

FBR冷却系における流体物性変化を伴う

流動現象に関する研究

－ 物性変化を伴う流動現象モデル －

先行基礎工学分野に関する平成11年度報告書

(共同研究報告書)

2000年6月

東 京 大 学

本資料は、先行基礎工学分野に関する研究として、東京大学と核燃料サイクル開発機構との共同研究の成果として作成されたものです。

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
東京大学 (The University of Tokyo)
2000

FBR 冷却系における流体物性変化を伴う流動現象に関する研究
—物性変化を伴う流動現象モデル—
先行基礎工学分野に関する平成 11 年度報告書（共同研究報告書）

岡本 孝司¹、班目 春樹¹

要旨

FBR 冷却系に於いて、蒸気発生器内でのナトリウム-水反応が安全上問題となる。この反応では、化学反応による流体の物性変化が流れ場に強く影響するため、非線形性が大きくその挙動の予想は困難である。本研究では、このように物性変化が大きな反応性流れ場の挙動を解明することを目的とし、ナトリウム-水反応を模擬した試験流体の流動特性に関して、実験的検討及び数値解析的検討を平成 11, 12 年度の 2 ヶ年にわたり実施する。

平成 11 年度研究では、実験的検討として緩やかな化学反応を伴う流れ場の速度、濃度の同時計測技術を開発した。速度場については、既存の PIV(Particle Image Velocimetry) 手法を用いる。また濃度分布に関しては pH 分布の計測に着目し、発光強度に関し pH 依存性の有無を有する 2 種類の蛍光染料を同時に用いた DELIF (Dual Emission LIF) 手法を開発した。

開発した計測技術を用い、2 種類の蛍光塗料として Quinine と Rhodamine6G を用いることにより、酢酸水-水、アンモニア水-水、アンモニア水-酢酸水を用いた軸対称噴流場での速度、pH 濃度場の同時計測を行った結果、これらの同時計測が可能でありかつ高い精度で pH 濃度場の計測が可能となった。また、一連の実験により二液二層流体の混合に於いて、拡散が抑制される傾向が見られることが判明した。

本報告書は、先行基礎工学分野に関する東京大学とサイクル機構との共同研究のうち、東京大学で実施したものについてまとめたものである。

¹東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設

Research on fluidization phenomenon with fluid property change
in FBR cooling system

- Fluidization model considering the physical property change -

(Report of the JNC cooperative research scheme on the nuclear fuel cycle)

Okamoto Koji¹

Madarame Haruki¹

Abstract

Sodium-water reaction in the steam generator is very important for the safety of the FBR cooling system. The prediction of the flow field is difficult, since the fluid physical property's change and the nonlinearity by chemical reaction much influence in the flow field. In this study, for the purpose of clarifying the behavior of reactive flow field, experimental and numerical analyses have been carried out on the flow characteristic of the sodium-water reaction in FY 1999 and 2000.

In 1999 research, simultaneous measurement technique of velocity and concentration was developed for the weak reactions. On the velocity distribution, PIV (Particle Image Velocimetry) technique was used. And DELIF (Dual Emission LIF) technique was developed to measure the pH distribution instead of the concentration distribution. DELIF simultaneously measures two kind of the emission intensity by using different fluorescent dyes. One's intensity is independent of pH of the field, and the other depends on pH.

As a result of simultaneous measurement of velocity and pH in the axisymmetric jet condition of acetic acid-water, ammonia-water and ammonia-acetic acid field, by using Quinine and Rhodamine 6G as the fluorescent dye, it was proven that this simultaneous measurement was possible and was gained a good spatial resolution. And it was also proved that it tended to inhibit the diffusion in the mixing of the two-liquid, two-layer fluid.

This report summarizes the results of performed by Univ. of Tokyo for the JNC cooperative research scheme on the nuclear fuel cycle.

¹ Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo

目 次

1. 序論	1
1.1 背景	2
1.2 本研究の目的	3
1.2.1 既往の研究	3
1.2.2 ジェットにおける温度および濃度分布	5
1.2.3 目的	8
2. 実験装置及び測定手法	9
2.1 実験装置	10
2.1.1 実験装置概要	10
2.1.2 対象化学反応	10
2.1.3 計測条件	11
2.2 PIV(粒子画像流速計測法)実験手法	13
2.2.1 原理	13
2.2.2 PIV 測定体系	14
2.3 LIF(レーザー誘起蛍光法)実験手法	15
2.3.1 LIF(レーザー誘起蛍光法)の原理	15
2.3.2 Single Emission LIF	17
2.3.3 Dual Emission LIF	17
2.3.4 Dual Emission LIF 染料の吸収・発光スペクトル図	21
3. 実験結果	36
3.1 PIV 実験結果	37
3.1.1 流速分布	37
3.2 LIF 実験	38
3.2.1 Single Emission LIF による拡散測定	38
3.2.2 Dual Emission LIF による pH 分布測定	38
4. 考察	65
4.1 流速分布と拡散に関する考察	66
4.1.1 誤差評価について	66
4.1.2 二種二層流噴流に関する考察	66
4.2 DELIF 手法に関する考察	73
4.2.1 誤差評価	73
4.2.2 DELIF 応用方法	74
5. 結論	76
6. 今後の課題	78
参考文献	参考文献-1

図目次

【1章】

Fig. 1.1 Previous Experiments	4
Fig. 1.2 Thermal or Concentration Diffusion along the jet	5

【2章】

Fig. 2.1 Schematic View of The Test Section	23
Fig. 2.2 Cross Correlation Method	24
Fig. 2.3 Experimental setup of PIV	25
Fig. 2.4 LIF の原理体系図	26
Fig. 2.5 Stereo Viewer	26
Fig. 2.6 Experimental setup of LIF	27
Fig. 2.7 ABS Spectrum of Rhodamine B	28
Fig. 2.8 EM Spectrum of Rhodamine B	28
Fig. 2.9 ABS Spectrum of Rhodamine 6G	29
Fig. 2.10 EM Spectrum of Rhodamine 6G	29
Fig. 2.11 ABS Spectrum of Acid Red 52	30
Fig. 2.12 EM Spectrum of Acid Red 52	30
Fig. 2.13 ABS Spectrum of Uranine	31
Fig. 2.14 EM Spectrum of Uranine	31
Fig. 2.15 ABS Spectrum of Quinine	32
Fig. 2.16 EM Spectrum of Quinine	32
Fig. 2.17 ABS Spectrum of Basic Orange 14	33
Fig. 2.18 EM Spectrum of Basic Orange 14	33
Fig. 2.19 ABS Spectrum of Acridine	34
Fig. 2.20 EM Spectrum of Acridine	34
Fig. 2.21 ABS Spectrum of Eosin B	35
Fig. 2.22 EM Spectrum of Eosin B	35

【3章】

Fig. 3.1 Velocity Distribution (nozzle velocity =5 cm/sec)	41
Fig. 3.2 Velocity Distribution (nozzle velocity =10 cm/sec)	42
Fig. 3.3 Velocity Distribution (nozzle velocity =15cm/sec)	43
Fig. 3.4 Velocity Distribution (nozzle velocity =20cm/sec)	44
Fig. 3.5 Velocity Distribution (nozzle velocity =30cm/sec)	45

Fig. 3.6 Velocity Distribution (nozzle velocity =35cm/sec)	46
Fig. 3.7 Velocity Distribution (nozzle velocity =40cm/sec)	47
Fig. 3.8 Velocity Distribution (nozzle velocity =45cm/sec)	48
Fig. 3.9 Velocity Distribution (nozzle velocity =30 cm/sec)	49
Fig. 3.10 Velocity Distribution (nozzle velocity =35 cm/sec)	50
Fig. 3.11 Velocity Distribution (nozzle velocity =40cm/sec)	51
Fig. 3.12 Velocity Distribution (nozzle velocity =45cm/sec)	52
Fig. 3.13 Diffusion Distribution (nozzle velocity =5 cm/sec)	53
Fig. 3.14 Diffusion Distribution (nozzle velocity =10 cm/sec)	53
Fig. 3.15 Diffusion Distribution (nozzle velocity =15cm/sec)	54
Fig. 3.16 Diffusion Distribution (nozzle velocity =20cm/sec)	54
Fig. 3.17 Diffusion Distribution (nozzle velocity =30cm/sec)	55
Fig. 3.18 Diffusion Distribution (nozzle velocity =35cm/sec)	55
Fig. 3.19 Diffusion Distribution (nozzle velocity =40cm/sec)	56
Fig. 3.20 Diffusion Distribution (nozzle velocity =45cm/sec)	56
Fig. 3.21 Diffusion Distribution (nozzle velocity =30 cm/sec)	57
Fig. 3.22 Diffusion Distribution (nozzle Velocity =35 cm/sec)	57
Fig. 3.23 Diffusion Distribution (nozzle velocity =40cm/sec)	58
Fig. 3.24 Diffusion Distribution (nozzle velocity =45cm/sec)	58
Fig. 3.25 RhodamineB's Emission plot versus pH	59
Fig. 3.26 Rhodamine6G's Emission plot versus pH	59
Fig. 3.27 Emission plot versus pH	60
Fig. 3.28 Calibration plot of normalized uorescence ratios versus pH	60
Fig. 3.29 Emission plot versus pH	61
Fig. 3.30 Calibration plot of normalized uorescence ratios versus pH	61
Fig. 3.31 Emission plot versus pH	62
Fig. 3.32 Calibration plot of normalized uorescence ratios versus pH	62
Fig. 3.33 Quinine,Rhodamine 6G's Emission versus pH	63
Fig. 3.34 pH Distribution	64

【 4 章】

Fig. 4.1 Velocity Distribution (nozzle velocity =5 cm/sec)	68
Fig. 4.2 Velocity Distribution (nozzle velocity =10 cm/sec)	68
Fig. 4.3 Velocity Distribution (nozzle velocity =15 cm/sec)	69
Fig. 4.4 Velocity Distribution (nozzle velocity =20 cm/sec)	69
Fig. 4.5 Velocity Distribution (nozzle velocity =30 cm/sec)	70

Fig. 4.6 Velocity Distribution (nozzle velocity =35 cm/sec)	70
Fig. 4.7 Velocity Distribution (nozzle velocity =0 cm/sec)	71
Fig. 4.8 Velocity Distribution (nozzle velocity =5 cm/sec)	71
Fig. 4.9 Averaged Image of Single Emission LIF	72
Fig. 4.10 Error caused by stereo view	75

第 1 章

序論

1.1 背景

乱流混合の影響を受けながら化学反応が進行する現象は、各種工業容器内の各種液-液反応流れに多く見られる。例えば、原子炉熱交換器内でのナトリウム冷却水漏洩における配管内でのナトリウム-水反応が挙げられる。その解明には工学的応用上極めて重要であり、特に液相中の化学反応過程では、乱流混合と化学反応干渉が同時に起こるため、流体工学ならびに反応工学上非常に興味深い乱流拡散場を形成する。

あらかじめ互いに混合されていない乱流場では、それぞれの反応物質を含む乱流塊が不均質に混ざりあって存在し、それらの流体塊が接する界面領域で化学反応が分子拡散を通して進行する。それゆえ、二次以上の不可逆反応を伴う反応乱流場では、この界面がいかに小スケール領域まで複雑に混合・変形され、また界面領域に生成された反応生成物質がいかに速く未反応物で置き換えられるかが系全体の反応の進行速度を決定する。

このような反応を伴う乱流拡散場予測のための実用的数値モデルの将来のためには、依然としてデータは不十分であり、各種せん断乱流中での系統的な実験的研究の必要性は、ますます高まるものと思われる。また、気相における反応や燃焼工学などの分野に比べて、高 Schmidt 数が特徴である液相における研究は、その重要性にも関わらず測定の困難さから比較的数少ない。

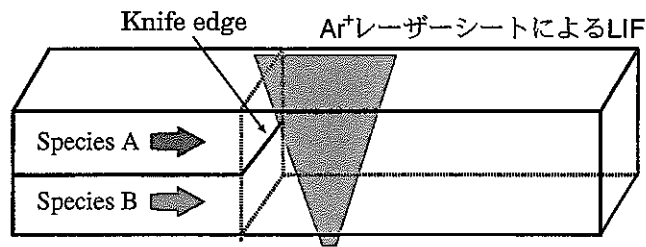
1.2 本研究の目的

1.2.1 既往の研究

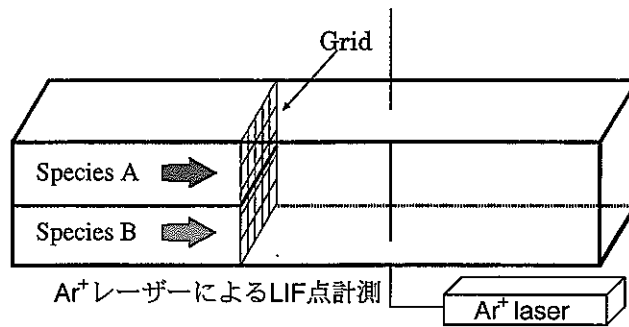
反応を伴う流れ場を実験的に明らかにするためには、反応乱流場において、乱流の最小スケールである Kolmogorov スケールか、それ以下の空間・時間分解能で反応物や生成物の多成分瞬時濃度を同時測定することが要求される。しかしながら、多成分の瞬時濃度測定を行うこと自体が、たとえ分解能が Kolmogorov スケールに及ばなくても技術的に困難であったため 1980 年代までは、そのような測定データはほとんど報告されていた状況であった。1990 年代に入りレーザーに代表される光学機器の著しい発展と各種濃度検出器の応答性の改善に伴い、依然としてごく限られた流れの条件ながら反応性乱流場の濃度測定結果が報告されるようになってきている。

反応乱流場の研究は、Breidenthal や Koochesfahani らの混合層の遷移過程の実験^[1]、Bennani^[2] や Komori らによる格子乱流中の予混合されていない 2 物質の二次反応に関する研究^[4]、酒井らの光ファイバ形変動濃度計による測定に関する研究^[16]などがある。しかしながら、混合層や格子乱流における反応をレーザー蛍光法や散乱法により測定する際、拡散による反応界面の複雑な変化のため、いまだデータのばらつきが大きく十分精度の高い統計量が得られていないようである。また、軸対象噴流における酒井らの研究では多成分濃度を精度よく測定しているものの、光ファイバ形変動濃度計の測定範囲は非常に狭く、噴流下流側の反応拡散効果を測定できない。測定手法の一つである Laser Induced Fluorescence(LIF)の研究において、レーザー及び光学機器の著しい発展に伴い、温度場の変化や pH の変化の測定を高分解能で行われるようになってきた。

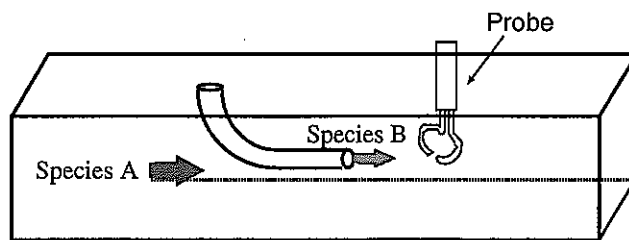
混合層の遷移過程の実験および格子乱流の実験では、Figure 1.1 のように境界層における濃度分布を測定している。彼らの実験では濃度測定に LIF を用いているが、サンプリング周期が長かったり、点計測に統計処理を施したものであるため微小時間の界面変化を測定に適していない。また、ファイバ形を用いた実験体系では、測定領域に対しては流れにを乱していないとされるものの、測定領域が狭い。このことから、高分解能でありながら非接触の測定体系が望ましい。



混合層の遷移過程の実験



格子乱流の実験



光ファイバ形変動濃度計による測定

Fig.1.1: Previous Experiments

1.2.2 ジェットにおける温度および濃度分布

化学種 A 中に化学種 B を静かに吹き込んだ場合について考える。この場合、化学種 A と化学種 B の密度が同じであり、層流噴流の理論が適用できると仮定すると化学種 A について次式が成立する。

$$\frac{DY_A}{Dt} = D_A \nabla^2 Y_A \quad (1.1)$$

この式 1.1 のみを解けば、化学種 A および B 双方の濃度分布は求まることになる。

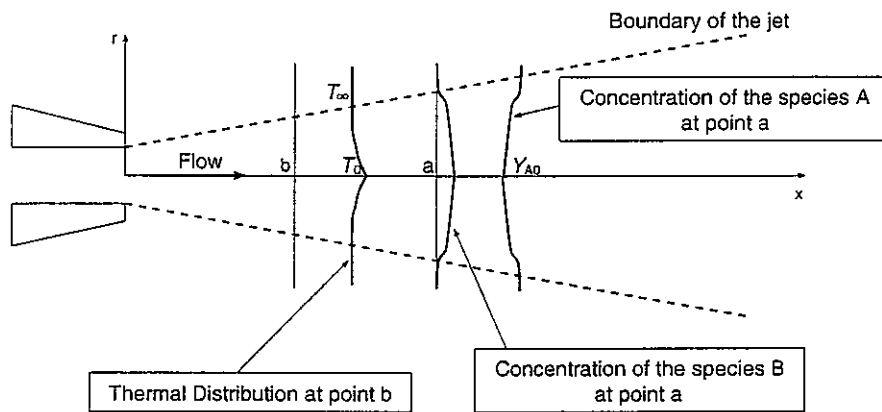


Fig.1.2: Thermal or Concentration Diffusion along the jet

Figure.1.2に示したように、層流ジェットを考慮する際と同じ座標系で考えることにし、 x 方向すなわち軸方向の濃度変化は r 方向すなわち軸と直角方向のそれに比べて著しく小さいとすると、定常な層流円形ジェット内では、式 1.1 は次のようになる。

$$V_x \frac{\partial Y_A}{\partial x} + V_r \frac{\partial Y_A}{\partial r} = D_A \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial Y_A}{\partial r} \right) \right) \quad (1.2)$$

ここで、無次元座標

$$\eta \equiv \frac{r}{x} \quad (1.3)$$

および次の定義による流れ関数を導入する、

$$rv_x = \frac{\partial \Psi}{\partial r}, rv_r = -\frac{\partial \Psi}{\partial x}, \Psi = \nu x F(\eta) \quad (1.4)$$

また次のような無次元質量分率を導入する。

$$\Phi = \frac{Y_A - Y_{A0}}{1 - Y_{A0}} \quad (1.5)$$

ここで、 Y_{A0} は x 軸上の化学種 A の濃度である。式 1.3~1.5 を用いて、式 1.2 を変形すると、次式が得られる。

$$\eta \Phi'' + \Phi' + ScF\Phi' = 0 \quad (1.6)$$

ここで、 Sc は Schmidt 数である。この方程式を解くに当たって必要な境界条件は、次のようになる。

$$\eta = 0 : \Phi = 0, \eta = \infty : \Phi = 1 \quad (1.7)$$

式 1.6 を式 1.7 の境界条件のもとに解くと、円筒 (軸対称) 層流ジェット内の濃度分布が得られる。その解は次式で表される。

$$\Phi = \frac{\int_0^\eta \exp(-\int_0^\eta (ScF + 1) d\eta) d\eta}{\int_0^\infty \exp(-\int_0^\eta (ScF + 1) d\eta) d\eta} \quad (1.8)$$

この式 1.8 には、流れ場を示す関数 F が含まれている。このことは、濃度場と速度場が密接な関係にあることを示すものである。

次に、静止気流中に僅かに温度の異なる気体を、浮力の影響を無視できる方向に、静かに噴出した場合について考えてみる。この場合の温度場に関するエネルギー方程式は、境界層の場合と同じであるが、層流ジェットを考慮する場合と同じ座標系で表すと、次のような式となる。

$$V_x \frac{\partial T}{\partial x} + V_r \frac{\partial T}{\partial r} = \alpha \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right) \quad (1.9)$$

この式を導くにあたって、濃度の変化を考えたときと同じように、 x 方向すなわち軸方向の濃度変化は r 方向すなわち軸と直角方向のそれに比べて著しく小さいとした。

次のような無次元温度を導入する。

$$\Theta = \frac{T_0 - T}{T_0 - T_\infty} \quad (1.10)$$

ここで、 T_0 は x 軸上の温度であり、 T_∞ はジェットの外側の温度である。この無次元温度と式 1.3 および式 1.4 を用いて式 1.9 を変形すると次式が得られる。

$$\eta\Theta'' + \Theta' + PrF\Theta' = 0 \quad (1.11)$$

ここで、 Pr は Prandtl 数である。この方程式を解くに当たって必要な境界条件は、次のようになる。

$$\eta = 0 : \Theta = 0, \eta = \infty : \Theta = 1 \quad (1.12)$$

式 1.11 を式 1.12 の境界条件のもとに解くと、円筒 (軸対称) 層流ジェット内の温度分布が次式で与えられることがわかる。

$$\Theta = \frac{\int_0^\eta \exp(-\int_0^\eta (PrF + 1) d\eta) d\eta}{\int_0^\infty \exp(-\int_0^\eta (PrF + 1) d\eta) d\eta} \quad (1.13)$$

この式 1.13 にも、流れ場を示す関数 F が含まれており、温度場は、速度場に強く依存することがわかる。

これは乱流ジェットの場合も同様に考えられる。化学種 A 中に化学種 B が微小孔から吹き出す軸対称ジェットにおける化学種 A の分布について考えてみる。このような場においては、近似的に以下の式が成り立つ。

$$\bar{V}_x \frac{\partial \bar{Y}_A}{\partial x} + \bar{V}_r \frac{\partial \bar{Y}_A}{\partial r} = \epsilon_{DA} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \bar{Y}_A}{\partial r} \right) \right) \quad (1.14)$$

この式中の乱流拡散係数 ϵ_{DA} は、渦拡散係数 ϵ_E に比例するとして、 ϵ_{DA} を一定と仮定する。このとき式 1.14 は、層流軸対称ジェットにおける濃度を表す式 1.2 と同じ形である。

1.2.3 目的

反応乱流場の測定として高分解能で非接触の測定体系の構築を目的とし、軸対称噴流の体系において、流速分布測定としてPIV(粒子画像流速測定法)を、濃度(pH)分布の計測としてLIF(レーザー誘起蛍光法)を用い、その有効性を示す。

第 2 章

実験装置及び測定手法

2.1 実験装置

2.1.1 実験装置概要

本実験装置は、軸対象噴流からの溶液と主流との化学反応を可視化測定することを目的とした。アクリル製のテストセクション内部を流れる主流に対し、テストセクション上部から噴流ノズルを挿入し、ノズル出口を主流内部に設置する。

実験装置の概略図を Figure 2.1 に示す。

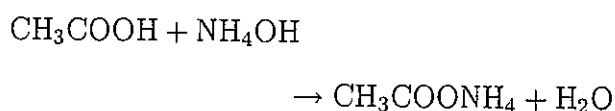
テストセクションは、断面 $0.1\text{ m} \times 0.1\text{ m}$ 、奥行き 1 m の矩形流路であり、ノズル挿入位置は、テストセクション入口から 0.1 m のところにある。ノズルの外径は 3 mm 、内径 $d = 2\text{ mm}$ である。ノズル挿入による主流の乱れを考慮して、ノズル出口は挿入位置から $0.25 \sim 0.35\text{ m}$ とした。また、ノズルの振動及び主流の安定のために、主流の途中にハニカムを設置してある。

二つのヘッドタンクから主流及び噴流に溶液が供給され、主流用のヘッドタンクの高さは、テストセクションから約 1.5 m 、噴流用は 1.8 m に設置する。主流流量は $0 \sim 6\text{ l/min}$ 、噴流流量は $0 \sim 100\text{ ml/min}$ である。このとき主流流速は $0 \sim 0.01\text{ m/sec}$ 、噴流流速は $0 \sim 0.5\text{ m/sec}$ に相当する。

主流はテストセクションから下部タンクに流出し、ポンプによってヘッドタンクに汲み上げられる。ヘッドタンクは液位を一定にするためにオーバーフローを設けており、溢れた溶液は下部タンクに流れる。テストセクション以外の流路は塩化ビニル製の配管によって接合されている。装置各部に空気穴及び流出口を設け、流路内の空気除去と実験後の清掃を可能としている。

2.1.2 対象化学反応

本研究では不可逆瞬間反応である酢酸と水酸化アンモニウムとの中和反応、



を用いた。この反応に伴う反応熱、及び 10 度程度の水温の変化による反応速度の変化は無視できる。この反応を選んだ理由として、熱・可逆反応等の影響のない流れを

計測することで、化学反応のみによる流れに対する影響を評価できるからである。また、配管(塩化ビニル)とテストセクション(アクリル)は、一部の強酸及び強塩基を除き耐薬性があるので、この溶液による壁面への影響はないと考えられる。

2.1.3 計測条件

反応の影響を評価するため、主流溶液と噴流溶液を水-水、酢酸-水、酢酸-アンモニア水と変えて計測した。これにより密度差の影響と化学反応の影響を比較できる。また、主流流速を 0.95cm/sec, 0.5cm/sec とし、噴流流速 U_N を 5cm/sec~45cm/sec、撮影領域をノズル出口付近、下流側として計測を行った。

	パラメータ
主流溶液 - 噴流溶液	水-水、酢酸-水、酢酸-アンモニア水
主流流速	0.95, 0.5 [cm/sec]
噴流流速	5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45 [cm/sec]
撮影領域	ノズル出口付近 (0 ~ 20d), 下流側 (50 ~ 70d)

