

油・処理剤混合物の垂直方向拡散

Vertical Diffusion of Oil/Solvent Mixture

渡辺 健次*・富田 宏*・浜島 金司*

Kenji WATANABE, Hiroshi TOMITA and Kinji HAMAJIMA

Abstract

In this paper, turbulent vertical diffusion of oil particles due to waves, after dispersion of oil spilt on the sea by oil solvent, is investigated.

Considering that vertical diffusion coefficient diminishes exponentially with depth, and that the dispersed particles rise owing to buoyancy, the following theoretical formula of concentration distribution is obtained,

$$C = \frac{\kappa Q}{Ei(-b/\kappa D_0)} \exp(-b/\kappa D)$$

where $D = D_0 \exp(-\kappa z)$ is the vertical diffusion coefficient, z is the depth, b is the updraft velocity, Q is the volume sprinkled per unit area on the sea, $-Ei(-x)$ is the integral exponential function.

The vertical diffusion coefficients are calculated from data of hot film anemometer and wave height meter, the updraft velocity from the particle radius, and the concentration is measured by using COD (chemical oxygen demand) method. The agreement between the experiment and the theory is excellent.

Further, transient diffusion process is investigated theoretically and time constant is calculated.

1 はしがき

海上に流出した油を防除する方法のひとつに、いわゆる分散剤による処理がある。この分散剤は、ふつう界面活性剤と安定剤など適当な薬剤を溶剤にとかしたもので、これを流出した油に加え水といっしょに攪拌することによって、油が微粒化し水中に分散する。その分散性能および安定性については種々研究され、油と分散剤の混合比、油の種類と分散剤の種類、などによって異なるのであるが、要するに微粒化した油の粒径が非常にちいさくかつ長時間その状態が持続しているものが、性能よしとされるのである。すなわち、一

般に大きな粒径の油滴はかなりの速度で浮上するが、分散剤をもちいたとき粒径はある大きさ以下になって浮上速度がちいさく浮上に要する時間が長くなると同時に外力の影響を受けやすくなるため、ほとんど水中に分散してとどまっていると見てよい。

表面に浮遊する油がすべてこのように海中に分散すれば、一見、油は完全に処理され海洋は清浄になったことになる。たしかに、油が微粒化されれば、油の全表面積が非常に大きくなり、生分解・光分解などを促進することになるだろう。これは分散剤による油防除の積極的な面である。しかし、一方において、海中に遊泳する生物、海底に付着する生物に対する、油および最近かなり低毒性となったとはいえ界面活性剤や溶

* 共通工学部 原稿受付 昭和52年6月4日

剤の毒性をも考慮しなければならぬ。これはマイナスの面である。

このように、分散剤による油防除は矛盾した面を持つのであるが、処理性能の向上と海中生物に対する影響の減殺のどちらを目的にするにせよ、共に、その油処理の際の条件（油・処理剤の種類と量、気象、海象）に応じて、油と処理剤の混合物が、ある深さの場所でいつ、どのくらいの濃度に達するかの問題を解くことを必要としている。

ある地点で流出した油に処理剤を加え種々の手段で攪拌すると、その地点から三次元的に拡散がはじまる。従来、油の拡散の研究は、水面上を二次元的に拡散する場合に限られていた。処理剤を加えた場合の拡散は垂直方向にもおこなわれるので、ここでは特に垂直方向に限って調べることにした。もちろん、実際の場合には、垂直方向に拡散しながら横方向にも拡がってゆくのであるが、限られた水面に油と処理剤の混合物が一様に散布され、横方向には常に一様で垂直方向のみに拡がってゆくという状態を想定するのである。拡散をおこす要因としては、風・波・潮流などから水分子によるブラウン運動まで多種多様であるが、ここでは特に、波、それもその乱れの部分によっておきる拡散を考える。すなわち、上に想定した状態では、波によるものももっとも大きく影響すると考えたからである。

まず、拡散係数が深さの関数として指数関数的に変化するものとし、浮力の項を付加した拡散方程式を立て、定常解を得た。次に、造波装置つき実験水槽を製作し、上記定常解をたしかめる実験をおこなった。実験は、熱線流速計や波高計をもちいて計測した結果からの拡散係数の導出、種々の条件のもとでの定常状態に達した油・処理剤混合物の濃度分布計測、粒径の観察などをおこない、理論結果との一致をみることができた。最後に、時間微分の項を方程式に付加して非定常解を得る研究をおこない、拡散の結果、定常状態に達するまでの時間のめやす（時定数）を計算した。

2 拡散方程式とその定常解

横方向には一様で、垂直方向の拡散のみを論ずるのであるから、一次元の拡散を考えればよく、水面を原点とし深さ方向に正の z 軸をとると、通常の拡散方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

である。 C は濃度、 D は拡散係数である。垂直方向の

(402)

拡散の要因としていくつかのものが考えられる。まずブラウン運動による拡散であるが、この拡散係数は

$$D = kT / 6\pi\eta R \approx 2.1 \times 10^{-13} / R (\text{cm}^2/\text{sec})$$

となる。 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 η は水の粘性係数、 R は粒子半径である。これは、波の乱れによる拡散係数（実験結果では $D_0 = 10 \text{cm}^2/\text{sec}$ ）と比べて問題にならない。ただし、 D_0 は水面における拡散係数であって、深いところではブラウン運動によるものと同じオーダーになるかも知れない。風は横方向にはたらき、垂直方向には直接影響しない。そのほか、種々の要因（潮流による混合、塩分密度勾配による垂直循環流、突堤や島の後流中の渦、等々）が考えられるが、前節で述べたようにここでは考慮しない、これら海洋における流れの場での拡散は、ひとつにはかなりスケールが大きく、また、海域それぞれに特有な性質をもっていて、本研究のように比較的ちいさいスケールを対象とし、かつ一般的性質を考察している場合にはとりいれ難い。

波の乱れによる拡散のみを考察する。波の垂直方向成分の何パーセントかが乱れであるとするのはもっともらしく、波自体が深さ方向へ指数関数的に減衰するから

$$D = D_0 \exp\{-\kappa z\}$$

とおいてよいと思われる。ただし、 κ は波の減衰率とは異なるとするのが一般的である。

次に浮力の項をつけ加える。粒子の浮上速度は、浮力と抵抗の釣り合うときに定常状態に達する。はじめ静止していた粒子が定常の浮上速度となる過程を考えよう。 v を粒子速度、 M を粒子質量、 ρ を油の水に対する比重、 α を抵抗係数、 g を重力加速度とすると

$$M \frac{dv}{dt} = -\alpha v - M(1-\rho)g$$

となり、解は

$$v = -\frac{M}{\alpha}(1-\rho)g \left[1 - \exp\left(-\frac{\alpha}{M}t\right) \right]$$

となり、定常な速度に達する時間のめやすは M/α で、抵抗の式としてストークスの式を用いると

$$2R^2/9\nu$$

となる。 R は粒子半径、 ν は動粘性係数である。 $R = 0.03 \text{cm}$ とすると、 0.02sec となる。後述するが、実験では粒子半径はこの値以下であり、拡散係数をみちびくためにとった時間間隔は 0.05sec であるので、粒子の浮上速度としては定常となった場合を考えてよい。これを b とおくと

$$b = \frac{2}{9\nu}(1-\rho)R^2g$$

となる。これは粒径によって異なり、実際にはいろいろの粒径が混合しているのであるが、ひとつの粒径にたいして拡散方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left\{ D_0 \exp(-\kappa z) \frac{\partial C}{\partial z} \right\} + b \frac{\partial C}{\partial z}$$

となり、この解をいろいろの粒径について重ね合わせればよいのである。

定常解を求めるために時間微分をゼロとし、無限遠でゼロとなる境界条件のもとで解くと

$$C = A \exp\{-b e^{\kappa z} / \kappa D_0\}$$

さらに、単位面積あたり油・処理剤混合物の散布量を Q とすると

$$C = \frac{\kappa Q}{-E_i(-b/\kappa D_0)} \exp\left\{-\frac{b}{\kappa D_0} e^{\kappa z}\right\} \dots (1)$$

