

修士論文

対オリフィスから生成する気泡の相互干渉

1~53 ページ 完

平成 15 年 2 月 14 日 提出

指導教官 庄司正弘 教授

16196 宮崎大輔

目次

1. 序論	3
1.1 研究の背景	4
1.2 従来の研究	6
1.3 本研究の目的	8
2. 実験	9
2.1 実験概要	10
2.2 実験仕様	11
2.3 実験方法	15
3. 実験結果	16
3.1 単気泡	18
3.1.1 ビデオ画像と波形との対応	18
3.1.2 周波数特性	21
3.2 対気泡	23
3.2.1 気泡の発生挙動	23
3.2.2 スペクトログラム	27
3.2.3 オリフィス間隔による違い	32
4. 考察	35
4.1 単一オリフィス	36
4.2 対オリフィス	37
5. 結論	45
参考文献	47
謝辞	48
付録	

1. 序論

- 1.1 研究の背景
- 1.2 従来の研究
- 1.3 本研究の目的

1.1 研究の背景

沸騰現象の気泡干渉

沸騰現象では、気泡間でさまざまな干渉が生じている^[1]が、その相互干渉には、Fig. 1.1のように

1. 気泡と加熱面の相互作用
2. 気泡と周辺流体の相互作用
3. ミクロ対流の気泡生成に及ぼす影響
4. 加熱面内気泡核間の相互作用

がある。このように、沸騰気泡はいろいろな要因が複雑に絡み合っていて理解するのは非常に困難である。多くの研究者が沸騰気泡についてモデルや実験により理解に努めているが、現在に至るまで物理的な理解が完全に成されているとはいえない。

そこで、沸騰気泡の基礎研究として、沸騰気泡に比べて簡単な系である等温系による気泡生成について理解を深めるといふ研究が行われている。

化学工学の分野から見た応用

等温系気泡は化学工学の分野でも研究が進められている。その背景には気泡塔やバイオリクター (Fig. 1.2) への応用が考えられている。これは、液体中に気体 (気泡) を通過させることによって化学反応を起こすためのもので、污水处理などで利用されている。気泡の発生の機構が分かれば、より効率的な反応装置の設計ができるようになる。

沸騰気泡と等温系気泡の対応関係

等温系の気泡生成は沸騰気泡の簡単な系とされているが、その2つの現象の対応関係については、高木らの研究^[2]に拠るが、ここにその内容について簡単に触れておく。

沸騰現象におけるキャビティ (発泡核)、加熱面の温度変動、加熱面の熱容量は、それぞれ等温系におけるオリフィス、チャンバー (空気溜り部分) の圧力変動、チャンバー容積に対応している (Table. 1.1)。

沸騰気泡は、熱を供給して加熱面上の発泡核となるキャビティから気泡を生成する。それに対して空気-水の等温系気泡では、空気を供給して発泡面上に開けた穴であるオリフィスから気泡を生成している。また、沸騰気泡では、気泡が生成する毎に熱を奪うので加熱面の温度変化が起こるのに対し、等温系気泡では気泡の生成によりチャンバーの圧力が変化する。沸騰系において熱の供給と温度変化との関係には加熱面の熱容量が影響する一方で、等温系において空気の供給と圧力変動との関係にはチャンバー容積が影響している。

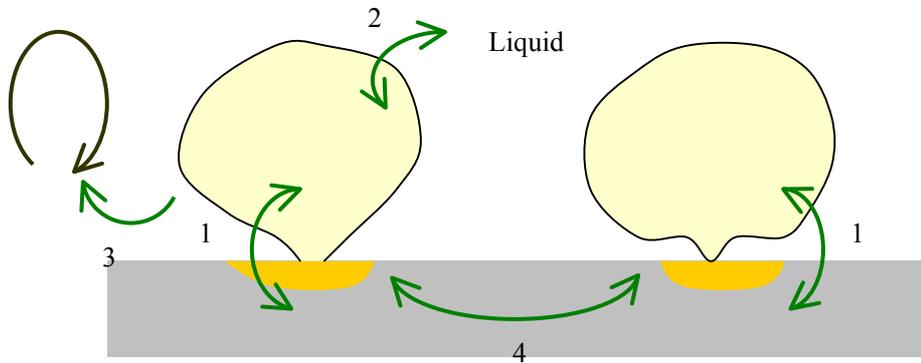


Fig.1.1 Aspects of influence of bubbles generation

1. Interaction between nucleation site and heating surface
 2. Interaction between bubbles wall and liquid
 3. Disturbance of natural convection
 4. Thermal interaction between nucleation sites

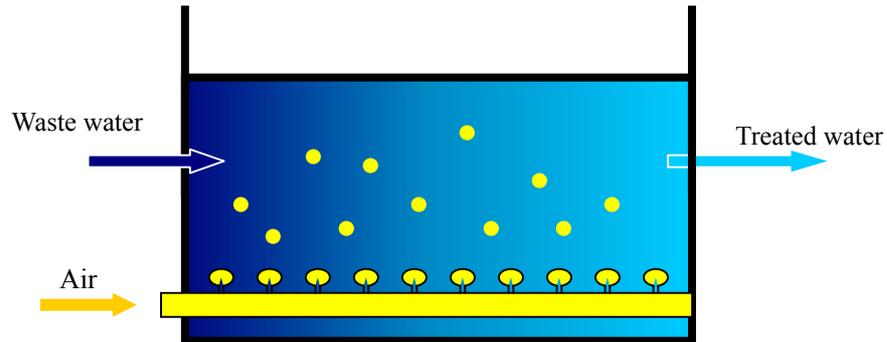


Fig.1.2 Schematic drawing of bubble-column bioreactor

Table.1.1 Analogy between boiling and isothermal bubbling

Boiling	Isothermal bubbling
Heat flux	Air flow rate
Fluctuations in temperature	Fluctuation in chamber pressure
Capacity of heat surface	Chamber volume

1.2 従来の研究

等温系気泡の研究

等温系気泡の研究は化学工学や機械工学の分野で過去に多く行われているが、それらの研究には、気泡離脱間隔や気泡径に関して時間平均をとるなど統計的な解析を用いているものが多い。

そこで当研究室では、空気-水等温系での気泡生成の非線形特性に注目した研究を行っている。

はじめに単一オリフィスによる実験を行い、熱線流速計を用いてオリフィス近傍の液体（水）の速度変動を測定し、周辺流体の流速変動の波形には気体（空気）供給量が増加するにつれて基本周期の倍分岐がみられた (Fig. 1.3)。

また、等温系気泡の研究は数十年に渡り数多くされているが、それらの殆どが単一気泡を扱ったものと無数の発泡点を扱ったものに分けられる。前者は気泡間の相互作用には触れていないのに対して、後者は気泡間の相互作用については大局的な理解にとどめる立場といえる。そこで、気泡間の相互作用に重点をおき、2つの発泡点についてそれらが互いにどのような影響を与えているか理解することを目的とした研究も行っている。

佐井, 小川の研究^[3]

2つのオリフィスへ独立に空気を供給した場合と、単一供給系にした場合の実験を行った。結果、前者では相互干渉はあまり見られず、2つのオリフィスから単一気泡と同様の発泡挙動を得た。後者の実験では、流量が十分大きいときには2つのオリフィスから同時、同周期で気泡が発生し、流量が十分小さいときには片方のオリフィスからのみ気泡が発生していることを発見した。

単一供給系において、2つのオリフィスから気泡が発生する空気流量範囲と片方のオリフィスからのみ発泡する空気流量範囲の境界となる値を臨界流量と名付け、その値にはヒステリシスがあることなどが分かった。

戸松の研究^[4]

佐井らの研究を受けて、戸松は空気単一供給系で実験を行い、臨界流量はあるひとつの流量に決まるものではなく、遷移領域と呼べるような流量の領域があることを発見し、その遷移領域における気泡発生の挙動は非常に複雑であるという結論に達した。