ノズル出口から 0~20d 及び 50~70d の領域をテストセクション下部から入光させたレーザーシートにより照明し、側方より CCD カメラで撮影する。本研究では PIV(粒子画像流速測定法)と LIF(レーザー誘起蛍光法)を用いて可視化計測を行うが、溶液の密度差の影響が流れに寄与しているために、どちらの計測法においてもレーザーシートは縦方向でなければならない。PIV と SELIF(Single Emission LIF) においては Nd:YAG レーザー (532nm) を用い、DELIF(Dual Emission LIF) では Nd:YAG レーザー (355nm) を用いた。光学系は PIV と SELIF とでは同一であり、3枚のシリンドリカルレンズと2枚のミラーを使用している(PIV、SELIF 実験方法参照)。一方、DELIF 実験では一枚のシリンドリカルレンズを用いている(DELIF 実験方法参照)。また、テストセクションの素材であるアクリルは紫外光を透過しないため、テストセクションのシート光が入光する部分を繰り返し抜いて石英ガラスをはめ込んでいる。

本実験では酢酸とアンモニア水の中和反応を用いているが、ノズルより供給されたアンモニア水による主流 pH の変化は、主流ループ全体の溶液が約 110 l なのに対

第 2 章 実験装置及び測定手法

し、実験で使用する噴流溶液が約 2,3 l であることからほとんど無視できるとした (実験の終始で主流ループの pH を測定したがコンマ 2、3 程度の変化であった)。また、実験の条件の変化として水温、周囲の光の影響等が考えられる。水温については実験の終始で計測しており、ほとんど変化はなかった (2 ° C 以下)。周囲の光の影響については、実験を夜中に行うことと撮影の際には全消灯することにより、無視できるとした。

2.2 PIV(粒子画像流速計測法) 実験手法

2.2.1 原理

PIV(粒子画像流速計測法)とは、まず粒子を混入した流れを照明し、その粒子画像を写真もしくはビデオで数時刻に渡り撮影する。次にその撮影した2時刻の粒子画像の相関を取るなどの手法で対応づけることにより粒子の速度を計算する手法である。本研究では、PIV アルゴリズムとして濃度相関法を用いている。トレーサー粒子や染料などで可視化された流れの画像は濃淡分布をもっており、この濃淡分布が流体の運動とともに輸送される。したがって、画像の濃淡分布の移動先がわかれば、流速ベクトルが求まるのである。Figure 2.2は、相互相関関数を用いた計測アルゴリズムの概略を示している。可視化画像の濃淡分布は、2枚の画像の撮影時間間隔が短く、流体の並進運動に比べてせん断などの変形が小さい場合には、濃淡のパターンすなわち輝度分布はほとんど変化しない。このとき、2枚の画像のうち1枚目において p 点を中心とする $n \times n$ の領域をとり、これと2枚目の画像との間で相互相関係数 $R_{fg}(k, l)$ を計算する。それぞれの画像における輝度値を f_i, g_i 、 $n \times n$ の領域における平均値を \bar{f}, \bar{g} とすると、相互相関係数は次式で計算できる。

$$R_{fg}(k, l) = \frac{\sum_{i=1}^{n^2} (f_i - \bar{f})(g_i - \bar{g})}{(\sum_{i=1}^{n^2} (f_i - \bar{f})^2 \cdot \sum_{i=1}^{n^2} (g_i - \bar{g})^2)^{1/2}}$$

そして、相関係数の最も大きい場所 $q(k_s, l_s)$ 、すなわち濃淡分布が p と最も良く似ている場所が1枚目の画像の移動先と考えられるのである。この手法の特徴は、解析の対象が可視化画像の輝度分布であればなんでも良いことであり、トレーサー粒子のかわりに空気の流れにおいて煙を使った可視化や染料を流した場合の画像でも解析が可能である。

PIV・PTVのアルゴリズム開発は最近非常に活発に行われており、得られた画像情報を効率よく利用し、精度が改善されている。また、撮影した画像を前処理することで粒子判別をしやすくしたり、得られたベクトル図に対し虚偽ベクトル排除アルゴリズムを適用したりしている。

2.2.2 PIV 測定体系

概説の実験装置における計測体系の概略図を Figure 2.3に示す。使用する粒子は一般に固形の微小粒子、噴霧、油滴等が挙げられるが、本実験では 10～20 μm の球形粒子 (Expancel) を用いた。また、照明方法は Nd:YAG Pulse Laser のシート光を用い、640 × 480、Color depth:8bit、120Hz の CCD カメラ (photocam 120) で撮影した。

光源	Nd:YAG Pulse レーザーによるシート光源
トレーサ	Expancel(球形、10～20 μm)
使用カメラ	120Hz 高速 CCD カメラ (型式:Photocam - Photocam 120)
デジタルデータ	濃淡解像度: 8 bit、空間解像度: 640 × 480
使用レンズ	Nicon:ニッコール 50 mm、F 値 1.2

上記の表のような条件で対象領域から約 1 m の距離で撮影を行った。パルスレーザーの時間間隔の設定は、CCD カメラからのビデオ信号を delay Generator に入力し、それを基準として Pulse YAG Laser の delay を調整することにより行った。delay 時間の決定方法は、噴流の速度から PIV 粒子が CCD カメラの画像上で 4,5pixel の移動量となるように調整した。得られた画像は、濃度相関法を用いて処理してベクトル図を求め、150 ケースを平均することで時間的平均ベクトル図を求めた。

2.3 LIF(レーザー誘起蛍光法) 実験手法

2.3.1 LIF(レーザー誘起蛍光法) の原理

近年レーザー技術の発展により、信頼性が高く、操作性のよい各種のレーザーが市販されるようになり、レーザーを使った測定が盛んに行われるようになった。レーザー光のエネルギーの単色性、指向性、高出力またその操作性から考えても、レーザー励起は特定の分子を単一量子状態に励起する最適の方法であり、またレーザー誘起蛍光や吸収は分子の量子状態の決定には最適である。

化学反応が反応素過程とそれに引き続き起る緩和過程であると考え、二つの研究が考えられる。分子線や非常に希薄な気相での反応のように単一衝突の条件下で素過程だけを分離して測定する方法、及び反応をパルス的に開始させ、関与する分子種およびそれらの各々の状態にある分子分布の時間変化を精密に測定し、反応素過程後の緩和過程も含めて測定する方法とがある。第一の方法が分子線とレーザーを用いた実験方法であり、第二の方法がレーザーを用いた時間分解分光法である。化学分野では、これら二つの実験方法により化学反応の解析が行われているが、本実験で用いる LIF は、噴流による拡散の様子を局所的な染料濃度を測定することにより求めるものである。レーザーにより励起された染料が基底状態に遷移する際の発光を記録し、その発光量から染料濃度を求めることができる。蛍光測定の原理を説明するために Figure 2.4 のような実験の配置を考える。レーザーのパワーを P として、観測可能な領域の長さを l とすれば、観測時間 Δt 内に、この領域で吸収される光子数は、吸収パワーが $\Delta P = \alpha l P$ (α : 吸収係数) であるから

$$n = \frac{\alpha l P}{\hbar \omega} \Delta t$$

となる。発光量子効率と CCD カメラの素子感度の効率との積 (光電子増倍管を使った場合、発光量子効率と光電子増倍管の量子効率との積) を η 、集光の立体角を $d\Omega$ とすれば、光電子数は

$$n_e = \frac{\alpha l P \Delta t \eta}{\hbar \omega} \frac{d\Omega}{4\pi}$$

となる。CCD 素子が検出する暗電流パルスの毎秒あたりの数とレーザーとは関係ない迷光による光電子パルスの数の和を毎秒 n_N とする。また励起レーザー光の散乱

光も CCD カメラに入るので、この揺らぎも検出の障害となる。レーザー光が迷光となって入る割合を γ とすれば、検出する雑音分は

$$\left[\left(n_N + \frac{\gamma P}{\hbar\omega} \right) \Delta t \right]^{\frac{1}{2}}$$

となり、これよりも蛍光光子が多い時に S/N 比が 1 以上となる。したがって、

$$\frac{\alpha^0 l \Delta t \eta P d \Omega}{\hbar \omega 4 \pi (1 + P/P_s)} \geq \sqrt{\left(n_N + \frac{\gamma P}{\hbar \omega} \right) \Delta t}$$

となるので、 α_{min} は

$$\alpha_{min} = \frac{4 \pi \hbar \omega}{\eta l \Omega \sqrt{\Delta t}} \left(\frac{1}{P} + \frac{1}{P_s} \right) \sqrt{\left(n_N + \frac{\gamma P}{\hbar \omega} \right)}$$

である。励起レーザー光の散乱がなければ ($\gamma = 0$ であれば)、

$$\alpha_{min}^F = \frac{4 \pi \hbar \omega}{P_s l d \Omega \sqrt{\Delta t \eta}}$$

となり、したがって検出可能な最小分子数は

$$\Delta N_{min}^F = \frac{4 \pi \hbar \omega}{P_s l d \Omega \sqrt{\Delta t \eta}} \cdot \frac{\epsilon_0 h c \Delta \nu}{4 \pi \nu \mu^2}$$

となる。実際にはレーザーの出力を上げると迷光が多くなってしまうので、通常の蛍光による分子検出では、そのレーザーをカットするフィルターを用いて、波長の異なる蛍光だけを測定する場合が多い。この原理は原子 1 個を見るといったマイクロな測定のものであるが、本研究のような比較的広い範囲の測定に関しては多種多様なノイズが非常に大きいと考えられる。

これまで化学分野において盛んであった LIF を工学実験に応用できるようになったのは高出力レーザーによりノイズに埋もれてしまう可能性があった染料の発光量を大きくできることと、高感度カメラにより発光量を感度よく記録できることが挙げられる。

2.3.2 Single Emission LIF

噴流の拡散を測定するために、ノズル供給用のヘッドタンク内溶液に染料を混入した。測定体系は PIV 実験と同じである。使用したレーザー光源は YAG : 532nm なので、この波長に吸収帯をもつ染料として Rhodamin B を用いた (Rhodamine B の吸収・発光スペクトルを Figure 2.7、2.8 に示す。)。染料の発光とレーザーシート光とを区別するために CCD カメラの前に波長カットフィルターを置き、染料の発光のみを記録した。このフィルターは 580nm 以上を透過するものである。これにより、局所的な発光量の違いが噴流溶液の濃度を示していると考えられる。

2.3.3 Dual Emission LIF

Single Emission LIF ではおおまかな拡散を測定できるとされるが、厳密に染料の発光量が噴流溶液の濃度を示しているかについては幾らか問題がある。Single Emission LIF の仮定として、レーザーシートが均一かつ光量が一定であることが挙げられる。しかしながら実際は、レーザー出力は時間とともに変化するし、レンズやミラーの埃とテストセクション入光部における散乱のため均一のレーザーシートではない。また、温度や pH による吸収特性のため定量評価を行うのは難しい。このレーザーシートのばらつきに左右されない濃度測定法として、Dual Emission LIF を利用する [11]。

2.3.2.1 Dual Emission LIF の原理

Martin(1975) によると、染料は次のような蛍光特性をもつことがわかっている。

$$I_f(b) = I_e(b)A\phi L\epsilon C$$

ここで、 I_f は点 b における計測された蛍光輝度、 I_e は点 b における光源の強度、 A は蛍光による輝度、 ϕ は染料の量、 L はビームの通過する単位長さ、 ϵ はモル吸光度、 C は染料のモル濃度である。もし染料の吸収・発光が pH に依存する場合、次式のようなになる。

$$I_f(b, \text{pH}) = I_e(b, \text{pH})A\phi L\epsilon(\text{pH})C$$

厳密には点 b における光源の強度は次の式で表される。

$$I_e(b, \text{pH}) = I_0 e^{-\epsilon(\text{pH})lC}$$

l は点 b に到達するまでのビームの移動距離である。すなわち蛍光強度から pH の値を得るには点 b における発光強度を正確に知る必要がある。しかしながら、現実にはシート光源のばらつきや流れによる輝度変化から厳密な値を求めることは難しい。

このような問題を解決するために、pH に依存しないもう一つの染料を混入し、互いの蛍光量の比から定量的に測定する方法が考えられる。二種類の染料を混入した場合の蛍光量の比は、pH に依存する染料の蛍光量を I_{1f} 、pH に依存しない染料の蛍光量を I_{2f} とすると、

$$\frac{I_{1f}(b)}{I_{2f}(b)} = \frac{\epsilon_1(\text{pH}, \lambda) C_1 \phi_1}{\epsilon_2(\lambda) C_2 \phi_2}$$

となる。この式は蛍光量の比が染料の特性のみに依存し、発光量には無関係であることを示している。つまり、一方の蛍光量は pH によって変化しているが、もう一方はレーザーシートの部分的な強度のみを発光量で示している。この二種類の蛍光量を同時計測することによって、レーザーシートの強度分布に影響をうけずに pH 分布を定量的に評価できる。このような二種類の染料の組合せは数多く考えられるが、染料を選ぶ際には光源となるレーザーの波長を吸光すること、二種類の染料の蛍光を識別するために二つの発光波長が重ならないことが必要である。

2.3.2.2 ステレオビューワ撮影

二種類の染料の蛍光量を同時測定する方法として、1枚のフレームを上下に分割して撮影する光学機器 (ステレオビューワ : Figure 2.5) を使用する [3]。ステレオビューワは4つのミラーからなり、撮影対象を個別にフレームに記録する。また、それぞれの蛍光量を個別に測定するため、対象を上下に分割した際にそれぞれの発光波長以上の波長を透過する異なる二つの Filter を設置する。しかしながら、ステレオビューワを使用する際にはいくつか気をつけなければならないことがある。まず、分割されたフレームにおける視差の違いを減らすため、ミラーの位置及び角度を調整しなければならない。次に、本来同一であるはずの二つのフレームにおける輝度の違いを考慮にいれなければならない。これはミラーやフィルター表面の曇りによるものと考えられるが、ピクセルごとに輝度校正をする必要がある。あるピクセル (i, j) におけるフィルターなしの輝度を $C_{frame1}(i, j)$ 、 $C_{frame2}(i, j)$ 、フィルターをかけたあと

の輝度を $S_{frame1}(i, j)$ 、 $S_{frame2}(i, j)$ とすると染料の蛍光による輝度比 $R(i, j)$ は、

$$R(i, j) = \frac{C_{frame1}(i, j) \cdot S_{frame2}}{C_{frame2}(i, j) \cdot S_{frame1}}$$

となる。このように撮影した上下の画像において、染料の蛍光による輝度を比較することで、計測領域の pH 分布を計測できると考えられる。

2.3.2.4 DELIF 実験測定体系

Dual Emission LIF 実験では、pH に依存する染料と依存しない染料の二種類が必要であり、その発光領域が重なっていないものを探す必要がある。光源には、YAG 532nm、Ar 515、488nm、YAG 355nm のレーザーが考えられる。YAG 532nm、Ar 515、488nm のレーザーを用いる場合は、PIV 実験と同じ測定体系である。YAG 355nm の紫外レーザーを用いる場合の測定体系を Figure 2.6 に示す。レーザーをテストセクション下部に設置し、1 枚のシリンダリカルレンズでレーザーシートをつくる。一般に紫外光はアクリルを透過しないので、テストセクション下部の一部に石英ガラス板をはめ込んだ。そのガラス板を透過したレーザーシートによる照明領域とノズルからの距離とを一致させるため、数種類の長さの異なるノズルを作製した。また、紫外レーザーの体系においてシリンダリカルレンズ 1 枚だけでレーザーシートをつくったのは、本実験で用いたレーザーの出力が小さいからである。(レンズ・ミラー等を透過する際、光量は減少する) 本実験で用いた紫外レーザーは 30Hz の Single Pulse YAG 355nm(出力 2.5mJ) であり、CCD カメラは 1 k×1k、Color depth:10bit(日立 KP-F110) である。

光源	Nd:YAG Single Pulse(355nm) レーザーシート
使用カメラ	30Hz CCD カメラ (型式: 日立 KP-F110)
デジタルデータ	濃淡解像度: 10bit、空間解像度: 1000 × 1000
使用レンズ	Nicon: ニッコール 50mm、F 値 1.2

上記の条件でステレオビューワの焦点距離である 14cm の距離で撮影した。CCD カメラは 1 k×1k であるものの、ステレオビューワの特性上測定できる領域は実際もっと小さくなる。

2.3.2.3 較正実験

二種類の染料の発光量を同時に記録する際、ステレオビューワの画像上で対応する位置を較正しなければならない。本実験で用いたステレオビューワ (PENTAX: 焦点距離 14cm) の撮影領域は 4×2 cm であるが、視差が一致しなおかつ左右の画像でお互いの散乱光及び回折光の影響を受けない領域は 2×1 cm である。較正実験では、 $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ の角型ガラス容器に染料を溶かした溶液を入れ、実測定で用いるシリンドリカルレンズ、CCD カメラ、カメラレンズ等の測定系で発光量を測定した。このときの染料濃度も実験と同じである。ここで気をつけなければならないのは、以下の点である。

- 測定系、染料濃度、カメラの絞り等を本実験装置と同じにすること。
- 溶液の pH 値を安定させてから測定すること。
- 周囲の光の影響を考慮すること (較正実験、本実験ともに夜中に、照明無しで行った)。

較正実験で得られた画像から、ステレオビューワの視差較正と染料の pH 変化による発光量変化を求めた。

2.3.4 Dual Emission LIF 染料の吸収・発光スペクトル図

本実験で用いた染料、および Dual Emission LIF に利用できるであろう染料の吸収・発光スペクトルを分光器で測定した。LIF で利用できる条件として、レーザーの波長に吸収帯をもつこと、対象溶液に溶けること (本実験では水溶性であること)、発光領域と吸収領域ができるだけ離れていること等が考えられる。分光器で測定する際の染料濃度は、できるだけ実験で使用する濃度 (CCD カメラに記録できる程度の発光量になる濃度) にした。吸収スペクトル測定では十分なスペクトルを計測できなかった場合があったが、そのときは発光ピークに対する吸光を測定した。測定した染料の一覧と測定濃度は以下の通りである。

染料名	濃度 [mol/l]	励起波長 [nm]
Rhodamine B	5×10^{-5}	532
Rhodamine 6G	5×10^{-5}	532
Acid Red 52	5×10^{-5}	532
Uranine (Fluorescein)	5×10^{-5}	488
Quinine	1.4×10^{-5}	355
Basic Orange 14	1.5×10^{-4}	532
Acridine	1.61×10^{-4}	355
Eosin B (Acid Red 91)	5×10^{-5}	532

D-LIF として pH 分布を測定できる可能性がある組合せは、

- 染料の発光量が pH に依存するものとししないもの
- 同一レーザーの波長に吸収帯をもつこと
- 二つの染料の発光領域が異なること

染料の吸収・発光スペクトルから染料の pH 依存について調べると下覧のようになっている。

染料名	pH 依存性
Rhodamine B	pH6 以下
Rhodamine 6G	pH6 以下
Acid Red 52	無し
Uranine (Fluorescein)	有り
Quinine	有り
Basic Orange 14	無し
Acridine	多少有り
Eosin B (Acid Red 91)	酸性か塩基性かどうか

この染料の pH 依存性から組合せを考えると、Rhodamine B - Acid Red 52(YAG 532nm)、Rhodamine 6G - Acid Red 52(YAG 532nm)、Uranine (Fluorescein) - Rhodamine B(Ar 488、515nm)、Quinine - Rhodamine 6G(YAG 355nm) などがある。しかしながら実際に CCD カメラで発光量を記録したとき十分な pH 変化を測定できるかどうかは、CCD カメラの感度、染料濃度、実験誤差などに左右されるので実験体系や測定体系によって異なると考えられる。

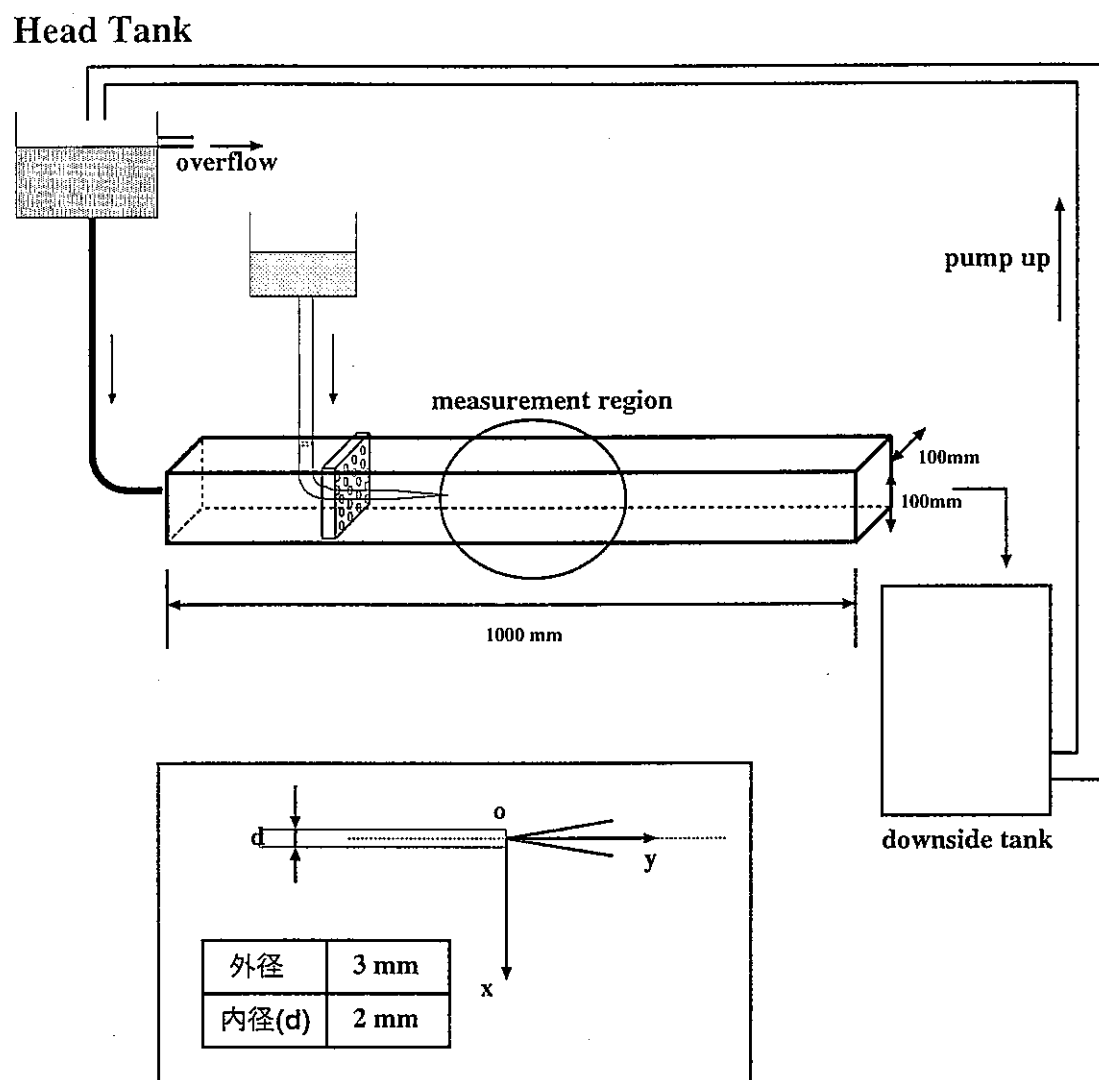
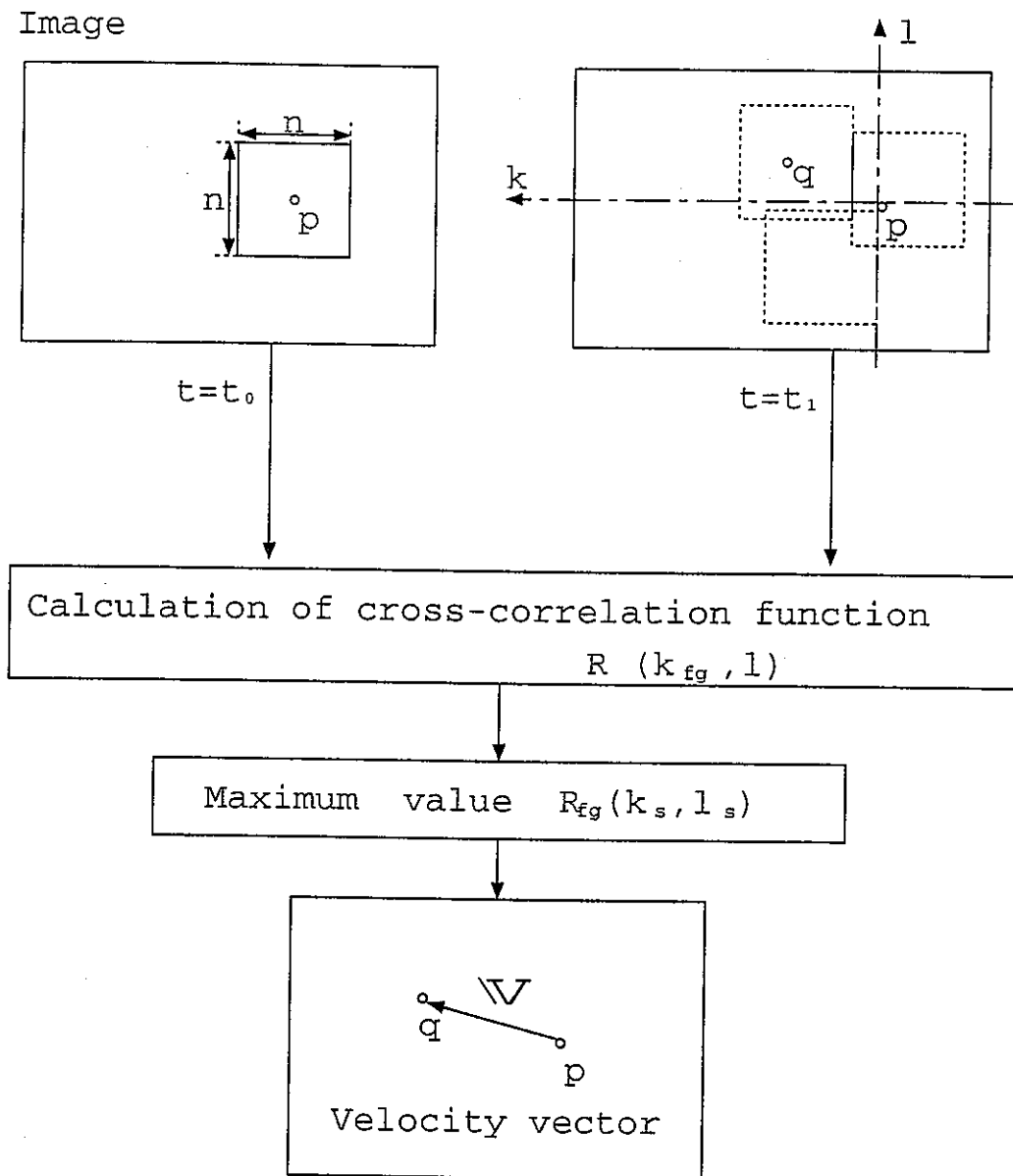