となる。 E_i は積分指数関数

$$-E_i(-x) = \int_x^\infty \frac{e^{-\xi}}{\xi} d\xi$$

である。濃度 C の単位は散布量 Q の単位による。

3 実験

3.1 実験装置および実験方法

(イ) 実験水槽の大きさは、長さ 3 m、幅 30 cm、水深は 1 m 程度とれるようにした。側面の長さ 3 m の中 1 m 分は、両面をガラス張りとし、内部の目視および光による濃度測定を可能にした。変速ギヤー付きモーターで造波板を駆動し、波が多重反射することによってかなり乱れた波を生じさせることができ、また横方向の一樣性が期待できるようになった。ただし、実際には、かなりゆっくりとはしているが、内部を循環する流れが生じていて、底の方が濃度が高くなる状態がおこり、長時間にわたる垂直拡散実験はできない。また造波板の近くでは乱れが大きくなっている。

(ロ) 波高計は、市販の電気容量測定器^{*}を利用した。プローブとして、長さ 40 cm、径 4 mm のガラス管に銅線を封じこめたものを作り、2本垂直に水中にさしこんびコンデンサーの両極とした。水は導体であると共に誘電体でもあり、このシステムは2本の銅線のあいだにガラスおよび水の2種の誘電体があるとも、または、ガラスを誘電体として銅線と水が直列のコンデンサーを形成しているとも考えられる。いずれにせよ波高の変化は電気容量の変化としてあらわれる。容量測定は交流ブリッジ方式である。水槽を接地として用いることによって、浮遊容量の影響は減殺される。

(ハ) 流速計としては、市販のプロベラ式^{**}および熱線式^{***}の両方を用いた。熱線流速計のプローブは、石英でコーティングされ、水に対し電氣的に絶縁されている。通常、これらの流速計の使用は、一様流とその変化を測定するときが主であって、波のように振動する流れの場合測定結果を慎重に検討する必要がある。

(ニ) 拡散実験は、パラフィン油と処理剤ネオス AB とを適当量、水槽中に投入しておこなった。濃度の測定は次の3通りである。

ヘキサン抽出法; 採取した試水をヘキサンと混合すると、油分がヘキサン中に溶出する。これを静置して、ヘキサンを浮上分離させ、ソクスレー抽出器を用いヘキサンを気化させて残った油分を秤量する。この方法では、処理剤とくにその溶剤も気化するものと思われる、ちいさい濃度値が出る。

COD法; 重クロム酸カリ溶液と硫酸を試水に加え、加熱、油分を酸化させ、硫酸第一鉄アンモニウム溶液で滴定し、COD (化学的酸素消費量) をもとめる。この場合、すべての油および処理剤が酸化されるわけでないので、検量をあらかじめおこなっておく必要がある。

光による濃度; スライドプロジェクターを改造した白熱光源からの光を、側面ガラス板を通して水中に照射し、反対側に置いた鏡で反射させ、光電地照度計で測光して透過率をもとめた。濃度がちいさいとき、それは透過率の逆数の対数に比例する。この簡便な装置では、カバーできる濃度範囲がちいさく信頼性もよくないが、拡散状況の時間変動を記録することができた。

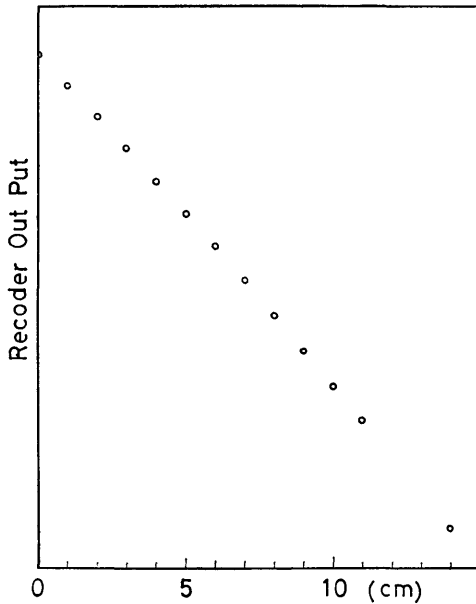
(ホ) 拡散した油滴の粒径をしらべるために、生物顕微鏡をもちいた。血液型検査用のくぼみのあるスライドガラスに、試水を一滴たらして観察および写真撮影した。粒径 1 ミクロンまでの観察が可能で、それら油粒子のブラウン運動も見ることができた。

3.2 流速の測定

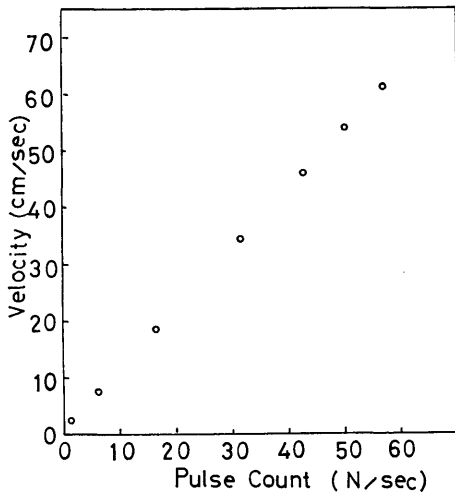
まず生じている波の流速の垂直方向成分を測定する。波高計によって波高を記録しその時間微分をすれば表面の垂直方向流速が得られる。波高計は、図-1 のようにならかなり広い範囲で直線性をもっている。図-1 の横軸はある基準点からの水面の高さ、縦軸は記録計の読みである。もちろん記録計の種類や調整の仕方

* 岩崎通信機(株)微小変位計 ** 三光精密(株)製 *** 日本科学工業(株)製

などによってことなる。



図一 波高計校正曲線



図二 プロペラ流速計校正曲線

水中の流速測定には、プロペラおよび熱線流速計をもちいた。プロペラ流速計はフォトトランジスタを用い、回転する羽根が光のビームを切るときのパルスをかぞえることによって流速を求める。定常な流れの中での校正は図一2のように得られ、流速は単位時間あたりのパルス数にほぼ比例している。しかし、振動流の中では、パルスの間隔が異なるので、これらのパルスをすべて記録し、つぎのようにして流速2乗平均の

(404)

平方根 (RMS) をみちびいた。

振動波型を

$$v = v_0 \sin \omega t$$

と仮定する。プロペラ流速計では正負の流れが区別できないから絶対値しか得られないので、上式の絶対値をとって時間平均すると

$$\overline{|v|} = 2v_0/\pi$$

となり、また、この振動波型のRMSは

$$\sqrt{\overline{v^2}} = v_0/\sqrt{2}$$

であり、ゆえに

$$\sqrt{\overline{v^2}} = \overline{|v|} \pi/2\sqrt{2}$$

の関係が得られる。一方、パルス生起時刻を t_i とすると、 a を単位時間あたりパルス数と流速の比とし

$$v = a/(t_{i+1} - t_i)$$

であり、これから

$$\begin{aligned} \overline{|v|} &= \frac{1}{T} \int |v| dt = \frac{1}{T} \sum \frac{a}{t_{i+1} - t_i} \cdot (t_{i+1} - t_i) \\ &= (N-1)a/T \end{aligned}$$

が得られる。 N は時間 T のあいだのパルス総数である。結局、流速RMSは

$$\sqrt{\overline{v^2}} = \frac{(N-1) a \pi}{2\sqrt{2} T}$$

で、時間 T のあいだのパルスをかぞえるだけで求められる。プロペラ流速計による計測結果は、深さとともに指数関数的に減衰し、ある深さからこれは使用できなくなる。しかし、波高計と同じように流速の正しい値が得られると思われる。

熱線流速計ではより微小な流速を測定できる。これは、電流を通じて熱した熱線の流れによる冷却を補償する方法で出力を得るもので、出力 V とすると

$$V^2 = V_0^2 + B\sqrt{v}$$

の関係がある。この出力をそのままり出して校正してもよいが、流速が変化する場合には不便であるので出力電圧が流速に比例するように特殊回路を通してとり出すようになっている。この回路の定数は周囲条件に応じて調整するので、その都度校正することが必要である。しかし、水中しかも振動流の中で使用するため、適当な校正方法が見出だせなかったので、ここでは流速を相対値のままとし、そのRMSを同じ場所でのプロペラ流速計のRMSと等しいとみて、真の値をもとめた。通常、熱線流速計は一方向の流れの中で使用することが多く、たとえ相対値であってもこのような振動流の中でも信頼できる値が出るかどうか調べて

