れ方向速度と濃度の自己相関係数を示す。横軸には遅れ時間 τ を、縦軸にはそれぞれの自己相関係数 $R_U(\tau)$, $R_C(\tau)$ をとっている。各 Δ に対する自己相関係数はそれぞれのプローブ単独で測定した自己相関係数の分布とほぼ等しくなっており、プローブの接近による自己相関係数への影響がないことがわかる。

・確率密度関数

図 2.13(a), (b) に流れ方向速度と濃度の確率密度関数 (PDF) をそれぞれ示す。図 2.13(a) の横軸には流れ方向流速 U と周囲流速 U_M の差を噴流出口速度 U_J と周囲流速 U_M の差で無次元化した値をとり、縦軸には噴流出口速度 U_J と主流流速 U_M の差で無次元化した PDF をとっている。また、図 2.13(b) の横軸と縦軸は噴流物質 C の初期濃度 Γ_{C0} で無次元化されている。各 Δ に対する確率密度関数はそれぞれのプローブ単独で測定した確率密度関数の分布とほぼ等しくなっており、プローブの接近による濃度と速度の確率密度関数への影響はないことがわかる。

・二点空間相関

図 2.14 にプローブ間距離 Δ に対する速度と濃度の二点空間相関の変化を示す。 $\Delta \rightarrow 0$ mm に対する二点空間相関の値は乱流流束の値に相当する。プローブ間距離 $\Delta = 0.4$ mm の場合と $\Delta \rightarrow 0$ mm とした場合の二点空間相関の値を比較するため、二点空間相関の測定値に対する最小二乗法で求めた二次曲線を図 2.14 に示した。ここでは、二点空間相関が Δ の偶関数となることを考慮して二次曲線を用いた。 $\Delta = 0$ でこの曲線が示す値を $\Delta \rightarrow 0$ mm での二点空間相関の値と仮定すると、 $\Delta = 0.4$ mm とした複合プローブにより計測される乱流流束の測定誤差は、熱膜プローブをファイバプローブに近付けた実験では約 4.7%、ファイバプローブを熱膜プローブに近付けた実験では約 1.2% となった。また、 $x/d = 20$ の位置で、 $\Delta = 0.4$ mm とした 10 回の測定を行った結果、測定毎の乱流流束のばらつきは約 6.3% であった。プローブ間距離を $\Delta = 0.4$ mm としたとき、プローブ間間隔が大きいことによって生じる乱流流束の測定誤差は十分に小さいことがわかる。

以上より、プローブ間距離 $\Delta = 0.4$ mm とした複合プローブ (図 2.10) により、濃度と

流れ方向速度の同時計測を行うことができることが確認できた．本研究では $\Delta = 0.4 \text{ mm}$ とした複合プローブを用いて，反応性物質濃度と流れ方向速度の同時計測を行った．

流れ場中の各スケールとプローブ空間分解能の比較

熱膜プローブ，光ファイバプローブの空間分解能および同時測定用複合プローブのプローブ間距離 Δ を流れ場中の各種スケールと比較する．Batchelor スケール η_B ，Kolmogorov の長さスケール η_K と Taylor のマイクロスケール λ_f はそれぞれ，

$$\eta_B = \eta_K / Sc^{1/2} \quad (2.26)$$

$$\eta_K = (\nu^3 / \epsilon)^{1/4} \quad (2.27)$$

$$\lambda_f = \frac{u_{\text{rms}}}{\sqrt{\langle (\partial u / \partial x)^2 \rangle}} \quad (2.28)$$

により表される． ϵ は乱流のエネルギー散逸率であり， $\langle * \rangle$ は時間平均を表す．また， u_{rms} は速度変動 rms 値であり， u は流れ方向速度 U の変動分 $u = U - \langle U \rangle$ である．等方性を仮定することで $\epsilon = 15\nu \langle (\partial u / \partial x)^2 \rangle$ として，I 型熱膜プローブによる速度計測結果から Taylor 仮説を用いて求めた η_B ， η_K ， λ_f の中心軸上での分布を図 2.15 に示す．ここでは，熱膜プローブの空間分解能 Δ_{HF} をプローブの受感部長さ 1.02 mm ，濃度測定用光ファイバプローブの空間分解能 Δ_{OF} を検査部長さ 0.7 mm とした．各プローブの空間分解能とプローブ間距離が図 2.15 中に実線で示されている．図 2.15 から各プローブの分解能，複合プローブのプローブ間距離は Taylor のマイクロスケールより小さく，Kolmogorov スケールより大きいことがわかる．

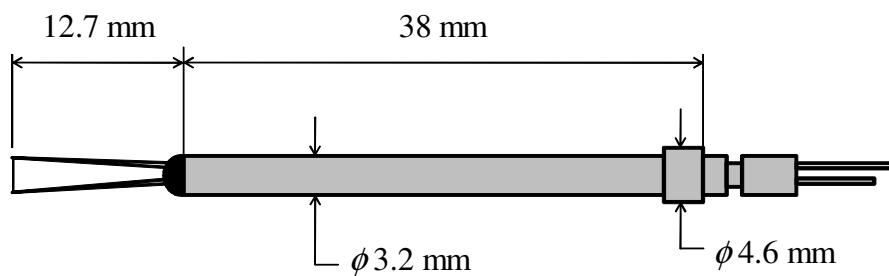


図 2.9 I 型熱膜プローブの概略図

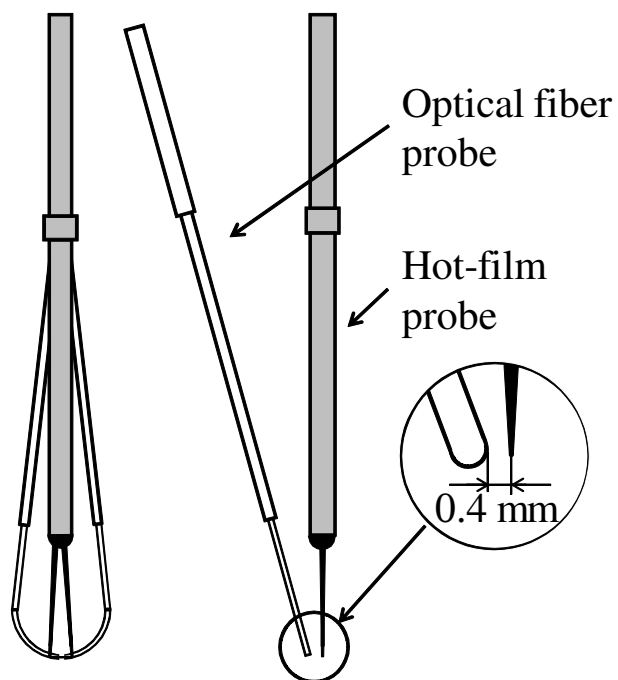


図 2.10 複合プローブの測定部の詳細

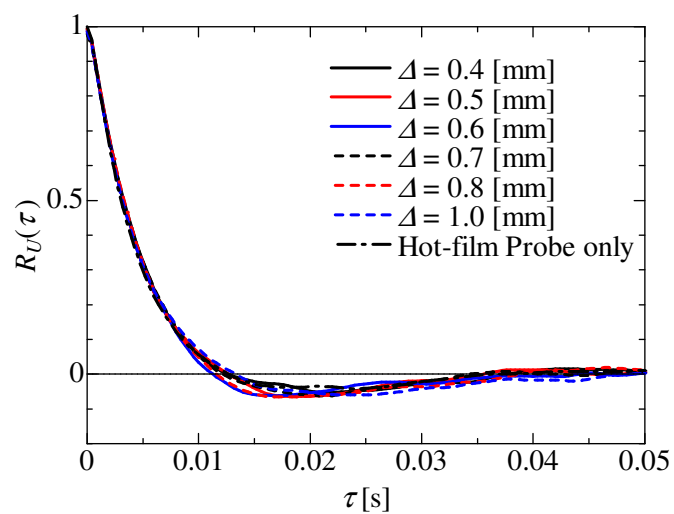


図 2.11 流れ方向速度の自己相関係数 (プローブ間距離に対する変化)

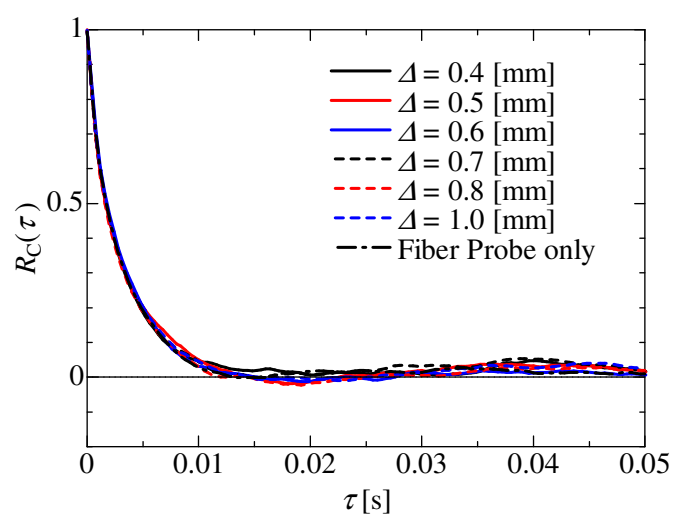


図 2.12 濃度の自己相関係数 (プローブ間距離に対する変化)

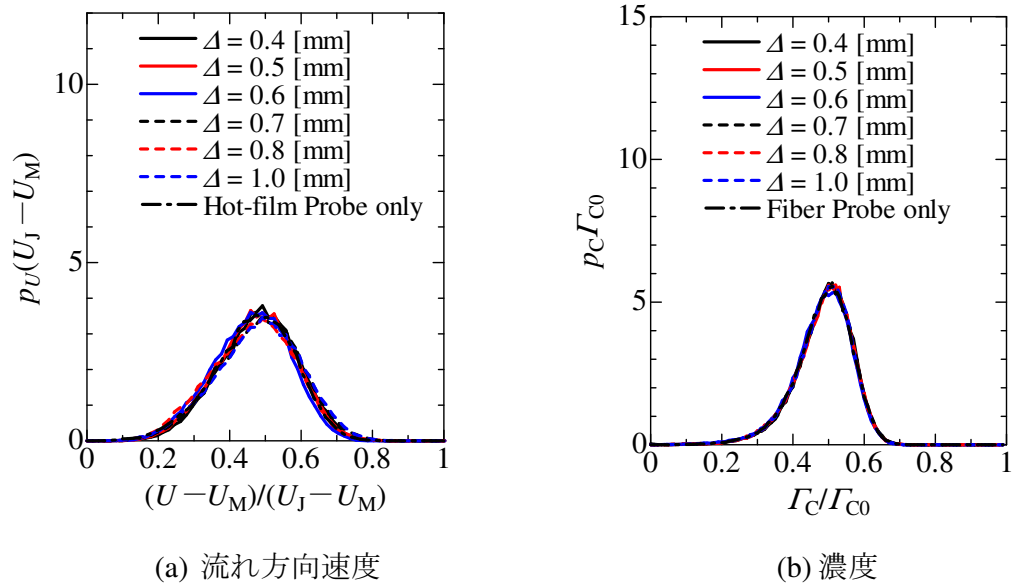


図 2.13 流れ方向速度と濃度の確率密度関数 (プローブ間距離に対する変化)

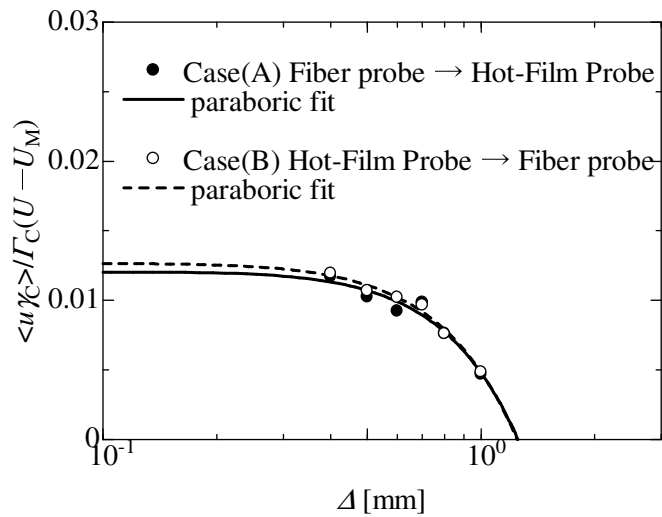


図 2.14 プローブ間距離に対する二点空間相関の変化

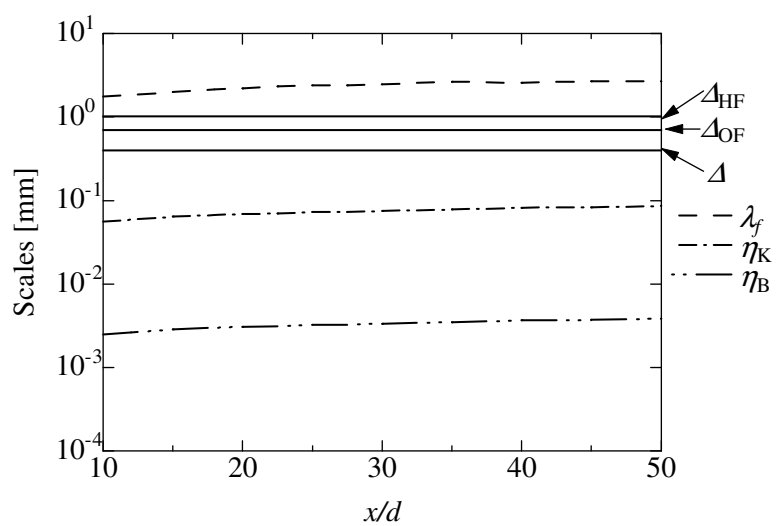


図 2.15 各スケールとプローブ分解能

2.4.2 速度・混合分率の統計量

平均速度および速度変動 rms 値の分布

図 2.16, 2.17 にそれぞれ流れ方向速度の平均値 $\langle U \rangle$ と周囲流流速 U_M の差と速度変動 rms 値 u_{rms} の y 方向分布を過去の LDV による計測結果^[81] とともに示す．図 2.16, 2.17 の横軸は流れ方向平均流速と周囲流流速 U_M の差の y 方向分布の半値幅 b_U で無次元化し，図 2.16 の縦軸は中心上における平均流速 $\langle U \rangle_C$ と周囲流流速 U_M の差で，図 2.17 の縦軸は中心上での速度変動 rms 値 u_{rmsC} で無次元化してある．図 2.16 には比較のため Gauss 分布が破線で描かれている．図 2.16, 2.17 より，複合プローブを用いて測定した結果が過去に LDV を用いて測定した結果とよく一致しており，速度場の測定が正しく行われていることがわかる．図 2.16 より，平均速度の y 方向分布は Gauss 分布により表され，各測定断面で自己相似性が成り立っていることがわかる．また，図 2.17 に示されているように，速度変動 rms 値は平均速度の噴流の中心よりやや外側で最大を持つ分布となり，各測定断面で自己相似性が成り立っている．

混合分率の分布

図 2.18, 2.19 にそれぞれ混合分率の平均値 $\langle \xi \rangle$ と混合分率の変動の rms 値 ξ_{rms} の y 方向分布を，光ファイバプローブ単独で測定した過去の結果^[81] とともに示す．図 2.18 および図 2.19 では，横軸を $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化してある．図 2.18 の縦軸には混合分率 $\langle \xi \rangle$ を中心上での混合分率 $\langle \xi \rangle_C$ で正規化した値をとり，図 2.19 の縦軸には混合分率の変動 rms 値 ξ_{rms} を中心上での混合分率の変動 rms 値 ξ_{rmsC} で正規化した値をとっている．図より，複合プローブにより得られた結果が過去に光ファイバプローブを用いて得られた結果とよく一致していることがわかる．また，図 2.18 より混合分率の平均値の分布は各測定断面で自己相似性を示していることがわかる．図 2.19 に示されているように，混合分率の変動 rms 値は混合分率の平均値の半値幅付近で最大となる．混合分率の変動 rms 値は噴流出口に近い $x/d = 10$ を除く各断面で相似な分布形状となった．

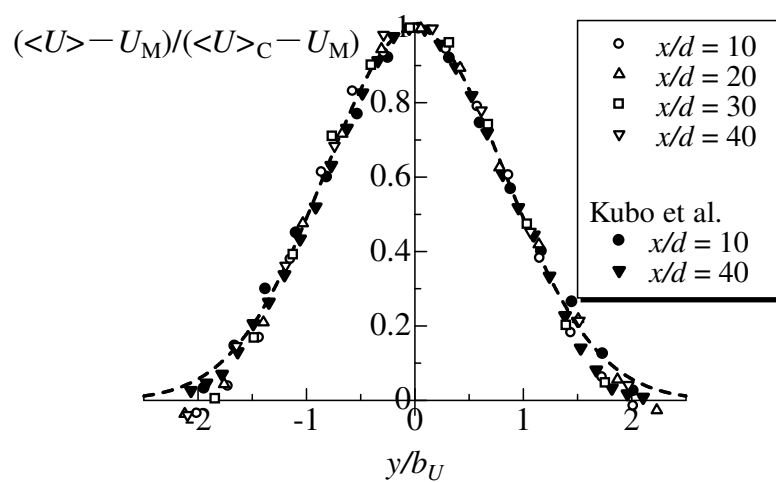


図 2.16 流れ方向平均速度の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

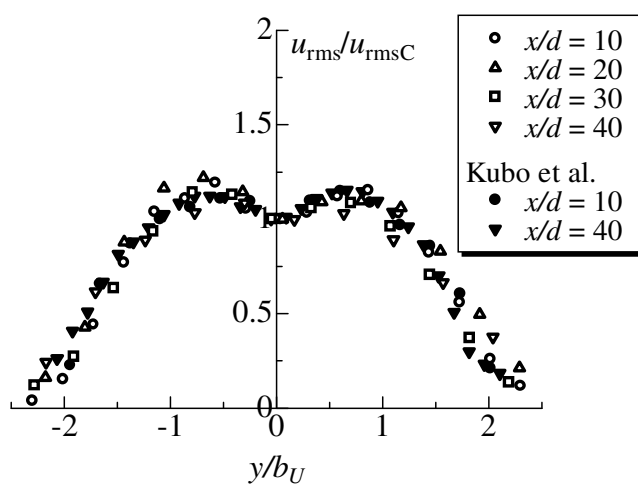


図 2.17 流れ方向速度変動の rms 値の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

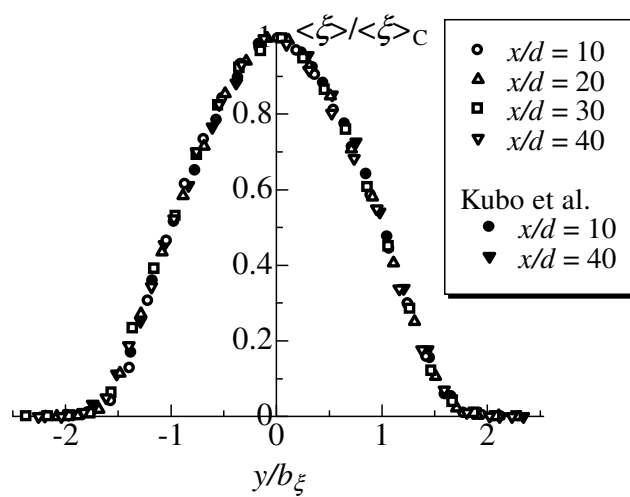


図 2.18 平均混合分率の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

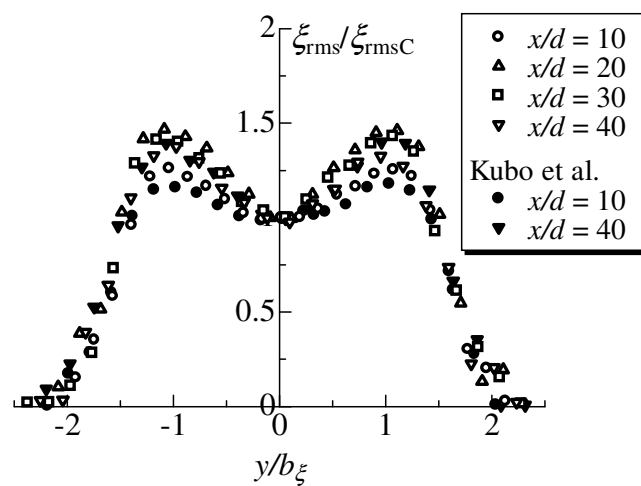


図 2.19 混合分率の変動 rms 値の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

2.4.3 反応性物質濃度の統計量

平均濃度

本研究と同様の実験装置及び化学反応 (Damköhler 数 $Da = 11.8$) に対して, 久保ら^[81] が反応物質の平均濃度と濃度変動 rms 値の計測を行っている. ここでは, 今回の実験データを久保らのデータと比較しながら, 反応性物質拡散場の特性を考察する.

図 2.20 に反応物質 A, B および生成物質 R の平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ ($\alpha = A, B, R$) の噴流中心上における分布を示す. 図中には比較のため, 式 (2.19) により求められる無反応極限と式 (2.20) により求められる瞬間反応極限, そして光ファイバプローブを単独で用いて得られた過去の結果^[81] が示されている. 縦軸は物質 A, B の初期濃度 Γ_{A0}, Γ_{B0} および物質 R の代表濃度 Γ_{R0} で無次元化してある. 噴流物質 A の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle$ は, 反応の影響により $x/d = 10$ 付近より下流で無反応極限濃度より小さな値となり, 下流にいくにつれ反応が進行するため無反応極限からの減少量が大きくなっていることがわかる. 一方, 周囲流物質 B も同様に, $\langle \Gamma_B \rangle$ の値は反応の影響により $x/d = 10$ 付近から無反応極限濃度より小さくなる. しかし, $x/d = 25$ 以降では下流にいくにつれ $\langle \Gamma_B \rangle$ が増加する. この変化は混合分率の変化を考慮して, 次のように説明される. 下流にいくにつれて噴流の拡散が進み混合分率 ξ の平均値は小さくなるが, 周囲流は $1 - \xi$ に対応する混合分率で拡散するため下流に行くにつれて周囲流物質の平均濃度は大きくなる. したがって, $\langle \Gamma_B \rangle$ は下流方向に行くにつれて大きくなるが, それと同時に反応が進むため無反応極限濃度からの減少量も大きくなる. $10 \leq x/d \leq 25$ では, 反応による周囲流物質の濃度の減少量が拡散による周囲流物質の濃度の増加量を上回るため, 下流に行くにつれ $\langle \Gamma_B \rangle$ は小さくなる. $x/d = 25$ 以降では, 周囲流物質の拡散による濃度の増加量が反応による濃度の減少量を上回るため, 下流に行くにつれ $\langle \Gamma_B \rangle$ は大きくなる. 生成物質 R は $x/d = 10$ 付近から生成し始め, $x/d = 25$ まで急激に増加し, その後, 下流に行くにつれ緩やかに増加する傾向を示した. これらは過去に測定されたデータと同様の傾向を示しており, 複合プローブにより正しく計測が行われたことがわかる.

図 2.21, 2.22 に反応物質 A, B および生成物質 R の平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ ($\alpha = A, B, R$) の $x/d = 10, 30$ の断面における y 方向分布を示す. また, 図中には比較のため無反応極限, 瞬間反応極限の分布および過去の光ファイバプローブ単独での測定結果^[81] も描かれている. 縦軸は物質 A, B の初期濃度および物質 R の代表濃度で, 横軸は $\langle \xi \rangle$ の半値幅 b_ξ で無次元化してある. 図より噴流物質 A と周囲流物質 B の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle, \langle \Gamma_B \rangle$ は噴流中心上での結果と同様に, 反応の影響で無反応極限に比べて平均濃度が小さくなり, 下流に行くにつれて反応が進行するため無反応極限からの減少量が大きくなることがわかる. そして, 反応物質 A および B の減少量が増えるとともに生成物質 R の平均濃度 $\langle \Gamma_R \rangle$ が増加する. また, 噴流出口付近では $\langle \Gamma_R \rangle$ のピークの位置が混合分率の半値幅付近にあるが,

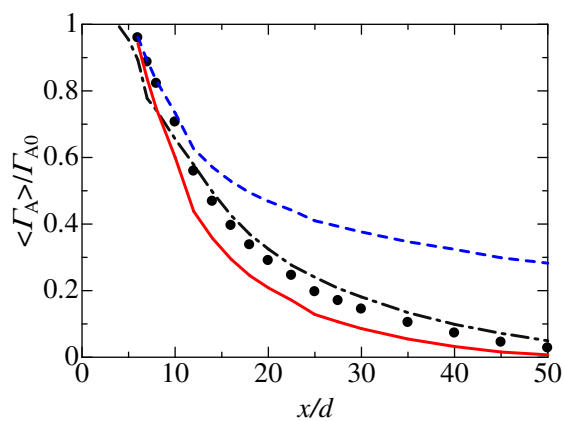
十分下流に行くと噴流中心上にピークを持つ分布となる．なお，これらの結果は過去の光ファイバプローブ単独測定結果^[81]とよく一致しており，今回の濃度測定が正しく行われていることを示している．

濃度変動 rms 値

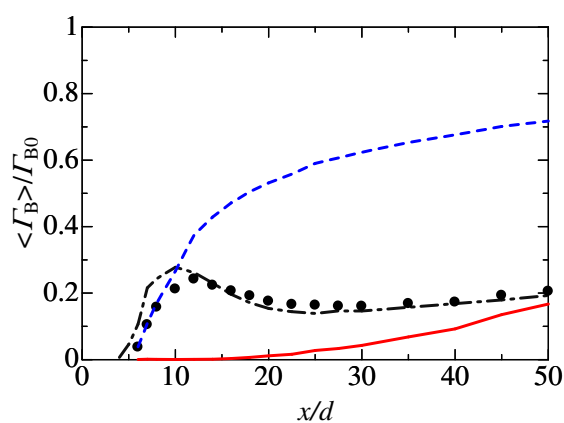
図 2.23 に噴流中心上における各物質の濃度変動 rms 値 $\gamma_{\alpha rms}$ ($\alpha = A, B, R$) の下流方向変化を示す．図中には，無反応極限，瞬間反応極限により得られる結果と，光ファイバプローブを単独で用いて得られた過去の結果^[81]がともに示されている．噴流物質 A および周囲流物質 B の濃度変動 rms 値は，噴流出口付近と十分下流で化学反応による影響の特性が異なる． γ_{Arms} は化学反応の影響により，噴流出口付近では無反応極限の値に比べて大きい値となり，下流では無反応極限の値に比べて小さい値となる． γ_{Brms} は逆の傾向を示し，噴流出口付近では無反応極限の値に比べて小さい値となり，下流では無反応極限の値に比べて大きい値となる． γ_{Rrms} は平均濃度が大きく増加する $x/d = 10$ から $x/d = 20$ の間でほぼ一定の値をとり，それ以降では単調に増加する．これらの結果には，過去に得られた結果と同様の傾向が得られていることが確認できる．

図 2.24, 2.25 にそれぞれ物質 A, B, R の濃度変動 rms 値 $\gamma_{\alpha rms}$ ($\alpha = A, B, R$) の $x/d = 10, 30$ における y 方向分布を，過去に得られた結果^[81]とともに示す．噴流出口付近での噴流中心近傍では， γ_{Arms} は無反応極限より大きくなり，噴流出口付近の噴流中心近傍を除いた領域では，無反応極限より小さくなる傾向を示す．また，混合分率の半値幅より少し外側の領域で反応の影響が顕著に現れることがわかる． γ_{Brms} に対する化学反応の影響は物質 A に対する影響と逆の傾向がみられる．噴流出口付近の噴流中心近傍において， γ_{Brms} は無反応極限より小さくなるが，噴流出口付近の噴流中心近傍を除いた領域では γ_{Brms} は無反応極限より大きくなる傾向を示す．また，物質 A の場合と同様に反応の影響は混合分率の半値幅より少し外側の領域で大きくなる．これらの結果には過去に久保ら^[81]により得られた結果と同様の傾向が見られ，複合プローブが濃度場の測定に対して有効であることがわかる．

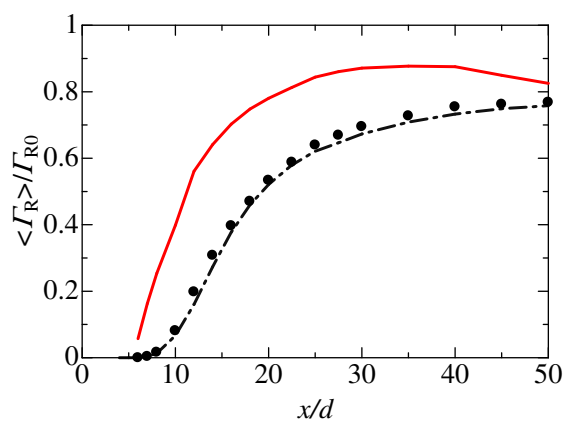
--- Kubo et al.
 • $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B

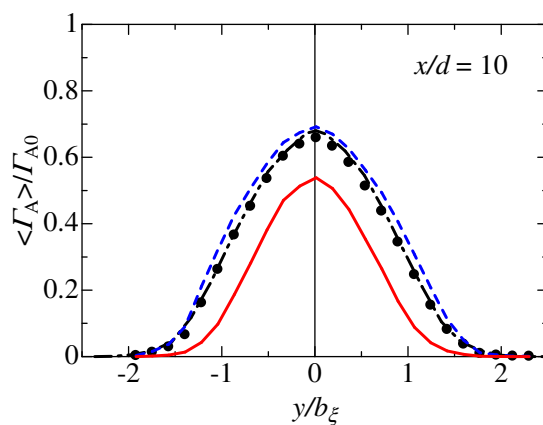


(c) 生成物質R

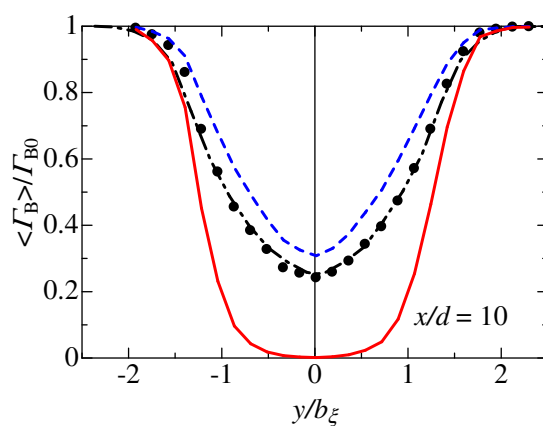
図 2.20 反応性物質の平均濃度の噴流中心上での分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

--- Kubo et al.

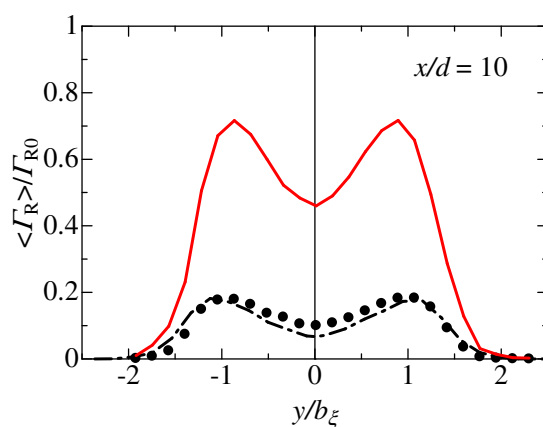
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B

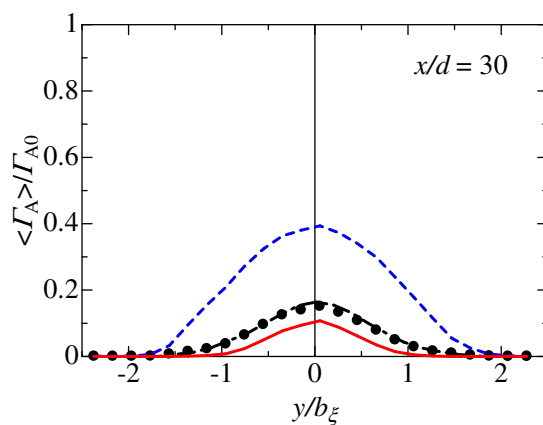


(c) 生成物質R

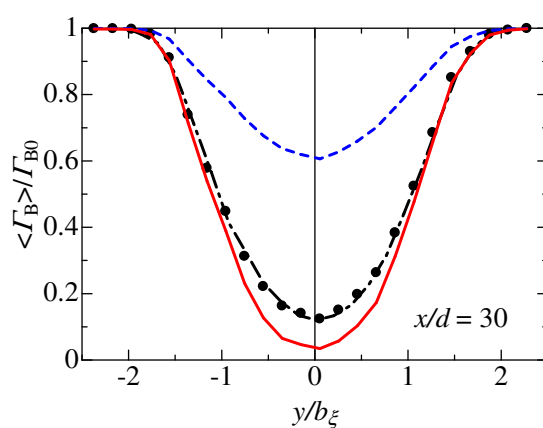
図 2.21 反応性物質の平均濃度の y 方向分布 ($x/d = 10$) (久保らに^[81] による計測結果との比較)

--- Kubo et al.

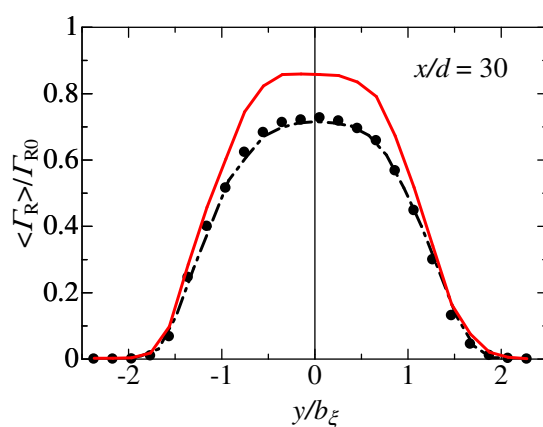
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B

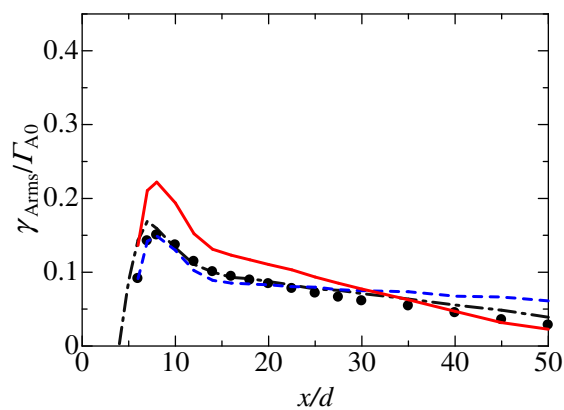


(c) 生成物質R

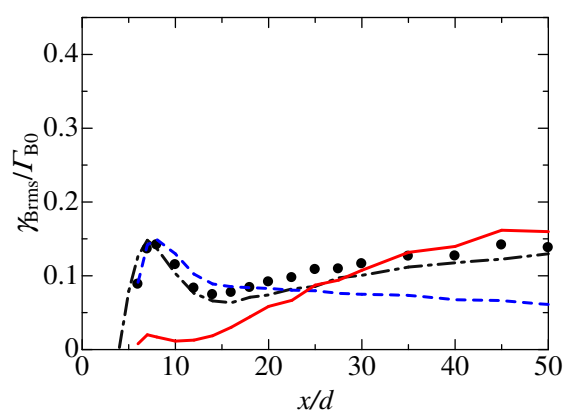
図 2.22 $x/d = 30$ における反応性物質の平均濃度の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

--- Kubo et al.

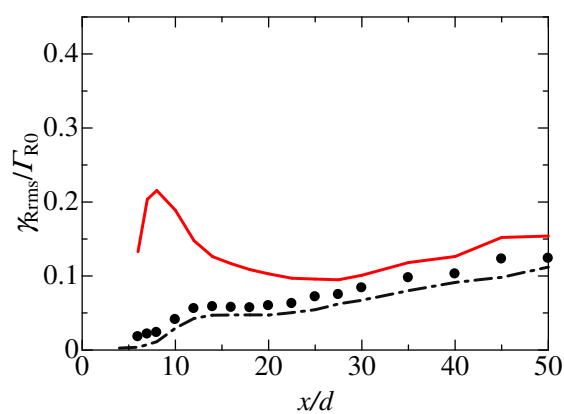
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B

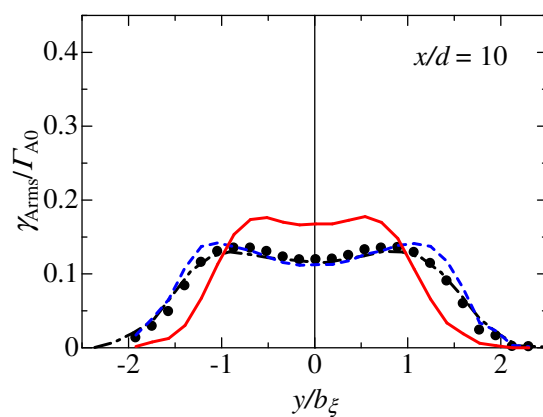


(c) 生成物質R

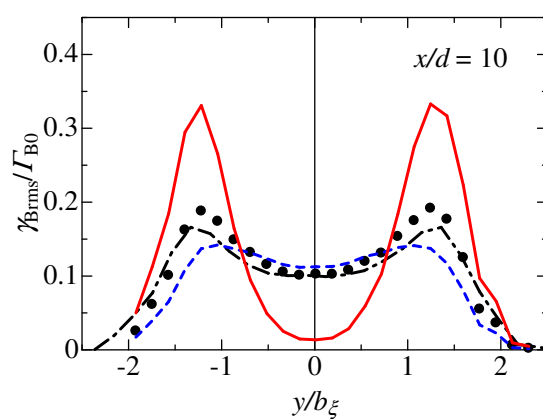
図 2.23 反応性物質の濃度変動 rms 値の噴流中心上での分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

--- Kubo et al.

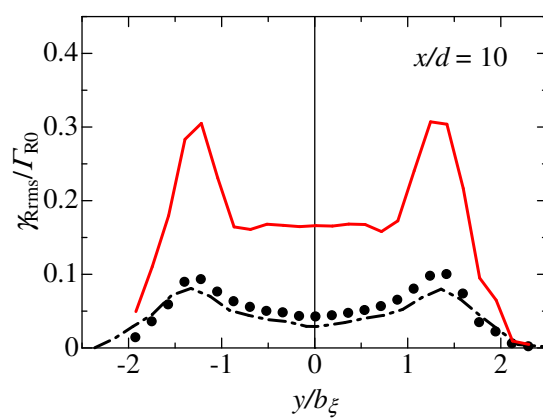
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B

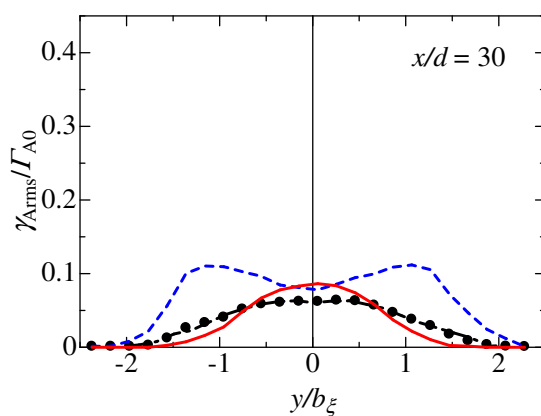


(c) 生成物質R

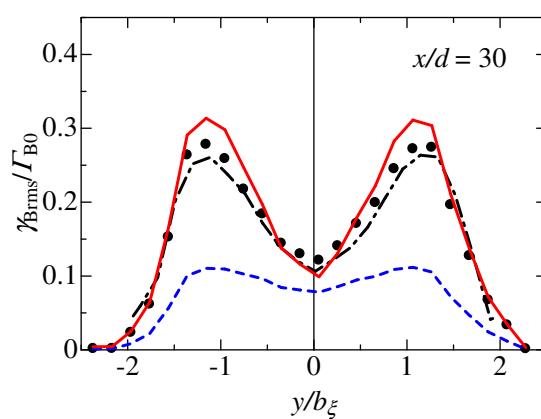
図 2.24 $x/d = 10$ における反応性物質の濃度変動 rms 値の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

--- Kubo et al.

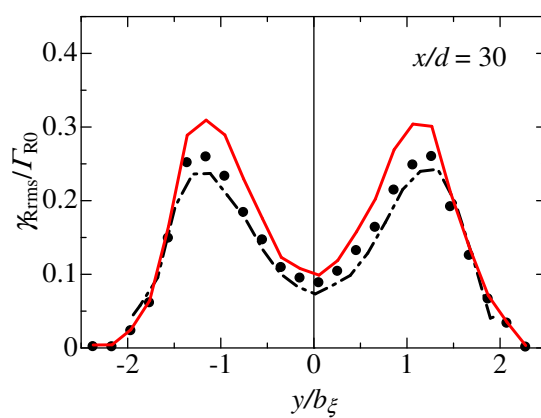
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B



(c) 生成物質R

図 2.25 $x/d = 30$ における反応性物質の濃度変動 rms 値の y 方向分布 (久保らに^[81] による計測結果との比較)

2.4.4 反応性物質濃度と速度の結合統計量

流れ方向乱流流束

図 2.26 に反応性物質の流れ方向乱流流束 $\langle u\gamma_\alpha \rangle$ の噴流中心上における変化を示す．ここで， $u = U - \langle U \rangle$ ， $\gamma_\alpha = \Gamma_\alpha - \langle \Gamma_\alpha \rangle$ である．図中には比較のため，無反応極限および瞬間反応極限の値が示されている．縦軸は $\Gamma_{\alpha 0}$ と $(U_J - U_M)$ で無次元化してある．物質 A の乱流流束 $\langle u\gamma_A \rangle$ は化学反応の影響により，噴流出口付近では無反応極限の値に比べて大きい値となり，下流では無反応極限の値に比べて小さい値となる． $\langle u\gamma_B \rangle$ は逆の傾向を示し，噴流出口付近では無反応極限の値に比べて 0 に近い値となるが，下流では無反応極限の値に比べて負に大きい値となる．生成物質の場合， $\langle u\gamma_R \rangle$ は，噴流出口付近で負の値となり，噴流の下流では正の値となる．

図 2.27～2.29 に流れ方向乱流流束 $\langle u\gamma_\alpha \rangle$ の $x/d = 10, 20, 40$ の各断面での y 方向変化を示す．図中には比較のため，無反応極限および瞬間反応極限の値が示されている．縦軸は $\Gamma_{\alpha 0}$ と $(U_J - U_M)$ で，横軸は流れ方向平均速度の y 方向分布の半値幅 b_U で無次元化してある．噴流物質 A および周囲流物質 B の流れ方向乱流流束に対する化学反応の影響は噴流出口付近と噴流の外縁付近や下流領域で異なる．噴流出口付近の噴流中心に近い位置では，反応により $\langle u\gamma_A \rangle$ は無反応極限に比べて大きい値となるが， $\langle u\gamma_B \rangle$ は無反応極限より 0 に近い値となる．また，噴流出口付近の噴流中心に近い位置では物質 R の乱流流束 $\langle u\gamma_R \rangle$ は負の値となる．しかし，噴流の外縁部付近や噴流の下流では， $\langle u\gamma_A \rangle$ は無反応極限よりも 0 に近い値となるが， $\langle u\gamma_B \rangle$ は無反応極限の値に比べて負に大きくなる．また，噴流の外縁部付近や噴流の下流において $\langle u\gamma_R \rangle$ は正の値となる．

このように，化学反応が反応性物質の乱流流束に対して与える影響が噴流出口付近とそれ以外の噴流外縁部や噴流の下流の領域との間で異なっている理由は，噴流出口付近と噴流の下流や外縁部付近では反応速度が大きくなる条件が異なることから説明できる．本研究で対象とした二次反応の反応速度項は $\hat{\Gamma}_A = \Gamma_A/\Gamma_{A0}$ と $\hat{\Gamma}_B = \Gamma_B/\Gamma_{B0}$ の積に比例する．反応性物質の保存則である式 (2.16) を用いると，瞬時濃度積 $\hat{\omega}_{AB} = \hat{\Gamma}_A \hat{\Gamma}_B$ は次式のように書き表すことができる．

$$\hat{\omega}_{AB} = \hat{\Gamma}_A \hat{\Gamma}_B = \hat{\Gamma}_A (1 - \hat{\Gamma}_R - \hat{\Gamma}_A) = -\left\{ \hat{\Gamma}_A - \frac{1}{2}(1 - \hat{\Gamma}_R) \right\}^2 + \frac{1}{4}(1 - \hat{\Gamma}_R)^2 \quad (2.29)$$

$$= \hat{\Gamma}_B (1 - \hat{\Gamma}_R - \hat{\Gamma}_B) = -\left\{ \hat{\Gamma}_B - \frac{1}{2}(1 - \hat{\Gamma}_R) \right\}^2 + \frac{1}{4}(1 - \hat{\Gamma}_R)^2 \quad (2.30)$$

ここで， $\hat{\Gamma}_R = \Gamma_R/\Gamma_{R0}$ である．物質 R の濃度が $\hat{\Gamma}_R$ のときの，瞬時濃度積 $\hat{\omega}_{AB}$ の物質 A の濃度 $\hat{\Gamma}_A$ に対する変化を図 2.30 に示す．このとき，物質 B の濃度は反応性物質の保存則を表す式 (2.16) を用いると， $\hat{\Gamma}_B = (1 - \hat{\Gamma}_R) - \hat{\Gamma}_A$ となる．図 2.30 と式 (2.29) および式 (2.30) より，反応速度が最大となるのは $\hat{\Gamma}_A$ と $\hat{\Gamma}_B$ が等しくなるとき ($\hat{\Gamma}_A = \hat{\Gamma}_B = (1 - \hat{\Gamma}_R)/2$) であることがわかる．噴流出口付近の噴流中心に近い位置では噴流物質 A の濃度 $\hat{\Gamma}_A$ は周囲流

物質 B の濃度 \hat{I}_B よりも大きくなっている．したがって，図 2.30 において $\hat{I}_A > (1 - \hat{I}_R)/2$ となるため，物質 A の濃度変動が負となり，物質 B の濃度変動が正となる瞬間に反応速度が大きくなり反応の影響が強くなる．反応により物質 A, B の濃度は減少するため，前述した反応速度が大きくなるような状態で起こる反応により，物質 A の濃度の負の変動が大きく，物質 B の濃度の正の変動が小さくなる．噴流中に含まれる物質 A の濃度と流れ方向速度は正の相関があるので，反応により物質 A の濃度の負の変動が大きくなることで $\langle u\gamma_A \rangle$ は増加する．物質 B については，反応速度が大きい瞬間の反応により物質 B の濃度の正の変動が小さくなるため， $\langle u\gamma_B \rangle$ は 0 に近づく．一方，噴流の下流や外縁部付近では，周囲流物質 B の濃度 \hat{I}_B は噴流物質 A の濃度 \hat{I}_A よりも大きくなっている．すなわち，図 2.30 において $\hat{I}_A < (1 - \hat{I}_R)/2$ となるため，物質 A の濃度変動が正となり，物質 B の濃度の濃度変動が負となる瞬間に反応速度が大きくなり反応の影響が強くなる．噴流出口付近と異なり，反応速度が大きくなるような状態で起こる反応により，物質 A の濃度の正の変動が小さくなることで $\langle u\gamma_A \rangle$ は 0 に近づき，流れ方向速度と負の相関を持つ周囲流物質 B の濃度の負の変動が大きくなることで $\langle u\gamma_B \rangle$ は負に大きくなる．

生成物質 R の乱流流束は，噴流出口付近で負の値となり，噴流の下流や外縁部付近では正の値となっている．生成物質 R の濃度変動が負となるのは反応速度が小さくなる瞬間である．これは，噴流出口付近では物質 A の濃度変動が正となる瞬間に対応する．逆に，噴流出口付近で生成物質 R の濃度変動が正となるのは物質 A の濃度変動が負となる瞬間である．噴流物質 A と流れ方向速度は正の相関を持つ．そのため，噴流出口付近において，物質 A の濃度変動と負の相関をもつ物質 R の濃度変動は速度変動と負の相関をもち，物質 R の乱流流束は負の値となる．噴流の下流や外縁部付近では，噴流出口付近とは異なり，反応速度が大きくなる瞬間は物質 A の濃度変動が正となる瞬間である．したがって，噴流の下流や外縁部付近において，物質 R の濃度変動は物質 A の濃度変動と正の相関をもつため，物質 R の乱流流束は正の値となる．

速度変動-濃度変動コスペクトル

図 2.31, 2.32 に流れ方向速度変動 u と反応性物質 α の濃度変動 γ_α のコスペクトル $C_{u\alpha}$ ($\alpha = A, B, R$) の噴流中心線上における変化と $x/d = 20$ の断面における y 方向変化をそれぞれ示す．コスペクトル $C_{u\alpha}(f)$ は u のフーリエ変換 $\tilde{u}(f)$ と γ_α のフーリエ変換 $\tilde{\gamma}_\alpha(f)$ を用いて次式により定義される．

$$S_{u\alpha}(f) = \langle \tilde{u}\tilde{\gamma}_\alpha \rangle = C_{u\alpha}(f) - iQ_{u\alpha}(f) \quad (2.31)$$

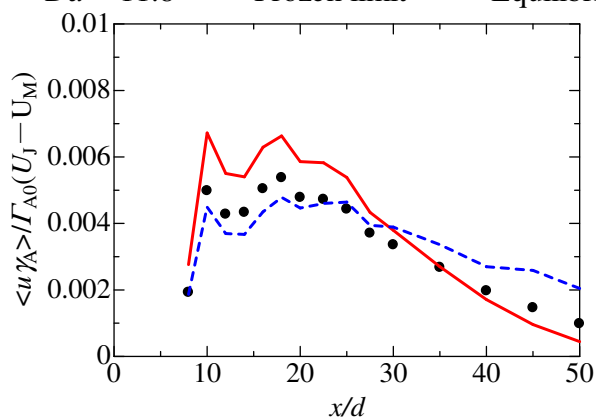
ここで， $S_{u\alpha}$ は u と γ_α のクロススペクトル， $Q_{u\alpha}$ は u と γ_α のクオドスペクトル， i は虚数単位であり， f は周波数を表している．式 (2.31) のように， $C_{u\alpha}, Q_{u\alpha}$ はそれぞれクロススペクトル $S_{u\alpha}$ の実部，虚部として定義される．図中には，比較のため，無反応極限およ

び瞬間反応極限における $C_{u\alpha}$ と流れ方向速度変動 u のパワースペクトル E_u (図 2.31, 2.32 中の一点鎖線) が示されている。図 2.31, 2.32 において, コスペクトルおよびパワースペクトルは $\Gamma_{\alpha 0}$ と $(U_J - U_M)$ を用いて無次元化されている。

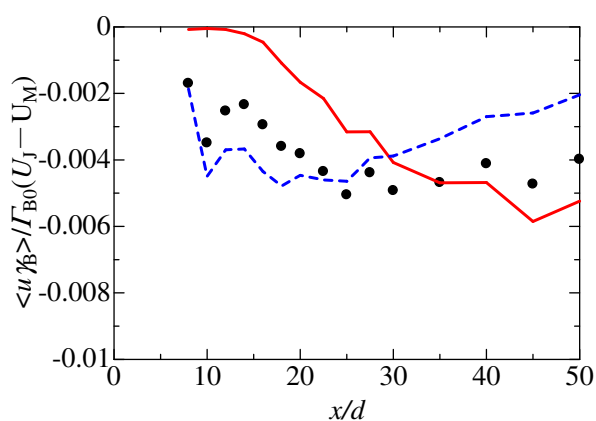
噴流に含まれる反応物質 A の場合, C_{uA} は上流域 (図 2.31, $x/d = 12, 16$) や噴流中心付近 (図 2.32, $y/b_U = 0$) では無反応極限と比べて大きい値をとるが, 噴流の下流 (図 2.31, $x/d = 40$) や外縁部付近 (図 2.32, $y/b_U = 1.0, 1.5$) では逆に無反応極限よりも小さい値をとることがわかる。また, 主流中に含まれる反応物質 B の場合, C_{uB} は負の値をとる。反応による C_{uB} の変化は物質 A の場合と逆の傾向を示し, 上流域 (図 2.31, $x/d = 12, 16$) や噴流中心付近 (図 2.32, $y/b_U = 0$) において C_{uB} の絶対値が無反応極限と比べて小さくなるが, 噴流の下流 (図 2.31, $x/d = 40$) や外縁部付近 (図 2.32, $y/b_U = 1.0, 1.5$) では逆に大きくなることわかる。生成物質 R に対する C_{uR} は, 上流域 (図 2.31, $x/d = 12, 16$) や噴流中心付近 (図 2.32, $y/b_U = 0$) では負の値をとるが, 噴流の下流あるいは外縁部付近に向かうにつれて 0 に近づき, 噴流の下流 (図 2.31, $x/d = 40$) や外縁部にさらに近い位置 (図 2.32, $y/b_U = 1.0, 1.5$) では正の値をとる。

図 2.31, 2.32 より, パワースペクトル E_u の速度変動のエネルギーに対する寄与が大きい周波数で, C_{uA} および C_{uB} と無反応極限との差が大きくなることわかる。また, 噴流の下流域や外縁部に近づくにつれて, 生成物質 R に対する C_{uR} の符号が変化する。そして, 図 2.31, 2.32 より, こうしたコスペクトルの化学反応による変化は E_u の速度変動のエネルギーに対する寄与が大きい周波数域で主に生じていることがわかる。このように, 反応性物質の乱流物質フラックスに対する化学反応の影響は, 乱れの強い周波数域で大きくなる。

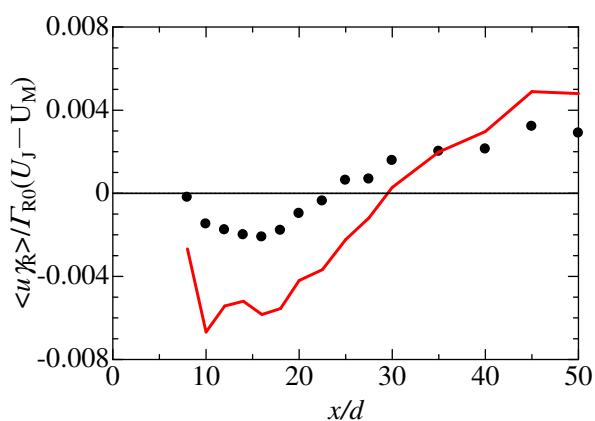
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit --- Equilibrium limit



(a) 反応物質A



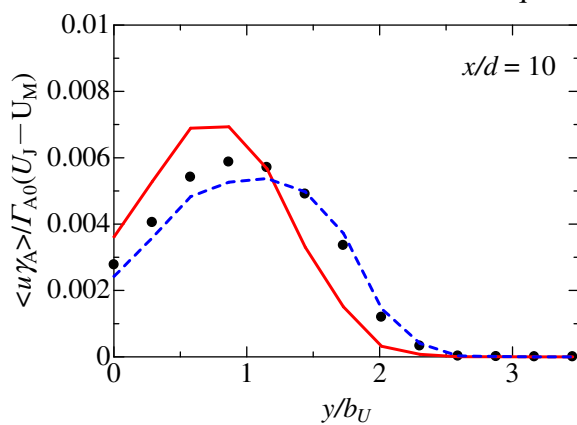
(b) 反応物質B



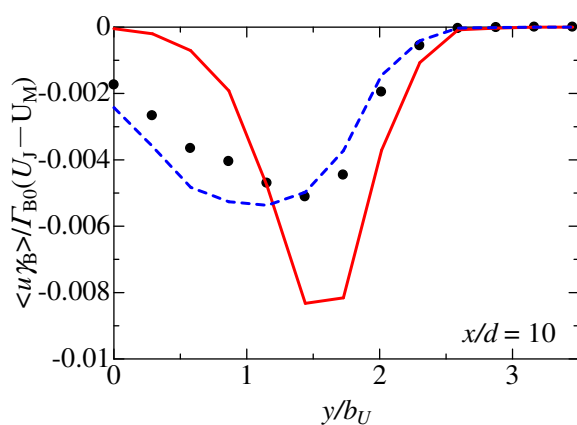
(c) 生成物質R

図 2.26 反応性物質の流れ方向乱流流束の噴流中心上での分布

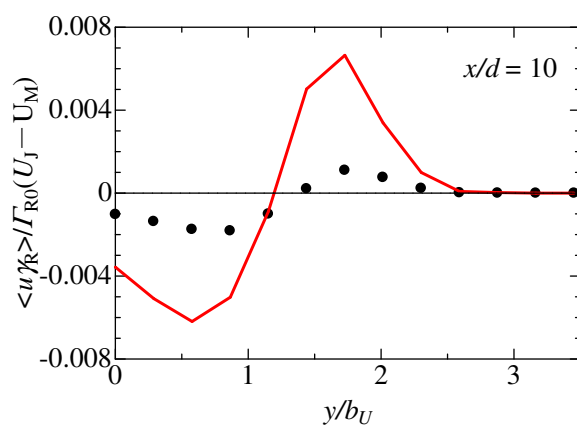
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit ——— Equilibrium limit



(a) 反応物質A



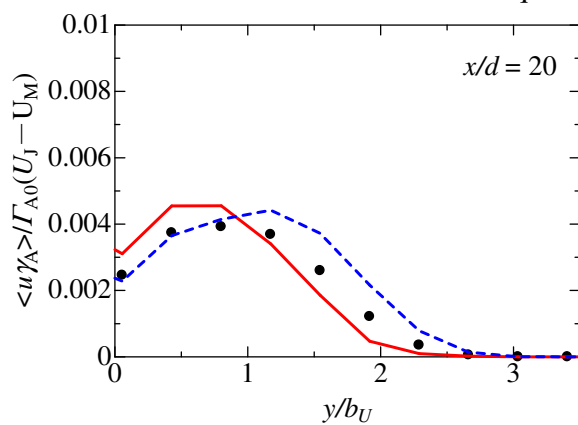
(b) 反応物質B



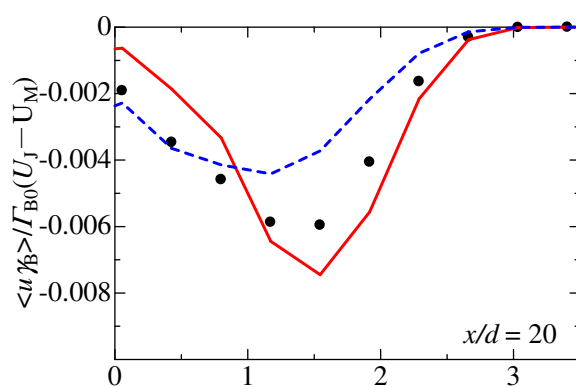
(c) 生成物質R

図 2.27 反応性物質の流れ方向乱流流束の y 方向分布 ($x/d = 10$)