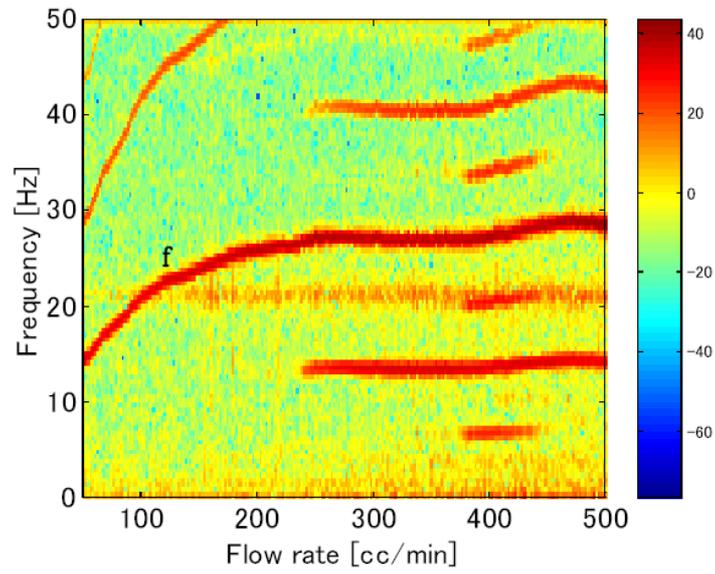


Fig.1.3 spectrogram. $d=2\text{mm}$, $V_c=0\text{cc}$, $q=50\sim 500\text{ml/min}$ ($Re=34\sim 335$)
(Nogami, 2001)

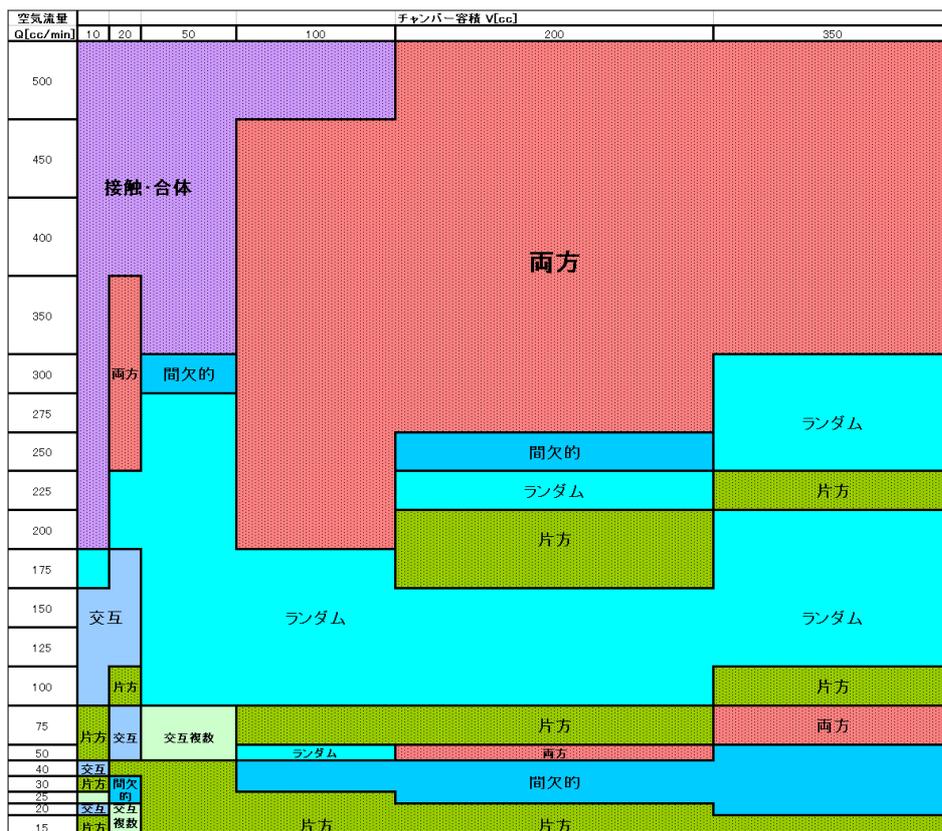


Fig.1.4 bubbling pattern map. Orifice diameter: 2mm, Chamber volume: 10ml, spacing: 30mm, Air flow rate: 500~15ml/min

1.3 本研究の目的

本研究では、2つのオリフィスを用いて等温系気泡の実験を行う。

まず過去の研究において複雑な挙動を示すとされる条件(オリフィス径 $d=2\text{mm}$) について現象の理解、発泡挙動の特性等を調べる。

そしてオリフィス間距離を変化させたときの発泡挙動の変化を見ることによってオリフィス間隔が気泡発生に及ぼす影響を調べる。

2. 実験

2.1 実験概要

2.2 実験仕様

2.3 実験装置

2.1 実験概要

実験は空気-水の等温系で2つのオリフィスについて行った。実験パラメタにはオリフィス間隔、空気流量を選び、各実験条件で気泡を発生させた。

測定には高速度ビデオカメラと熱線流速計を用いた。熱線流速計は各オリフィスについて計2つ使い、それぞれのオリフィス周辺について液体の流速変動を測定した。ビデオカメラと熱線流速計は同期させ測定することが可能である。

本研究は気泡の相互干渉について理解することを目的としているが、対気泡を理解するために単一気泡の実験も行った。

2つのオリフィスでの実験では、始めは液体部分の干渉が起こらないように十分な距離のオリフィス間隔をとり、チャンバー容積をパラメタとして、空気流量により気泡の発生挙動の変化について調べた。そして次にオリフィス径を固定し、チャンバー容積とオリフィス間隔による気泡発生の挙動の変化を調べた。

2.2 実験仕様

各パラメータを変化させて2つのオリフィスからの気泡発生の様子を観測する。

オリフィス径：0.2, 0.5, 1, 2, 5mm

オリフィス間隔：3, 4, 6, 8, 12, 16, 30mm ($s/D=0.75, 1, 1.5, 2, 3, 4, 7.5$)

チャンバー容積：10, 20, 50, 100, 200, 300ml

空気流量：500ml/min, 50ml/minの流量計を用いて測定。

内径200mm×200mmの亚克力製水槽の中央に蒸留水を貯め、水面から深さ180mmの位置に直径60mm厚さ1mmの円形の発泡面（真鍮製）を設置し、2つのオリフィスの中点が円の中心になるようにオリフィスを配置している。オリフィス間隔ごとに別個に発泡面を準備した。

オリフィス間隔は気泡径の1倍以下、1~3倍、それ以上の十分離れた値として、7種類設定した。この際に気泡径は表面張力が最大するとき（気泡が半球状のとき）の値と釣り合うだけの浮力が得られる気泡体積から予測し、約4mmとした。

チャンバー部は直径60mmの円柱形で、高さを変えることで容積を決めている。また、チャンバー内に供給する空気流量を一定に保つために、流量計とチャンバーとの間に直径0.3mm、長さ100mmのキャピラリーチューブを通してしている。

測定は熱線流速計及び高速度ビデオカメラによる。熱線流速計で用いたホットワイヤーには、直径 $20\mu\text{m}$ の白金線（焼きなまし済み）を用いた。高速度ビデオカメラはシャッタースピード1/1000、フレームレートは1000fpsで測定した。

実験1. 単一気泡の実験

オリフィス径:2.0mm

チャンバー容積:10, 100ml

空気流量:0~500ml/min

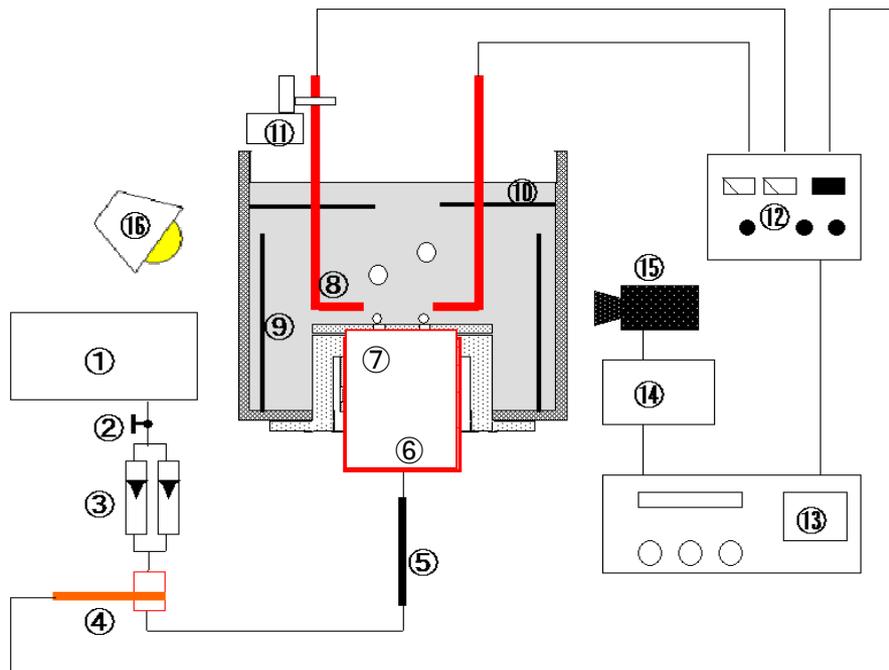
実験2. 対気泡の実験

オリフィス直径:2mm 固定

オリフィス間隔:3, 4, 6, 8, 12, 16, 30mm

チャンバー容積:10, 100ml

空気流量:0~500ml/min



- | | |
|------------------|----------------------------|
| 1.Compressor | 9.Wire netting |
| 2.Needle valve | 10.Surface wave buffer |
| 3.Flow meter | 11.Position adjustor |
| 4.Hot film probe | 12.Anemometer |
| 5.Capillary tube | 13.Digital recorder |
| 6.Chamber | 14.Video recorder |
| 7.Orifice | 15.High speed video camera |
| 8.Hot film probe | 16.Light |

Fig.2.1 Experimental apparatus

実験装置

1:コンプレッサー（日立製 容積 38L, 最高使用圧力 0.88Mpa(9kgf/cm²)）

空気を圧縮して高圧にする. コンプレッサー内圧力は 0.5 から 0.88Mpa の間で保たれ, 0.5Mpa を下回ると作動し, 0.88Mpa まで加圧する.