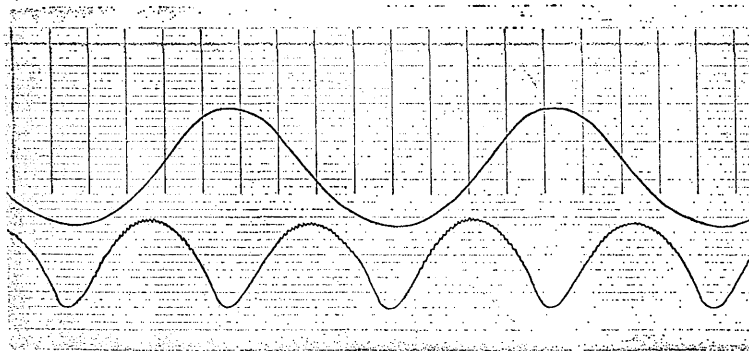


図-3 定常波記録

みた。造波機を調節して、ほぼ定常波とみなし得る波を起した。図-3はその記録で、上は波高、下は熱線流速計によるものである。深さを変えて出力RMSをプロットしたのが図-4である。定常波は理論的に

$$e^{-az} \sin ax$$

の形に表わされる。図-4から、深さ方向の減衰率は

$$a=0.061\sim 0.065/\text{cm}$$

の範囲であることがわかる。一方、波長 l とすると

$$a=2\pi/l$$

と表わされ、波長はほぼ 100cm であることから $a=0.0628$ となり、両方の値はほぼ一致する。このように、すくなくとも相対値を問題にする限り、この使用方法で信頼できる結果が得られるものと思われる。

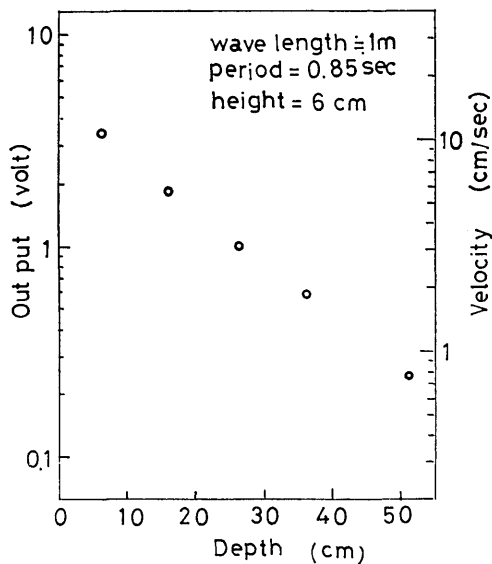


図-4 定常波における深さ方向熱線流速計出力

図-5は、後述の拡散実験に使用したかなり乱れた波の垂直方向流速RMSを、3通りの測定器で求め、深さ方向に減衰の様子をプロットしたものである。減衰率はかなり正確に求められる。プロペラ流速計は 1 cm/sec 程度が限界である。

3.3 拡散係数の導出

ひとつの粒子に着目し、その不規則な運動を追跡する。実際には拡散をおこなう多数の粒子について考察すべきであるが標本平均は時間平均にひとしいという事を前提としているのである。そのとき、拡散係数

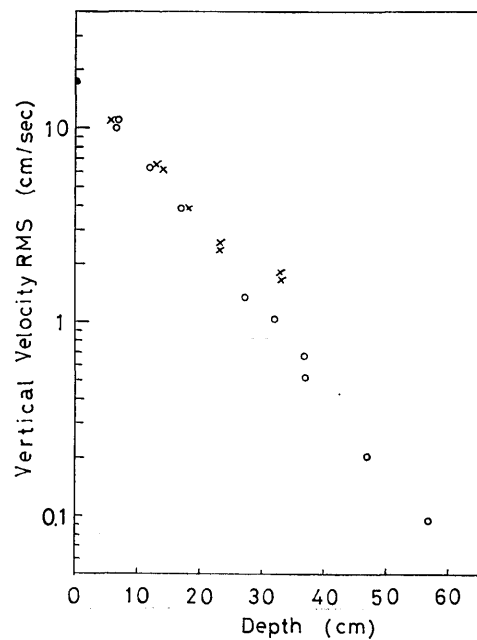


図-5 垂直方向流速、RMS・波(A)の場合 (○熱線 ×プロペラ ●波高計)

はその粒子の各時刻における速度の自己相関関数

$$\overline{v(t) \cdot v(t+\tau)}$$

を用いて

$$D(T) = \int_0^T \overline{v(t)v(t+\tau)} d\tau$$

となる。とはいっても個々の粒子を実際に追跡するのは不可能であるので、粒子が波による振動流とともに動き、流れの場がかなり広い範囲で一様に時間的変動をおこなっているとして、粒子の速度のかわりに、空間のある点での各時刻における流速を代入してもよいと思われる。現在の場合、この拡散に關与する乱れの部分が定常な振動流と重なっているとみて

$$v = v_0 \cos \omega t + v'$$

とおけば

$$\overline{v(t)v(t+\tau)} = \frac{1}{2} v_0^2 \cos \omega \tau + \overline{v'(t)v'(t+\tau)}$$

$$\int_0^T \overline{v(t)v(t+\tau)} d\tau = \frac{v_0^2}{2\omega} \sin \omega T + D(T)$$

となるが、さらに積分して平均をとると

$$\begin{aligned} \frac{1}{T} \int_0^T \int_0^T \overline{v(t)v(t+\tau)} d\tau dT \\ = -\frac{v_0^2}{2\omega^2} \frac{(1 - \cos \omega T)}{T} + \frac{1}{T} \int_0^T D(T) dT \end{aligned}$$

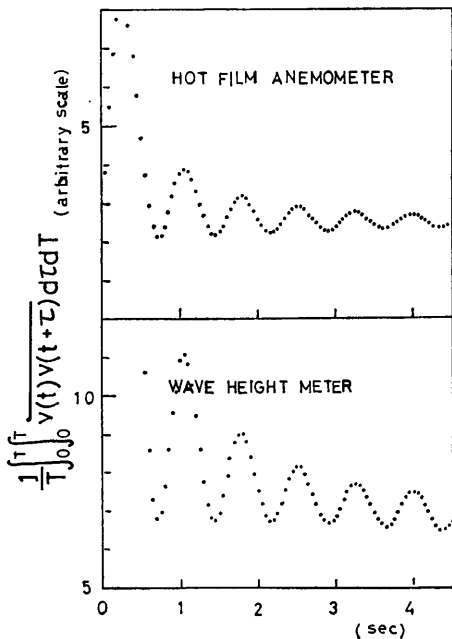


図-6 拡散係数の導出用プロット

となり、第一項は $T \rightarrow \infty$ でゼロになり第二項はふうう一定値に近づくから、全体は拡散係数 D に近づくものとみられる。図-6 は、拡散係数に上式の左辺が近づく様子を実験結果からプロットした一例である。

以上の方法により、波高計の記録から表面における拡散係数 D_0 が得られる。プロベラ流速計の記録はパルスの列からなり、正負の方向性もないので、上記方法で計算しても不確実な情報しか得られないと思われる。熱線流速計の記録も、正負の方向性が出ないが、波高計と同時測定をおこない、それと比較して推定でき連続した曲線が得られるので、かなり信頼できる結果が得られる。また、熱線流速計から得られた値は、もちろん相対値であるが、拡散係数と同時に流速 RMS も得られるので、かならずしも較正する必要はない。実際の測定では、比較のみじかい時間(数十秒)の記録をとり、0.05 sec おきの値をつかって拡散係数をもとめた。図-7 は波高計の記録から得られた流速 RMS の2乗と拡散係数の相関をしめす。図-8 は熱線流速計の記録から得られた流速 RMS と拡散係数の相関をしめす。図-8 の場合、調整のさいの諸定数がわずかに異なるためややばらついているが、図-7 とともに拡散係数が流速 RMS とかなりよく相関していることをしめしている。したがって流速 RMS とどこか一点での拡散係数を、精密に較正して測定すれば拡散係数の測定のさい較正は unnecessary になる。実験結果では、拡散係数は流速 RMS の2乗に比例する。したがって、拡散係数は深さとともに指数関数的に減少し、