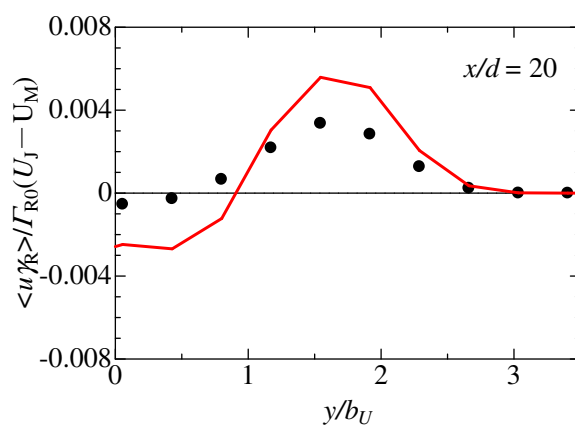
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit ——— Equilibrium limit



(a) 反応物質A



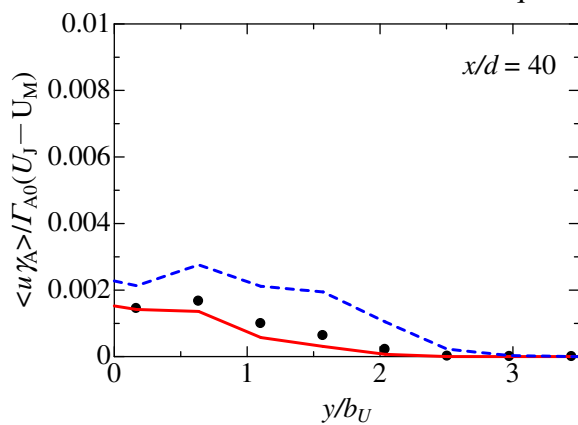
(b) 反応物質B



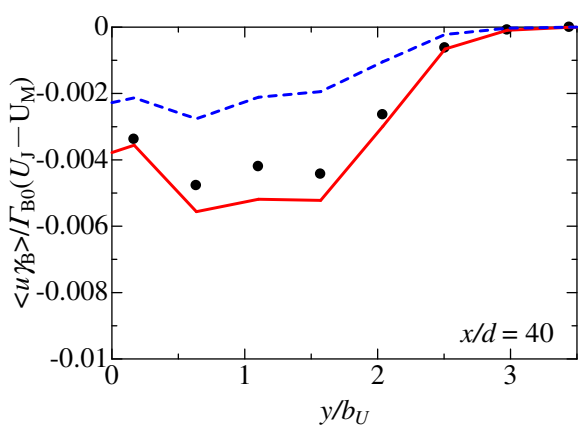
(c) 生成物質R

図 2.28 反応性物質の流れ方向乱流流束の y 方向分布 ($x/d = 20$)

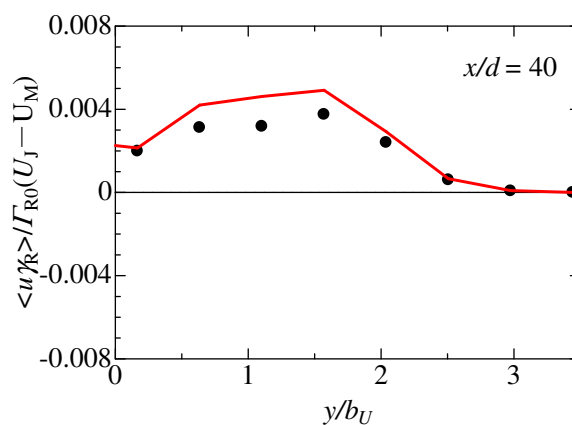
- $Da = 11.8$ --- Frozen limit — Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B



(c) 生成物質R

図 2.29 反応性物質の流れ方向乱流流束の y 方向分布 ($x/d = 40$)

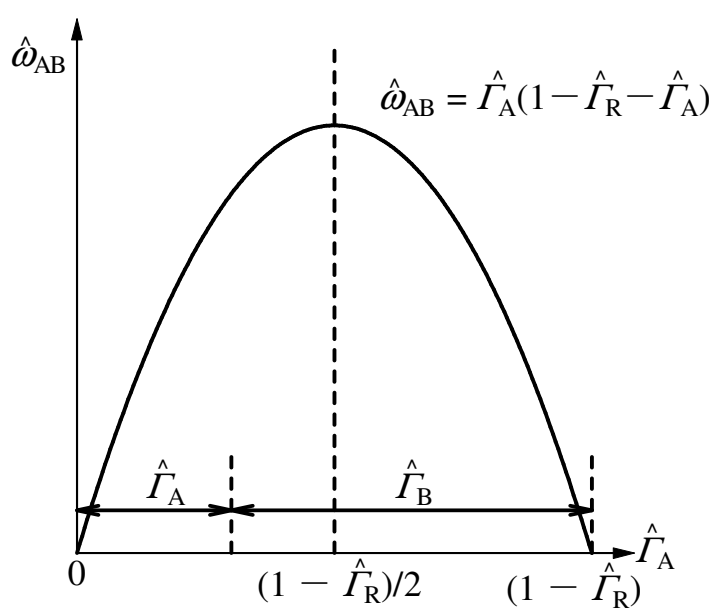


図 2.30 反応物質 A および生成物質 R の濃度と反応速度の関係

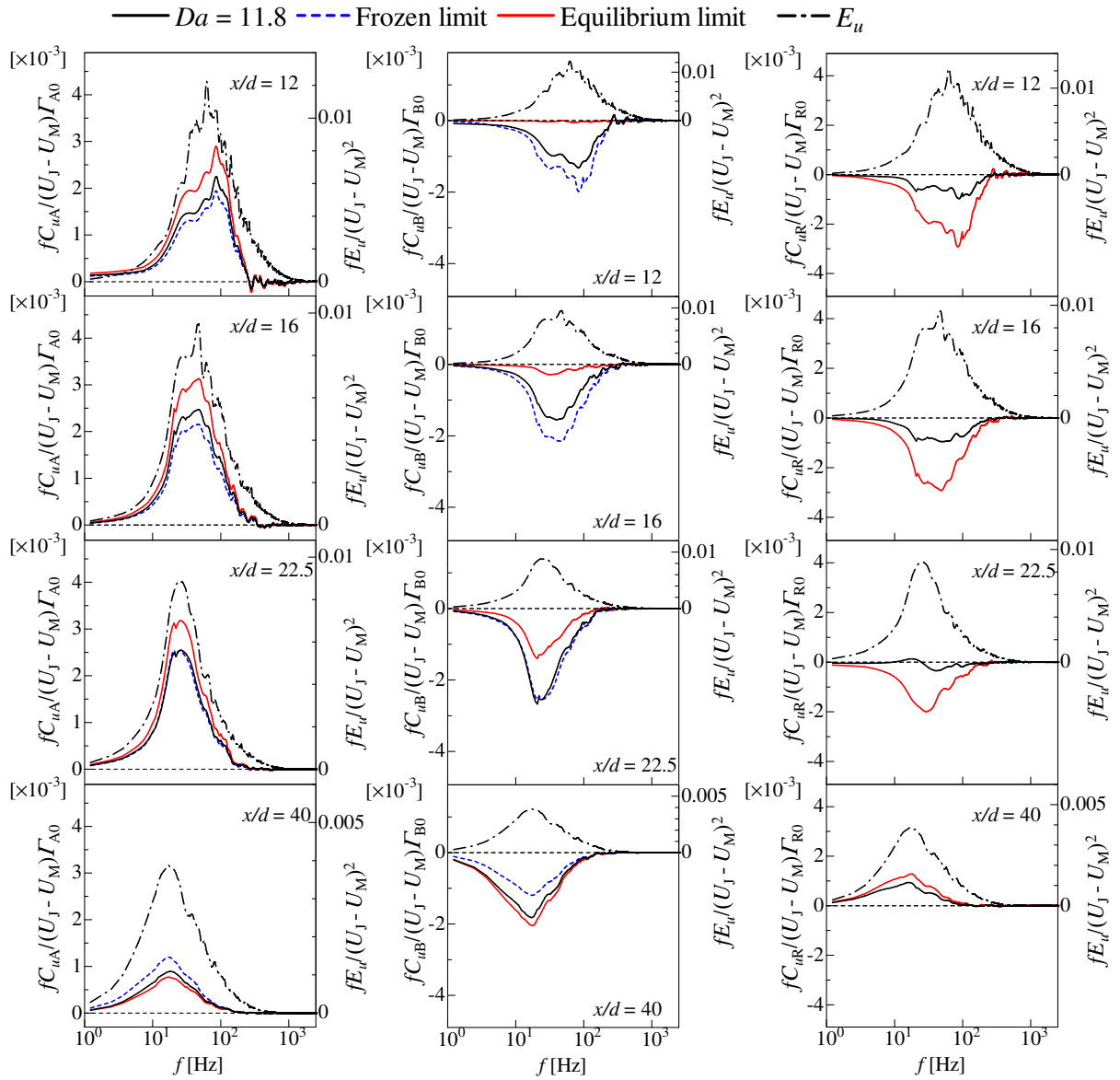


図 2.31 反応性物質濃度変動と流れ方向速度変動のコスペクトル (噴流中心上での下流方向変化)

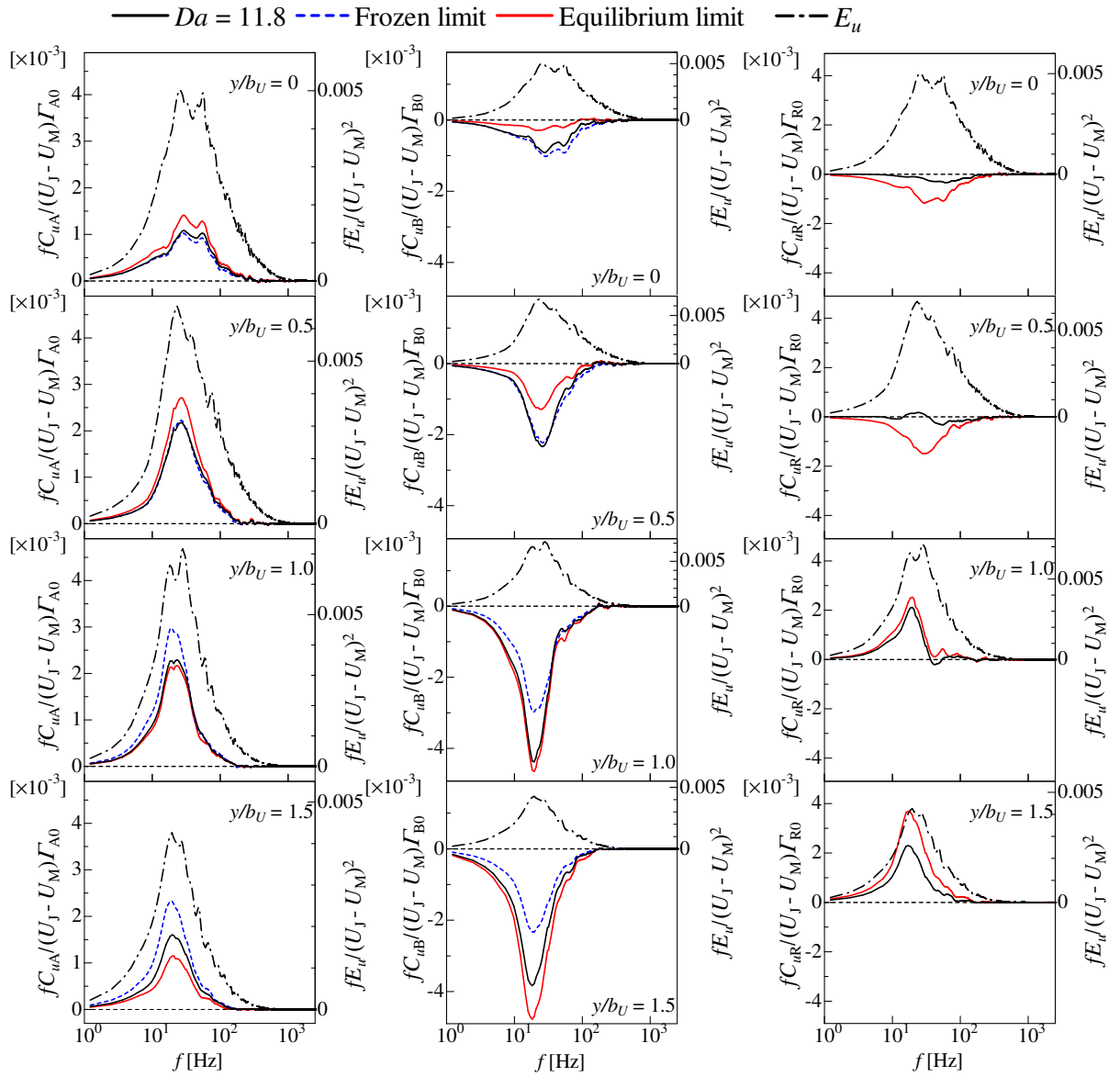


図 2.32 反応性物質濃度変動と流れ方向速度変動のコスペクトル ($x/d = 20$ における y 方向変化)

2.4.5 反応性物質濃度に対するこう配拡散モデル

こう配拡散モデル

流れ場や濃度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方法が多く用いられている. この計算手法は DNS や Large Eddy Simulation と比較して計算負荷が小さいという利点を持つ. 化学反応を伴う流れ場にこの手法を用いる場合, Reynolds 平均した濃度の輸送方程式中に現れる乱流流束項と平均反応速度項に対するモデル^[30,31]が必要となる. このうち, 平均反応速度項に対するモデルについては, 混合度が化学反応による影響を受けないと仮定する Toor の仮説を用いたモデル^[22] や 3-Environmental model^[93] など様々なモデル^{[23][94]} などが提案されている. Komori ら^[83] は過去に濃度相関項に対して提案されたモデルによる予測値を実験による測定結果と比較し評価している. また, Chorny ら^[79] は液相の拘束噴流中で生じる化学反応に対して濃度計測を行い, 過去に提案された平均反応速度に対するモデルについて検証をしている. このように平均反応速度に関連したモデルについて実験により検証した研究がいくつか存在している. これに対して, 化学反応を伴う流れ場における乱流流束に対するモデルについての検証はこれまでにほとんどなされていない.

乱流流束に対する最も単純なモデルとしてこう配拡散モデル^[21] が広く用いられている. こう配拡散モデルでは乱流流束を以下のように与える.

$$\langle u_i \gamma_\alpha \rangle = -D_{t\alpha} \frac{\partial \langle \Gamma_\alpha \rangle}{\partial x_i} \quad (2.32)$$

ここで, u_i は変動速度, γ_α は物質 α の変動濃度, Γ_α は物質 α の濃度, $D_{t\alpha}$ は乱流拡散係数をそれぞれ表す. また, $\langle \rangle$ はアンサンブル平均を表す. 通常は, $D_{t\alpha}$ を直接与えるのではなく乱流 Schmidt 数 $Sc_{t\alpha}$ を用いて,

$$D_{t\alpha} = \frac{\nu_t}{Sc_{t\alpha}} \quad (2.33)$$

と表し, $Sc_{t\alpha}$ をパラメータとして与える. ここで, ν_t は渦動粘性係数であり, 速度場の乱流モデルから決定される. したがって, こう配拡散モデルを用いた化学反応を伴う乱流現象の予測において, 乱流拡散係数 $D_{t\alpha}$ とそれを決定する乱流 Schmidt 数 $Sc_{t\alpha}$ は非常に重要な役割を果たす.

乱流拡散係数や乱流 Schmidt 数を実験により測定するためには, 乱流中において反応性物質濃度と速度の同時測定が必要である. そのため, 化学反応を伴う乱流中で乱流拡散係数を実験的に測定した例は非常に少なく, 気相のスカラ混合層において Bilger ら^[69] により, 液相のスカラ混合層において Komori ら^[78] により測定が行われたのみである. また, こう配拡散モデルを用いた数値計算を行う場合, 乱流 Schmidt 数に対する化学反応の影響が計算結果に対して大きな影響を与えることが知られている^[18]. このように, 化

学反応を伴う乱流中の乱流拡散係数と乱流 Schmidt 数の計測例は僅かにあるが、その計測には反応性物質の濃度と速度の同時計測が必要となるため、反応性物質に対するこう配拡散モデルについては未だ詳細に調べられていない。しかし、反応性乱流拡散場であっても乱流流束に対してこう配拡散モデルを用いた数値計算が行われているのが現状である^[30,95]。ここでは、乱流拡散係数と乱流 Schmidt 数に及ぼす化学反応の影響を明らかにするため、乱流拡散係数および乱流 Schmidt 数の噴流中心軸上の分布を調査した。

乱流拡散係数

図 2.33 に反応性物質の平均濃度こう配 $\partial\langle\Gamma_\alpha\rangle/\partial x$ の噴流中心線上での分布を示す。図中には無反応極限と瞬間反応極限での値が比較のため示されている。図 2.33 において、縦軸は各物質の初期濃度あるいは代表濃度 $\Gamma_{\alpha 0}$ と噴流出口幅 d を用いて無次元化されている。図 2.33(a) より、 $\partial\langle\Gamma_A\rangle/\partial x$ は負の値をとり、その絶対値は反応により大きくなることわかる。噴流溶液に含まれている物質 A の平均濃度は下流に行くにつれて拡散により減少するだけでなく、反応により消費され減少する。そのため、 $\partial\langle\Gamma_A\rangle/\partial x$ の絶対値が無反応極限と比較して大きくなる。図 2.33(b) より、 $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ の分布は無反応極限とは大きく異なった分布となることがわかる。 $x/d < 12$ の噴流上流部では、下流に行くにつれて周囲流中に含まれる物質 B が噴流中心上に拡散し物質 B の平均濃度 $\langle\Gamma_B\rangle$ が増加するため $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ は正の値をとる。なお、無反応極限では $\langle\Gamma_A^0\rangle/\Gamma_{A0} + \langle\Gamma_B^0\rangle/\Gamma_{B0} = 1$ なので、 $\partial(\langle\Gamma_A^0\rangle/\Gamma_{A0})/\partial x = -\partial(\langle\Gamma_B^0\rangle/\Gamma_{B0})/\partial x$ となる。 $12 \leq x/d \leq 27.5$ の範囲では、反応による $\langle\Gamma_B\rangle$ の減少が拡散による $\langle\Gamma_B\rangle$ の増加を上回り下流に行くにつれて $\langle\Gamma_B\rangle$ が減少するため、 $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ は負の値をとる。さらに下流では反応速度が小さくなるため、噴流上流部と同じように $\langle\Gamma_B\rangle$ は下流に行くにつれて増加し、 $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ は正の値をとる。図 2.33(c) より、 $\partial\langle\Gamma_R\rangle/\partial x$ は反応速度が大きい噴流上流部では大きく、噴流下流域に行くにつれて小さくなることわかる。また、瞬間反応極限の場合、噴流下流域で $\langle\Gamma_R^\infty\rangle/\partial x$ は負の値をとる。これは、下流域では噴流中に含ませた反応物質 A の濃度が小さいため反応による物質 R の生成量が少なくなり、その結果、拡散による物質 R の濃度の減少量が反応による増加量を上回ることによって生じている。

図 2.34 に式 (2.32) より求めた反応性物質 α の乱流拡散係数 $D_{t\alpha}$ の噴流中心線上での分布を示す。また、図 2.35 に図 2.34(b), (c) の拡大図を示す。各図中には無反応極限と瞬間反応極限から求められた乱流拡散係数が比較のため示されている。図 2.34, 2.35 において、 $D_{t\alpha}$ は噴流出口幅 d と噴流出口での周囲流との速度差 $(U_J - U_M)$ で無次元化されている。図 2.34(a) より、 D_{tA} は無反応極限と比べて小さい値をとることがわかる。また、図 2.33(b), 2.34(b) より、 $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ が正の領域で $D_{tB} > 0$ となるが、 $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x$ が負の領域では $D_{tB} < 0$ となる逆こう配拡散現象がみられる。また、噴流中心軸上で $\partial\langle\Gamma_B\rangle/\partial x = 0$

となる位置が存在するため, D_{tB} は噴流中心軸上で不連続な分布となる. 無反応極限では $\partial(\langle \Gamma_A^0 \rangle / \Gamma_{A0}) / \partial x = -\partial(\langle \Gamma_B^0 \rangle / \Gamma_{A0}) / \partial x$, $\langle u\gamma_A^0 \rangle / \Gamma_{A0} = -\langle u\gamma_B^0 \rangle / \Gamma_{B0}$ となるため, 無反応極限での物質 A, B の乱流拡散係数は等しくなる. このことは図 2.34(a), 2.35(a) から確認できる. 図 2.34(c), 2.35(b) より, D_{tR} は $x/d \leq 22.5$ の噴流上流部では正の値を取り, $22.5 < x/d$ の下流域では負の値をとることがわかる. 図 2.33(c) に示されているように, $Da = 11.8$ の場合, 計測範囲においては常に $\partial\langle \Gamma_R \rangle / \partial x > 0$ なので, この符号の変化は, $\langle u\gamma_R \rangle$ の符号の変化と対応している. また, 瞬間反応極限では, D_{tR} は噴流中心軸上の $\partial\langle \Gamma_R \rangle / \partial x = 0$ となる位置で不連続な分布となる.

Komori ら^[78]により液相のスカラ混合層において測定された反応物質の乱流拡散係数は常に無反応物質の乱流拡散係数よりも大きい値となっている. 一方, Bilger ら^[69]による気相のスカラ混合層に対する実験では, 反応物質の濃度が大きい位置ではその物質の乱流拡散係数が反応により大きくなるが, 濃度が小さい位置では乱流拡散係数が反応により小さくなっている. また, Komori ら^[78]と Bilger ら^[69]の実験では乱流拡散係数は常に正の値となっており, 逆こう配拡散現象はみられなかった. これに対して, 本研究では周囲流中に含まれた反応物質 B に対して逆こう配拡散現象がみられた. また, 乱流拡散係数に及ぼす反応の影響も本研究結果と過去の研究結果^{[69][78]}とは大きく異なる. これらの計測結果から, 化学反応が乱流拡散係数に対して与える影響は流れ場や分子 Schmidt 数にも依存することが示唆される.

乱流 Schmidt 数

渦粘性モデル^[21]では Reynolds 応力を以下の式で表す.

$$-\langle u_i u_j \rangle = \nu_t \left(\frac{\partial \langle U_i \rangle}{\partial x_j} + \frac{\partial \langle U_j \rangle}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \delta_{ij} k_t. \quad (2.34)$$

ここで, $k_t = \langle u_k u_k \rangle / 2$ は乱流エネルギー, δ_{ij} はクロネッカのデルタである. 二次元噴流に対して行われた実験により, 間欠性が現れる噴流外縁付近を除いた領域で渦動粘性係数が噴流広がり方向位置によらずほぼ一定となることが確認されている^[96]. 二次元噴流の自己保存領域において, 渦動粘性係数が噴流広がり方向に変化しないことと, 平均速度と Reynolds 応力の分布に自己相似性が成り立つことを仮定すると, ν_t が次式により表されることが導かれる^[97].

$$\nu_t(x, y) = [\ln(1 + \sqrt{2})^2]^{-2} \frac{db_U}{dx} \langle U \rangle_C b_U \quad (2.35)$$

ここで, $\langle U \rangle_C$ は噴流中心軸上での流れ方向平均速度, b_U は流れ方向平均速度差 ($\langle U \rangle - U_M$) の y 方向分布の半値幅である. 自己保存領域で式 (2.35) を用いて求めた渦動粘性係数 ν_t の噴流中心軸上における分布を図 2.36 に示す. 図 2.36 において, ν_t は噴流出口幅 d と噴

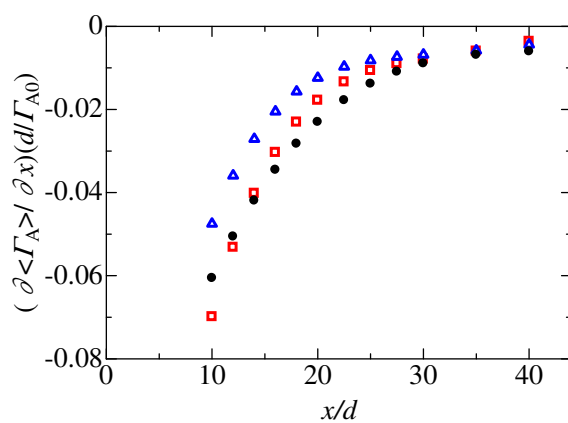
流出口での周囲流との速度差 ($U_J - U_M$) で無次元化されている．二次元噴流の自己保存領域で $\langle U \rangle_C \propto x^{-1/2}$, $b_U \propto x$ となるため，式 (2.35) より $\nu_t \propto x^{1/2}$ となり， ν_t は下流に行くにつれて増加する．

図 2.37 に式 (2.33) から求めた乱流 Schmidt 数 $Sc_{t\alpha}$ の噴流中心軸上における分布を示す．また，図中には無反応極限と瞬間反応極限から求められた乱流 Schmidt 数が比較のため示されている．図 2.37(a) より，反応物質 A の場合， Sc_{tA} は反応がない場合と比べて大きな値をとることがわかる．一方，図 2.37(b) に示されているように，反応物質 B の場合， Sc_{tB} は無反応極限での値と比べて小さい値をとる． $12 \leq x/d \leq 27.5$ の範囲では $D_{tB} < 0$ となるため， Sc_{tB} も同様に負の値をとる．また，噴流下流域において Sc_{tB} は無反応極限との差が小さくなる．図 2.37(c) より， Sc_{tR} は正と負の値の両方を取り得ることがわかる．この Sc_{tR} の符号の変化は， $\partial \langle \Gamma_R \rangle / \partial x$ の符号の変化によるものと $\langle u \gamma_R \rangle$ の符号の変化によるものに分けられる． Sc_{tR} の分布は $\langle u \gamma_R \rangle$ の符号が変化する位置で不連続となる．また， $x/d < 25$ の領域において $Da = 11.8$ の Sc_{tR} は瞬間反応極限での値と比較して大きくなっており，この位置で生成物質の乱流 Schmidt 数は反応速度が大きい場合に小さくなると考えられる．噴流下流域では Sc_{tR} は 0 に近い値となっており，この傾向は瞬間反応極限でも確認できる．

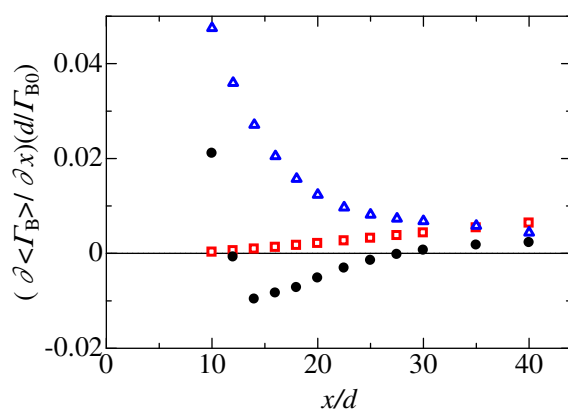
以上の結果より，噴流中の反応性物質の乱流 Schmidt 数 $Sc_{t\alpha}$ は無反応極限とも瞬間反応極限とも異なった値となることが明らかとなった．また，周囲流体に含ませた反応物質 B の乱流 Schmidt 数の化学反応による変化は噴流下流域では噴流下流に向うにつれて小さくなる傾向が見られた．噴流下流域では反応速度が非常に小さいため，周囲流体中に含ませた反応物質 B の濃度変化は主に物質の拡散によって生じる．そのため，噴流下流域において反応性物質 B の乱流 Schmidt 数は無反応極限と近い値となると考えられる．一方，噴流上流部では反応速度が大きく，化学反応が反応性物質 B の濃度変化に大きく影響するため，反応性物質の乱流 Schmidt 数は無反応極限の場合と大きく異なる分布となると考えられる．

$Da = 11.8$ の反応に対して得られた乱流 Schmidt 数の値と瞬間反応極限での値との間に差が生じていることから，化学反応が乱流 Schmidt 数に及ぼす影響は反応速度によっても変化することがわかる．一般的に，式 (2.32) の乱流 Schmidt 数を流れ場の位置によらず一定としたこう配拡散モデルが用いられている．しかし，化学反応を伴う流れ場での乱流 Schmidt 数は，反応速度が大きい噴流上流部では逆こう配拡散現象が見られるなど，反応を伴わない場合と大きく異なる．そのため，反応性乱流に対して乱流 Schmidt 数を用いたこう配拡散モデルを適用する場合，化学反応の影響を考慮して乱流 Schmidt 数を与える必要がある．なお，前述のように化学反応を伴う乱流場で反応性物質の乱流 Schmidt 数の計測を行った研究例は過去になく，本研究により初めてその計測が行われたことを付記する．

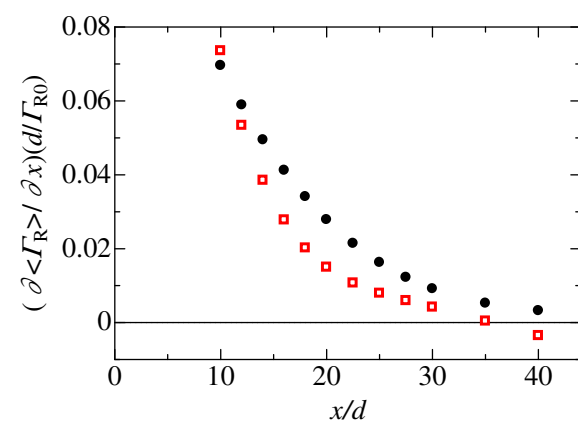
- $Da = 11.8$ \blacktriangle Frozen limit \square Equilibrium limit



(a) 反応物質A



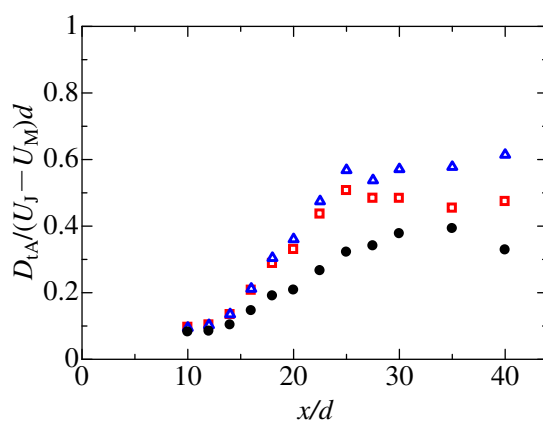
(b) 反応物質B



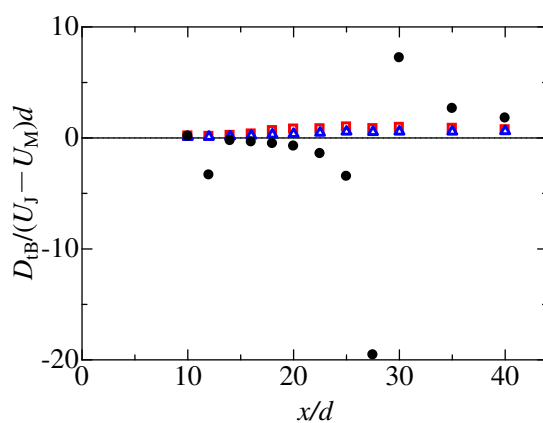
(c) 生成物質R

図 2.33 反応性物質の平均濃度こう配の噴流中心上での分布

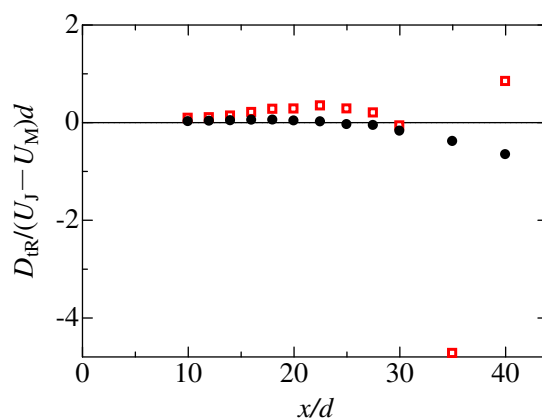
- $Da = 11.8$ \blacktriangle Frozen limit \blacksquare Equilibrium limit



(a) 反応物質A



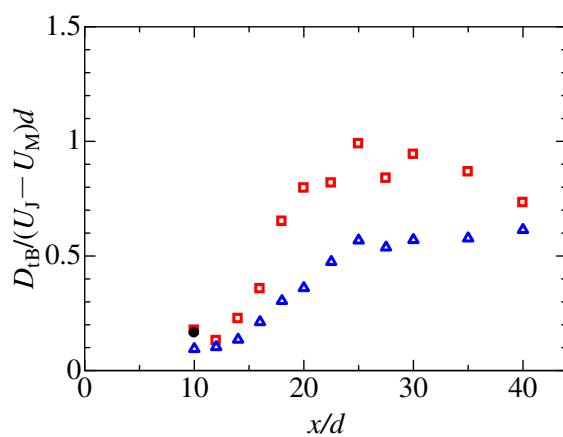
(b) 反応物質B



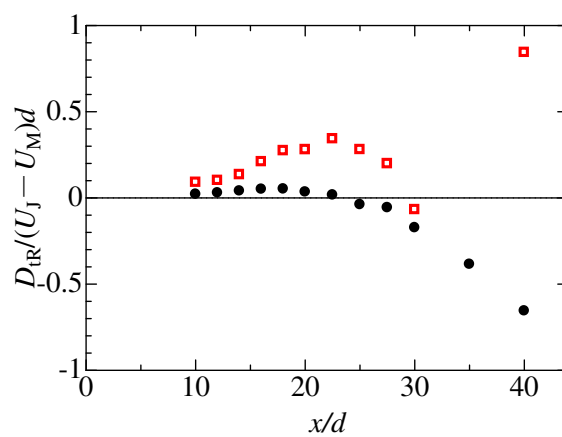
(c) 生成物質R

図 2.34 反応性物質の乱流拡散係数の噴流中心上での分布

- $Da = 11.8$ \blacktriangle Frozen limit \blacksquare Equilibrium limit



(a) 反応物質B



(b) 生成物質R

図 2.35 反応性物質 B, R の乱流拡散係数の噴流中心上での分布

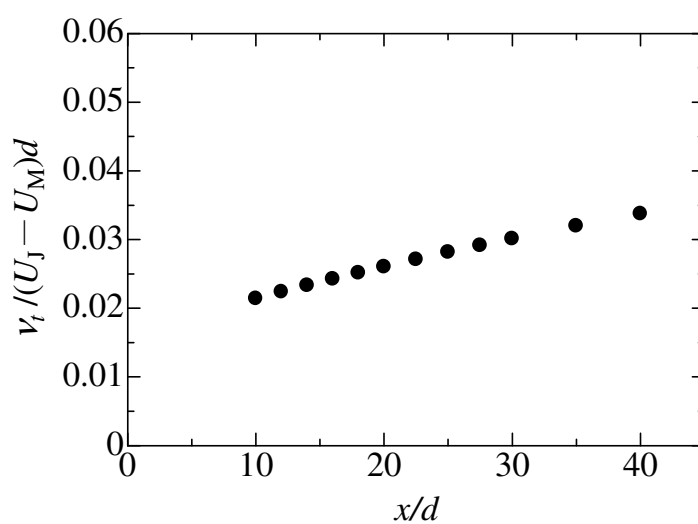
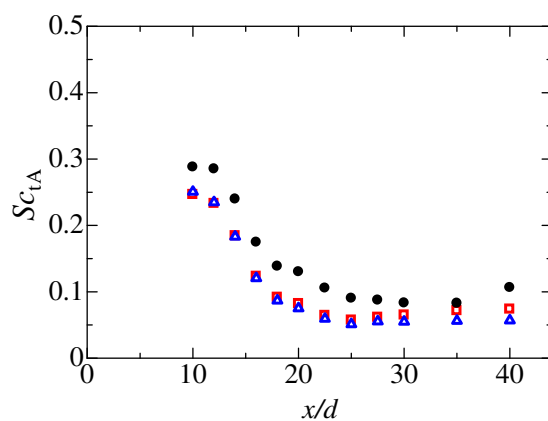
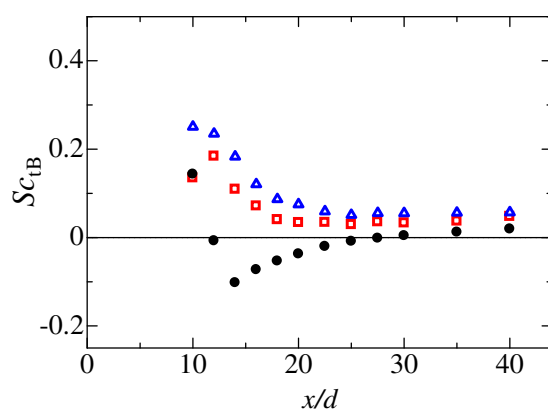


図 2.36 渦動粘性係数の噴流中心上での分布

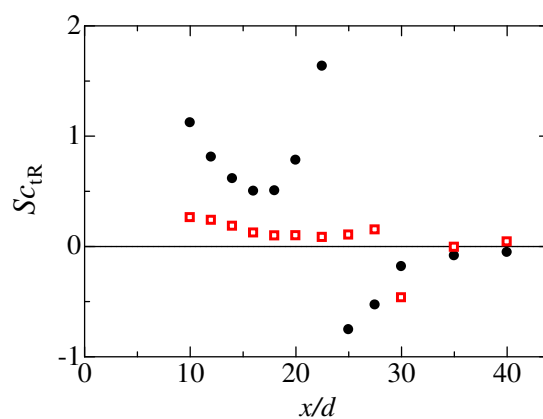
- $Da = 11.8$ \blacktriangle Frozen limit \blacksquare Equilibrium limit



(a) 反応物質A



(b) 反応物質B



(c) 生成物質R

図 2.37 反応性物質の乱流 Schmidt 数の噴流中心上での分布

2.5 反応速度に関する統計量

2.5.1 平均反応速度と濃度相関項について

乱流中の化学反応を特徴づける重要な物理量の一つとして化学反応速度が挙げられる．本研究で実験対象とした二次の化学反応 $A + B \rightarrow R$ に対して，瞬時反応速度 S_R （ここでは反応による生成物質濃度の時間変化率を考える）は反応速度定数 k と反応物質の瞬時濃度 Γ_A, Γ_B を用いて以下のように表される．

$$S_R = k\Gamma_A\Gamma_B \quad (2.36)$$

本節では，上記のように生成物質の生成率（時間変化率）を反応速度と呼ぶ．流れ場・物質拡散場を予測する手法の一つとして Reynolds 平均した流れ場・スカラ量の支配方程式を解く手法 (RANS) がある．この手法を化学反応を伴う流れ場に適用した場合，反応速度の平均値 $\langle S_R \rangle$ をモデル化する必要がある．ここで， $\langle * \rangle$ はアンサンブル平均を表す．物質 α の濃度変動を $\gamma_\alpha \equiv \Gamma_\alpha - \langle \Gamma_\alpha \rangle$ と定義すると， $\langle S_R \rangle$ を以下のように平均濃度積（右辺第一項）と濃度相関項（右辺第二項）で表すことができる．

$$\langle S_R \rangle = k\langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle + k\langle \gamma_A \gamma_B \rangle \quad (2.37)$$

RANS により化学反応を伴う流れ場を計算する場合， $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ をモデル化することで平均反応速度を求める． $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ は化学反応速度や流れ場によって大きく変化する．そのため， $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ のモデルの開発や，既存のモデルの評価のためには，様々な化学反応や流れ場に対して $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ を計測することが望まれる．ここでは，平均反応速度や濃度相関項 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ について調査した結果について述べる．また，反応物質の濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ に対して化学反応が与える影響についても詳細に調査した．さらに， $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ に対して過去に提案されたモデルによる予測値を実験値と比較し，モデルの有効性について評価した．

2.5.2 平均反応速度

$(U_J - U_M), d, \Gamma_{R0}$ で無次元化された生成物質の生成速度は $\hat{S}_R = Da\hat{\Gamma}_A\hat{\Gamma}_B$ により表される．ここで， $\hat{\Gamma}_\alpha \equiv \Gamma_\alpha/\Gamma_{\alpha 0}$ である．式 (2.37) より， $\langle \hat{S}_R \rangle$ は次のように表すことができる．

$$\langle \hat{S}_R \rangle = Da\langle \hat{\Gamma}_A \rangle \langle \hat{\Gamma}_B \rangle + Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle \quad (2.38)$$

ここで， $\hat{\gamma}_\alpha \equiv \gamma_\alpha/\Gamma_{\alpha 0}$ ($\alpha = A, B, R$) である．

図 2.38 に平均反応速度 $\langle \hat{S}_R \rangle$ の噴流中心上における下流方向変化を示す．図 2.38 には平均濃度積 $Da\langle \hat{\Gamma}_A \rangle \langle \hat{\Gamma}_B \rangle$ と濃度相関項 $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の分布がともに示されている．噴流中心上

において $\langle \hat{S}_R \rangle$ は $x/d = 10$ で極大値をとる．また，下流に行くにつれて $Da\langle \hat{\Gamma}_A \rangle \langle \hat{\Gamma}_B \rangle$ が減少していることから，反応が進行し反応物質の濃度が小さくなることで $\langle \hat{S}_R \rangle$ は $x/d = 10$ より下流に行くにつれて減少することがわかる．図 2.38 に示されているように，噴流中心上において濃度相関項 $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は負の値をとる．そして，噴流中心上の $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は $x/d = 8$ で極小値をとり，下流に行くにつれて大きさが小さくなっていく．

図 2.39 に $\langle \hat{S}_R \rangle$, $Da\langle \hat{\Gamma}_A \rangle \langle \hat{\Gamma}_B \rangle$, $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の $x/d = 10, 20, 40$ における y 方向分布を示す．図中の横軸は平均混合分率の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている．図 2.39(a), (b) より， $x/d = 10, 20$ では $|y/b_\xi| < 0.5$ の噴流中心付近で $\langle \hat{S}_R \rangle$ は y 方向位置によらずほぼ一定となることがわかる．一方，図 2.39(c) に示した $x/d = 40$ では， $\langle \hat{S}_R \rangle$ は噴流中心で極大値をもつ分布となった．また， $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の y 方向分布は， $x/d = 10, 20$ では $|y/b_\xi| \approx 1$ で極小値をもつが， $x/d = 40$ では噴流中心付近でほぼ一定となることがわかる．図 2.38, 2.39 より， $x/d \approx 10$ の噴流中心付近で平均反応速度が大きくなっており，この領域で反応が活発に進行していることがわかる．また，下流に行くほど濃度相関項 $Da\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の平均反応速度に対する寄与が大きくなる．

2.5.3 反応物質の濃度相関

反応速度は混合度 $I_S \equiv \langle \gamma_A \gamma_B \rangle / (\langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle)$ を用いて次式のように表すことができる．

$$\langle S_R \rangle = k \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle (1 + I_S) \quad (2.39)$$

混合度 I_S (Intensity of Segregation) は二つの反応物質 A, B の分離 (Segregation) の状態 (混合の程度) を表す．二つの物質が完全に混合している場合，濃度変動が 0 となり $I_S = 0$ となる．混合度は $I_S = (\langle \Gamma_A \Gamma_B \rangle - \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle) / (\langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle)$ と表すことができる．二つの物質が全く混合していない (完全に分離されている) 場合には，物質 A, B の瞬時の濃度のいずれか一方あるいは両方が 0 となり $\langle \Gamma_A \Gamma_B \rangle = 0$ となるため， $I_S = -1$ となる．図 2.40 に混合度 $I_{\text{mathrm{S}}$ の噴流中心上における下流方向変化を示す．瞬間反応極限の場合，式 (2.20) より反応物質 A, B の瞬時の濃度のいずれか一方あるいは両方が 0 となるため， $I_S = -1$ となる．無反応の場合，噴流下流域に行くにつれて混合が進行し I_S は 0 に近づいていくが，化学反応による物質の生成によって反応物質 A と B の混合にむらが生じるため，化学反応により I_S は負に大きくなることが図よりわかる．本実験と同様の条件で計測された混合度についてさらに詳細な考察が既報にて行われている^[81]．このように混合度は化学反応によって大きく変化するため，濃度相関項に対するモデルでは化学反応による影響を考慮することが重要となる．以下では濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の化学反応による変化について考察する．

本実験で扱った化学反応よりも一般的な次式で表される化学反応を考える．



本実験で扱った化学反応は $n_B = n_R = 1$ とした式 (2.40) に対応している．式 (2.40) の化学反応に保存スカラー理論を適用することで，反応性物質 A, B, R の瞬時濃度と混合分率の間に次の関係が成り立つことが導かれる．

$$\Gamma_A = \xi \Gamma_{A0} - \frac{1}{n_R} \Gamma_R \quad (2.41)$$

$$\Gamma_B = (1 - \xi) \Gamma_{B0} - \frac{n_B}{n_R} \Gamma_R \quad (2.42)$$

式 (2.41), (2.42) より，反応物質 A, B の濃度変動 γ_A, γ_B は混合分率の変動 $\xi' \equiv \xi - \langle \xi \rangle$ と生成物質の濃度変動 γ_R を用いて次のように表すことができる．

$$\gamma_A = \xi' \Gamma_{A0} - \frac{1}{n_R} \gamma_R \quad (2.43)$$

$$\gamma_B = -\xi' \Gamma_{B0} - \frac{n_B}{n_R} \gamma_R \quad (2.44)$$

したがって，濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ は以下のように書ける．

$$\langle \gamma_A \gamma_B \rangle = \left\langle \left(\xi' \Gamma_{A0} - \frac{1}{n_R} \gamma_R \right) \left(-\xi' \Gamma_{B0} - \frac{n_B}{n_R} \gamma_R \right) \right\rangle \quad (2.45)$$

$$= -\Gamma_{A0} \Gamma_{B0} \langle \xi'^2 \rangle + \left(\frac{\Gamma_{B0} - n_B \Gamma_{A0}}{n_R} \right) \langle \xi' \gamma_R \rangle + \frac{n_B}{n_R^2} \langle \gamma_R^2 \rangle \quad (2.46)$$

無反応の場合，生成物質の濃度変動 γ_R が 0 となるので， $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle = -\Gamma_{A0} \Gamma_{B0} \langle \xi'^2 \rangle$ である．したがって，式 (2.46) の第一項は無反応の場合の濃度相関を表し，第二項，第三項は反応による濃度相関の変化を表すことがわかる．また，式 (2.40) の化学反応において，化学量論となる反応物質の濃度比は $\Gamma_A / \Gamma_B = 1/n_B$ である．反応物質 A, B の初期濃度比がこの関係を満たし， $\Gamma_{A0} / \Gamma_{B0} = 1/n_B$ となる場合，式 (2.46) の第二項は常に 0 となる．したがって，この項は反応物質の初期濃度比と化学量論となる濃度比の違いによって生じる濃度相関の変化と考えられる．

式 (2.46) を Γ_{A0}, Γ_{B0} で無次元化することで，無次元化された濃度相関 $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ が次式のように得られる．

$$\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle = -\langle \xi'^2 \rangle + (2\xi_S - 1) \langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle + \xi_S (1 - \xi_S) \langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle \quad (2.47)$$

式 (2.40) の化学反応に対して，化学量論 ($\Gamma_A / \Gamma_B = 1/n_B$) となる混合分率 ξ_S と化学種の質量保存の式 (2.16) を満たすように定義される Γ_{R0} は以下ようになる．

$$\xi_S = \frac{\Gamma_{B0}}{n_B \Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (2.48)$$

$$\Gamma_{R0} = \frac{n_R \Gamma_{A0} \Gamma_{B0}}{n_B \Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (2.49)$$

図 2.41(a) に $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ と式 (2.47) の右辺各項の噴流中心上における分布を示す．また，図 2.41(b) に瞬間反応極限 (Equilibrium Limit, $Da \rightarrow \infty$) の濃度に対して得られた結果を示す．図中の $-\langle \xi'^2 \rangle$ は無反応の場合の濃度相関 $\langle \hat{\gamma}_A^0 \hat{\gamma}_B^0 \rangle$ を表している．図 2.41(a), (b) より，噴流中心上において $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は化学反応によって大きさが小さくなることがわかる．また，噴流中心上における化学反応による $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化は $Da = 11.8$ より瞬間反応極限に対して大きくなっており， Da が大きいほど化学反応による $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化 (式 (2.47) の右辺第二項と第三項による変化) が大きくなると考えられる．噴流中心上の噴流上流域 ($x/d < 10$) においては，式 (2.20b) の Γ_B^∞ が常に 0 に近い値となることで濃度変動 γ_B^∞ の大きさも同様に小さい値となる．そのため，噴流中心上の噴流上流域では $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle \approx 0$ となる．

図 2.42 に $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ と式 (2.47) の右辺各項の $x/d = 10, 20, 40$ における y 方向分布を示す．また，図 2.43 に瞬間反応極限の濃度に対して得られた結果を示す． $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の化学反応による変化を詳細に調べるために，図 2.42(a) に示した $x/d = 10$ における $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の y 方向分布を図 2.44 に拡大して示す．図 2.42(a) および図 2.44 より， $x/d = 10$ の $|y/b_\xi| > 1$ では化学反応によって $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ が負に大きくなることがわかる．また，図 2.42 より， $x/d = 10$ の $|y/b_\xi| > 1$ の位置を除くと， $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は化学反応によって大きさが小さくなることがわかる．一方，図 2.43 に示した瞬間反応極限での濃度相関 $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ は位置によらず化学反応によって大きさが小さくなった．図 2.42(c)，図 2.43(c) に示した $x/d = 40$ の $y/b_\xi = 1$ 付近では噴流に含まれた反応物質 A の多くが反応により消費されており， $\hat{\gamma}_A \approx 0$ ， $\hat{\gamma}_A^\infty \approx 0$ となるため， $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle \approx 0$ ， $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle \approx 0$ となる．そのため，噴流下流側の $x/d = 40$ における $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ ， $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ の y 方向分布は噴流中心で極小値をとる分布となった．一方，噴流上流域における $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ ， $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ の y 方向分布は噴流中心から外れた位置で極小値をもつ分布となった．

図 2.41(a)，図 2.42 より， $Da = 11.8$ の場合，式 (2.47) の第二項 $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle$ は噴流上流域の噴流中心付近 (図 2.41(a) の $x/d < 20$ ，図 2.42(a) の $x/d = 10$ の $|y/b_\xi| < 0.7$) で正の値，噴流下流域 (図 2.41，図 2.42 の $x/d > 20$) や噴流外縁付近 (図 2.42(a) $x/d = 10$ の $|y/b_\xi| > 0.7$) で負の値となることがわかる．また，図 2.41(b)，図 2.43 に示した瞬間反応極限でも同様に， $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \hat{\gamma}_R^\infty \rangle$ は噴流上流域の噴流中心付近で正の値，噴流下流域や噴流外縁付近で負の値となる．式 (2.47) の第二項 $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle$ は正・負のどちらにもなりうるが，第三項 $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ は常に正の値となる．したがって，第三項は $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の大きさを小さくする効果をもつ．また，図 2.42，図 2.43 より， $Da = 11.8$ での $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ と比べて瞬間反応極限での $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^{\infty 2} \rangle$ のほうが大きくなっており， Da が大きくなるにつれて $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ による $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化が大きくなると考えられる．

本実験条件においては $(2\xi_S - 1) < 0$ であるため，上述した $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle$ の分布は，噴流上流域の噴流中心付近で $\langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle < 0$ ，噴流下流域や噴流外縁付近で $\langle \xi' \hat{\gamma}_R \rangle > 0$ となることに対応している．噴流上流域の噴流中心付近では反応物質 A と比較して反応物質 B が不足

しており, Γ_B が増加するとき反応速度が大きくなり生成物質濃度 Γ_R が増加 ($\gamma_R > 0$) する. Γ_B の増加は混合分率 ξ の減少 ($\xi' < 0$) と対応しているため, 噴流上流域では $\langle \xi' \gamma_R \rangle < 0$ となる. 一方, 噴流外縁付近や噴流下流域では反応物質 B と比較して反応物質 A が不足しており, Γ_R の増加 ($\gamma_R > 0$) は ξ の増加 ($\xi' > 0$) に関連付けられる. その結果, 噴流外縁付近や噴流下流域では $\langle \xi' \gamma_R \rangle > 0$ となる. また, $(2\xi_S - 1)$ の符号は ξ_S によって変化する. したがって, 式 (2.47) の第二項 $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \gamma_R \rangle$ の $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ に対する寄与は位置や化学量論となる混合分率 ξ_S によって大きく変化すると考えられる. また, 同様のことが瞬間反応極限に対しても成り立つ.

$x/d = 10$ の $|y/b_\xi| > 1$ (図 2.42(a), 図 2.44) では化学反応によって $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ が負に大きくなった. これは, 反応物質の初期濃度比と化学量論となる濃度比の違いによる $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化を表す式 (2.47) の第二項 $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \gamma_R \rangle$ による $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化が第三項 $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ による $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の変化を上回ることによって生じている. $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ は常に正の値となり, $Da = 11.8$ の結果 (図 2.42) と $Da \rightarrow \infty$ に対応する瞬間反応極限の結果 (図 2.43) との比較から, $\xi_S(1 - \xi_S)\langle \hat{\gamma}_R^2 \rangle$ は Da の増加とともに大きくなるのがわかる. そのため, 反応物質の流入条件が $\xi_S = 0.5$ を満たし第二項 $(2\xi_S - 1)\langle \xi' \gamma_R \rangle = 0$ となると, $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は無反応極限での値 $\langle \hat{\gamma}_A^0 \hat{\gamma}_B^0 \rangle = -\langle \xi'^2 \rangle$ と瞬間反応極限での値 $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ の間に位置し, $\langle \hat{\gamma}_A^0 \hat{\gamma}_B^0 \rangle < \langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle < \langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ となる. そして, この関係を用いてモデルによる $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の予測値を修正することが可能となる^[19].

de Bruyn Kops ら^[19] のスカラ混合層で生じる化学反応の DNS おいても, $\xi_S \neq 0.5$ の場合, 化学反応によって $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ が負に大きくなる傾向を示している. 本研究の場合, $\xi_S \neq 0.5$ であったとしても瞬間反応極限では $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は化学反応によって大きさが小さくなった. しかし, de Bruyn Kops らの DNS では, $\xi_S = 0.032, 0.09$ の場合, 瞬間反応極限の濃度から求めた $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ も反応によって負に大きくなる結果が得られている. この理由は式 (2.47) の第二項, 第三項の相対的寄与を考えることによってある程度推測することができる. 式 (2.47) の第二項, 第三項の係数である $(2\xi_S - 1)$, $\xi_S(1 - \xi_S)$ の ξ_S に対する変化を図 2.45 に示す. 図 2.45 のように $\xi_S = 0$ あるいは 1 に近づくにつれ, 式 (2.47) の第二項の影響が第三項と比較して大きくなるのがわかる. de Bruyn Kops らの DNS では ξ_S が小さいため式 (2.47) の第二項による濃度相関の変化が大きくなり, 瞬間反応極限での濃度相関項 $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ が反応によって負に大きくなる結果が得られたと考えられる. 一方, 本研究において, 瞬間反応極限で $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ が化学反応によってその大きさが小さくなった理由は, 本実験条件では $\xi_S = 0.333$ であり, 式 (2.47) の第三項の係数 $\xi_S(1 - \xi_S)$ の大きさが第二項の係数 $(2\xi_S - 1)$ と同程度となる (図 2.45 参照) ことで, 式 (2.47) の第二項だけではなく第三項も濃度相関の変化に対して大きく影響するためであると考えられる.

2.5.4 反応項に対するモデル

濃度相関項 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ に対するモデルは Plug Flow Reactor^[5] 中で生じる化学反応に対して Toor^[22], Patterson^[23], Dutta ら^[24] などによって提案されている．Plug Flow Reactor 内の流れ場・濃度場は統計的に一次元であるため，Plug Flow Reactor に対して提案された $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ に対するモデルをそのまま噴流などで生じる化学反応に用いることは難しい．Wang ら^[95] は Toor のモデルと Dutta らのモデルを多次元の場合に適用できるように拡張した．ここでは，Toor と Dutta らのモデルによる濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の予測値を実験値と比較することで，これらのモデルの有効性について検証した．

Toor のモデルでは混合度 $I_S \equiv \langle \gamma_A \gamma_B \rangle / (\langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle)$ が化学反応によって変化せず，無反応の場合の混合度 I_S^0 に等しいことを仮定する．これは Toor の仮説と呼ばれる．式 (2.19) を用いると I_S^0 は以下のように表される．

$$I_S^0 = \frac{\langle \gamma_A^0 \gamma_B^0 \rangle}{\langle \Gamma_A^0 \rangle \langle \Gamma_B^0 \rangle} = -\frac{\langle \xi'^2 \rangle}{\langle \xi \rangle (1 - \langle \xi \rangle)} \quad (2.50)$$

したがって， $I_S = I_S^0$ を仮定することで，Toor のモデルでの濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ が次式のようになれる．

$$\langle \gamma_A \gamma_B \rangle = -\frac{\langle \xi'^2 \rangle}{\langle \xi \rangle (1 - \langle \xi \rangle)} \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle \quad (2.51)$$

Dutta ら^[24] のモデルは 3 Environment モデル (3E モデル) と呼ばれる．3E モデルでは，流れ場が反応物質 A のみを含む流体，反応物質 B のみを含む流体，反応物質 A, B が共存する流体の 3 つの流体 (3 Environment) によって構成されたと考える．本実験で扱った化学反応に対して，3E モデルでの濃度相関 $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ は次式により表される．

$$\langle \gamma_A \gamma_B \rangle = I_S^0 (\langle \Gamma_A^0 \rangle \langle \Gamma_B \rangle + \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B^0 \rangle - \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle) \quad (2.52)$$

$$= -\frac{\langle \xi'^2 \rangle}{\langle \xi \rangle (1 - \langle \xi \rangle)} (\langle \Gamma_A^0 \rangle \langle \Gamma_B \rangle + \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B^0 \rangle - \langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle) \quad (2.53)$$

ここで， $\langle \Gamma_A^0 \rangle = \langle \xi \rangle \Gamma_{A0}$ ， $\langle \Gamma_B^0 \rangle = (1 - \langle \xi \rangle) \Gamma_{B0}$ である．したがって，式 (2.51), (2.53) を用いて $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ を計算するためには， $\langle \xi \rangle, \langle \xi'^2 \rangle$ の輸送方程式を解くなどの手法で $\langle \xi \rangle, \langle \xi'^2 \rangle$ を求める必要がある．以下では， $\langle \xi \rangle, \langle \xi'^2 \rangle$ の分布として実験値を用いることで，各モデルを用いて得られる化学反応による濃度相関の分布を実験結果と比較する．

図 2.46 に $x/d = 10, 20, 40$ における $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の y 方向分布を示す．また，図 2.47 に $x/d = 10, 20, 40$ における瞬間反応極限での濃度相関 $\langle \gamma_A^\infty \gamma_B^\infty \rangle$ の y 方向分布を示す．各図中には Toor のモデルと 3E モデルにより得られる濃度相関および無反応の場合の濃度相関 $\langle \gamma_A^0 \gamma_B^0 \rangle$ がともに示されている．図 2.46, 2.47 の縦軸は Γ_{A0} と Γ_{B0} で，横軸は平均混合分率の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている．

図 2.46, 2.47 に示した $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$, $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ を Toor のモデルと比較すると, Toor のモデルでは濃度相関の大きさを実際よりも小さく見積もることがわかる. 図 2.46(a) より 3E モデルにより得られる $x/d = 10$ での $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ の分布は実験値と非常に近いことがわかる. しかし, 3E モデルで得られた $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は無反応の場合と比較して常に大きさが小さくなっており, $x/d = 10$ の噴流外縁付近での反応により $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ が負に大きくなる変化を 3E モデルにより捉えることができていない. 図 2.46(b) の $x/d = 20$ では, 3E モデルにより得られた $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ は実験値と同様に噴流中心から外れた位置で極小値をとる分布となった. しかし, さらに下流の $x/d = 40$ (図 2.46(c), 図 2.47(c)) では, 3E モデルにより得られた $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ や $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ は実験値と異なり, 噴流中心から外れた位置で極小値をとる分布となった. また, 図 2.47(a), (b) に示した $x/d = 10, 20$ においても, 3E モデルにより得られた瞬間反応極限での $\langle \hat{\gamma}_A^\infty \hat{\gamma}_B^\infty \rangle$ と実験値との間には違いがみられる. このように, 化学反応による濃度相関の変化が小さい位置では, 3E モデルにより実験値に近い値が得られるが, 反応による濃度相関の変化が大きい位置では, 3E モデルと実験値の差が大きくなった.