2:減圧弁

コンプレッサー出口の減圧弁により, コンプレッサーより供給する空気圧力を一定に保つことができるようになっている.

3:流量計（空気）

空気の流量を測定するために用いる浮き子式流量計. 500ml/min（目盛間隔 50ml/min）のものとして 50ml/min(目盛間隔 5ml/min)のものを必要に応じて使い分ける.

4:ホットフィルムプローブ

空気の流速を測るために使用していた.

5:キャピラリーチューブ

直径 0.3mm, 長さ 100mm の毛細管.

十分な流路抵抗をあたえることでチャンバーへの空気供給量を安定させるために用いている.

6:チャンバー

直径 60mm の円柱形で, アクリル柱を入れてチャンバーの高さを変えることにより, 容積を 6 段階 (10, 20, 50, 100, 200, 300ml) に変化させる.

7:オリフィス

厚さ 1mm の真鍮板の 2 箇所穴をあけてオリフィスとしている. 直径 60mm の円の中央に対して互いに点対称な位置にオリフィスを作っている. 発泡面は, 各実験条件についてそれぞれ別の真鍮板を使っている.

8:ホットプローブ

各オリフィスにひとつずつ設置している. ホットワイヤーとして直径 $20\mu\text{m}$ の白金線（焼きなまし済）を使い, プローブに半田付けした.

9, 10:緩衝板

壁面や水面振動が気泡生成に影響を消すために置いた.

11:プローブ支持部

縦、横、高さの 3 方向について精度良く位置決めができるようにしている.

12:熱線流速計（KANOMAX MODEL1010）

プローブ付近の流速変動を電圧変動として出力する.

13 デジタルレコーダ

熱線流速計の出力を記録する.

14:ビデオレコーダ

高速度ビデオカメラで撮影した映像をビデオテープに保存する. 1000fps での測定に対してビデオテープは 30fps で記録するので測定時間の約 30 倍に時間をかけて記録することになる.

15: 高速度ビデオカメラ

シャッタースピード 1/1000, サンプルングレート 1000fps で測定した. 最大 8.7 秒間まで測定可能.

16: 光源

直接気泡を照らすのではなく, 間にトレーシングペーパーを置いて光を拡散させている.

2.3 実験方法

空気流量を段階的に変化させる場合

浮き子式流量計により空気流量を任意の値に固定し、空気流量が安定した後（3分以上待った後）に測定を行った。オリフィス周りの流速変動は1分程計測した。

空気流量を準静的に変化させる場合

コンプレッサーの電源を落としたまま空気の供給を続け、コンプレッサー内の圧力が大気圧になるまで測定し続ける。空気流量は次第に減少していくので、一定時間ごと、あるいは流量計の目盛ごとに時間及びその時の空気流量を順次測定していく。熱線流速計は実験を通して常に測定しており、高速度ビデオカメラは必要に応じて記録する。このため、熱線流速計の波形とビデオカメラの画像とを同期させることはできない。

なお、ある発泡挙動が生じる空気流量にはヒステリシスがあることから、流量の調節は十分に大きい空気流量から下げていくことで行った。

3. 実験結果

3.1 単一気泡

3.1.1 ビデオ画像と波形との対応

3.1.2 周波数特性

3.2 対気泡

3.2.1 気泡の発生挙動

3.2.2 スペクトログラム

3.2.3 オリフィス間隔による違い

この章では、それぞれの実験についての結果について述べる。
はじめに実験結果やその解析方法について幾つか註釈をつけておく。

空気流量の測定

空気流量の計測には、浮き子式流量計と熱線流速計の併用を考えた。浮き子式流量計の問題点として、流量計の位置での圧力と温度により流量を校正する必要があること、また目盛間隔が一定でないことから目盛にない空気流量の計測の誤差が大きくなることが考えられたからである。

浮き子式流量計の目盛がある流量での熱線流速計の出力結果から校正曲線を作り、流量測定を試みた。しかし、着目する空気流量が予想以上に小さくなり自然対流による熱線流速計の誤差が大きいという結果になり、結論としては浮き子式流量計を基準に空気流量を決定することとなった。

以降の実験結果に用いた空気流量は、浮き子式流量計を基準にしている。また、ビデオ画像により得た気泡体積から空気流量を求めることもできるが、これは流量計の値とよく一致した。

気泡体積の計算方法

本研究では、ビデオ画像から気泡体積を計算している。オリフィス中央から垂直に線を引き、フレーム毎に気泡の左（または右）半分の輪郭をとり、それぞれの高さでの気泡の横幅（中心に引いた線からの距離）を測る。そしてそれぞれの高さについて、気泡の形は円形と仮定して面積を計算し高さ方向に積分するという方法を用いた。

この方法では計算に気泡の左（または右）半分だけを使っているが、画像から気泡の形が左右線対称であると考えられる場合だけ気泡体積を計算した。従って、オリフィス間隔が狭く気泡の合体が起こる場合や、空気流量が大きく気泡が円形とは言えないものに関しては計算を行わなかった。実際には、オリフィス間隔 $s=8\text{mm}$ 以上、空気流量は 200ml/min 以下の範囲では気泡径はほぼ球形となり、それ以外の条件でもビデオ画像から適宜判断した。

オリフィス出口の熱線流速計の出力電圧波形

オリフィス出口にある熱線流速計の出力電圧波形は、数値ではなく、他の時刻での出力電圧との相対的な高さで評価し、他に比べて高ければ流速が速く、電圧が低ければ流速は遅いと判断するが、流速の値には触れない。そして、本研究ではパラメタを変えた実験の結果どうしでの比較による流速の評価も行わない。

スペクトログラム

以降の項では波形の周波数特性の評価にスペクトログラムを使っている。スペクトログラムは音声分析でよく使われるものであるが、これは横軸（時間など）の各点における信号のパワースペクトルを計算し、縦軸の各周波数成分について強さを色別に表示したものをいう。スペクトログラムにおいて強く示される周波数は基本周波数と呼ぶ周波数とその整数倍の周波数となっている。これは、周期関数はその基本周波数とその整数倍の周波数の総和で表されるためである。従って、スペクトログラムにおいては基本周波数に着目し、その基本周波数の変化を見ることで現象の変化を捉える。

3.1 単気泡

ここでは、単一オリフィスについての実験結果を示す。

単一オリフィスでの実験は阿部、野上らが研究しているので、ここでは簡単に示す。

まず、気泡ひとつが成長、離脱する過程における熱線流速計の出力電圧の波形を示し、次にその波形の周波数特性について述べる。

3.1.1 ビデオ画像と波形との対応

Fig3.1.1 から Fig3.1.4 はビデオ画像と波形との関係についてのグラフである。

熱線流速計の出力波形のグラフ中にある矢印は、それぞれ極値の部分を指しており、各時刻におけるビデオ画像をその下に示している。そのため、それぞれのビデオ画像の時間間隔は等しくないことに注意されたい。

これらの実験結果から分かるように、熱線流速計の出力波形には、同じような波形が繰り返し現われていることが確認できる。これは気泡がひとつ生成する過程での気泡周りの流体速度変動は同じであることを示している。しかしチャンバー容積や空気流量を変化させると、その気泡がひとつ生成する過程での波形は異なっている。

また、気泡がひとつ成長、離脱する過程での出力波形とビデオ画像に注目してみると、各実験条件ともに山が2つまたは3つの波形を描いている。そして波形の極値については、気泡が成長をはじめた時に極小値をとること、その後ネッキングの過程で極大値、極小値となること、気泡が離脱後に極大値をとっていることが分かる。