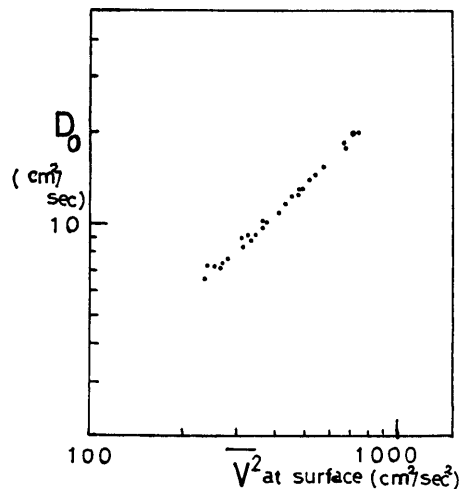


図-7 流速2乗平均と拡散係数の相関 (波高計による)

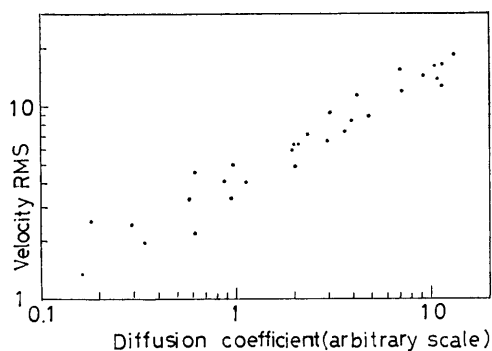


図-8 流速RMSと拡散係数の相関
(熱線流速計による)

減衰率は波の減衰率の2倍となる。

この方法で、水平方向流速および水平方向拡散係数も測定できる。ただし表面での値は、接近して2台の波高計を用いなければ測定できない。水平方向拡散係数も深さとともに指数関数的に減少し、減衰率は垂直方向拡散係数とほぼ同じである。測定例を図-9に示す。ただし熱線流速計のみもちい、表面での測定はおこなわなかった。

3.4 拡散係数計測結果と理論濃度分布

くわしく拡散実験をおこなったのは、造波板振動数 1.4 Hz 、 1.9 Hz の2通りの場合であって、図-10は、 1.4 Hz の場合の波型記録である。計測の結果それぞれ

$$(A) \quad D = 10.5 \exp\{-0.17z\} \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

$$(B) \quad D = 10.0 \exp\{-0.39z\} \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

なる垂直方向拡散係数をもつことがわかった。これをそれぞれ、波(A)、波(B)と名づけることにする。粒径別に計算される浮上速度の値 b を与えれば、式(1)

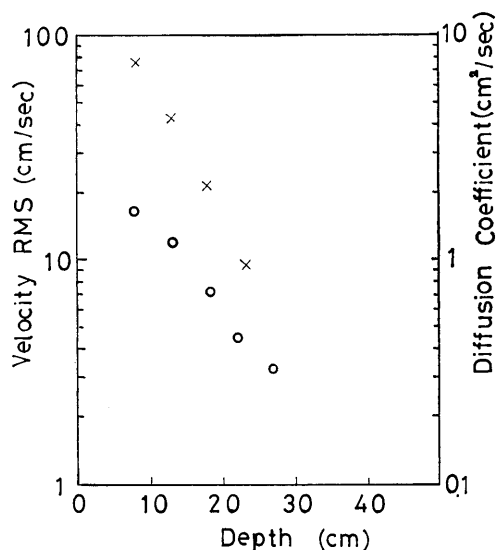


図-9 水平方向流速RMS \circ 、と
水平方向拡散係数 \times

により定常状態に達したときの濃度分布が得られる。図-11は粒径別の濃度の深さ方向分布で、式(1)の Q の値すなわち単位面積あたりの散布量はどの粒径に対しても同じで、任意の値とした。したがって縦軸のスケールは相対値である。

3.5 濃度分布計測

濃度は、COD法による測定結果を主としてもちいた。この方法は、 50 ppm ぐらいの濃度において安定した結果をしめす。それで、濃度の大きい試水は、必要に応じて数段階、蒸留水でうすめ、測定後換算するという方法をとった。試水内油分は常に上昇するので、うすめるための容器のうつかえのとき、充分攪拌し

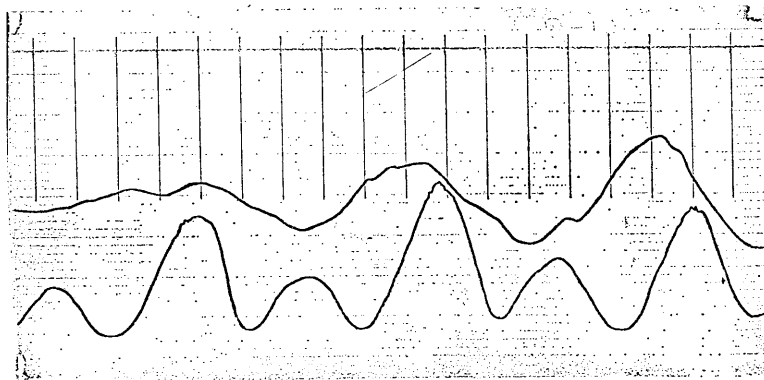


図-10 波型記録、波(A)の場合

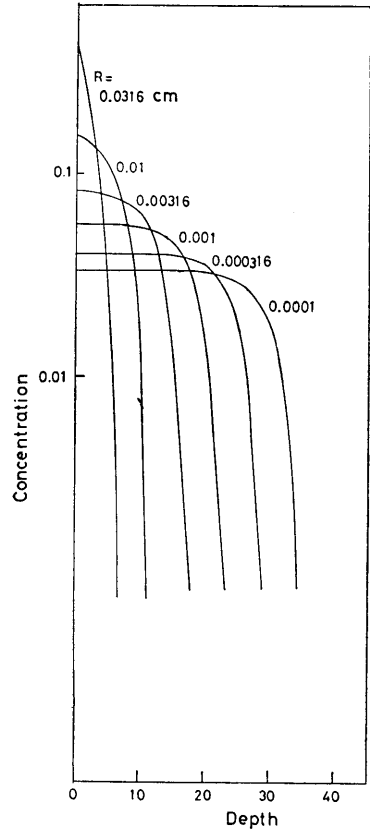
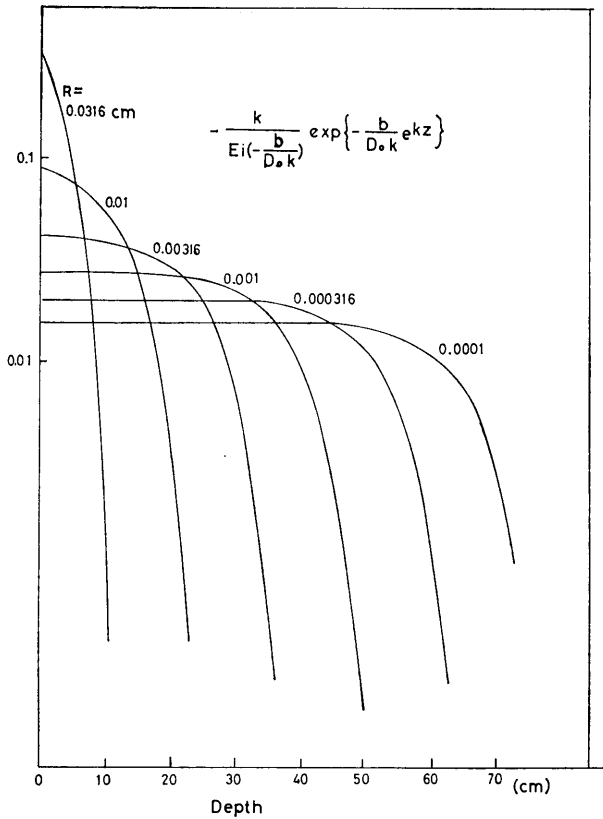