Fig.2.1: Schematic View of The Test Section



Principle of cross-correlation method based on density distribution pattern

Fig.2.2: Cross Correlation Method

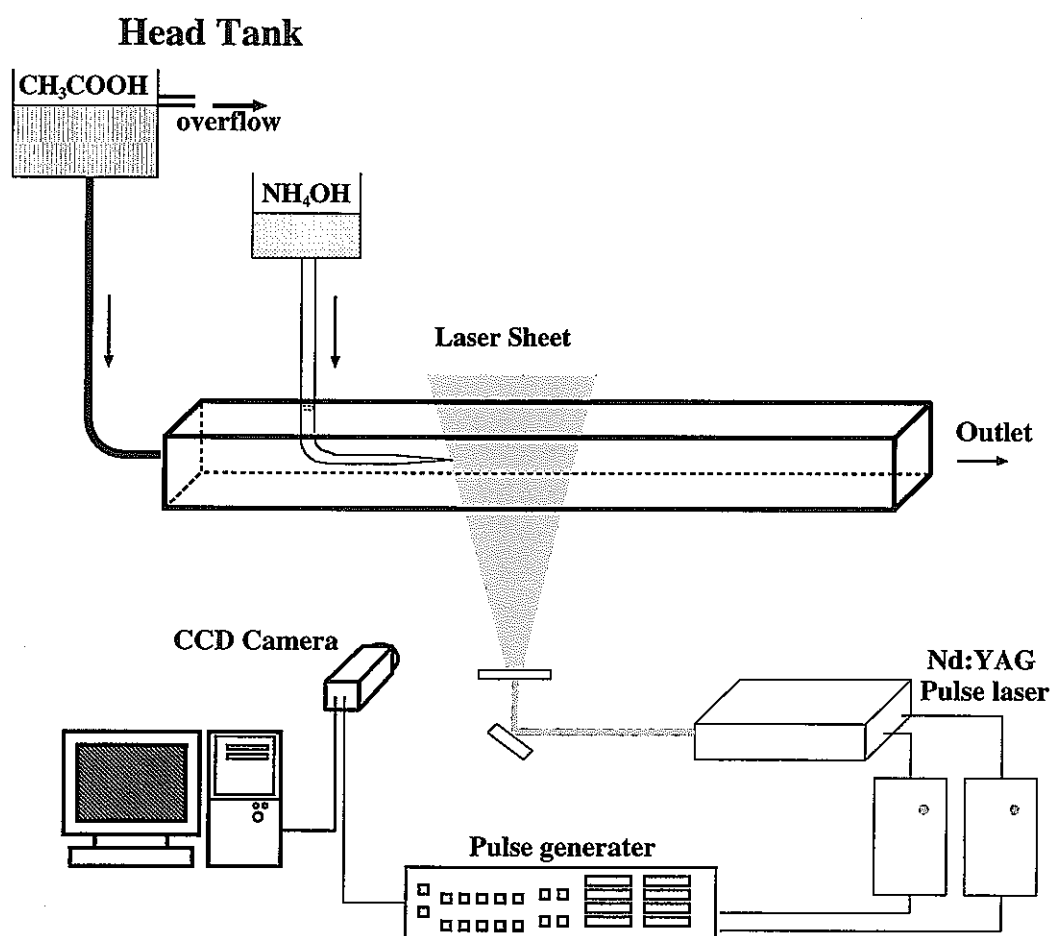


Fig.2.3: Experimental setup of PIV

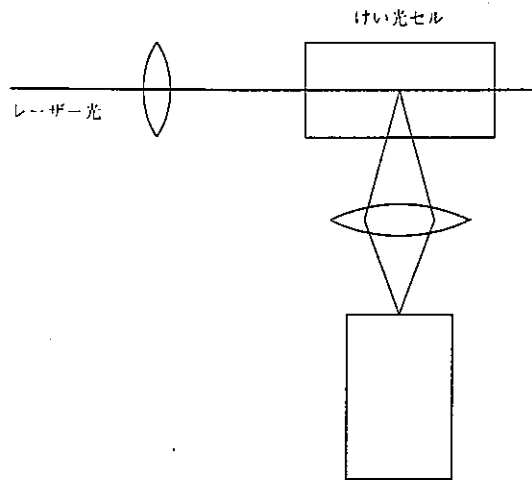


Fig.2.4: LIF の原理体系図

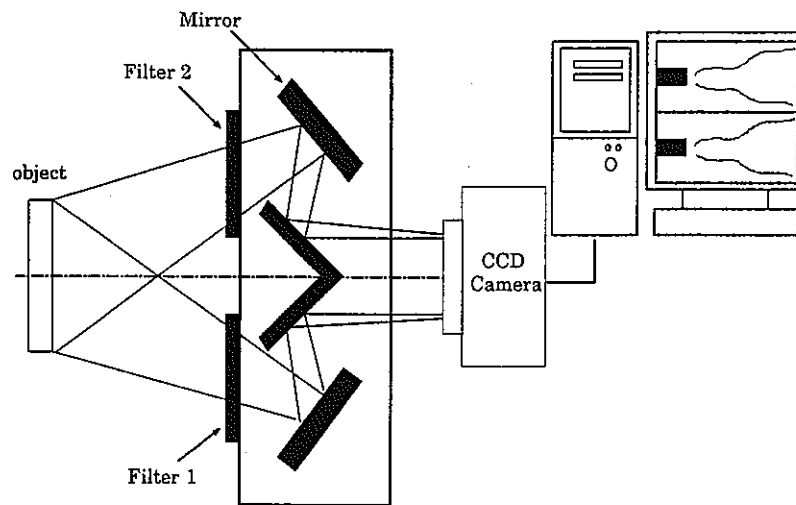


Fig.2.5: Stereo Viewer

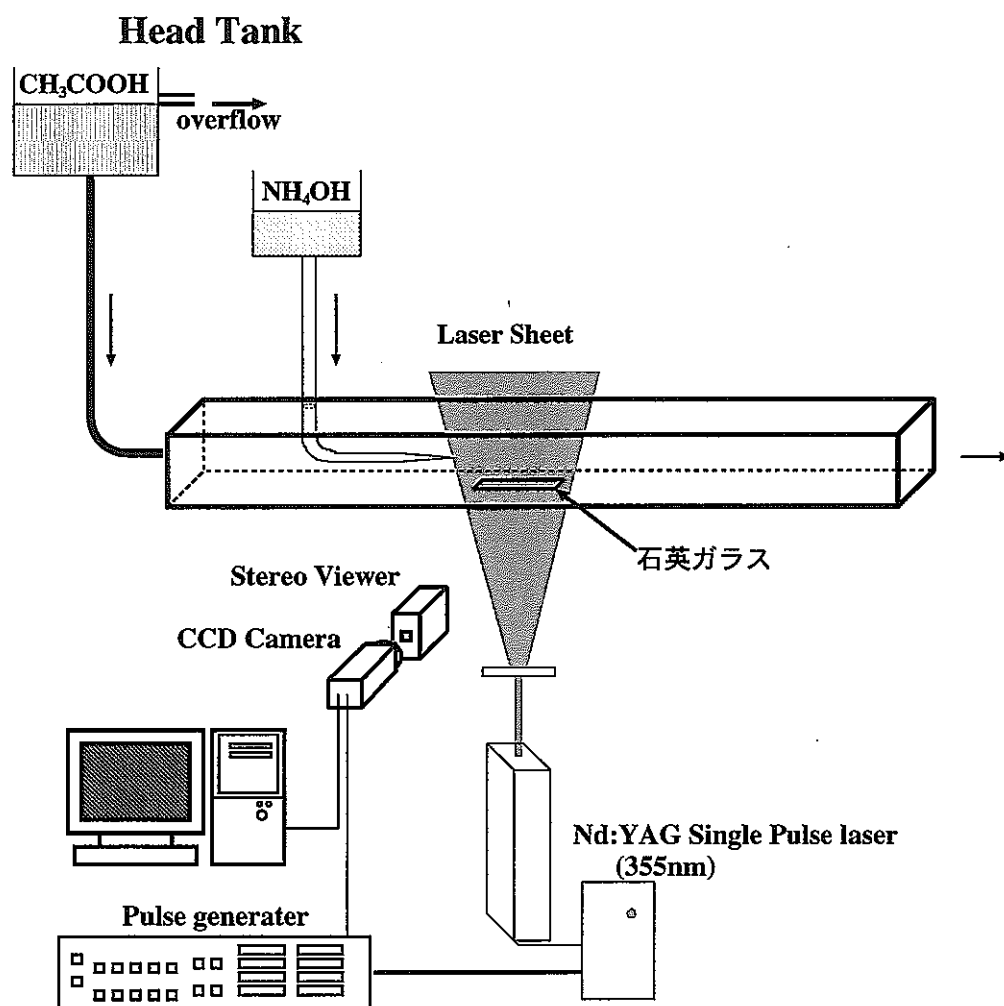


Fig.2.6: Experimental setup of LIF

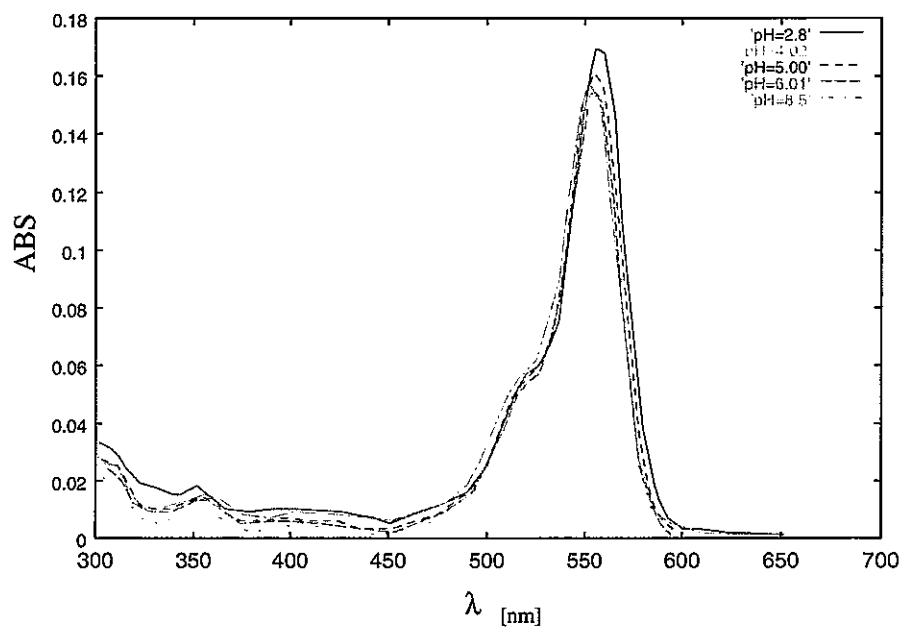


Fig.2.7: ABS Spectrum of Rhodamine B

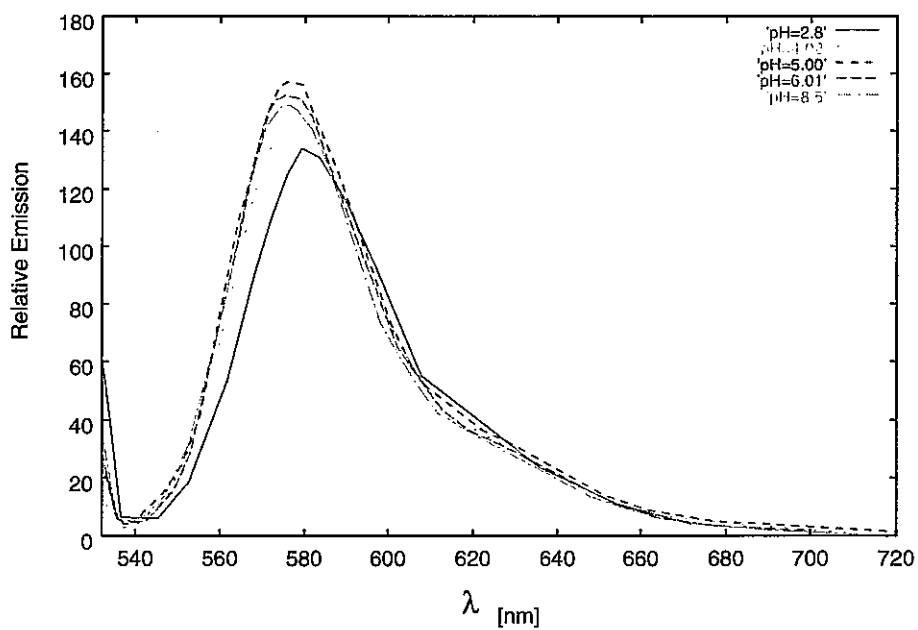


Fig.2.8: EM Spectrum of Rhodamine B

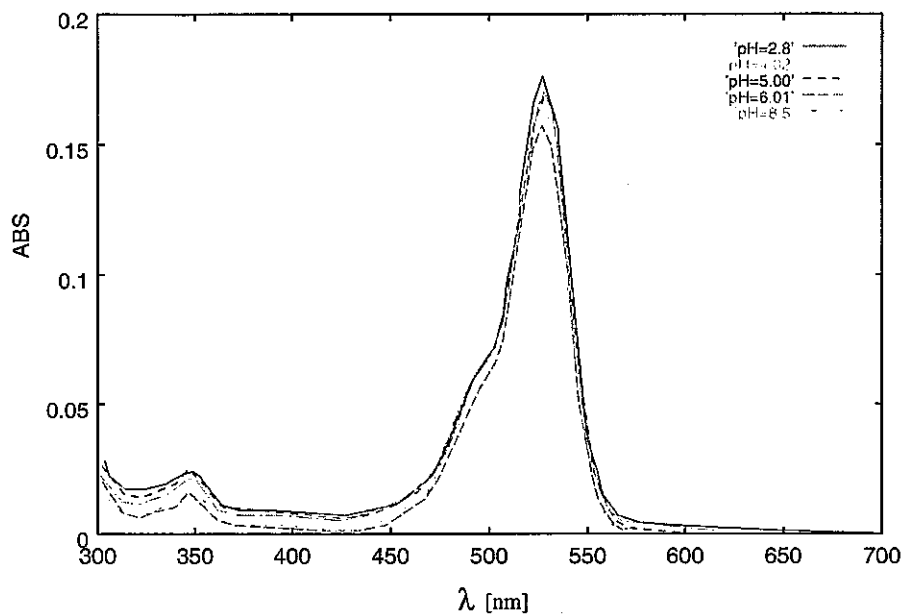


Fig.2.9: ABS Spectrum of Rhodamine 6G

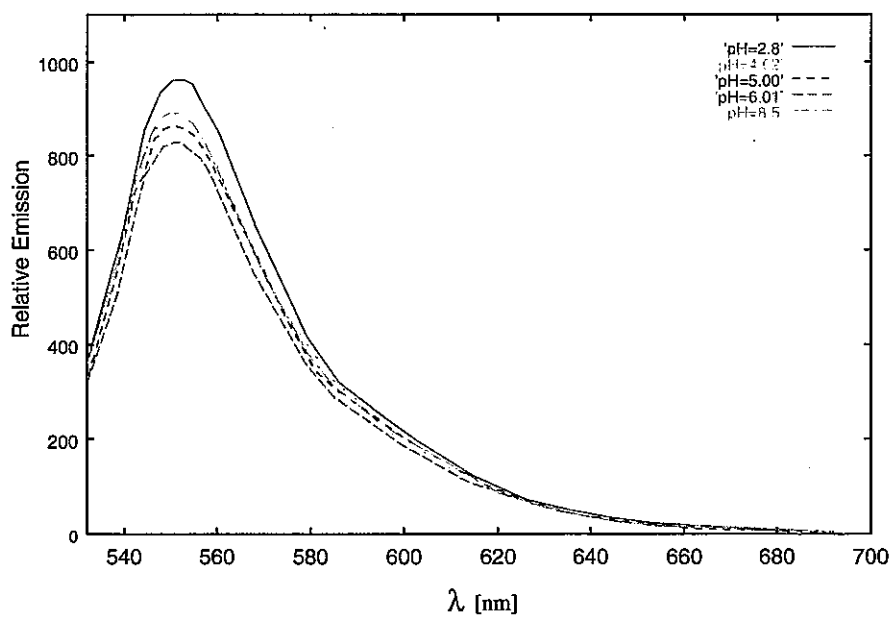


Fig.2.10: EM Spectrum of Rhodamine 6G

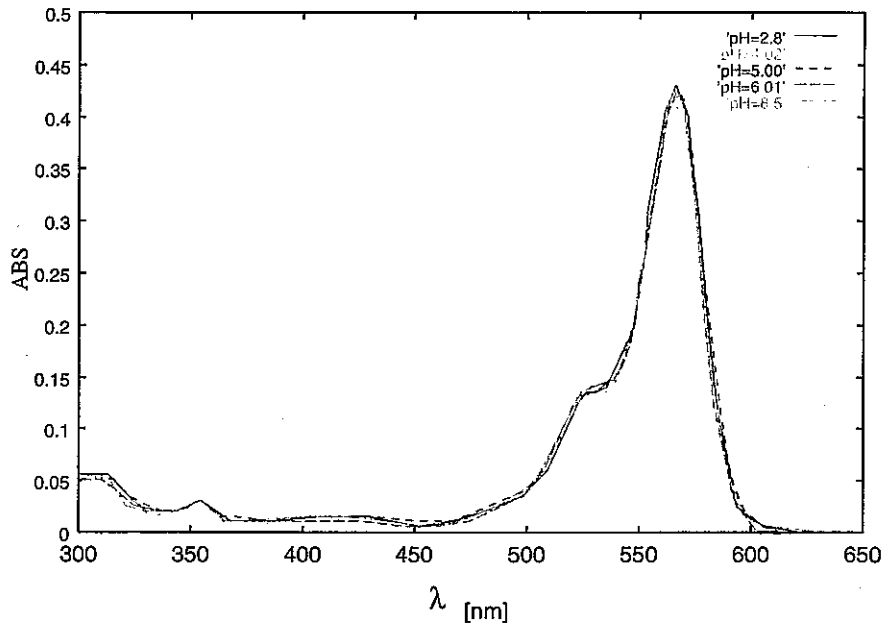


Fig.2.11: ABS Spectrum of Acid Red 52

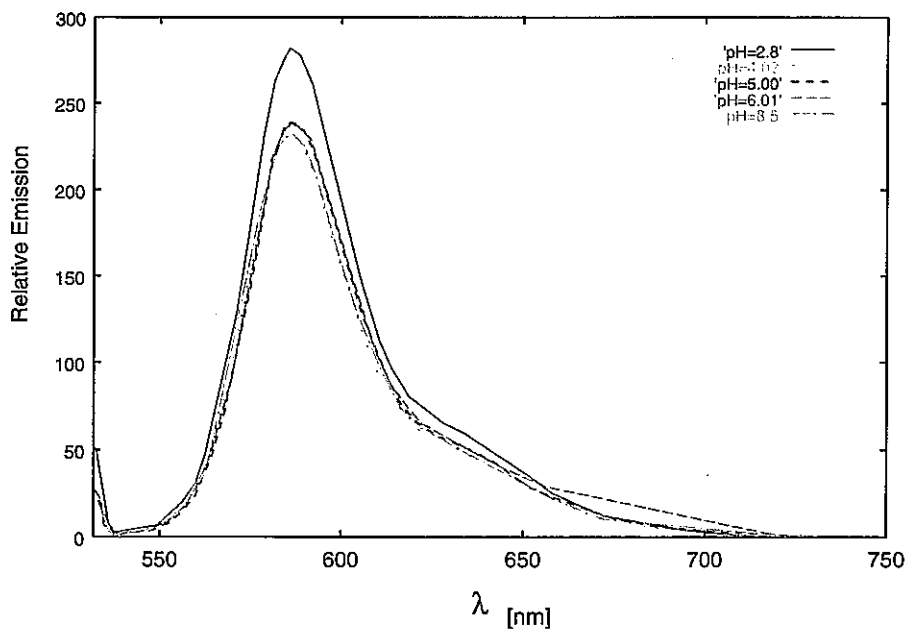


Fig.2.12: EM Spectrum of Acid Red 52

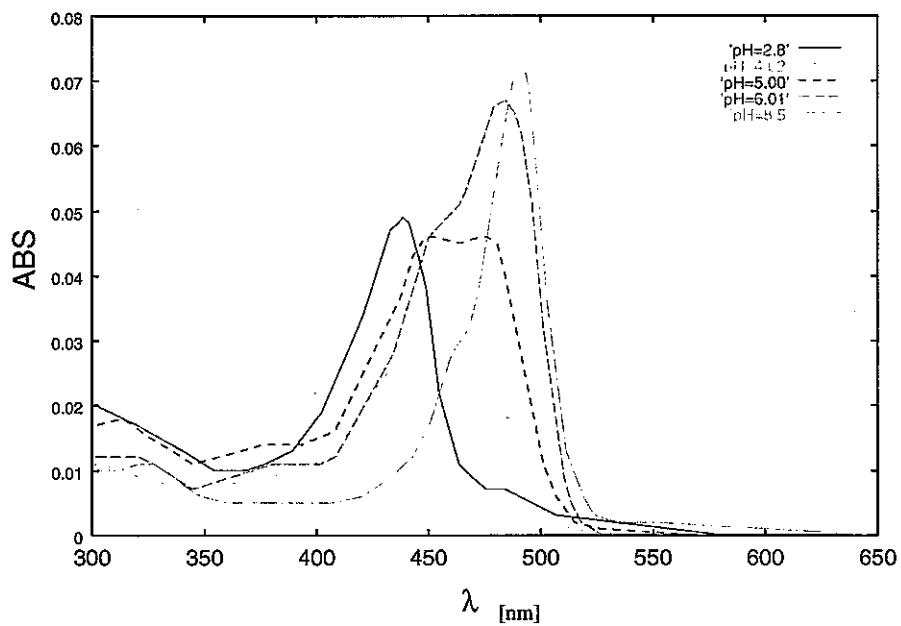


Fig.2.13: ABS Spectrum of Uranine

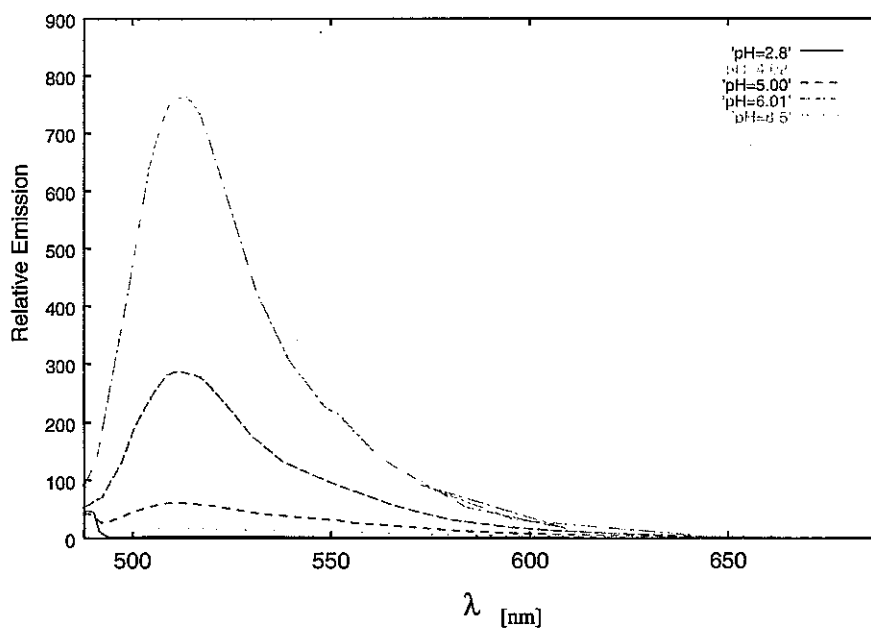


Fig.2.14: EM Spectrum of Uranine

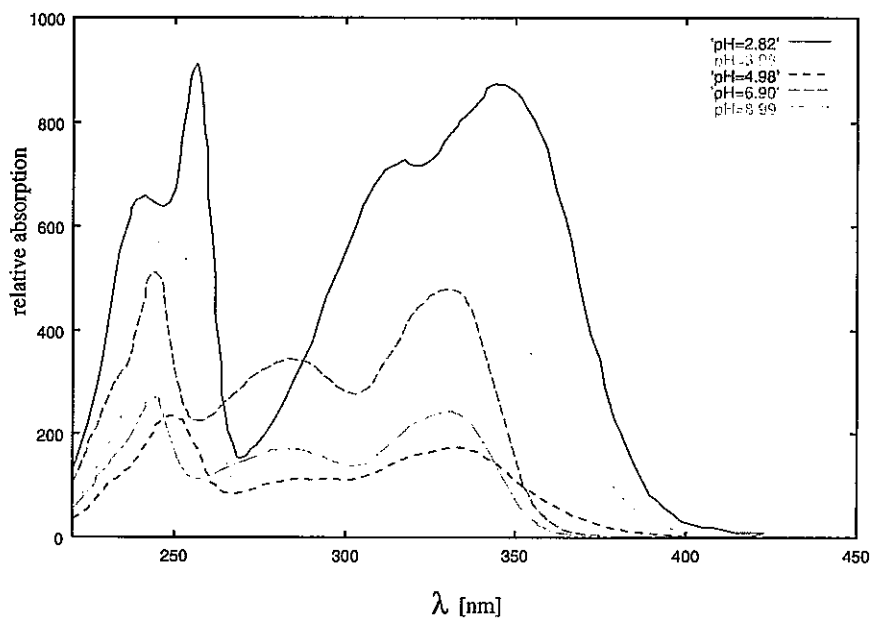


Fig.2.15: ABS Spectrum of Quinine

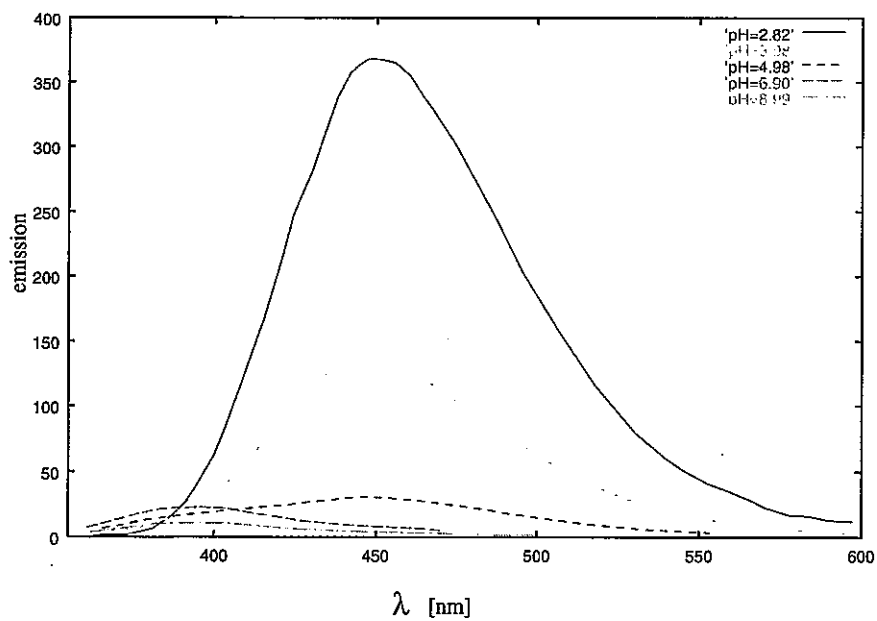


Fig.2.16: EM Spectrum of Quinine

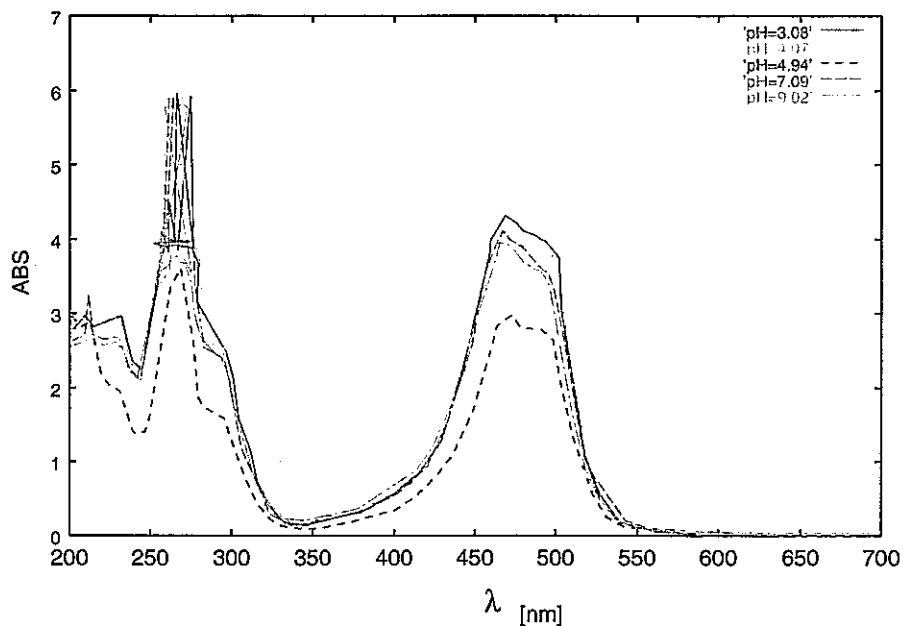


Fig.2.17: ABS Spectrum of Basic Orange 14

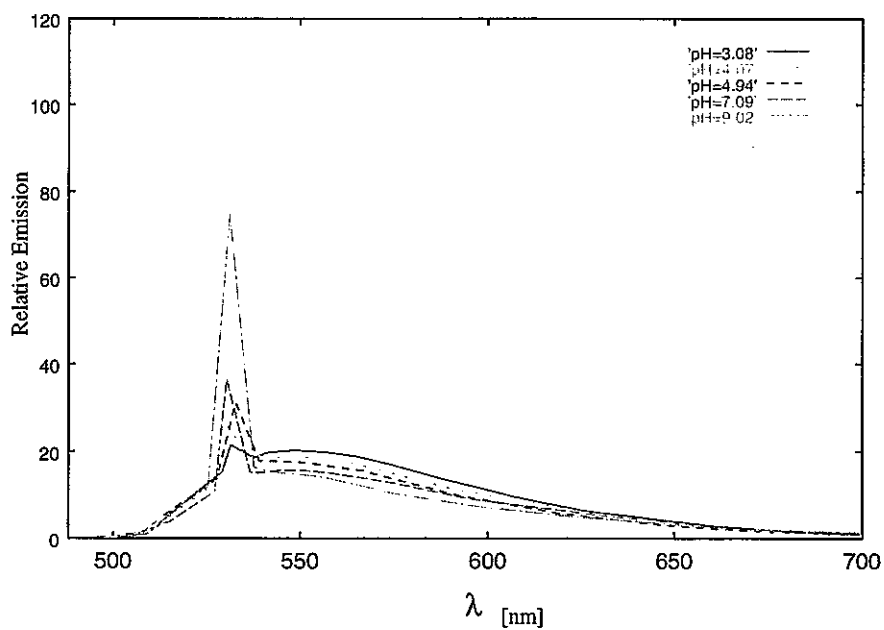


Fig.2.18: EM Spectrum of Basic Orange 14

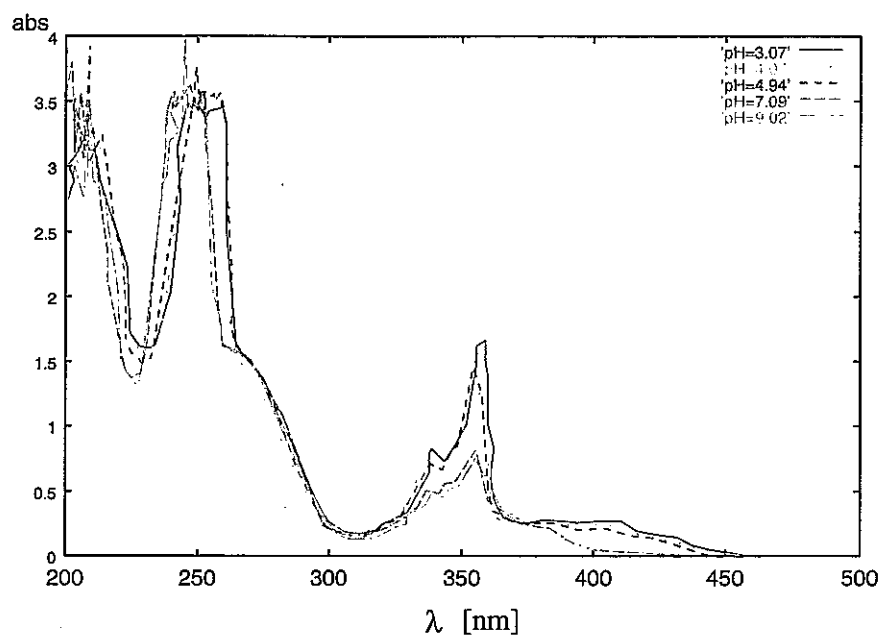


Fig.2.19: ABS Spectrum of Acridine

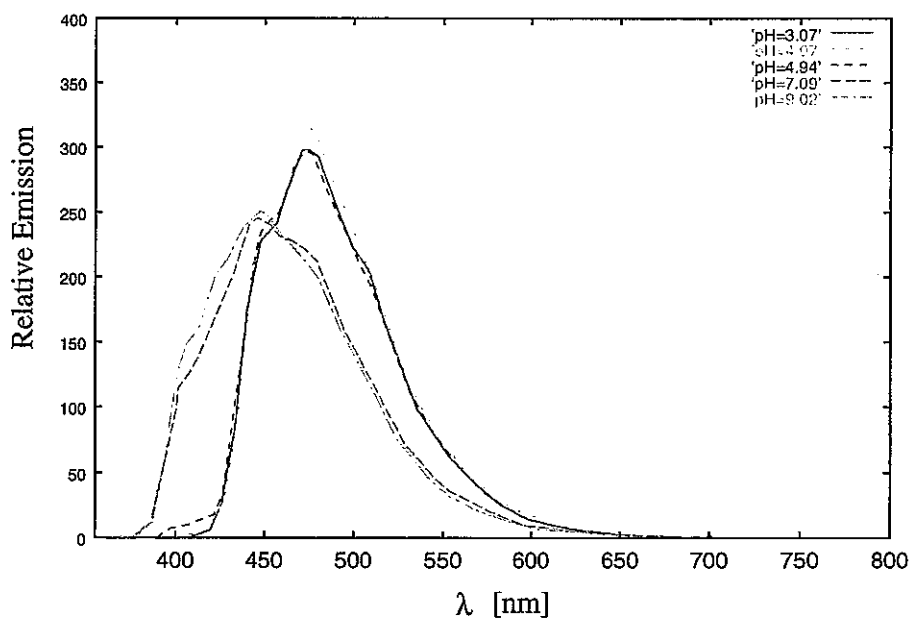


Fig.2.20: EM Spectrum of Acridine

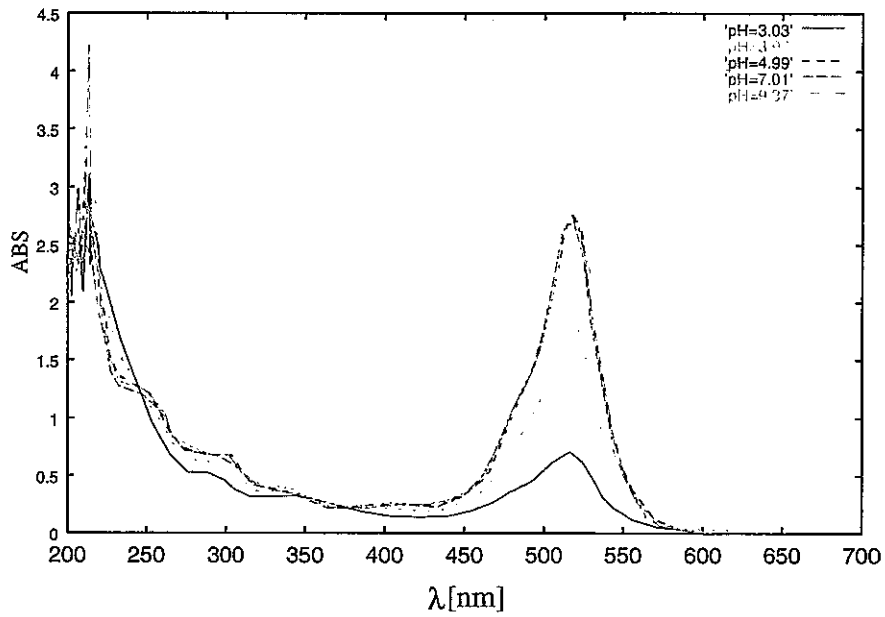


Fig.2.21: ABS Spectrum of Eosin B

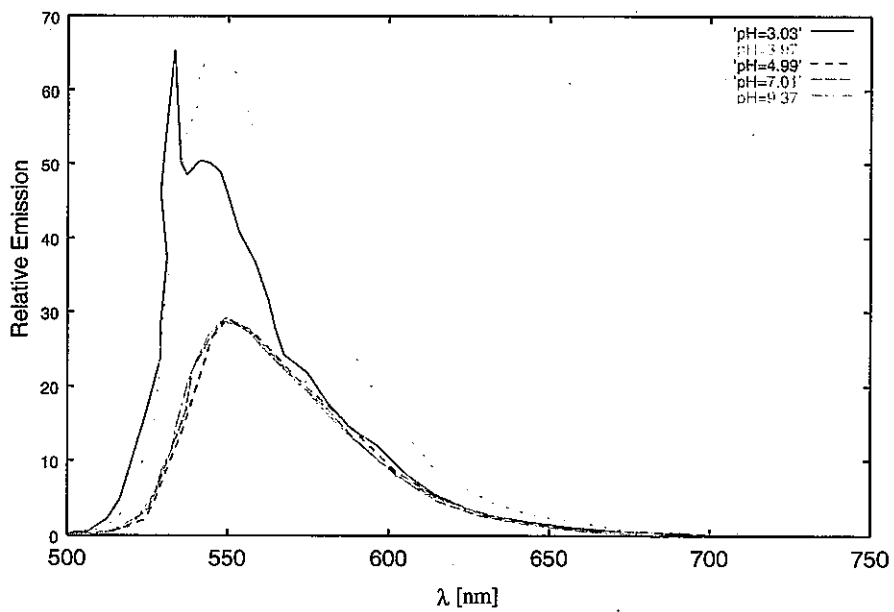


Fig.2.22: EM Spectrum of Eosin B

第 3 章

実験結果

3.1 PIV 実験結果

噴流速度を変化させ、ノズル出口付近と 50~70d 付近の領域を測定した。噴流速度と PIV 処理する画像の時間間隔を下覧に示す。この時間間隔は主流と噴流の溶液に関わらず、同噴流速度で一定である。このような時間間隔に設定したのは、PIV 画像処理で画像内での粒子移動量が 4.5pixel にするためである。カメラは約 5cm × 4cm 領域を 640 × 480 で撮影している。すなわち 1 pixel = 0.1mm 程度である。画像撮影の際には主流と噴流における粒子密度を同一にしなければならないので、まず主流に粒子を混入し、循環させて一様になった粒子入りの水を噴流溶液として利用した。またカメラ等のセッティングを固定したまま、主流・噴流溶液を変化させた。

ノズル出口撮影における Delay 設定

噴流流速 [cm/sec]	5	10	15	20	30	35	40	45
時間間隔 [ms]	5	3	2	1.5	1	1	0.7	0.5

下流領域撮影における Delay 設定

噴流流速 [cm/sec]	10	15	20	25	30	35	40	45
時間間隔 [ms]	7	5	4	3	3	2	2	2

3.1.1 流速分布

ノズル出口付近の流速分布を Figure 3.1 ~ 3.8 に示す。低流速条件では、二種類の溶液の密度差の影響が強いためノズル噴流が上方向に流れていることが分かる。これが反応の影響ではないことは、アンモニア水の濃度を変化させたときに浮力の影響が変化したことから推測される。

下流領域の流速分布を Figure 3.9 ~ 3.12 に示す。この下流領域では、噴流流速が 25cm/sec 以下であると浮力の影響でカメラ画面上部にしか撮影できなかった。

3.2 LIF 実験

3.2.1 Single Emission LIF による拡散測定

噴流溶液に RhodamineB を混入し、YAG532nm シートで照明した。噴流溶液を変化させて撮影したが、このときの噴流溶液中の染料濃度は同じである。よって、レーザーシートのばらつきによりいくらか誤差を含むが、輝度の高さと噴流濃度が比例関係にあるといえる。