以上のように, Toor のモデルや 3E モデルでは噴流中で生じる化学反応による濃度相関項の変化を正確に見積もることが難しいことがわかる. これらのモデルは Plug Flow Reactor 内の化学反応に対しては有効であるとされている^[24]. Wang ら^[95] は Toor のモデルや 3E モデルの問題点として, これらのモデルが化学反応による平均濃度こう配の変化を考慮していないことを挙げている. そして, Wang ら^[95] は平均濃度こう配の変化による影響を考慮した Toor のモデルや 3E モデルを考案し, 平均濃度こう配の変化による影響を考慮することにより濃度相関項の予測精度が向上することを示している. Wang らのモデルにより噴流中の濃度相関項を計算するためには, 各方向の平均速度, 濃度の乱流流束, 速度と濃度の三重相関の x - y 平面上の分布が必要となる. そのため, 本研究で計測している統計量からは Wang らのモデルを検証することはできないが, 本研究においても, Toor のモデルや 3E モデルによる予測値と実験値との不一致は平均濃度こう配の変化による影響を無視したことによるものである可能性が考えられる.

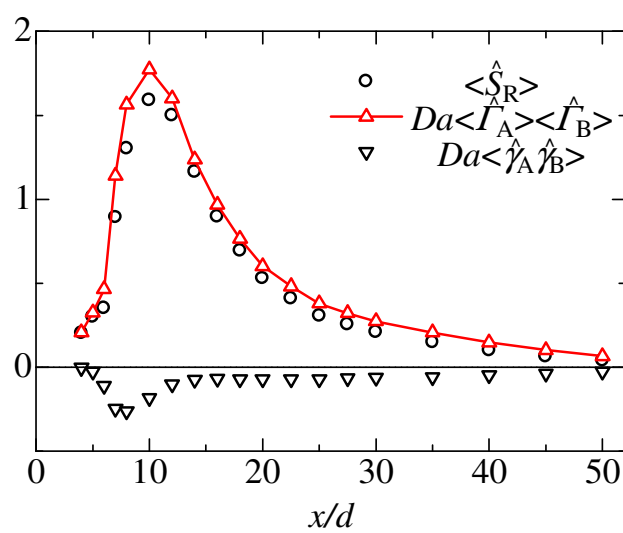
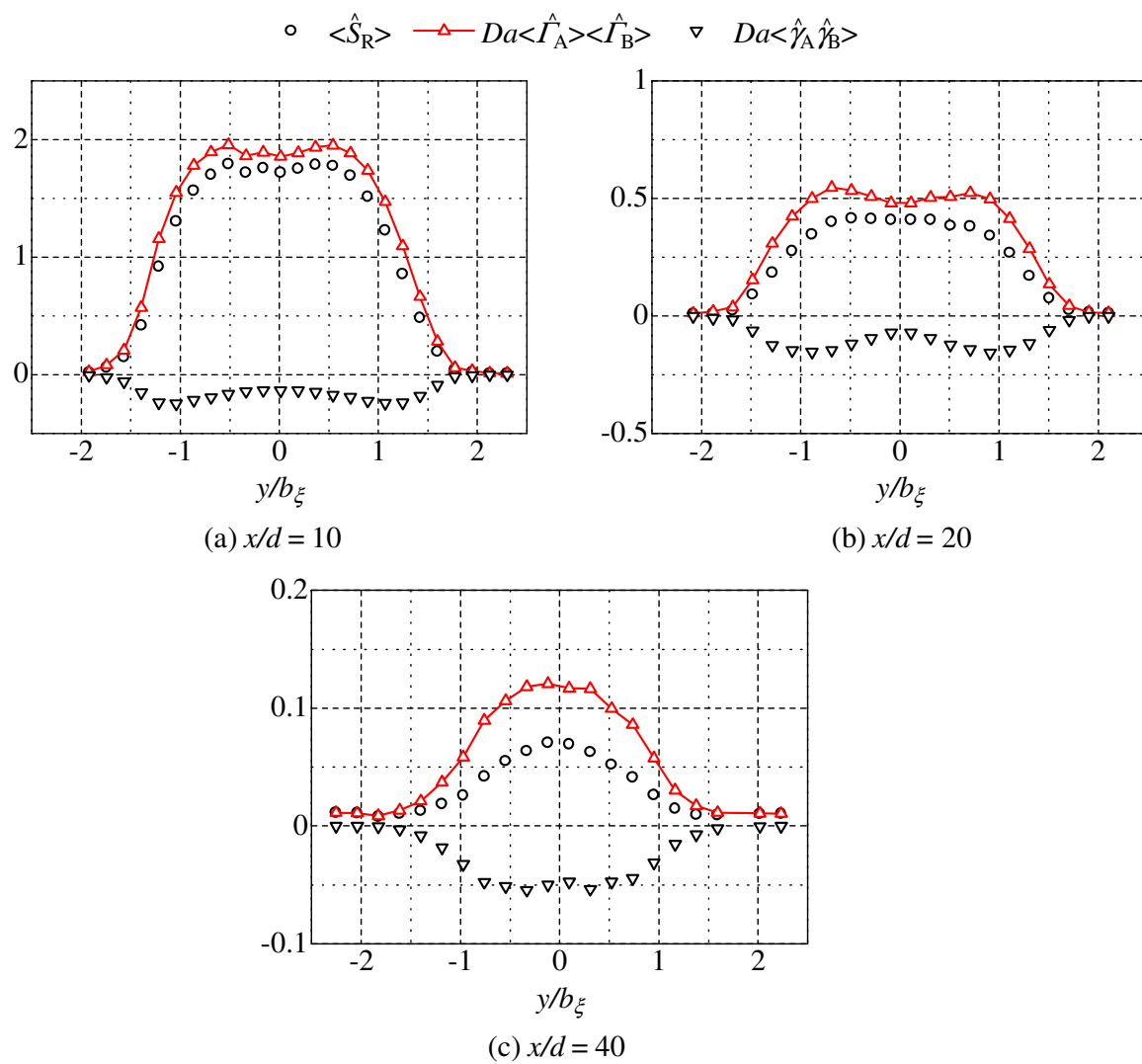


図 2.38 平均反応速度の噴流中心における分布


 図 2.39 平均反応速度の y 方向分布

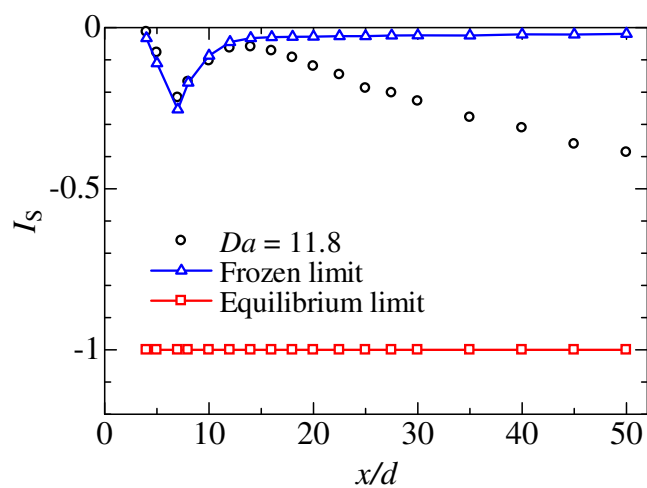


図 2.40 混合度の噴流中心における分布

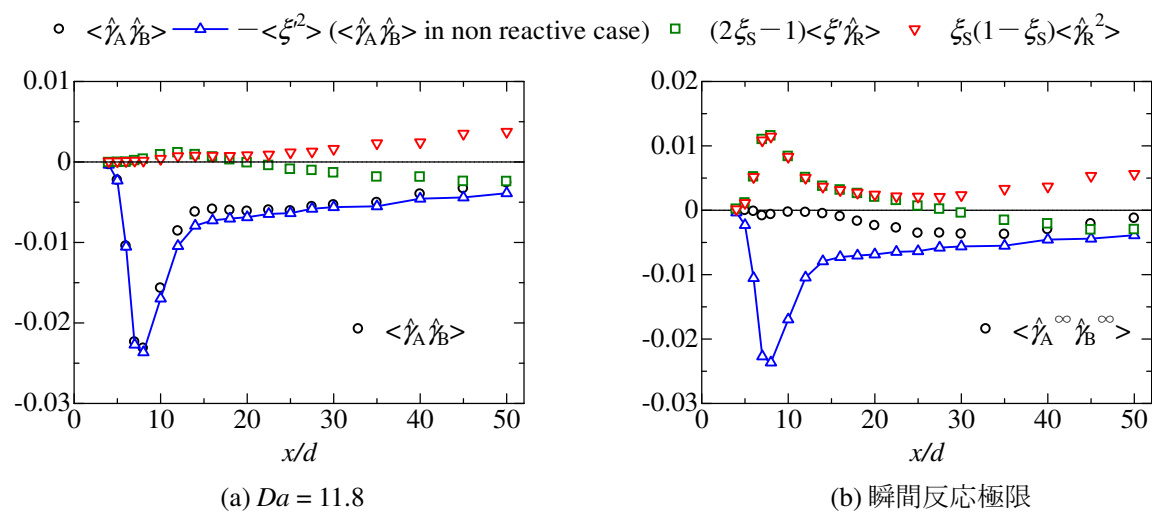
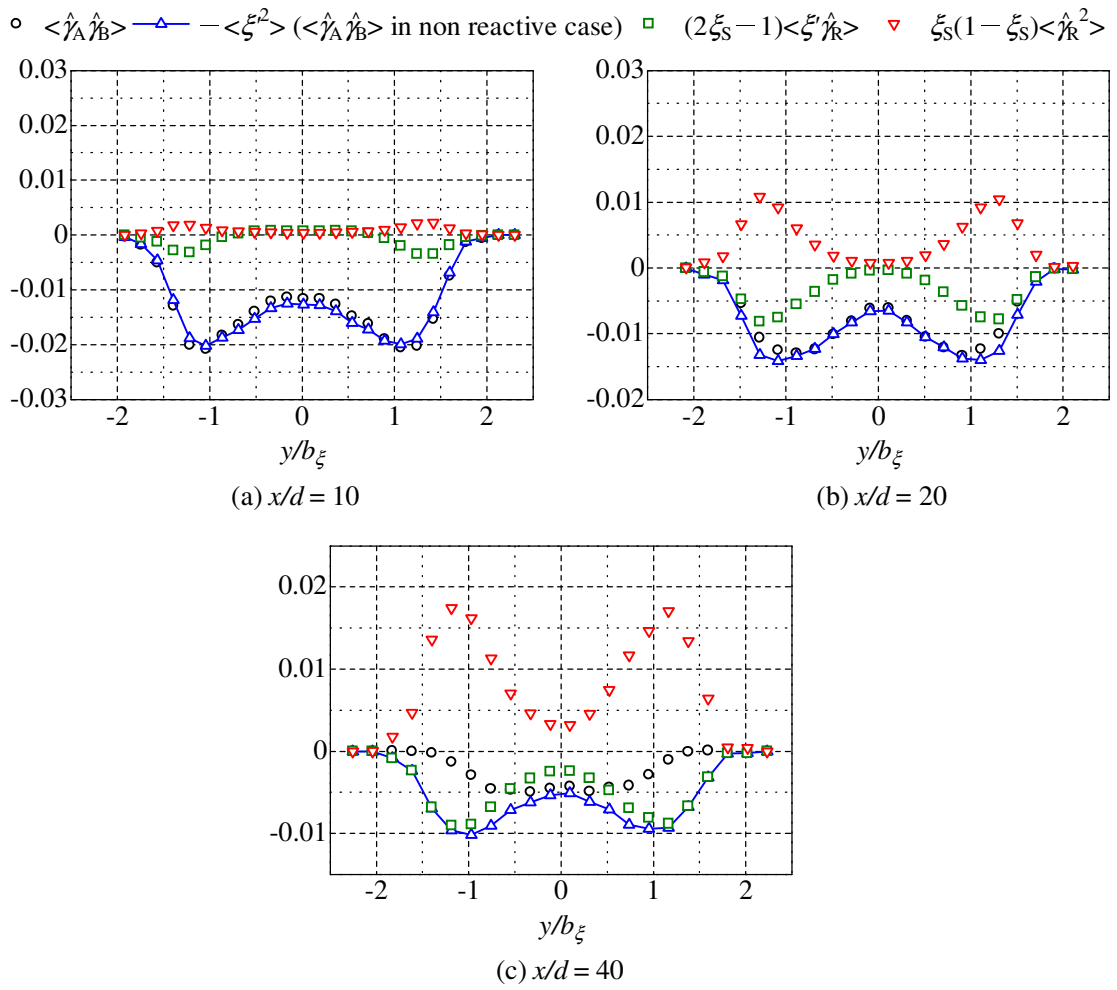
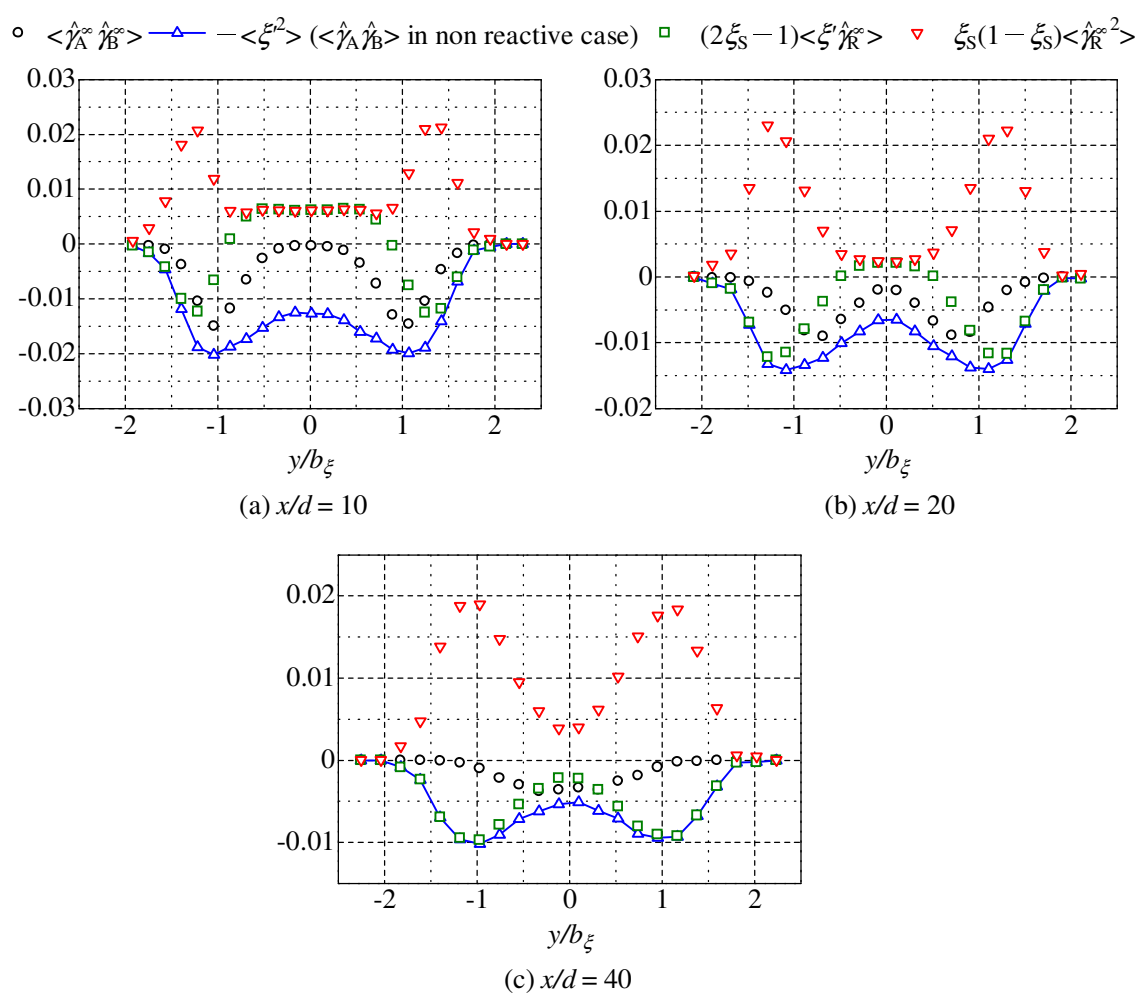


図 2.41 濃度相関の噴流中心における分布

図 2.42 濃度相関の y 方向分布 ($Da = 11.8$)

図 2.43 濃度相関の y 方向分布 (瞬間反応極限)

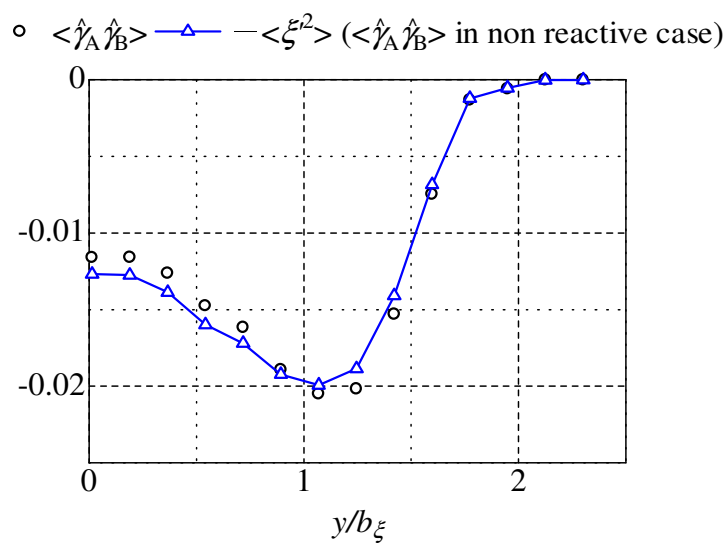


図 2.44 $x/d = 10$ における濃度相関の y 方向分布 ($Da = 11.8$)

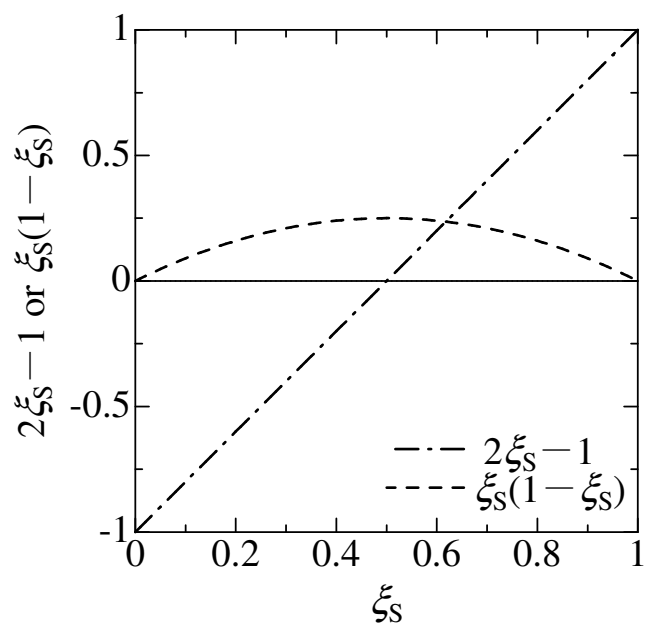
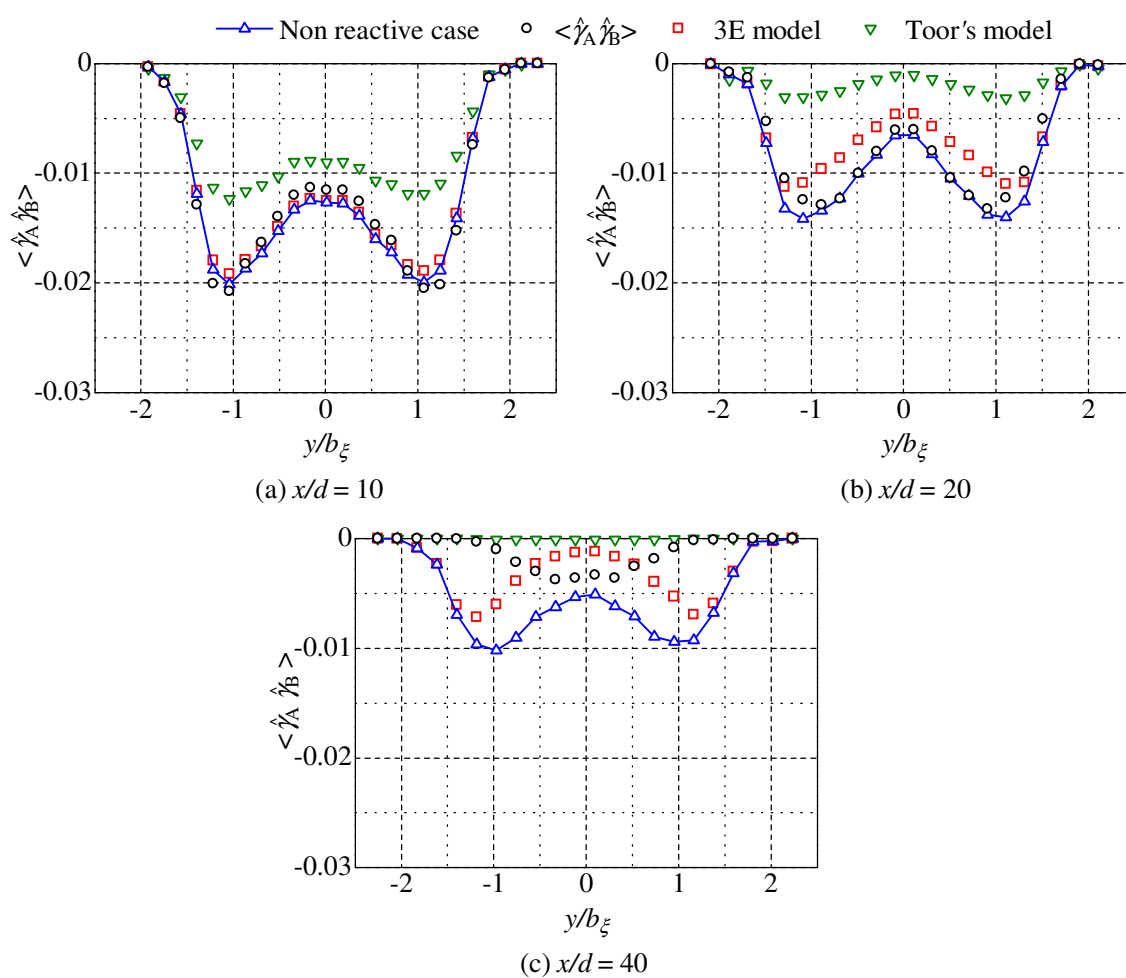


図 2.45 $(2\xi_s - 1)$ と $\xi_s(1 - \xi_s)$ の ξ_s に対する変化

図 2.46 濃度相関の測定値とモデルによる予測値の比較 ($Da = 11.8$)

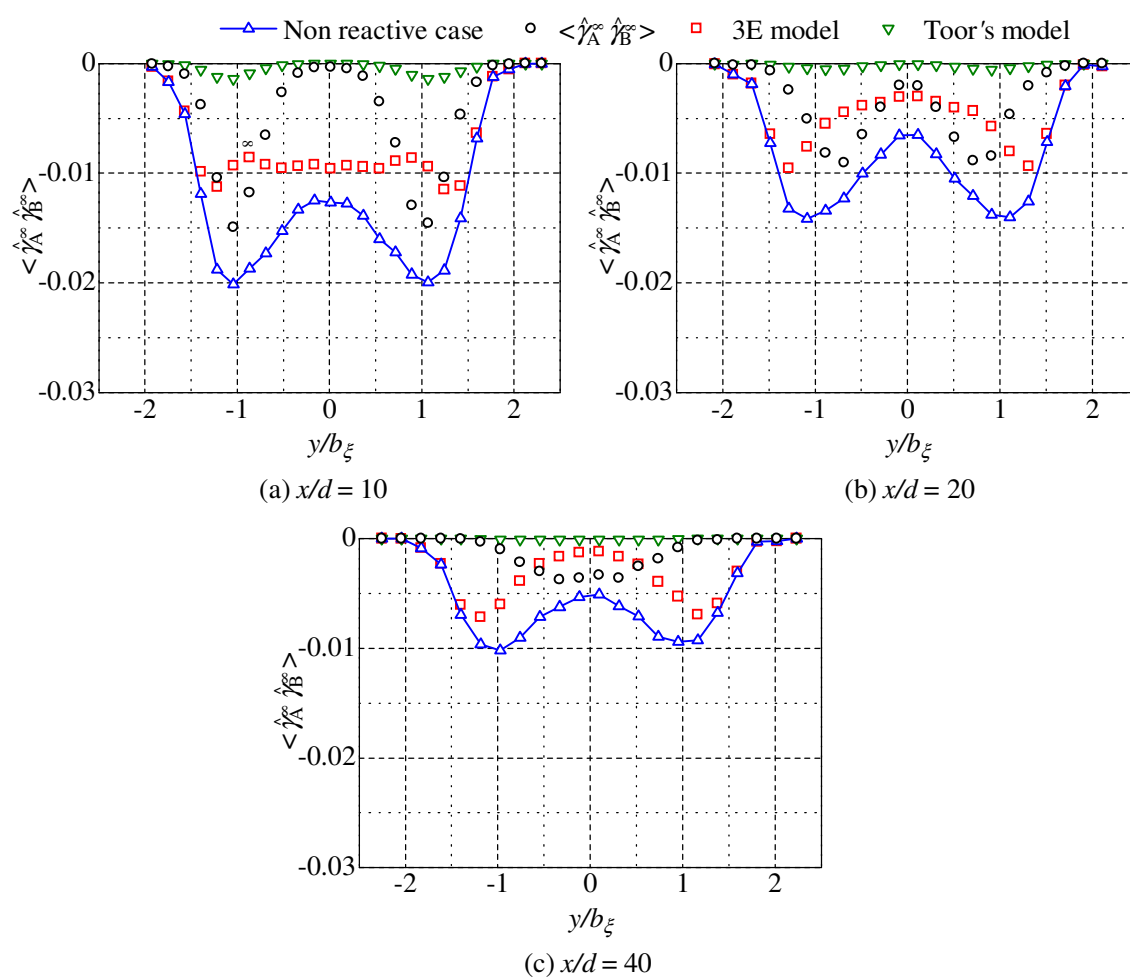


図 2.47 濃度相関の測定値とモデルによる予測値の比較 (瞬間反応極限)

2.6 混合分率に対する条件付統計量

2.6.1 Conditional Moment Closure 法

反応を伴う乱流場の計算に対しては Conditional Moment Closure 法^[33] (CMC 法) が提案され, 様々な流れへの応用が進んでいる. 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し反応するとき, 反応性物質の濃度は混合分率に強く依存することが知られている. CMC 法では混合分率 ξ で条件付けした反応性物質の平均濃度に対する方程式 (CMC 方程式) を解くことで, 反応性物質濃度を計算する. 反応性物質 α の混合分率 ξ に対する条件付平均濃度 Q_α は以下のように定義される.

$$Q_\alpha \equiv \langle \Gamma_\alpha | \xi = \eta \rangle \equiv \langle \Gamma_\alpha | \eta \rangle \quad (2.54)$$

Γ_α は物質 α の瞬時濃度である. $\langle \rangle$ はアンサンブル平均を, $\langle | * \rangle$ は条件 $*$ を満たす集合のアンサンブル平均を取ることを表す. また, 式 (2.54) 中の η は混合分率 ξ に対するサンプル変数である. Q_α に対する方程式は以下のように表される^[37,38].

$$\frac{\partial Q_\alpha}{\partial t} + \langle U_i | \eta \rangle \frac{\partial Q_\alpha}{\partial x_i} - \langle N | \eta \rangle \frac{\partial^2 Q_\alpha}{\partial \eta^2} = \langle S_\alpha | \eta \rangle \quad (2.55)$$

ここで, U_i は i 方向の速度, S_α は物質 α の濃度変化への化学反応の寄与を表す. また, N はスカラ散逸率であり, 以下のように定義される.

$$N \equiv D \frac{\partial \xi}{\partial x_j} \frac{\partial \xi}{\partial x_j} \quad (2.56)$$

ここで, D は混合分率に対する拡散係数である. 式 (2.55) を解くために, 条件付平均速度 $\langle U_i | \eta \rangle$, 条件付スカラ散逸率 $\langle N | \eta \rangle$ および条件付反応速度項 $\langle S_\alpha | \eta \rangle$ に対してモデルが必要となる.

条件付統計量の計測が過去に行われているものの, 測定が多くが気相の流れ場で行われたものである. また, 反応に関わる全物質の条件付統計量を求めた例は非常に少ない. 気相での条件付統計量の研究例の多くは, 化学反応の時間スケールと流れ場の時間スケールの比を表す Damköhler 数が大きく, また反応速度の温度依存性が大きい燃焼反応を対象として行われたものである. これに対して本章の実験の Damköhler 数は $Da = 11.8$ と比較的小さい. 本研究では二次の化学反応を伴う液相二次元噴流中で反応に関わる全物質の濃度, 混合分率および流れ方向速度を同時計測した結果から条件付統計量を求め, その特性について調査した.

2.6.2 条件付統計量の計測結果

図 2.48 に, (a) $x/d = 10$, $y/b_\xi = 0$, (b) $x/d = 40$, $y/b_\xi = 0$, (c) $x/d = 10$, $y/b_\xi = 1$ で測定された反応性物質の瞬時濃度 Γ_α を混合分率に対してプロットした結果を示す. こ

ここで, b_ξ は混合分率の平均値の y 方向分布に対する半値幅を表す. また, 各物質の濃度は $\Gamma_{\alpha 0}$ で無次元化されている. 図の見やすさを考慮して, サンプリング点数 98,304 点のうち 5,000 点のデータを図にプロットした. また, 図中には, 各物質の条件付平均濃度 Q_α と, 無反応極限および瞬間反応極限に対する条件付平均濃度も示されている. 無反応極限および瞬間反応極限に対する条件付平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha^0 | \eta \rangle, \langle \Gamma_\alpha^\infty | \eta \rangle$ は, 式 (2.19), (2.20) において $\xi = \eta$ とすることで得られ, 流れ場における位置によらず同一となる. 図 2.48 において, Γ_α は Q_α 付近に分布していることがわかる. Masri ら^[36] や Brown ら^[72] による実験で得られた反応性物質の瞬時濃度の混合分率に対するプロットにおいても, Γ_α は Q_α 付近に分布している. 図 2.48(a), (c) より, Γ_α は Q_α 付近に分布しているが, 混合分率の半値幅付近 (図 2.48(c)) では分布のばらつきが噴流中心付近 (図 2.48(a)) と比較して大きくなっていることがわかる. また, 図 2.48(a), (b) より, 噴流出口に近い $x/d = 10$ の噴流中心上では Γ_α や Q_α が無反応極限での濃度に近い値をとるが, $x/d = 40$ の噴流中心上での Γ_α や Q_α は瞬間反応極限での濃度に近くなっており, 下流に行くにつれて反応が進行することが確認できる. Bilger ら^[69] により, 反応物質 A, B の瞬時濃度と無反応極限および瞬間反応極限に対する瞬時濃度との間に式 (2.21a), (2.21b) の関係が成り立つことが導かれている. また, 生成物質 R の場合, 式 (2.21c) が成り立つことが導かれる. 図 2.48 において, 反応性物質濃度 Γ_α ($\alpha = A, B, R$) が無反応極限および瞬間反応極限での条件付平均濃度の間にプロットされており, これらの関係が成り立っていることがわかる.

CMC 法において, 反応性物質の平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ は $\langle \Gamma_\alpha | \eta \rangle$ と混合分率の確率密度関数 $p_\xi(\eta)$ を用いた次式より求められる.

$$\langle \Gamma_\alpha \rangle = \int_0^1 \langle \Gamma_\alpha | \eta \rangle p_\xi(\eta) d\eta \quad (2.57)$$

図 2.49 に, $p_\xi(\eta)$ の (a) 噴流中心上での x 方向変化, (b) $x/d = 10$ での y 方向変化, (c) $x/d = 40$ での y 方向変化を示す. 化学反応を伴う流れ場では, 混合が化学量論となる混合分率 ξ_S が重要となる. 本研究の実験条件では $\xi_S = 0.333$ である. 図 2.49 より, 噴流中心線上での $x/d = 10, 14, 20$ (図 2.49(a)) や, $x/d = 10$ の断面の $y/b_\xi = 0, 0.5$ (図 2.49(b)) は噴流出口に近く, $\eta > \xi_S$ の混合分率に対して $p_\xi(\eta)$ は大きい値をとることがわかる. これらの位置を除いた噴流の下流域や外縁部に近い位置では, ξ_S に近い, あるいは ξ_S より小さい混合分率に対して $p_\xi(\eta)$ は大きい値をとる.

図 2.50 に反応性物質の条件付平均濃度 Q_α ($\alpha = A, B, R$) の噴流中心線上での変化を示す. 図 2.50(a) は Q_A, Q_B を, 図 2.50(b) は Q_R を示している. また, 図中には, 無反応極限と瞬間反応極限に対する結果が, 一点鎖線および破線によりそれぞれ描かれている. 図 2.50(a) より, $x/d = 10$ のような噴流上流部において, Q_A, Q_B は無反応極限での値に近い値をとることがわかる. そして, 噴流下流域に行くにつれて化学反応が進行し, Q_A, Q_B は減少し瞬間反応極限に近づく. 図 2.50(b) より, 噴流出口に近い $x/d = 10$ では, 物質

Rの生成量が小さく Q_R は0に近い値となるが、下流に行くにつれて反応が進行することで Q_R は増加し瞬間反応極限に近づく。また、流れ場の位置によらず、 $\eta \simeq 0, 1$ のときは噴流と主流の混合が進んでいないため、 $\eta \simeq 0, 1$ での Q_α と無反応極限での濃度の差は小さくなっている。 $\eta = \xi_S$ となるとき量論混合となるが、 $x/d = 10$ のような噴流上流部では、混合してから十分な時間が経過しておらず、また Damköhler 数が比較的小さい流れ場であるため反応が進行していない。そのため、 Q_α は無反応極限に近い値となる。しかし、下流に行くにつれて反応が進行するので、同じ η に対してでも、 Q_α の値は噴流出口からの距離によって大きく変化することがわかる。

二次反応 $A + B \rightarrow R$ による物質 R の生成速度項 S_R は以下のように表される。

$$S_R(\Gamma_A, \Gamma_B) = k\Gamma_A\Gamma_B \quad (2.58)$$

また、物質 α の瞬時濃度 Γ_α は、条件付平均濃度 Q_α と Q_α からの変動分 γ''_α を用いて、

$$\Gamma_\alpha = Q_\alpha + \gamma''_\alpha \quad (2.59)$$

と表すことができる。式 (2.58) を $(\Gamma_A, \Gamma_B) = (Q_A, Q_B)$ まわりで Taylor 展開し、さらに条件付平均をとることにより、次式が得られる^[33]。

$$\langle S_R | \eta \rangle = kQ_AQ_B + k\langle \gamma''_A \gamma''_B | \eta \rangle \quad (2.60)$$

CMC 法では式 (2.55) を解くために、 $\langle \gamma''_A \gamma''_B | \eta \rangle$ が Q_AQ_B と比較して小さいとする仮定が一般的に用いられている。この場合、化学反応による物質 α の生成速度項 S_α の条件付平均値 $\langle S_\alpha | \eta \rangle$ は反応物質の条件付平均濃度の積 Q_AQ_B を用いて表される。また、 $\langle \gamma''_A \gamma''_B | \eta \rangle$ が無視できない場合、 $\langle \gamma''_A \gamma''_B | \eta \rangle$ に対するモデル方程式^{[33][86][98]}を解くことで $\langle \gamma''_A \gamma''_B | \eta \rangle$ を算出し条件付平均反応速度を求める手法が用いられている。式 (2.15) より、 Q_A および Q_B は以下のように求められる。

$$\hat{Q}_A = \eta - \xi_S \hat{Q}_R \quad (2.61)$$

$$\hat{Q}_B = (1 - \eta) - (1 - \xi_S) \hat{Q}_R \quad (2.62)$$

ここで、 $\hat{Q}_\alpha = Q_\alpha / \Gamma_{\alpha 0}$ である。式 (2.60) の右辺第二項を無視すると、式 (2.61)、(2.62) より物質 R の生成速度の条件付平均値は以下のように与えられる。

$$\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da \hat{Q}_A \hat{Q}_B \quad (2.63)$$

$$= Da[\eta - \xi_S \hat{Q}_R][(1 - \eta) - (1 - \xi_S) \hat{Q}_R] \quad (2.64)$$

ここで、 \hat{S}_R は噴流出口流速と周囲流速差 $(U_J - U_M)$ 、噴流出口幅 d および Γ_{R0} で無次元化された物質 R の生成速度である。 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ が最大となるための条件 η は、 $\partial \langle \hat{S}_R | \eta \rangle / \partial \eta = 0$

より求められる．式 (2.64) より $\partial\langle\hat{S}_R|\eta\rangle/\partial\eta$ は以下ようになる．

$$\frac{\partial\langle\hat{S}_R|\eta\rangle}{\partial\eta} = Da \left\{ (1-2\eta) - (1-2\xi_S)\hat{Q}_R - \left[\xi_S + (1-2\xi_S)\eta - 2\xi_S(1-\xi_S)\hat{Q}_R \right] \frac{\partial\hat{Q}_R}{\partial\eta} \right\} \quad (2.65)$$

$\langle\hat{S}_R|\eta\rangle$ が最大となる条件 η に対して，生成物質 R の条件付平均濃度 Q_R が最大となると仮定する．このとき， $\partial\langle\hat{S}_R|\eta\rangle/\partial\eta = 0$ に対して， $\partial\hat{Q}_R/\partial\eta = 0$ となるため， $\partial\langle\hat{S}_R|\eta\rangle/\partial\eta = 0$ が成り立つための条件は以下の式により表される．

$$(1-2\eta) - (1-2\xi_S)\hat{Q}_R = 0 \quad (2.66)$$

したがって，式 (2.66) より，式 (2.63) で表される $\langle\hat{S}_R|\eta\rangle$ が最大となるときの \hat{Q}_R が得られ，

$$\hat{Q}_R = \frac{1-2\eta}{1-2\xi_S} \quad (2.67)$$

となる．また，式 (2.67) を式 (2.61)，(2.62) に代入することで， $\langle\hat{S}_R|\eta\rangle$ が最大となるときの \hat{Q}_A, \hat{Q}_B が次式のように得られる．

$$\hat{Q}_A = \hat{Q}_B = \frac{\eta - \xi_S}{1 - 2\xi_S} \quad (2.68)$$

図 2.50(a) に式 (2.68) で表される Q_A および Q_B と η の関係式が，また，図 2.50(b) には式 (2.67) で表される Q_R と η の関係式がそれぞれ実線で示されている．図 2.50(b) より，実験により計測された Q_R は，式 (2.67) で表される直線上でほぼ最大となっている．このことから， $\langle\hat{S}_R|\eta\rangle$ が最大となる η に対して Q_R が最大とした仮定が二次元噴流の中心線上で成り立っていることがわかる．さらに，図 2.50(a) より， $\hat{Q}_A = \hat{Q}_B$ となる条件が式 (2.68) で表される直線上に位置していることもわかる．

図 2.51，2.52 に，反応性物質の条件付平均濃度 Q_α ($\alpha = A, B, R$) の $x/d = 10, 40$ における y 方向変化を示す．図中には，瞬間反応極限，無反応極限での濃度や，式 (2.67)，(2.68) により表される直線が図 2.50 と同様に描かれている．図 2.51 ($x/d = 10$) では，噴流外縁部に行くにつれて反応が進行し， Q_A, Q_B は減少， Q_R は増加することがわかる．しかし， $y/b_\xi = 1$ より噴流の外側において， Q_α は y 方向に変化せず，ほぼ同一の分布となっている．また， $y/b_\xi = 1, 1.5$ の噴流外縁付近では，式 (2.67) の直線からずれた位置で Q_R が最大となっている．これは， Q_R が最大値をとる条件が， $\langle\hat{S}_R|\eta\rangle$ が最大となる条件と異なることによるものと考えられる．図 2.52 より， $x/d = 40$ では Q_α は y 方向に変化せず同一の分布となっている．一方，時間平均された平均濃度 $\langle\Gamma_\alpha\rangle$ は y 方向に大きく変化する (図 2.21, 2.22 参照)．Bilger ら^[37] は二次反応を伴うスカラ混合層中で反応物質の条件付平均濃度を計測し，条件付平均濃度は混合層の広がり方向に依存しないことを示している．また，Brown ら^[72] は，格子乱流中のブルームによる反応性物質拡散場で反応性物質の条

件付平均濃度を計測し，条件付平均濃度がブルームの広がり方向に依存しないことを示している．本研究では，噴流出口から離れた $x/d = 40$ の位置では， Q_α は噴流の広がり方向の位置によらずほぼ同一の分布となった． $x/d = 10$ においても，噴流外縁付近では Q_α の分布は y 方向の位置に依存しない．しかし，噴流中心付近では反応性物質の条件付平均濃度は y 方向の位置によって大きく変化するという結果が得られた．

反応性物質の条件付濃度変動の分散および共分散は，式 (2.59) により定義される γ''_α を用いると， $G_{\alpha\beta} \equiv \langle \gamma''_\alpha \gamma''_\beta | \eta \rangle$ ($\alpha, \beta = A, B, R$) により定義される．本研究で扱う化学反応 $A + B \rightarrow R$ では， $G_{\alpha\beta}$ の大きさは α, β によらず同じ値となる．例えば， $G_{AA} = \langle \gamma''_A^2 | \eta \rangle$ は，式 (2.15) を用いると以下のように変形でき $G_{AA} = G_{RR}$ が導かれる．

$$\begin{aligned}
 \langle \gamma''_A^2 | \eta \rangle &= \langle \Gamma_A^2 | \eta \rangle - \langle \Gamma_A | \eta \rangle^2 \\
 &= \langle (\xi \Gamma_{A0} - \Gamma_R)^2 | \eta \rangle - \langle \xi \Gamma_{A0} - \Gamma_R | \eta \rangle^2 \\
 &= (\Gamma_{A0}^2 \eta^2 - 2\Gamma_{A0}\eta \langle \Gamma_R | \eta \rangle + \langle \Gamma_R^2 | \eta \rangle) - (\Gamma_{A0}^2 \eta^2 - 2\Gamma_{A0}\eta \langle \Gamma_R | \eta \rangle + \langle \Gamma_R | \eta \rangle^2) \\
 &= \langle \Gamma_R^2 | \eta \rangle - \langle \Gamma_R | \eta \rangle^2 \\
 &= \langle \gamma''_R^2 | \eta \rangle
 \end{aligned} \tag{2.69}$$

また， $G_{BB}, G_{AB}, G_{BR}, G_{RA}$ の大きさが G_{RR} に等しいことも同様に導かれる．図 2.53 に $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ の (a) 噴流中心上での x 方向変化，(b) $x/d = 10$ での y 方向変化，(c) $x/d = 40$ での y 方向変化を示す． Q_R と値の大きさを比較できるように， $G_{\alpha\beta}$ ではなく $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ を図に示した．図 2.53 の $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は Γ_{R0} により無次元化されている．また，図中には $\eta = \xi_S$ が破線により示されている．噴流下流域では図 2.52(b) のように， Q_R/Γ_{R0} は η によって 0 から 1 の範囲で大きく変化する．しかし，図 2.53(c) より， $G_{RR}^{1/2}$ は Q_R と比較して小さく， Q_R からの変動が小さいことがわかる．図 2.53(a) より，噴流中心線上の $x/d = 10, 14$ において， $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は $\eta = \xi_S$ 付近で最大値をとることがわかる．また， $x/d = 20, 40$ では， ξ_S より小さい混合分率に対して $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ が最大値をとるようになっている．図 2.53(b) より， $x/d = 10$ において $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は $\eta = \xi_S$ でピーク値を持つ分布となっている．また， $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は噴流の外側に向かうにつれて大きくなることわかる．図 2.53(c) に示したように， $x/d = 40$ において $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は $\eta = \xi_S$ よりやや小さい混合分率でピーク値を持つ分布となる．また， $x/d = 40$ では， $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は噴流の外側に向かうにつれて小さくなり， $x/d = 10$ と比較して $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ の y 方向の変化が小さくなっている．条件付濃度変動の分散の測定は，Brown ら [72] により格子乱流中でのブルームによる反応性物質拡散場で，Li ら [86] によりスカラ混合層中で行われている．Li らにより測定された条件付濃度変動の分散は，本研究と同様に $\eta = \xi_S$ 付近で最大となるような分布となっている．

CMC 法では，反応速度項の条件付平均値を，式 (2.63) のように反応物質の条件付平均濃度の積により表す近似が広く用いられている．図 2.54 に，化学反応による物質 R の生

成速度項の条件付平均値 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da \langle \Gamma_A \Gamma_B | \eta \rangle / (\Gamma_{A0} \Gamma_{B0})$ の実験による計測結果を、式 (2.63) により得られる値 (実線) とともに示す。図 2.54(a) に噴流中心上での x 方向変化、図 2.54(b) に $x/d = 10$ での y 方向変化、図 2.54(c) に $x/d = 40$ での y 方向変化が示されている。図 2.54 より、 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ と式 (2.63) から得られる値の差が小さいことがわかる。したがって、本研究の流れ場において、条件付平均反応速度項は式 (2.63) により精度よく近似できるといえる。図 2.54(a) は、噴流の上流部において $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は大きい値をもつが、下流に向かい反応物質濃度が化学反応により減少するのに伴って、 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ も減少することを表している。図 2.54(b) に示した $x/d = 10$ では、 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は噴流の中心である $y/b_\xi = 0$ で大きい値を持ち、噴流の外側に向かうにつれて減少する。しかし、 $y/b_\xi = 1, 1.5$ での $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ はほぼ同じ分布となっていることから、図 2.51 の条件付平均濃度と同様に、噴流の外縁部付近では $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は y 方向の位置によって変化しなくなると考えられる。図 2.52(a) より、 $x/d = 40$ の位置では反応物質 A あるいは B の大半が反応によって消費されており、 $x/d = 40$ では反応速度項が小さくなる。図 2.54(b), (c) より、 $x/d = 10$ と比較して、 $x/d = 40$ での $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ の y 方向変化は小さいことがわかる。

本研究の流れ場において、条件付平均濃度や条件付平均反応速度項は噴流上流域の外縁部付近や噴流下流域では y 方向の位置によらずほぼ同一の分布となった。条件付統計量が流れ場のある方向に依存しない性質は過去の測定例^{[37][72]}でも確認されている。この条件付統計量の性質を用いて、式 (2.55) から変数 y を消去することで、さらに容易に式 (2.55) を解くことができるようになる。しかしながら、本研究の噴流上流部の噴流中心付近のように、条件付平均濃度や条件付平均反応速度が y 方向に大きく変化する場合、こうした方法を用いることは大きな予測誤差を生む要因となる可能性がある。

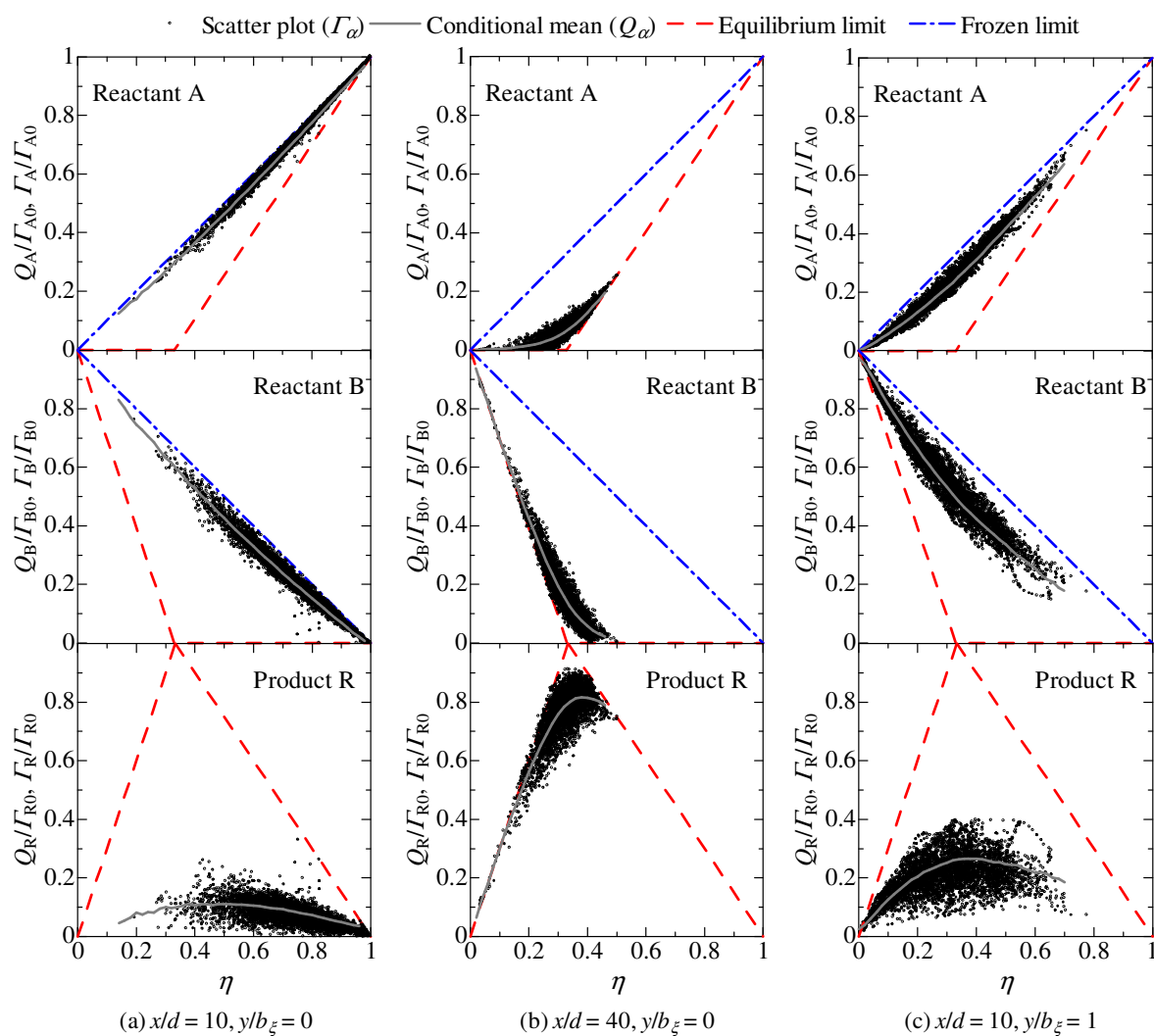
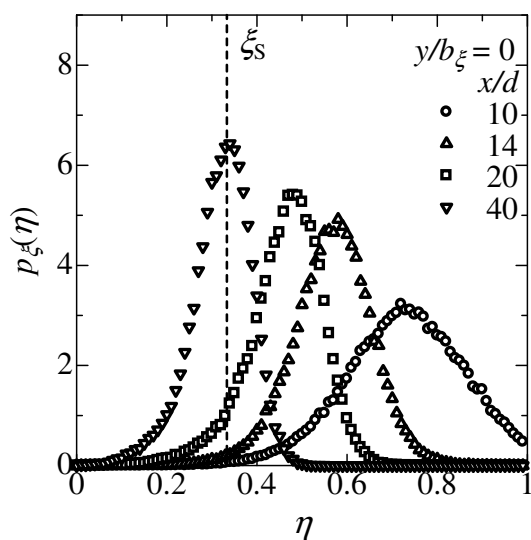


図 2.48 混合分率と反応性物質濃度の関係および反応性物質の条件付平均濃度



(a) 噴流中心における流れ方向変化

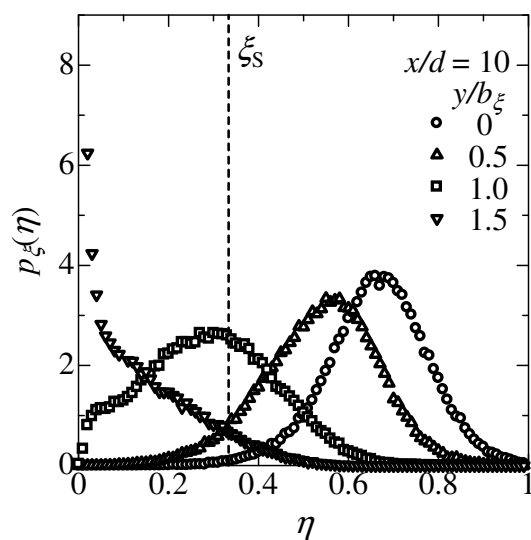
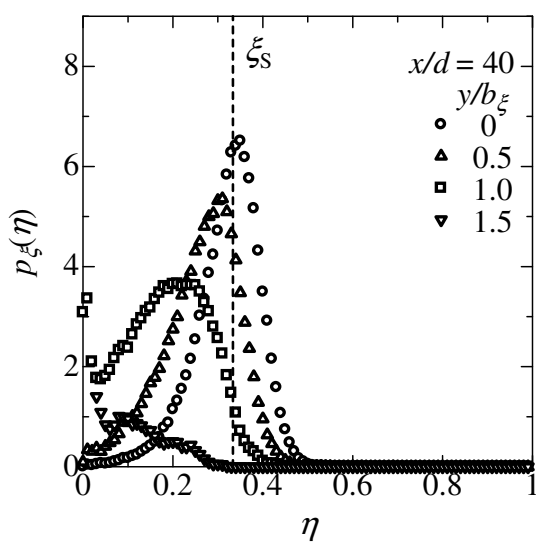
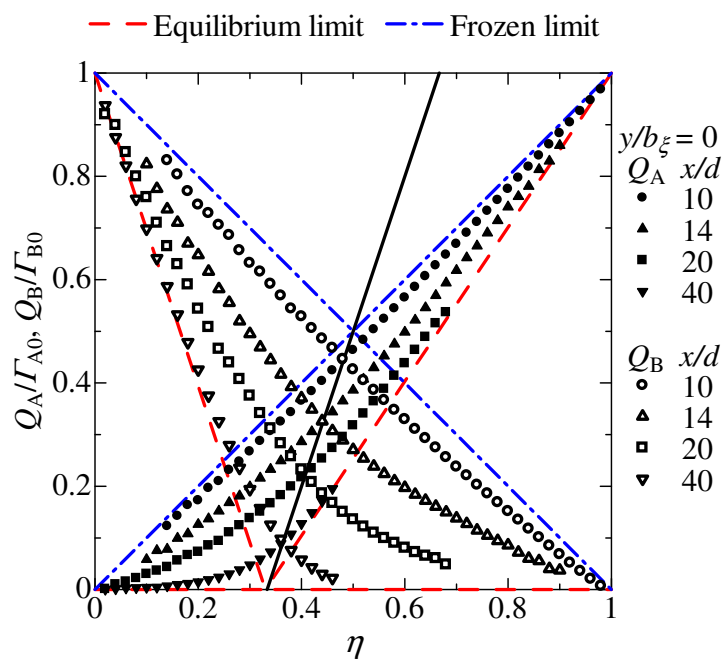
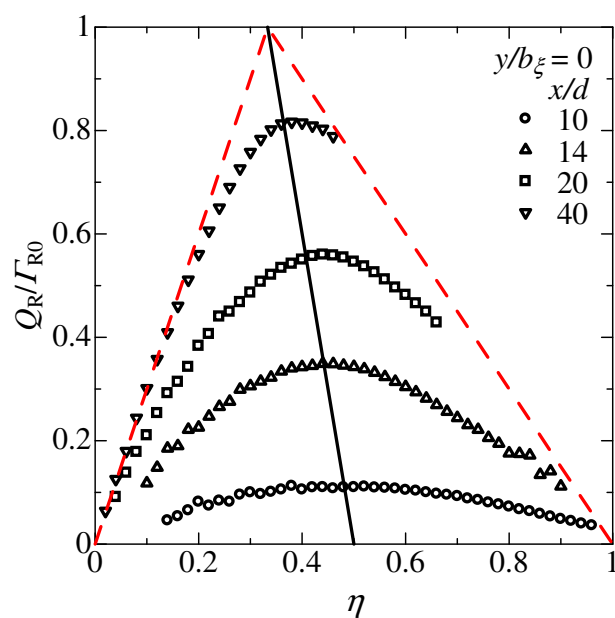
(b) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 10$)(c) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 40$)