図-11 (A) 粒径別濃度分布 波(A)の場合

(B) 粒径別濃度分布 波(B)の場合

表-1 COD法の検定

番号	1	2	3	4	5
ネオス (ppm)	200	260	465	640	38
パラフィン (ppm)	0	120	106	114	119
計 (ppm)	200	380	571	754	157
うつつかえ回数	1	2	2	2	2
COD (ppm)	221	473	612	760	109

ながら行なわれないと誤差が大きくなってゆく。こうした操作中の誤差および測定誤差が重なるため、測定結果は注意してとりあつかわねばならない。あらかじめ量がわかっている油および処理剤を水と混合し、COD法で測定した検量結果を表-1にしめす。ただし、ネオスとパラフィンの濃度は体積濃度である。パラフィン油の比率が大きいとき、体積濃度とCODの差が大きくなっている。処理剤がすくないとき、油滴の粒

径が大きくなままである可能性があり、この大きな油滴は容器のうつつかえに際しての誤差の原因となること、また分析に際して酸化されにくいことが予想される。この予想をうけいれると、ネオスABおよびパラフィンの混合物に対しては、COD法の測定結果をそのまま体積濃度としてもよいと思われる。さらに、図-11のように濃度の対数をとって議論するかぎり、測定値のオーダーが主として問題になるので、ここではCOD測定値をそのまま濃度として採用した。

はじめに、散布法(I)として、パラフィン油およびネオスABを静かに水面に流し、それから波をおこして拡散させた。波(A)について、散布量を種々変えて拡散させた結果を図-12にしめす。縦軸を規格化しているので、これは濃度分布の形をしめすことになるが、流出量が変わっても油と処理剤の比率が極端に異なる限り、分布の形は変わらないといえる。深いところの性能は、水槽内に生じる循環流のため、水槽底の付近でかえって濃度が大きくなる結果を生じてい

る。この効果は(1)式との比較の際には無視するとしよう。この濃度分布の形は、図-11のどの粒径に対するものをとっても一致しない。この散布法(I)では種々の粒径の油滴が混合しているものとみられる。

そこで、散布法(II)として、あらかじめ油と処理剤を混合し、水を加えてよく攪拌したものを静かに水面に流してから、拡散実験をおこなった。結果は図-14にしめしてあるが、図-11と比較してかなりよく一致する対応粒径がある。

粒径をしらべるために顕微鏡を用いて、濃度測定前の試水を観察、視野内での粒径分布をしらべた。この粒径分布が、正確に実際のそれを表わしているという保証はないが、散布法(I)、(II)のそれぞれの場合に応じて、粒径がある範囲内にはほぼ一様に分布していることがわかった。この範囲は予想どおり、(I)の方が

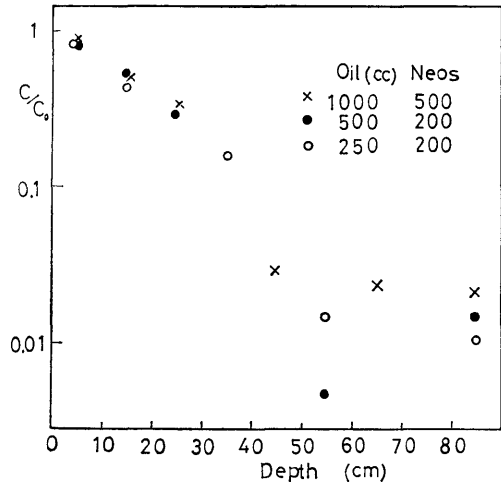


図-12 散布量変化の影響 波(A)の場合

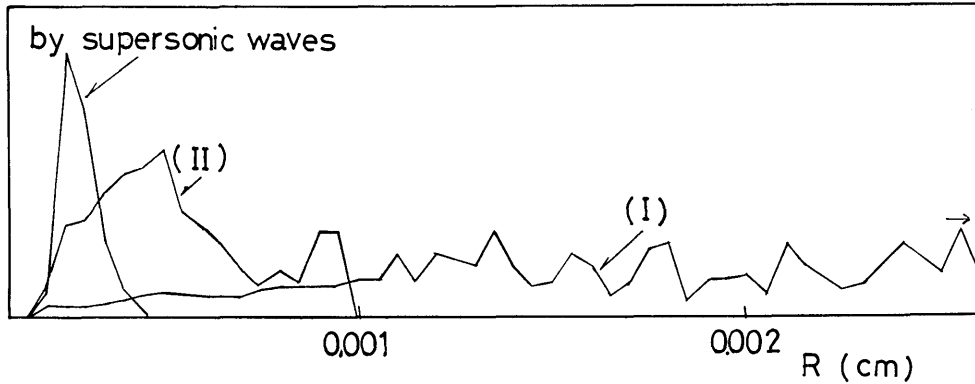


図-13 観察した粒径分布

(II)よりも広い。参考のために、パラフィン油のみを 20 kc の磁歪振動子で超音波分散させた場合の粒径分布をあわせて、(I)および(II)の粒径分布を図-13にしめす。

ここで、何通りかの粒径の油滴が、それぞれ同量ずつ混合しているというモデルについて、濃度分布を計算した。それには、それぞれの粒径を(1)式に代入して計算し、重ね合わせればよい。計算結果および測定濃度を、波(A),(B)、散布法(I),(II)について図-14にしめした。結果はかなりよく一致している。

実際に処理剤を用いたとき、油の拡散を評価するには、濃度が急激に減衰はじめる深さ (Scale Depth) をめやすにするのがよいと思われるが、ここでの取扱いはその方向に

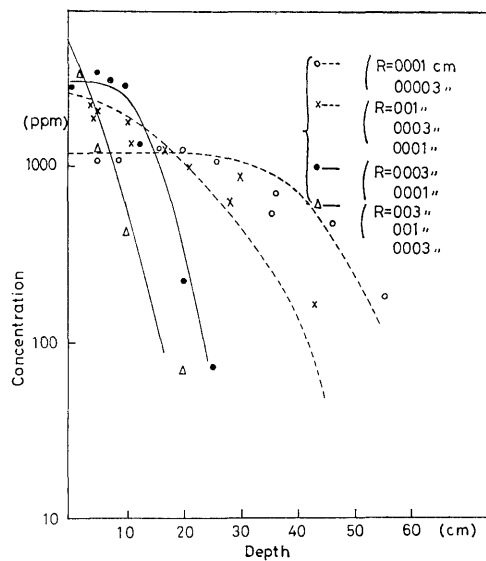


図-14 計算結果と測定濃度の比較 [×(A)(I), ○(A)(II), △(B)(I), ●(B)(II), は測定値, 破線(A)実線(B)は計算曲線]

合致する方法を提示している。

4 非定常拡散

拡散が開始されてから、前節の定常濃度分布に達するまでの過渡状態をしらべるために、時間微分の項を復活した拡散方程式

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z} \left\{ D_0 \exp(-\kappa z) \frac{\partial C}{\partial z} \right\} + b \frac{\partial C}{\partial z}$$

を、適当な境界条件・初期条件で解くことを考える。

4.1 デルタ関数初期条件

はじめ表面に散布されているという条件は

$$t=0 \quad C=Q \delta(z)$$

という初期条件をとるのが適当である。油・処理剤の混合物は水面下 ($z>0$) に限られ、水面を通して質量流束はゼロであるから

$$z=0 \quad D_0 \frac{dC}{dz} + bC = 0$$

が境界条件である。また

$$z=\infty \quad C=0$$

でなければならない。

$$\zeta \equiv \frac{b}{\kappa D_0} e^{\kappa z} \quad C = W \exp \left\{ -\frac{\zeta}{2} - b\kappa \lambda t \right\}$$

とおくと

$$\frac{d^2 W}{d\zeta^2} + \left(-\frac{1}{4} + \frac{\lambda}{\zeta} \right) W = 0$$