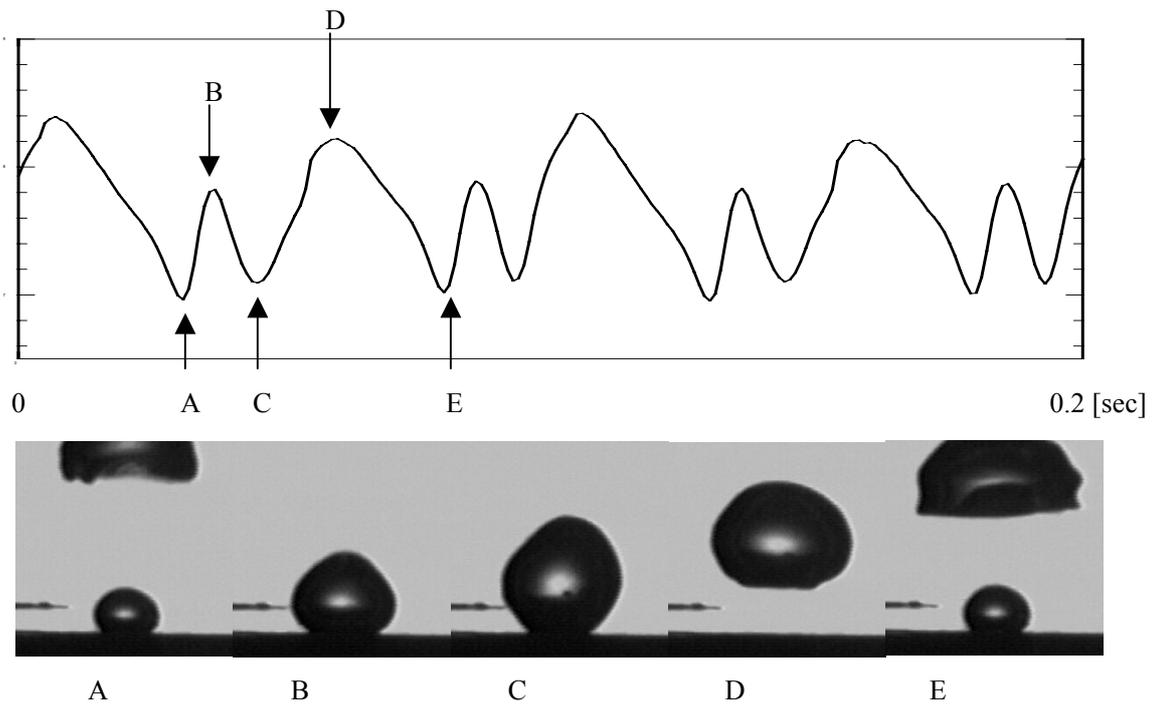


Fig.3.1.1 wave fluctuation of anemometer and picture
 $d=2\text{mm}, V_c=100\text{ml}, Q=400\text{ml}/\text{min}$

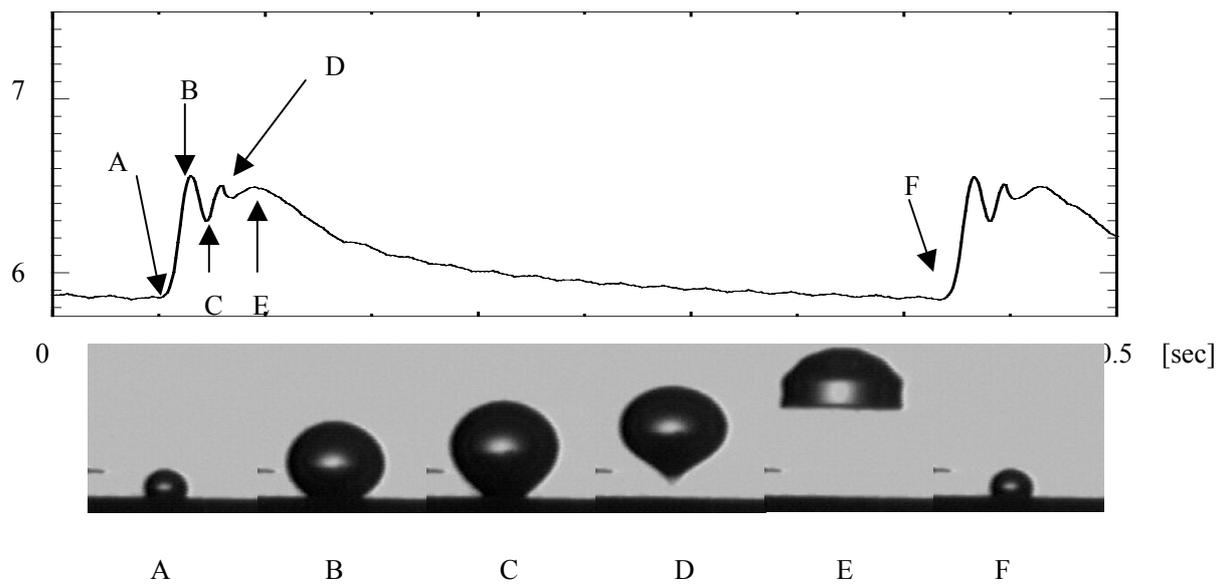


Fig.3.1.2 wave fluctuation of anemometer and picture
 $d=2\text{mm}, V_c=100\text{ml}, Q=50\text{ml}/\text{min}$

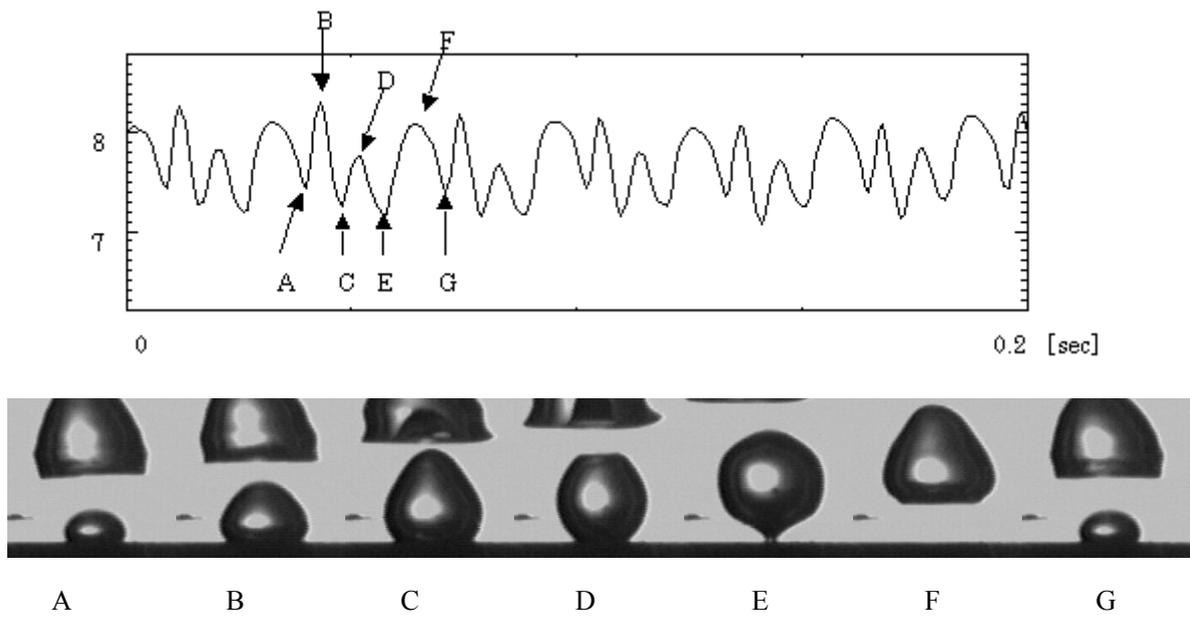


Fig.3.1.3 wave fluctuation of anemometer and picture
($d=2\text{mm}, V=20\text{ml}, Q=400\text{ml/min}$)