計測条件は主流流速を 0.5cm/sec に固定し、噴流流速を 10~45cm/sec に変化させて記録した。パルスレーザーを用いているが、一本目と二本目の光軸のズレが染料の発光に影響を与える可能性があるため、二本のレーザーを同時に発振し 30Hz で撮影した。瞬間の拡散画像を Figure 3.13 ~ 3.20 に示す。

3.2.2 Dual Emission LIF による pH 分布測定

染料の幾つかの組合せで較正実験を行った。一番下のアルゴンレーザーを用いた実験は過去の研究で行われており、本研究では行わなかった。これはアルゴンレーザーでは時間分解能の面において CCD カメラの周波数程度の時間間隔でしかないので、複雑な反応界面を追うのに不相当だと思われる。それに比べて YAG532,355nm のレーザーはパルスで発振できるのでその発振間隔を変えれば、より高い時間分解能が得られるはずである。

励起レーザー	pH に依存しない染料	pH 依存染料	Figure
YAG 532nm	Sulforhodamine(Acid Red 52)	Rhodamine B	3.26
YAG 532nm	Sulforhodamine(Acid Red 52)	Rhodamine 6G	3.28
YAG 532,355nm	Rhodamine B	Quinine	3.30
YAG 355nm	Rhodamine 6G	Quinine	3.32
Ar 488,515nm	RhodamineB	Uranine (Fluorescein)	

較正実験

1. Sulforhodamine(Acid Red 52) - Rhodamine B or 6G 較正 (532nm 励起の場合)

まず RhodamineB, 6G の pH 依存性を確認するため単一染料を溶かしたときの発光量を測定した。Figure 3.26に示すとおり pH3~6 の間で Rhodamine B の発光量が増加している。pH6 付近からは発光量に変化ない。また Rhodamine 6G は逆に pH3~6 の間で発光量が減少している。このことから pH6 以下の測定には適用できると考えられる。

次に二種類の染料を同時に溶かして発光量を測定したとき、Figure 3.28上のような結果が得られた。単一染料のときと同様に発光量にはばらつきがある。これは、レーザーシートのばらつきであると考えられるので、同時刻に撮影した2つの発光量の比をとる (Figure 3.28下)。pH6 以下で変化が見られるもののばらつきが大きすぎて本実験に応用できない。この理由としては、RhodamineB と Rhodamine6G は、pH に少しは依存するものの、DELIF として利用するには変化が小さすぎるためと考えられる。

2. Rhodamine B - Quinine 較正 (532nm と 355nm の両方で励起した場合)

Quinine を pH 依存染料とした場合、励起レーザーを YAG3 倍波 (355nm) にしなければならない。ところで YAG の 3 倍波レーザー光をつくり出す過程では YAG の倍波 (532nm) を利用しており、3 倍波のレーザーに倍波が混じっている。この倍波が出ていることを利用して RhodamineB - Quinine の組合せで較正実験を行った。これは 2 本のレーザーシートを用いた DELIF であり、二つの波長で染料を励起している。Figure 3.30は、二つの染料の発光量とその比を示している。下図ではこれまでよりも精度の高い pH 較正曲線が見られる。Quinine が pH 依存性が大きいことがこの精度を裏付けているが、依存性が大きいがために CCD カメラの輝度変化が大きく pH 測定領域が必然的に小さくなる。また、この組合せでは二つの励起波長を用いているため、厳密には片方がシートのばらつきを示しているわけではないし、両方の波長でも励起されているために発光量が一定しない。図中でもいくつか較正曲線から大きく外れた点が存在している。

3. Rhodamine 6G - Quinine 較正 (355nm 励起の場合)

励起レーザーを YAG3 倍波 (355nm) とし、この波長に吸収帯をもつ Rhodamine 6G - Quinine の組合せで較正実験を行った。このときの発光量と較正曲線を Figure 3.32 に示す。それぞれの発光量自体にはばらつきがあるが、較正してみるとある曲線上にプロットされている。この結果は Figure 3.33 の二つの染料を同時に溶かして pH ごとに分光器にかけたものからも理解できる。図では Quinine の発光量変化が大きく、二つの染料の発光波長も異なっている。

較正実験の結果から、YAG3 倍波 (355nm) を光源とし、Rhodamine 6G - Quinine の組合せで本実験を行うことにした。

本実験

較正実験と同じ染料濃度、光学系でノズル出口から 60d の付近の pH 分布を計測した。ステレオビューワの視野領域が小さいため噴流中心より下にずれた pH 界面を撮影し、輝度を pH 値に較正した。

Figure 3.34 は、拡散渦の推移を 1/30 秒間隔で測定したものを時系列で示してある。左上の図は pH 分布とそのときの拡散の様子を分かりやすくみるために Quinine の発光量をカラー表示したもの (輝度の高いところを明るく表示) とを同時に載せてある。渦の進行方向の境界面では反応が早く pH 変化大きいため等高線の間隔が非常に狭い。一方、渦の後ろ側の流れが穏やかな領域ではゆっくりと反応が進み等高線間隔が比較的広がっている。しかしながら、渦の中心付近の pH はより高いはずなのに処理できていない。これは較正曲線上において、pH5.5 付近までしか較正できないからである。

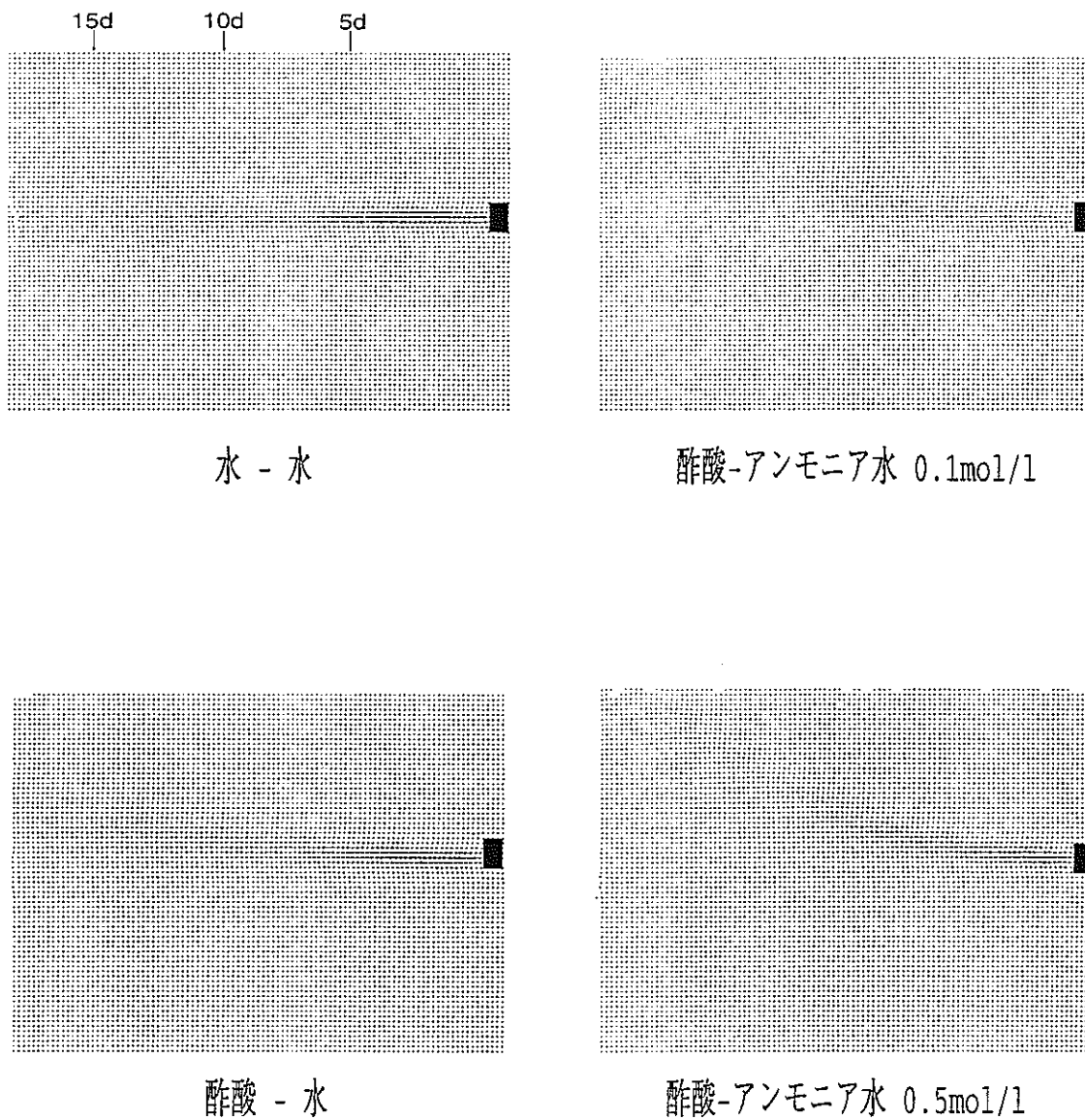


Fig.3.1: Velocity Distribution (nozzle velocity = 5 cm/sec)