という Whittaker の微分方程式となる。境界条件は

$$\zeta = \frac{b}{\kappa D_0} \equiv \zeta_0 \quad \frac{dW}{d\zeta} + \frac{1}{2} W = 0$$

$$\zeta = \infty \quad W = 0$$

となる。無限遠でゼロとなる解は Whittaker 関数

$$W_{\lambda, 1/2}(\zeta)$$

である。パラメータ λ のある値にたいしてのみ、この関数は $\zeta = \zeta_0$ での境界条件を満足し、その値 λ は離散的な固有値の組をつくる。同じ境界条件を満足し異なる固有値 λ, λ^* に属する関数を W, W^* とすると

$$\left(W^* \frac{dW}{d\zeta} - W \frac{dW^*}{d\zeta} \right)_{\zeta=\zeta_0} - (\lambda^* - \lambda) \int_{\zeta_0}^{\infty} W W^* d\zeta / \zeta$$

となり、境界条件を左辺にいれると左辺はゼロで

$$\int_{\zeta_0}^{\infty} W W^* d\zeta / \zeta = 0$$

すなわち直交する。

一般解を、この関数をつかって

(410)

$$C = \sum_{\lambda} A_{\lambda} \exp(-\zeta/2) W_{\lambda} \exp(-b\kappa \lambda t)$$

とあらわすと、 $t=0$ において

$$Q \delta(z) = \sum_{\lambda} A_{\lambda} \exp(-\zeta/2) W_{\lambda}$$

で、両辺に $\exp(\zeta/2) W_{\lambda} / \zeta$ をかけて ζ_0 より ∞ まで積分すると、関数の直交性より

$$[Q \exp(\zeta/2) W_{\lambda}]_{\zeta=\zeta_0} = A_{\lambda} \int_{\zeta_0}^{\infty} \frac{W_{\lambda}^2}{\zeta} d\zeta$$

となって A_{λ} が求められ、問題は積分や展開の収束性を仮定した上で形式的に解けたことになる。

しかし、これらの理論式を検証するには、不十分な実験データしか得られていないので、関数値の計算はおこなわず、定常濃度分布に達するまでに必要な時間のめやすと関係のある固有値 λ についてのみ考察することとした。

$$\lambda = 0$$

も固有値であって、それに属する関数を W とすると

$$W \exp(-\zeta/2) = \exp(-\zeta) = \exp \left(-\frac{b e^{\kappa z}}{\kappa D_0} \right)$$

で、これは定常解となっている。固有値は

$$\exp(-b\kappa \lambda t)$$

の形で解の中にふくまれるから、最小の正の固有値を λ_m とすると

$$1/b\kappa \lambda_m$$

が定常分布に近づく時間のめやす (時定数) となる。一般解における展開式の他の項は、 λ が大きいためにはやく減衰すると予想されるから考慮外としたのである。

Whittaker 関数は、量子力学において、クーロン場での波動方程式の動径部分の解としてあらわれる。とくに、 λ が整数の場合、解は指数関数とラゲール多項式の積である。固有値 λ が整数でない場合、この関数の計算方法は種々提出され Kuhn によれば

$$W_{\lambda, 1/2} = \Gamma(\lambda) \{ U^0 \cos(\lambda-1)\pi + U^1 \sin(\lambda-1)\pi \}$$

が ∞ でゼロとなる場合の計算式である。ただし U^0, U^1 はそれぞれ、ベッセル関数とノイマン関数の級数の形で与えられていて、 λ/ζ が大きいとき

$$U^0 \rightarrow 2\sqrt{\lambda\zeta} J_1(2\sqrt{\lambda\zeta})$$

$$U^1 \rightarrow 2\sqrt{\lambda\zeta} N_1(2\sqrt{\lambda\zeta})$$

に近づく。さて、境界 $\zeta_0 = b/\kappa D_0$ は、非常にちいさいので、上式を U^0, U^1 の近似式とし、境界条件に入れてさらに近似をすすめると、固有値を求める式として $\tan \lambda \pi = -J_0(2\sqrt{\lambda\zeta_0})/N_0(2\sqrt{\lambda\zeta_0})$

を得る。 $\lambda=0$ はここでも固有値になっている。正の最

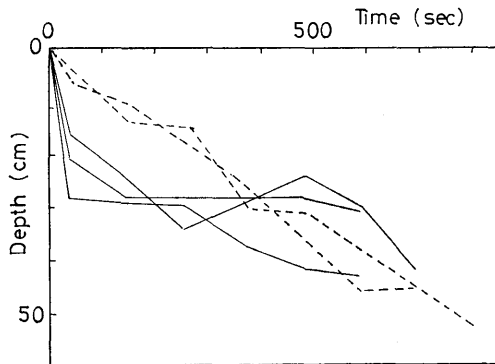
低固有値の計算結果は表一2のとおりである。

表一2 各粒径にたいする時定数
(デルタ関数初期条件)

波	R(cm)	ζ_0	λ_m	$1/b\kappa\lambda_m(\text{sec})$
(A)	0.01	0.112	1.47	20
	0.003	0.0112	1.25	235
	0.001	0.00112	1.16	2535
	0.0003	0.000112	1.12	26260
(B)	0.03	0.51	0.56	2
	0.01	0.051	1.37	9
	0.003	0.0051	1.21	105
	0.001	0.00051	1.14	1119
	0.0003	0.000051	1.10	11627

実際には、種々の粒径の油滴が混合しているので、この値を直接実験と比較することはできないが、波(A)と(B)を比較すれば(B)の方がはやく定常に達する。これは拡散係数の減衰率が大きいほど、はやく定常に達することを意味している。

光による濃度測定の実験データから、ある出力の得られる部分が、時間的にどう動くかをしらべた例を、図一15にしめす。波(A)では700秒程度、波(B)では100秒程度でほぼ定常に達する。時定数のオーダーはほぼ合っているが、支配的な粒径に対するものをみると計算値の方が過大である。



図一15 濃度一定部分の動き [破線(A), 実線(B)]

4.2 階段関数の初期条件

散布した油・処理剤の混合物が拡散してゆく場合、水面に油の層があり、そこから油と水の境界を通して油滴が流れこみながら下方へ拡散してゆくというモデルを考える。熱伝導の問題におきかえると、2種類の

温度の異なる物体が、 $t=0$ において突然接触したような場合である。このモデルが前節のモデルと比べて、全く非現実的であると断定することはできない。このモデルを採用すると、表面を通して質量流束はゼロでなくともよい。初期条件は $z>0$ で $C=0$ であればよいので、 $z<0$ において C がどのようなものであってもよい。ただし、 $t \rightarrow \infty$ で定常解に近づくようなことが必要である。

拡散方程式において変数分離をおこなって、次のような一般解を得る。

$$C = \int_0^\infty A(\lambda) \exp\left\{-\frac{\kappa D_0 \lambda^2}{4b} e^{\kappa b t}\right\} e^{\kappa(z+b t)/2} \cdot J_1(\lambda e^{\kappa(z+b t)/2}) d\lambda$$

$A(\lambda)$ は λ の任意関数である。これを適当にとった次のような特解から出発する。

$$G_\zeta = \int_0^\infty \frac{\kappa}{2} \lambda \exp\left\{-\frac{\kappa D_0 \lambda^2}{4b} (e^{\kappa b t} - 1)\right\} e^{\kappa(z+z_0+b t)/2} \cdot J_1(\lambda e^{\kappa z_0/2}) J_1(\lambda e^{\kappa(z+b t)/2}) d\lambda$$

$t=0$ において、これはデルタ関数 $\delta(z-z_0)$ をあらわす。これを z_0 についてゼロから ∞ まで積分したものを1からひくと

$$G = 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\kappa D_0}{4b} \lambda^2 (e^{\kappa b t} - 1)\right\} e^{\kappa(z+b t)/2} J_0(\lambda) J_1(\lambda e^{\kappa(z+b t)/2}) d\lambda$$