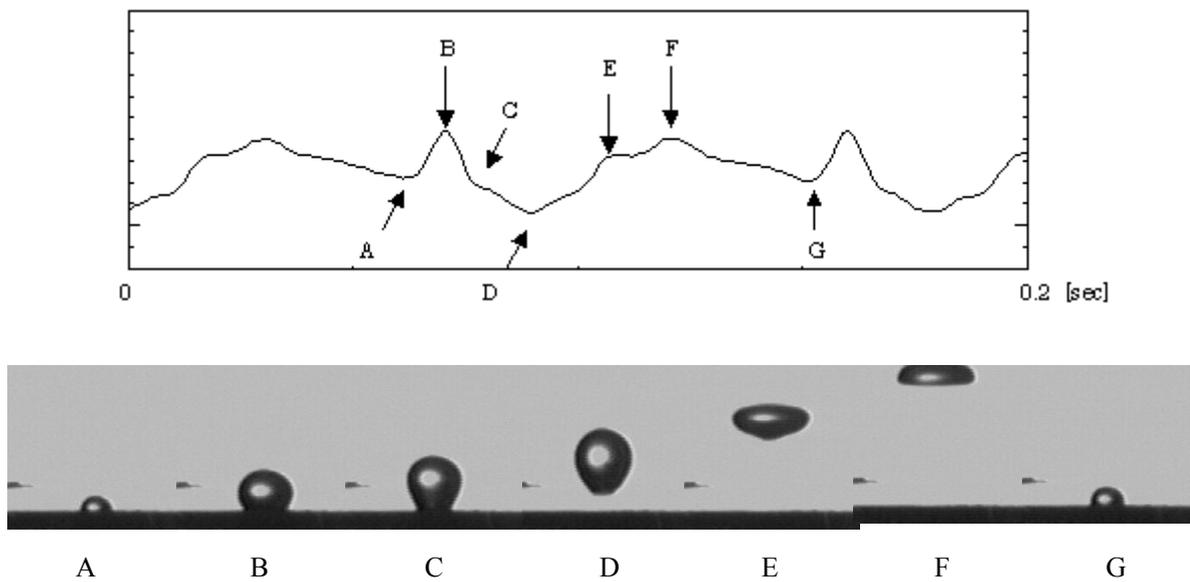


Fig.3.1.4 wave fluctuation of anemometer and picture
($d=2\text{mm}, V=20\text{ml}, Q=35/\text{min}$)

3.1.2 周波数特性

Fig 3.1.5 は空気流量を準静的に変化させた実験の結果を使いスペクトログラムを描いたものである。ここではスペクトログラムにおいて特徴的な部分について、現象との対応を主に解説する。

基本周波数

スペクトログラムで強い周波数成分を示すもののうち、殆どの流量において基本周波数となっていて、且つ流量によって連続的に変化しているように見えるものがある。この周波数は気泡の離脱の周波数に対応している。空気流量が増加すれば気泡の離脱間隔は短くなるため、周波数は高くなっていく。

周期倍分岐

流量によって基本周波数の半分の周波数が強くなっていることがある。このようにパラメタの変化に伴い現象の周期が倍になっていく (Fig. 3.1.6 に一例を示している) ことを周期倍分岐という。周期倍分岐はカオス理論において有名な現象であり、周期が 2, 4, 8 倍と分岐していき、あるパラメタを境に系はカオスの状態に入る。

この実験でプローブの出力波形の周期が 2 倍になるとき、気泡が 2 つ生成する過程をひとまとまりとして、それを繰り返すような現象が起こっているからだが、この場合はさらに 2 種類に分類できる。

第一に、ひとつの気泡と、その次の気泡について体積を比較すると、ほとんど差がないが (Fig. 3.1.7), それぞれの気泡について気泡の待ち時間、気泡の成長時間に分けてみると大きな違いが見られる場合がある。2 種類の気泡を A, B (実際の発泡挙動でいうと、順に気泡 A, 気泡 B, 気泡 A, 気泡 B, 気泡 A のように気泡が生成していると考え) として、それぞれについて気泡の待ち時間と成長時間を計測すると Table 3.1.1 のようになる。ここで、待ち時間と成長時間の値のばらつきは各項目について $\pm 1\text{ms}$ 以下であった。高速度ビデオカメラを 1000fps で撮影していることから、これらの時間のばらつきは無いに等しいと考えられる。

第二に、離脱後の挙動が違う気泡が交互に現われるものがある。この場合は気泡が成長、離脱する過程で差は殆ど無く、気泡体積も等しい。しかし気泡離脱後の上昇速度に差が生じている為に熱線流速計の波形は異なるものとなっている。これは先行気泡の影響によるものである。

気泡の離脱間隔が短いために、先行気泡がまだ十分遠くない位置にあるときに気泡が離脱するため、先の気泡に引き込まれるように気泡が速く上昇していく。一方でその次の気泡が離脱する時は、ひとつ前の気泡が速く上昇したために先行気泡との距離があり、引き込みが起こらない。この繰り返しの現象が起こっている。この場合の周期倍分岐は過去に報告されている。

なお、空気流量を更に上げていくと、4 周期、8 周期と更に周期倍分岐現象が見られるが、これに関しては過去に報告されているので省略する。

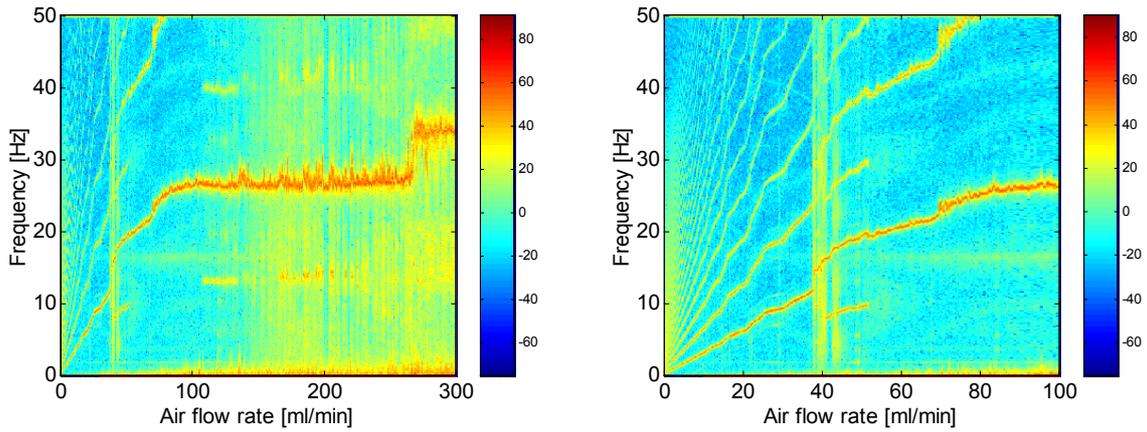


Fig.3.1.5 Spectrogram. $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, single orifice

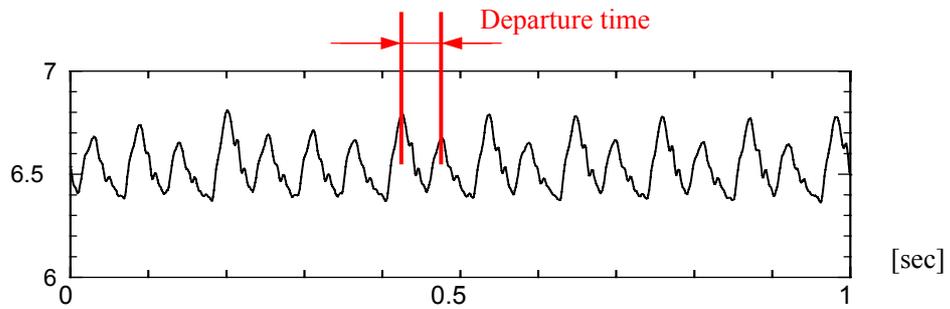


Fig.3.1.6 Anemometer output wave $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $Q=45\text{ml/min}$, single orifice

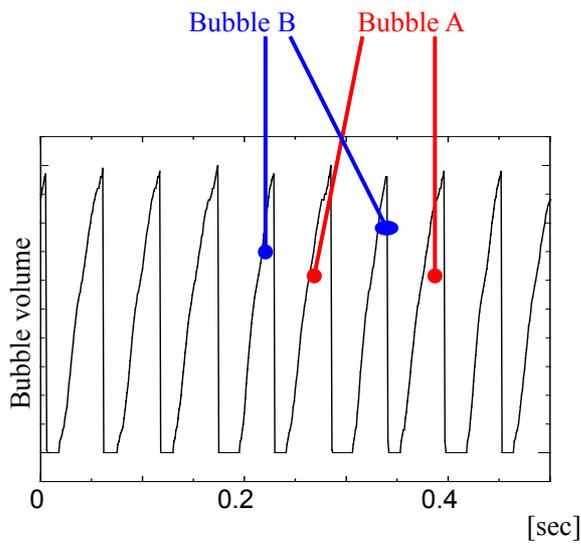


Table3.1.1 Comparison between one bubble (Bubble A) and next bubble (Bubble B) (bubble volume $A > B$)