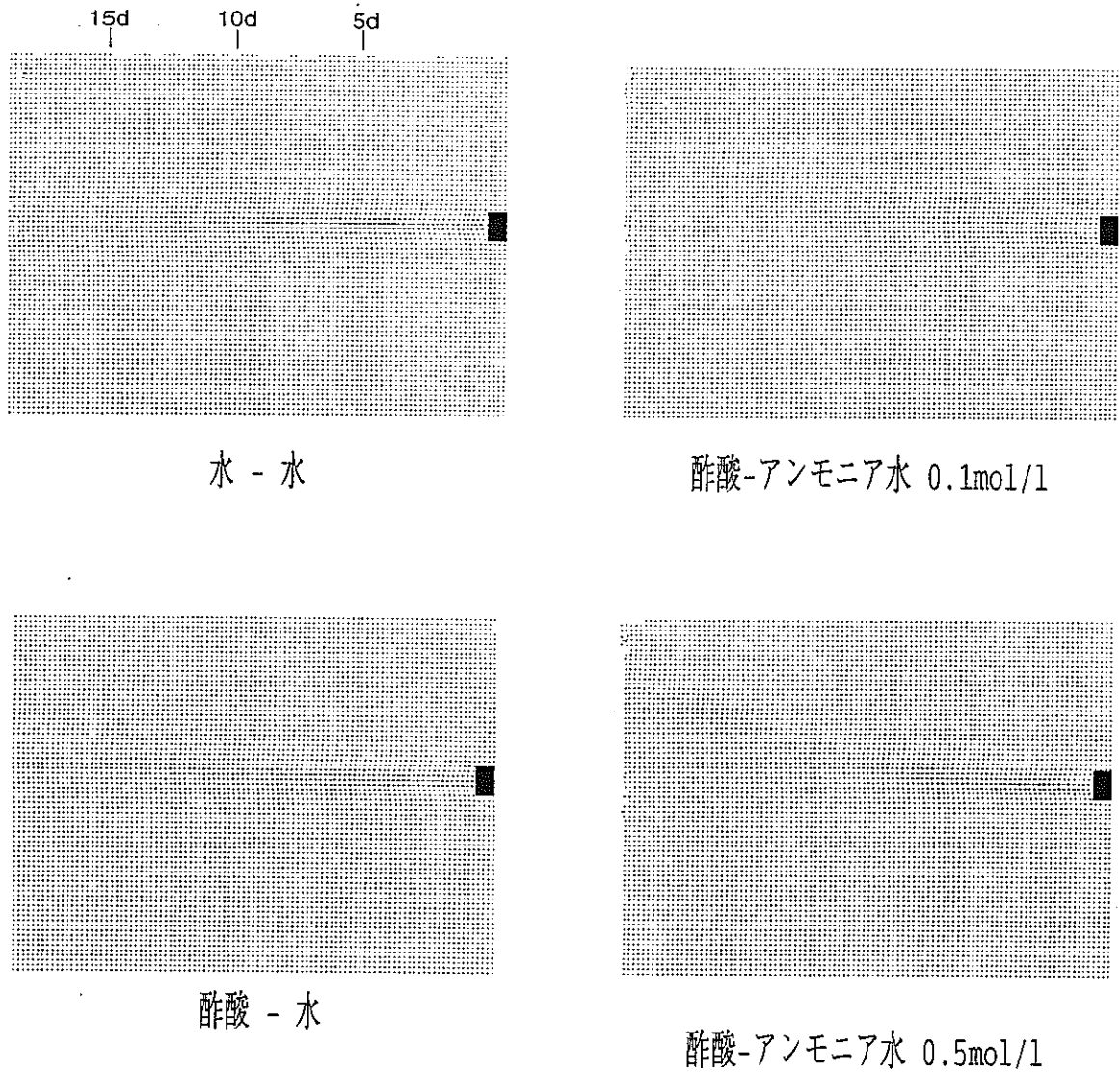


Fig.3.2: Velocity Distribution (nozzle velocity = 10 cm/sec)

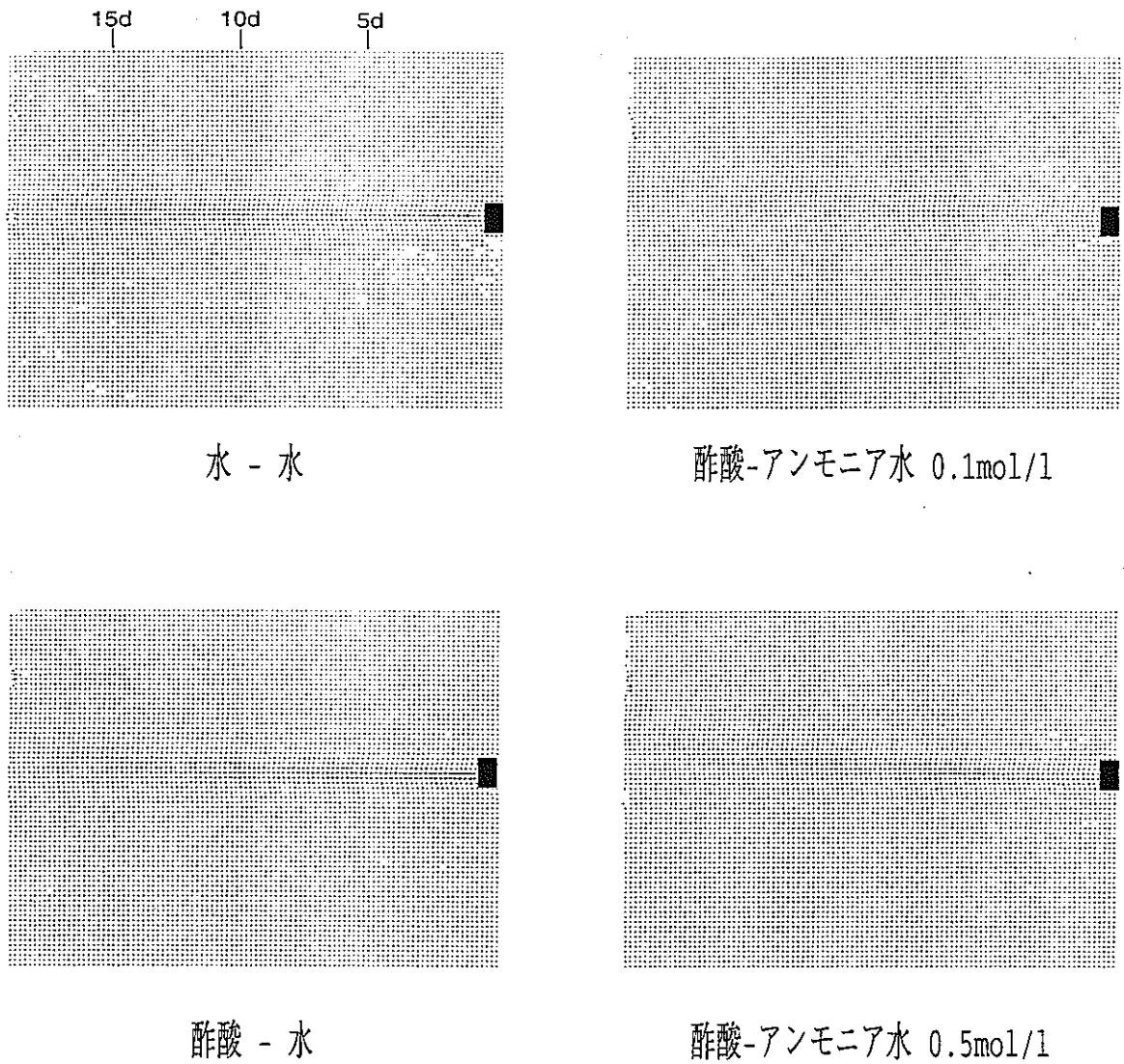


Fig.3.3: Velocity Distribution (nozzle velocity = 15cm/sec)

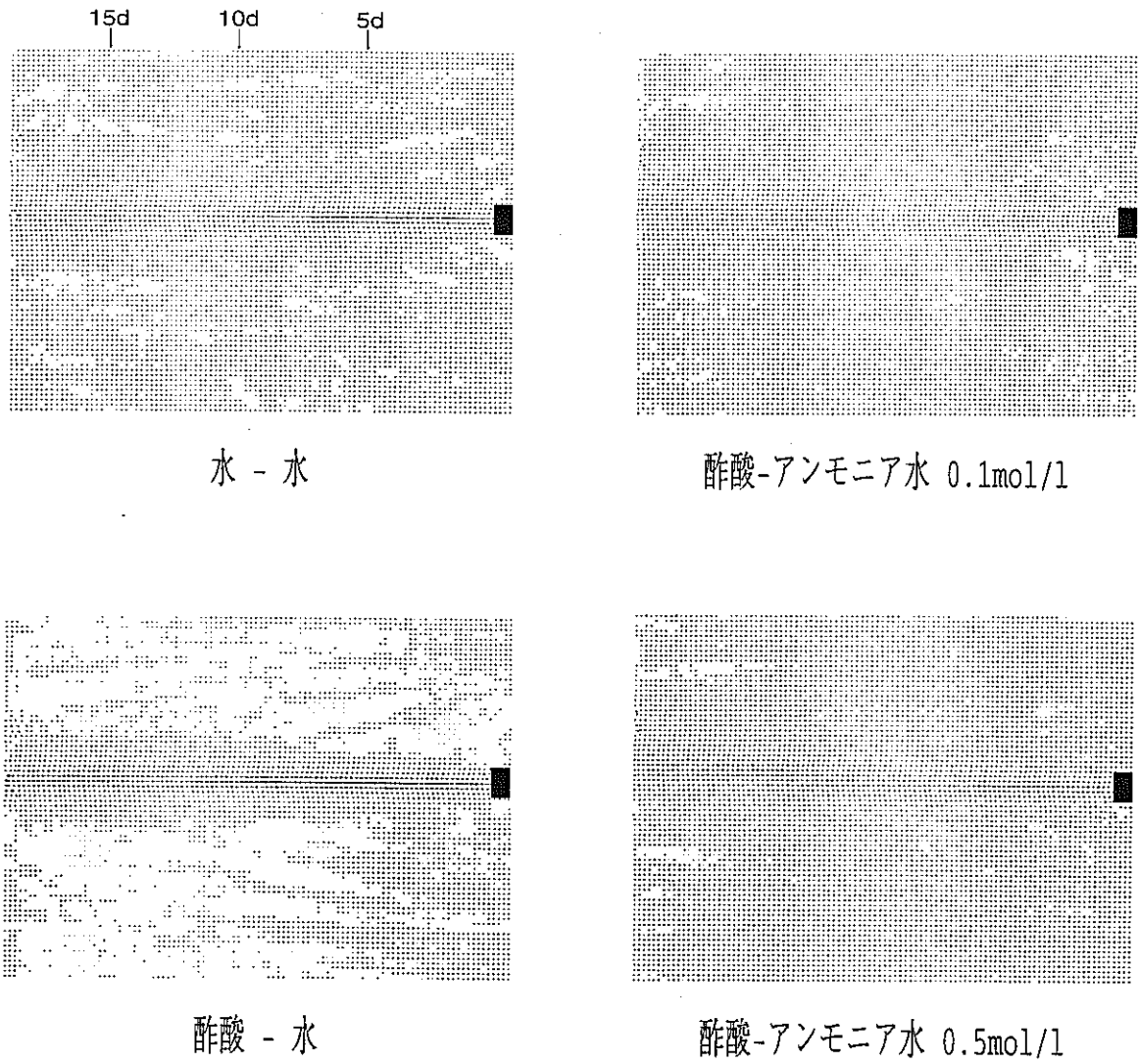
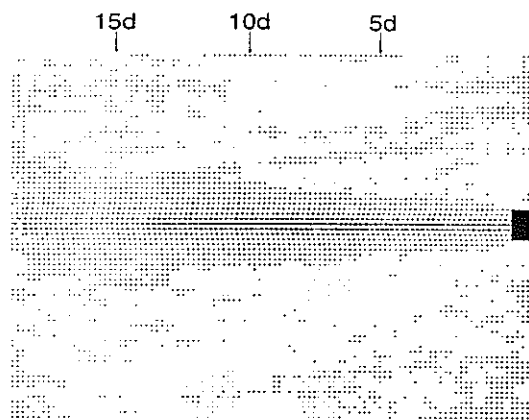


Fig.3.4: Velocity Distribution (nozzle velocity = 20cm/sec)



水 - 水



酢酸-アンモニア水 0.1mol/l

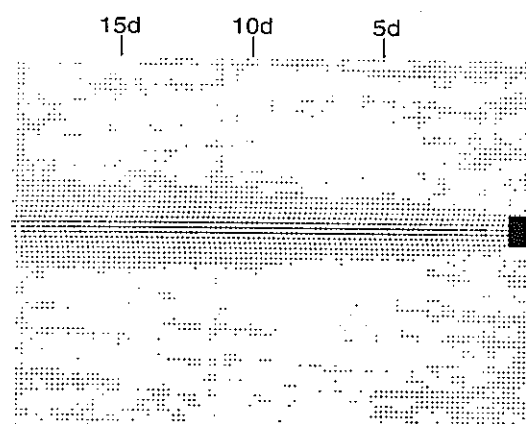


酢酸 - 水



酢酸-アンモニア水 0.5mol/l

Fig.3.5: Velocity Distribution (nozzle velocity = 30cm/sec)



水 - 水



酢酸-アンモニア水 0.1mol/l



酢酸 - 水



酢酸-アンモニア水 0.5mol/l

Fig.3.6: Velocity Distribution (nozzle velocity = 35cm/sec)

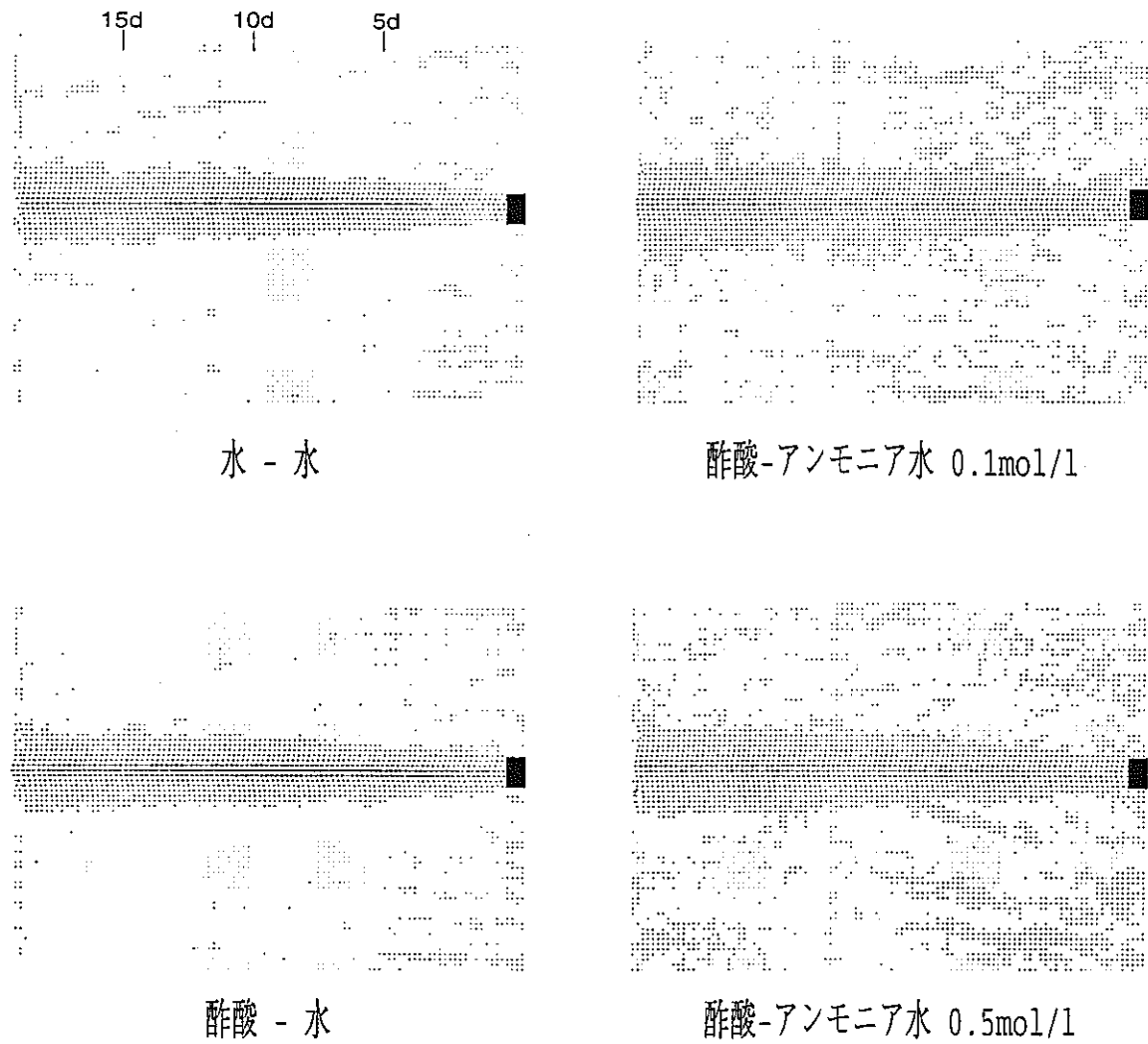


Fig.3.7: Velocity Distribution (nozzle velocity = 40cm/sec)

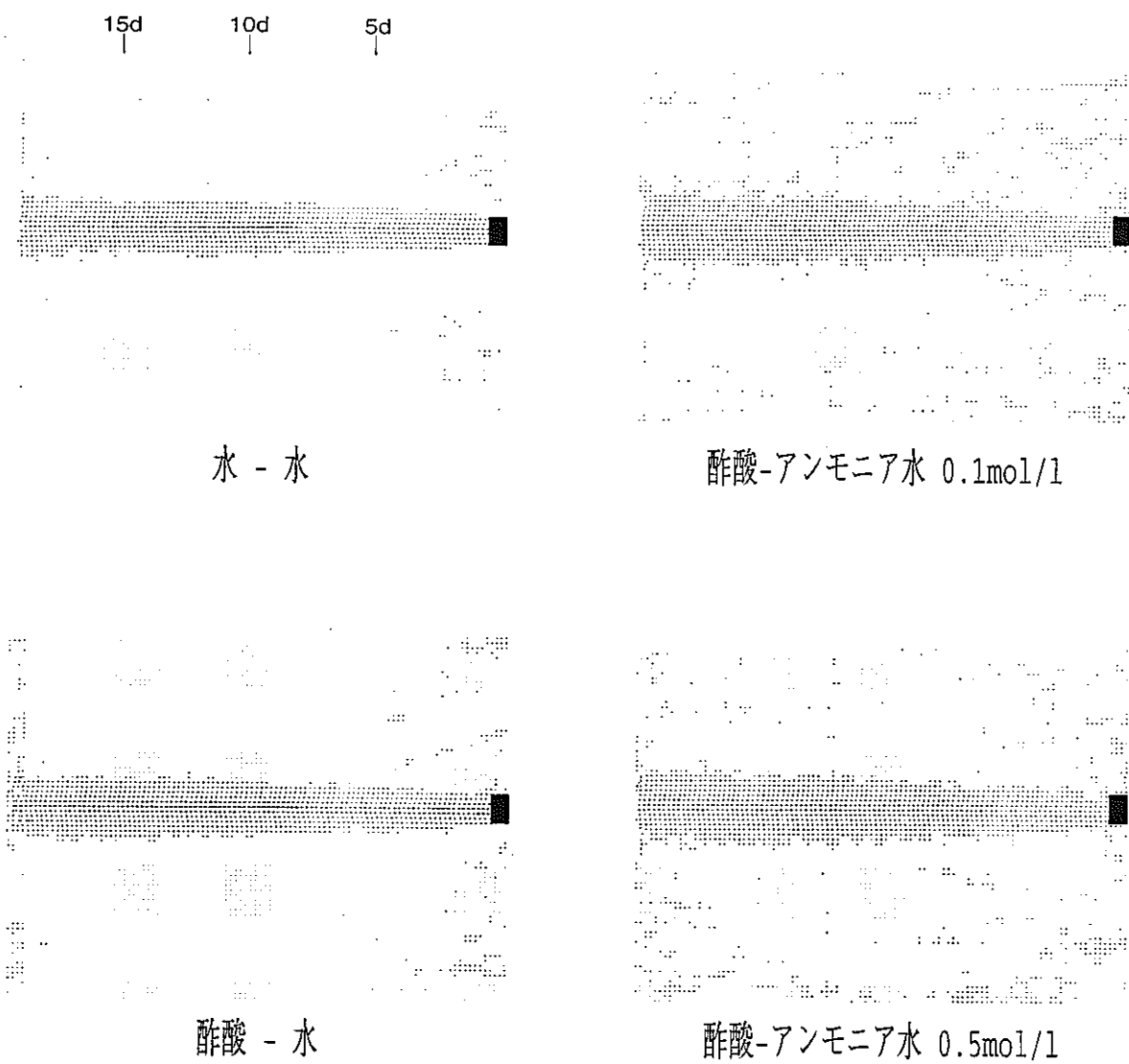


Fig.3.8: Velocity Distribution (nozzle velocity = 45cm/sec)

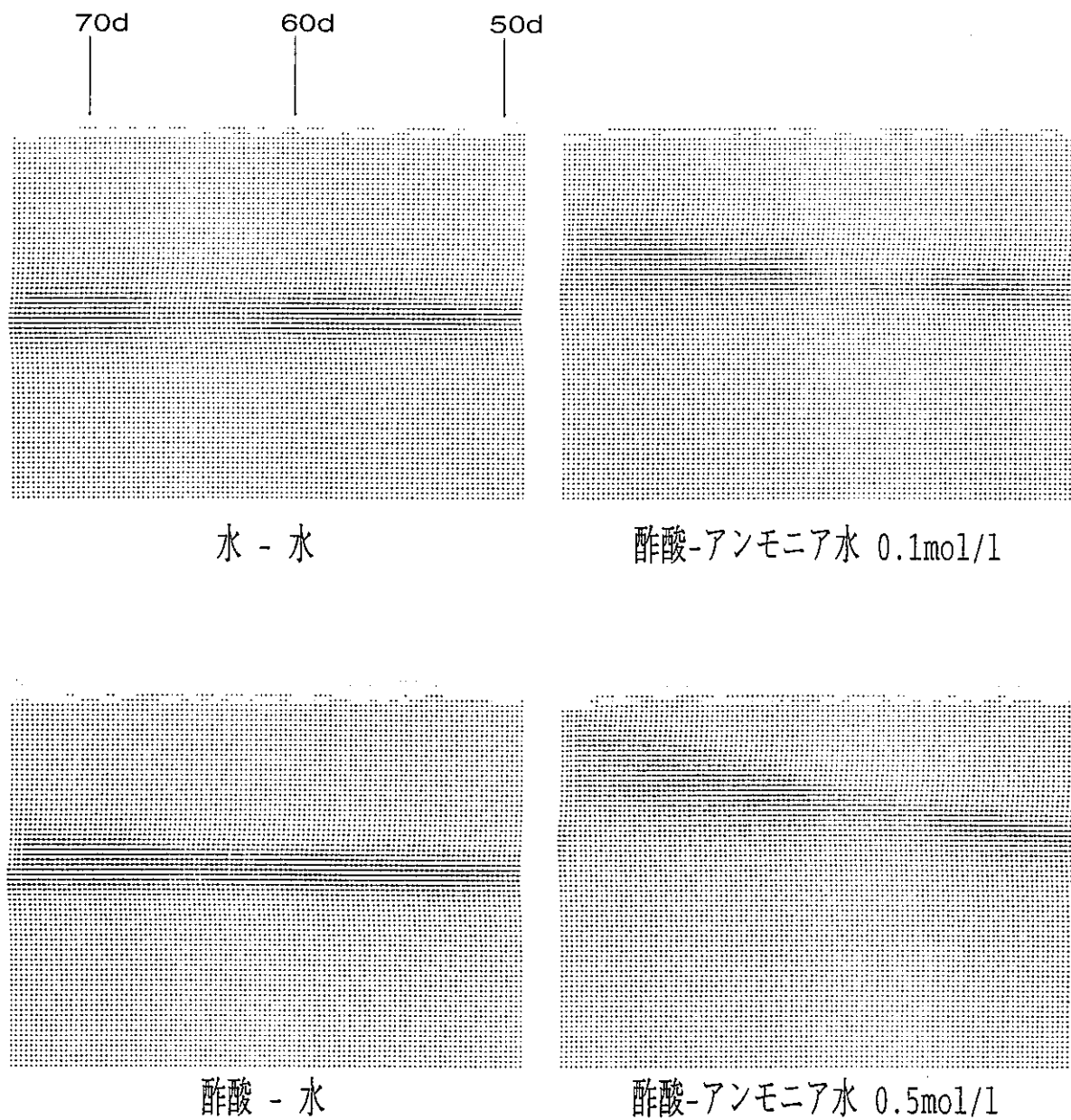


Fig.3.9: Velocity Distribution (nozzle velocity = 30 cm/sec)