図 2.49 混合分率の確率密度関数

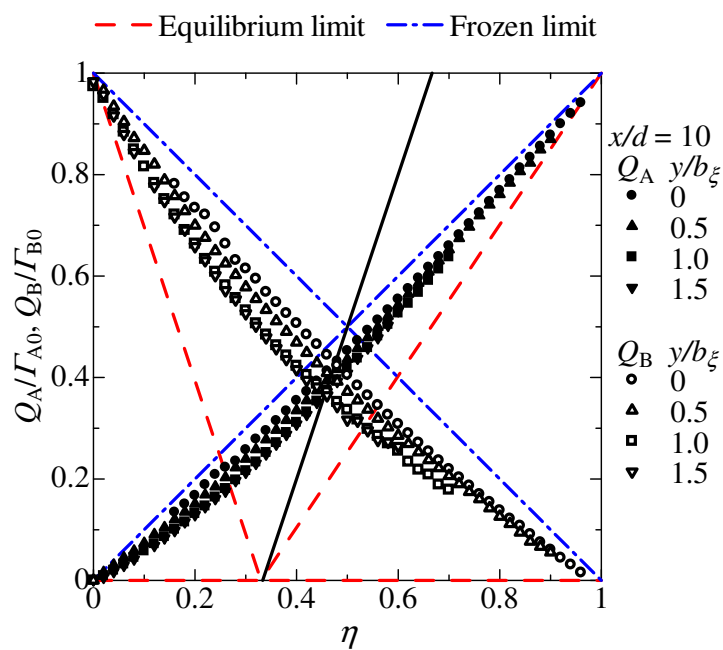


(a) 反応物質A, B

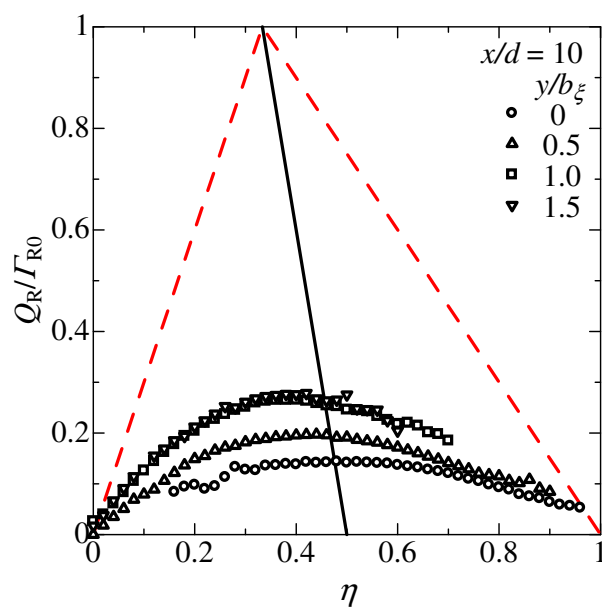


(b) 生成物質R

図 2.50 反応性物質の条件付平均濃度の噴流中心における下流方向変化

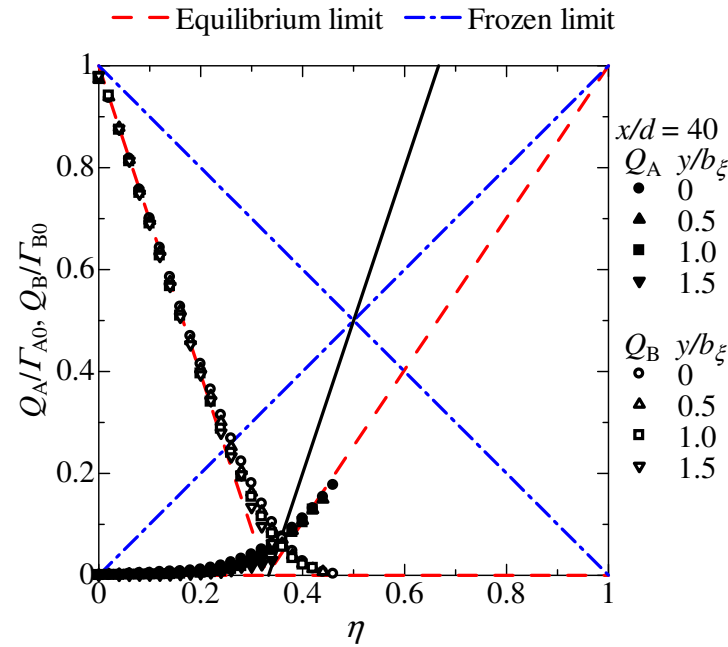


(a) 反応物質A, B

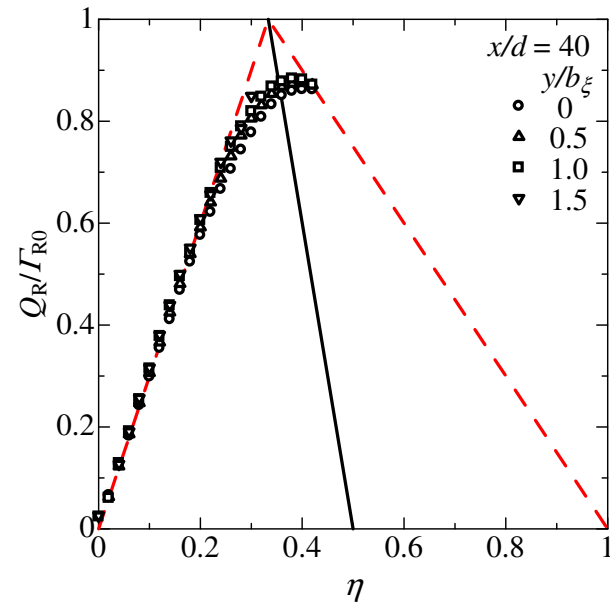


(b) 生成物質R

図 2.51 反応性物質の条件付平均濃度の $x/d = 10$ における y 方向変化

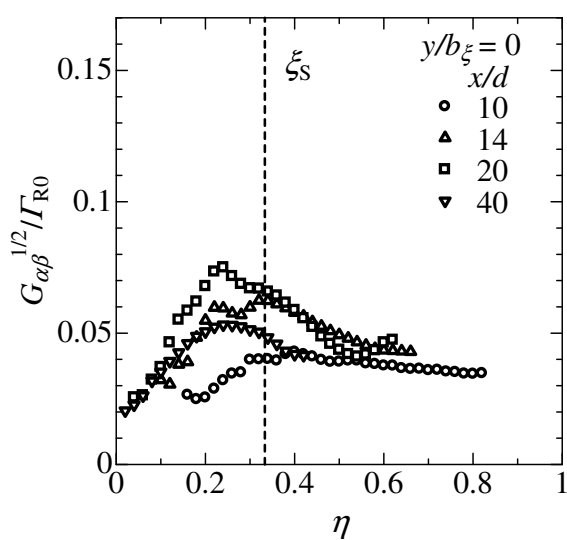


(a) 反応物質A, B



(b) 生成物質R

図 2.52 反応性物質の条件付平均濃度の $x/d = 40$ における y 方向変化



(a) 噴流中心における流れ方向変化

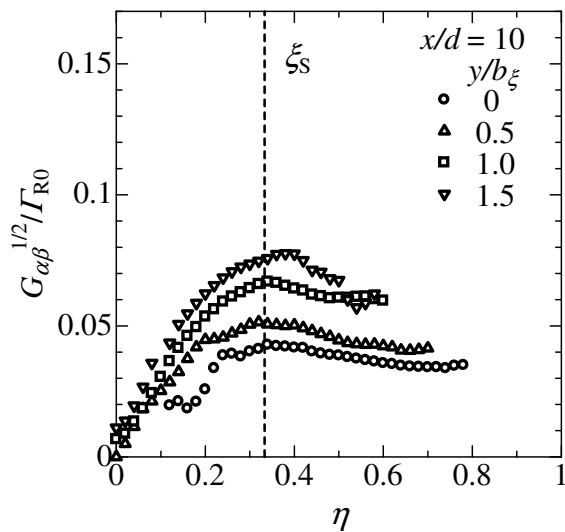
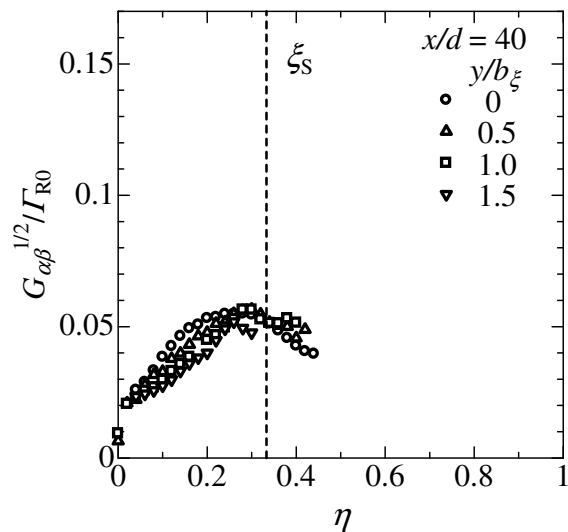
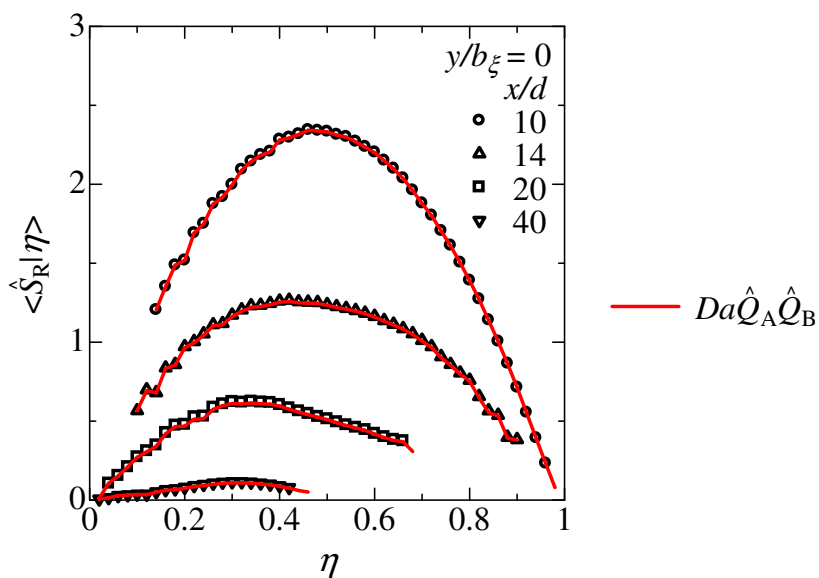
(b) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 10$)(c) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 40$)

図 2.53 反応性物質の条件付濃度変動 rms 値



(a) 噴流中心における流れ方向変化

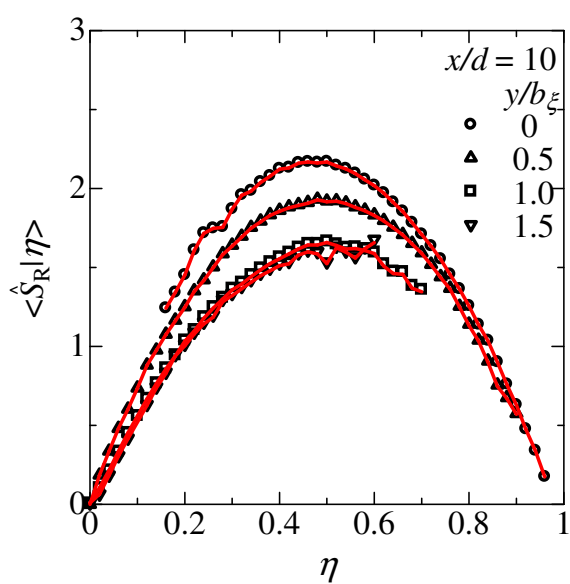
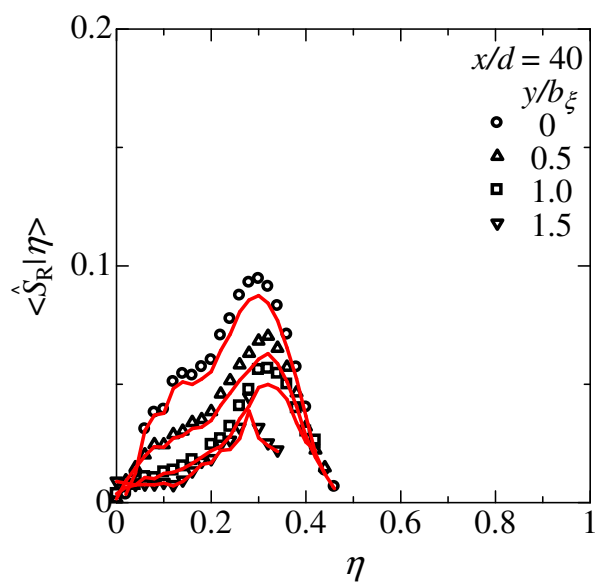

 (b) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 10$)

 (c) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 40$)

図 2.54 条件付反応速度

2.6.3 CMC 方程式の評価によるスカラ散逸率の算出

スカラ散逸率について

二つの流体の混合の程度を表す混合分率 ξ のスカラ散逸率 N は化学反応を伴う乱流拡散の性質を特徴づける重要なパラメータ^[99]の一つであり、式 (2.56) により定義される。反応性物質を別々に含む二つの流れが混合して速い化学反応が生じるとき、その反応速度は混合分率のスカラ散逸率に強く依存することが知られている^[100]。また、スカラ散逸率は反応性乱流の数値計算においても重要となる。化学反応を伴う流れ場の数値計算手法の一つである Conditional Moment Closure 法 (CMC 法)^[33]では、混合分率 ξ で条件付けした反応性物質の平均濃度に対する方程式 (CMC 方程式) を解くことで反応性物質濃度を計算する。CMC 方程式は式 (2.55) により表され、CMC 方程式中にはスカラ散逸率の条件付平均値 (条件付スカラ散逸率) $\langle N | \eta \rangle$ が未知の項として含まれる。式 (2.55) を解くために、条件付平均速度 $\langle U_i | \eta \rangle$ 、条件付スカラ散逸率 $\langle N | \eta \rangle$ および条件付反応速度項 $\langle S_\alpha | \eta \rangle$ に対してモデルが必要となる。

乱流中のスカラ散逸率を実験により計測する場合、濃度変動の最小スケールである Batchelor スケールと同程度の計測分解能が必要となる^[101]ため、スカラ散逸率の計測を精度よく行うことは難しい。特に、液相乱流のような Schmidt 数が大きい流れ場では、Schmidt 数が小さい流れ場と比較して Batchelor スケールが小さくなるため、Batchelor スケールに匹敵する分解能でのスカラ量の計測は一層難しくなる。スカラ散逸率の計測は過去に Su ら^{[102][103]}や Karpetis ら^[104]などにより気相噴流中で行われている。また、液相では Kailasnath^[105]や内田ら^[106]により噴流中のスカラ散逸率の計測が行われている。しかし、こうした測定例の多くが Batchelor スケールに満たない分解能での計測である。

ここでは、全反応性物質の濃度、混合分率および流れ方向速度を同時計測した結果を用いて、式 (2.55) の $\langle N | \eta \rangle$ を除く各項を算出し、式 (2.55) を解くことにより噴流中心軸上での $\langle N | \eta \rangle$ を求めることを試みた。式 (2.55) には反応性物質の濃度や速度の条件付平均値が含まれる。しかし、濃度や速度の条件付平均値には微分統計量が含まれないため、Batchelor スケールに満たない計測分解能がこれらの統計量の計測結果に与える影響はスカラ散逸率を計測する場合と比較して小さい^[101]。以上のような方法により、スカラ散逸率の直接計測が困難な液相二次元噴流中で条件付スカラ散逸 $\langle N | \eta \rangle$ およびスカラ散逸率の平均値 $\langle N \rangle$ を求め、その特性について調べた。

CMC 方程式の評価によるスカラ散逸率の算出

流れが定常であるとき，式 (2.55) より反応生成物 R に対する CMC 方程式は噴流の中心軸上において次のようになる．

$$\langle U | \eta \rangle \frac{\partial Q_R}{\partial x} - \langle N | \eta \rangle \frac{\partial^2 Q_R}{\partial \eta^2} = \langle S_R | \eta \rangle \quad (2.70)$$

ここで， U は x 方向速度である．流れ場の中で，混合分率は $0 \leq \eta \leq 1$ の範囲の値をとる．本研究では，式 (2.70) の各項に対する近似式を $0 \leq \eta \leq 1$ の範囲で求め，得られた式を用いて $\langle N | \eta \rangle$ を算出する．

速度変動 $u \equiv U - \langle U \rangle$ と混合分率の変動 $\xi' \equiv \xi - \langle \xi \rangle$ の結合確率密度関数が結合 Gauss 分布で表されるとき，速度変動の条件付平均値 $\langle u | \eta \rangle$ は以下のように表される^[34]．

$$\langle u | \eta \rangle = \langle U | \eta \rangle - \langle U \rangle = \frac{\langle u \xi' \rangle}{\xi_{\text{rms}}^2} (\eta - \langle \xi \rangle) \quad (2.71)$$

ここで， ξ_{rms} は混合分率の変動の rms 値を表す．図 2.55 に条件付平均速度の計測結果を示す．図 2.55(a) は噴流中心軸上での計測結果を，図 2.55(b), (c) はそれぞれ $x/d = 10, 40$ での y 方向分布を示している．図 2.55 において，縦軸には $\langle u | \eta \rangle \xi_{\text{rms}} / \langle u \xi' \rangle$ を，横軸には混合分率の変動を ξ_{rms} で正規化した値 $(\eta - \langle \xi \rangle) / \xi_{\text{rms}}$ をとった．また，図中の実線は式 (2.71) を表す．図 2.55(a) より，噴流中心軸上では， $|\eta - \langle \xi \rangle| / \xi_{\text{rms}} < 2$ の範囲で実験結果が式 (2.71) を表す実線上にあることから，式 (2.71) の関係が成り立っていることがわかる．しかし， η が $\langle \xi \rangle$ から大きく外れた条件に対する実験結果は式 (2.71) を満たしていない．内田ら^[106]によって軸対称噴流中で計測された条件付平均速度にも同様の傾向が見られ，内田らは $|\eta - \langle \xi \rangle| / \xi_{\text{rms}} > 2$ の条件を満たすサンプル数が少ないことによりこのばらつきが生じたとしている．図 2.55(b) より， $x/d = 10$ の断面の $0 \leq y/b_\xi \leq 1.0$ のにおいて， $|\eta - \langle \xi \rangle| / \xi_{\text{rms}} < 2$ で式 (2.71) が成り立つことがわかる． $x/d = 40$ の断面については，噴流中心付近では $|\eta - \langle \xi \rangle| / \xi_{\text{rms}} < 2$ の条件に対して式 (2.71) がほぼ成り立つが， $y/b_\xi = 1$ の $-2 < (\eta - \langle \xi \rangle) / \xi_{\text{rms}} < -1$ 付近で実験結果と式 (2.71) との差が大きくなっている．噴流の中心から外れた位置では，間欠性のため濃度や速度の確率密度関数は Gauss 分布とは大きく異なる分布となる．そのため，この位置で実験結果と式 (2.71) との差が大きくなったと考えられる．

図 2.55(a) のように噴流の中心軸上では式 (2.71) が成り立ち， $\langle U | \eta \rangle$ が

$$\langle U | \eta \rangle = \langle U \rangle + \frac{\langle u \xi' \rangle}{\xi_{\text{rms}}^2} (\eta - \langle \xi \rangle) \quad (2.72)$$

で与えられる．図 2.56 に噴流中心軸上での $\langle U | \eta \rangle$ の計測結果を式 (2.72) とともに示す．図 2.56 より，式 (2.72) が $\langle U | \eta \rangle$ をよく表していることがわかる．図 2.56 における式 (2.72)

の直線から外れている $\langle U | \eta \rangle$ は、図 2.55 の $|\eta - \langle \xi \rangle|/\xi_{\text{rms}} > 2$ に対する $\langle u | \eta \rangle$ に対応している。

式 (2.70) より条件付スカラー散逸率を算出するため、 $\partial Q_R/\partial x$ 、 $\partial^2 Q_R/\partial \eta^2$ 、 $\langle S_R | \eta \rangle$ が必要となる。これらの条件付統計量を $0 \leq \eta \leq 1$ の範囲で求めるため、 Q_R を表す近似式を以下のように求めた。本研究の反応場において、図 2.54 のように反応物質の濃度積の条件付平均値 $\langle \Gamma_A \Gamma_B | \eta \rangle$ が反応物質の条件付平均濃度 Q_A 、 Q_B の積により近似できることを確かめた。したがって、式 (2.61) および (2.62) を用いると、無次元化した条件付平均反応速度項 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da \langle \Gamma_A \Gamma_B | \eta \rangle / \Gamma_{A0} \Gamma_{B0}$ は式 (2.63)、(2.64) のように書ける。さらに、物質 R が反応による生成物質であるため、その濃度が反応速度項に比例すると仮定し、次式を満たす関数 $\beta(x, \eta)$ を考える。ここで $x = (x, y)$ である。

$$\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da \beta \hat{Q}_R \quad (2.73)$$

式 (2.64)、(2.73) より $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ を消去して得られる式を、 $0 \leq \hat{Q}_R \leq 1$ を考慮して \hat{Q}_R について解くことで、以下の式が得られる。

$$\hat{Q}_R = \frac{\beta + \xi_S(1 - \eta) + \eta(1 - \xi_S) - \sqrt{[\beta + \xi_S(1 - \eta) + \eta(1 - \xi_S)]^2 - 4\xi_S(1 - \xi_S)\eta(1 - \eta)}}{2\xi_S(1 - \xi_S)} \quad (2.74)$$

図 2.57 に、 \hat{Q}_R および $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da \hat{Q}_A \hat{Q}_B$ の両方の計測結果から式 (2.73) に基づき算出した $\beta(x, \eta)$ の、噴流中心軸上での η に対する分布を示す。図中の $\beta(x, \eta)$ は、 \hat{Q}_R が最大となる混合分率の条件 $\xi_m(x)$ での値 $\beta(x, \xi_m)$ で正規化してある。図 2.57 より、 $\beta(x, \eta)$ は η によらず $\beta(x, \xi_m)$ と同程度の値となっており、 $\beta(x, \eta)$ の η に対する変化が小さいことがわかる。そこで、本研究では $\beta(x, \eta)$ が η に対して一定値をとると仮定し、式 (2.74) より \hat{Q}_R を近似することにした。このとき、 $\beta(x, \eta)$ の値として実験により計測した $\beta(x, \xi_m)$ を用いた。

図 2.58 に実験により計測した $\beta(x, \xi_m)$ の噴流中心軸上の変化を示す。図 2.58 より、 $\beta(x, \xi_m)$ の値は噴流下流に行くにつれて減少することがわかる。噴流下流に行くにつれて反応が進行し生成物質濃度 \hat{Q}_R が増加するとともに、反応物質濃度が減少し反応速度 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ が減少するため $\beta(x, \xi_m)$ は下流方向に減少する。

図 2.59 に反応性物質の条件付平均濃度 \hat{Q}_α ($\alpha = A, B, R$) の測定値を式 (2.74) から得られる \hat{Q}_α とともに示す。式 (2.74) に対応する反応物質 A, B の条件付平均濃度は式 (2.74) を式 (2.61)、(2.62) に代入することで得られる。また、図中には無反応極限および瞬間反応極限での条件付平均濃度の分布がともに示されている。図 2.59 より、式 (2.74) が Q_α の測定値の分布をよく表していることがわかる。そこで、以下では $\partial Q_R/\partial x$ 、 $\partial^2 Q_R/\partial \eta^2$ 、 $\langle S_R | \eta \rangle$ を算出するために式 (2.74) を用いた。

図 2.60 に式 (2.64) と式 (2.74) により求めた条件付平均反応速度 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ の噴流中心軸上における変化を示す．図より $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ の値は下流に行くにつれて小さくなるのがわかる．これは，図 2.59(a), (b) に見られるように下流に行くにつれて反応が進行し，反応物質 A, B の濃度が減少することにより，反応物質の瞬時濃度積 $\Gamma_A \Gamma_B$ が小さくなるためと考えられる．また， $x/d = 10$ での $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は $\eta = 0.5$ 付近で最大となるが，下流に行くにつれて $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ が最大となる混合分率は小さくなり， $x/d = 40$ では $\eta = \xi_S$ 付近で $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ が最大となっていることがわかる．

図 2.61 に， $\partial \hat{Q}_R / \partial \hat{x}$ の噴流中心軸上における変化を示す．ここで， $\hat{x} = x/d$ である．下流に行くにつれて化学反応が進行し物質 R が生成されるため， $\partial \hat{Q}_R / \partial \hat{x}$ は正の値をとる．化学反応により生成した物質が x 方向に流されることで， $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ が大きい条件に対して $\partial \hat{Q}_R / \partial \hat{x}$ が大きくなる．

図 2.62 に， $\partial^2 \hat{Q}_R / \partial \eta^2$ の噴流中心軸上における分布を示す．図より $\partial^2 \hat{Q}_R / \partial \eta^2$ は負の値となり，その分布は位置によって大きく変化することがわかる． $x/d = 10$ では $\partial^2 \hat{Q}_R / \partial \eta^2$ は η に対してほぼ一定となるが， $x/d = 40$ などの噴流下流域では $\eta = \xi_S$ 付近で負に大きくなる．図 2.59(c) に示されるように，下流に行くにつれて化学反応が進行することで \hat{Q}_R の分布は瞬間反応極限に近づくため，噴流下流域での $\partial \hat{Q}_R / \partial \eta$ は $\eta = \xi_S$ 付近で大きく変化する．その結果，図 2.62 のように，噴流下流域の $\partial^2 \hat{Q}_R / \partial \eta^2$ は $\eta = \xi_S$ 付近で負に大きくなる分布となる．

図 2.63 に式 (2.70) を解いて得られる条件付スカラ散逸率 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ の噴流中心軸上における分布を示す．ここで， \hat{N} は無次元化したスカラ散逸率を表し， $\hat{N} = Nd / (U_J - U_M)$ である．図 2.63(a) は $x/d = 10, 14, 20, 40$ での $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ を，図 2.63(b) は $x/d = 14, 20, 40$ での $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ の拡大図を示している．図 2.63 より $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は下流に行くにつれて小さくなるのがわかる． $x/d = 14, 20, 40$ では， $\eta \approx 0.8$ の条件に対して $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ が大きくなる分布となっている．また，小さい混合分率に対する $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ と比較して，混合分率の大きい値に対して $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ が大きい値となることがわかる．混合分率の大きい値に対して $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ が大きくなる傾向は過去の条件付スカラ散逸率の計測結果においても見られる^[105]．噴流上流域では $\langle N | \eta \rangle$ は一つの極大値をもつ分布形状となった．図 2.63(b) より， $x/d = 40$ における $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は $\eta \approx 0.1$ と $\eta \approx 0.8$ 付近に極大値を持つ分布となっている． $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ の二つの極大値は過去に得られている条件付スカラ散逸率の分布においても確認できる^[105, 107]．

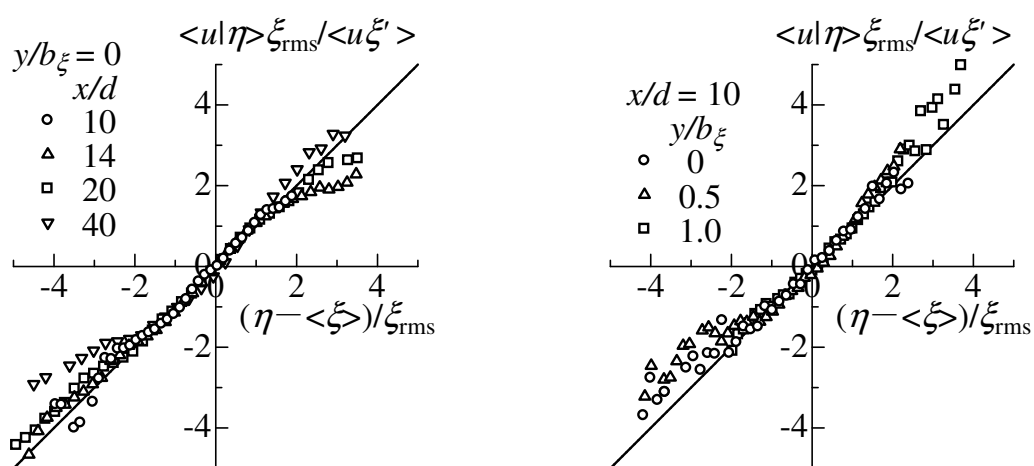
噴流中心上のスカラ散逸率

スカラ散逸率の平均値 $\langle N \rangle$ は $\langle N | \eta \rangle$ と混合分率の確率密度関数 $p_\xi(\eta)$ を用いて次式から得られる．

$$\langle N \rangle = \int_0^1 \langle N | \eta \rangle p_\xi(\eta) d\eta \quad (2.75)$$

図 2.64 に $\langle \hat{N} \rangle$ の噴流中心軸上での下流方向変化を示す．横軸には二次元噴流の仮想原点 x_0 からの距離 $x^* = x - x_0$ をとった．仮想原点は Su ら^[102] と同様の方法で求め、その結果、 $x_0/d = 4.3$ となった．Bilger^[99] は、混合分率の輸送方程式から、乱流流束などの項の影響を無視し、さらに $\langle N \rangle$ を含む混合分率および速度の統計量の自己保存性を仮定することで二次元噴流の中心軸上の自己保存領域において $\langle N \rangle \propto (x^*/d)^{-2.5}$ を導いている．また、Peters らは^[108]、 $\langle N \rangle$ の減衰を乱流エネルギーの散逸の減衰と関連付け、 $\langle N \rangle$ が $\langle \xi \rangle$ の二乗と b_ξ の逆数の二乗に比例するとして、二次元噴流の中心軸上の自己保存領域において $\langle N \rangle \propto (x^*/d)^{-3}$ を導いている．図 2.64 には、混合分率の平均値および変動 rms 値の y 方向分布に自己相似性が成り立つことが確認できた $x/d > 20$ での $\langle N \rangle$ の分布に対して、最小二乗法により求めた直線が示されており $\langle N \rangle \propto (x^*/d)^{-2.9}$ となった．この減衰指数は Bilger により求められた理論値 -2.5 よりやや小さく、Peters により求められた -3 に近い値となった．Su ら^[102] により二次元噴流の中心軸上で計測されたスカラ散逸率の減衰の指数は -1.4 であり -2.5 や -3 よりも大きい値となっている．Bilger は Su らにより -1.4 という値が得られた原因として、計測の空間分解能^[99] が十分に小さくなかったことを挙げている．また、Su ら^[103] は軸対称噴流中で計測された $\langle N \rangle$ の減衰の指数を、Bilger^[99] と同様の方法で軸対称噴流に対して得られる減衰の指数と比較し、計測された $\langle N \rangle$ の減衰の指数が Bilger により得られた値と異なることを示している．そして、計測の空間分解能が $\langle N \rangle$ の計測を行う上で十分に小さいことを確認した後、この減衰指数の相違が $\langle N \rangle$ の自己相似性が流れ場の中で成り立っていなかったことにより生じたと考察している．本研究においても同様に、 $\langle N \rangle$ に対する自己相似性の仮定が実際の流れ場で成り立っていなかった可能性があり、これが実験結果から求めた $\langle N \rangle$ の減衰指数と Bilger により求められた値の違いを生んだと考えることができる．

本研究では $\langle N | \eta \rangle$ を求めるため式 (2.55) を用いた．式 (2.55) はモデル方程式であり、いくつかの仮定の下で成り立つ式である^[33]．しかしながら、式 (2.55) を用いた CMC 法による噴流火炎の数値計算が過去に多くなされており、その数値計算により得られた条件付平均濃度が実験値とよく一致することが多くの研究例で確認されている^{[109][110]}．液相乱流中では Batchelor スケールが気相と比較して小さくなるため、スカラ散逸率 N を直接計測することが難しい．本研究では、計測結果が測定装置の空間分解能に依存し難い化学種の条件付平均濃度や条件付平均速度の計測結果を用いて、式 (2.55) より条件付スカラ散逸率 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ を求めた．この方法により、 $\langle \hat{N} \rangle \propto (x^*/d)^{-2.9}$ が得られ、その減衰の指数が Peters ら^[108] により予測されている値 -3 に近い値となったことから、この方法により条件付スカラ散逸率 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ が正しく求められたと言える．



(a) 噴流中心における流れ方向変化

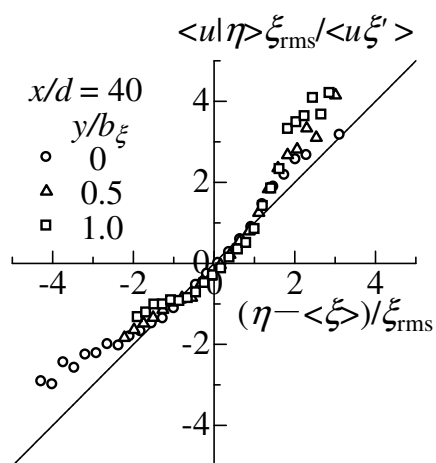
(b) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 10$)(c) 噴流広がり方向変化 ($x/d = 40$)

図 2.55 流れ方向速度の条件付平均値

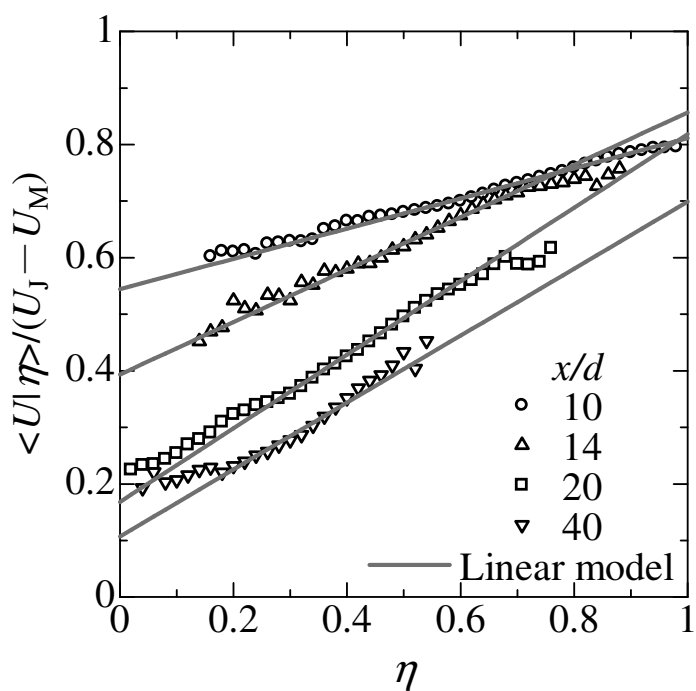
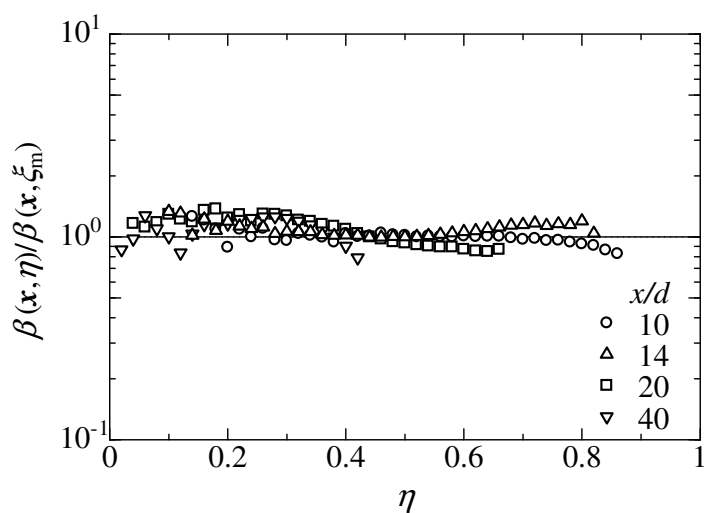
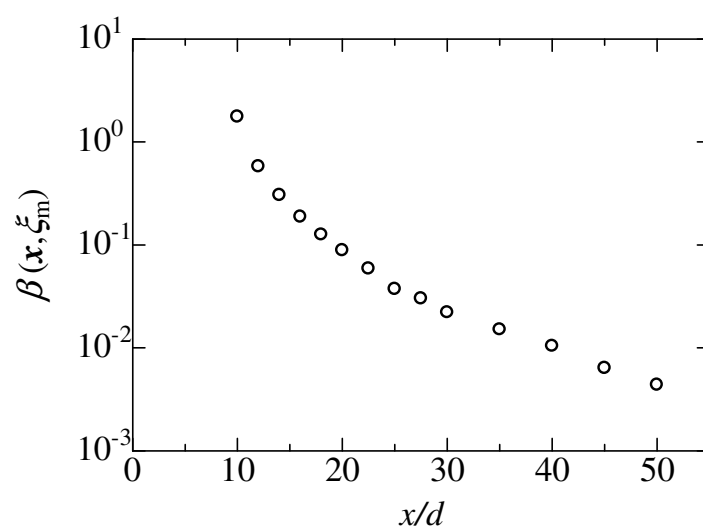


図 2.56 流れ方向速度の条件付平均値に対する近似式


 図 2.57 $\beta = \langle \hat{S}_R | \eta \rangle / Da \hat{Q}_R$ の噴流中心での下流方向変化

図 2.58 $\beta(x, \xi_m)$ の噴流中心での下流方向変化

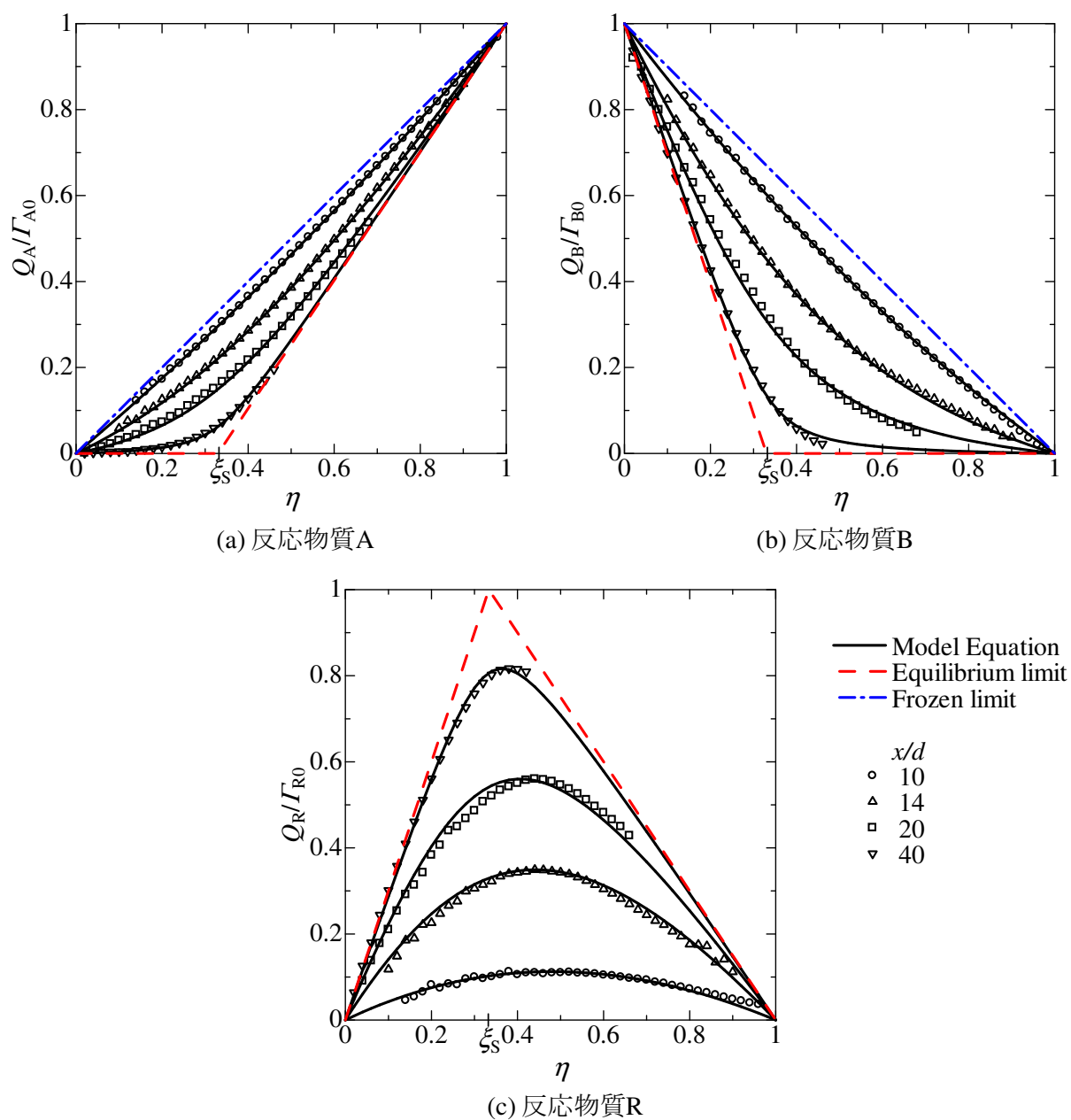


図 2.59 噴流中心における反応性物質の条件付平均濃度

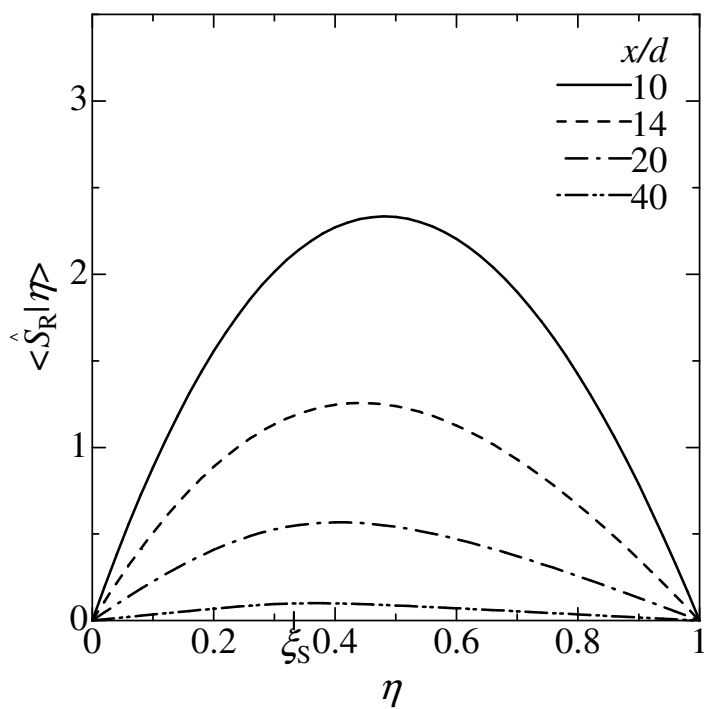
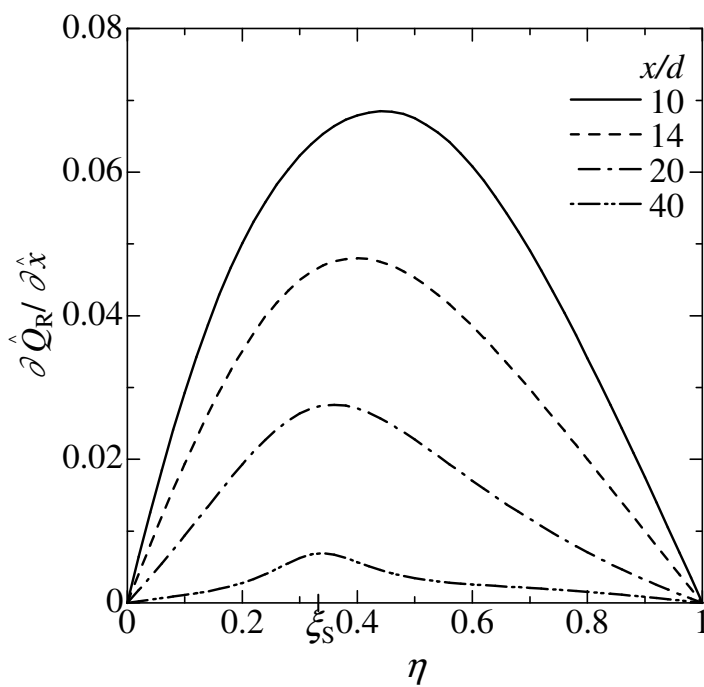


図 2.60 噴流中心における条件付反応速度

図 2.61 噴流中心上における $\partial \hat{Q}_R / \partial \hat{x}$ の分布

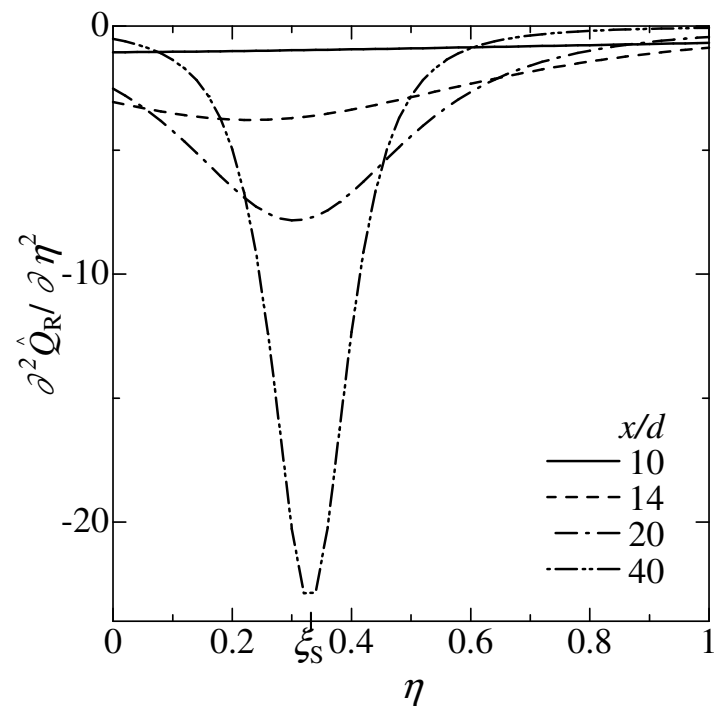


図 2.62 噴流中心上における $\partial^2 \hat{Q}_R / \partial \eta^2$ の分布

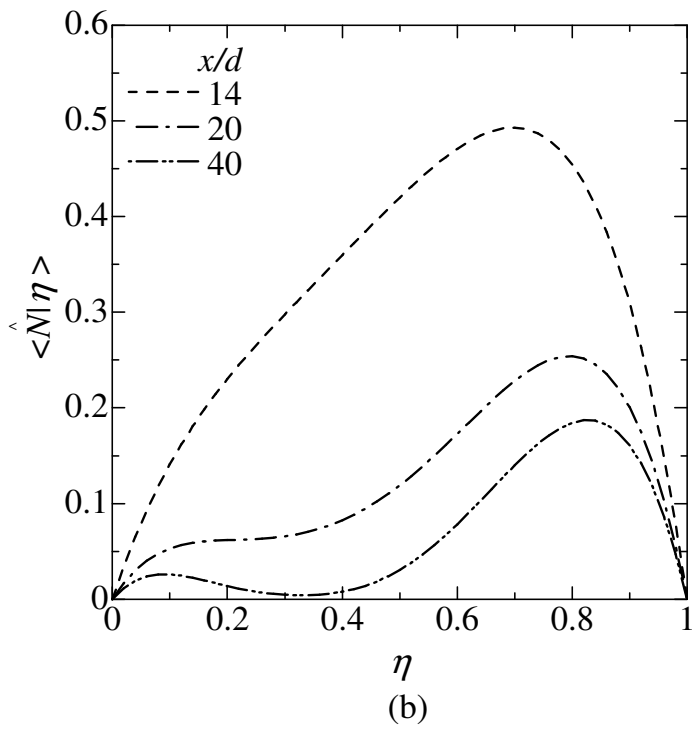
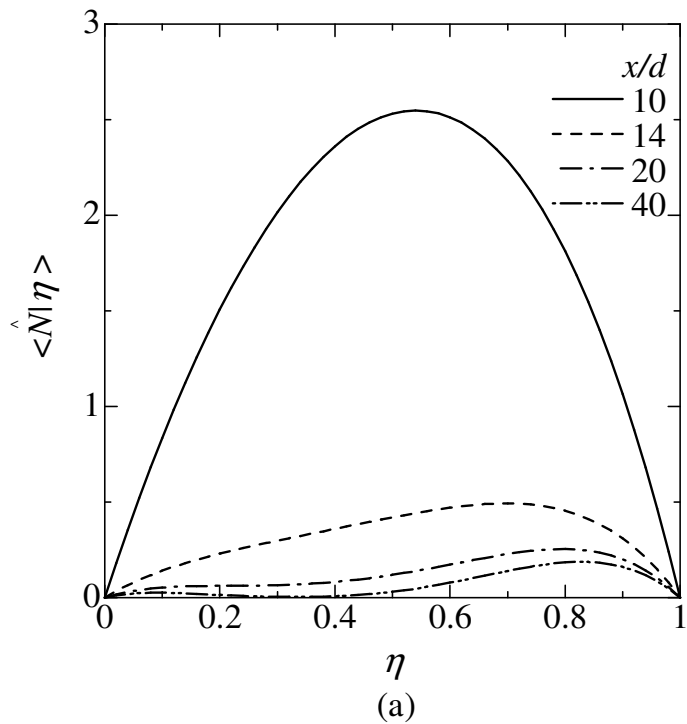


図 2.63 噴流中心上における条件付スカラー散逸率の分布

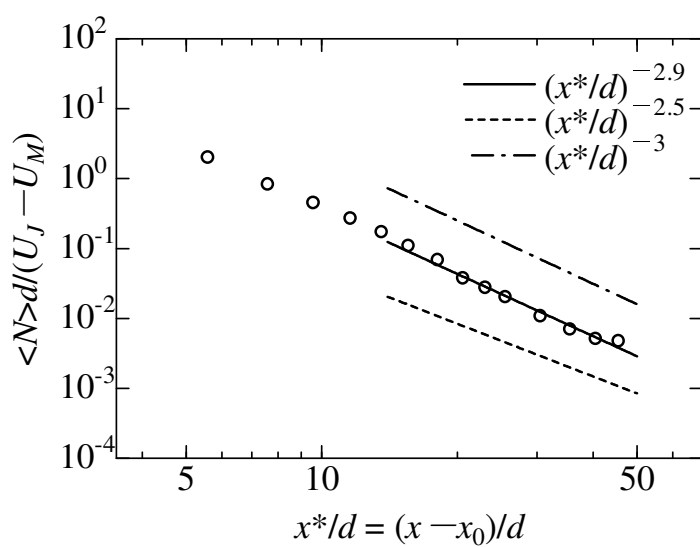


図 2.64 平均スカラ散逸率の噴流中心における分布

2.7 結言

本章では、二次元噴流中で生じる二次の化学反応 ($A + B \rightarrow R$) の特性を明らかにすることを目的として実験を行った。反応物質 A は噴流溶液中に、反応物質 B は周囲流体中に含まれる物質である。実験では、吸光光度法に基づく濃度測定用光ファイバプローブと速度測定用 I 型熱膜プローブを組み合わせた複合プローブを用いることで、反応性物質濃度と流れ方向速度の同時測定を行った。得られた主な結論を以下にまとめる。

- 反応物質 A および反応物質 B の乱流流束に対する化学反応の影響は、噴流出口付近と噴流の十分下流や外縁部付近では特性が異なる。噴流出口付近の中心線上付近では無反応の場合と比較して、化学反応の影響により物質 A の物質流束は正に大きくなり、物質 B の物質流束は 0 に近づく。逆に十分下流や外縁部では無反応の場合と比べて、化学反応の影響により物質 A の物質流束は 0 に近づき、物質 B の物質流束は負に大きくなる。また、反応による生成物質 R の物質流束は噴流出口付近では負の値となるが、噴流の下流や外縁部付近では正の値となる。
- 反応物質 A, B の濃度変動と速度変動のコスペクトルについて無反応極限との差は乱れの強い周波数域で大きくなる。また、この周波数域において、生成物質 R のコスペクトルは噴流の下流域や外縁部に近づくにつれて大きく変化する。このように、乱れの強い周波数域で、化学反応は反応性物質の乱流物質フラックスに対して大きな影響を与える。
- 噴流中に含ませた反応物質 A の場合、流れ方向の乱流拡散係数 D_{tA} は無反応の場合よりも小さくなる。主流中に含ませた反応物質 B の場合、物質 B の平均濃度が下流に行くにつれて減少する領域で乱流拡散係数 D_{tB} は負の値をとり、逆こう配拡散現象が生じる。乱流拡散係数は化学反応によって大きく変化し、こうした乱流拡散係数の変化に対応して、乱流 Schmidt 数も同様に変化する。乱流拡散係数あるいは乱流 Schmidt 数を一定と仮定した場合、逆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。
- 反応物質 A, B の濃度相関の y 方向分布 (y : 噴流広がり方向) は噴流上流域の噴流中心から外れた位置や噴流下流域の噴流中心で極小値をとる。反応物質 A, B の濃度相関は、噴流上流域の外縁付近では化学反応により負に大きくなり、他の位置では化学反応によりその大きさが小さくなる。また、噴流上流域の外縁付近での濃度相関の変化は、反応物質 A, B の初期濃度比と化学量論となる濃度比との違いによる濃度相関の変化が大きくなることにより生じる。また、瞬間反応極限での濃度から求めた濃度相関は位置によらず無反応の場合の濃度相関よりも大きさが小さくなる。

- Toor のモデルは $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の大きさを実験値よりも小さく見積もる．化学反応による $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の変化が小さい位置では 3E モデルにより実験値に近い値が得られるが，化学反応による $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ 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．
- 反応性物質の条件付平均濃度 Q_α ($\alpha = A, B, R$) は無反応極限と瞬間反応極限での濃度の間に分布し，噴流上流域では無反応極限の濃度に近い値を持つが，噴流下流に向かうにつれて反応が進行し瞬間反応極限の濃度に近づく．噴流中心付近では，条件付平均反応速度が最大となる混合分率に対して Q_R が最大となり，さらにこのとき $Q_A/\Gamma_{A0} = Q_B/\Gamma_{B0}$ となる．噴流下流域における Q_α は， y 方向の位置によらずほぼ同一の分布となる．しかし，噴流上流域の噴流中心に近い位置では，噴流中心から離れるにつれて Q_A, Q_B は減少し， Q_R は増加する．また，噴流上流の噴流外縁付近では， Q_α は y 方向位置によらずほぼ同一の分布となる．
- 反応性物質の条件付濃度変動の分散および共分散 $G_{\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = A, B, R$) の大きさは α, β によらず等しくなる．噴流上流域において， $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は噴流外縁部に向かうにつれて大きくなるが，噴流下流域では噴流外縁部に向かうにつれて $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は小さくなる．また， $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は量論混合となる混合分率 ξ_S に近い η ，あるいは ξ_S よりやや小さい η に対してピーク値を持つ分布となる．
- 化学反応による物質 R の生成速度項の条件付平均値 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ を実験により計測し，CMC 法で一般的に用いられているモデルである反応物質の条件付平均濃度の積から得られる条件付平均反応速度の値と比較した．その結果，本研究の流れ場，反応場において，条件付平均反応速度項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が示された．噴流上流域の噴流外縁付近において， $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は y 方向位置によらずほぼ同一となる．しかし，噴流上流域の噴流中心付近では，噴流中心から離れるにつれて $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は減少した． $x/d = 40$ では $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ の値は y 方向に僅かに変化するものの， $x/d = 10$ での値と比較して非常に小さい値となる．
- 二次元噴流の中心軸上において $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da\beta\hat{Q}_R$ により定義される $\beta(x, \eta)$ が η によらずほぼ一定となることが確かめられた．二次反応 $A + B \rightarrow R$ では，条件付平均反応速度 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は混合分率の条件 η と生成物質の条件付平均濃度 \hat{Q}_R の関数として表すことができる． $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ ， η および \hat{Q}_R の関係式に対して， β が η によらないことを考慮することで，実験により計測した \hat{Q}_R と η の関係を表す近似式が得られることが確認できた．
- 実験結果より求めた条件付統計量を用いて，CMC 方程式から条件付スカラ散逸率 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ を算出した． $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は下流に行くにつれて小さくなるとともに，その分布

形状に大きな変化が見られた。 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は、噴流上流域では一つの極大値を持つ分布となるが、下流に行くにつれて小さくなるとともに二つの極大値を持つ分布となる。さらに、CMC 方程式より求めた条件付スカラ散逸率と混合分率の確率密度関数より、スカラ散逸率の平均値 $\langle \hat{N} \rangle$ を求めた。二次元噴流の中心軸上において、 $\langle \hat{N} \rangle$ は $\langle \hat{N} \rangle \propto (x^*/d)^{-2.9}$ に従って変化することが確認できた。この減衰の指数は Peters ら^[108] により得られている $\langle \hat{N} \rangle \propto (x^*/d)^{-3}$ に近い値であり、本研究で用いた方法により条件付スカラ散逸率が正しく見積もられていたことを示唆している。本研究では、計測結果が測定装置の空間分解能に依存し難い反応性物質の濃度や速度の条件付統計量を用いて条件付スカラ散逸率を算出した。そのため、従来計測が困難であった液相乱流中のスカラ散逸率を求めることができた。

第3章

反応性二次元噴流の直接数値計算

3.1 緒言

化学反応を伴う流れ場の問題を解明するための最も合理的な方法は、流れ場の支配方程式と反応性スカラの輸送方程式を連立させて解く直接数値計算 (DNS) 法を用いた数値計算である。DNS では瞬時場の物理量の時間・空間的な分布を高い精度で得ることができる。本章では二次反応 $A + B \rightarrow P$ を伴う二次元噴流の DNS を行い、流れ場・反応場の可視化や統計量の算出により噴流中で生じる化学反応について調査した。化学反応定数を変化させて数値計算を行うことで、反応速度定数の違いが噴流中の化学反応場に与える影響について考察した。

3.2 計算対象

本章で計算対象とする流れ場の概略図を図 3.1 に示す。反応物質 B を含む周囲流中に、反応物質 A を含む流体を幅 d のスリットから噴出する。噴流中で二つの反応物質が混合することにより二次の不可逆反応 $A + B \rightarrow P$ が進行し、反応生成物質 P が生成する。ここで、反応性物質の濃度が十分に小さく、各反応性物質は流れ場に影響を与えないものとする。噴流出口中心を座標系の原点とし、流れ方向に x 軸を、二次元噴流の広がり方向に y 軸を、スパン方向に z 軸をとる。速度場 U_i および濃度場 Γ_α の支配方程式は連続の式、Navier-Stokes 方程式、反応性物質 A, B, P の瞬時濃度の輸送方程式であり、流れ場の非圧縮性を仮定すると次式のように表すことができる。

$$\frac{\partial U_j}{\partial x_j} = 0 \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial U_j U_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 U_i}{\partial x_j \partial x_j} \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial U_j \Gamma_\alpha}{\partial x_j} = D \frac{\partial^2 \Gamma_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} + S_\alpha \quad (3.3)$$

ここで, $\alpha = A, B, P$ であり, 各物質の分子拡散係数は等しく D とした. また, S_α は化学反応による物質 α の生成速度であり, 二次反応 $A + B \rightarrow P$ では次式により表される.

$$S_P = -S_A = -S_B = k\Gamma_A\Gamma_B \quad (3.4)$$

ここで k は反応速度定数である. 本研究では, 反応物質 A, B に対する式 (3.3) を解く代わりに, 次式で定義される混合分率 ξ の輸送方程式を解いた.

$$\xi = \frac{\Gamma_A - \Gamma_B + \Gamma_{B0}}{\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (3.5)$$

Γ_{A0}, Γ_{B0} は物質 A, B の初期濃度であり, 第二章の実験と同様に $\Gamma_{A0} = 2\Gamma_{B0}$ とした. 化学量論となる混合分率 ξ_S は次式で定義される.

$$\xi_S = \frac{\Gamma_{B0}}{\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}} \quad (3.6)$$

$\Gamma_{A0} = 2\Gamma_{B0}$ のとき, $\xi_S = 0.333$ となる. ξ の輸送方程式は反応物質 A, B に対する式 (3.3) より得られ, 以下ようになる.