	Bubble A	Bubble B
Waiting time [ms]	13	21
Growth time [ms]	43	33
Departure time [ms]	56	54

Fig.3.1.7 Bubble volume $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $Q=45\text{ml/min}$, single orifice

3.2 対気泡

3.2.1 気泡の発生挙動

対オリフィスでは気泡の生成の仕方にいくつか特徴的なものが見られたので以下にそれらについて簡単に説明し、その後それぞれの発泡挙動についてその特徴や熱線流速計の波形への現われ方について詳しく述べる。

ここでは、撮影したビデオ画像において気泡の離脱が確認できたときに気泡が離脱したと判断している。パラメタによっては、気泡直径が1mmに満たないような小さな気泡が時折発生することもあるが、気泡径の区別はしていない。

過去の研究では、臨界流量は、2つのオリフィスから気泡が生成する流量の領域と、どちらか1つのオリフィスからのみ気泡が生成する流量の領域の境界と定義していた。しかしこの定義はあいまいなもので、たとえば下記の交互発泡の場合では、評価する時間間隔が短ければ片方のオリフィスだけ活性と見ることが出来るし、十分な時間をとって評価すれば2つのオリフィスともに発泡していると見ることができる。以降では、臨界流量という表現は避け、次のように発泡挙動を分類する。

熱線流速計の出力波形と現象との対応については、ひとつの気泡が成長、離脱する過程についての波形と現象との対応は単一気泡について述べた時に記したので省く。ここでは両方からの発泡、交互、片方からのみの気泡生成が、それぞれ波形にどのような特徴を持って現われるか示す。

片方からのみの発泡 (Counterpart bubbling)

一方のオリフィスからのみ気泡が発生している場合をいう (Fig3. 2. 1)。

離脱周期は単一オリフィスのときと同じであり、気泡が生成する側の(活性化している)オリフィスの方の熱線流速計は気泡の生成により周期的な波形を描く。

気泡が生成しない側の(不活性な)オリフィスにある熱線流速計からも気泡離脱周期に対応した周期的な波形を得る。これは不活性なオリフィスでも気泡の成長は行われているからである。ただ表面張力を上回るだけの気泡体積にならず、気泡がチャンバー内に引き戻されている。そのために気泡が離脱することないが、オリフィス周辺の水に流れが生じているのである。

従ってある空気流量についてパワースペクトルのみによって発泡挙動を判断するのは難しい。スペクトログラムで見れば、前後の空気流量から気泡離脱間隔の周波数成分とそのときのパワースペクトルの強さが分かるので、それを基に片方発泡を判断できる。

交互発泡 (Alternant bubbling)

気泡が2つのオリフィスから互い違いに生成している現象のことである (Fig3. 2. 2)。

片方発泡の場合と比較すると、空気流量が2つのオリフィスに分配されるのでオリフィスひとつを通過する空気流量は半分になる。本研究の流量範囲では離脱時の気泡径はほぼ一定なので、気泡の離

脱間隔は片方発泡の2倍になる。それぞれの熱線流速計の波形は、各オリフィスでの気泡の離脱周期に対応した周期の波形を得る。

また、2つの熱線流速計の波形について相互相関を求めると、気泡離脱周期の半分の時間で極大となる。2つのオリフィスで互いに半周期だけずれた現象が生じているからである。

両方発泡(Simultaneous bubbling)

2つのオリフィスから同時に気泡が成長、離脱する現象である(Fig3.2.3)。

それぞれのオリフィスについて気泡の離脱周期の平均は同じで、ほぼ同時に気泡の成長が起こるため、2つの熱線流速計の波形で相互相関をとると遅れ時間がゼロで極大となる。

離脱周期は片方発泡と同じ周期のときと、その倍周期(交互発泡と同じ周期)のときの2種類ある。

ひとつには、片方発泡では気泡が発生しないほうのオリフィスにおいて気泡の引き込みが生じるが、空気流量が十分大きいときには、引き込みの際に千切れるように気泡が離脱することがあり、それが両方発泡に分類される。本研究では空気流量が十分大きい場合でのみ観測された。

もうひとつには、空気流量が小さいとき、交互発泡で2つのオリフィスの位相が同じような発泡が見られるときがある。本研究で特に注目している実験条件では

その他(Random bubbling)

以上3種類以外のものについては基本的にはランダムな発泡であると分類する。

ただし、非周期的な発泡であるだけで、現象自体がランダムに決定しているとは限らないことを註釈しておく。

非周期的な発泡でのパワースペクトルは特に強い周波数成分は見られない。

また、ここに分類されたものの中にも例えば次のような周期的な発泡挙動がある。しかしそれらはほとんど見られないのでその他としてまとめている。

・3倍周期(Fig3.2.4)

オリフィスAから気泡が2つ、その後オリフィスBから気泡が1つ、のような発泡現象を繰り返すもの。

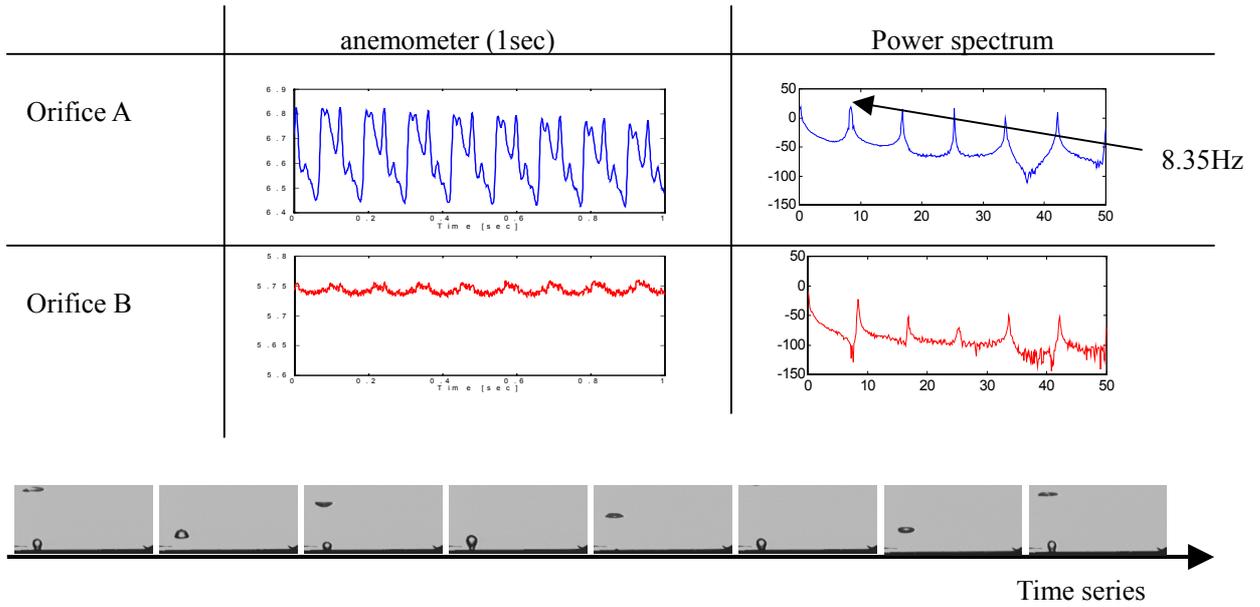


Fig3.2.1 ‘Counterpart’ bubbling (picture every 50msec)
 (d=2mm,V=10ml,s=30mm, Q= 35ml/min)