となり $t=0$ において

$$z < 0 \text{ で } G = 1, z > 0 \text{ で } G = 0$$

なる階段関数となる。 $J_0(\lambda)$ と $\exp\left\{-\frac{\kappa D_0}{4b} \lambda^2\right\}$ を λ の巾級数に展開して積分すると

$$G = \exp\left\{-\frac{b}{\kappa D_0} e^{\kappa z}\right\} \left[1 - \sum_{n=1}^\infty \frac{1}{n} L_n^n\left(\frac{b}{\kappa D_0}\right) \frac{b}{\kappa D_0} e^{\kappa z} L_{n-1}^1\left(\frac{b e^{\kappa z}}{\kappa D_0}\right) e^{-n\kappa b t}\right]$$

となる。 $t \rightarrow \infty$ で定常解となるためには

$$C = -\frac{\kappa Q}{E_i(-b/\kappa D_0)} G$$

とおけばよい。各時刻、各点における濃度変化の定常解に対する比を計算し、波(A)および(B)の場合について、図一16にしめた。粒径が大きく、水深がちいさく、拡散係数の減衰率が大きいほど、はやく定常に達する。図一11にみるごとく、粒径別の濃度は、ある深さ (Scale Depth) から急激に減少する。そこで、定常解において表面における値の半分の濃度となる深さを「Scale Depth」と定義し、図一16において、この Scale Depth に対応する深さの濃度変化曲線をとると、定常解の半分に達するまでの時間を「時定数」と

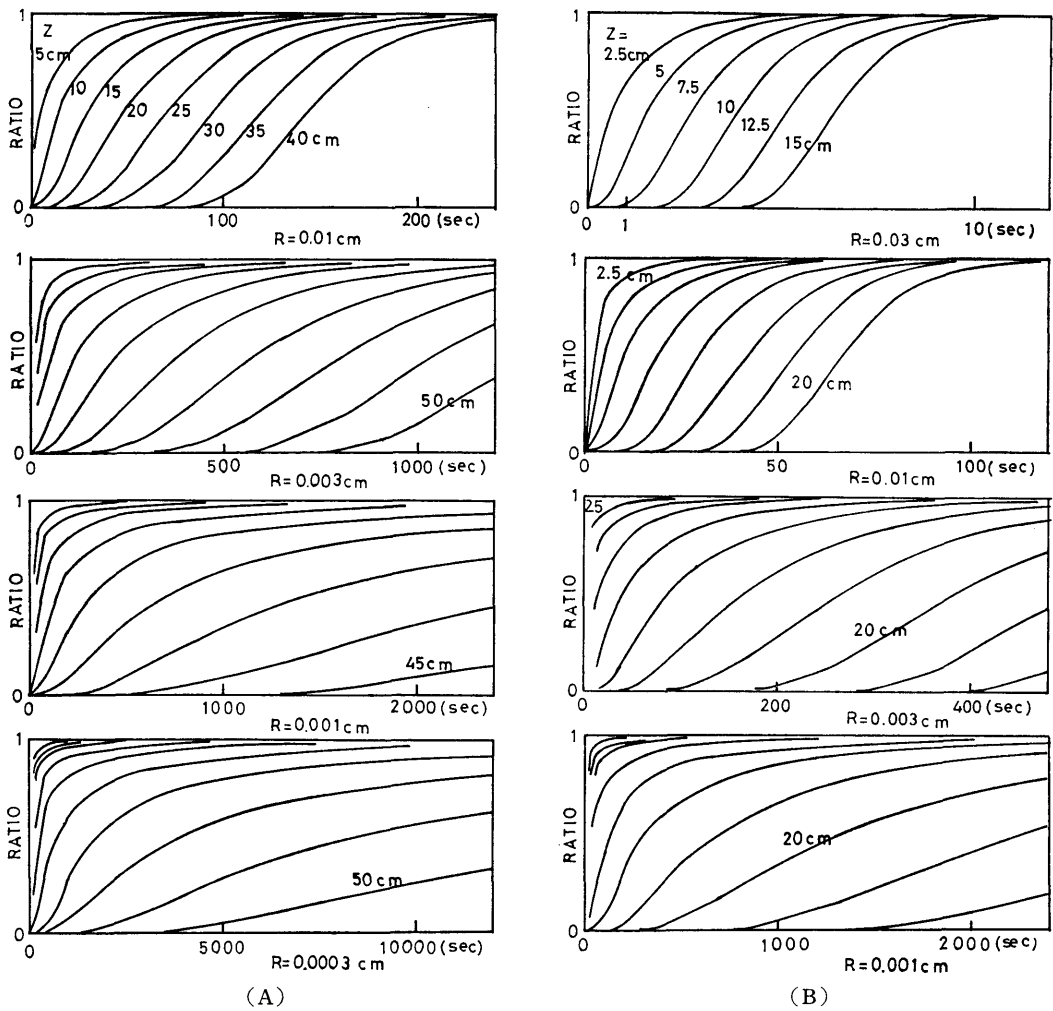


図-16 濃度の定常濃度に対する比の時間変化

表-3 各粒径に対する時定数(階段関数初期条件)

波	R (cm)	ScaleDepth (cm)	時定数(sec)
(A)	0.01	11	14
	0.003	24	200
	0.001	37	1880
(B)	0.03	1	0.1
	0.01	7	8
	0.003	12	75
	0.001	18	820

定義すれば、表-3のように、波の種類と粒径別に計算され、前節でもとめた時定数とほぼひとしい。

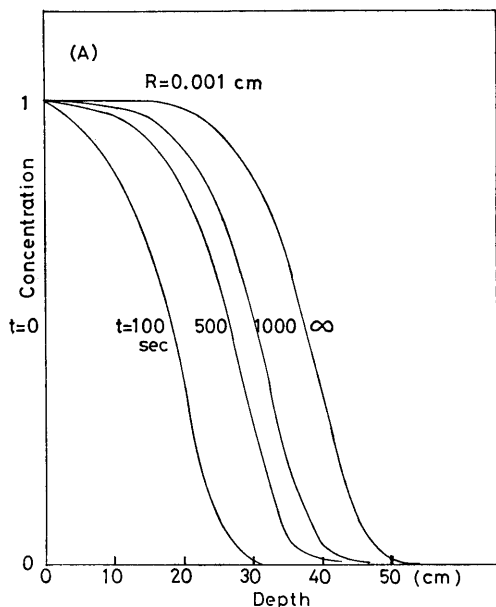
濃度分布の時間変化の例を図-17にします。油・処

理剤の混合物は、ゆっくりと「沈んで」ゆく。実際の拡散のようすも、目視による限りこれとよく似ている。

5 むすびおよび問題点

油・処理剤の混合物の波による垂直拡散を考察し、垂直方向拡散係数と粒径分布をあらかじめ知って、最終的濃度分布を求める式を得、それを検証することができた。ついでに拡散係数を流速の記録からみちびくことができたが、より簡便には、表面における拡散係数と波の深さ方向減衰率を知ることによって推定できると思われる。また、定常濃度分布に達する時間のめやす「時定数」をもとめることができた。

つぎに、応用上の問題点について議論する。



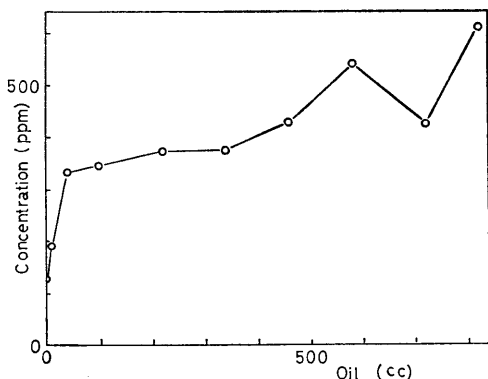
図一17 階段関数初期条件の解の一例

(1) 定常濃度分布において、Scale Depth を考えたがこの大きさをいちいち曲線をえがかないでも求められる簡便法を考えてみよう。それは式(1)の exp の因数を 1 とおけばよいように思われる。そうすると

$$z = \frac{1}{\kappa} \log \kappa D_0 / b$$

が Scale Depth を求める式となる。

(2) 粒径分布がどうなっているかあらかじめ知ること、または推定できることが必要である。これは、油と処理剤の種類・量とその比率、攪拌の仕方、気象、海象によって異なる。さらに波自身によっても異なっ