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + \frac{\partial U_j \xi}{\partial x_j} = D \frac{\partial^2 \xi}{\partial x_j \partial x_j} \quad (3.7)$$

式 (3.7) と生成物質 P の瞬時濃度 Γ_P に対する式 (3.3) を解いたのち, 反応物質 A, B の瞬時濃度を反応性物質の質量保存則を表す次式より求めた.

$$\Gamma_A = \xi\Gamma_{A0} - \Gamma_P \quad (3.8)$$

$$\Gamma_B = (1 - \xi)\Gamma_{B0} - \Gamma_P \quad (3.9)$$

本研究では, Reynolds 数 $Re = U_J d / \nu$ を 2,200, Schmidt 数 $Sc = \nu / D$ を 1 とした. ここで, U_J は噴流出口内の断面平均流速である. 噴流出口内の境界条件は, 第二章で用いた二次元噴流の実験装置で計測された噴流出口近傍 ($x/d = 0.5$) の流れ方向平均流速 U_{in} と流れ方向速度の変動 rms 値 u_{rms} の y 方向分布を参考に決定した. 図 3.2 に計測された U_{in} , u_{rms} の y 方向分布を示す. 図中には数値計算で境界条件の設定に用いた平均流速 U_{in} と x, y, z 方向の速度変動 rms 値 $u_{rms}, v_{rms}, w_{rms}$ が実線, 破線, 一点鎖線により示されており, それぞれ以下の式で与えられる.

$$\frac{U_{in}(y)}{U_J} = \sum_{n=0}^5 A_n \left(\frac{y}{d} \right)^{2n} \quad (3.10)$$

$$\frac{u_{rms}(y)}{U_J} = \sum_{n=0}^5 B_{u,n} \left| \frac{y}{d} \right|^n, \frac{v_{rms}(y)}{U_J} = \sum_{n=0}^5 B_{v,n} \left| \frac{y}{d} \right|^n, \frac{w_{rms}(y)}{U_J} = \sum_{n=0}^5 B_{w,n} \left| \frac{y}{d} \right|^n \quad (3.11)$$

上式の係数 $A_n, B_{u,n}, B_{v,n}, B_{w,n}$ を表 3.1 にまとめて示す. v_{rms}, w_{rms} の分布は平行平板間乱流中の速度変動 rms 値の分布を参考に決定した. 噴流出口の境界における速度が式

(3.10), (3.11) を満たすように境界条件を設定した． $x = 0$ での周囲流の流れ方向平均流速を $U_M = 0.056U_J$ とした．流れ場の時間スケールの化学反応の時間スケールに対する比を表す Damköhler 数 $Da = k(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})d/U_J$ が 0.1, 1, 10 となる三つの化学反応に対して DNS を行った．ここで，Damköhler 数の違いは反応速度定数の違いを意味する．なお，本研究では， U_J , d および次式で定義される Γ_{P0} で無次元化された支配方程式を解くことで数値計算を行った．

$$\frac{\Gamma_A}{\Gamma_{A0}} + \frac{\Gamma_B}{\Gamma_{B0}} + \frac{\Gamma_P}{\Gamma_{P0}} = 1 \quad (3.12)$$

3.3 計算手法

連続の式と Navier–Stokes 方程式の連立に部分段階法を用いた． y 方向の粘性項には Crank–Nicolson 法を，その他の項には三次精度低記憶容量 Runge–Kutta 法を時間進行に用いた^[111]． x, z 方向の空間の離散化に四次精度中心差分を， y 方向の空間の離散化には二次精度中心差分を用いた．Poisson 方程式は共役こう配法により解いた．計算領域は $L_x = 13.5\pi d$, $L_y = 13.0\pi d$, $L_z = 2.6\pi d$ とした．計算格子にスタガード格子を用い， x, y, z の各方向の格子数を $N_x = 700$, $N_y = 430$, $N_z = 74$ とした． x, z 方向には等間隔格子を用いた．また， y 方向には噴流中心付近で格子間隔が小さくなるように離散点位置を設定した．

流入境界において，式 (3.11) を満たす一様乱数により生成した速度変動を平均流速に付加することにより境界条件を設定した．また，流出部境界には粘性対流流出条件^[112]を用いた．これは移流速度 U_C を用いて以下のように与えられる．

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + U_C \frac{\partial U_i}{\partial x} = \nu \frac{\partial^2 U_i}{\partial y^2} + \nu \frac{\partial^2 U_i}{\partial z^2} \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial t} + U_C \frac{\partial \Gamma_\alpha}{\partial x} = D \frac{\partial^2 \Gamma_\alpha}{\partial y^2} + D \frac{\partial^2 \Gamma_\alpha}{\partial z^2} \quad (3.14)$$

移流速度 U_C には各時間ステップにおける境界での x 方向速度 U のスパン方向 (z) 平均値を与えた． $y = \pm L_y/2$ の x – z 平面の境界では $\partial U_i / \partial y = 0$ を用いて境界条件を設定した．境界上での反応性物質の濃度は噴流出口内で $\Gamma_A = \Gamma_{A0}$, $\Gamma_B = \Gamma_P = 0$ ，周囲流体中で $\Gamma_B = \Gamma_{B0}$, $\Gamma_A = \Gamma_P = 0$ とした．このとき，式 (3.5) より，噴流出口内で $\xi = 1$ ，周囲流体中で $\xi = 0$ となる．

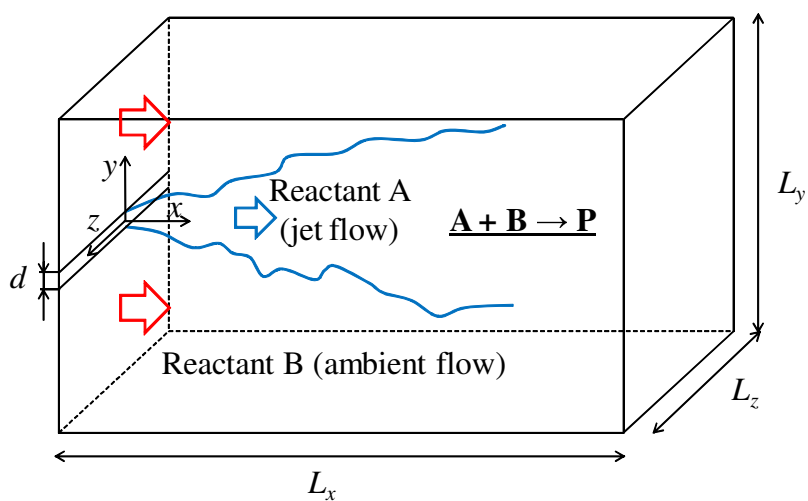


図 3.1 計算対象の概略図

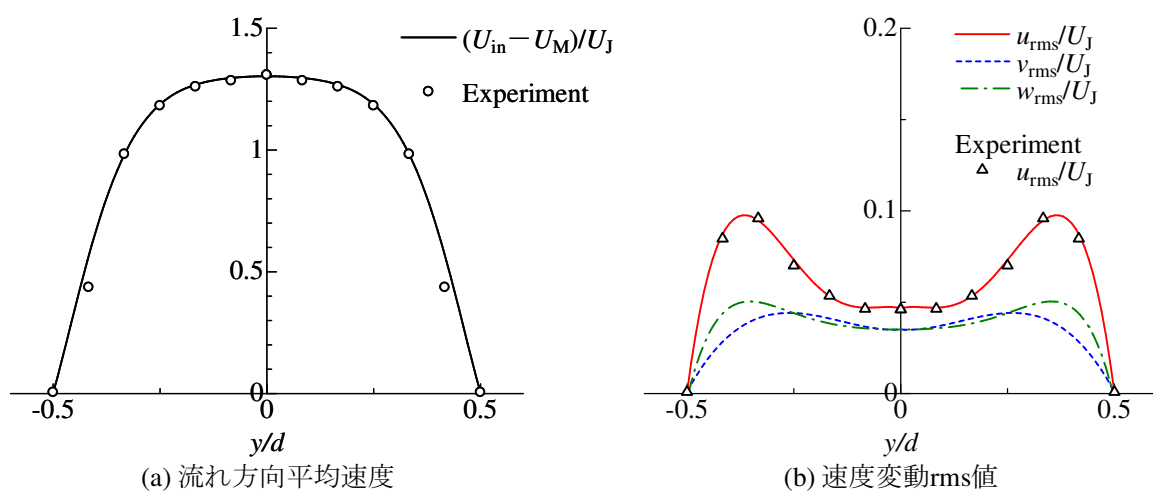


図 3.2 噴流出口における速度統計量

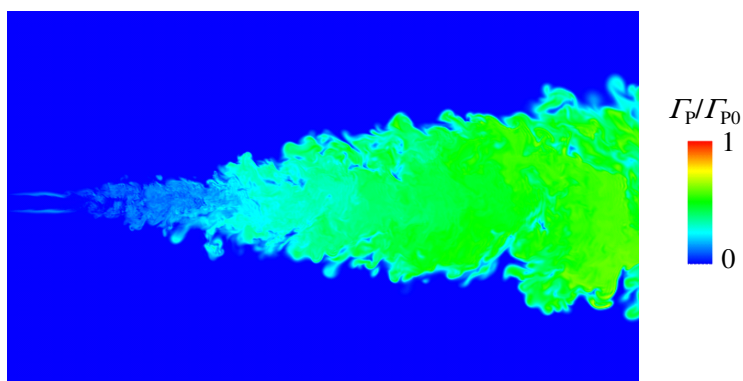
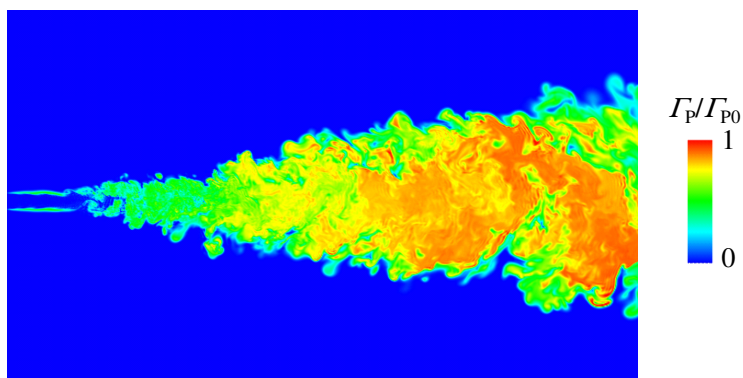
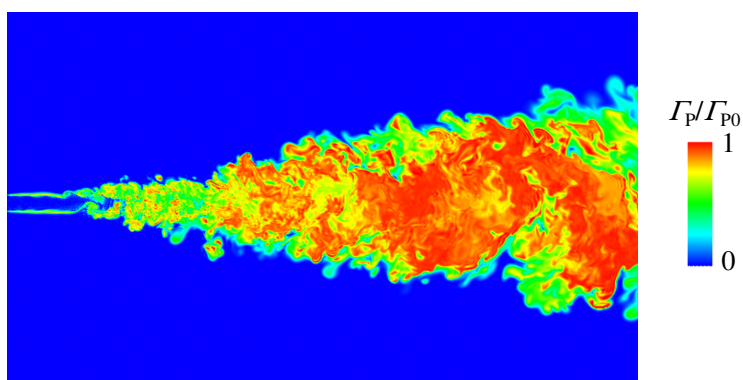
表 3.1 式 (3.10), (3.11) の係数 $A_n, B_{u,n}, B_{v,n}, B_{w,n}$

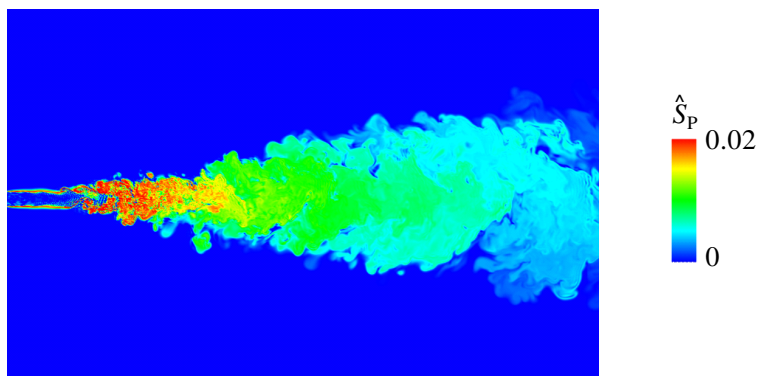
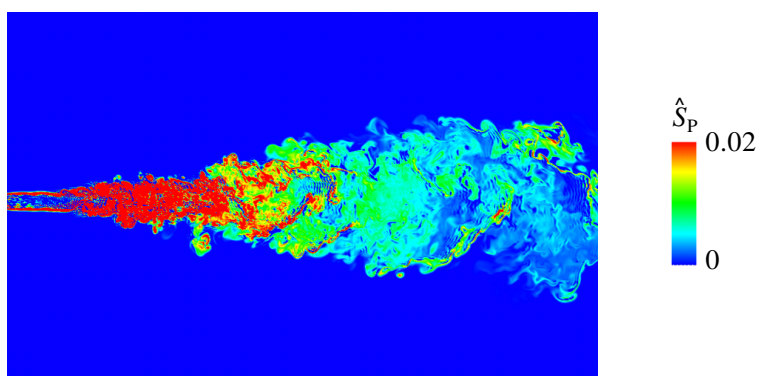
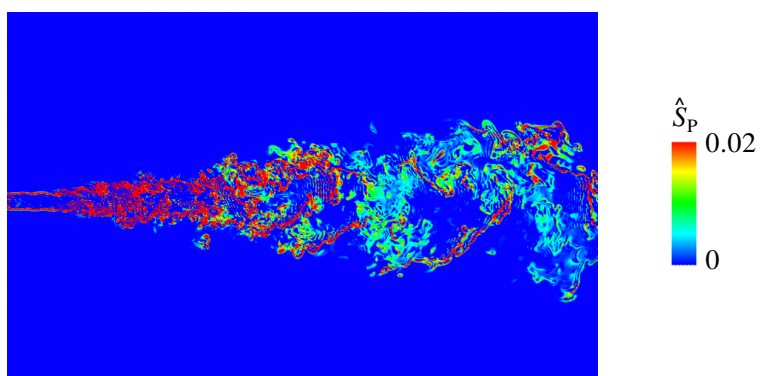
n	0	1	2	3	4	5
A_n	1.30E+00	-9.23E+00	-8.57E+00	-1.21E+02	3.46E+02	0
$B_{u,n}$	4.67E-02	5.47E-02	-1.37E+00	1.04E+01	-1.66E+01	0
$B_{v,n}$	3.51E-02	-1.56E-02	5.19E-01	-1.25E+00	0	0
$B_{w,n}$	3.51E-02	-3.55E-03	1.93E-01	-1.19E+00	7.36E+00	-1.27E+01

3.4 反応場の可視化

図 3.3 にそれぞれ, $Da = 0.1, 1, 10$ での生成物質の瞬時濃度 Γ_P/Γ_{P0} の分布を示す. 式 (3.8), (3.9) より $\Gamma_{P0} = \Gamma_{A0}\Gamma_{B0}/(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ となる. 各図の赤色は $\Gamma_P/\Gamma_{P0} = 1$, 青色は $\Gamma_P/\Gamma_{P0} = 0$ を表す. 図 3.3 に示した生成物質 P の分布より, Da が増加するにつれて Γ_P が増加することがわかる. 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にのみ見られるが, 噴流下流域の生成物質 P は噴流内部に広く分布している. 噴流下流域へ向かうにつれて Γ_P の分布が変化する過程として, 以下の二つが考えられる. (1) 噴流ノズル近傍の噴流と周囲流体の境界で生成した物質が噴流の発達とともに噴流内部へ拡散する. (2) 噴流が発達し周囲流体と噴流が十分に混合した下流域で化学反応が進行する.

図 3.4 (a), (b), (c) にそれぞれ $Da = 0.1, 1, 10$ の化学反応による物質 P の生成速度を示す. 図中の生成速度は Γ_{P0}, U_J, d で無次元化されており, $\hat{S}_P = Da\hat{\Gamma}_A\hat{\Gamma}_B$ により表される. ここで, $\hat{\Gamma}_\alpha = \Gamma_\alpha/\Gamma_{\alpha0}$ である. 図 3.4 の赤色は $\hat{S}_P \geq 0.02$, 青色は $\hat{S}_P = 0$ を表す. 反応速度が速い $Da = 10$ の場合 \hat{S}_P は最大で $\hat{S}_P \approx 1.2$, また, $Da = 1$ の場合であっても \hat{S}_P は最大で $\hat{S}_P \approx 0.2$ となり, 図 3.4 の表示範囲を大きく超えることに注意されたい. 図 3.4 では Da の違いによる反応が生じる位置の変化を調べるため $0 \leq \hat{S}_P \leq 0.02$ の範囲で \hat{S}_P を表示した. 図 3.4 (a) の $Da = 0.1$ の場合, 噴流と周囲流体の境界付近のみならず, 噴流内部でも反応が生じることがわかる. したがって, $Da = 0.1$ の Γ_P の噴流下流域での分布は, (2) 噴流が発達し周囲流体と噴流が十分に混合した下流域で化学反応が進行することによって形成され则认为られる. 一方, $Da = 10$ の場合, 噴流と周囲流体の境界領域で反応が生じていることがわかる. したがって, 図 3.3(c) の生成物質 P の分布は, 噴流と周囲流体の境界上で生成した物質が噴流内部へと拡散していくことで形成されたと考えることができる.

(a) $Da = 0.1$ (b) $Da = 1$ (c) $Da = 10$ 図 3.3 生成物質の瞬時濃度 (青色: $\Gamma_P/\Gamma_{P0} = 0$, 赤色: $\Gamma_P/\Gamma_{P0} = 1$)

(a) $Da = 0.1$ (b) $Da = 1$ (c) $Da = 10$ 図 3.4 反応速度の瞬時値 (青色: $\hat{S}_P = 0$, 赤色: $\hat{S}_P \geq 0.02$)

3.5 流れ場・無反応物質拡散場の統計的性質

3.5.1 平均速度・平均混合分率

図 3.5 に流れ方向速度 U と $x = 0$ での周囲流平均流速 U_M の差の平均値 $\langle U \rangle - U_M$ の噴流中心における下流方向変化を示す．二次元噴流の自己保存領域において，噴流中心での流れ方向平均流速の逆数の二乗は x に比例して増加することが知られている．図中には $(\langle U \rangle - U_M)^{-2}$ の分布も示されており，本研究で行った DNS の結果においても $(\langle U \rangle - U_M)^{-2} \propto x/d$ となることが確認できる．また，図中のプロットは第二章で用いた実験装置で計測された結果を表している．DNS により得られた結果が実験による測定結果と同様の分布を示していることがわかる．

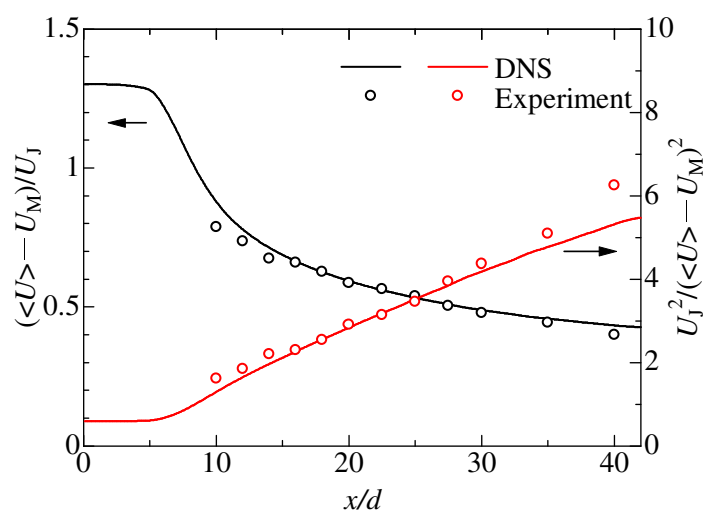
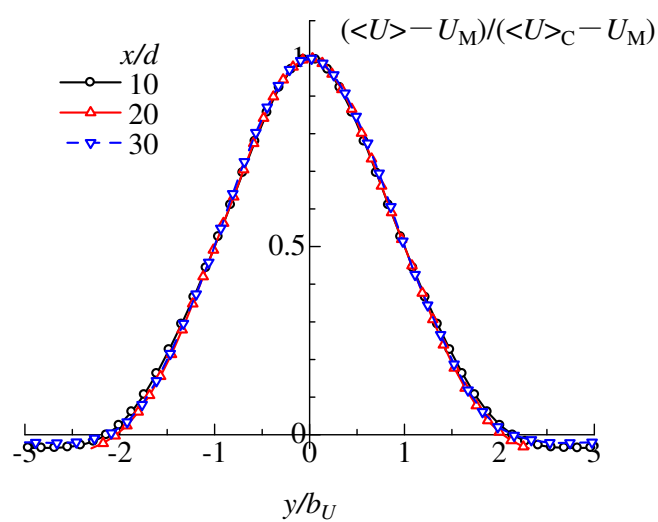
図 3.6 に $\langle U \rangle - U_M$ の $x/d = 10, 20, 30$ における y 方向分布を示す．図中の $\langle U \rangle - U_M$ は噴流中心上での値 $\langle U \rangle_C - U_M$ で無次元化されている．また，図中の横軸は $\langle U \rangle - U_M$ の y 方向分布の半値幅 b_U で無次元化されている．図 3.6 より， $x/d = 10, 20, 30$ の各断面の平均流速分布には自己相似性が確認できる．

図 3.7 に平均混合分率の $\langle \xi \rangle$ の噴流中心における下流方向変化を示す．図中には第二章で用いた実験装置で計測された平均混合分率がともに示されている．第二章の実験において混合分率に対する Schmidt 数は約 600 である．一方，DNS では Schmidt 数を 1 として計算した．平均速度同様に二次元噴流の自己保存領域において，噴流中心での平均混合分率の逆数の二乗は x に比例して増加する．図中の $\langle \xi \rangle^{-2}$ の分布より，本研究の DNS の結果においても $\langle \xi \rangle^{-2} \propto x/d$ となることが確認できる．また，DNS により実験と同様の平均混合分率の分布が得られていることがわかる．分子拡散による濃度変化は Sc の違いによる影響を受ける． $Sc \ll 1$ の場合を除くと，分子拡散による混合分率の拡散は積分スケールなどの大きいスケールではなく小さいスケールで生じる．分子拡散が生じるスケールと比較して混合分率の平均値の分布が変化するスケールが大きい場合，混合分率の平均値の分布は分子拡散ではなく流れによる混合分率の輸送によって決まるため， Sc の違いによらず平均混合分率の分布が同様の分布となったと考えられる．

図 3.8 に混合分率の平均値 $\langle \xi \rangle$ の $x/d = 10, 20, 30$ における y 方向分布を示す． $\langle \xi \rangle$ は噴流中心上での値 $\langle \xi \rangle_C$ で正規化されている．また，図中の横軸は $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている．図 3.8 より， $\langle \xi \rangle$ の分布に自己相似性が成り立っていることがわかる．

図 3.9 に $\langle U \rangle - U_M$ ， $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布の半値幅 b_U, b_ξ の下流方向変化を示す．図中には第二章で用いた実験装置で計測された b_U および b_ξ がともに示されている．二次元噴流の自己保存領域において， b_U, b_ξ は x/d に比例して下流方向に増加する．図 3.9 より，DNS により得られた b_U, b_ξ が x/d に対して直線的に変化していることがわかる．また，拡散物質の Schmidt 数が異なるものの，DNS により得られた b_U, b_ξ は実験値とほぼ一致してい

ることが確認できる．

図 3.5 x 方向平均流速の噴流中心上での下流方向変化図 3.6 x 方向平均流速の y 方向変化

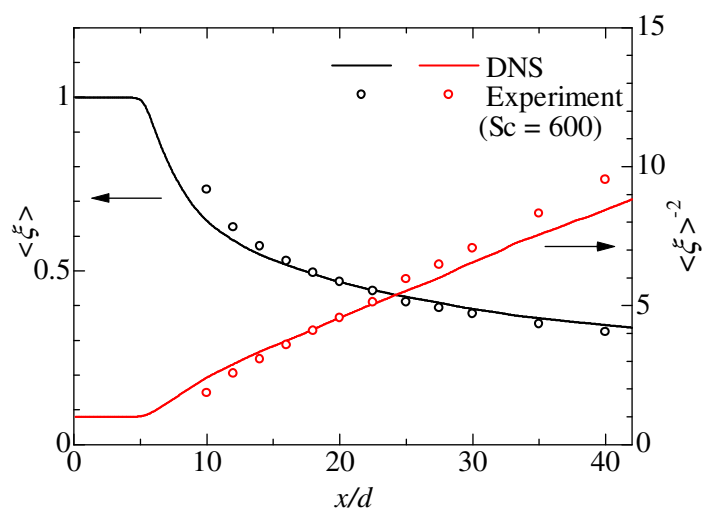
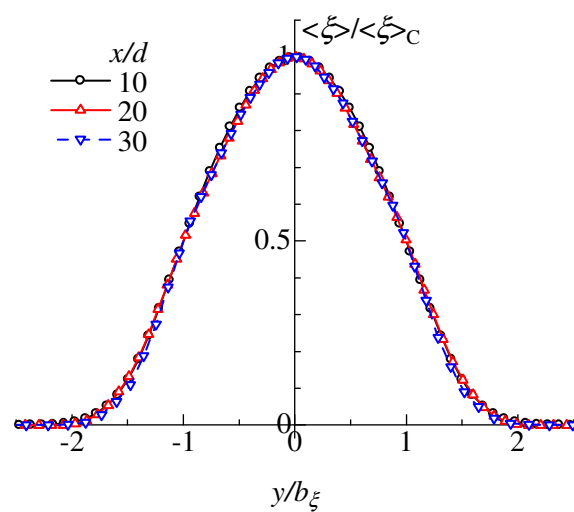


図 3.7 平均混合分率の噴流中心上での下流方向変化

図 3.8 混合分率の平均値 $\langle \xi \rangle$ の y 方向変化

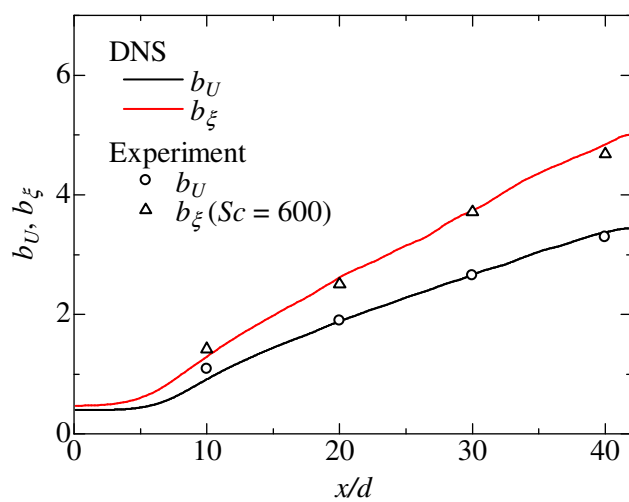


図 3.9 $\langle U \rangle - U_M$ および $\langle \xi \rangle$ の半値幅の下流方向変化

3.6 反応性物質拡散場の統計的性質

3.6.1 平均濃度

図 3.10 に反応性物質の平均濃度 $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ ($\alpha = A, B, P$) の噴流中心上での分布を示す．ここで、 $\langle * \rangle$ は変数*のアンサンブル平均 (本研究で対象とした流れ場は統計的に定常であるため、時間平均と同等である) を表す．図 3.10 中の $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ は $\Gamma_{\alpha 0}$ で無次元化されている．図 3.10(a), (b) には化学反応が生じない場合の物質 A, B の平均濃度がともに示されている．反応物質 A, B の場合、化学反応により濃度が減少するため、反応物質の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle, \langle \Gamma_B \rangle$ は無反応の場合と比較して小さくなる．また、 Da が大きくなるにつれて、無反応の場合の平均濃度からの減少量が大きくなっている．

周囲流体に含まれる物質 B は噴流が発達するとともに噴流内部に取り込まれる．したがって、図 3.10(b) のように、噴流中心付近では無反応の場合の $\langle \Gamma_B \rangle$ は下流に行くにつれて増加する．しかし、化学反応により Γ_B が減少するため、噴流が周囲流体を取り込むことによる物質 B の増加量と反応による減少量の違いによって、反応が生じる場合の $\langle \Gamma_B \rangle$ の噴流中心での分布が変化する．図 3.10(b) より、 $Da = 1$ の場合、 $\langle \Gamma_B \rangle$ は $x/d = 5$ から 9 まで増加し、 $x/d = 20$ 付近まで減少した後、さらに下流では再び増加することがわかる．このような $\langle \Gamma_B \rangle$ の下流方向変化は、第二章の液相二次元噴流中で計測された周囲流体中の反応物質の平均濃度 (図 2.20(b) 参照) においても確認できる． $Da = 0.1$ の場合、噴流と周囲流体が十分に混合した $x/d > 15$ の領域で反応が緩やかに進行するため、 $x/d > 15$ における $\langle \Gamma_B \rangle$ は下流方向に単調減少する分布となった． $Da = 10$ の場合、噴流上流域では物質 B の多くが噴流と周囲流体の境界付近で反応してしまうため、噴流中心付近の $\langle \Gamma_B \rangle$ は 0 に近い値となる．さらに下流では、噴流中の反応物質 A の濃度が小さくなることで反応速度が小さくなるため、噴流中に巻き込まれた物質 B が噴流中心付近まで到達するようになる．そのため、噴流下流域において $Da = 10$ の $\langle \Gamma_B \rangle$ は下流方向に増加する．

図 3.10(c) より、下流に行くにつれて反応が進行し $\langle \Gamma_P \rangle$ が増加すること、そして、 Da が大きくなるにつれて $\langle \Gamma_P \rangle$ が大きくなることがわかる． $Da = 1, 10$ の $\langle \Gamma_P \rangle$ の増加の傾きは $x/d = 10 \sim 20$ 付近で大きくなっており、この位置で反応が大きく進行していることがわかる．噴流下流域 ($x/d > 30$) において、 $Da = 1, 10$ の $\langle \Gamma_P \rangle$ の傾きは非常に小さくなった．噴流下流域では反応物質濃度が小さくなっており、化学反応による物質 P の生成量が少なくなる．そして、噴流の広がりとともに生成した物質 P が拡散していくため、噴流下流域では $\langle \Gamma_P \rangle$ の傾きが小さくなり、さらに下流では負の値となると予想される．

図 3.11, 3.12 に $x/d = 10, 30$ における $\langle \Gamma_\alpha \rangle$ の y 方向分布を示す．図中の横軸は平均混合分率の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている．図 3.10 と同様に、化学反応により $\langle \Gamma_A \rangle, \langle \Gamma_B \rangle$ が小さく、 $\langle \Gamma_P \rangle$ が大きくなることがわかる． $Da = 10$ の場合、 $x/d = 10$ の噴流中心付近での $\langle \Gamma_B \rangle$ は 0 に近い値となっており、この位置に周囲流体中の反応物質 B は

ほとんど存在していないことがわかる．

生成物質 P の場合， $x/d = 10$ において $\langle \Gamma_P \rangle$ は混合分率の y 方向分布の半値幅のやや内側で最大値をとる分布となるが， $x/d = 30$ での $\langle \Gamma_P \rangle$ は噴流中心付近で最大値をとる分布となっている．図 3.11(c) より， $x/d = 10$ において， $\langle \Gamma_P \rangle$ の噴流中心付近での値との最大値の差は， Da が増加するとともに大きくなることがわかる．反応速度の瞬時値 (図 3.4) に見られたように， $Da = 10$ の化学反応は主に噴流と周囲流体の境界付近で生じるため， $x/d = 10$ での $\langle \Gamma_P \rangle$ の y 方向分布は，噴流中心から外れた位置の最大値と噴流中心での値の差が大きい分布となると考えられる．

3.6.2 平均反応速度

図 3.13 に平均反応速度 $\hat{S}_P = Da \langle \Gamma_A \Gamma_B \rangle / (\Gamma_{A0} \Gamma_{B0})$ の噴流中心上の分布を示す．図より，噴流中心上においては， $x/d = 10$ 付近で \hat{S}_P が最大となる分布となることがわかる．また， $x/d = 10$ 付近で $Da = 1, 10$ の \hat{S}_P は $Da = 0.1$ での値と比較して大きな値となる．噴流下流域 ($x/d > 20$) では Da が大きいほど \hat{S}_P が小さくなる傾向が見られる．

図 3.14 に平均反応速度 $\hat{S}_P = Da \langle \Gamma_A \Gamma_B \rangle / (\Gamma_{A0} \Gamma_{B0})$ の $x/d = 5, 10, 30$ の断面での y 方向分布を示す．図 3.14(a) より，噴流出口に近い $x/d = 5$ の位置では，噴流と周囲流体の混合が十分に進んでおらず化学反応は噴流と周囲流体の境界付近で進行するため， \hat{S}_P は噴流中心付近で小さく，また， $|y/b_\xi| = 1$ 付近で最大となる分布となる． Da が大きくなるにつれて $|y/b_\xi| = 1$ 付近での最大値が大きくなった．図 3.14(b), (c) に示した $x/d = 10, 30$ では， $Da = 10$ の反応の \hat{S}_P は噴流中心から外れた位置で最大値を取る分布となった．図 3.14(a) に示されているように， $Da = 10$ の場合，噴流上流部の $|y/b_\xi| = 1$ 付近での反応速度が非常に大きくなる．したがって，噴流中に取り込まれる反応物質 B のほとんどが噴流中心付近に到達するまでに反応するため，噴流中心付近で反応物質 B はほとんど存在していない．これは図 3.11(b), 3.12(b) に示した $Da = 10$ の反応物質 B の平均濃度分布からもわかる． $Da = 10$ では反応物質 B の多くが噴流中に取り込まれる過程で反応するため，噴流上流域では噴流中心から外れた位置で平均反応速度が最大となり，噴流中心では極小値をとる分布となった． $Da = 1$ の場合， $x/d = 10, 30$ において， \hat{S}_P の噴流中心付近での y 方向変化が小さくなっている．また， $Da = 0.1$ の場合の \hat{S}_P の y 方向分布は， $x/d = 10$ では噴流中心付近でほぼ一定となり，さらに下流の $x/d = 30$ では噴流中心で最大となる分布となった． $Da = 0.1, 1$ の場合，噴流に取り込まれた周囲流体中の反応物質 B が噴流中心付近にまで達し，反応が噴流中心付近においても生じるためこのような分布となると考えられる．

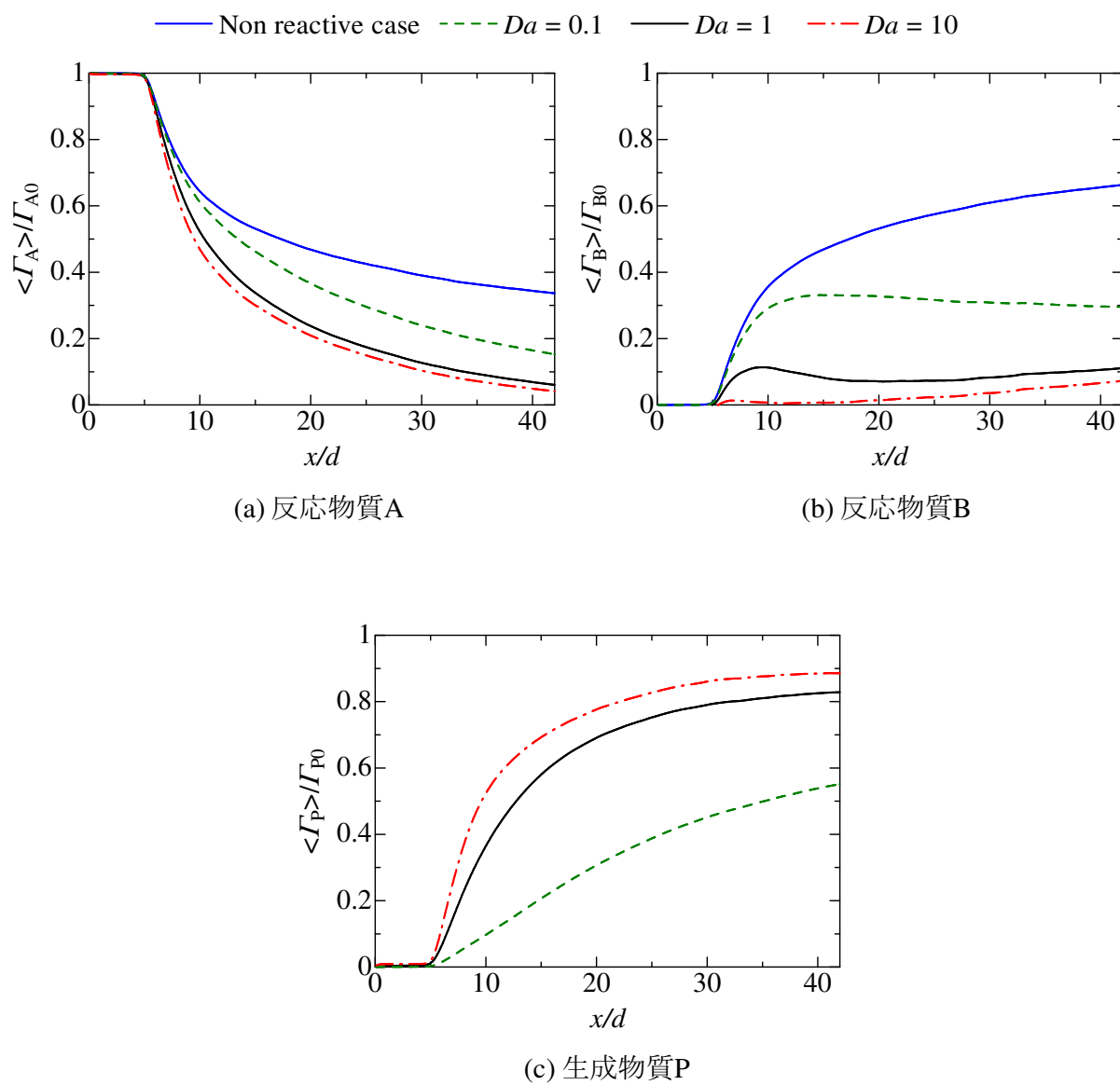
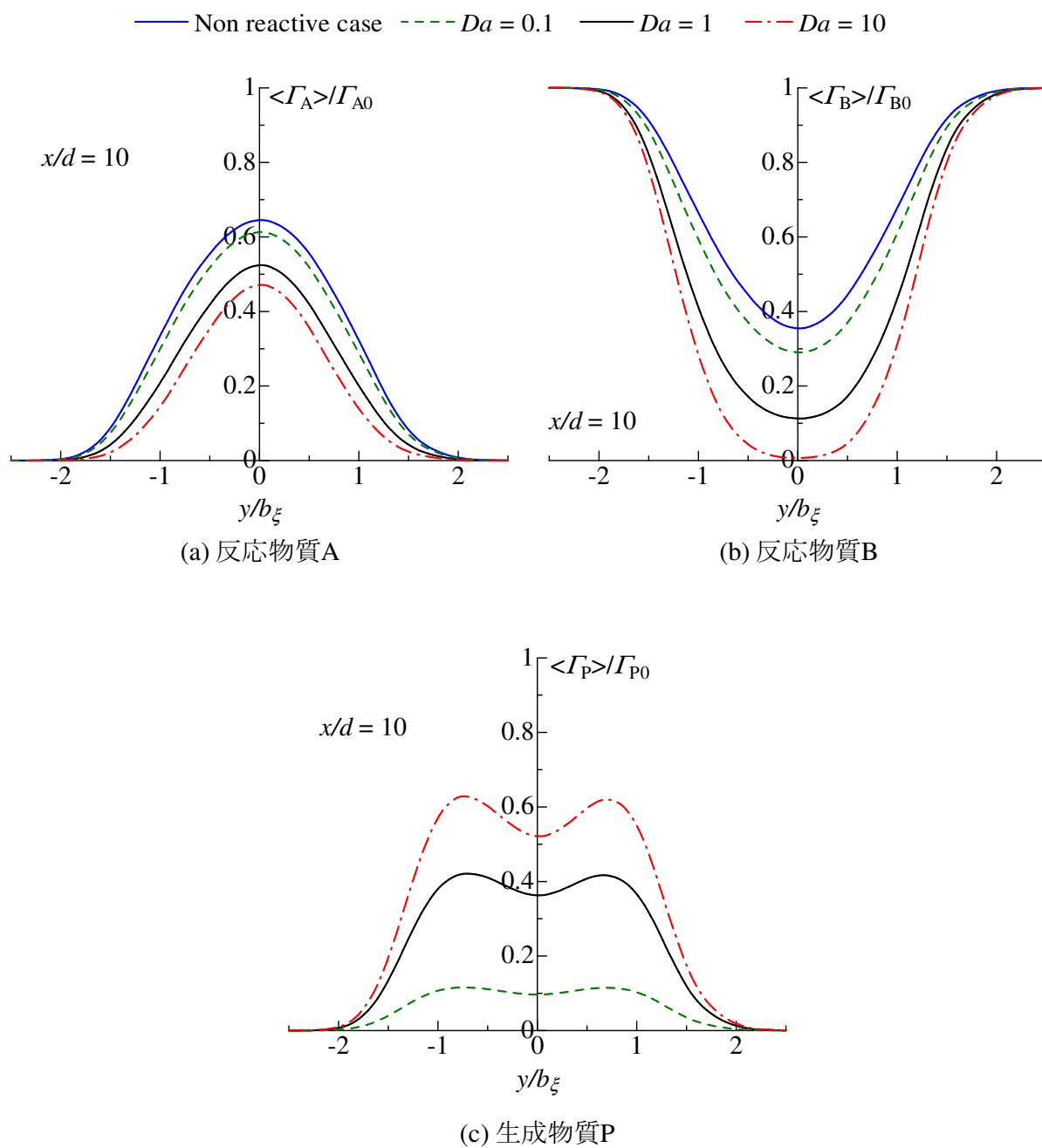
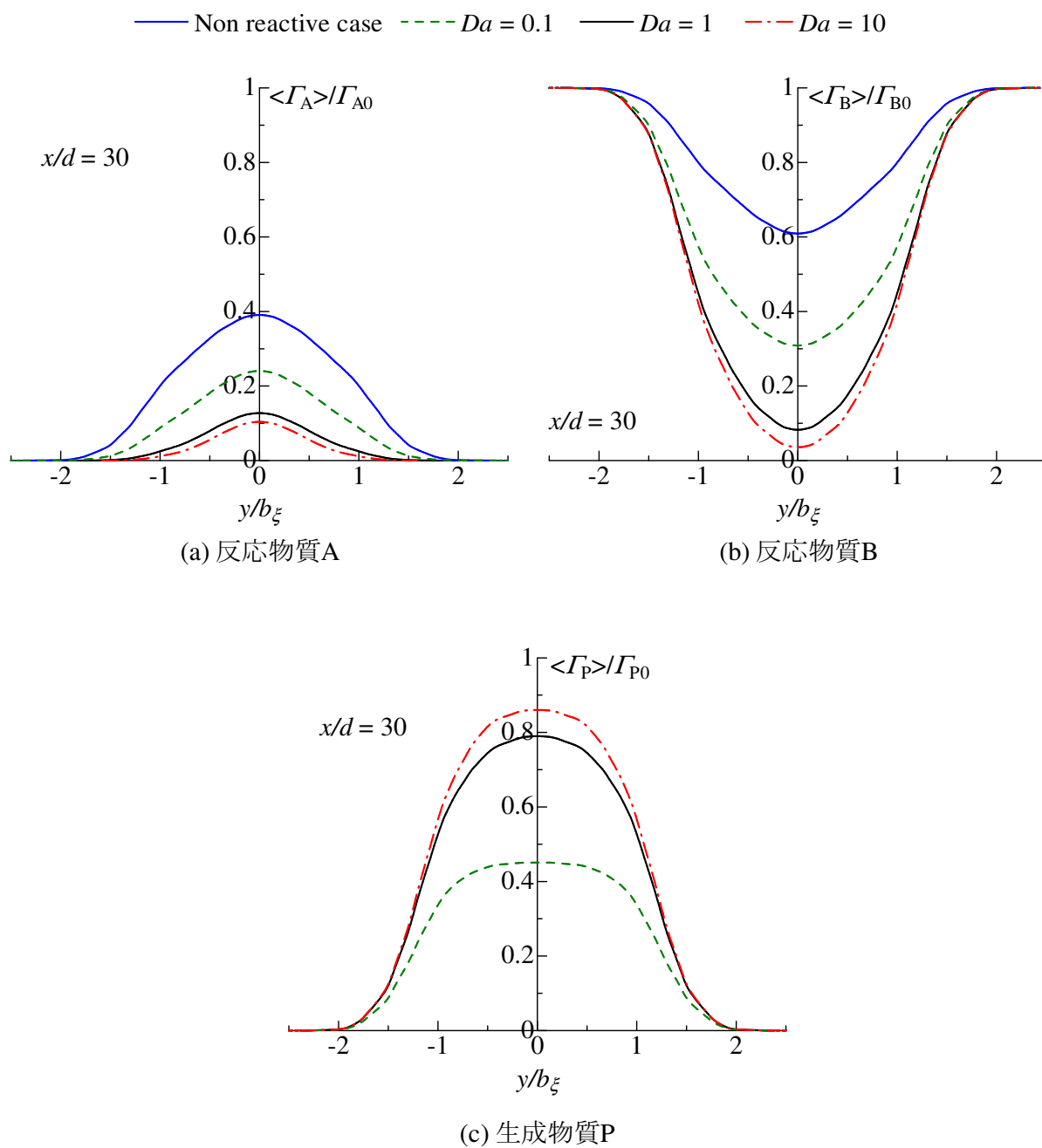


図 3.10 反応性物質の平均濃度の噴流中心上での下流方向変化

図 3.11 反応性物質の平均濃度の $x/d = 10$ における y 方向分布

図 3.12 反応性物質の平均濃度の $x/d = 30$ における y 方向分布

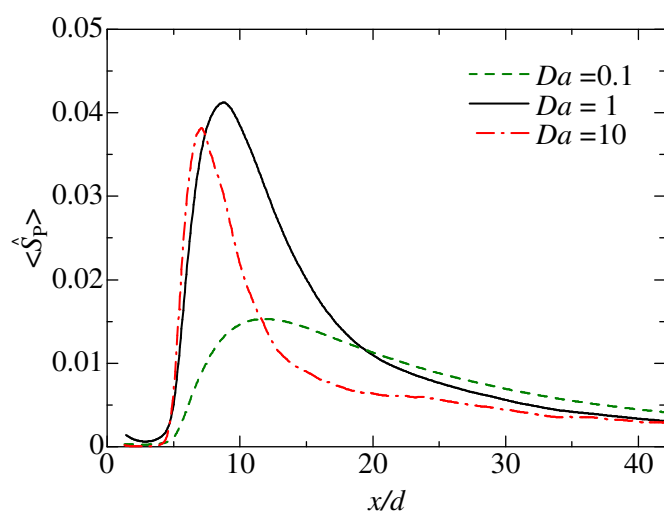
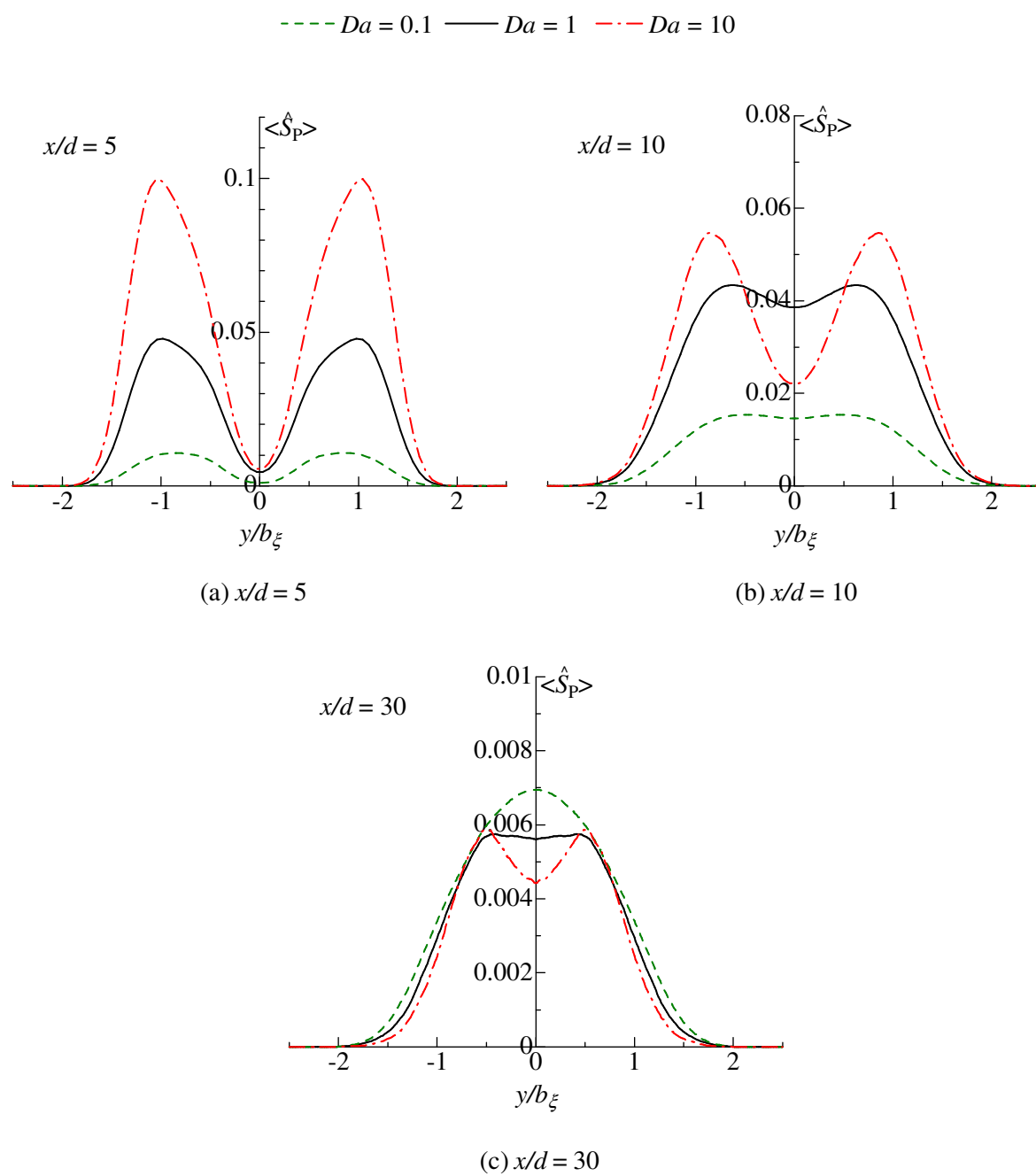


図 3.13 反応速度の噴流中心上での下流方向変化

図 3.14 反応速度の y 方向分布

3.7 結言

本章では化学反応 ($A + B \rightarrow P$, A:噴流物質, B:周囲流物質) を伴う二次元噴流の直接数値計算 (DNS) を行った。DNS は $Da = 0.1, 1, 10$ となる三つの化学反応に対して行われた。ここでは, DNS により得られた主な結果についてまとめる。

DNS により得られた瞬時の流れ場および反応場を可視化することで以下のことがわかった。

- 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している。
- $Da = 10$ の場合, 噴流と周囲流体の境界付近で反応が活発に生じるが, $Da = 0.1$ の場合, 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。

また, 反応性物質濃度場の統計量について以下のことがわかった。

- 噴流上流域において生成物質 P の平均濃度の y 方向 (噴流広がり方向) 分布は混合分率の半値幅のやや内側で極大値をとる分布となるが, 噴流下流域では生成物質 P の平均濃度の y 方向分布は噴流中心付近で最大となる分布となる。また, 噴流下流域では噴流中心付近における生成物質 P の平均濃度の y 方向への変化が小さい。
- 噴流出口に近い位置において, 平均反応速度は噴流中心付近で小さく, $|y/b_\xi| = 1$ 付近で最大となる分布となっており, 噴流出口近くでの化学反応は噴流と周囲流体の境界付近で進行することが確認できた。噴流下流域では, $Da = 10$ の反応の平均反応速度は噴流中心から外れた位置で最大値を取る分布となる。しかし, $Da = 0.1$ の場合, 噴流下流域における平均反応速度の y 方向分布は噴流中心で最大となる。

第4章

Approximate Deconvolution Model を用いたLES–PDF法による反応性乱流 の数値計算

4.1 緒言

乱流中で生じる化学反応に対する数値計算手法として、反応項に関するモデルを必要としない確率密度関数 (PDF) 法が有効であることが知られている。近年、Large Eddy Simulation (LES) を確率密度関数 (PDF) 法と組み合わせた計算手法についての研究が進んでいる。LES と PDF 法による数値計算は、サブグリッドスケール (Sub Grid Scale, SGS) 応力のモデルとして Smagorinsky モデル^[49] (ダイナミック Smagorinsky モデル^[50]) を、SGS スカラ流束のモデルとしてこう配拡散モデル^[51] を用いた形で発展させられてきた。一方、LES で用いるモデルとして、Approximate Deconvolution Model (ADM) が Stolz ら^[54] によって提案され、様々な流れ場に対して応用が進んでいる^[57–64]。Smagorinsky モデルやダイナミック Smagorinsky モデルに見られる渦粘性モデルに起因する欠点は ADM を用いた LES には存在しないことが知られている。また、こう配拡散モデルを用いた LES によりスカラ拡散場を計算する場合、SGS Schmidt 数が拡散物質の分子拡散係数によって変化する可能性がある^[51]。そのため、高 Schmidt 数の流れ場へのこう配拡散モデルの適用には注意を要する。一方、ADM を用いた LES では、モデルの調節をすることなく分子拡散係数の異なる拡散場を計算できるという利点がある。

こうした ADM の特性を踏まえ、本章では ADM を用いた LES を PDF 法と組み合わせた反応性乱流の計算手法を提案する。まず、ADM を用いた LES–PDF 法について次節で説明する。次に本計算手法により乱流中で生じる化学反応場を精度よく予測できることを示すため、第三章で DNS により計算を行った化学反応を伴う二次元噴流に対して ADM を用いた LES–PDF 法を適用した。ADM を用いた LES ではモデルの調節をすることなく分子拡散係数の異なる拡散場を扱うことが可能であるため、ADM を用いた LES–PDF

法は高 Schmidt 数の反応性物質拡散場の予測に適した手法であると予想される．そこで，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．計算対象として，Michioka ら^[29]により LES による数値計算が，酒井ら^[113]や鈴木ら^[114]により確率密度関数法による数値計算が行われている液相スカラー混合層中で生じる化学反応場を選んだ．酒井らは速度場に対して単純化 Langevin モデルを用いることで，鈴木らは速度場をランダムフーリエモード法により与えることで PDF 法による数値計算を行っている．これらの数値計算では，数値計算パラメータを設定するため，速度場および無反応濃度場の Komori らによる実験結果^[78,83]を用いている．これに対して本研究では実験による計測結果をパラメータ設定に用いることなく数値計算を行った．

4.2 Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた LES–PDF 法

4.2.1 Large Eddy Simulation (LES)

非圧縮性流体を仮定すると，連続の式，Navier–Stokes 方程式，保存スカラー量 ϕ の輸送方程式は

$$\frac{\partial U_j}{\partial x_j} = 0 \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial U_j U_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 U_i}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4.2)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \frac{\partial U_j \phi}{\partial x_j} = D \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4.3)$$

となる．ここで， U_i は i 方向瞬時速度， P は瞬時圧力である．また， ν は動粘性係数， D は ϕ に対する拡散係数である．空間的なフィルタ操作 G を次式のように定義する．

$$\bar{f}(x, y, z) \equiv G * f \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} G(x - x', y - y', z - z') f(x', y', z') dx' dy' dz' \quad (4.4)$$

式 (4.1), (4.2), (4.3) に対してフィルタ G をかけることにより，以下の式が得られる．

$$\frac{\partial \bar{U}_j}{\partial x_j} = 0 \quad (4.5)$$

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \frac{\partial \bar{U}_j \bar{U}_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 \bar{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4.6)$$

$$\frac{\partial \bar{\phi}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{U}_j \bar{\phi}}{\partial x_j} = D \frac{\partial^2 \bar{\phi}}{\partial x_j \partial x_j} \quad (4.7)$$

LES ではフィルタ G として空間的なローパスフィルタを用いる．LES では式 (4.5), (4.6), (4.7) を有限差分法などにより数値的に解くことで，フィルタをかけられた速度場 \bar{U}_i と

スカラ場 $\bar{\phi}$ を計算する．その際，式 (4.6) の非線形項 $\partial \bar{U}_j \bar{U}_i / \partial x_j$ と式 (4.7) の対流輸送項 $\partial \bar{U}_j \bar{\phi} / \partial x_j$ に対するモデルが必要となる．