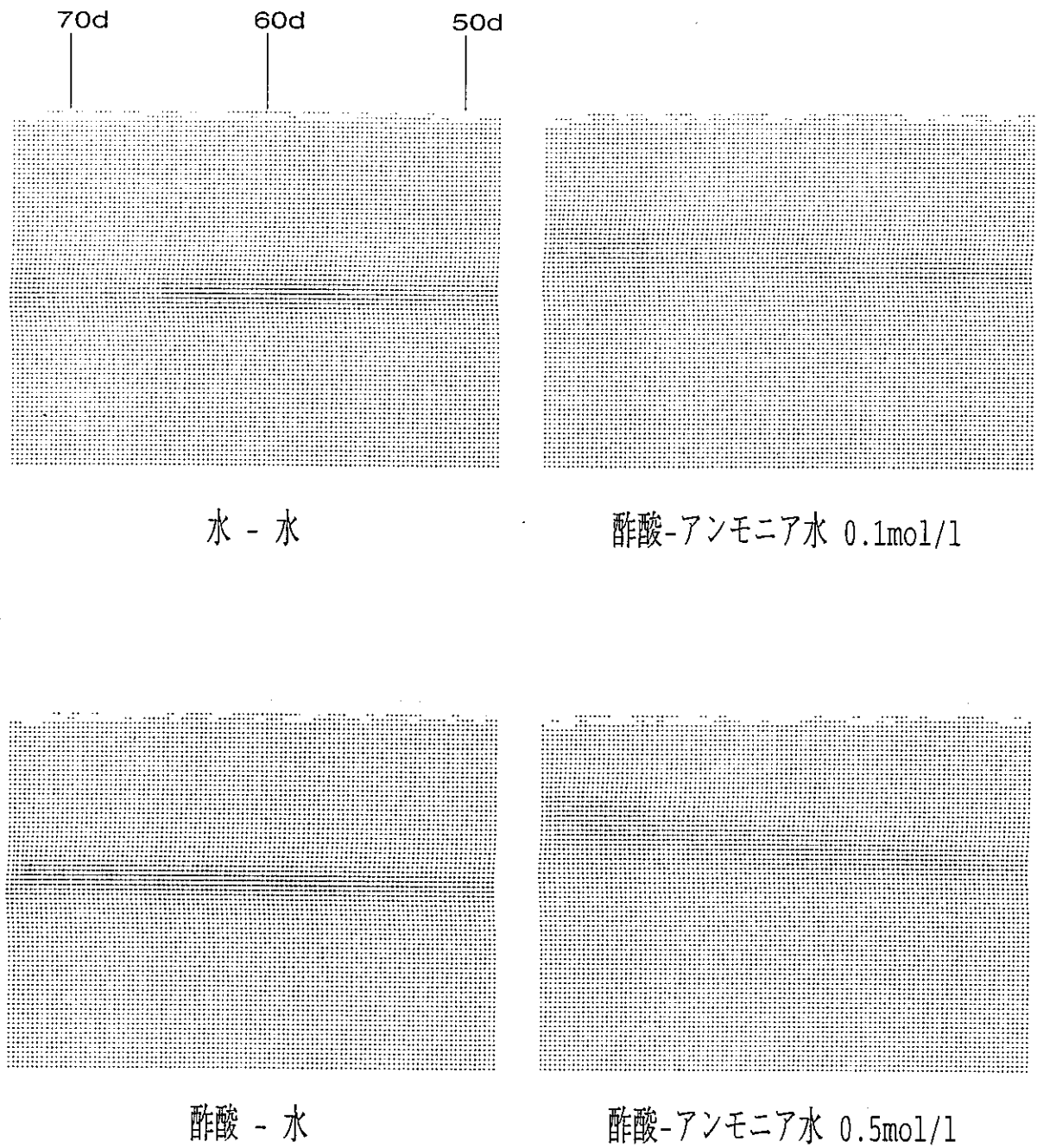


Fig.3.10: Velocity Distribution (nozzle velocity = 35 cm/sec)

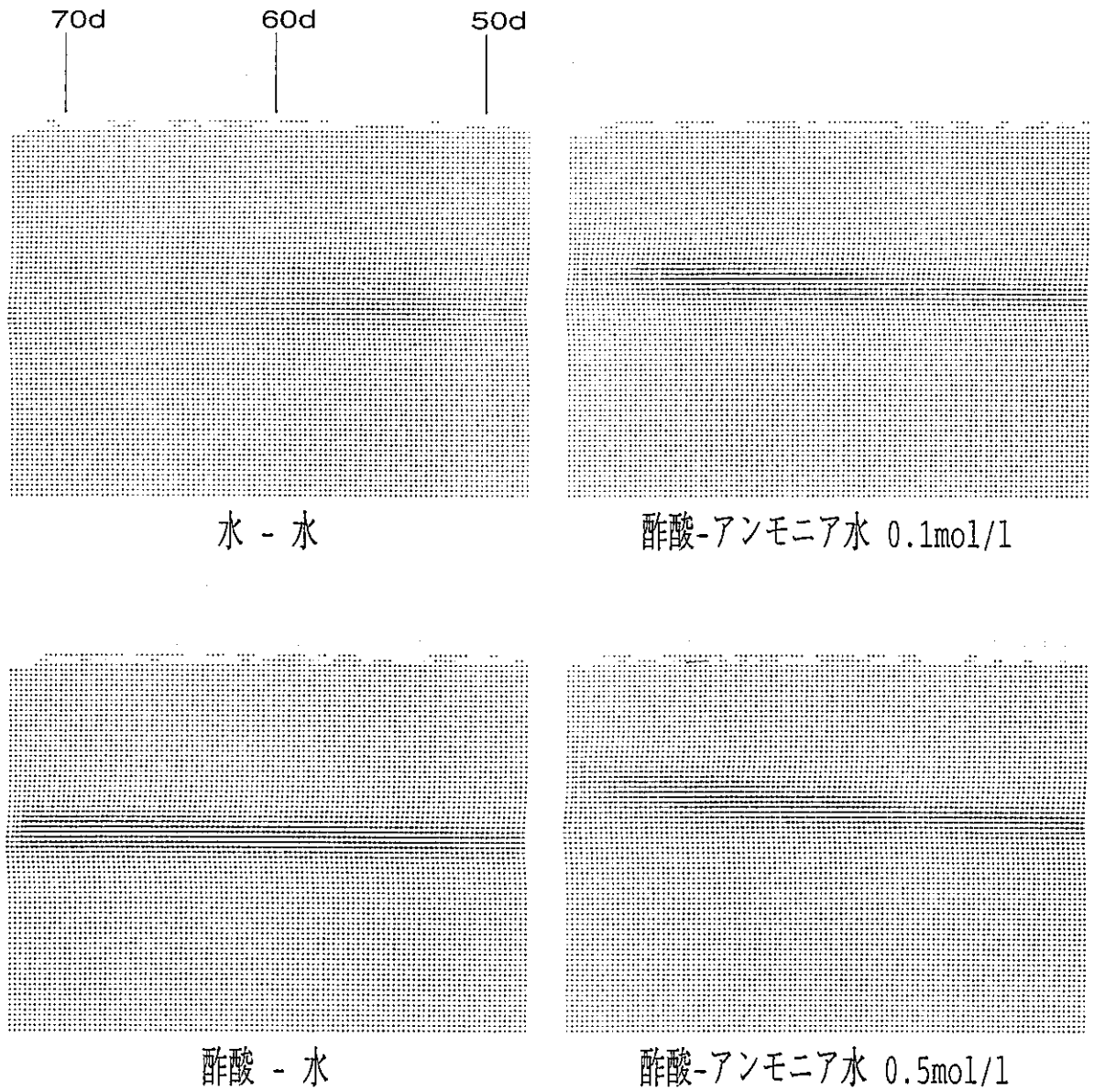


Fig.3.11: Velocity Distribution (nozzle velocity = 40cm/sec)

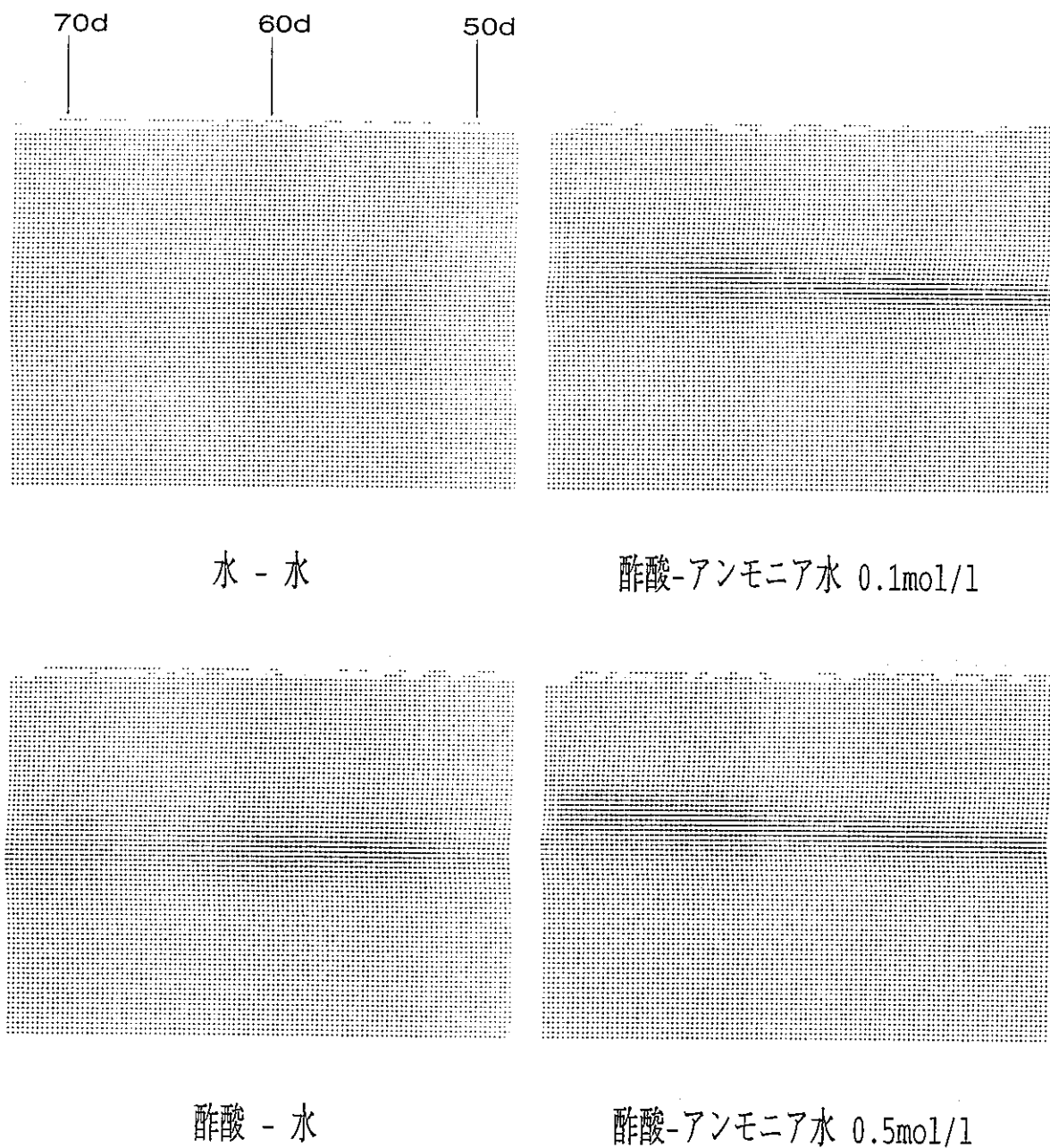


Fig.3.12: Velocity Distribution (nozzle velocity = 45cm/sec)

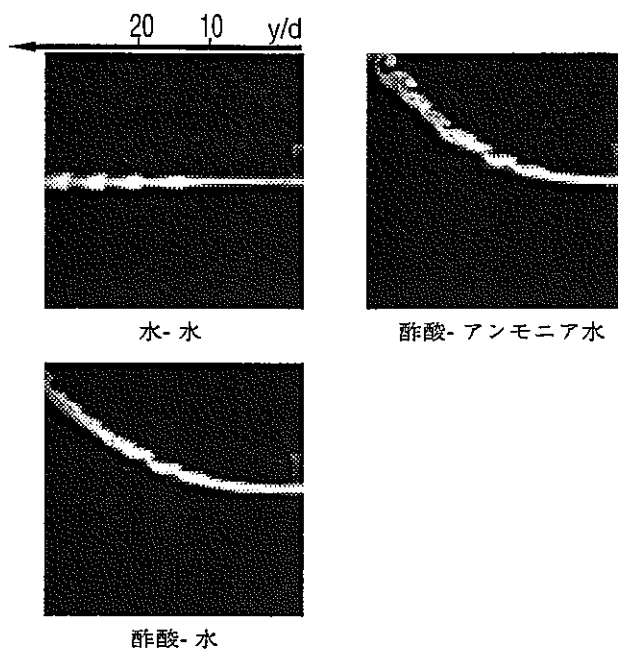


Fig.3.13: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 5 cm/sec)

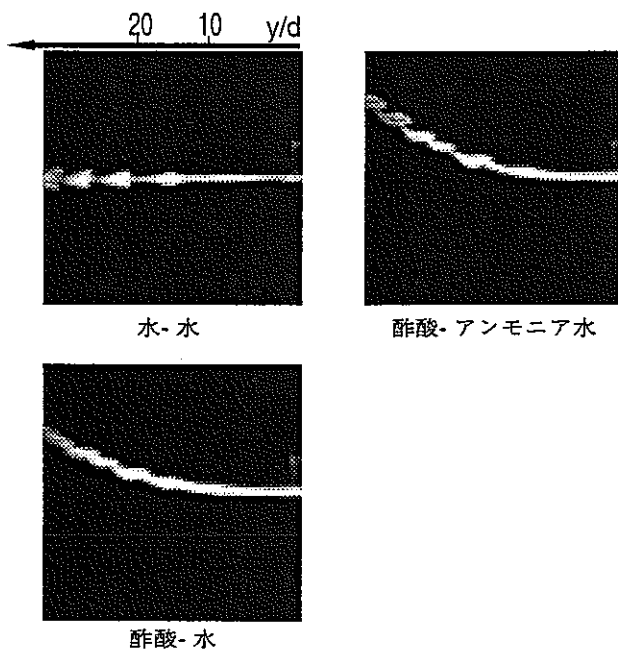


Fig.3.14: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 10 cm/sec)

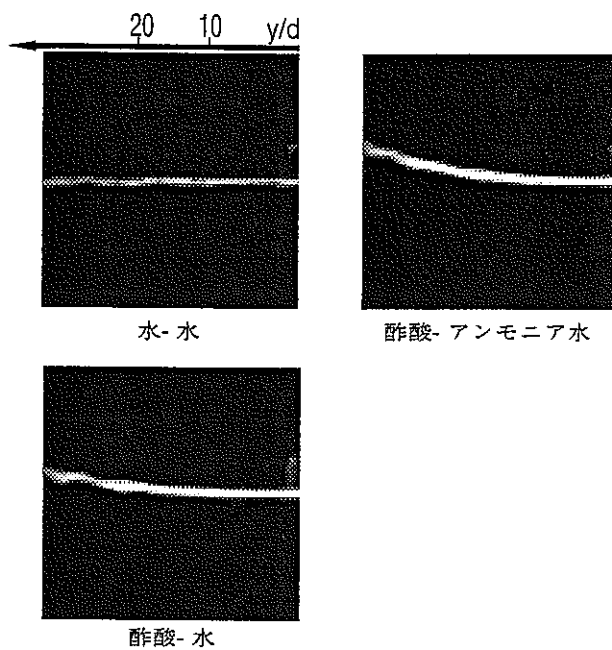


Fig.3.15: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 15cm/sec)

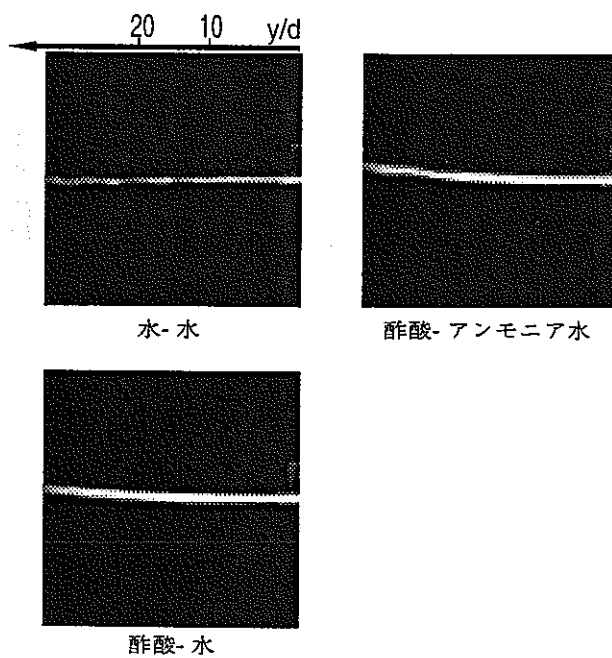


Fig.3.16: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 20cm/sec)

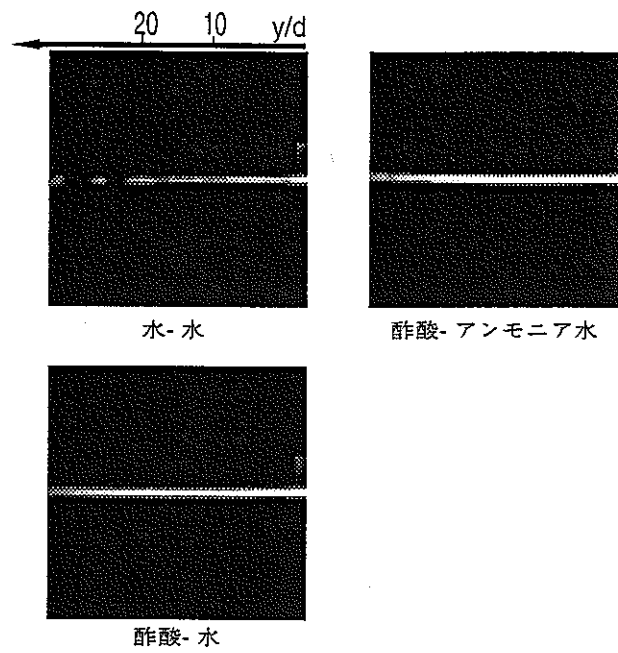


Fig.3.17: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 30cm/sec)

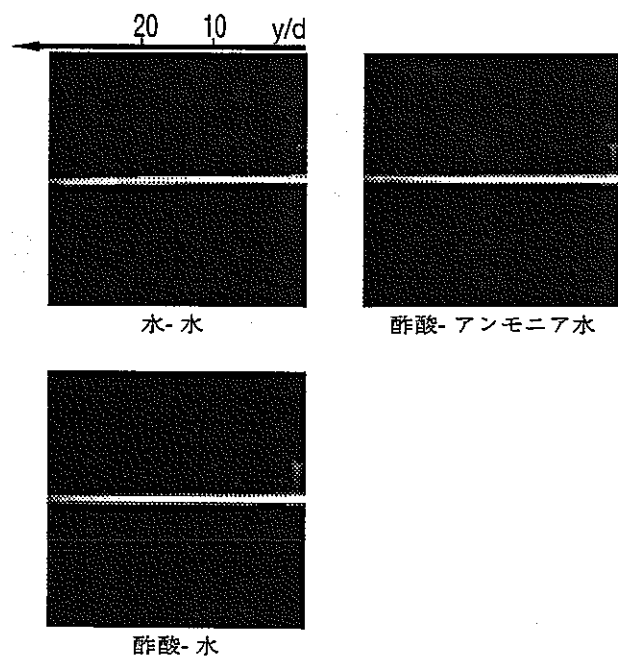


Fig.3.18: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 35cm/sec)

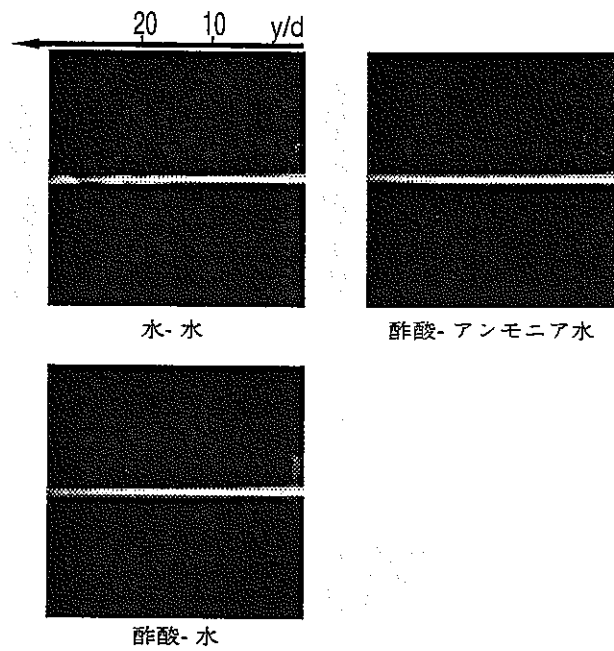


Fig.3.19: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 40cm/sec)

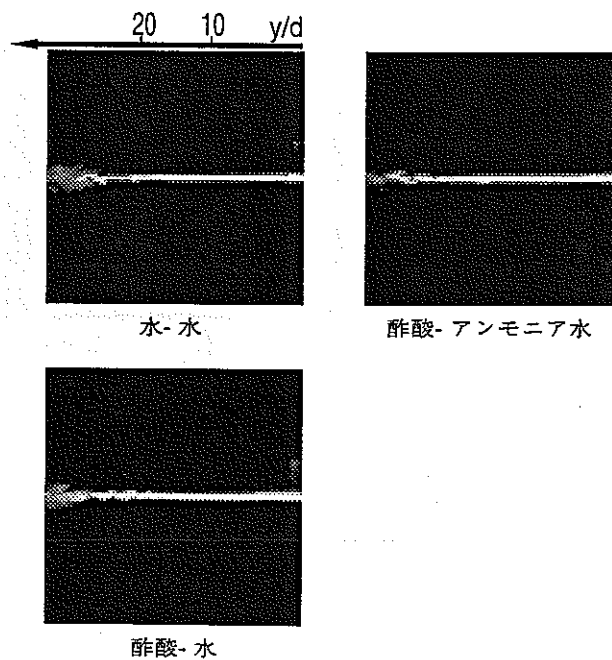


Fig.3.20: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 45cm/sec)

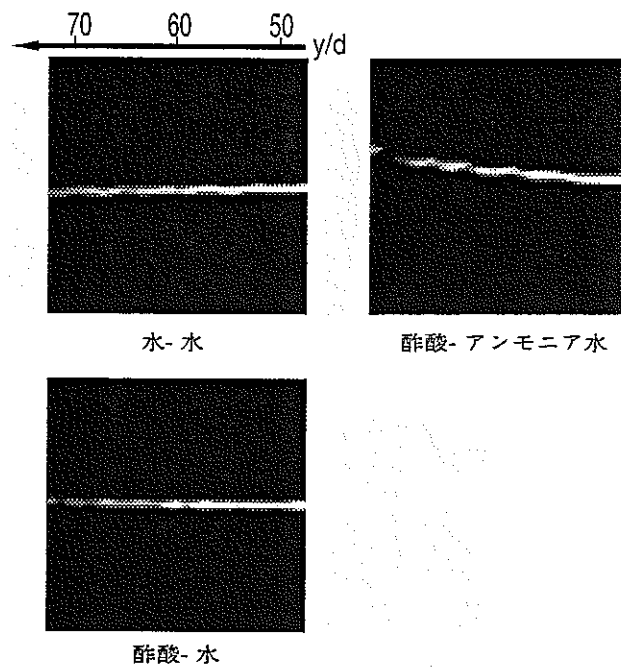


Fig.3.21: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 30 cm/sec)

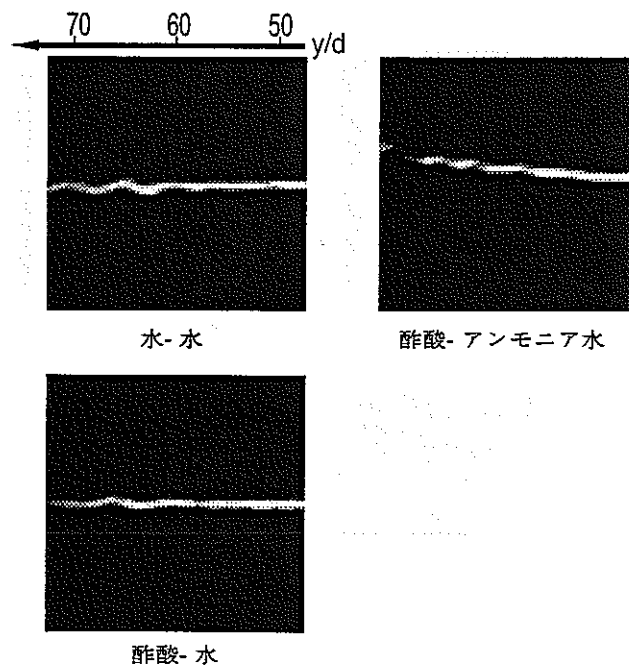


Fig.3.22: Diffusion Distribution (nozzle Velocity = 35 cm/sec)