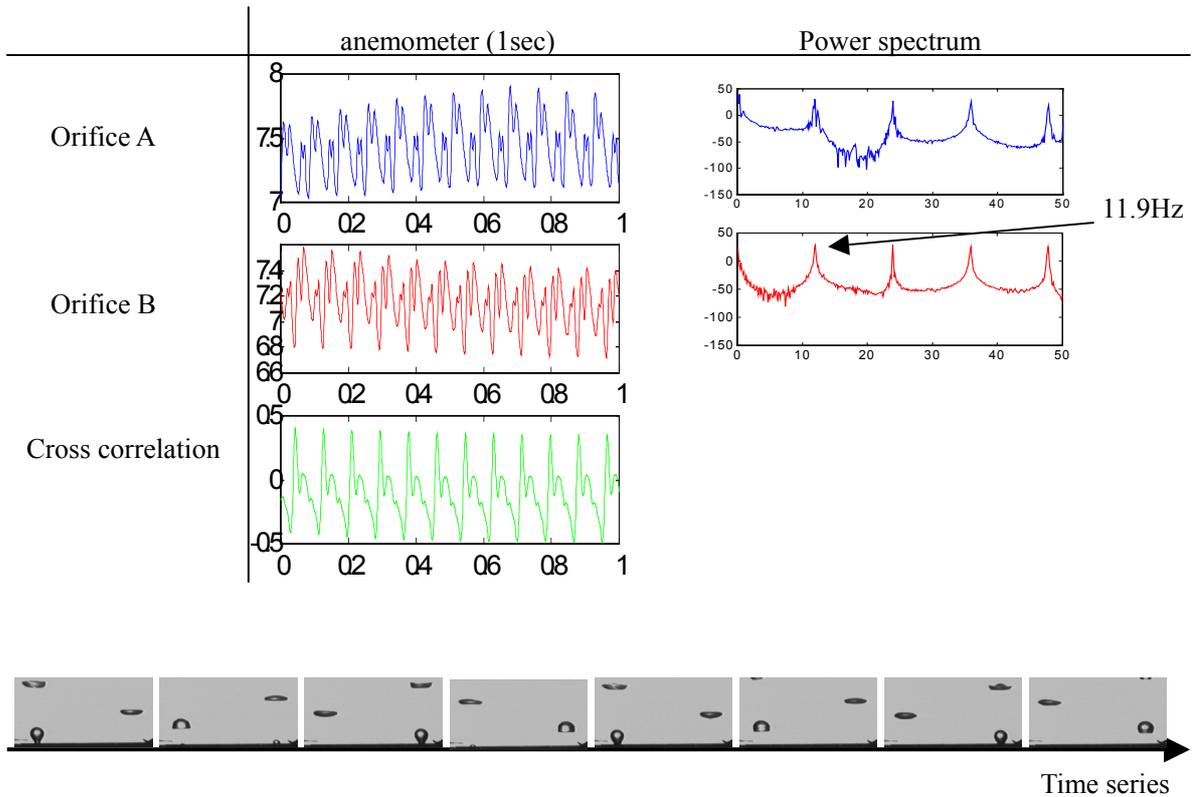


Fig3.2.2 ‘Alternant’ bubbling (picture: every 20msec)
 (d=2mm,V=10ml,s=30mm, Q=50ml/min)

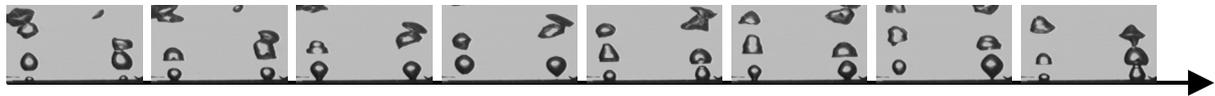
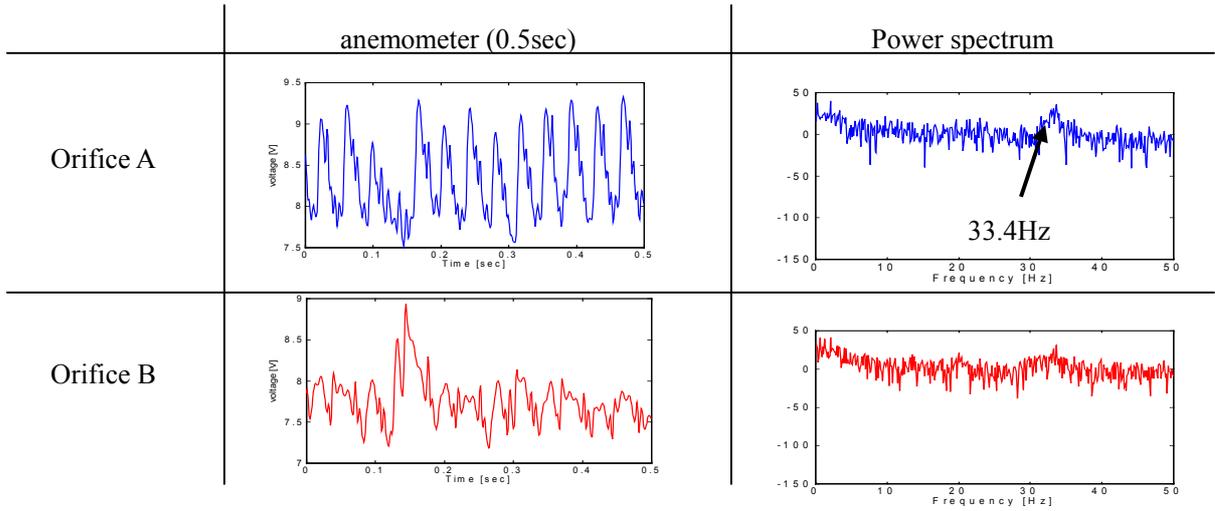
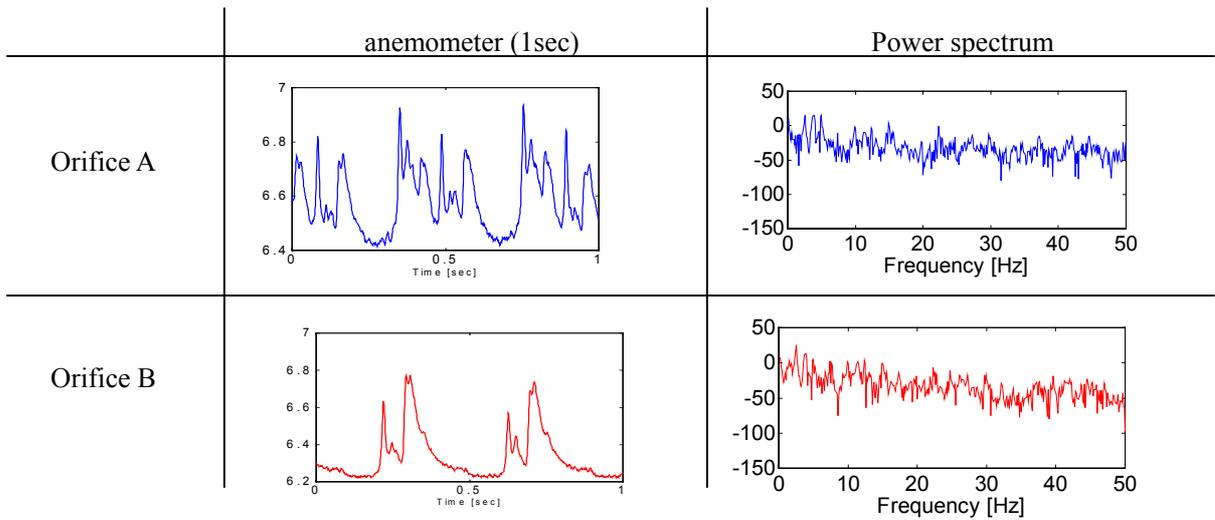


Fig3.2.3 ‘Simultaneous’ bubbling (picture every 10msec)

Time series

($d=2\text{mm}, V=10\text{ml}, s=30\text{mm}, Q=400\text{ml/min}$)



Time series



Time series

Fig3.2.4 Bubbling formation ‘3 times period’ (picture: every 50msec)

($d=2\text{mm}, V=10\text{ml}, s=30\text{mm}, Q=30\text{ml/min}$)

3.2.2 スペクトログラム

Fig. 3.2.5 から Fig. 3.2.11 は、オリフィス径 $d=2\text{mm}$ 、チャンバー容積 $V_c=10\text{ml}$ で、それぞれのオリフィス間隔について描いたスペクトログラムである。各グラフにおいて上側がオリフィス A、下側がオリフィス B のデータである。また、右側は空気流量が小さな範囲についての拡大図である。特に Fig. 3.2.5 にスペクトログラムと発泡現象とを対応させている。