4.2.2 Approximate Deconvolution Model を用いた LES とフィルタ操作による LES

Apprpximate Deconvolution Model (ADM) では，フィルタをかける前の速度場 U_i ，スカラ場 ϕ を，フィルタをかけられた変数を用いて近似的に求めることで式 (4.6) の非線形項と式 (4.7) の対流輸送項をモデル化する．フィルタ G に対して次式により定義される逆フィルタ (Inverse Filter, Deconvolution Filter) G^{-1} を考える．

$$\bar{f} \equiv G * f \quad (4.8)$$

$$f \equiv G^{-1} * \bar{f} \quad (4.9)$$

フィルタ G に対して G^{-1} を求めることができれば， $U_i = G^{-1} * \bar{U}_i$ ， $\phi = G^{-1} * \bar{\phi}$ により U_i と ϕ を求め，式 (4.6) および (4.7) を閉じることができる．しかし，フィルタ G に対して G^{-1} が必ずしも存在するとは限らない．また，LES で用いられるローパスフィルタでは変数の高波数成分をほとんど減衰させるため，ローパスフィルタに対する G^{-1} は変数の高波数成分を非常に大きく（場合によっては無限に）増幅させるフィルタとなる．そのため， G^{-1} の演算は数値的に不安定になることが多い．そこで， G^{-1} を近似するフィルタを用いて \bar{U}_i と $\bar{\phi}$ から U_i と ϕ に対する近似値を計算する．

van Cittert deconvolution 法^[115] により $G^{-1} \approx Q_N$ を満たす Q_N が以下のように求められる．

$$Q_N = \sum_{n=0}^N (I - G)^n \quad (4.10)$$

ここで， I は恒等演算子である．式 (4.10) より求めた Q_N より，

$$U_i \approx \tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i \quad (4.11)$$

$$\phi \approx \tilde{\phi} = Q_N * \bar{\phi} \quad (4.12)$$

が得られる． $N = 1$ とすると， $Q_1 = I + (I - G) = 2I - G$ より， $U_i \approx 2\bar{U}_i - G * \bar{U}_i$ となる．これはスケール相似側モデル $U_i - \bar{U}_i = \bar{U}_i - G * \bar{U}_i$ に対応している．ADM を用いた LES では $G^{-1} \approx Q_N$ を求めるために $N = 3 \sim 5$ として式 (4.10) が用いられている^[57]．

式 (4.6) の非線形項と式 (4.7) の対流輸送項に $U_i \approx \tilde{U}_i$ ， $\phi \approx \tilde{\phi}$ を代入することで，フィ

ルタをかけられた Navier-Stokes 方程式および ϕ の輸送方程式は以下ようになる。

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_i \tilde{U}_j}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} - \nu \frac{\partial^2 \bar{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} = 0 \quad (4.13)$$

$$\frac{\partial \bar{\phi}}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_j \tilde{\phi}}{\partial x_j} - D \frac{\partial^2 \bar{\phi}}{\partial x_j \partial x_j} = 0 \quad (4.14)$$

LES で用いる粗い計算格子ではエネルギーを散逸させる散逸領域を計算することができない。そこで, SGS 生じるエネルギーの散逸をモデル化するため, Relaxation 項 $-\chi(I - Q_N * G) * \bar{U}_i$, $-\chi(I - Q_N * G) * \bar{\phi}$ を, それぞれ式 (4.13), (4.14) の右辺に加える^[57]。したがって, ADM を用いた LES における速度場 \bar{U}_i とスカラー量 $\bar{\phi}$ の支配方程式は以下のようにまとめられる。

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_i \tilde{U}_j}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} - \nu \frac{\partial^2 \bar{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} = -\chi(I - Q_N * G) * \bar{U}_i \quad (4.15)$$

$$\frac{\partial \bar{\phi}}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_j \tilde{\phi}}{\partial x_j} - D \frac{\partial^2 \bar{\phi}}{\partial x_j \partial x_j} = -\chi(I - Q_N * G) * \bar{\phi} \quad (4.16)$$

ここで, $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ は, $Q_N = \sum_{n=0}^N (I - G)^n$ を用いて式 (4.11), (4.12) により得られる。また, χ は数値計算のパラメータであり, 一定値として扱う手法と χ に対するダイナミックモデルにより求める計算手法がある^[57]。

Mathew ら^[55] は ADM を用いた LES の計算手法からフィルタ操作を用いた LES の計算手法を導いている。ここでは Mathew ら^[55] にしたがってフィルタ操作を用いた LES について解説する。

ADM で用いた Approximate Deconvolution フィルタ Q_N により得られる $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ が $U_i = \tilde{U}_i, \phi = \tilde{\phi}$ を満たすと仮定する。すると, 式 (4.2), (4.3) に対してフィルタ G をかけることで, ADM を用いた LES における $\bar{U}_i, \bar{\phi}$ の支配方程式が以下のような形で得られる。

$$G * \left[\frac{\partial \tilde{U}_i}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_j \tilde{U}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} - \nu \frac{\partial^2 \tilde{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} \right] = 0 \quad (4.17)$$

$$G * \left[\frac{\partial \tilde{\phi}}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_j \tilde{\phi}}{\partial x_j} - D \frac{\partial^2 \tilde{\phi}}{\partial x_j \partial x_j} \right] = 0 \quad (4.18)$$

これらの方程式の時間積分は以下の三つのステップに分割して行うことができる。

1. Approximate Deconvolution フィルタ Q_N を $\bar{U}_i, \bar{\phi}$ にかける, $\tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i, \tilde{\phi} = Q_N * \bar{\phi}$ を得る。
2. 次の時間ステップにおける $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ を計算する。
3. フィルタ G を $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ にかける, $\bar{U}_i = G * \tilde{U}_i, \bar{\phi} = G * \tilde{\phi}$ を得る。

$U_i = \tilde{U}_i, \phi = \tilde{\phi}$ を仮定しているため, ステップ 2 において次の時間ステップにおける $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ は式 (4.1), (4.2), (4.3) より得られる。ステップ 1, 3 におけるフィルタ Q_N, G をかける

操作をまとめることにより，式 (4.17)，(4.18) の時間積分は以下の二つのステップで行うことができることが導かれる．

1. 式 (4.1), (4.2), (4.3) を用いて次の時間ステップにおける $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ を計算する．．
2. $\tilde{U}_i, \tilde{\phi}$ を $(Q_N * G) * \tilde{U}_i, (Q_N * G) * \tilde{\phi}$ で置き換える．

LES ではフィルタ G としてローパスフィルタを用いる． $G^{-1} = Q_N$ が成り立つとき $Q_N * G = I$ となる．しかし，式 (4.10) により得られる Q_N は低波数成分に対してのみ $Q_N * G = I$ が成り立つ．その結果， $(Q_N * G)$ はローパスフィルタ G のカットオフ波数より高いカットオフ波数をもつローパスフィルタとなる．LES で用いられるような粗い計算格子では，乱流エネルギーやスカラー変動のエネルギーを散逸させる散逸領域を計算することができない．そのため，時間発展とともに大スケールから小スケールに輸送された乱流エネルギーやスカラー変動のエネルギーは散逸されることなく蓄積する．Mathew ら^[55] のフィルタ操作を用いた計算手法においてローパスフィルタ $(Q_N * G)$ は，小スケールに蓄積される変動のエネルギーのみを選択的に除去する役割を果たしている．時間積分ごとにかけるフィルタとして，小スケールに蓄積される乱流エネルギーを除去するための任意のローパスフィルタを用いることができる．また，ローパスフィルタにより高波数域の変動を適切に除去することができれば，時間積分を計算するたびにフィルタをかける必要はない．例えば，Bogey ら^[61] は $(Q_N * G)$ の代わりに重み付きの移動平均を用いたローパスフィルタを用いており，時間積分を二回行うごとにローパスフィルタをかけることで軸対称噴流の LES を行っている．

4.2.3 ADM を用いた LES–PDF 法

ADM を用いた LES を確率密度関数 (PDF) 法と組み合わせることにより反応性スカラー場を計算する．LES ではフィルタをかけられた速度 \bar{U}_i および保存スカラー量である混合分率 $\bar{\xi}^*$ を計算する．ここで，上付き文字* は LES により計算するスカラー量 (後述する DNS–PDF 法の場合は DNS により計算するスカラー量) であることを表し，PDF 法で計算するスカラー量と区別するために用いる．スカラー量 ϕ_α を成分とするベクトルを $\Phi = (\phi_1, \dots, \phi_\alpha, \dots, \phi_{N_S})$ とすると，点密度関数^[34] (Fine-Grained Densty) $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ は次式により定義される．

$$f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t) \equiv \delta(\Psi - \Phi) \equiv \prod_{\alpha=1}^{N_S} \delta(\psi_\alpha - \phi_\alpha) \quad (4.19)$$

ここで， $\Psi = (\psi_1, \dots, \psi_\alpha, \dots, \psi_{N_S})$ は Φ に対するサンプル空間変数である．ここでは，スカラー量 ϕ_α が次式の輸送方程式に従う場合を考える．

$$\frac{\partial \phi_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial U_j \phi_\alpha}{\partial x_j} = D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} + S_\alpha \quad (4.20)$$

ここで, D_α は ϕ_α の拡散係数であり, S_α は ϕ_α に対する反応項を表している. Pope^[39] は次式により表される $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ の輸送方程式を導いている.

$$\frac{\partial f_\Phi}{\partial t} + U_j \frac{\partial f_\Phi}{\partial x_j} = - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} \left[D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} f_\Phi + S_\alpha f_\Phi \right] \quad (4.21)$$

式 (4.21) を解き $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ の時間・空間発展を予測するためには, 左辺第一項の対流輸送項および右辺第一項の分子拡散項をモデル化する必要がある. 分子拡散項に対しては後述する分子混合モデルを用いる. ADM を用いた LES–PDF 法では, 対流輸送項を Approximate Deconvolution フィルタ Q_N を用いて得られる $\tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i$ によりモデル化する.

$$U_j \frac{\partial f_\Phi}{\partial x_j} = \tilde{U}_j \frac{\partial f_\Phi}{\partial x_j} \quad (4.22)$$

$$\tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i \quad (4.23)$$

上式を用いると, $f_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ の輸送方程式は以下ようになる.

$$\frac{\partial f_\Phi}{\partial t} + \tilde{U}_j \frac{\partial f_\Phi}{\partial x_j} = - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} \left[D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} f_\Phi + S_\alpha f_\Phi \right] \quad (4.24)$$

スカラ量 $\Phi = (\phi_1, \dots, \phi_\alpha, \dots, \phi_{N_S})$ の確率密度関数 $p_\Phi(\Psi; \mathbf{x}, t)$ は点密度 f_Φ のアンサンブル平均として得られ, $p_\Phi = \langle f_\Phi \rangle$ となる. 確率密度関数 p_Φ の輸送方程式は式 (4.24) のアンサンブル平均を取ることで次式のように得られる.

$$\frac{\partial p_\Phi}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\langle \tilde{U}_i | \Psi \rangle p_\Phi \right] = - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} \left[\left\langle D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} \middle| \Psi \right\rangle p_\Phi \right] - \frac{\partial}{\partial \psi_\alpha} [S_\alpha p_\Phi] \quad (4.25)$$

ここで, $\langle * | \Psi \rangle$ は条件 $\Phi = \Psi$ の下で条件付平均をとることを表す.

式 (4.25) を多数の計算粒子を用いた Monte Carlo 法により解析する. \mathbf{x}, Φ の情報を持つ計算粒子を考え, n 番目の計算粒子の状態を $\mathbf{x}^{(n)}, \Phi^{(n)}$ とする. また, 計算粒子の数を N_P とし, $n = 1 \sim N_P$ とする. 式 (4.24) に対応する $\mathbf{x}^{(n)}, \Phi^{(n)}$ の時間変化は次式により表される.

$$\frac{\partial \mathbf{x}^{(n)}}{\partial t} = \tilde{\mathbf{U}}(\mathbf{x}^{(n)}, t) \quad (4.26)$$

$$\frac{\partial \phi_\alpha^{(n)}}{\partial t} = \left[D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} \right]^{(n)} + S_\alpha(\Phi^{(n)}) \quad (4.27)$$

Fokker–Planck 方程式を用いることで, 式 (4.26), (4.27) は式 (4.24) に関連付けられる^[48]. $\tilde{\mathbf{U}}(\mathbf{x}^{(n)}, t)$ は, ADM を用いた LES により計算した速度場 $\tilde{\mathbf{U}}(\mathbf{x}, t)$ を計算粒子 n の位置 $\mathbf{x}^{(n)}$ に補間することで得られる. また, 式 (4.27) の右辺第一項は分子拡散の効果を表しており, 分子混合モデルによってモデル化される.

次式により表されるスカラー量 ϕ_α の輸送方程式は，Approximate Deconvolution フィルタを用いて対流輸送項をモデル化した式 (4.24) に対応している．

$$\frac{\partial \phi_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{U}_j \phi_\alpha}{\partial x_j} = D_\alpha \frac{\partial^2 \phi_\alpha}{\partial x_j \partial x_j} + S_\alpha \quad (4.28)$$

これは，瞬時速度を $\tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i$ で置き換えたスカラー量の輸送方程式を表す．LESなどで用いる計算格子上に再現できる最も小さい長さスケールは計算格子のナイキスト波数に対応する長さスケール (L_N) となる．ADM では Approximate Deconvolution フィルタを用いてフィルタをかけた速度場 \bar{U}_i から瞬時の速度場 U_i を近似的に求める．しかし，Approximate Deconvolution フィルタを用いたとしても， L_N より小さいスケールの速度場を見積もることはできない．多くの場合，LES における L_N は速度変動の最小スケールである Kolmogorov スケールより大きい．したがって，式 (4.28) を解くことにより得られるのは， L_N より小さいスケールの情報を含まない速度場 \tilde{U}_i により輸送される ϕ_α の分布となる．このように，式 (4.22) により対流輸送項をモデル化する場合， L_N より小さいスケールの速度による輸送を考慮することができない．しかし，対流輸送項に対しては，こうした小さいスケールの速度と比較して，計算格子により再現可能な L_N より大きいスケールの速度による寄与が十分に大きいため，式 (4.22) により対流輸送項のモデル化が可能であると考えられる．

4.2.4 分子混合モデル

PDF 法では分子拡散項の効果をモデル化するため分子混合モデルを用いる．以下では，分子混合モデルの例として Curl モデルと修正 Curl モデルについて述べる．

Curl モデル ^[116]

Curl モデルでは二つの計算粒子の相互作用により分子拡散項を計算する．Curl のモデルを式 (4.27) のような時間微分の形で表すことはできないため，ここでは，以下のように時間 dt の間に生じる $\phi_\alpha^{(n)}$ の変化 $d\phi_\alpha^{(n)}$ を考える．

$$d\phi_\alpha^{(n)} = [d\phi_\alpha^{(n)}]_{\text{mix}} + S_\alpha(\Phi^{(n)})dt \quad (4.29)$$

ここで， $[d\phi_\alpha^{(n)}]_{\text{mix}}$ は分子混合モデルによりモデル化された分子拡散項による $\phi_\alpha^{(n)}$ の変化である．Curl モデルで分子拡散項のモデル化に用いる計算粒子を n, m とすると，Curl モデルにおける $[d\phi_\alpha^{(n)}]_{\text{mix}}$ および $[d\phi_\alpha^{(m)}]_{\text{mix}}$ は，以下のように与えられる．

$$[d\phi_\alpha^{(n)}]_{\text{mix}} = \beta [\langle \phi_\alpha \rangle_{(n,m)} - \phi_\alpha^{(n)}] \quad (4.30)$$

$$[d\phi_\alpha^{(m)}]_{\text{mix}} = \beta [\langle \phi_\alpha \rangle_{(m,n)} - \phi_\alpha^{(m)}] \quad (4.31)$$

ここで, $\langle * \rangle_{(n,m)}$ は計算粒子 n, m の平均をとることを表し, $\langle \phi_\alpha \rangle_{(n,m)} = (\phi_\alpha^{(n)} + \phi_\alpha^{(m)})/2$ である. また, β は確率 $P = 2dt/\tau_M$ で $1, 1-P$ の確率で 0 となる^[117]. ここで, τ_M は分子混合モデルの混合時間スケールである. $\beta = 0$ のとき分子混合モデルによって $\phi_\alpha^{(n)}, \phi_\alpha^{(m)}$ が変化せず, $\beta = 1$ のとき二つの計算粒子の $\phi_\alpha^{(n)}, \phi_\alpha^{(m)}$ は平均値 $\langle \phi_\alpha \rangle_{(n,m)}$ で置き換えられる. 分子混合モデルでは, ベクトル空間 Ψ において局所的な混合を計算することが望まれる. Curl モデルにおいて, これはベクトル空間 Ψ 中で近接する二つの計算粒子 n, m を混合させることで実現できる. Cleary ら^[118] は Curl モデルを Multiple Mapping Conditioning (MMC) と組み合わせることで, ベクトル空間 Ψ における局所的な混合を Curl モデルにより実現する手法を提案している. 以下では, MMC とともに用いる Curl モデルを MMC-Curl モデルと呼ぶ. MMC-Curl モデルでは, 計算粒子 n に対して参照ベクトル空間における最近接粒子を混合粒子 m として選び, 物理空間座標 x と参照変数により構成される参照ベクトル空間において局所的な混合を計算する. 参照ベクトル空間を構成する参照変数として, 計算するスカラー量 Φ と強い相関を持つ物理量が用いられる. 多くの場合, 参照変数として混合分率 ξ^* を用い, 参照ベクトル空間 (x, ξ^*) で局所的な混合を計算する. ここで, $*$ は DNS や LES など PDF 法とは異なる手法で計算される粒子を表す. 反応性スカラー量は混合分率に強く依存するため, 混合分率に対して局所的な混合はベクトル空間 Ψ において局所的な混合となる. 参照ベクトル空間 (x, ξ^*) における二つの粒子 n, m 間の無次元距離は, x に対して定義される無次元距離と ξ^* に対して定義される無次元距離の重み付き平均値として次式のように定義される^[118].

$$d_{(n,m)}^2 = \frac{1}{1 + \lambda^2} \left[\sum_{i=1}^3 \left(\frac{x_i^{(n)} - x_i^{(m)}}{l_x} \right)^2 + \lambda^2 \left(\frac{\tilde{\xi}^{*(n)} - \tilde{\xi}^{*(m)}}{l_\xi} \right)^2 \right] \quad (4.32)$$

ここで, l_x は物理空間における代表長さスケール, l_ξ は混合分率を特徴づける値を表す. また, λ は重み付き平均をとる際の重みを表す. λ を小さくすると混合は物理空間で局所的に, λ を大きくすると混合は混合分率に対して局所的になる. ADM を用いた LES-PDF 法では, LES により計算した $\tilde{\xi}^* = Q_N * \bar{\xi}^*$ を計算粒子位置に補間することにより式 (4.32) を計算し, 各計算粒子に対して混合の組となる粒子を決める. 計算に用いた N_P 個の粒子に対して混合の組となる粒子を決定し, N_P 個の各組について式 (4.30), (4.31) を計算することにより分子拡散項の効果をモデル化する.

修正 Curl モデル

修正 Curl モデル^{[119][120]} では, 式 (4.30), (4.31) おいて β を $0 \leq \beta \leq 1$ を満たす一様乱数とし, 混合確率 P を以下のように与える.

$$P = \frac{3dt}{\tau_M} \quad (4.33)$$

上述した点を除いて，修正 Curl モデルでは Curl モデルと同様の手法で分子拡散の効果をモデル化する．

4.3 ADM を用いた LES–PDF 法による化学反応を伴う噴流の数値計算

4.3.1 化学反応を伴う二次元噴流

本節では，第三章で DNS により調査した化学反応を伴う二次元噴流とおなじものに対して ADM を用いた LES–PDF 法を適用する．そして，LES–PDF 法による計算結果を第三章の DNS の結果と比較することにより，計算手法の有効性について検証する．

本節で計算対象とする流れ場の概略図を図 4.1 に示す．第三章では同様の流れ場の DNS を行った．反応物質 B を含む周囲流中に，反応物質 A を含む流体を幅 d のノズルから噴出する．噴流中で二つの反応物質が混合することにより二次の不可逆反応 $A + B \rightarrow P$ が進行し，反応生成物質 P が生成する．ここで，化学反応による発熱を無視し，化学反応は流れ場に影響を与えないものとする．噴流出口中心を座標系の原点とし，流れ方向に x 軸を，二次元噴流の広がり方向に y 軸を，スパン方向に z 軸をとる．二次反応 $A + B \rightarrow P$ による物質 α の生成速度 S_α は次式により表される．

$$S_P = -S_A = -S_B = k\Gamma_A\Gamma_B \quad (4.34)$$

ここで k は反応速度定数である．反応物質 A, B の初期濃度比を $\Gamma_{A0} = 2\Gamma_{B0}$ とした．各物質の分子拡散係数が等しいと仮定し，混合分率を $\xi = (\Gamma_A - \Gamma_B + \Gamma_{B0})/(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ と定義する．したがって，噴流ノズル内で $\xi = 1$ ，周囲流体中で $\xi = 0$ となる．このとき，化学量論となる混合分率 ξ_S は， $\xi_S = \Gamma_{B0}/(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0}) = 0.333$ となる．また，生成物質 P の最大濃度は $\Gamma_{P0} = \Gamma_{A0}\Gamma_{B0}/(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ である．噴流出口速度と噴流出口幅に基づく Reynolds 数 $Re = U_J d/\nu$ を 2,200 とし，Schmidt 数 $Sc = \nu/D$ を 1 とした．ここで， U_J は噴流ノズル内の断面平均流速である．第三章の DNS と同様に，式 (3.10), (3.11) を満たすように噴流出口の速度を設定した．また， $x = 0$ での周囲流の流れ方向平均流速を $U_M = 0.056U_J$ とした．化学反応の時間スケールと流れ場の時間スケールの比である Damköhler 数 $Da = k(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})/U_J d$ を 0.1, 1, 10 の三つの条件で数値計算を行った．ここで，Damköhler 数の違いは反応速度定数の違いを意味する．

4.3.2 分子混合モデルの混合時間スケールについて

PDF 法では分子混合モデルとして MMC–Curl モデルを用いた．MMC–Curl モデルでは，分子混合モデルの混合時間スケール τ_M を別の手法により見積もる必要がある．混合分率 ξ の混合の時間スケール τ は， ξ の変動 $\xi' \equiv \xi - \langle \xi \rangle$ と混合分率のスカラー散逸率

$N = D(\partial \xi' / \partial x_j)^2$ を用いて次式により定義される^[31] .

$$\tau \equiv \frac{\langle \xi'^2 \rangle}{\langle N \rangle} \quad (4.35)$$

ここで、 $\langle \rangle$ はアンサンブル平均値を表す．また、 ξ' は混合分率の変動を表し、 $\xi' = \xi - \langle \xi \rangle$ である．分子混合モデルにおける混合の時間スケール τ_M は、分子混合モデルの計算に用いる粒子間距離に依存する^[121]．多くの場合、 τ_M を混合粒子間の距離の関数として与える手法が用いられている．この場合、 τ_M を表す式に現れるモデルパラメータを適切に設定する必要がある．本研究では、Curl モデルで用いる二つの計算粒子 n, m 間の混合の時間スケール τ_M を混合分率 ξ^* を用いて以下のように直接与えることを試みた．

$$\tau_M = \frac{\langle \xi'^2 \rangle_{(n,m)}}{\langle N^* \rangle_{(n,m)}} \quad (4.36)$$

$$\xi''^{(n)} \equiv \xi^{*(n)} - \langle \xi^* \rangle_{(n,m)} \quad (4.37)$$

ここで、 $N^* = D(\partial \xi^* / \partial x_j)^2$ は ξ^* のスカラ散逸率である．式 (4.36) は、式 (4.35) による混合時間スケールの定義に用いられる混合分率の分散 $\langle \xi'^2 \rangle$ を二つの粒子の混合分率の値の分散 $\langle \xi'^2 \rangle_{(n,m)}$ で、スカラ散逸率の平均値 $\langle N \rangle$ を二つの粒子のスカラ散逸率の平均 $\langle N^* \rangle_{(n,m)}$ で置き換えることにより得られる．式 (4.36) により分子混合モデルの時間スケールを正しく見積もることができることを確認するため、DNS と PDF 法を組み合わせた数値計算 (以下では DNS–PDF 法と呼ぶ) を行った．DNS–PDF 法では速度場 U_i と混合分率 ξ^* を DNS により計算し、DNS の計算結果を用いて混合分率 ξ を PDF 法により計算する．DNS により計算された速度場 U_i は計算粒子の位置 $x^{(n)}$ の変化の計算に用いられる．また、DNS により計算された混合分率 ξ^* は混合のペアとなる粒子の選択 (式 (4.32)) や分子混合モデルの混合時間スケールの算出 (式 (4.36)) のために用いられる．分子混合モデルの時間スケール τ_M は混合粒子間の距離に依存する^[48, 122]．そこで、計算に用いる計算粒子数を変化させて数値計算を行うことで、計算粒子間距離が変化しても式 (4.36) により分子混合モデルの混合時間スケールを適切に設定できるかどうか確かめる．

ADM を用いた LES–PDF 法では、Approximate Deconvolution フィルタを用いて得られる $\tilde{\xi}^*$ を計算粒子位置に補間した値を用いて式 (4.36) の $\langle \xi'^2 \rangle_{(n,m)}$ を計算する．フィルタをかけられたスカラ散逸率 $\overline{N^*} = G * N^*$ は、フィルタをかけられた混合分率 $\overline{\xi^*}$ から計算できる $N_{LS} \equiv D(\partial \overline{\xi^*} / \partial x_j)^2$ と SGS スカラ散逸率 N_{SGS}^* の和として以下のように表される．

$$\overline{N^*} = N_{LS}^* + N_{SGS}^* = D \left(\frac{\partial \overline{\xi^*}}{\partial x_j} \right) \left(\frac{\partial \overline{\xi^*}}{\partial x_j} \right) + N_{SGS}^* \quad (4.38)$$

Pierce ら^[123] は SGS スカラ散逸率 N_{SGS}^* が SGS のスカラ変動の生成項と釣り合うことを仮定して、SGS スカラ散逸率 N_{SGS}^* に対する以下のモデルを提案している．

$$N_{SGS}^* = -(\overline{U_j - U_j})(\xi^* - \overline{\xi^*}) \frac{\partial \overline{\xi^*}}{\partial x_j} \quad (4.39)$$

Approximate Deconvolution フィルタ Q_N を用いると，スカラ散逸率 N^* はフィルタをかけた速度および混合分率から以下のように見積もることができる．

$$N^* = Q_N * \overline{N^*} = Q_N * \left[D \left(\frac{\partial \xi^*}{\partial x_j} \right) \left(\frac{\partial \xi^*}{\partial x_j} \right) - \overline{(\tilde{U}_j - \overline{U}_j)(\tilde{\xi}^* - \overline{\xi}^*)} \frac{\partial \xi^*}{\partial x_j} \right] \quad (4.40)$$

ここで， N_{SGS} を計算するために， $\tilde{U}_i = Q_N * \overline{U}_i$ および $\tilde{\xi}^* = Q_N * \overline{\xi}^*$ が用いられている．LES により計算した $\tilde{\xi}^*$ ， N^* を計算粒子位置に補間した後，式 (4.36) により混合時間スケールを計算した．

4.3.3 計算手法

ADM を用いた LES–PDF 法を化学反応を伴う二次元噴流に適用した．ADM を用いた LES では，フィルタをかけられた速度場 \overline{U}_i および混合分率 $\overline{\xi}^*$ を計算した．また，PDF 法では混合分率 ξ と生成物質濃度 Γ_P を計算し， $\Phi = (\xi, \Gamma_P)$ とした．そして，混合分率 ξ と生成物質濃度 Γ_P より，反応物質 A, B の瞬時濃度を質量保存則を表す次式より算出した．

$$\Gamma_A = \Gamma_{A0}\xi - \Gamma_P \quad (4.41)$$

$$\Gamma_B = \Gamma_{B0}(1 - \xi) - \Gamma_P \quad (4.42)$$

計算領域の大きさを $L_x \times L_y \times L_z = 9.5\pi d \times 7.7\pi d \times 2.6\pi d$ とした．

LES では有限差分法を用いて支配方程式を解いた． x, z 方向の空間の離散化には四次精度中心差分を， y 方向の空間の離散化には二次精度中心差分を用いた．ローパスフィルタ G の計算は，Stolz ら^[57] により提案された格子五点の重み付き平均を x, y, z の各方向に対してとることで行った． G の詳細を以下に示す．

$$\overline{f}_i \equiv G * f_i = \alpha_{-2}f_{i-2} + \alpha_{-1}f_{i-1} + \alpha_0f_i + \alpha_1f_{i+1} + \alpha_2f_{i+2} \quad (4.43)$$

ここで， f_i はある離散点位置 i における物理量を表す．また，離散点位置 i から n 点離れ

た位置にある離散点までの距離 r_n を用いると，係数 α_n は以下の式より得られる．

$$A_{-1} = (r_1 - r_2 - r_{-1})(r_1 + r_{-1}) \quad (4.44)$$

$$A_1 = (r_1 - r_2 - r_{-1})(r_1 + r_{-1}) \quad (4.45)$$

$$A_2 = (r_1 - r_2 - r_{-1})r_2 \quad (4.46)$$

$$B_{-1} = r_1^2 - r_2r_1 \quad (4.47)$$

$$B_1 = -(r_{-1}r_2 + r_{-1}^2) \quad (4.48)$$

$$B_2 = r_{-1}r_1 \quad (4.49)$$

$$C_{-1} = 2r_{-2}^2 + 2r_{-2}r_2 \quad (4.50)$$

$$C_1 = -2r_{-2}^2 - 2r_{-2}r_2 \quad (4.51)$$

$$C_2 = 2(r_1r_{-2} + r_{-2}^2 - r_{-1}r_{-2}) \quad (4.52)$$

$$\alpha_{-2} = \frac{-r_2^3 \frac{B_2}{A_2} - r_1^3 \frac{B_1}{A_1} + r_{-1}^3 \frac{B_{-1}}{A_{-1}}}{r_2^3 \frac{C_2}{A_2} + r_1^3 \frac{C_1}{A_1} - r_{-1}^3 \frac{C_{-1}}{A_{-1}} - 2r_{-2}^3} \quad (4.53)$$

$$\alpha_{-1} = \frac{B_{-1} + C_{-1}\alpha_{-2}}{2A_{-1}} \quad (4.54)$$

$$\alpha_1 = \frac{B_1 + C_1\alpha_{-2}}{2A_1} \quad (4.55)$$

$$\alpha_2 = \frac{B_2 + C_2\alpha_{-2}}{2A_2} \quad (4.56)$$

$$\alpha_0 = 1 - \alpha_{-2} - \alpha_{-1} - \alpha_1 - \alpha_2 \quad (4.57)$$

また，式 (4.10) において， $N = 5$ として Approximate Deconvolution フィルタ Q_N を計算した．LES のモデルには Mathew らのフィルタ操作を用いた手法^[55]を用い，本研究では時間積分を三回計算する度にフィルタ ($Q_N * G$) を変数に掛けることで LES を行った．連続の式と Navier-Stokes 方程式の連立には部分段階法を用いた．時間進行には y 方向の粘性項に Crank-Nicolson 法を，その他の項に三次精度 Runge-Kutta 法を用いた．また，Poisson 方程式は共役こう配法により解いた．境界条件には第三章と同じものを用いた．噴流出口内の速度は一様乱数により生成した速度変動を平均流速に付加することで，式 (3.10), (3.11) を満たすように設定した．

LES-PDF 法による数値計算は，LES に用いる格子数を Run1: $N_x \times N_y \times N_z = 348 \times 214 \times 50$, Run2: $N_x \times N_y \times N_z = 188 \times 185 \times 32$ とした二つの計算条件に対して行った．また，混合時間スケールに対する式 (4.36) の有効性を確認するために行った DNS-PDF 法による数値計算では，DNS で用いる計算格子数を $N_x \times N_y \times N_z = 454 \times 250 \times 74$ とし，第三章と同様の計算手法により DNS を行った．各数値計算において x, z 方向には等間隔格子を， y 方向には噴流中心付近で格子間隔が狭くなるような不等間隔格子を用いた．各計算条件での計算格子数と噴流中心における計算格子間隔を表 4.1 にまとめて示す．

表 4.1 LES および DNS の計算条件

	Number of grid points $N_x \times N_y \times N_z$	Size of grids at $y = 0$ $\delta_x \times \delta_y \times \delta_z$
LES-PDF (Run1)	$348 \times 214 \times 50$	$0.086d \times 0.054d \times 0.16d$
LES-PDF (Run2)	$188 \times 185 \times 32$	$0.16d \times 0.063d \times 0.25d$
DNS-PDF	$454 \times 250 \times 74$	$0.066d \times 0.046d \times 0.11d$

表 4.2 PDF 法の計算粒子数

	N_P	ρ_P	δ_P	$(N_x \times N_y \times N_z)/N_P$
LES-PDF (Run1)	77,760	$13.2/d^3$	$0.262d$	47.9
LES-PDF (Run2)	77,760	$13.2/d^3$	$0.262d$	14.3
DNS-PDF	38,880	$6.59/d^3$	$0.330d$	216.0
(Test for Eq. (4.36))	77,760	$13.2/d^3$	$0.262d$	108.0
	311,040	$52.7/d^3$	$0.165d$	27.0

LES や DNS で計算した変数の計算粒子位置への補間には線形補間を用いた．式 (4.27) の時間進行には部分段階法^[34]を用い，以下のように分子拡散項と化学反応項を順に計算した．

$$\phi_{\alpha M}^{(n)}(t) = \phi_{\alpha}^{(n)}(t) + [d\phi_{\alpha}^{(n)}]_{\text{mix}} \quad (4.58)$$

$$\phi_{\alpha}^{(n)}(t+dt) = \phi_{\alpha M}^{(n)}(t) + S_{\alpha}(\Phi_M^{(n)})dt \quad (4.59)$$

ここで， $[d\phi_{\alpha}^{(n)}]_{\text{mix}}$ は分子混合モデルによってモデル化された分子拡散項の効果を表す．下付き文字 _M は分子拡散項の時間進行後の値を意味する．分子拡散項は MMC-Curl モデルにより計算した．Ge ら^[124]と同様に，Curl モデルの混合粒子の組の選択には $\lambda = 1$ ， $l_x = d$ ， $l_{\xi} = 1$ とした式 (4.32) を用いた．DNS-PDF 法を用いて行った混合時間スケールに対する式 (4.36) の検証では，数値計算に用いる計算粒子数 N_P を $N_P = 38,880, 77,760, 311,040$ とした．LES-PDF 法による数値計算は 77,760 個の計算粒子を用いて行った．PDF 法による統計量の計算は，流れ場を x, y 方向に 80×100 の領域に分割し，各小領域内の計算粒子のアンサンブル平均を取ることで行った．各計算条件での粒子の数密度 $\rho_P = N_P/(L_x \times L_y \times L_z)$ ，最近接粒子間の平均距離 $\delta_P = (4\pi\rho_P/3)^{-1/3}$ ，計算粒子一つが占める LES あるいは DNS で用いた計算格子数 $(N_x \times N_y \times N_z)/N_P$ をまとめて表 4.2 に示す．各計算条件において， N_P が計算格子数よりも少なくなっており，PDF 法による数値計算が Sparse-Lagrangian Simulation により行われていることがわかる．

計算粒子の境界条件を以下のように設定した． $x = 0$ の断面および $y = \pm L_y/2$ の断面を

流入境界, $x = L_x$ の断面を流出境界とし, 流入境界あるいは流出境界から計算領域を出た計算粒子を流入境界上に再配置した. このとき, 境界上に配置される計算粒子の数が境界面法線方向の瞬時流量に比例するように粒子の配置位置を決定することで, 計算粒子の局所的な数密度を統計的に一定に保った. 実際の計算では以下のような手順で計算粒子の配置位置を決定した. 図 4.2 に流入境界にある LES (DNS) の計算格子の概略図を示す. 図 4.2 には例として y - z 平面の流入境界を示してある. $U_B(i, j, k)$ は境界法線方向の速度であり, (i, j, k) は流入境界上 (本研究の場合, $x = 0$ の断面および $y = \pm L_y/2$ の断面) に存在する LES (DNS) の格子点位置を表す. まず, LES (DNS) で計算した速度場から流入境界面上における境界面法線方向の流量 $Q_{in}(i, j, k)$ (図 4.2 では $Q_{in}(i, j, k) = U_B(i, j, k)dydz$) を計算する. ここでは, 計算領域内に流れ込む場合を $Q_{in}(i, j, k) > 0$, 計算領域から流れ出す場合を $Q_{in}(i, j, k) < 0$ と定義する. 流入境界上の計算格子 (i, j, k) の中 (図 4.2 では $dy \times dz$ の大きさを持つ長方形領域) に計算粒子が配置される確率 $P_{in}(i, j, k)$ を次式のように与えた.

$$P_{in}(i, j, k) = \frac{Q'_{in}(i, j, k)}{\sum_{i, j, k} Q'_{in}(i, j, k)} \quad (4.60)$$

$$Q'_{in} = \begin{cases} Q_{in} & (Q_{in} \geq 0) \\ 0 & (Q_{in} < 0) \end{cases} \quad (4.61)$$

上式より計算した確率 P_{in} に従って, 計算粒子を配置する流入境界上の格子点位置 (i, j, k) を決定した後, 計算粒子を配置する位置を計算格子 (i, j, k) の中 (図 4.2 では $dy \times dz$ の大きさの長方形領域内) から乱数を用いて不規則に選んだ. 噴流ノズルに配置される計算粒子には $\xi^{(n)} = 1, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を, 周囲流体中に配置される計算粒子には $\xi^{(n)} = 0, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を与えた. また, 計算粒子の z 方向の境界条件として周期境界条件を用いた.

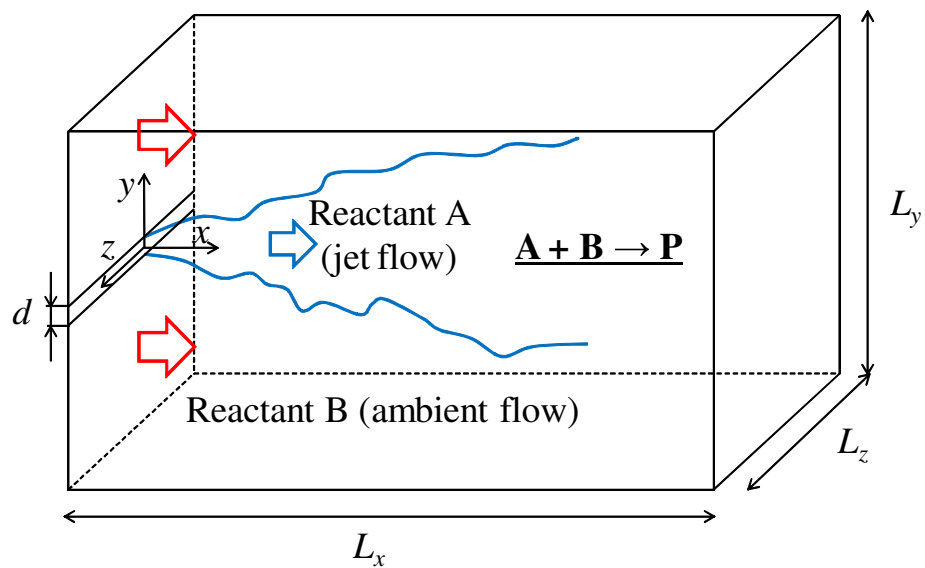


図 4.1 計算対象とした化学反応を伴う二次元噴流

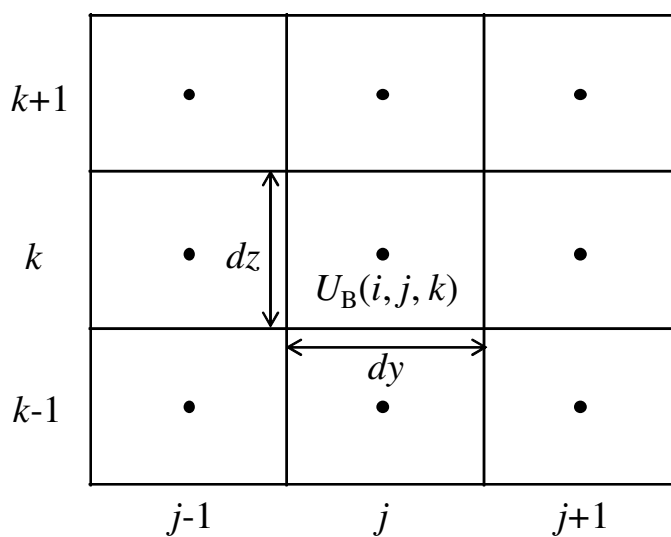


図 4.2 粒子の流入境界上の計算格子の概略図

4.3.4 DNS–PDF 法による混合分率の計算結果

混合時間スケールに対する式 (4.36) の有効性について検証するため、数値計算に用いる計算粒子数 N_P を $N_P = 38,880, 77,760, 311,040$ として行った DNS–PDF 法により得られた混合分率 (PDF 法により計算した混合分率) の統計量を第三章の DNS の結果と比較する。この数値計算では DNS により得られた速度場 U_i を用いて計算粒子の位置 $x^{(n)}$ の変化を計算する。また、DNS により計算した混合分率 ξ^* を、式 (4.32) による混合粒子の選択や式 (4.36) による分子混合モデルの混合時間スケールの計算に用いた。分子混合モデルの時間スケールは混合粒子間の距離に依存する^[48,122] するため、計算に用いる計算粒子数を変化させて数値計算を行うことで、計算粒子間距離によらず式 (4.36) により分子混合モデルの混合時間スケールを正しく見積もることができるかどうかについて調べた。

図 4.3 に平均混合分率 $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布を示す。また、図 4.4 に平均混合分率 $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布の半値幅 b_ξ の下流方向変化を示す。各図には計算粒子数 N_P を変化させて行った DNS–PDF 法による計算結果と第三章の DNS の結果が比較して示されている。図 4.3, 4.4 より、DNS–PDF 法により得られた平均混合分率の広がり第三章の DNS の結果とよく一致しており、その分布が計算粒子数 N_P によって変化しないことがわかる。

図 4.5(a), (b) に式 (4.36) より求めた混合時間スケールの平均値 $\langle \tau_M \rangle$ の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示す。図中の横軸は平均混合分率 $\langle \xi \rangle$ の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている。また、図 4.5(a), (b) には噴流出口における平均流速 U_j および噴流出口幅 d で無次元化された時間スケールが示されている。計算粒子数 N_P の増加とともに最近接粒子との平均距離 δ_P が減少することで、混合する粒子間の距離 δ_M が減少する。また、混合を特徴づける長さスケールの減少とともに分子混合モデルの混合時間スケールが減少することが報告されている^[48,122]。式 (4.36) により計算した混合時間スケールの平均値にも、 N_P の増加 (δ_P や δ_M の減少) とともに $\langle \tau_M \rangle$ が減少する傾向が見られる。PDF 法により得られるスカラ量の変動 rms 値などの高次統計量は分子混合モデルの混合時間スケールの影響を強く受ける^[125]。以下では、DNS–PDF 法により得られた混合分率の変動 rms 値、歪み度、平坦度を第三章の DNS の結果と比較する。

図 4.6 に混合分率の変動 rms 値 ξ_{rms} の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示す。図 4.6 より DNS–PDF 法により得られた ξ_{rms} が計算粒子数 N_P によらず第三章の DNS の結果とよく一致していることが確認できる。図 4.7 に混合分率の歪み度 $\langle \xi'^3 \rangle / \langle \xi'^2 \rangle^{3/2}$ の $x/d = 25$ における y 方向分布を示す。ここで、 $\xi' \equiv \xi - \langle \xi \rangle$ である。混合分率の歪み度は噴流の中心付近で負の値を取り、噴流外側に行くにつれて増加する。また、噴流外縁付近では間欠性のため歪み度が大きい値となる。第三章の DNS と同様の歪み度の分布が DNS–PDF 法により得られており、その分布は N_P によらずほぼ同一となった。図 4.8 に混合分率の平坦度 $\langle \xi'^4 \rangle / \langle \xi'^2 \rangle^2$ の $x/d = 25$ における y 方向分布を示す。混合分率の確率密度関数が Gauss

分布で表される場合，その平坦度は $\langle \xi'^4 \rangle / \langle \xi'^2 \rangle^2 = 3$ となる． $\langle \xi'^4 \rangle / \langle \xi'^2 \rangle^2$ の値は噴流の中心付近で Gauss 分布の値より大きく， $y/b_\xi = 1$ 付近で Gauss 分布の値より小さくなる．また，さら外縁に向うにつれて間欠性により平坦度が大きい値となる．同様の平坦度の分布が噴流に対して行われた実験においても確認できる^[126]．DNS–PDF 法により DNS と同様の平坦度の分布が得られており，平坦度の分布が N_P によらずほぼ同一となっていることがわかる．

以上のように，式 (4.36) を用いることにより，計算粒子数 N_P に依存する混合粒子間の距離によらず分子混合モデルの混合時間スケールを正しく設定することができることが確認できた．

4.3.5 ADM を用いた LES–PDF 法による反応性二次元噴流の計算結果 LES による流れ場・混合分率の計算結果

LES–PDF 法で用いた LES (Run1, 2) により得られた流れ場・混合分率の統計量を第三章の DNS の結果と比較する．LES により計算した流れ方向平均速度 $\langle U \rangle$ および平均混合分率 $\langle \xi^* \rangle$ の $x/d = 10, 15, 25$ における y 方向分布を図 4.9 に示す．図中では，細かい計算格子を用いた Run1，粗い計算格子を用いた Run2，第三章の DNS による結果が比較して示されている．DNS の結果と比較して，粗い計算格子を用いた Run2 では，噴流中心付近の $\langle \xi^* \rangle$ を小さく，噴流の外縁付近の $\langle \xi^* \rangle$ を大きくなる傾向がある．しかし，DNS とほぼ同様の $\langle U \rangle$ と $\langle \xi^* \rangle$ の y 方向分布が Run1, 2 の LES により得られていることが確認できる．

図 4.10 には，LES により $(x/d, y/d) = (20, 0)$ の位置で得られた流れ方向速度変動 $u' \equiv \bar{U} - \langle U \rangle$ と混合分率の変動 $\xi^{*'} \equiv \bar{\xi}^* - \langle \xi^* \rangle$ のパワースペクトル $E_{uu}, E_{\xi\xi}$ が，DNS により得られたスペクトルと比較して示されている．図 4.10 の横軸の周波数 f は噴流出口幅 d と噴流出口での平均流速 U_j で無次元化されている．LES により得られた速度変動および混合分率の変動のパワースペクトルは，DNS により得られたパワースペクトルと比較して小スケールに相当する高周波成分が小さくなっていることが確認できる．また，大スケールに相当する低周波数域では LES により得られたスペクトルが DNS により得られたスペクトルとほぼ一致しており，Run1, 2 の LES により大スケールの変動を正しく計算できていることがわかる．

PDF 法による反応性物質拡散場の可視化

LES–PDF 法では計算粒子を可視化することにより瞬時の流れ場を可視化することができる．図 4.11(a) に混合分率 $\xi^{(n)}$ を表す色をつけて可視化された計算粒子を，図 4.11(b) に生成物質濃度 $\Gamma_p^{(n)}$ を表す色をつけて可視化された計算粒子を示す．図 4.11(a), (b) にはと

もに Run1 の LES-PDF 法により得られた結果が示されている．図 4.11(a) に示されているように，噴流出口より $\xi^{(n)} = 1$ として流れ出た計算粒子が，周囲流中の $\xi^{(n)} = 0$ となっている計算粒子と混合することで $\xi^{(n)}$ の値を変化させながら拡散する．また，図 4.11(b) より，噴流出口近傍では噴流流体と周囲流体の境界領域付近にのみ生成物質が存在することがわかる．そして，下流に向かうにつれて噴流が発達し，生成物質が噴流内部全体に広く分布するようになる．第三章の DNS により得られた生成物質の瞬時濃度分布にも，LES-PDF 法により得られた図 4.11(b) と同様の傾向が見られる．

混合分率および反応性物質濃度の平均値および変動 rms 値

以下では LES-PDF 法の PDF 法により得られた統計量を DNS により得られた結果と比較する．図 4.12(a), (b) に混合分率の平均値 $\langle \xi \rangle$ と変動 rms 値 ξ_{rms} の $x/d = 10, 15, 25$ における y 方向分布を示す．図 4.12 では，Run1, Run2 の LES-PDF 法の結果が第三章の DNS の結果とともに示されている．図 4.12(b) において，横軸は平均混合分率の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化されている．図 4.12(a) より，LES-PDF 法により得られた $\langle \xi \rangle$ の分布は Run1, Run2 とともに DNS の結果とよく一致していることがわかる．また，図 4.12(b) より，LES で細かい計算格子を用いた Run1 により得られた ξ_{rms} が DNS の結果とよく一致していることが確認できる．一方，Run2 の場合，噴流中の ξ_{rms} を DNS より小さく見積もっているものの，LES-PDF 法により DNS に近い分布が得られている．以上より，ADM を用いた LES-PDF 法により噴流中の混合分率の統計量を予測することが可能であることがわかる．

図 4.13(a), (b) に生成物質 P の平均濃度 $\langle \Gamma_P \rangle$ の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示す．図中には $Da = 0.1, 1, 10$ に対する結果が示されている．また，各図において，Run1, Run2 の LES-PDF 法の結果が第三章の DNS の結果とともに示されている． Da の増加は反応速度定数の増加と関連しているため， Da の増加とともに生成物質の平均濃度も増加する．図 4.13(a) に示した $x/d = 10$ では， $\langle \Gamma_P \rangle$ の y 方向分布は $y/b_\xi = \pm 0.7$ 付近でピーク値を持つ．一方，図 4.13(b) に示した $x/d = 25$ では，噴流中心近傍において $\langle \Gamma_P \rangle$ はほぼ一定となり， y 方向への変化が小さいことがわかる． $x/d = 10$ において， $Da = 10$ の場合，LES-PDF 法により得られた $\langle \Gamma_P \rangle$ が DNS の結果よりやや小さくなった． Da が大きく反応が速いとき，反応は分子混合律速となる．そのため， Da が大きい場合，PDF 法により得られる反応性物質の濃度統計量は分子混合モデルの特性の影響を大きく受けると考えられる． $Da = 10$ の場合の生成物質の平均濃度分布に，LES-PDF 法と DNS の間の違いが見られたのは，LES-PDF 法では分子拡散項に対して分子混合モデルを用いていることが原因であると考えられ，分子混合モデルの改良により Da が大きい反応場の予測精度が改善されると予想される． $Da = 10$ の場合の $\langle \Gamma_P \rangle$ の $x/d = 10$ における y 方向分布を除

くと, LES-PDF 法により得られた $\langle \Gamma_P \rangle$ が DNS の結果とほぼ一致している. 以上のように, Da が大きいときには LES-PDF 法による結果と DNS の結果に差が見られるものの, 生成物質の平均濃度分布を Run1, 2 の LES-PDF 法により予測できることがわかる.

図 4.14(a), (b) に生成物質 P の濃度変動 rms 値 γ_{rmsP} の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示す. γ_{rmsP} の y 方向分布は噴流中心から外れた位置でピーク値を持つ. また, Da が大きくなるにつれて γ_{rmsP} の値が大きくなる. 図 4.14(a), (b) より, Run1 の LES-PDF 法により γ_{rmsP} の分布を精度よく予測できることがわかる. LES に粗い計算格子を用いた Run2 の LES-PDF 法では, $x/d = 25$ における γ_{rmsP} のピーク値を小さく見積もっているものの, γ_{rmsP} の分布は DNS の結果に近い分布となった.

図 4.15 に反応物質 A の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle$ の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示す. また, 図 4.16 には, 反応物質 B の平均濃度 $\langle \Gamma_B \rangle$ の $x/d = 10, 25$ における y 方向分布を示した. 各図において, Run1 の LES-PDF 法により得られた結果が第三章の DNS の結果と比較されている. 反応物質 A, B の平均濃度は化学反応により減少し, その減少量は Da が大きくなるにつれて大きくなる. 図 4.15, 4.16 より, LES-PDF 法により, こうした化学反応による反応物質の平均濃度の変化を精度よく予測できることがわかる.

以上のように, LES-PDF 法により得られた反応性物質の平均濃度や濃度変動 rms 値を第三章の DNS の結果と比較した結果, 本研究で提案した ADM を用いた LES-PDF 法によりこれらの統計量を精度よく予測できることが確認された.