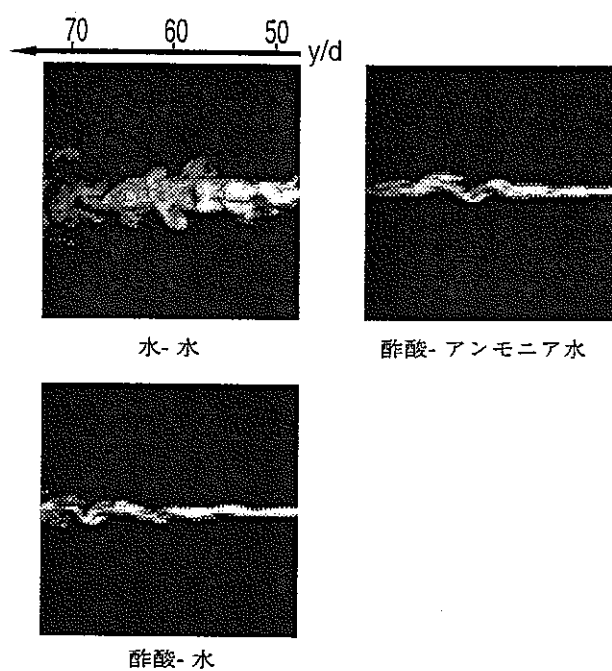


Fig.3.23: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 40cm/sec)

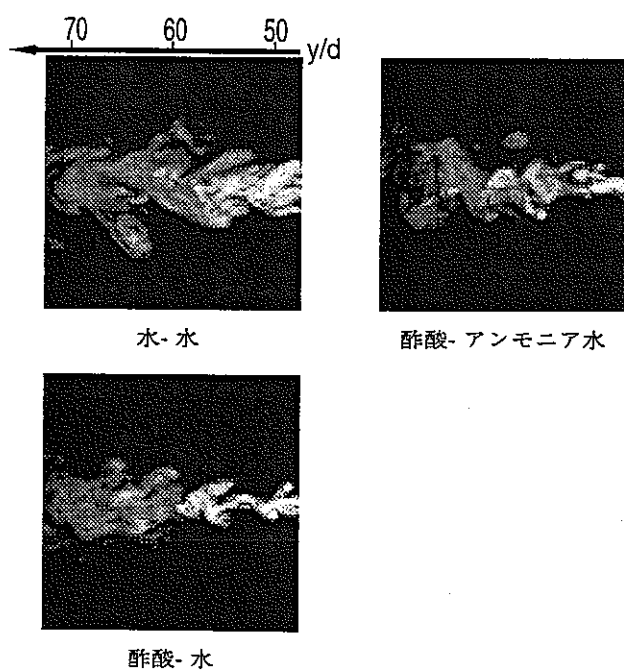


Fig.3.24: Diffusion Distribution (nozzle velocity = 45cm/sec)

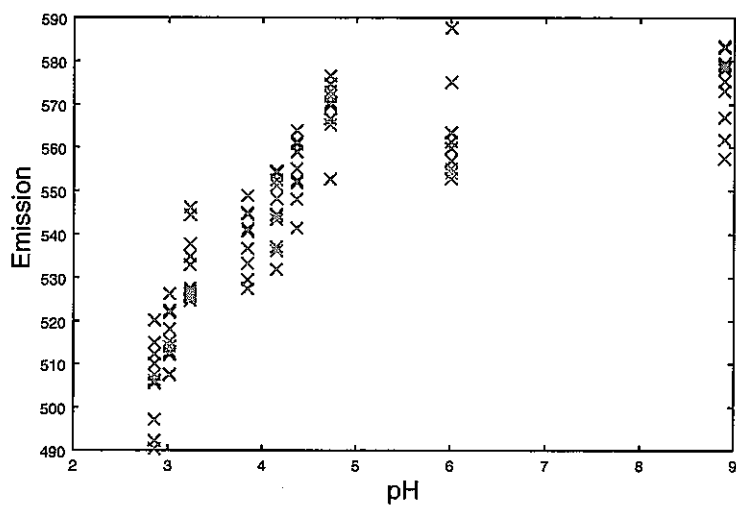


Fig.3.25: RhodamineB's Emission plot versus pH

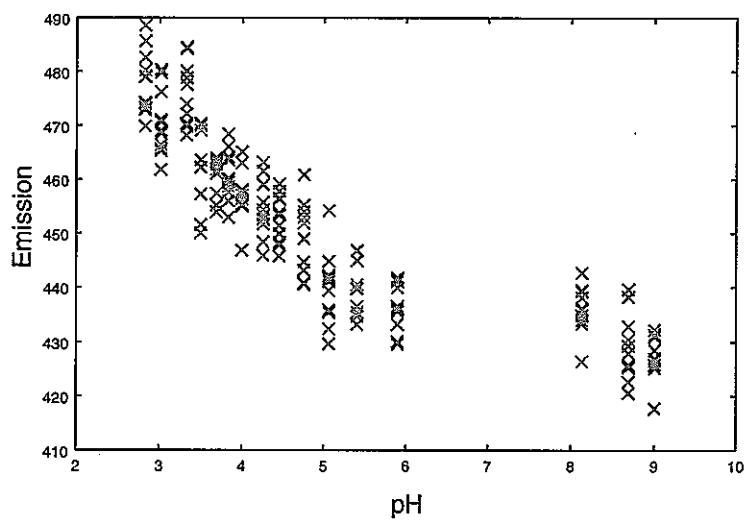


Fig.3.26: Rhodamine6G's Emission plot versus pH

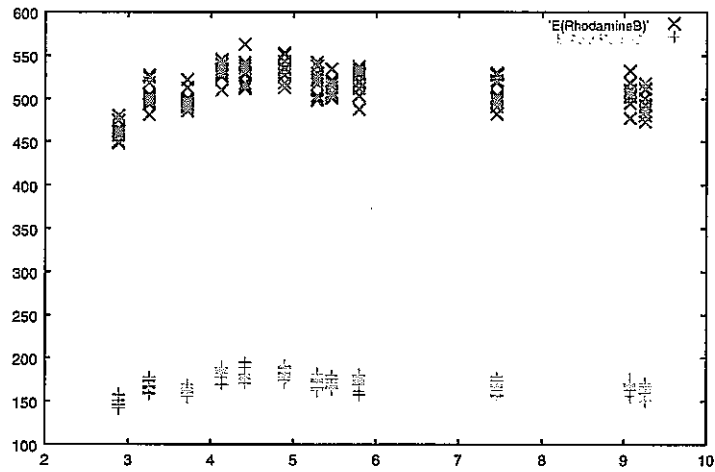


Fig.3.27: Emission plot versus pH

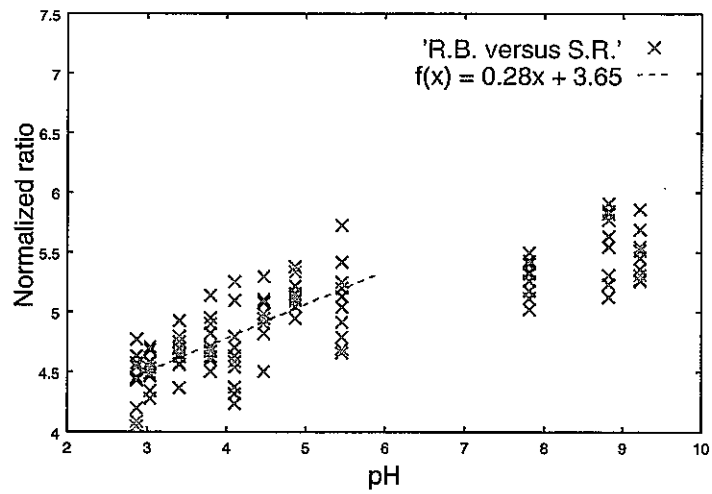


Fig.3.28: Calibration plot of normalized fluorescence ratios versus pH

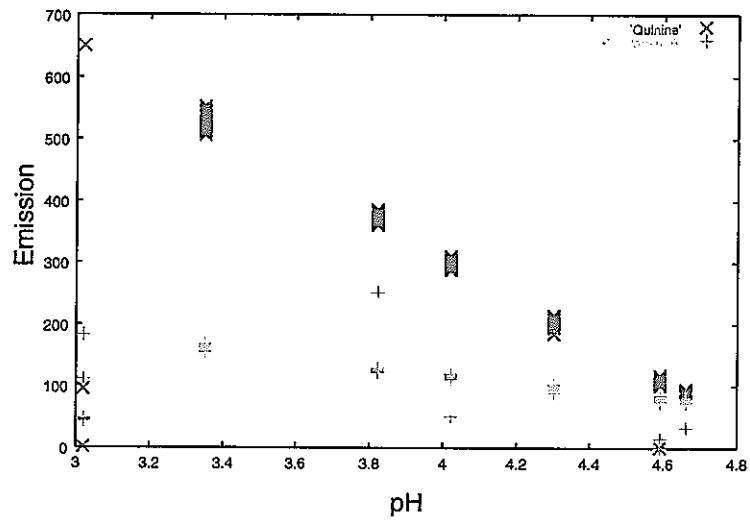


Fig.3.29: Emission plot versus pH

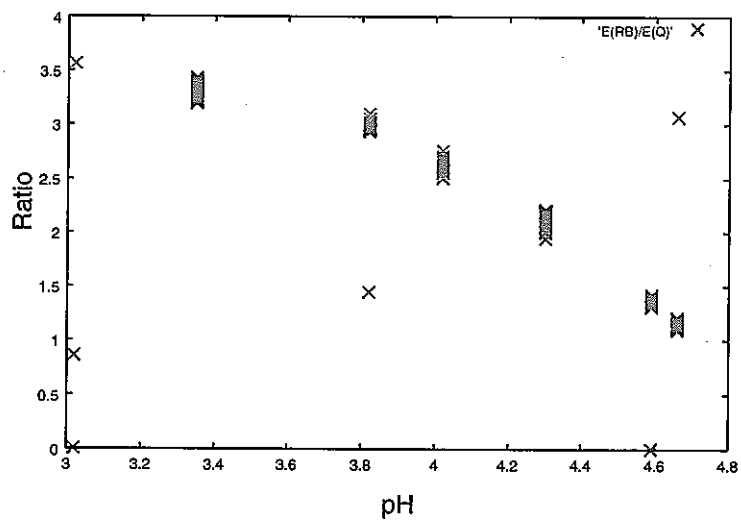


Fig.3.30: Calibration plot of normalized fluorescence ratios versus pH

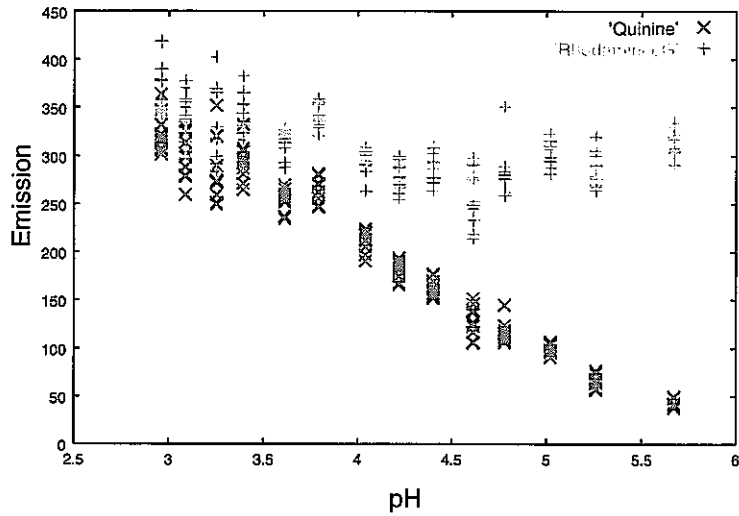


Fig.3.31: Emission plot versus pH

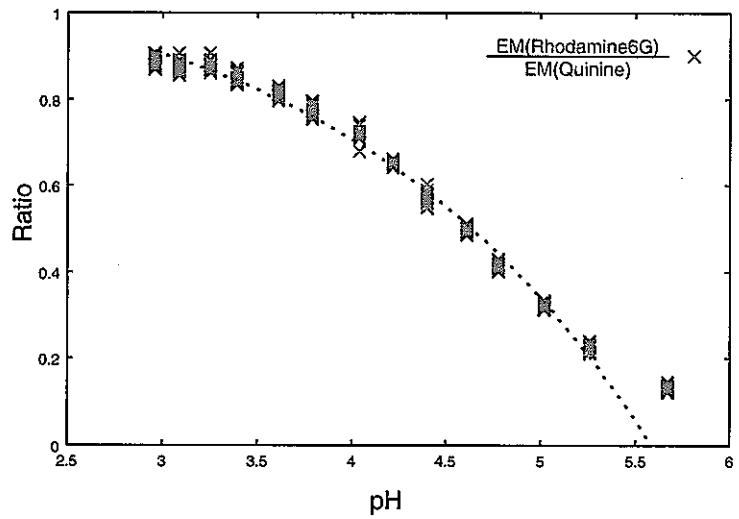


Fig.3.32: Calibration plot of normalized fluorescence ratios versus pH

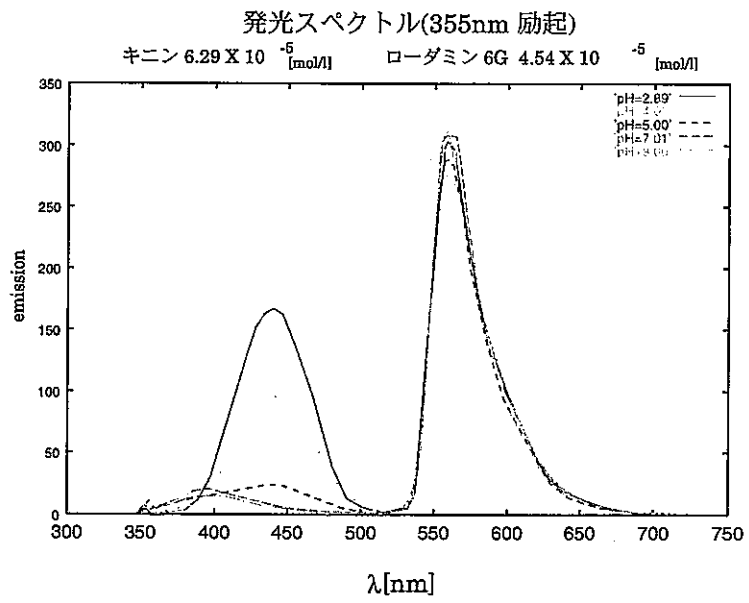


Fig.3.33: Quinine, Rhodamine 6G's Emission versus pH

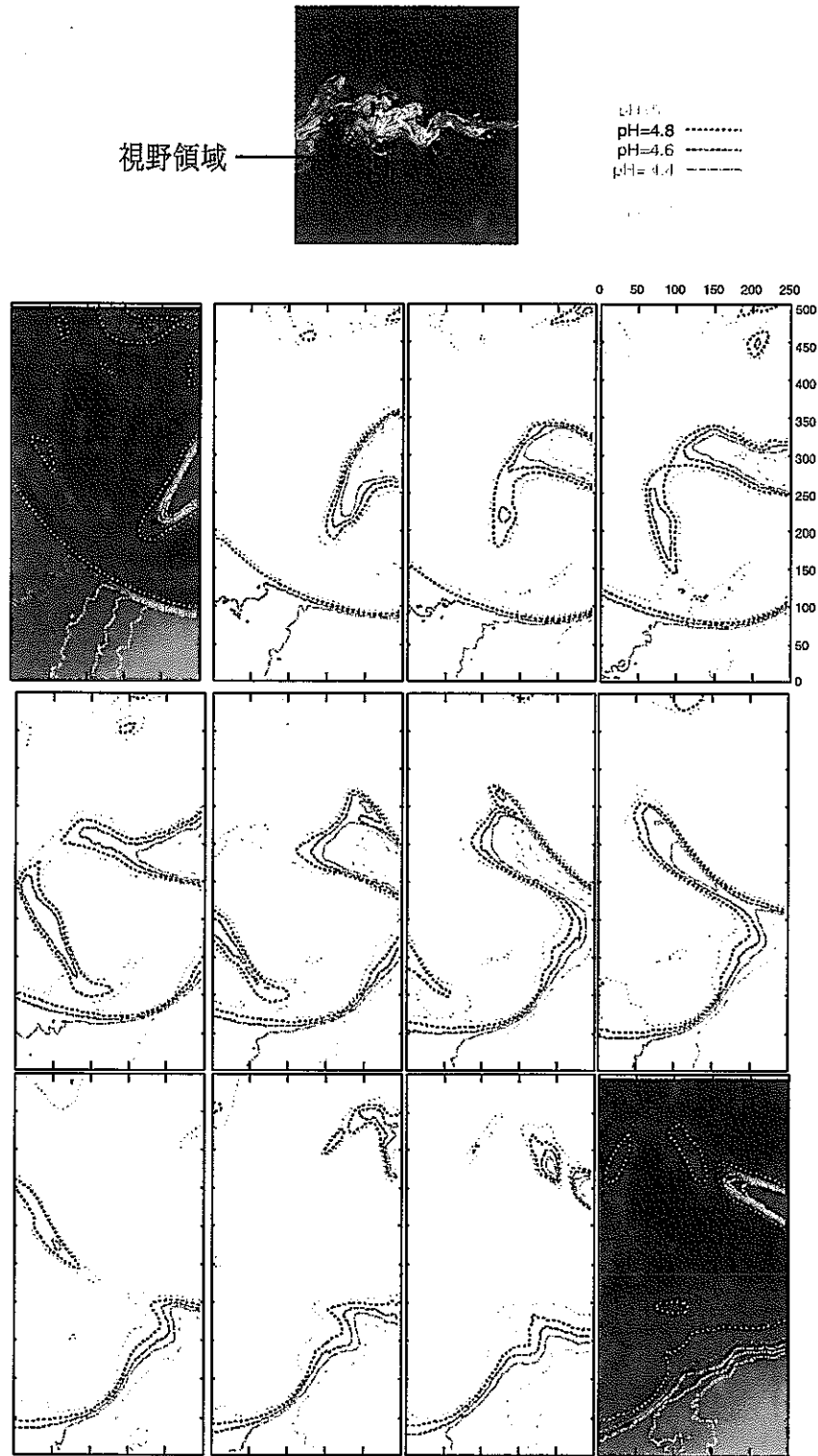


Fig.3.34: pH Distribution

第 4 章

考察

4.1 流速分布と拡散に関する考察

4.1.1 誤差評価について

PIV で求めた平均流速分布図は、150 枚 (5 秒間) の瞬間流速分布を平均したものである。このサンプル数は、得られた流速から乱流エネルギー等を求めるのには信頼性の欠ける量である。本実験でのサンプル数が少ないのは、主流溶液の濃度変化を押えるために噴流溶液の流す量をなるべく少なくしたからである。

また、PIV のアルゴリズムには濃度相関法を用いたが、最近盛んにアルゴリズム開発が行われており、得られた画像により有用なアルゴリズムを適用することで過誤ベクトルを取り除けると考えられる。

SELIF を用いた噴流の拡散測定実験では、レーザーシートのばらつきによる誤差が最も大きいと考えられる。Figure 4.9 は 300 枚の SELIF 画像の平均輝度をとったものであるが、瞬間画像では気づかないレーザーシートのばらつきがはっきりみてとれる (図中で斜めのスジ)。しかしながら、本実験で用いたような大まかな拡散を測定するには十分有効である。またレーザーシートのばらつきに影響受けずに測定するためには、DELIF を用いればよい。

4.1.2 二種二層流噴流に関する考察

PIV による流速分布結果と Single Emission LIF の結果から、溶液の違いにおける拡散の違いについて以下の二つのことが挙げられる。

低流速条件結果について

PIV 実験結果 Fig 3.1~3.4 において浮力の効果がみてとれる。これは、Single Emission LIF 実験 Figure 3.13~3.16 からも同様の結果が得られている。これが密度差の違いによるものであることは、噴流溶液のアンモニア水濃度を変化させた場合の違いからも明らかである。浮力の違いを分かりやすくみるため、噴流流速 5~20cm/sec のときの噴流出口から 5d, 10d, 15d の距離における平均流速分布を示す (Figure 4.1~4.4。 $x/d \leq 0$ の領域がテストセクション上部方向を示しており、噴流が上部にシフト

している。また流速が遅いほどこの浮力の影響が大きくなり噴流が上部に移行することからも、この流速条件下では、密度差が支配的であるといえる。

高流速条件結果について

PIV 実験結果 Fig 3.5~3.8および Single Emission LIF 実験 Figure 3.17~3.20から、噴流流速が比較的速いときの下流領域では水-水以外のような主流と噴流の溶液が異なる場合において拡散が小さくなっている。ノズルからの距離による平均流速分布の違いは Figure 4.5 ~ 4.8のようになっている。噴流流速 40,45cm/sec の条件下で、溶液の違いによる拡散の変化が顕著に見られる。これは、Single Emission LIF の結果でも同じであった。(レーザーシートは PIV 実験と同じく、噴流を流れ方向に並行に切っている。)

この現象が溶液の違いによるものかどうか調べるため、追実験として酢酸-酢酸の場合についても実験を行ったが、水-水と同程度の拡散(水-酢酸と酢酸-アンモニア水よりも拡散は大きい)という結果が得られた。よって水-水と酢酸-酢酸の場合すなわち主流と噴流が同じ溶液のときには拡散度合は同程度であるが、酢酸-水と酢酸-アンモニア水の場合は明らかに拡散がそれと比べて小さい。これは流速分布の結果と同様に噴流と主流の溶液が異なるとき、拡散が抑制されていることを示している。

本実験のような Reynolds 数の小さい領域では、二液二層流の混合過程において化学反応の影響よりも溶液の違いが支配的だと考えられる。またこのような拡散抑制効果は高分子の場合などで報告されているが、本実験における拡散抑制原因については溶液のどの性質によるものか(イオン結合等の問題)さらに実験が必要である。

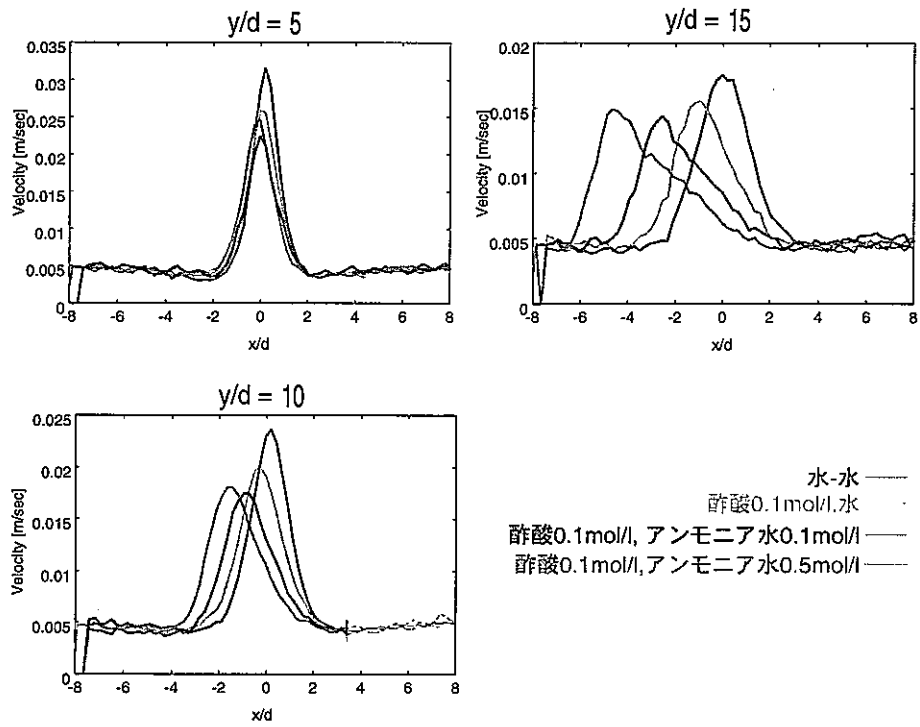


Fig.4.1: Velocity Distribution (nozzle velocity = 5 cm/sec)

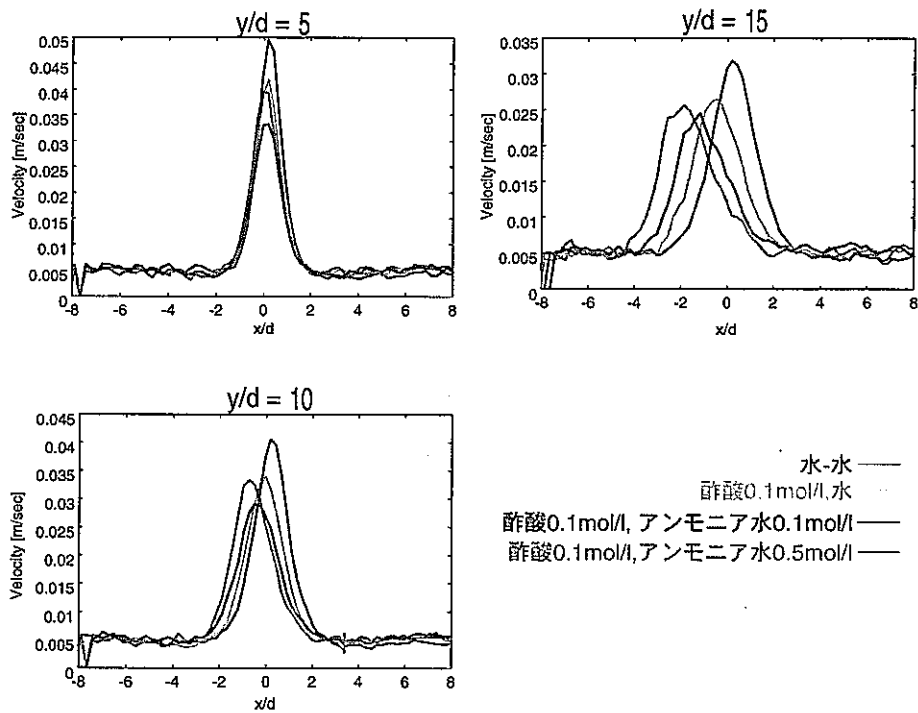


Fig.4.2: Velocity Distribution (nozzle velocity = 10 cm/sec)