図一18 油の量を変化させたときの濃度変化 (クロリゲン2000cc)

てくるようである。それは、散布法(I)において、波(A)よりも(B)の方により大きい粒径の油滴が認められたことによる。

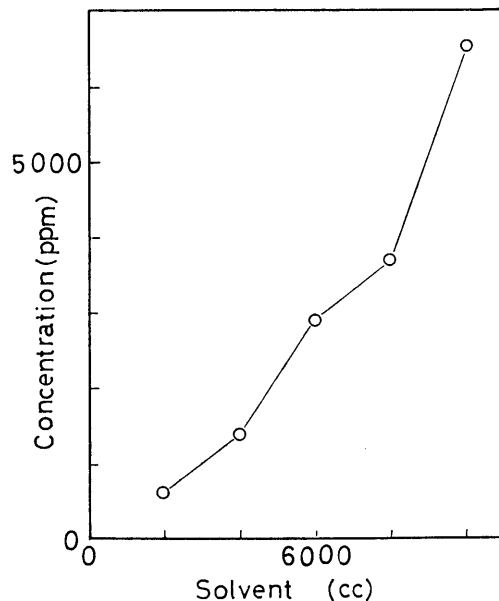
そこで、特に実際の処理作業に関係の深い、量とその比についてしらべてみる。図一18は、処理剤の量を一定にし、油の量を増加させながら、深さ 24cm のところで測定した濃度の変化である。あらかじめ攪拌していないせいもあるが、濃度は「飽和」に達し、表面には油の層ができています。油の量がある大きさになると、採取した試水の中には、大きい油滴がまじりはじめ、濃度はばらつき出す。表面の油の層は粒径が無限大の極限と考えることもできる。

それから、処理剤の量をふやしてゆくと、図一19のように濃度は直線的に増加する。

この試験は、別の水槽、別の油・処理剤でおこなったものであるが、このような系統的な試験をおこなってゆくことは応用上必要なことと思われる。

(3) ここでとりあつかった拡散は、比較的、空間時間スケールのちいさい範囲で考えている。海洋における拡散現象は、このほかにも、異なった要因を持ってより大きなスケールで生じていることに注意しなければならず、油・処理剤の拡散を考えるとき必要に応じてとりいれなければならない。

また、実際には水平方向の拡散も同時におきるわけ



図一19 処理剤の量を変化させたときの濃度変化 (B重油 8200cc)

であるから、三次元的な拡散を考える必要がある。

最後に、理論的問題点について述べる。

(1) 拡散係数をみちびくのに、流速を測定しそれを整理するという方法をとった。これは、どの大きさの粒子も流れとともに運ばれること、すなわちどの大きさの粒子に対しても拡散係数が同じと考えたことによる。しかし、粒径によって流れとくに変化する流れに対する追隨の仕方は異なるとみるのが当然である。同波数 ω に対する応答をみるため

$$M \frac{dv}{dt} = k(u \cos \omega t - v)$$

なる方程式を解く。M は粒子の質量、 v は速度、 k は抵抗係数、 $u \cos \omega t$ は周期的な水流速度である。 v の RMS は

$$\sqrt{\overline{v^2}} = u \sqrt{1/2(1 + M^2 \omega^2 / k^2)}$$

となり、粒子が大きく、周波数が大きく、抵抗係数が小さいほど追隨しにくい。

波(A)と(B)では、 $\omega \approx 2\pi(f \approx 1\text{Hz})$ となり

$$\overline{v^2} / u^2 = 1 / (1 + 2 \times 10^4 R^2)$$

で、 $R < 0.1 \text{ cm}$ の粒子はほぼ波浪主成分に追隨する。

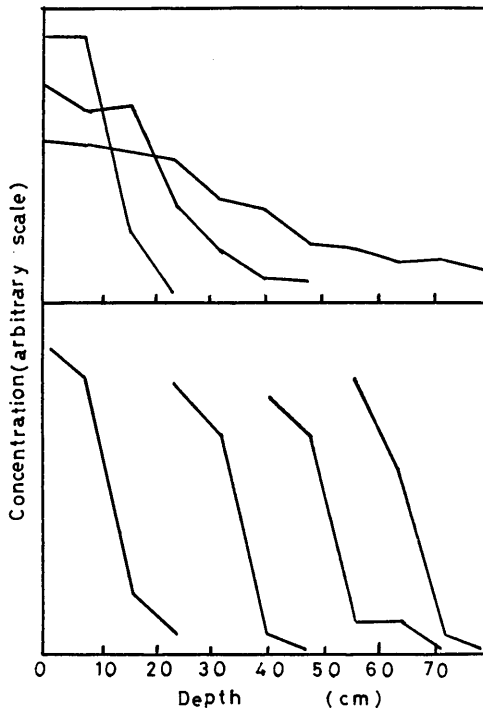


図-20 光による濃度測定の実例
(上; 油20cc処理剤10cc, 下; 油250cc, 処理剤200cc)

しかし乱流成分の方は、 ω が大となるので追隨できる粒径の限界はもっと小になる。本研究では、拡散係数をみちびくのに、0.05 sec 間隔でデータをとったので、多くとも 20 Hz の乱流成分をあつかっていることになり、 $R < 0.03 \text{ cm}$ の粒子、すなわち本実験の範囲の粒子は、ほぼこの乱流成分に追隨している。

(2) 非定常拡散については、理論的考察・実験ともに発展の余地をのこしている。初期条件は2通り考察したが、ともに定常解に近づく。しかし、それぞれ特徴をもっていて、デルタ関数型の初期条件の場合は濃度分布の山がくずれるような経過で定常解に、階段関数型の初期条件の場合は、表面をよぎって物質が「沈んで」ゆくような経過で定常解に近づく。この2通りの解がそれぞれ適合するような条件を考えると、前者は油の量がすくなく全部乳化分散されるような場合、後者は油の量が多く表面にいつまでも油層が残るような場合に当ると思われる。図-20に、それぞれの特徴をよくあらわしている光による濃度測定の結果をしめておく。

(3) 計算した時定数は、支配的な粒径に対するものを考えあわせると、過大な感じがする。何か、拡散をはやめる要因が、垂直拡散係数以外にあるようにみえ

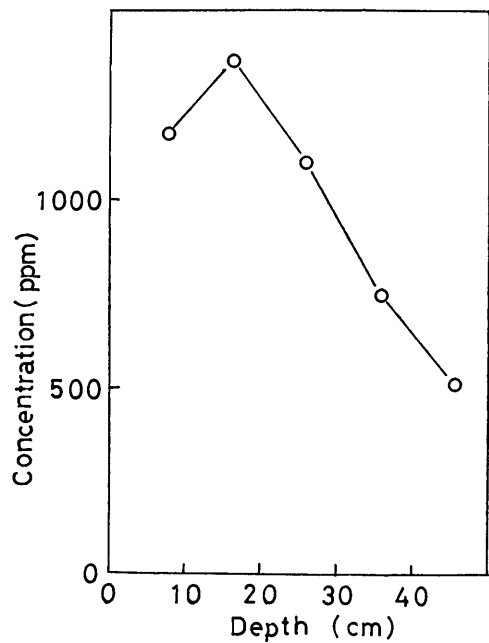


図-21 濃度極大値の存在
波(A) (油 250cc, 処理剤 200cc)

る。あらかじめ、油と処理剤をよく混合して散布した場合、図-21のように、最大濃度の場所が表面でなく、すこし下ったところにある。この差は対数目盛のグラフ上で議論する限り、あまり目立たないが、常にこの傾向があらわれているので単なる測定誤差でない。この極大の存在は、他の要因（シア拡散など）を考慮しない限り説明つかないと思われる。

参 考 文 献

- 1) T.S. KUHN
A Convenient General Solution of The Confluent Hypergeometric Equation, Analytic and Numerical Development.
Quarterly of Applied Mathematics.
vol. 9, No. 1, 1951, pp 1.
- 2) 森口繁一, 宇田川銈久, 一松 信
数学公式 岩波全書 1963
- 3) Whittaker and Watson,
Modern Analysis.