平均反応速度と濃度相関

Γ_{P0}, U_J, d で無次元化された生成物質の濃度 Γ_P の化学反応による生成項は $\hat{S}_P = Da \hat{\Gamma}_A \hat{\Gamma}_B$ と表される. ここで, $\hat{\Gamma}_\alpha \equiv \Gamma_\alpha / \Gamma_{\alpha 0}$ である. 平均反応速度 $\langle \hat{S}_P \rangle$ は反応物質の平均濃度積と濃度相関を用いて次式のように表される.

$$\langle \hat{S}_P \rangle = Da \langle \hat{\Gamma}_A \rangle \langle \hat{\Gamma}_B \rangle + Da \langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle \quad (4.62)$$

ここで, $\hat{\gamma}_\alpha \equiv \hat{\Gamma}_\alpha - \langle \hat{\Gamma}_\alpha \rangle$ である. Reynolds 平均した反応性物質の濃度の輸送方程式を解くためには式 (4.62) の $\langle \hat{\gamma}_A \hat{\gamma}_B \rangle$ に対するモデルが必要となる. 図 4.17 に $Da = 0.1, 1, 10$ の化学反応に対して得られた平均反応速度 $\langle \hat{S}_P \rangle$ の $x/d = 10$ における y 方向分布を, 式 (4.62) の右辺各項の分布とともに示す. 図中には Run1 の LES-PDF 法による計算結果を第三章の DNS の結果と比較して示してある. 図 4.17 の横軸には平均混合分率の y 方向分布の半値幅 b_ξ で無次元化した y 方向位置をとった. 図より LES-PDF 法により計算した式 (4.62) の平均濃度積と濃度相関項が DNS の結果とよく一致していることがわかる. このように, LES-PDF 法を用いることで, 平均反応速度に対する濃度相関項の影響を正確に見積もることができる. LES を用いて速度場および反応場の両方を計算するためにはフィルタをかけられた反応速度に対するモデルが必要となるが, LES-PDF 法では PDF 法により反

応項を扱うため化学反応速度に関連するモデルを必要としない．そのため，ADM を用いた LES-PDF 法は平均反応速度分布や，化学反応速度に対する濃度相関項の影響を高い精度で予測できる有効な計算手法と言える．

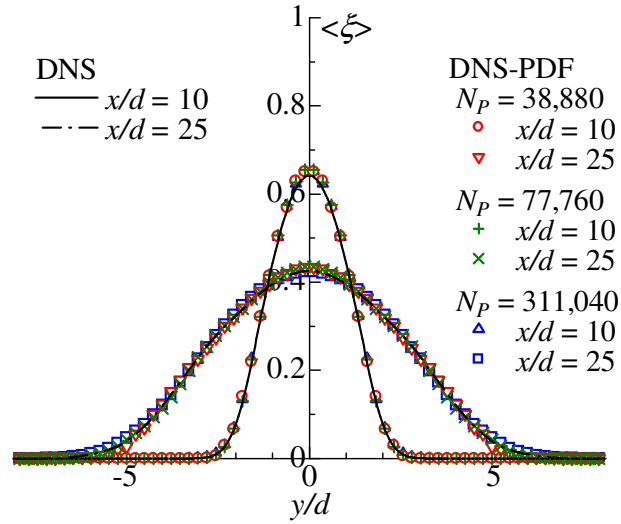


図 4.3 平均混合分率の y 方向分布 (DNS-PDF 法)

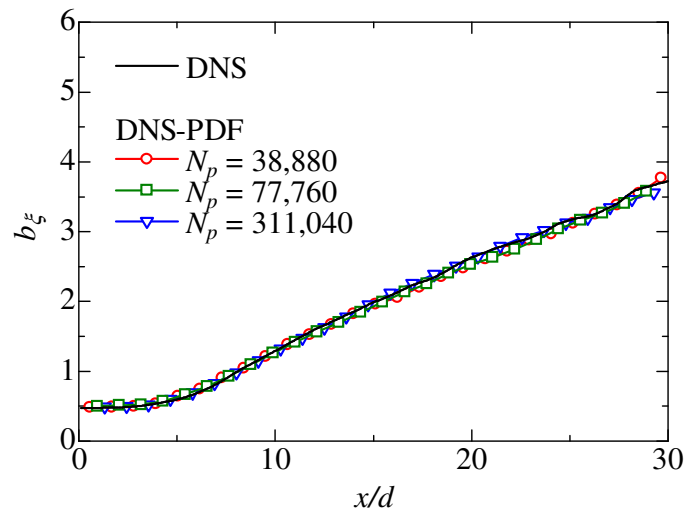
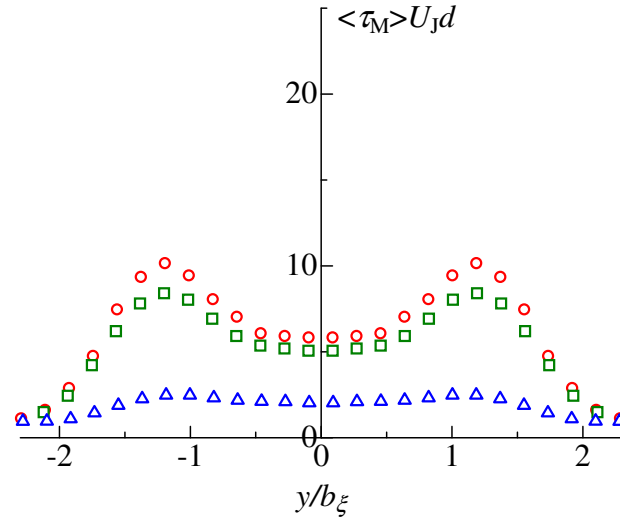
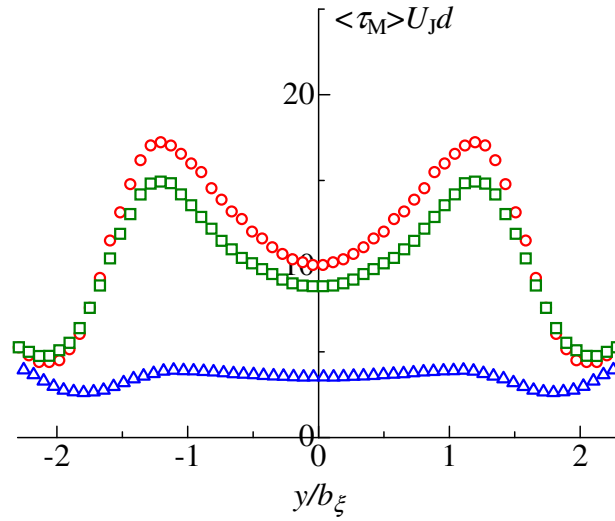


図 4.4 平均混合分率の半値幅の下流方向変化 (DNS-PDF 法)

○ $N_p = 38,880$ □ $N_p = 77,760$ △ $N_p = 311,040$



(a) $x/d = 10$



(b) $x/d = 25$

図 4.5 式 (4.36) より計算した混合時間スケールの平均値の y 方向分布 (DNS-PDF 法)

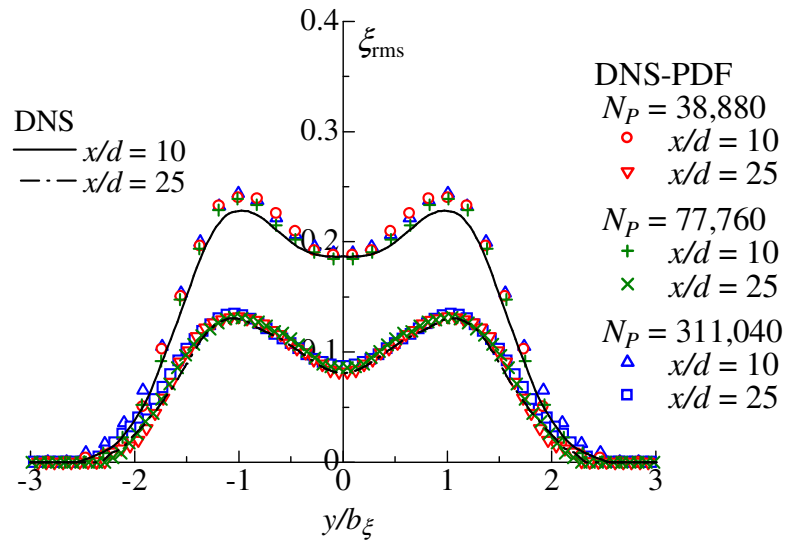


図 4.6 混合分率の変動 rms 値の y 方向分布 (DNS-PDF 法)

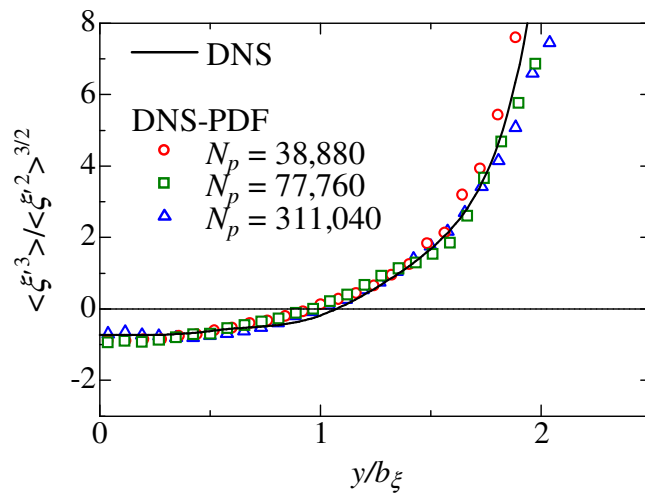


図 4.7 $x/d = 25$ における混合分率の歪み度の y 方向分布 (DNS-PDF 法)

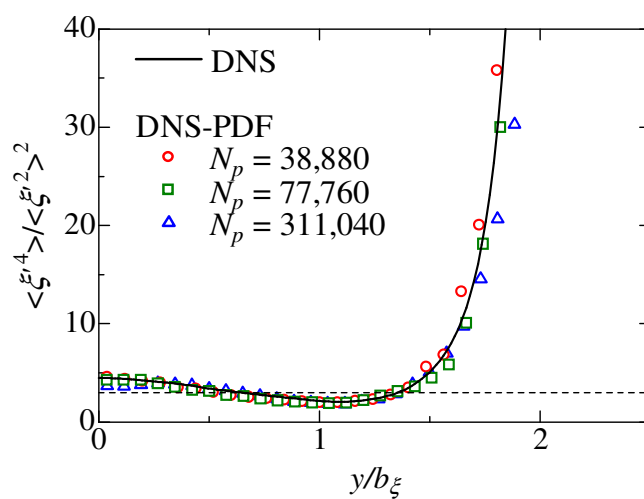


図 4.8 $x/d = 25$ における混合分率の平坦度の y 方向分布 (DNS-PDF 法)

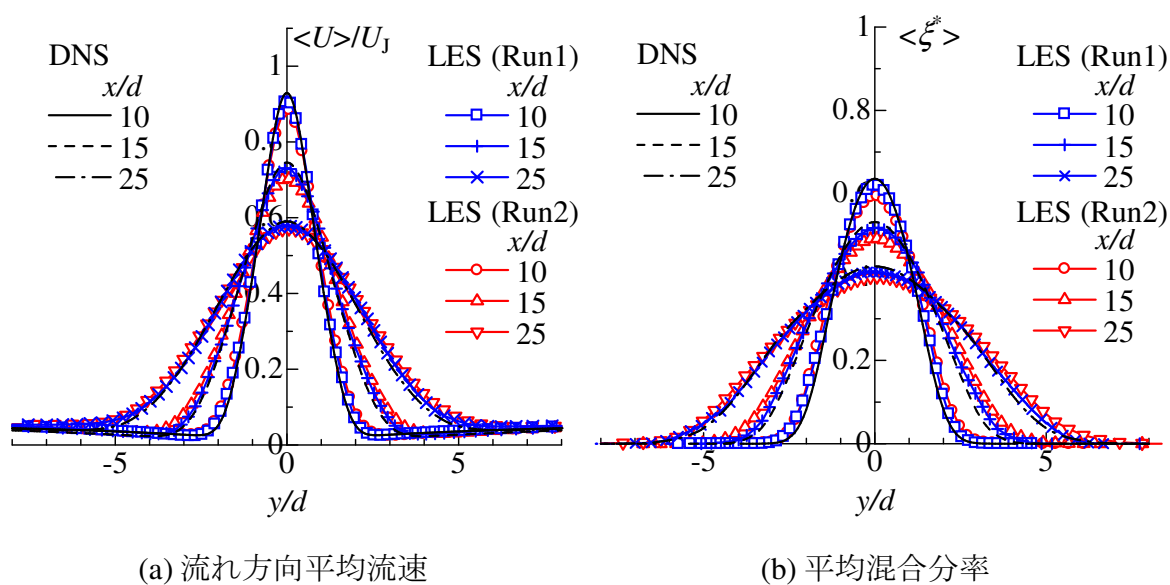


図 4.9 LES により計算した流れ方向平均速度と平均混合分率の y 方向分布

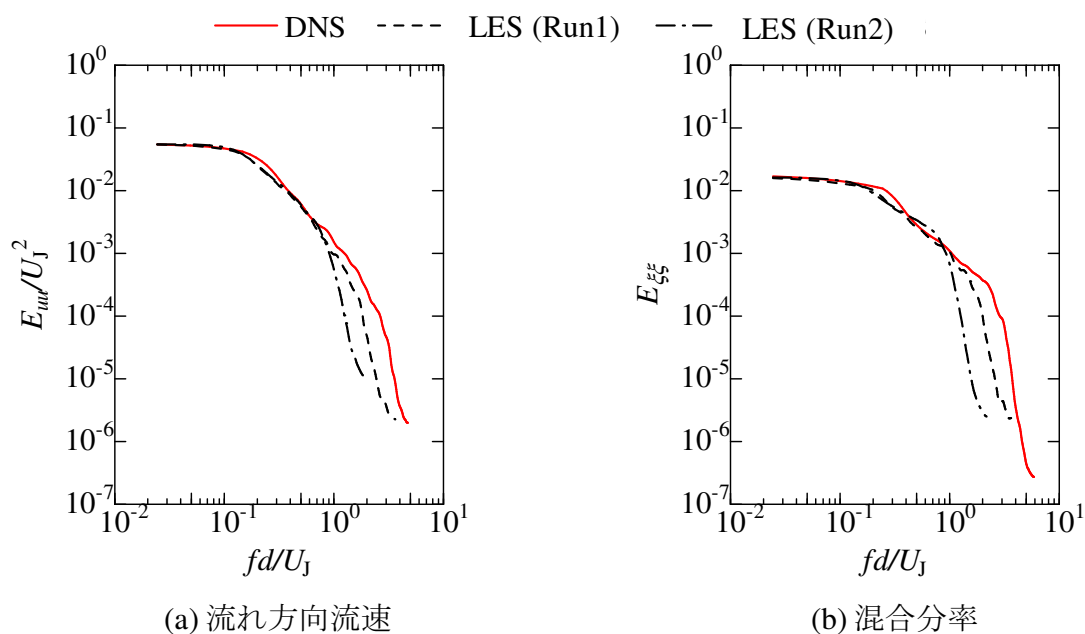


図 4.10 $(x/d, y/d) = (20, 0)$ における速度変動と混合分率の変動のパワースペクトル

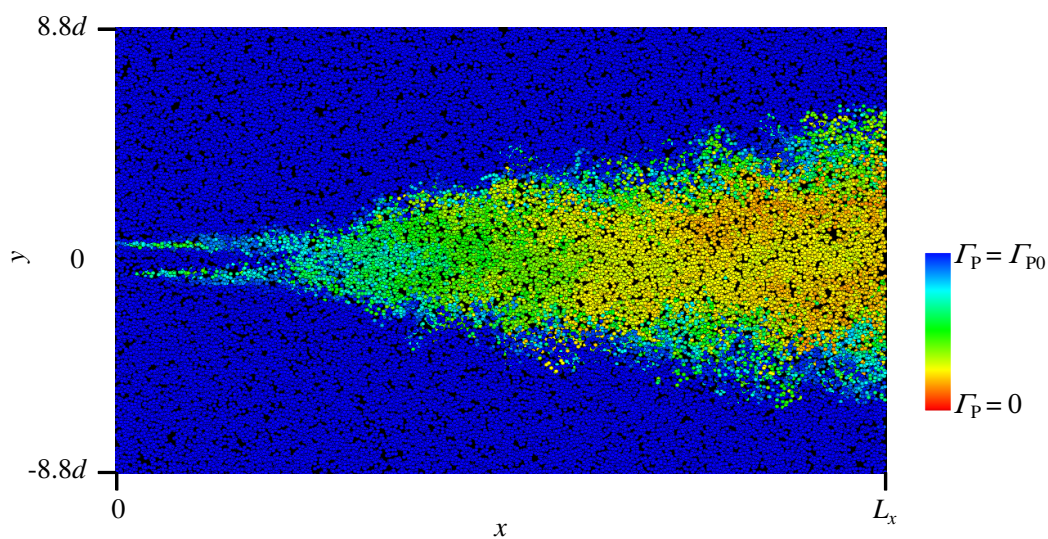
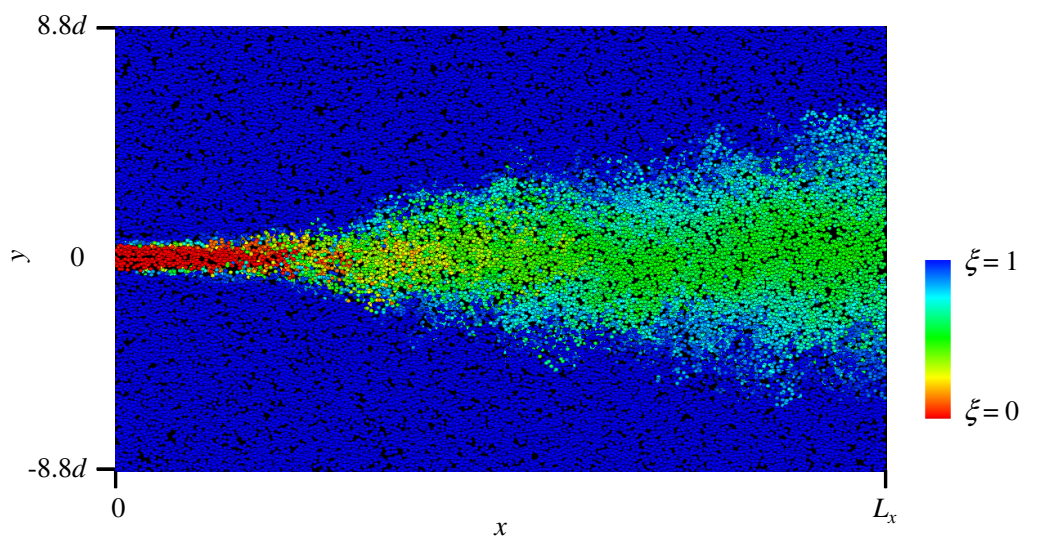


図 4.11 LES-PDF 法により得られた混合分率および生成物質濃度の分布

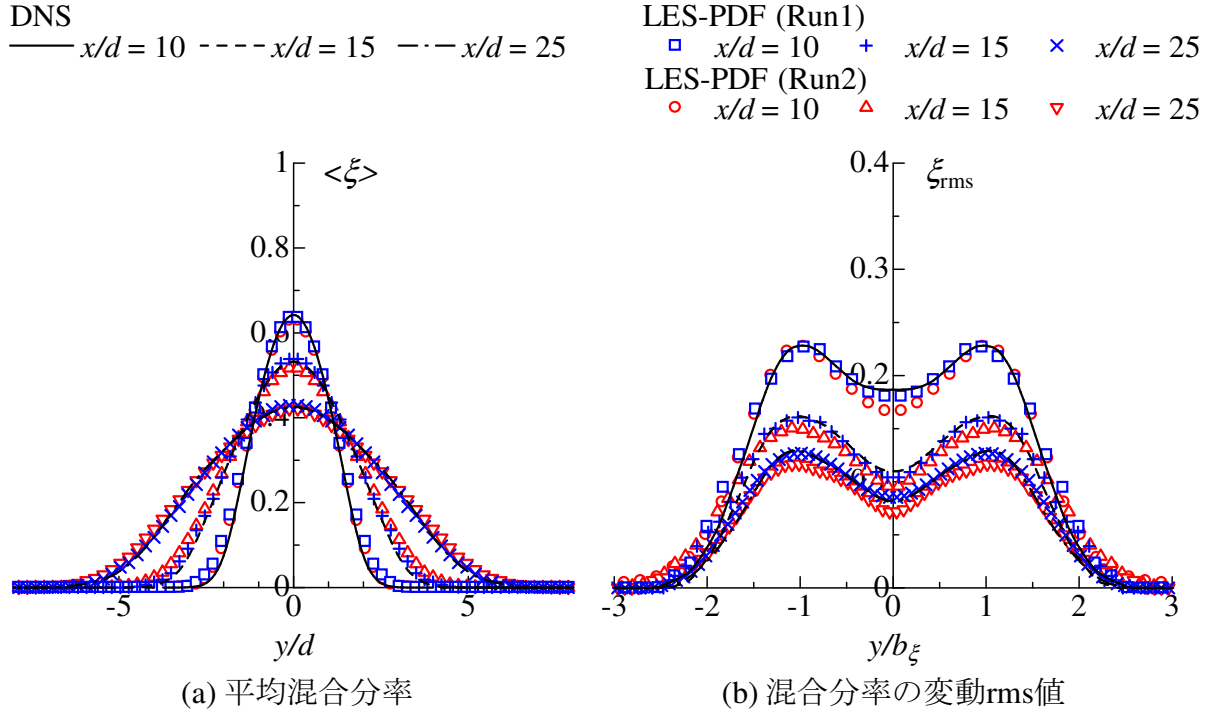


図 4.12 混合分率の平均値および変動 rms 値の y 方向分布

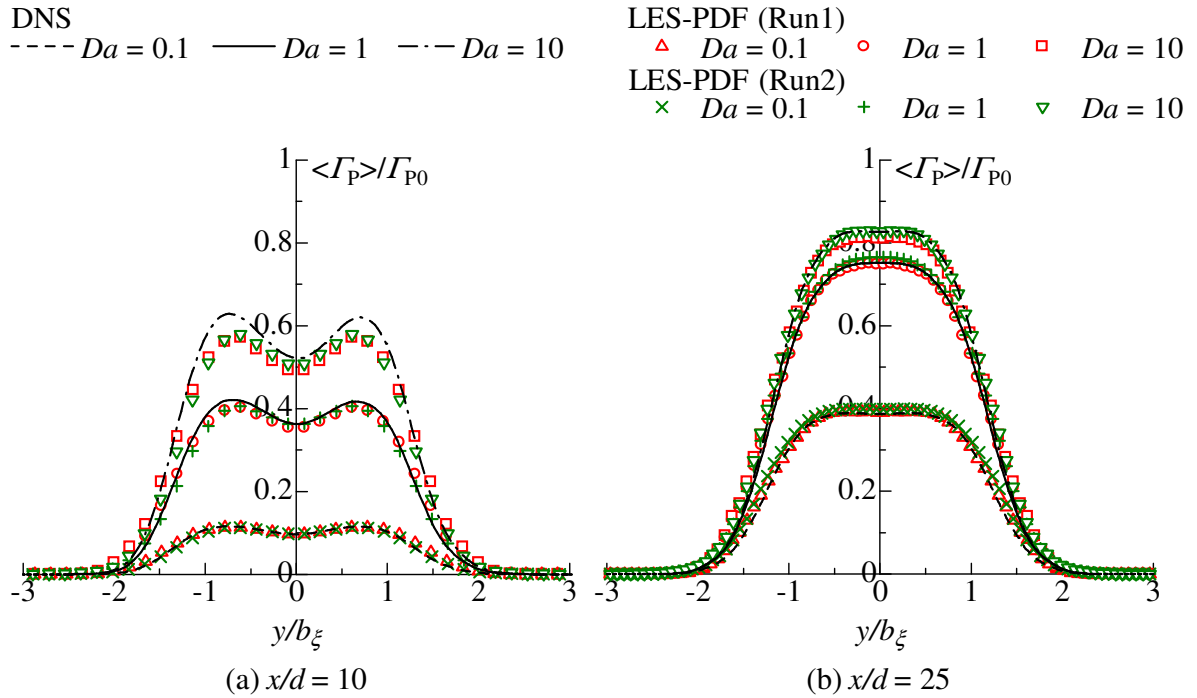


図 4.13 生成物質の平均濃度の y 方向分布

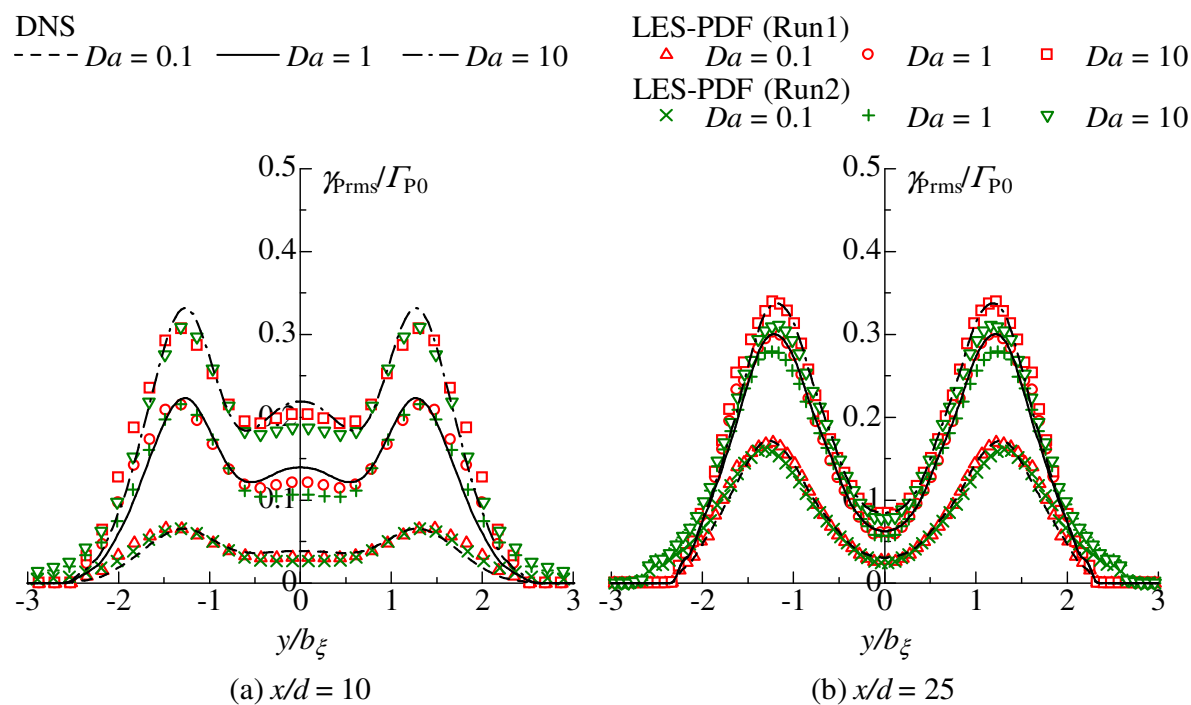


図 4.14 生成物質濃度の変動 rms 値の y 方向分布

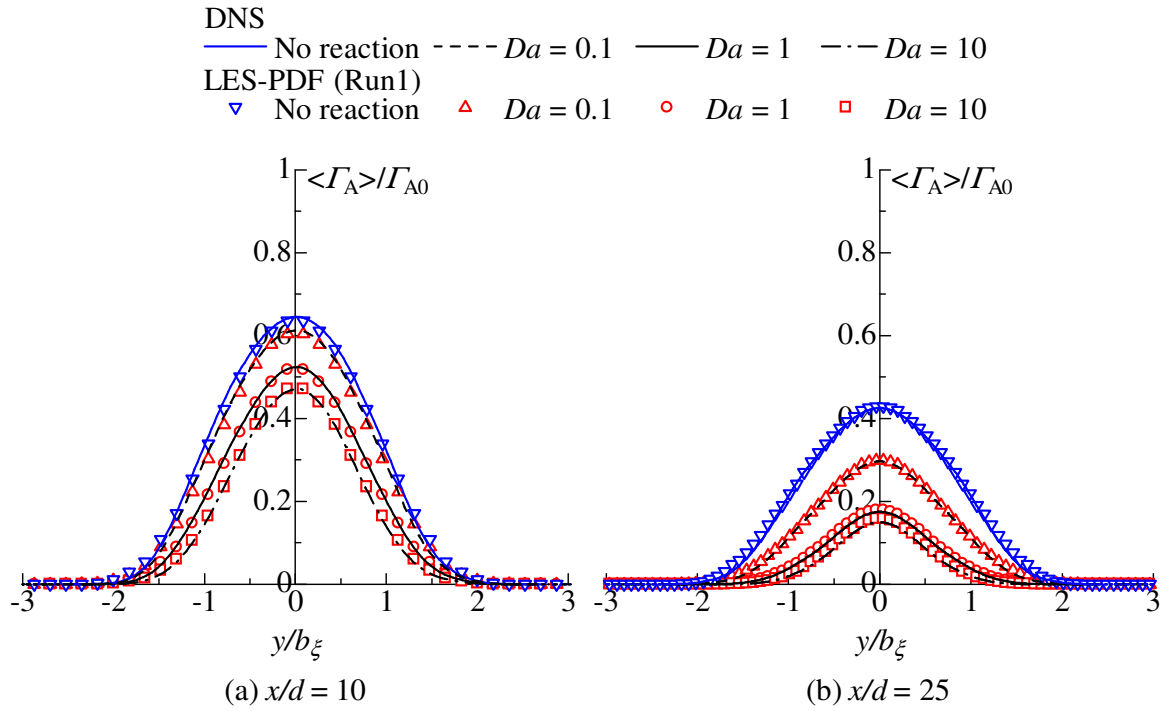


図 4.15 反応物質 A の平均濃度の y 方向分布

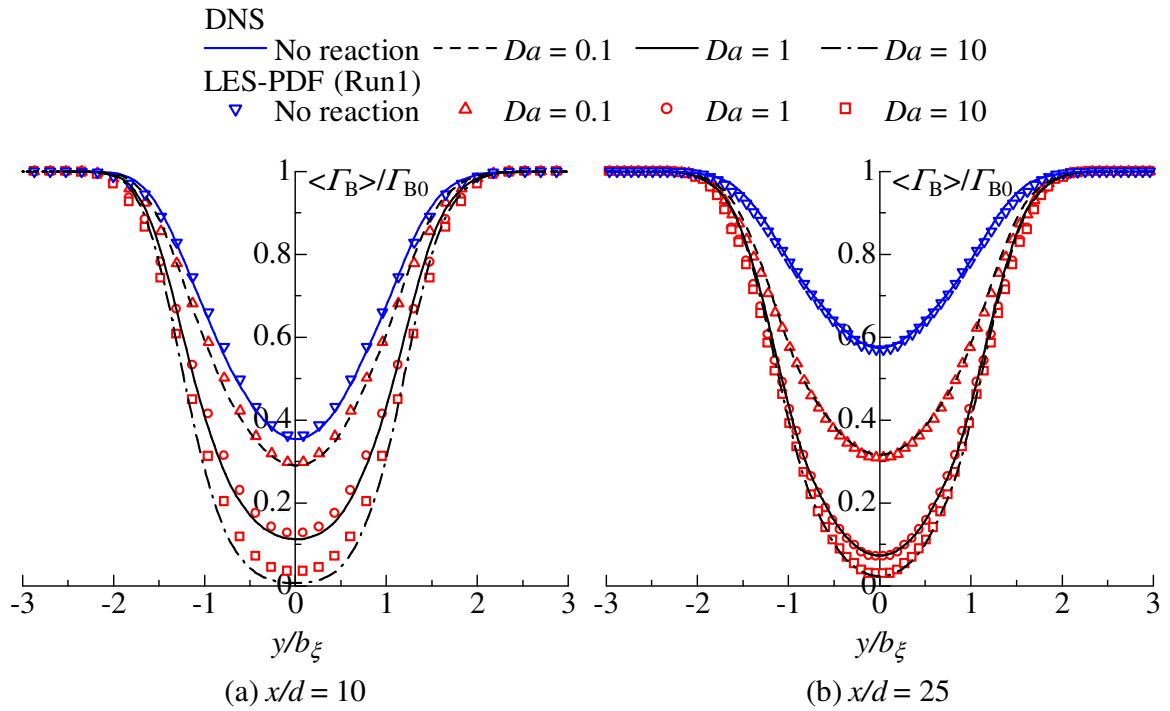


図 4.16 反応物質 B の平均濃度の y 方向分布

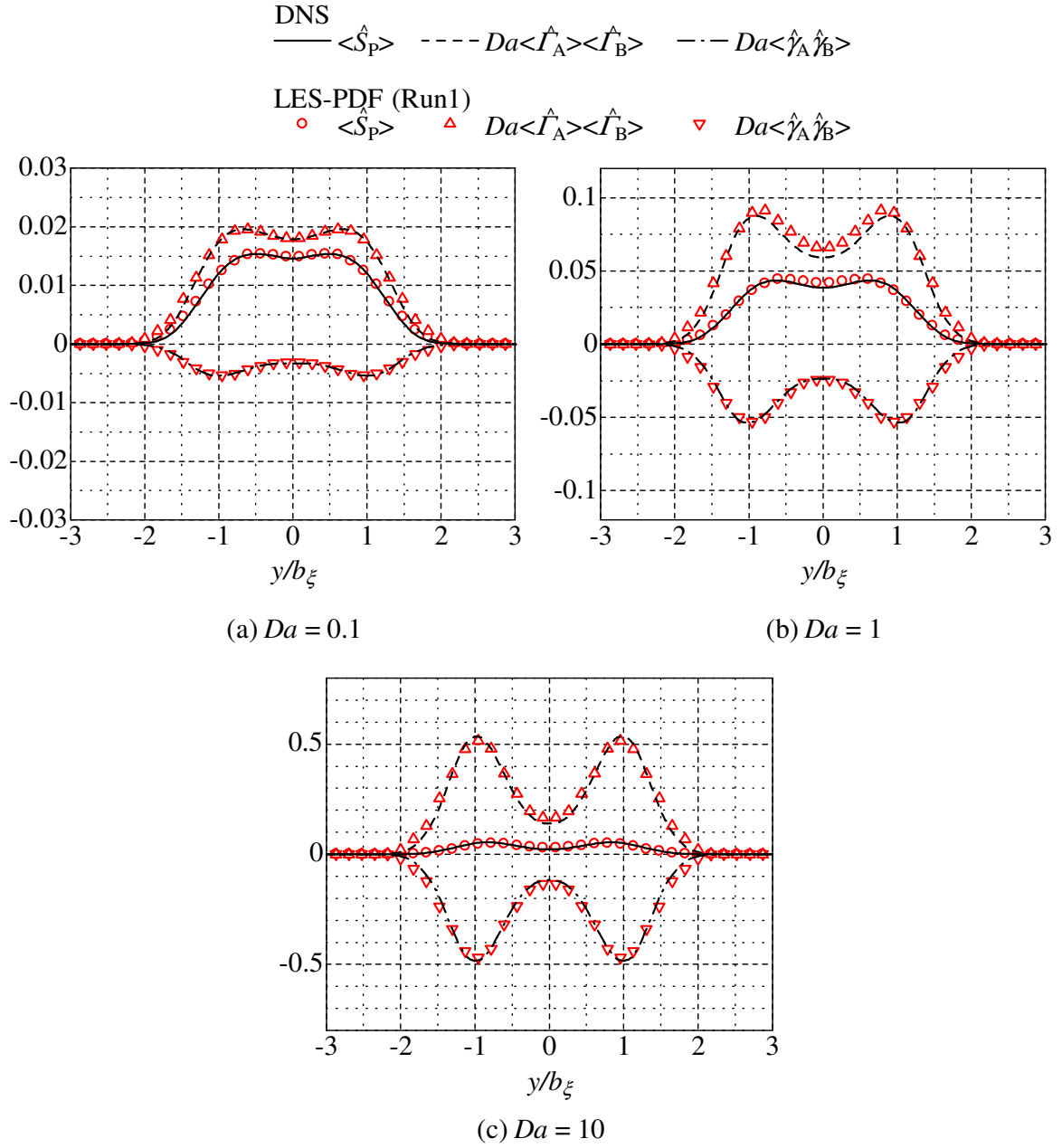


図 4.17 $x/d = 10$ における平均反応速度と濃度相関項の y 方向分布

4.4 ADM を用いた LES–PDF 法による化学反応を伴う液相スカラ混合層の数値計算

4.4.1 化学反応を伴う液相スカラ混合層

本節では、高 Schmidt 数反応性スカラ拡散場に ADM を用いた LES–PDF 法を適用し、計算手法の高 Schmidt 数スカラ拡散場に対する有効性について検証する。計算対象として過去に LES^[29] や確率密度関数法^{[113][114]} による数値計算が行われている化学反応 $A + B \rightarrow P$ を伴う液相格子乱流中のスカラ混合層を選択した。計算対象とする流れ場および反応場の概略図を図 4.18 に示す。同様の流れ場が Komori ら^[78,83] の実験で用いられている。幅 $d = 0.002$ m の角柱により構成される乱流格子 (格子間隔 $M = 0.02$ m) の上流ではスプリットプレートにより反応物質 A を含む溶液と反応物質 B を含む溶液が分離され、それぞれ速度 $U_0 = 0.25$ m/s で x 方向に流されている。そして、乱流格子下流でスカラ混合層が形成され、化学反応 $A + B \rightarrow P$ により物質 P が生成する。格子間隔 M 、平均流速 U_0 に基づく格子 Reynolds 数は $Re_M = U_0 M / \nu = 5,000$ 、拡散物質の Schmidt 数は $Sc = \nu / D \approx 600$ である。座標軸の原点を乱流格子の中心にとり、流れ方向を x 軸、スカラ混合層の広がり方向を y 軸、スパン方向を z 軸とした。混合分率 ξ は反応物質 A, B の瞬時濃度 Γ_A, Γ_B を用いて $\xi = (\Gamma_A - \Gamma_B + \Gamma_{B0}) / (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ と定義される。ここで、 Γ_{A0}, Γ_{B0} は物質 A, B の初期濃度である。このとき、化学量論となる混合分率は $\xi_S = \Gamma_{B0} / (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ となる。また、生成物質の最大濃度は $\Gamma_{P0} = \Gamma_{A0} \Gamma_{B0} / (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ となる。化学反応 $A + B \rightarrow P$ による各物質の濃度変化率は、 $S_P = -S_A = -S_B = k \Gamma_A \Gamma_B$ により表される。ここで、 k は化学反応の反応速度定数である。 Γ_{P0}, M, U_0 で無次元化された化学反応による生成物質の濃度変化率は、 $\hat{S}_P = Da \hat{\Gamma}_A \hat{\Gamma}_B$ となる。ここで、 $\hat{\Gamma}_\alpha = \Gamma_\alpha / \Gamma_{\alpha 0}$ であり、Damköhler 数 Da は $Da = k(\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})M / U_0$ により定義される。Komori ら^[78,83] の実験では反応速度定数 k の異なる二種類の化学反応 ($k = 10^8$ m³/(mol·s), $k = 0.047$ m³/(mol·s)) に対して実験が行われている。それぞれの化学反応に対する実験条件と各パラメータを表 4.3 にまとめて示す。

4.4.2 計算手法

上述した流れ場・反応場を ADM を用いた LES–PDF 法により計算した。Stolz ら^[57] により提案された格子五点の重み付き平均を x, y, z の各方向に対してとることでローパスフィルタ G の計算を行った。LES ではローパスフィルタ G をかけた流れ場 \bar{U}_i および混合分率 $\bar{\xi}^*$ の輸送方程式を Mathew らのフィルタ操作を用いた手法^[55] により数値的に解いた。ローパスフィルタ ($Q_N * G$) をかける頻度の計算結果に対する影響を確認するため、フィルタ ($Q_N * G$) をかける計算ステップの間隔 N_{ST} を $N_{ST} = 10, 15, 18$ と変化させて数

値計算を行った．Deconvolution フィルタ Q_N の計算には $N = 5$ とした式 (4.10) を用いた．連続の式と Navier-Stokes 方程式の連立に部分段階法を用いた．時間進行には三次精度 Runge-Kutta 法を用い， x 方向の空間の離散化に二次精度中心差分を， y, z 方向の空間の離散化には四次精度中心差分を用いた．Poisson 方程式の求解には，Poisson 方程式を y, z 方向にフーリエ変換した後， x 方向に対角行列解法を用いた．

x, y, z の各方向の計算領域の大きさを， $L_x = 24.5M$ ， $L_y = L_x = 4M$ とした．乱流格子位置を $x = 0$ とし，流入境界を $x = -4M$ の位置に設定した．また， x, y, z の各方向の計算格子数を $N_x = 640$ ， $N_y = N_z = 128$ とし， y, z 方向に等間隔格子を， x 方向には流入境界から乱流格子に近づくにつれて計算格子間隔が小さくなるような不等間隔格子を用いた．速度場の境界条件として流出境界では対流流出条件を用い，流入境界では速度ベクトルの x 方向成分を $U = U_0$ ， y および z 方向成分をそれぞれ $V = 0$ ， $W = 0$ とした．また，速度場の y, z 方向境界の境界条件として周期境界条件を用いた．混合分率の流入境界条件を $y > 0$ で $\xi^* = 0$ ， $y < 0$ で $\xi^* = 1$ とし， $y = -2M$ の y 方向境界面では $\xi^* = 1$ ， $y = 2M$ の y 方向境界面では $\xi^* = 0$ とすることでスカラ混合層の計算を行った．また，混合分率の z 方向の境界条件に周期境界条件を，流出境界では対流流出境界条件を用いた．過去に行われている格子乱流の DNS^[127,128] と同様に，乱流格子の設定には埋め込み境界法を用いた．

LES による計算結果の計算粒子位置への補間には線形補間を用いた．式 (4.27) の分子拡散項に対して修正 Curl モデルを用いた．式 (4.27) の時間進行には部分段階法^[34]を用い，以下のように分子拡散項と化学反応項を順に計算した．

$$\phi_{\alpha M}^{(n)}(t) = \phi_{\alpha}^{(n)}(t) + [d\phi_{\alpha}^{(n)}]_{\text{mix}} \quad (4.63)$$

$$\phi_{\alpha}^{(n)}(t + dt) = \phi_{\alpha M}^{(n)}(t) + S_{\alpha}(\Phi_M^{(n)})dt \quad (4.64)$$

ここで，下付き文字 M は分子拡散項の時間進行後の値を， $[d\phi_{\alpha}^{(n)}]_{\text{mix}}$ は分子混合モデルによりモデル化された微小時間 dt の間に生じる分子拡散項による $\phi_{\alpha}^{(n)}$ の変化を表す．計算粒子 n と混合する計算粒子 m として物理空間で最も近い計算粒子を選んだ．分子混合モデルの時間スケールを以下の式により与えた．

$$\tau_M = C_{\tau} \frac{\langle \tilde{\xi}''^2 \rangle_{(n,m)}}{\langle N_{LS}^* \rangle_{(n,m)}} \quad (4.65)$$

$$\tilde{\xi}''^{(n)} \equiv \tilde{\xi}^{*(n)} - \langle \tilde{\xi}^* \rangle_{(n,m)} \quad (4.66)$$

ここで， $N_{LS}^* = D \nabla \tilde{\xi}^* \cdot \nabla \tilde{\xi}^*$ であり，各反応性物質の拡散係数を等しく D とした．LES により計算した N_{LS}^* および $\tilde{\xi}^*$ を各計算粒子位置に補間し τ_M を計算した． C_{τ} は数値計算のパラメータである． C_{τ} は必ずしも一定値となるとは限らず位置や時間の関数とも成り得るが，本研究では PDF 法により得られる無反応物質の濃度変動 rms 値が LES の結果と一致するように $C_{\tau} = 1.6$ の一定値した．

$Da = 0.751$ の反応場の計算では, PDF 法により混合分率 $\xi = (\Gamma_A - \Gamma_B + \Gamma_{B0}) / (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})$ および生成物質濃度 Γ_P を計算し, $\Phi = (\xi, \Gamma_P)$ とした. そして, 反応物質 A, B の濃度を質量保存則から導かれる $\Gamma_A = \Gamma_{A0}\xi - \Gamma_P$ および $\Gamma_B = \Gamma_{B0}(1 - \xi) - \Gamma_P$ より求めた. $Da = O(10^8)$ の反応場の計算では PDF 法により混合分率 ξ を計算し, $k \rightarrow \infty$ に対して次式のように得られる瞬間反応極限での濃度^[69] を用いて反応性物質濃度を算出した.

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \Gamma_A = (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})(\xi - \xi_S)H(\xi - \xi_S) \quad (4.67a)$$

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \Gamma_B = (\Gamma_{A0} + \Gamma_{B0})(\xi_S - \xi)H(\xi_S - \xi) \quad (4.67b)$$

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \Gamma_P = \begin{cases} \Gamma_{A0}\xi & (\xi < \xi_S) \\ \Gamma_{B0}(1 - \xi) & (\xi \geq \xi_S) \end{cases} \quad (4.67c)$$

ここで, $H(z)$ は Heaviside の単位ステップ関数であり, $z < 0$ で $H(z) = 0$, $z \geq 0$ で $H(z) = 1$ である. また, $k \rightarrow 0$ に対して次式のように得られる無反応極限での濃度^[69] を用いて無反応の場合の各物質の濃度を計算した.

$$\lim_{k \rightarrow 0} \Gamma_A = \xi \Gamma_{A0} \quad (4.68a)$$

$$\lim_{k \rightarrow 0} \Gamma_B = (1 - \xi) \Gamma_{B0} \quad (4.68b)$$

$$\lim_{k \rightarrow 0} \Gamma_P = 0 \quad (4.68c)$$

PDF 法で用いる計算粒子の数を 82,000 個とした. 初期位置として計算粒子を計算領域に一様に分布させた. $x = -4M$ の断面を流入境界, $x = 20.5M$ の断面を流出境界とし, 流出境界から計算領域を出た計算粒子を流入境界上に不規則に再配置した. 乱流格子より上流域である $x < 0$ に位置する計算粒子のうち, $y < 0$ にある計算粒子には $\xi^{(n)} = 1, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を, $y > 0$ にある計算粒子には $\xi^{(n)} = 0, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を与えた. y, z 方向の計算粒子の位置の境界条件に周期境界条件を用いた. このうち, y 方向境界を通過し $y < 0$ に配置される計算粒子には $\xi^{(n)} = 1, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を, y 方向境界を通過し $y > 0$ に配置される計算粒子には $\xi^{(n)} = 0, \Gamma_P^{(n)} = 0$ を与えた. また, z 方向には計算粒子の持つスカラ量についても周期境界条件を課した. 計算粒子が乱流格子内部に入り込んだ場合には計算粒子を y あるいは z 方向に移動させ, 乱流格子外の LES 計算格子から計算粒子に最も近い計算格子を選び, その計算格子の中心に計算粒子を配置した. PDF 法による統計量の計算は, 流れ場を x, y 方向に 100×130 の領域に分割し, 各小領域内の計算粒子を用いて行った.

表 4.3 Komori らにより反応性スカラ混合層に対して行われた実験条件 [78,83]

Reaction rate constant	Γ_{A0}	Γ_{B0}	Γ_{P0}	ξ_S	Da
$k = 10^8 \text{ m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$: 100 mol/m ³	100 mol/m ³	50 mol/m ³	0.5	$O(10^8)$
$k = 0.047 \text{ m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$: 10 mol/m ³	10 mol/m ³	5 mol/m ³	0.5	0.751

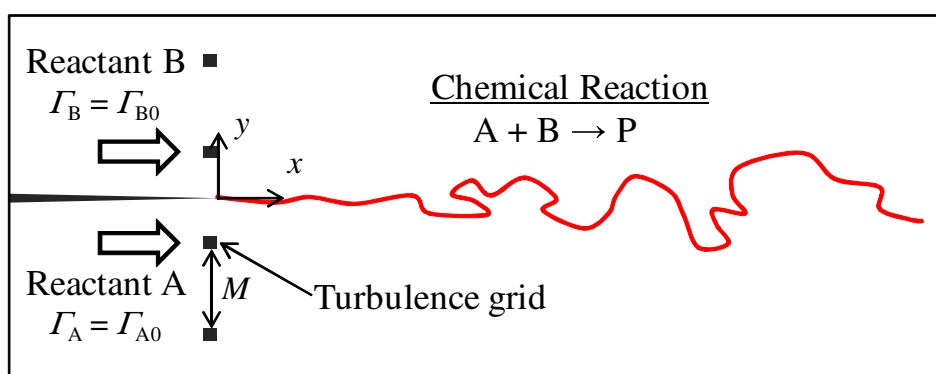


図 4.18 計算対象とした化学反応を伴う液相スカラ混合層

4.4.3 LES-PDF 法による化学反応を伴う液相スカラ混合層の計算結果

LES による流れ場・混合分率の計算結果

図 4.19 にフィルタ ($Q_N * G$) をかけるステップ間隔 N_{ST} を $N_{ST} = 15$ とした LES から得られた x, y, z 各方向の速度変動強度 $\langle u'^2 \rangle, \langle v'^2 \rangle, \langle w'^2 \rangle$ の下流方向変化を, $N_{ST} = 10, 18$ とした LES から得られた $\langle u'^2 \rangle$ と Komori らの測定値とともに示す．ここで, $\langle \rangle$ は時間平均値を意味する．LES では変動速度 u'_i を $U_i \approx \tilde{U}_i = Q_N * \bar{U}_i$ を用いて次式より計算した．

$$u'_i = \tilde{U}_i - \langle \tilde{U}_i \rangle \quad (4.69)$$

図より $\langle u'^2 \rangle$ は N_{ST} の値によってほとんど変化せず, $10 \leq N_{ST} \leq 18$ の範囲で計算結果がフィルタをかける頻度によらないことがわかる．また, LES により得られた速度変動強度の下流方向変化が Komori らによる測定値とよく一致しており, 本研究で用いた計算手法により格子乱流中の速度場を正しく計算できていることがわかる．以下では, $N_{ST} = 15$ として得られた LES-PDF 法の計算結果を示す．

図 4.20 に平均混合分率 $\langle \xi^* \rangle$ の $x/M = 6, 12$ における y 方向分布を示す．また, 図 4.21 にスカラ混合層の幅 δ の下流方向変化を示す．本節では混合層の幅 δ を $\langle \xi^* \rangle = 0.25$ となる位置から $\langle \xi^* \rangle = 0.75$ となる位置までの距離の二倍により定義した．各図には実験による測定値がともに示されている．図 4.20, 4.21 より, LES により平均混合分率の分布やスカラ混合層の広がりを正確に計算できていることがわかる．

変数 f の SGS の変動 ($f - \bar{f}$) を無視すると, 平均値 $\langle f \rangle$ からの f の変動はフィルタをかけた変数 \bar{f} を用いて $(\bar{f} - \langle \bar{f} \rangle)$ により計算できる．Michioka ら^[29] は, SGS の変動を無視した場合, 液相スカラ混合層中の濃度変動 rms 値が小さく見積もられることを指摘しており, Schmidt 数に合わせて相関係数を適切に設定したスケール相似則モデルを用いて SGS の変動を見積もることで濃度変動 rms 値を LES の計算結果から算出する手法を提案している．一方, ADM を用いた LES では, $f \approx \tilde{f} = Q_N * \bar{f}$ から得られる変数 f の変動 $f' = \tilde{f} - \langle \tilde{f} \rangle$ を用いることで SGS の変動を考慮することができる．Deconvolution フィルタ Q_N を求めるために $N = 0$ とした式 (4.10) を用いた場合, f' は SGS の変動を無視した変動 $\bar{f} - \langle \bar{f} \rangle$ に等しくなる．また, $N = 1$ とすると $Q_1 = I + (I - G) = 2I - G$ となり, SGS の変動は次式のように計算される．

$$f - \bar{f} \approx Q_N * \bar{f} - \bar{f} = \bar{f} - G * \bar{f} \quad (4.70)$$

これは, Michioka ら^[29] が SGS の変動を見積もるために用いているスケール相似則モデルと対応している．本研究の LES では $N = 5$ とした Deconvolution フィルタ Q_N を計算している．図 4.22 に混合分率の変動 rms 値 ξ_{rms} のスカラ混合層の中心における下流方向変化を実験値と比較して示す．図中には, SGS の変動を無視して得られる混合分率の変動 $\bar{\xi}^* - \langle \bar{\xi}^* \rangle$

から計算した ξ_{rms} と, Deconvolution フィルタ Q_N を用いることで得られる混合分率の変動 $\xi' = \tilde{\xi}^* - \langle \tilde{\xi}^* \rangle$ から計算した ξ_{rms} がともに示されている. 図 4.22 より SGS の変動を無視した場合には ξ_{rms} が小さく見積もられることがわかる. これに対して Deconvolution フィルタ Q_N を用いて計算した ξ_{rms} は実験値とよく一致している. このように, Deconvolution フィルタ Q_N を用いて SGS の変動を見積もることで, 高 Schmidt 数の流れ場におけるスカラ量の変動 rms 値を正確に計算できることがわかる.

図 4.23 に混合分率の y 方向乱流流束 $\langle v'\xi' \rangle$ の $x/M = 6, 12$ における y 方向分布を示す. スカラ混合層中の $\langle v'\xi' \rangle$ の大きさは Schmidt 数によって大きく変化する^[127, 129]. LES により得られた $\langle v'\xi' \rangle$ が実験値とよく一致していることから, ADM を用いた LES により高 Schmidt 数の物質拡散場を正しく計算できていることがわかる.

LES–PDF 法による反応性物質の濃度統計量の計算結果

図 4.24 に, PDF 法により計算した混合分率 ξ と LES により計算した混合分率 ξ^* のそれぞれから得られた混合分率の変動 rms 値 ξ_{rms} の $x/M = 6, 12$ における y 方向分布を示す. PDF 法により計算するスカラ量の変動は分子混合モデルによりモデル化される分子拡散項の効果で減衰する. その減衰の強さは分子混合モデルの時間スケール τ_M の影響を強く受けるため, PDF 法により得られる ξ_{rms} の分布は τ_M の計算手法に依存する. 図 4.24 より, PDF 法により得られた ξ_{rms} の分布が LES により得られた分布とよく一致していることがわかる. 式 (4.65) の C_τ は必ずしも一定値となるとは限らず, 位置や時間の関数とも成り得る. しかし, 本研究で対象とした流れ場では C_τ を位置などによらない一定値 ($C_\tau = 1.6$) とした式 (4.65), (4.66) により τ_M を正しく見積もることができることがわかる.

以下では LES–PDF 法により得られた反応性物質の濃度統計量を Komori らの実験値と比較する. 図 4.25 に反応物質 A と生成物質 P の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle / \Gamma_{A0}$, $\langle \Gamma_P \rangle / \Gamma_{P0}$ のスカラ混合層の中心における下流方向変化を示す. 図 4.25(a) より下流に行くにつれて反応が進行するとともに, 反応物質 A の平均濃度が減少していくことがわかる. また, 図 4.25(b) に示したように, 生成物質の平均濃度は下流に行くにつれて増加し, その大きさは Da の増加とともに大きくなる. 図 4.25 より LES–PDF 法により実験結果と同様の平均濃度の変化が得られることがわかる.

図 4.26 に $x/M = 6, 12, 20$ における反応物質 A の平均濃度 $\langle \Gamma_A \rangle / \Gamma_{A0}$ の y 方向分布を示す. 図中の横軸は混合層の幅 δ で無次元化されている. また, 図中には $Da = O(10^8)$ の化学反応に対する計測結果と無反応の場合の計測結果がともに示されている. 各図において LES–PDF 法により得られた $\langle \Gamma_A \rangle$ は実験値と良好に一致している. $Da = 0.751$ の $\langle \Gamma_A \rangle$ は無反応の場合の $\langle \Gamma_A \rangle$ と $Da = O(10^8)$ の $\langle \Gamma_A \rangle$ の間に分布し, 下流に行くにつれて $Da = O(10^8)$ の $\langle \Gamma_A \rangle$ に近づく傾向が見られる. 図 4.25, 4.26 より, LES–PDF 法により

$Da = 0.752$ と $Da = O(10^8)$ の化学反応に対する反応性物質の平均濃度を正確に計算できることがわかる．

図 4.27 に $x/M = 6, 12, 20$ における反応物質 A の濃度分散 $\langle \gamma_A^2 \rangle / \Gamma_{A0}^2$ の y 方向分布を示す．ここで， $\gamma_A \equiv \Gamma_A - \langle \Gamma_A \rangle$ である．図中の横軸は混合層の幅 δ で無次元化されており， $Da = O(10^8)$ の化学反応に対する計測結果と無反応の場合の計測結果がともに示されている．無反応の場合， $\langle \gamma_A^2 \rangle / \Gamma_{A0}^2$ はスカラ混合層の中心に対して対称な分布となる．各図より，LES-PDF 法により得られた無反応の場合の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ が実験値とよく一致していることがわかる．化学反応が生じることにより $y < 0$ の領域で $\langle \gamma_A^2 \rangle$ が大きく， $y > 0$ の領域で $\langle \gamma_A^2 \rangle$ が小さくなる．また， $\langle \gamma_A^2 \rangle$ の化学反応による変化は下流に行くにつれて大きくなっている．LES-PDF 法により得られた $\langle \gamma_A^2 \rangle$ にも同様の傾向が見られる．図 4.27(a) に示した $x/M = 6$ において，LES-PDF 法は $y > 0$ での $Da = O(10^8)$ の化学反応による $\langle \gamma_A^2 \rangle$ の変化を小さく見積もっているものの，図 4.27(b), (c) に示した $x/M = 12, 20$ の位置では $Da = O(10^8)$ の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ を LES-PDF 法により正確に計算できていることがわかる．LES-PDF 法により得られた $Da = 0.751$ の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ は無反応の場合の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ と $Da = O(10^8)$ の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ の間に分布している．また， $x/M = 6$ では， $Da = 0.751$ の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ は無反応の場合の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ に近い値となるが，下流に行くにつれて $Da = O(10^8)$ の $\langle \gamma_A^2 \rangle$ に近づく傾向が見られる．

図 4.28 に $x/M = 6, 12, 20$ における反応物質 A の y 方向乱流流束 $\langle v\gamma_A \rangle$ の y 方向分布を示す．ここで， $v \equiv V - \langle V \rangle$ であり，PDF 法の計算粒子位置に補間された速度から計算した．図中の横軸は混合層の幅 δ で無次元化されており， $Da = O(10^8)$ の化学反応に対する計測結果と無反応の場合の計測結果がともに示されている． $\langle \gamma_A^2 \rangle$ と同様に， $\langle v\gamma_A \rangle$ は化学反応が生じることにより $y < 0$ の領域では大きく， $y > 0$ の領域では小さくなる．また，化学反応による $\langle v\gamma_A \rangle$ の変化は下流に行くにつれて大きくなる．LES-PDF 法により得られた $\langle v\gamma_A \rangle$ の化学反応による変化には，Komori らの実験結果と同様の傾向が見られる．図 4.28(a) に示した $x/M = 6$ では，反応の有無によらず LES-PDF 法により得られた $\langle v\gamma_A \rangle$ は実験値より小さい値となっている．図 4.28(b), (c) に示した $x/M = 12, 20$ では LES-PDF 法により得られた無反応および $Da = O(10^8)$ の $\langle v\gamma_A \rangle$ は実験値とよく一致しており，化学反応による $\langle v\gamma_A \rangle$ の変化を正確に計算できている． $Da = 0.751$ の $\langle v\gamma_A \rangle$ は，無反応の場合の $\langle v\gamma_A \rangle$ と $Da = O(10^8)$ の $\langle v\gamma_A \rangle$ の間に分布し， $x/M = 20$ の $y < 0$ では $Da = O(10^8)$ の $\langle v\gamma_A \rangle$ に近い値となった．

図 4.29(a), (b) に反応物質 A, B の濃度変動の相関係数 $C_{AB} = \langle \gamma_A \gamma_B \rangle / (\langle \gamma_A^2 \rangle^{1/2} \langle \gamma_B^2 \rangle^{1/2})$ および混合度 $I_S = \langle \gamma_A \gamma_B \rangle / (\langle \Gamma_A \rangle \langle \Gamma_B \rangle)$ のスカラ混合層の中心における下流方向変化を示す．無反応の場合には $\Gamma_A = \Gamma_{A0}\xi$ ， $\Gamma_B = \Gamma_{B0}(1 - \xi)$ となるため $C_{AB} = -1$ となり，化学反応が生じることで C_{AB} は大きくなる．図 4.29(a) より C_{AB} の分布を LES-PDF 法により正確に予測できることがわかる．混合度 I_S は反応物質 A, B の混合の程度を表し，二つ

の物質が完全に混合しているとき濃度変動 γ_A, γ_B は常に 0 となるため $I_S = 0$ となる。また、二つの物質が全く混合していないとき $I_S = -1$ となる。 $x/M = 0$ では二つの物質が混合しておらず $I_S \approx -1$ となる。無反応の場合、下流に行くにつれて二つの物質の混合が進み I_S は大きくなる。また、 $Da = O(10^8)$ の化学反応では、反応物質 A, B のどちらか一方の濃度が常に 0 となっているため $I_S = -1$ となる。 $Da = 0.751$ の化学反応が生じる場合、生成物質 P が生成することで物質 A, B の混合にむらができ、 I_S は無反応の場合の値より小さくなる。LES-PDF 法は下流域で $Da = 0.751$ の化学反応に対して I_S を小さく見積もっているものの、LES-PDF 法により得られた I_S は実験値に近い値となっている。このように、LES-PDF 法により反応物質の濃度相関に関連した統計量を正確に計算できることがわかる。

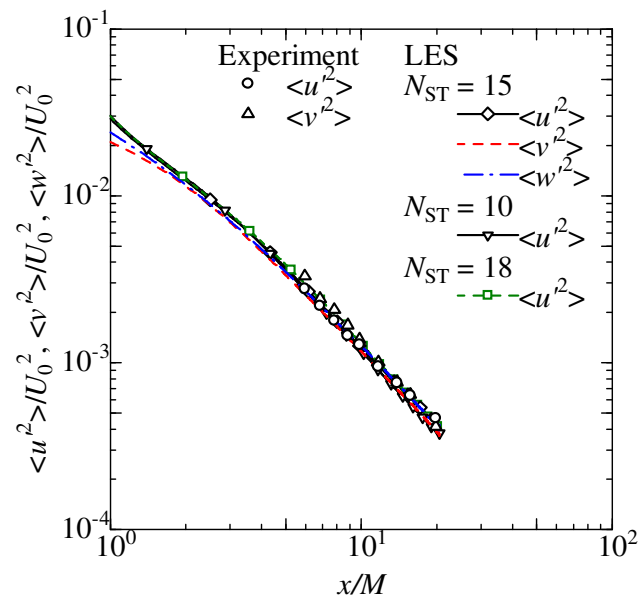


図 4.19 速度変動強度の下流方向変化.