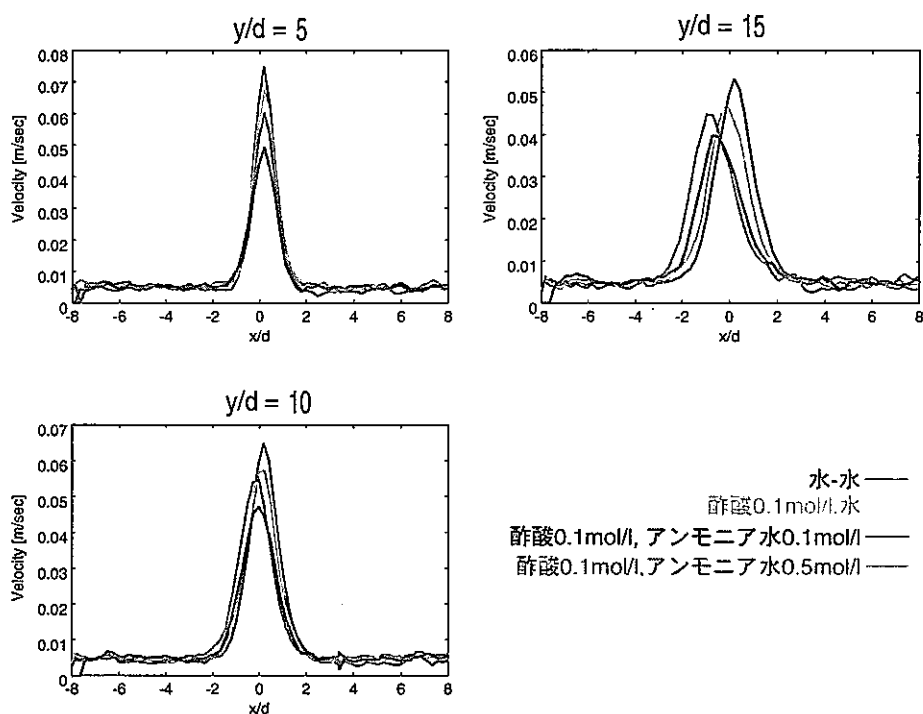


Fig.4.3: Velocity Distribution (nozzle velocity = 15 cm/sec)

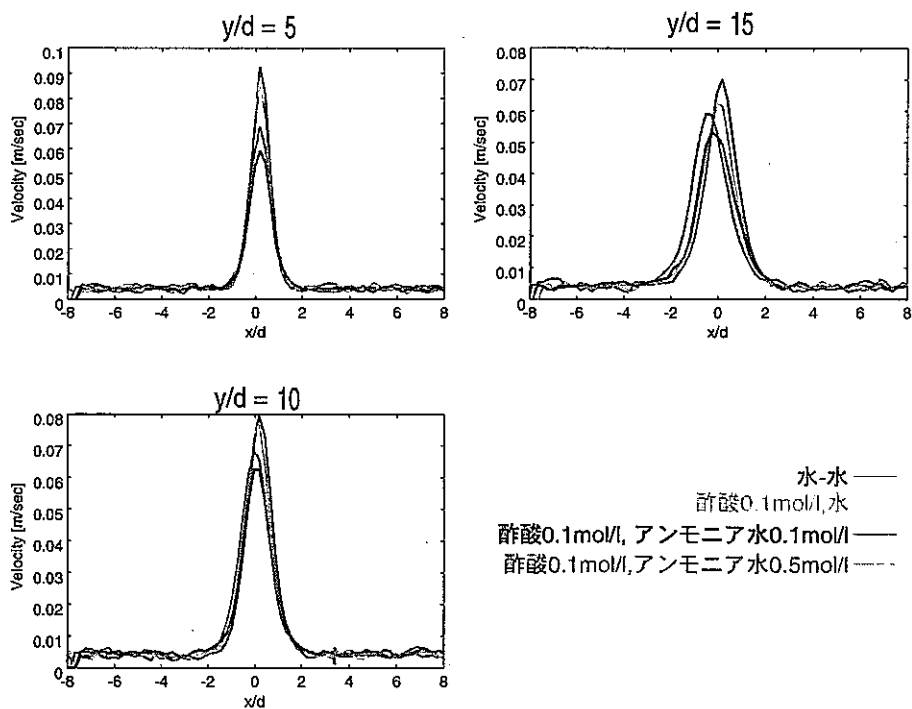


Fig.4.4: Velocity Distribution (nozzle velocity = 20 cm/sec)

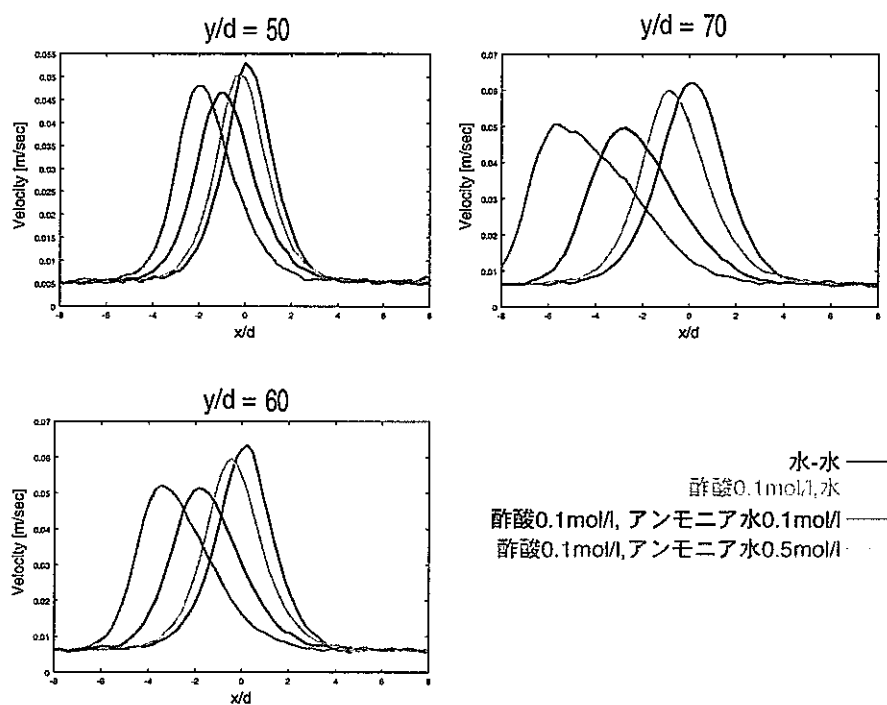


Fig.4.5: Velocity Distribution (nozzle velocity = 30 cm/sec)

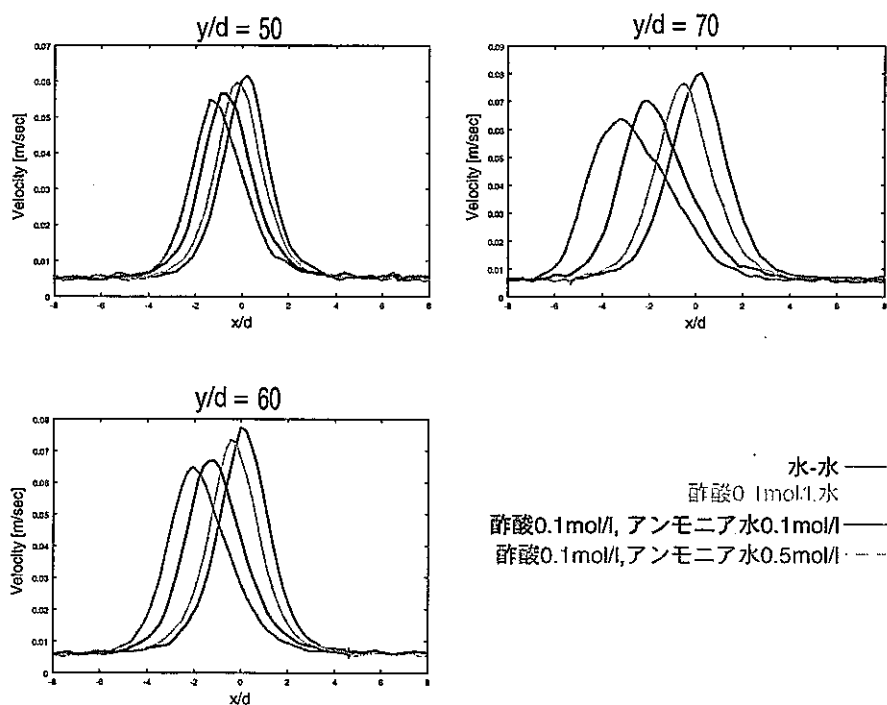


Fig.4.6: Velocity Distribution (nozzle velocity = 35 cm/sec)

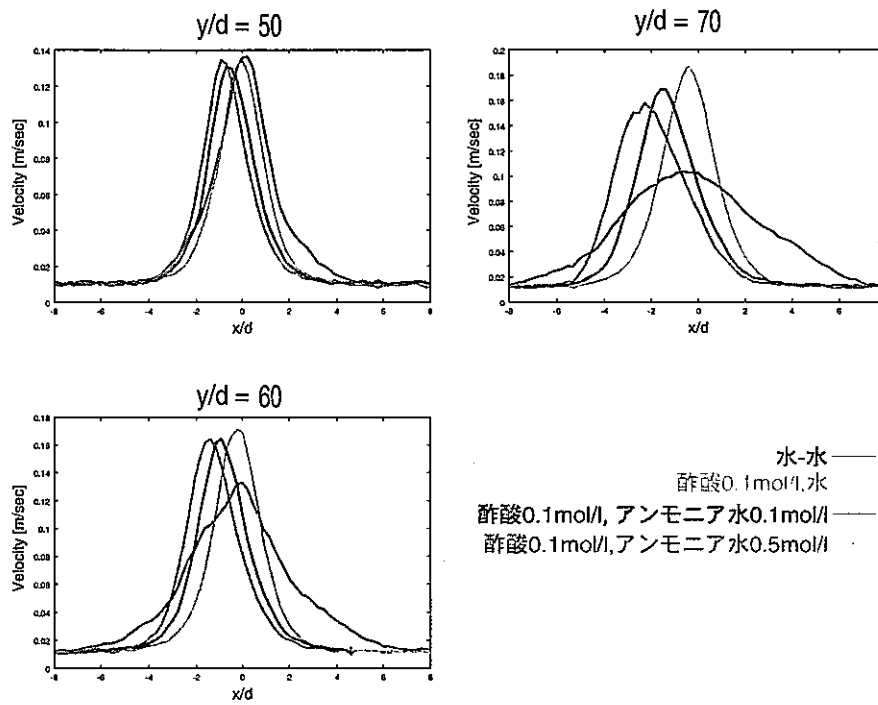


Fig.4.7: Velocity Distribution (nozzle velocity = 40 cm/sec)

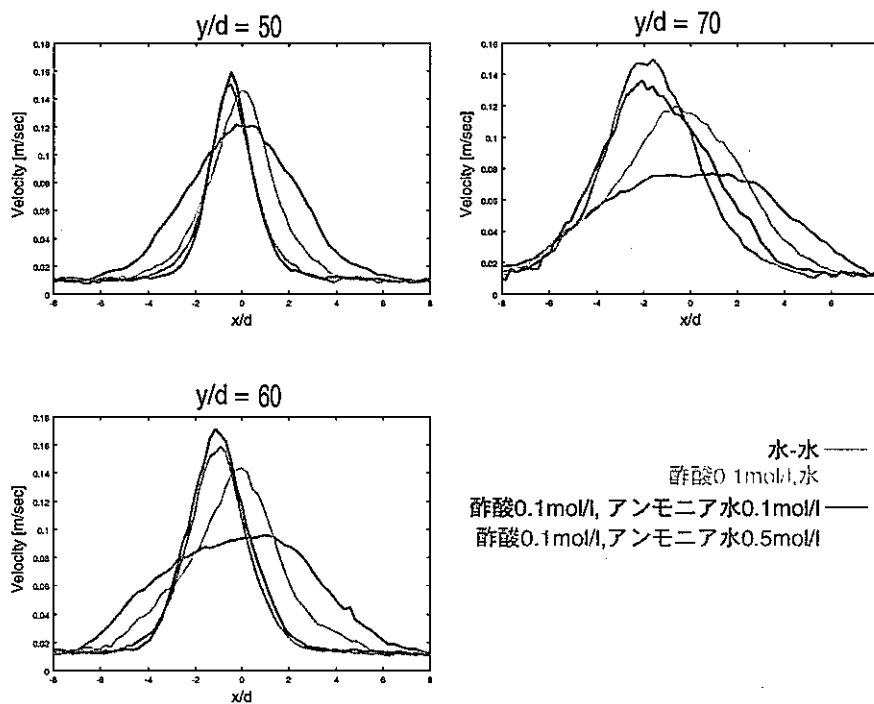


Fig.4.8: Velocity Distribution (nozzle velocity = 45 cm/sec)

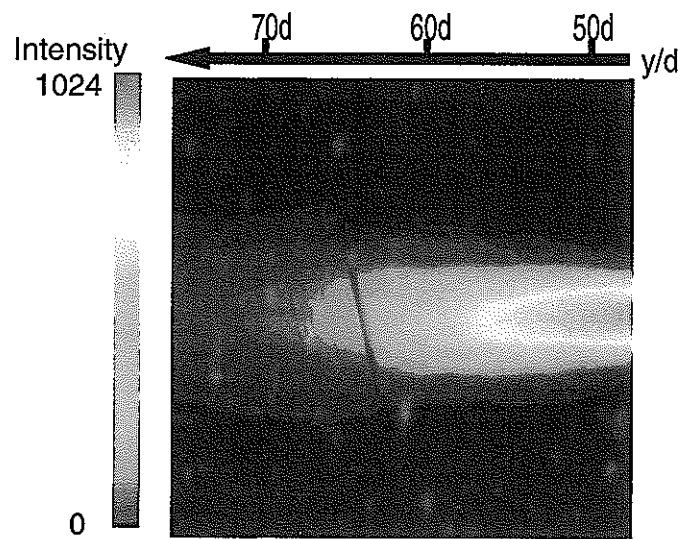


Fig.4.9: Averaged Image of Single Emission LIF

4.2 DELIF 手法に関する考察

4.2.1 誤差評価

本研究における DELIF 手法の誤差としては、以下のことが考えられる。

- 輝度比を pH 値に変換するときの誤差
較正曲線上で pH0.1 程度の差は特定できるが、それ以上の精度を必要とする場合には次の応用で述べるような改善方法がある。
- 較正実験と本実験とでの測定誤差
較正実験と本実験はできるだけ同じ条件 (同じ染料濃度、同レンズ等) で行ったが、それでも幾分かの発光量の変化があると考えられる。この誤差を減らすための方法として、本実験で使用した染料溶液を用いて再較正実験を行うことが考えられる。
- ステレオビューワによる誤差
ステレオビューワで撮影した左右の画像を位置較正する際に誤差を含んでいる。この視差較正において誤差を含めば、当然染料の発光量比にも誤差を生じる。これは、次の応用手法においても述べるように必要空間解像度に応じて測定領域を変えることで軽減される。
また、ステレオで撮影することにおける誤差も考えられる。本研究では、レーザーシートは十分薄く、かつステレオビューワのミラー角度に対して十分離れて撮影を行うことから影響がないとしたものの実際同じ位置だとして撮影した左右の画像上の輝度は、Fig. 4.10 のように異なっている。図中において、計測点における輝度は積分量 1 と積分量 2 であるが、この二つは明らかに等しくない。この誤差はシートを薄くするなど小さくできるが、カメラ 2 台で撮影することで解消することが望ましい。

4.2.2 DELIF 応用方法

本研究での DELIF 手法の空間・時間分解能を改善する方法として、以下の事が挙げられる。

● 広範囲の pH 領域測定

本実験では pH の低い拡散領域場に応用したが、DELIF による局所的な pH 分布は、染料濃度とレンズ等を変更することで、測定したい領域や pH 領域を精度を上げて計測できる。例えば Figure 3.32 において pH3.5~pH5.5 では精度良く計測できるが、pH3.5 以下ではもともとの発光量が同程度のため比をとっても差が少ないし、pH5.5 以上では CCD カメラで輝度の低い部分 (1024 階調中の 50 以下) であるためノイズに埋もれている。しかしながら、測定したい pH 領域を Calibration カーブの中央付近にするように染料濃度、絞りを変化させれば計測したい pH 領域を測定できる (絞りだけの变化で較正しておけば、簡易に広い pH 領域を測定できる)。

● 空間分解能

本研究ではステレオビューワの左右の画像の較正をピクセル単位 (1pixel=0.04mm) で行っているため、サブピクセル単位のずれを含んでいると考えられる。この誤差は、必要空間解像度に応じて測定領域を変えること (例えば 1pix=1mm の精度が必要であれば 1pix=0.01mm となるように計測する) で軽減される。また、較正できる領域は 2cm×1cm しかない。これはステレオビューワ内のミラー角度を調整することや、CCD カメラを 2 台用いることで改善される。

● 時間分解能

本実験で用いた染料の励起レーザーはシングルパルスであるが、ダブルパルスのものが存在している。よって Delay Generator でコントロールできること、染料の蛍光は 10^{-9} 秒程度であること、CCD カメラの露光に影響がないことから高時間分解能で計測できると考えられる。

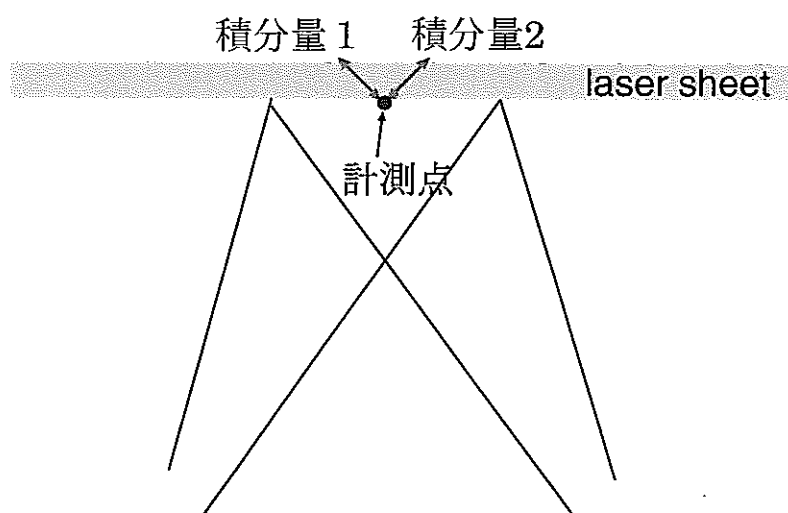


Fig.4.10: Error caused by stereo view

第 5 章

結論

反応乱流場の測定として高分解能で非接触の測定体系の構築を目的として、軸対称噴流の体系において、流速分布測定として PIV(粒子画像流速測定法)を、濃度 (pH) 分布の計測として LIF(レーザー誘起蛍光法)を用いた。

- PIV を流速分布測定と Single Emission LIF を用いた拡散計測では、本実験条件下での二液層流体の混合において、拡散が抑制されているという結果が得られた。
- Dual Emission LIF の開発において新しい染料の組合せを選び、これにより局所的な pH 分布を精度良く測定できることが分かった。

本研究で用いた PIV 及び DELIF の計測体系は、化学反応の乱流拡散に対する影響を調べるのに有効なツールであると考えられる。

第 6 章

今後の課題

1 高 Reynolds 数での拡散評価実験

本実験では Reynolds 数 ≤ 900 であり、既往の研究 (Reynolds 数 2600) と比較できない。拡散がどのように変化するかを Reynolds 数を変化させて実験を行う必要である。低 Reynolds 数では拡散は抑制されているが、高 Reynolds 数では化学反応の乱流拡散に対する影響がでると考えられる。

2 溶液をかえたときの拡散評価実験

低 Reynolds 数における実験では二種二層流の混合過程で拡散が抑制されるという結果が得られたが、溶液のどの物性値が影響を及ぼしているかについて様々な溶液の組合せで実験を行う必要がある。

3 DELIF 手法の応用

考察の章で述べたように本研究における DELIF 手法を改善し、より高分解能で測定する。これにより、化学反応の乱流拡散に対する影響のある実験条件で反応界面の複雑な変化を計測できる。

参考文献

- [1] Koochesfahani, M.H. and Dimotakis, P.E., *J. FluidMech.*, 170(1986),83-112.
- [2] Bennani,A.,ほか2名、*AIChEJ.*,31(1985),1157-1166.
- [3] Tomohide Niimi, Hiroshi Nakayama : Temperature imaging in hot air flows using broadband O_2 fluorescence, FEDSM99-7079 (1999)
- [4] Komori, S., Kanzaki, T., and Murakami Y.: Concentration Correlation in a Turbulent Mixing Layer with Chemical Reactions, *J.Chem.Eng.Jpm.*, 27-6(1994), 742-748
- [5] Jan Slavik : Application of fluorescent probes in cellular biology Measurement of intracellular pH, *Journal of Luminescence* 72-74(1997)575-577
- [6] Komori, S., Kanzaki, T., and Murakami Y.: Simultaneous measurement of instantaneous of two species being mixed in a turbulent flow by using a combined laser-induced fluorescence and laser scattering technique, *Phys. Fluid A* Vol. 1, No.2,(1989),349-352
- [7] Edvard Lanz, Martin Gregor, Jan Slavik, and Arnost Kotyk : Use of FITC as a Fluorescent Probe for Intracellular pH Measurement : *Journal of Fluorescence*, Vol. 7, No. 4, (1997)317-319
- [8] Jeffrey A. Bellerose and Chris B. Rogers : Measuring Mixing and Local pH Through Laser Induced Fluorescence, FED-Vol. 191, *Laser Anemometry - 1994: Advances and Applications*, ASME 199

-
- [9] L. A. Melton : Spectrally separated fluorescence emissions for diesel fuel droplets and vapor, APPLIED OPTICS, Vol. 22, No. 14, (1983)2224-2226
- [10] Komori, S., J.C.R. Hunt, Kuzaki, T., and Murakami Y.: The effects of turbulent mixing on the correlation between two species and on concentration fluctuations in non-premixed reacting flows, J. Fluid Mech. (1991). vol. 228, pp.629-659
- [11] J.Coppeta, C.Rogers : Dual emission laser induced fluorescence for direct planar scalar behavior measurement, Experiments in Fluids 25(1998)1-15
- [12] J.Coppeta, C.Rogers : Mixing measurements using laser induced fluorescence, AIAA Paper Number 95-0167 (1995)
- [13] J.Coppeta, C.Rogers : A quantitative mixing analysis using fluorescent dyes, AIAA Paper Number 96-0539 (1996)
- [14] Breidenthal R : Structure in turbulent mixing layers and wakes using a chemical reaction, J. Fluid Mech. 109: 1-24 (1981)
- [15] 長田孝二、小森悟 : 格子乱流場での化学反応と乱流混合に及ぼす不安定温度成層とシアの効果、日本機会学会誌 B-63-612(1997),p.274.
- [16] 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、日本機械学会誌 B-56-522(1990),p.260.
- [17] 酒井康彦、久保貴、中村育雄 : 化学反応を伴う乱流噴流拡散の研究 (第1報)、日本機会学会誌 B-64-628(1998),p.123.
- [18] 酒井康彦、久保貴、中村育雄 : 化学反応を伴う乱流噴流拡散の研究 (第2報)、日本機会学会誌 B-64-628(1998),p.132.
- [19] 酒井康彦、岡田吉弘、中村育雄、小林紀久、三輪昌隆 : 軸対称乱流噴流中の速度およびスカラ量の同時測定、日本機会学会誌 B-65-634(1999),p.142.

-
- [20] 石田・中山・海野・新美：O₂-LIPFによる超音速流れの可視化、日本機械学会誌文集(B編), 62. 594 (1996) pp. 628-636.
- [21] 小野山・長崎・土方：自由表面における炭酸ガス吸収の可視化、第33回日本伝熱シンポジウム講演論文集 (1996) pp.5-6.
- [22] 前田三男：色素レーザー用有機化合物総覧 1 ~ 4, レーザー研究 No.8 pp.694, pp.803, pp.958 (1980), No. 9, pp85(1981)
- [23] 小森悟、化学反応と乱流、流体力学の世界 (1990),141-168, 朝倉書店
- [24] 平野敏右、石塚悟：化学流体力学 (1996)、丸善