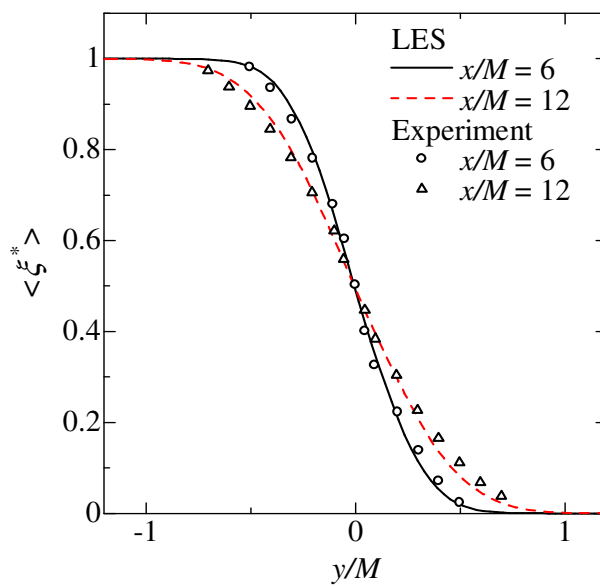


図 4.20 平均混合分率の y 方向分布

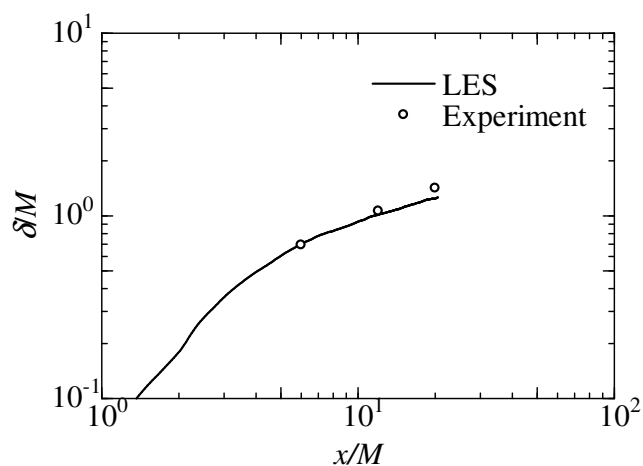


図 4.21 混合層の幅の下流方向変化

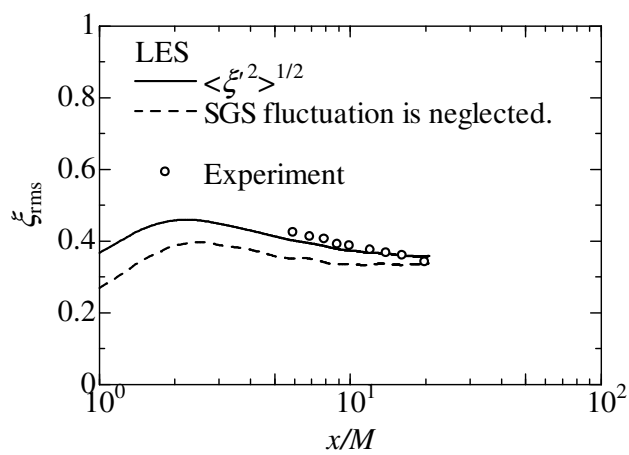


図 4.22 混合分率の変動 rms 値の混合層の中心における下流方向変化

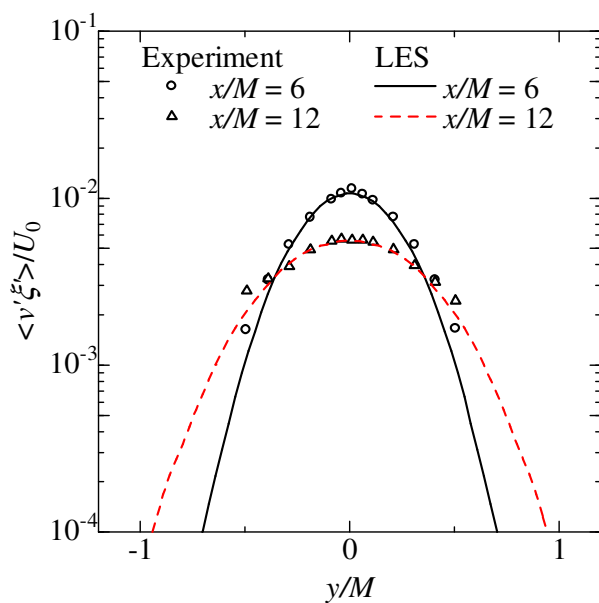


図 4.23 混合分率の y 方向乱流流束の y 方向分布

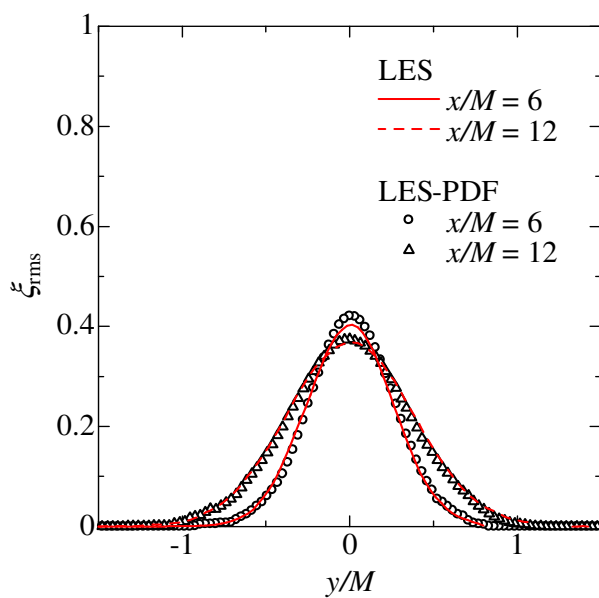


図 4.24 LES と PDF 法により得られた混合分率の変動 $_{rms}$ 値の y 方向分布の比較

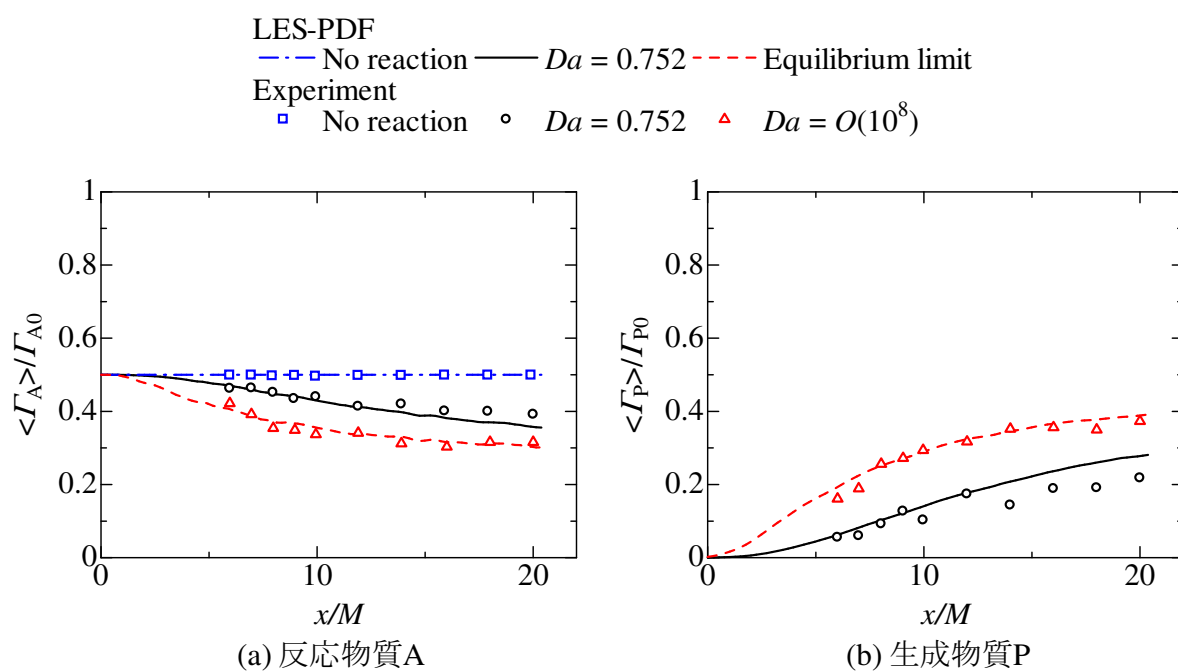


図 4.25 スカラ混合層の中心における反応物質 A および生成物質 P の平均濃度の下流方向変化

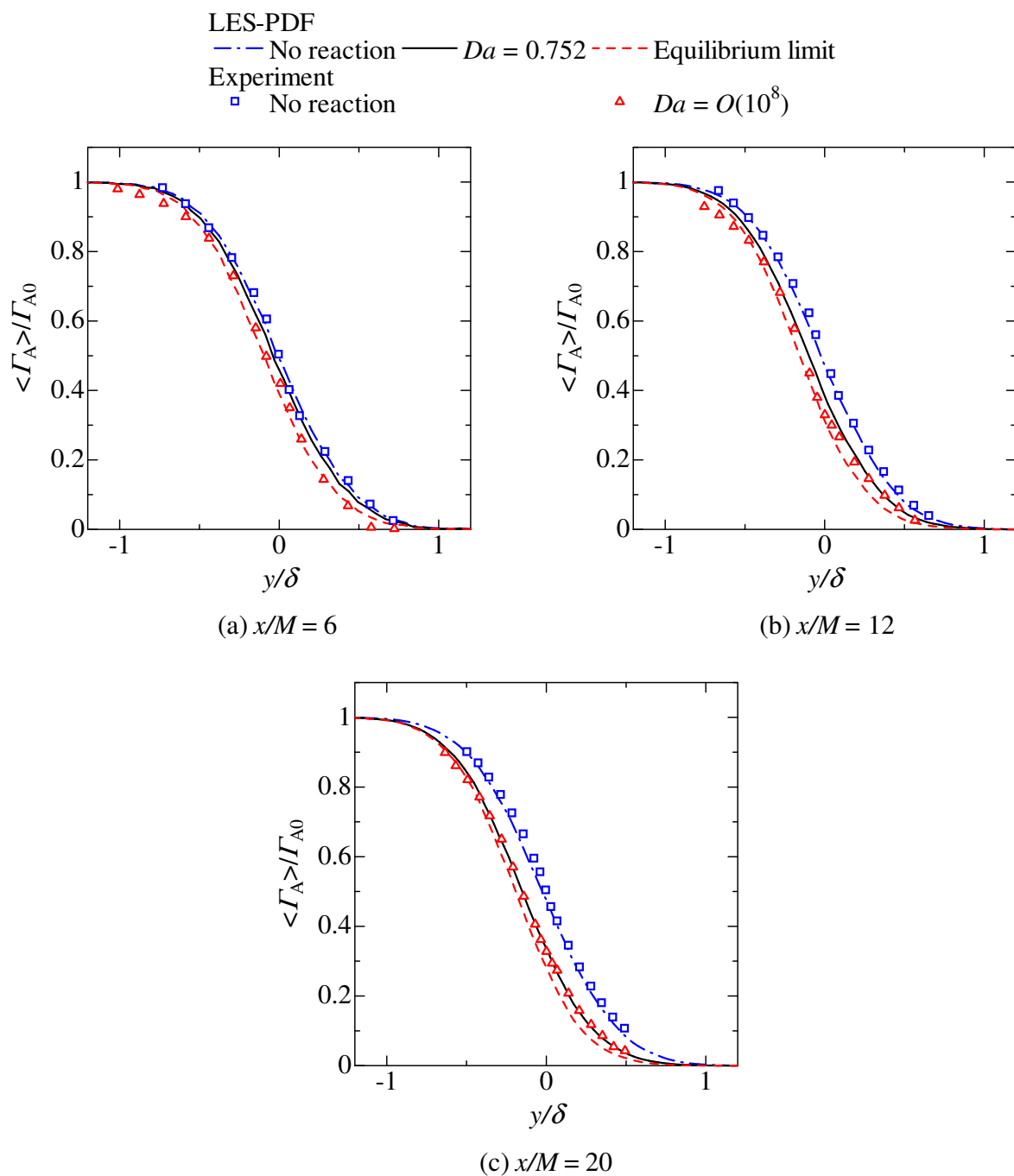


図 4.26 反応物質 A の平均濃度の y 方向分布

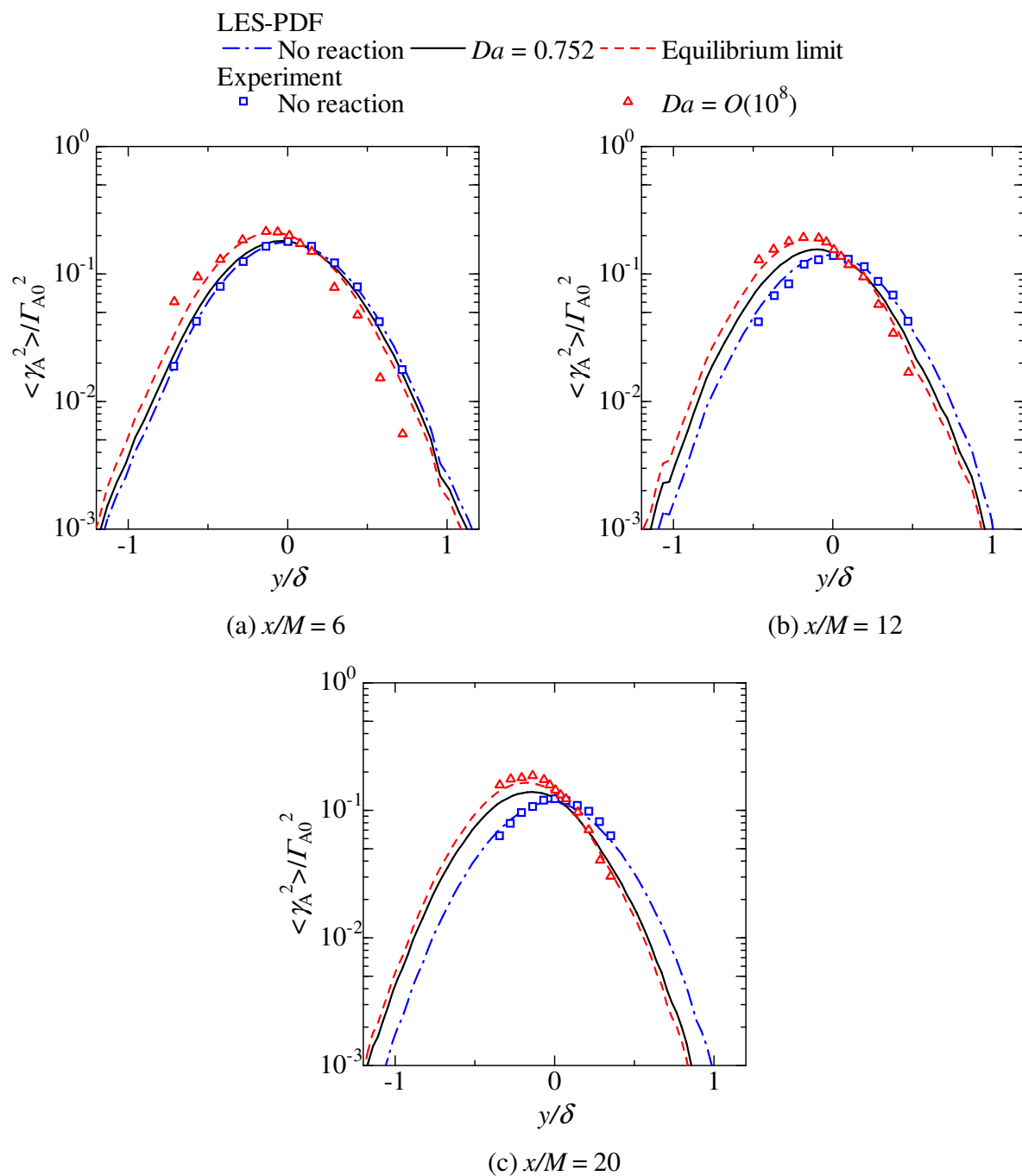


図 4.27 反応物質 A の濃度分散の y 方向分布

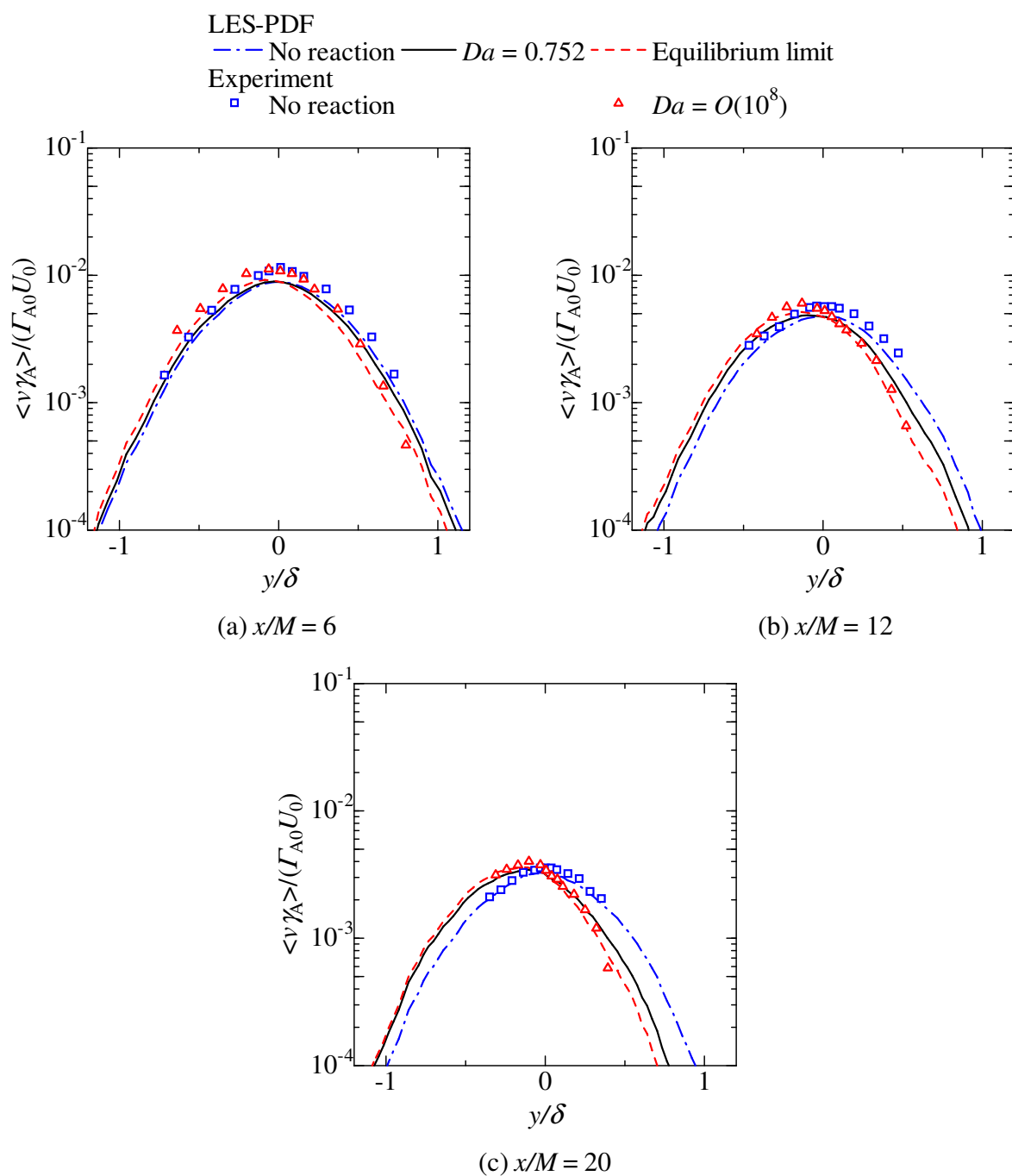


図 4.28 反応物質 A の y 方向乱流流束の y 方向分布

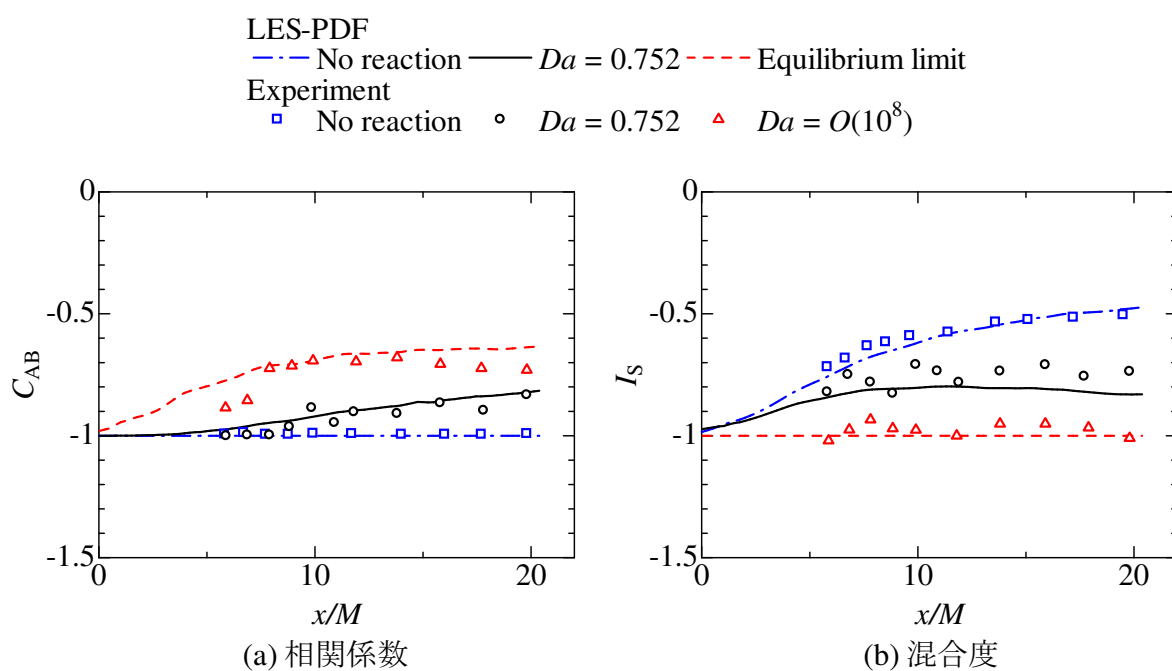


図 4.29 反応物質 A, B の濃度の相関係数および混合度の混合層の中心における下流方向変化

4.5 結言

本章では Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた速度場と混合分率 (保存スカラー) 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, ADM を用いた LES–PDF 法を二次元噴流中の反応性物質拡散場 ($Sc = 1$) に適用した。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 (平均濃度, 濃度変動 rms 値, 平均反応速度) が第三章の 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 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 モデルとこう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。

第5章

結論

本論文では化学反応を伴う乱流現象の特性を実験・数値計算により明らかにすること、乱流中で生じる化学反応の予測手法を確立することを目的として研究を行った。ここでは、各章で得られた主な結論についてまとめて示す。

第二章では、液相二次元噴流中で生じる二次の化学反応 ($A + B \rightarrow R$) の特性を明らかにすることを目的として実験を行った。反応物質 A は噴流溶液中に、反応物質 B は周囲流体中に含まれる物質である。吸光光度法に基づく濃度測定用光ファイバプローブと速度測定用 I 型熱膜プローブを組み合わせた複合プローブを用いることで、反応性物質濃度と流れ方向速度の同時測定を行った。そして、実験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。以下に得られた結論をまとめて示す。

- 反応物質 A および反応物質 B の乱流流束に対する化学反応の影響は、噴流出口付近と噴流の十分下流や外縁部付近では特性が異なる。噴流出口付近の中心線上付近では無反応の場合と比較して、化学反応の影響により物質 A の物質流束は正に大きくなり、物質 B の物質流束は 0 に近づく。逆に十分下流や外縁部では無反応の場合と比べて、化学反応の影響により物質 A の物質流束は 0 に近づき、物質 B の物質流束は負に大きくなる。また、反応による生成物質 R の物質流束は噴流出口付近では負の値となるが、噴流の下流や外縁部付近では正の値となる。
- 反応物質 A、B の濃度変動と速度変動のコスペクトルについて無反応極限との差は乱れの強い周波数域で大きくなる。また、この周波数域において、生成物質 R のコスペクトルは噴流の下流域や外縁部に近づくにつれて大きく変化する。このように、乱れの強い周波数域で、化学反応は反応性物質の乱流物質フラックスに対して大きな影響を与える。
- 噴流中に含ませた反応物質 A の場合、流れ方向の乱流拡散係数 D_{tA} は無反応の場合よりも小さくなる。主流中に含ませた反応物質 B の場合、物質 B の平均濃度が下流

に行くにつれて減少する領域で乱流拡散係数 D_{tB} は負の値をとり、逆こう配拡散現象が生じる。乱流拡散係数は化学反応によって大きく変化し、こうした乱流拡散係数の変化に対応して、乱流 Schmidt 数も同様に变化する。乱流拡散係数あるいは乱流 Schmidt 数を一定と仮定した場合、逆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。

- 反応物質 A, B の濃度相関の y 方向分布 (y : 噴流広がり方向) は噴流上流域の噴流中心から外れた位置や噴流下流域の噴流中心で極小値をとる。反応物質 A, B の濃度相関は、噴流上流域の外縁付近では化学反応により負に大きくなり、他の位置では化学反応によりその大きさが小さくなる。また、噴流上流域の外縁付近での濃度相関の変化は、反応物質 A, B の初期濃度比と化学量論となる濃度比との違いによる濃度相関の変化が大きくなることにより生じる。また、瞬間反応極限での濃度から求めた濃度相関は位置によらず無反応の場合の濃度相関よりも大きさが小さくなる。
- Toor のモデルは $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の大きさを実験値よりも小さく見積もる。化学反応による $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ の変化が小さい位置では 3E モデルにより実験値に近い値が得られるが、化学反応による $\langle \gamma_A \gamma_B \rangle$ 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。
- 反応性物質の条件付平均濃度 Q_α ($\alpha = A, B, R$) は無反応極限と瞬間反応極限での濃度の間に分布し、噴流上流域では無反応極限の濃度に近い値を持つが、噴流下流に向かうにつれて反応が進行し瞬間反応極限の濃度に近づく。噴流中心付近では、条件付平均反応速度が最大となる混合分率に対して Q_R が最大となり、さらにこのとき $Q_A/\Gamma_{A0} = Q_B/\Gamma_{B0}$ となる。噴流下流域における Q_α は、 y 方向の位置によらずほぼ同一の分布となる。しかし、噴流上流域の噴流中心に近い位置では、噴流中心から離れるにつれて Q_A, Q_B は減少し、 Q_R は増加する。また、噴流上流の噴流外縁付近では、 Q_α は y 方向位置によらずほぼ同一の分布となる。
- 反応性物質の条件付濃度変動の分散および共分散 $G_{\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = A, B, R$) の大きさは α, β によらず等しくなる。噴流上流域において、 $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は噴流外縁部に向かうにつれて大きくなるが、噴流下流域では噴流外縁部に向かうにつれて $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は小さくなる。また、 $G_{\alpha\beta}^{1/2}$ は量論混合となる混合分率 ξ_S に近い η 、あるいは ξ_S よりやや小さい η に対してピーク値を持つ分布となる。
- 化学反応による物質 R の生成速度項の条件付平均値 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ を実験により計測し、CMC 法で一般的に用いられているモデルである反応物質の条件付平均濃度の積から得られる条件付平均反応速度の値と比較した。その結果、本研究の流れ場、反応場において、条件付平均反応速度項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が示された．噴流上流域の噴流外縁付近において， $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は y 方向位置によらずほぼ同一となる．しかし，噴流上流域の噴流中心付近では，噴流中心から離れるにつれて $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は減少した． $x/d = 40$ では $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ の値は y 方向に僅かに変化するものの， $x/d = 10$ の値と比較して非常に小さい値となる．

- 二次元噴流の中心軸上において $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle = Da\beta\hat{Q}_R$ により定義される $\beta(x, \eta)$ が η によらずほぼ一定となることが確かめられた．二次反応 $A + B \rightarrow R$ では，条件付平均反応速度 $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ は混合分率の条件 η と生成物質の条件付平均濃度 \hat{Q}_R の関数として表すことができる． $\langle \hat{S}_R | \eta \rangle$ ， η および \hat{Q}_R の関係式に対して， β が η によらないことを考慮することで，実験により計測した \hat{Q}_R と η の関係を表す近似式が得られることが確認できた．
- 実験結果より求めた条件付統計量を用いて，CMC 方程式から条件付スカラ散逸率 $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ を算出した． $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は下流に行くにつれて小さくなるとともに，その分布形状に大きな変化が見られた． $\langle \hat{N} | \eta \rangle$ は，噴流上流域では一つの極大値を持つ分布となるが，下流に行くにつれて小さくなるとともに二つの極大値を持つ分布となる．さらに，CMC 方程式より求めた条件付スカラ散逸率と混合分率の確率密度関数より，スカラ散逸率の平均値 $\langle \hat{N} \rangle$ を求めた．二次元噴流の中心軸上において， $\langle \hat{N} \rangle$ は $\langle \hat{N} \rangle \propto (x^*/d)^{-2.9}$ に従って変化することが確認できた．この減衰の指数は Peters ら^[108] により得られている $\langle \hat{N} \rangle \propto (x^*/d)^{-3}$ に近い値であり，本研究で用いた方法により条件付スカラ散逸率が正しく見積もられていたことを示唆している．本研究では，計測結果が測定装置の空間分解能に依存し難い反応性物質の濃度や速度の条件付統計量を用いて条件付スカラ散逸率を算出した．そのため，従来計測が困難であった液相乱流中のスカラ散逸率を求めることができた．

第三章では化学反応 ($A + B \rightarrow P$, A:噴流物質, B:周囲流物質, $Sc = 1$) を伴う二次元噴流の直接数値計算 (DNS) を行い，噴流中で生じる化学反応の特性について調査した．DNS は $Da = 0.1, 1, 10$ となる三つの化学反応に対して行われた．DNS により得られた瞬時の流れ場および反応場を可視化することで以下のことがわかった．

- 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している．
- $Da = 10$ の場合，噴流と周囲流体の境界付近で反応が活発に生じるが， $Da = 0.1$ の場合，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．

また，流れ場および反応性物質濃度場の統計量について以下のことがわかった．

- 噴流上流域において生成物質 P の平均濃度の y 方向 (噴流広がり方向) 分布は混合分率の半値幅のやや内側で極大値をとる分布となるが, 噴流下流域では生成物質 P の平均濃度の y 方向分布は噴流中心付近で最大となる分布となる。また, 噴流下流域では噴流中心付近における生成物質 P の平均濃度の y 方向への変化が小さい。
- 噴流出口に近い位置において, 平均反応速度は噴流中心付近で小さく, $|y/b_\xi| = 1$ 付近で最大となる分布となっており, 噴流出口近くでの化学反応は噴流と周囲流体の境界付近で進行することが確認できた。噴流下流域では, $Da = 10$ の反応の平均反応速度は噴流中心から外れた位置で最大値を取る分布となる。しかし, $Da = 0.1$ の場合, 噴流下流域における平均反応速度の y 方向分布は噴流中心で最大となる。

第四章では Approximate Deconvolution Model (ADM) を用いた速度場と混合分率の 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。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, ADM を用いた LES-PDF 法を二次元噴流中の反応性物質拡散場 ($Sc = 1$) に適用した。その結果, 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 (平均濃度, 濃度変動 rms 値, 平均反応速度) が第三章の 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。

次に, ADM を用いた LES-PDF 法を高 Schmidt 数の反応性スカラ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混合層中の化学反応場の数値計算を行い, 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 モデルとこう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 数スカラ拡散場で生じる化学反応に対して有効な手法となることが示された。

謝辞

本論文は平成 23 年 4 月より平成 26 年 1 月にかけて名古屋大学大学院 工学研究科 機械理工学専攻において、名古屋大学大学院 酒井康彦教授および長田孝二准教授の御指導のもとに行われた研究をまとめたものです。本論文を結ぶにあたり、長年にわたり終始丁寧な御指導と御鞭撻を賜りました酒井康彦教授および長田孝二准教授に謹んで感謝の意を表します。

本論文をまとめるに際し、名古屋大学大学院 山下博史教授（機械理工学専攻）、吉川典彦教授（マイクロ・ナノシステム工学専攻）からは、有益な御教示と注意深い御検討を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

本研究の数値計算を行うに当たり、東北大学 早瀬敏幸教授からは共同研究者として多大のご支援を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。実験手法および計算手法に関して、名城大学 久保貴准教授より多数のご助言を頂きました。記して感謝申し上げます。本研究の数値計算の一部は東北大学流体科学研究所未来流体創造情報センターのベクトル並列計算システム NEC SX-9 を用いて行われました。センター関係者に感謝致します。

研究を始めて以来、丁寧なご指導とご助言を頂きました伊藤靖仁准教授ならびに寺島修助教に深く感謝申し上げます。最後に、共同研究者として本研究に御協力頂きました卒業研究生および大学院生の諸氏、ならびに御支援、御協力頂いた多くの方々に御礼申し上げます。

なお、本研究は、日本学術振興会特別研究員 DC1 に対する特別研究員奨励費 (25002531) の援助を受けて行われました。

参考文献

- [1] D. T. Pratt.
Mixing and Chemical Reaction in Continuous Combustion.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 1, No. 2, pp. 73–86, 1976.
- [2] Plumb, R. A. and Ko, M. K. W.
Interrelationships between Mixing Ratios of Long-lived Stratospheric Constituents.
Journal of Geophysical Research: Atmospheres, Vol. 97, pp. 10145–10156, 1992.
- [3] J. Garside.
Industrial Crystallization from Solution.
Chemical Engineering Science, Vol. 40, No. 1, pp. 3–26, 1985.
- [4] 小森悟.
流体力学の世界, 第 6 章.
朝倉書店, 1990.
- [5] J. C. Hill.
Homogeneous Turbulent Mixing with Chemical Reaction.
Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 8, No. 1, pp. 135–161, 1976.
- [6] T. Watanabe, Y. Sakai, K. Nagata, O. Terashima, and T. Kubo.
Simultaneous Measurements of Reactive Scalar and Velocity in a Planar Liquid Jet with a Second-order Chemical Reaction.
Experiments in fluids, Vol. 53, No. 5, pp. 1369–1383, 2012.
- [7] T. Watanabe, Y. Sakai, K. Nagata, and O. Terashima.
Joint Statistics between Velocity and Reactive Scalar in a Turbulent Liquid Jet with a Chemical Reaction.
Physica Scripta, Vol. 2013, No. T155, p. 014039, 2013.
- [8] 渡邊智昭, 酒井康彦, 安原大樹, 長田孝二, 寺島修, 久保貴.
二次反応を伴う液相二次元噴流における速度と反応性スカラー量の同時計測.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 78, No. 788, pp. 769–782, 2012.

- [9] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修.
反応性乱流拡散場における速度と濃度の結合統計量.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 78, No. 788, pp. 783–793, 2012.
- [10] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修, 久保貴.
液相噴流中で生じる化学反応の反応速度に関する実験的研究.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 808, pp. 2691–2703, 2013.
- [11] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修.
反応性乱流拡散場における乱流拡散係数と乱流シュミット数.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 807, pp. 2424–2433, 2013.
- [12] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修, 久保貴.
化学反応を伴う液相噴流中の条件付統計量.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 806, pp. 2053–2065, 2013.
- [13] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修, 久保貴.
反応性液相二次元噴流中のスカラ散逸率 (Conditional Moment Closure 方程式の実験的評価) .
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 806, pp. 2066–2076, 2013.
- [14] T. Watanabe, Y. Sakai, K. Nagata, O. Terashima, H. Suzuki, T. Hayase, and Y. Ito.
Visualization of Turbulent Reactive Jet by Using Direct Numerical Simulation.
International Journal of Modeling, Simulation, and Scientific Computing, Vol. 4, No. 1, p. 1341001, 2013.
- [15] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修, 伊藤靖仁, 早瀬敏幸.
DNS による反応性物質濃度の乱流シュミット数・乱流拡散係数に関する研究.
日本機械学会論文集 B 編, 2014, 掲載決定.
- [16] 渡邊智昭, 酒井康彦, 長田孝二, 寺島修, 伊藤靖仁, 早瀬敏幸.
直接数値計算法と確率密度関数法による反応性二次元噴流の数値計算.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 807, pp. 2434–2445, 2013.
- [17] A. W. Cook and J. J. Riley.
Direct Numerical Simulation of a Turbulent Reactive Plume on a Parallel Computer.
Journal of Computational Physics, Vol. 129, No. 2, pp. 263–283, 1996.
- [18] A. Fabregat, J. Pallarès, I. Cuesta, and F. X. Grau.
Numerical Simulations of a Second-order Chemical Reaction in a Plane Turbulent Channel Flow.

- International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 53, No. 19, pp. 4248–4263, 2010.
- [19] S. M. de Bruyn Kops, J. J. Riley, and G. Kosaly.
Direct Numerical Simulation of Reacting Scalar Mixing Layers.
Physics of Fluids, Vol. 13, No. 5, pp. 1450–1465, 2001.
- [20] Y. Tominaga and T. Stathopoulos.
Turbulent Schmidt Numbers for CFD Analysis with Various Types of Flowfield.
Atmospheric Environment, Vol. 41, No. 37, pp. 8091–8099, 2007.
- [21] D. P. Combest, P. A. Ramachandran, and M. P. Dudukovic.
On the Gradient Diffusion Hypothesis and Passive Scalar Transport in Turbulent Flows.
Industrial & Engineering Chemistry Research, Vol. 50, No. 15, pp. 8817–8823, 2011.
- [22] H. L. Toor.
Turbulent Mixing of Two Species with and without Chemical Reactions.
Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, Vol. 8, No. 4, pp. 655–659, 1969.
- [23] G. K. Patterson.
Application of Turbulence Fundamentals to Reactor Modelling and Scaleup.
Chemical Engineering Communications, Vol. 8, pp. 25–52, 1981.
- [24] A. Dutta and J. M. Tarbell.
Closure Models for Turbulent Reacting Flows.
AIChE Journal, Vol. 35, No. 12, pp. 2013–2027, 1989.
- [25] T. G. Heeb and R. S. Brodkey.
Turbulent Mixing with Multiple Second-order Chemical Reactions.
AIChE Journal, Vol. 36, No. 10, pp. 1457–1470, 1990.
- [26] J. Baldyga and R. Pohorecki.
Turbulent Micromixing in Chemical Reactors—a Review.
The Chemical Engineering Journal and the Biochemical Engineering Journal, Vol. 58, No. 2, pp. 183–195, 1995.
- [27] U. Schumann.
Large-eddy Simulation of Turbulent Diffusion with Chemical Reactions in the Convective Boundary Layer.
Atmospheric Environment, Vol. 23, No. 8, pp. 1713–1727, 1989.
- [28] R. I. Sykes, D. S. Henn, S. F. Parker, and W. S. Lewellen.

- Large-eddy Simulation of a Turbulent Reacting Plume.
Atmospheric Environment. Part A. General Topics, Vol. 26, No. 14, pp. 2565–2574, 1992.
- [29] T. Michioka and S. Komori.
Large-eddy Simulation of a Turbulent Reacting Liquid Flow.
AIChE Journal, Vol. 50, No. 11, pp. 2705–2720, 2004.
- [30] D. Veynante and L. Vervisch.
Turbulent Combustion Modeling.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 28, No. 3, pp. 193–266, 2002.
- [31] R. O. Fox.
Computational Models for Turbulent Reacting Flows.
Cambridge University Press, 2003.
- [32] H. Pitsch.
Large-eddy Simulation of Turbulent Combustion.
Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 38, pp. 453–482, 2006.
- [33] A. Y. Klimenko and R. W. Bilger.
Conditional Moment Closure for Turbulent Combustion.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 25, No. 6, pp. 595–687, 1999.
- [34] S. B. Pope.
PDF Methods for Turbulent Reactive Flows.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 11, No. 2, pp. 119–192, 1985.
- [35] D. C. Haworth.
Progress in Probability Density Function Methods for Turbulent Reacting Flows.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 36, No. 2, pp. 168–259, 2010.
- [36] A. R. Masri, R. W. Dibble, and R. S. Barlow.
The Structure of Turbulent Nonpremixed Flames of Methanol over a Range of Mixing Rates.
Combustion and Flame, Vol. 89, No. 2, pp. 167–185, 1992.
- [37] R. W. Bilger.
Conditional Moment Closure for Turbulent Reacting Flow.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 5, No. 2, pp. 436–444, 1993.
- [38] A. Y. Klimenko.
Multicomponent Diffusion of Various Admixtures in Turbulent Flow.

- Fluid Dynamics*, Vol. 25, No. 3, pp. 327–334, 1990.
- [39] S. B. Pope.
The Probability Approach to the Modelling of Turbulent Reacting Flows.
Combustion and Flame, Vol. 27, No. 3, pp. 299–312, 1976.
- [40] P. Givi.
Model-free Simulations of Turbulent Reactive Flows.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 15, No. 1, pp. 1–107, 1989.
- [41] F. Gao and E. E. O’ Brien.
A Large-eddy Simulation Scheme for Turbulent Reacting Flows.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 5, No. 6, pp. 1282–1284, 1993.
- [42] P. J. Colucci, F. A. Jaber, P. Givi, and S. B. Pope.
Filtered Density Function for Large Eddy Simulation of Turbulent Reacting Flows.
Physics of Fluids, Vol. 10, No. 2, pp. 499–515, 1998.
- [43] F. A. Jaber, P. J. Colucci, S. James, P. Givi, and S. B. Pope.
Filtered Mass Density Function for Large-eddy Simulation of Turbulent Reacting Flows.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 401, pp. 85–121, 1999.
- [44] X. Y. Zhou and J. C. F. Pereira.
Large Eddy Simulation (2D) of a Reacting Plane Mixing Layer Using Filtered Density Function Closure.
Flow, Turbulence and Combustion, Vol. 64, No. 4, pp. 279–300, 2000.
- [45] M. R. H. Sheikh, T. G. Drozda, P. Givi, F. A. Jaber, and S. B. Pope.
Large Eddy Simulation of a Turbulent Nonpremixed Piloted Methane Jet Flame (Sandia Flame D).
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 30, No. 1, pp. 549–556, 2005.
- [46] V. Raman and H. Pitsch.
A Consistent LES/filtered-density Function Formulation for the Simulation of Turbulent Flames with Detailed Chemistry.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 31, No. 2, pp. 1711–1719, 2007.
- [47] A. Y. Klimenko.
Lagrangian Particles with Mixing. II. Sparse-Lagrangian Methods in Application for Turbulent Reacting Flows.
Physics of Fluids, Vol. 21, No. 6, p. 065102, 2009.

- [48] A. Y. Klimenko and M. J. Cleary.
Convergence to a Model in Sparse-Lagrangian FDF Simulations.
Flow, Turbulence and Combustion, Vol. 85, No. 3-4, pp. 567–591, 2010.
- [49] J. Smagorinsky.
General Circulation Experiments with the Primitive Equations.
Monthly Weather Review, Vol. 91, No. 3, pp. 99–164, 1963.
- [50] M. Germano, U. Piomelli, P. Moin, and W. H. Cabot.
A Dynamic Subgrid-scale Eddy Viscosity Model.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 3, No. 7, pp. 1760–1765, 1991.
- [51] P. Moin, K. Squires, W. Cabot, and S. Lee.
A Dynamic Subgrid-scale Model for Compressible Turbulence and Scalar Transport.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 3, No. 11, pp. 2746–2757, 1991.
- [52] O. Métais and M. Lesieur.
Spectral Large-eddy Simulation of Isotropic and Stably Stratified Turbulence.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 239, pp. 157–194, 1992.
- [53] J. Bardino.
Improved Turbulence Models Based on Large Eddy Simulation of Homogeneous, Incompressible, Turbulent Flows.
Ph. D. thesis, Department of Mechanical Engineering, Stanford University, 1983.
- [54] S. Stolz and N. A. Adams.
An Approximate Deconvolution Procedure for Large-Eddy Simulation.
Physics of Fluids, Vol. 11, No. 7, pp. 1699–1701, 1999.
- [55] J. Mathew, R. Lechner, H. Foysi, J. Sesterhenn, and R. Friedrich.
An Explicit Filtering Method for Large Eddy Simulation of Compressible Flows.
Physics of Fluids, Vol. 15, No. 8, pp. 2279–2289, 2003.
- [56] J. Mathew, H. Foysi, and R. Friedrich.
A New Approach to LES based on Explicit Filtering.
International Journal of Heat and Fluid Flow, Vol. 27, No. 4, pp. 594–602, 2006.
- [57] S. Stolz, N. A. Adams, and L. Kleiser.
An Approximate Deconvolution Model for Large-eddy Simulation with Application to Incompressible Wall-bounded Flows.
Physics of fluids, Vol. 13, No. 4, pp. 997–1015, 2001.
- [58] S. Stolz, N. A. Adams, and L. Kleiser.

- The Approximate Deconvolution Model for Large-eddy Simulations of Compressible Flows and its Application to Shock-turbulent-boundary-layer Interaction.
Physics of Fluids, Vol. 13, No. 10, pp. 2985–3001, 2001.
- [59] P. Schlatter, S. Stolz, and L. Kleiser.
LES of Transitional Flows Using the Approximate Deconvolution Model.
International Journal of Heat and Fluid Flow, Vol. 25, No. 3, pp. 549–558, 2004.
- [60] C. Bogey and C. Bailly.
Decrease of the Effective Reynolds Number with Eddy-viscosity Subgrid Modeling.
AIAA Journal, Vol. 43, No. 2, pp. 437–439, 2005.
- [61] C. Bogey and C. Bailly.
Computation of a High Reynolds Number Jet and its Radiated Noise Using Large Eddy Simulation Based on Explicit Filtering.
Computers & fluids, Vol. 35, No. 10, pp. 1344–1358, 2006.
- [62] C. Bogey and C. Bailly.
Large Eddy Simulations of Round Free Jets Using Explicit Filtering with/without Dynamic Smagorinsky Model.
International Journal of Heat and Fluid Flow, Vol. 27, No. 4, pp. 603–610, 2006.
- [63] C. Bogey and C. Bailly.
Turbulence and Energy Budget in a Self-preserving Round Jet: Direct Evaluation Using Large Eddy Simulation.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 627, pp. 129–160, 2009.
- [64] W. Aniszewski, A. Bogusławski, M. Marek, and A. Tyliczszak.
A New Approach to Sub-grid Surface Tension for LES of Two-phase Flows.
Journal of Computational Physics, Vol. 231, No. 21, pp. 7368–7397, 2012.
- [65] C. Le Ribault, S. Sarkar, and S. A. Stanley.
Large Eddy Simulation of a Plane Jet.
Physics of Fluids, Vol. 11, pp. 3069–3083, 1999.
- [66] C. Le Ribault, S. Sarkar, and S. A. Stanley.
Large Eddy Simulation of Evolution of a Passive Scalar in Plane Jet.
AIAA Journal, Vol. 39, No. 8, pp. 1509–1516, 2001.
- [67] F. Schwertfirm and M. Manhart.
ADM Modelling for Semi-direct Numerical Simulation of Turbulent Mixing and Mass Transport.

- In *Fourth International Symposium on Turbulence and Shear Flow Phenomena*.
- [68] F. Schwertfirm and M. Manhart.
DNS of Passive Scalar Transport in Turbulent Channel Flow at High Schmidt Numbers.
International Journal of Heat and Fluid Flow, Vol. 28, No. 6, pp. 1204–1214, 2007.
- [69] R. W. Bilger, L. R. Sae tran, and L. V. Krishnamoorthy.
Reaction in a Scalar Mixing Layer.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 233, pp. 211–242, 1991.
- [70] R. J. Brown and R. W. Bilger.
An Experimental Study of a Reactive Plume in Grid Turbulence.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 312, pp. 373–407, 1996.
- [71] J. D. Li and R. W. Bilger.
The Diffusion of Conserved and Reactive Scalars behind Line Sources in Homogeneous Turbulence.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 318, pp. 339–372, 1996.
- [72] R. J. Brown and R. W. Bilger.
Experiments on a Reacting Plume–2. Conditional Concentration Statistics.
Atmospheric Environment, Vol. 32, No. 4, pp. 629–646, 1998.
- [73] K. A. Watson, K. M. Lyons, J. M. Donbar, and C. D. Carter.
Scalar and Velocity Field Measurements in a Lifted CH₄–air Diffusion Flame.
Combustion and Flame, Vol. 117, No. 1, pp. 257–271, 1999.
- [74] K. Yamamoto, M. Ozeki, N. Hayashi, and H. Yamashita.
Burning Velocity and OH Concentration in Premixed Combustion.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 32, No. 1, pp. 1227–1235, 2009.
- [75] K. Yamamoto, S. Isii, and M. Ohnishi.
Local Flame Structure and Turbulent Burning Velocity by Joint PLIF Imaging.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 33, No. 1, pp. 1285–1292, 2011.
- [76] A. Bennani, J. N. Gence, and J. Mathieu.
The Influence of a Grid-generated Turbulence on the Development of Chemical Reactions.
AIChE Journal, Vol. 31, No. 7, pp. 1157–1166, 1985.
- [77] R. V. Mehta and J. M. Tarbell.

- An Experimental Study of the Effect of Turbulent Mixing on the Selectivity of Competing Reactions.
AIChE Journal, Vol. 33, No. 7, pp. 1089–1101, 1987.
- [78] S. Komori, K. Nagata, T. Kanzaki, and Y. Murakami.
Measurements of Mass Flux in a Turbulent Liquid Flow with a Chemical Reaction.
AIChE Journal, Vol. 39, No. 10, pp. 1611–1620, 1993.
- [79] A. D. Chornyi and V. L. Zhdanov.
Verification of Chemical Reaction Rate Models in Turbulent Reacting Flows at Schmidt Number Considerably Exceeding 1.
Journal of Engineering Physics and Thermophysics, Vol. 83, No. 3, pp. 513–524, 2010.
- [80] A. Chorny and V. Zhdanov.
Turbulent Mixing and Fast Chemical Reaction in the Confined Jet Flow at Large Schmidt Number.
Chemical Engineering Science, Vol. 68, No. 1, pp. 541–554, 2012.
- [81] 久保貴, 福村佳紀, 酒井康彦, 長田孝二.
液相化学反応を伴う二次元噴流に関する研究.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 76, No. 761, pp. 57–65, 2010.
- [82] 酒井康彦, 中村育雄, 角田博之, 櫛田武広.
吸光スペクトル法によるファイバ形多成分変動濃度計の開発に関する研究.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 75, No. 749, pp. 518–522, 1990.
- [83] S. Komori, T. Kanzaki, and Y. Murakami.
Concentration Correlation in a Turbulent Mixing Layer with Chemical Reactions.
Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 27, No. 6, pp. 742–748, 1994.
- [84] R. S. Barlow and C. D. Carter.
Relationships among Nitric Oxide, Temperature, and Mixture Fraction in Hydrogen Jet Flames.
Combustion and Flame, Vol. 104, No. 3, pp. 288–299, 1996.
- [85] R. S. Barlow, G. J. Fiechtner, C. D. Carter, and J. Y. Chen.
Experiments on the Scalar Structure of Turbulent O/H₂N₂ Jet Flames.
Combustion and Flame, Vol. 120, No. 4, pp. 549–569, 2000.
- [86] J. D. Li and R. W. Bilger.

- Measurement and Prediction of the Conditional Variance in a Turbulent Reactive-scalar Mixing Layer.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 5, No. 12, pp. 3255–3264, 1993.
- [87] J. R. Bourne, C. Hilber, and G. Tovstiga.
Kinetics of the Azo Coupling Reactions between 1-naphthol and Diazotised Sulphanilic Acid.
Chemical Engineering Communications, Vol. 37, No. 1, pp. 293–314, 1985.
- [88] 久保貴.
液相における反応性乱流に関する研究.
修士論文, 名古屋大学, 1996.
- [89] 本間善夫.
酸性染料 Orange II の合成, http://www.ecosci.jp/comchem/o7_syn.html.
- [90] 福村佳紀.
反応性液相二次元噴流に関する実験的研究.
修士論文, 名古屋大学, 2009.
- [91] 技術資料 流体計測法.
日本機械学会, 1985.
- [92] 酒井康彦, 岡田吉弘, 中村育雄, 小林紀久.
軸対称乱流噴流中の速度およびスカラ量の同時測定.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 66, No. 647, pp. 113–119, 2000.
- [93] B. W. Ritchie and A. H. Tobgy.
A Three-environment Micromixing Model for Chemical Reactors with Arbitrary Separate Feedstreams.
The Chemical Engineering Journal, Vol. 17, No. 3, pp. 173–182, 1979.
- [94] S. Komori, J. C. R. Hunt, T. Kanzaki, and Y. Murakami.
The Effects of Turbulent Mixing on the Correlation between Two Species and on Concentration Fluctuations in Non-premixed Reacting Flows.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 228, pp. 629–659, 1991.
- [95] D. M. Wang and J. M. Tarbell.
Closure Models for Turbulent Reacting Flows with a Nonhomogeneous Concentration Field.
Chemical Engineering Science, Vol. 48, No. 23, pp. 3907–3920, 1993.
- [96] L. J. S. Bradbury.

- The Structure of a Self-preserving Turbulent Plane Jet.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 23, pp. 31–64, 1965.
- [97] S. B. Pope.
Turbulent Flow.
Cambridge University Press, 2000.
- [98] S. H. Kim.
On the Conditional Variance and Covariance Equations for Second-order Conditional Moment Closure.
Physics of Fluids, Vol. 14, No. 6, pp. 2011–2014, 2002.
- [99] R. W. Bilger.
Some Aspects of Scalar Dissipation.
Flow, Turbulence and Combustion, Vol. 72, No. 2, pp. 93–114, 2004.
- [100] R. W. Bilger.
Turbulent Jet Diffusion Flames.
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 1, No. 2, pp. 87–109, 1976.
- [101] J. Mi and G. J. Nathan.
The Influence of Probe Resolution on the Measurement of a Passive Scalar and its Derivatives.
Experiments in Fluids, Vol. 34, No. 6, pp. 687–696, 2003.
- [102] L. K. Su and N. T. Clemens.
Planar Measurements of the Full Three-dimensional Scalar Dissipation Rate in Gas-phase Turbulent Flows.
Experiments in Fluids, Vol. 27, No. 6, pp. 507–521, 1999.
- [103] L. K. Su, D. B. Helmer, and C. J. Brownell.
Quantitative Planar Imaging of Turbulent Buoyant Jet Mixing.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 643, pp. 59–95, 2010.
- [104] A. N. Karpetis and R. S. Barlow.
Measurements of Scalar Dissipation in a Turbulent Piloted Methane/air Jet Flame.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 29, No. 2, pp. 1929–1936, 2002.
- [105] P. Kailasnath, K. R. Sreenivasan, and J. R. Saylor.
Conditional Scalar Dissipation Rates in Turbulent Wakes, Jets, and Boundary Layers.
Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, Vol. 5, No. 12, pp. 3207–3215, 1993.

- [106] 内田健児, 酒井康彦, 久保貴, 長田孝二.
高シュミット数物質噴流拡散場における条件付統計量の特性.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 73, No. 727, pp. 728–735, 2007.
- [107] S. H. Kim and H. Pitsch.
Mixing Characteristics and Structure of a Turbulent Jet Diffusion Flame Stabilized on a Bluff-body.
Physics of Fluids, Vol. 18, No. 7, p. 075103, 2006.
- [108] N. Peters and F. A. Williams.
Lift-off Characteristics of Turbulent Jet Diffusion Flames.
AIAA Journal, Vol. 21, No. 3, pp. 423–429, 1983.
- [109] M. R. Roomina and R. W. Bilger.
Conditional Moment Closure (CMC) Predictions of a Turbulent Methane-air Jet Flame.
Combustion and Flame, Vol. 125, No. 3, pp. 1176–1195, 2001.
- [110] M. Fairweather and R. M. Woolley.
First-order Conditional Moment Closure Modeling of Turbulent, Nonpremixed Methane Flames.
Combustion and Flame, Vol. 138, No. 1, pp. 3–19, 2004.
- [111] P. R. Spalart, R. D. Moser, and M. M. Rogers.
Spectral Methods for the Navier–Stokes Equations with One Infinite and Two Periodic Directions.
Journal of Computational Physics, Vol. 96, No. 2, pp. 297–324, 1991.
- [112] Y. Dai, T. Kobayashi, and N. Taniguchi.
Large Eddy Simulation of Plane Turbulent Jet Flow Using a New Outflow Velocity Boundary Condition.
JSME International Journal. Series B, Fluids and Thermal Engineering, Vol. 37, No. 2, pp. 242–253, 1994.
- [113] 酒井康彦, 久保貴, 中村育雄.
PDF 法による液相反応性スカラ混合層の数値計算 : 分子拡散に対する確率過程モデルの評価.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 65, No. 636, pp. 2681–2688, 1999.
- [114] 鈴木健, 酒井康彦.

- ランダムフーリエモード法と Lagrange 的分子混合モデルによる反応性乱流混合層の数値シミュレーション.
日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 798, pp. 104–114, 2013.
- [115] P. H. Van Cittert.
Effect of Slit Width upon Distribution of Intensity in Spectral Lines. II.
Z. Phys, Vol. 69, No. 5-6, pp. 298–308, 1931.
- [116] R. L. Curl.
Dispersed Phase Mixing: I. Theory and Effects in Simple Reactors.
AIChE Journal, Vol. 9, No. 2, pp. 175–181, 2004.
- [117] S. M. Correa.
A Direct Comparison of Pair-exchange and IEM Models in Premixed Combustion.
Combustion and Flame, Vol. 103, No. 3, pp. 194–206, 1995.
- [118] M. J. Cleary and A. Y. Klimenko.
A Generalised Multiple Mapping Conditioning Approach for Turbulent Combustion.
Flow, Turbulence and Combustion, Vol. 82, No. 4, pp. 477–491, 2009.
- [119] J. Janicka, W. Kolbe, and W. Kollmann.
Closure of the Transport Equation for the Probability Density Function of Turbulent Scalar Fields.
Journal of Non-Equilibrium Thermodynamics, Vol. 4, No. 1, pp. 47–66, 1979.
- [120] S. B. Pope.
An Improved Turbulent Mixing Model.
Combustion Science and Technology, Vol. 28, No. 3-4, pp. 131–145, 1982.
- [121] M. J. Cleary, A. Y. Klimenko, J. Janicka, and M. Pfitzner.
A Sparse-Lagrangian Multiple Mapping Conditioning Model for Turbulent Diffusion Flames.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 32, No. 1, pp. 1499–1507, 2009.
- [122] A. Y. Klimenko.
On Simulating Scalar Transport by Mixing between Lagrangian Particles.
Physics of Fluids, Vol. 19, No. 3, p. 031702, 2007.
- [123] C. D. Pierce and P. Moin.
A Dynamic Model for Subgrid-scale Variance and Dissipation Rate of a Conserved Scalar.
Physics of Fluids, Vol. 10, No. 12, pp. 3041–3044, 1998.

-
- [124] Y. Ge, M. J. Cleary, and A. Y. Klimenko.
Sparse-Lagrangian FDF Simulations of Sandia Flame E with Density Coupling.
Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 33, No. 1, pp. 1401–1409, 2011.
- [125] A. Y. Klimenko.
Lagrangian Particles with Mixing. I. Simulating Scalar Transport.
Physics of Fluids, Vol. 21, No. 6, p. 065101, 2009.
- [126] J. Mi, D. S. Nobes, and G. J. Nathan.
Influence of Jet Exit Conditions on the Passive Scalar Field of an Axisymmetric Free Jet.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 432, pp. 91–126, 2001.
- [127] K. Nagata, H. Suzuki, Y. Sakai, T. Hayase, and T. Kubo.
Direct Numerical Simulation of Turbulent Mixing in Grid-generated Turbulence.
Physica Scripta, Vol. 2008, No. T132, p. 014054, 2008.
- [128] H. Suzuki, K. Nagata, Y. Sakai, and T. Hayase.
Direct Numerical Simulation of Turbulent Mixing in Regular and Fractal Grid Turbulence.
Physica Scripta, Vol. 2010, No. T142, p. 014065, 2010.
- [129] S. Komori and K. Nagata.
Effects of Molecular Diffusivities on Counter-gradient Scalar and Momentum Transfer in Strongly Stable Stratification.
Journal of Fluid Mechanics, Vol. 326, pp. 205–238, 1996.