スペクトログラムから全ての発泡挙動が分かるわけではないが、全体的な発泡挙動の把握には十分有用であるといえる。

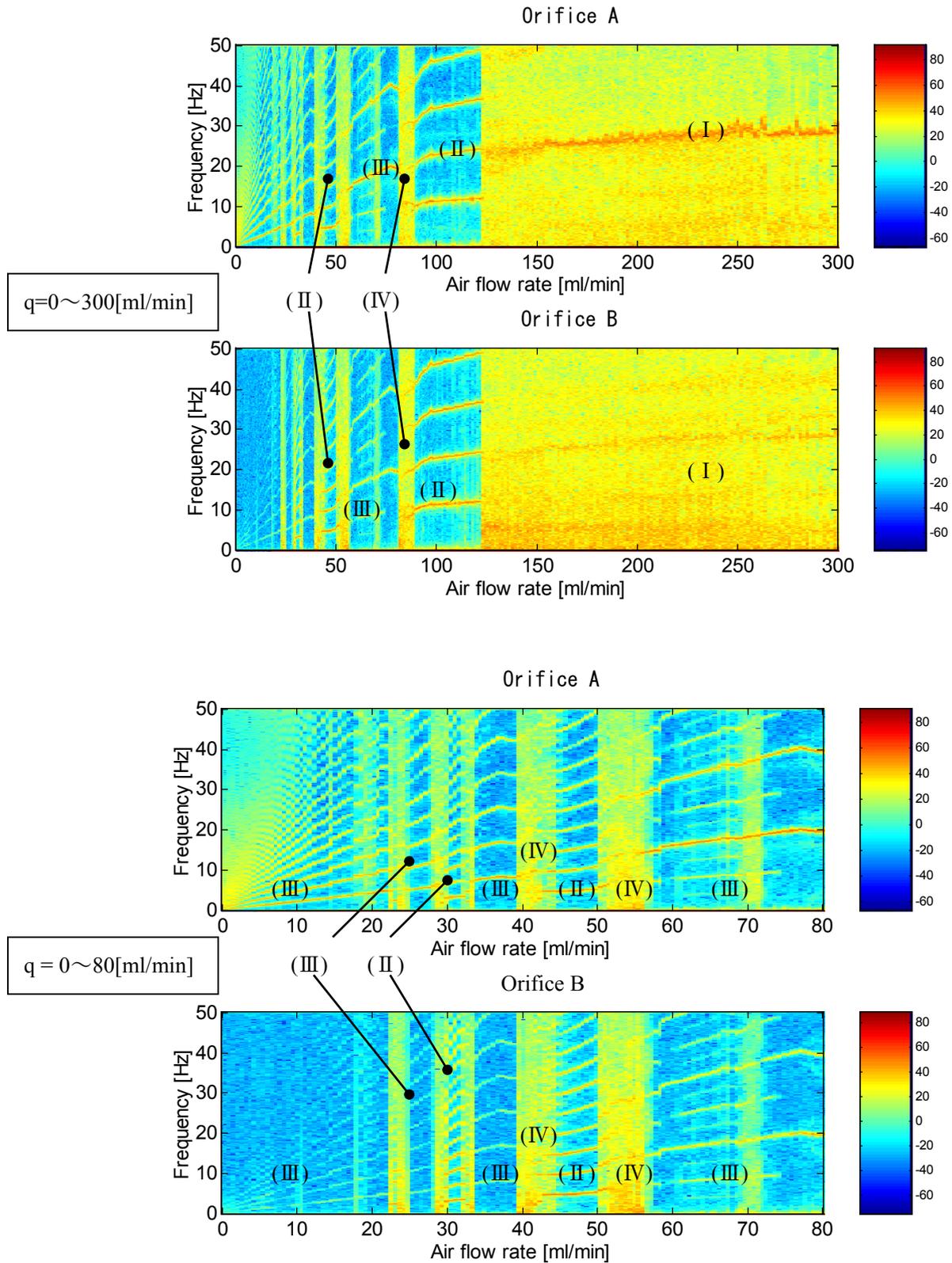


Fig.3.2.5 Spectrogram and bubble departure pattern. $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $s=30\text{mm}$

I : Simultaneous bubbling, II : Alternant bubbling, III: Counterpart bubbling, IV: Random bubbling. (Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

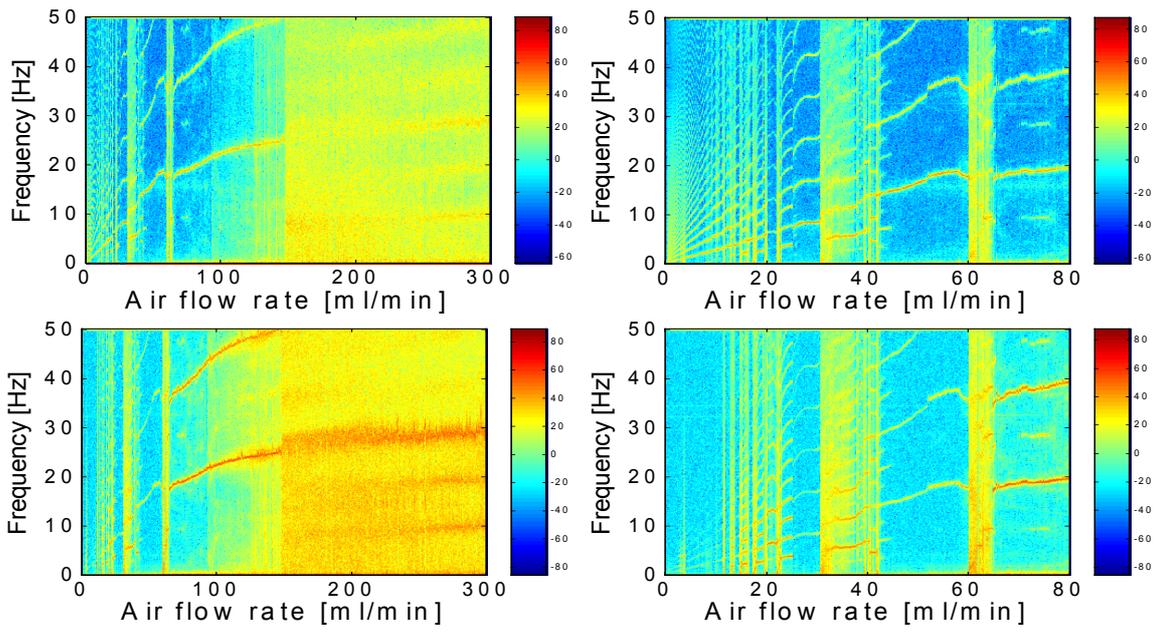


Fig.3.2.6 Spectrogram .d=2mm, Vc=10ml, s=16mm
(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

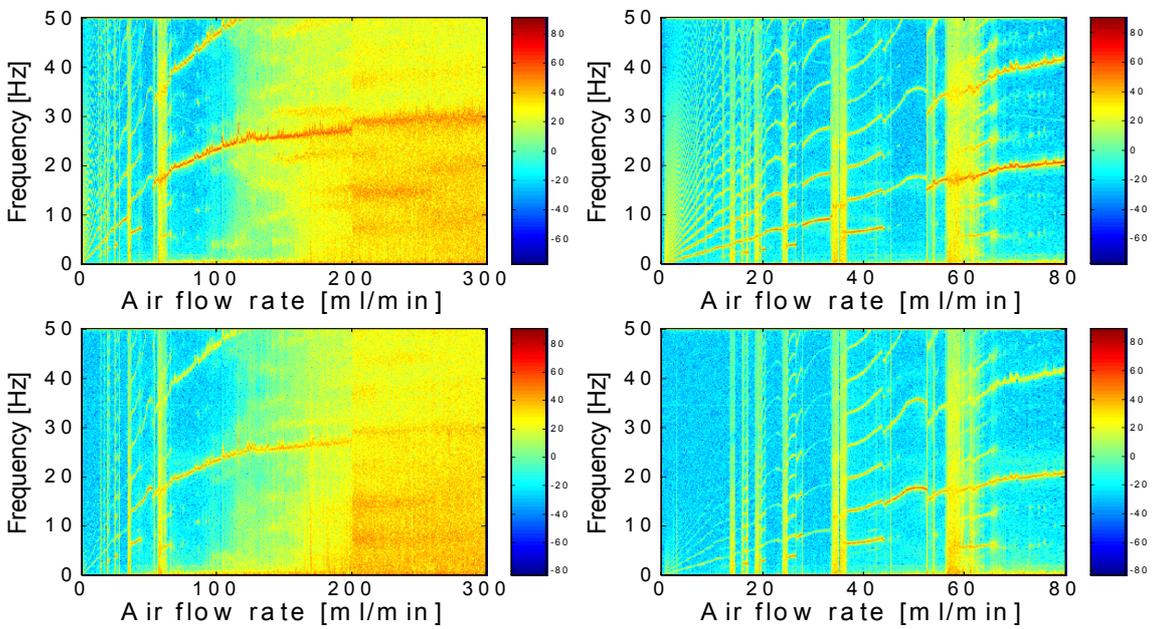


Fig.3.2.7 Spectrogram .d=2mm, Vc=10ml, s=12mm
(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

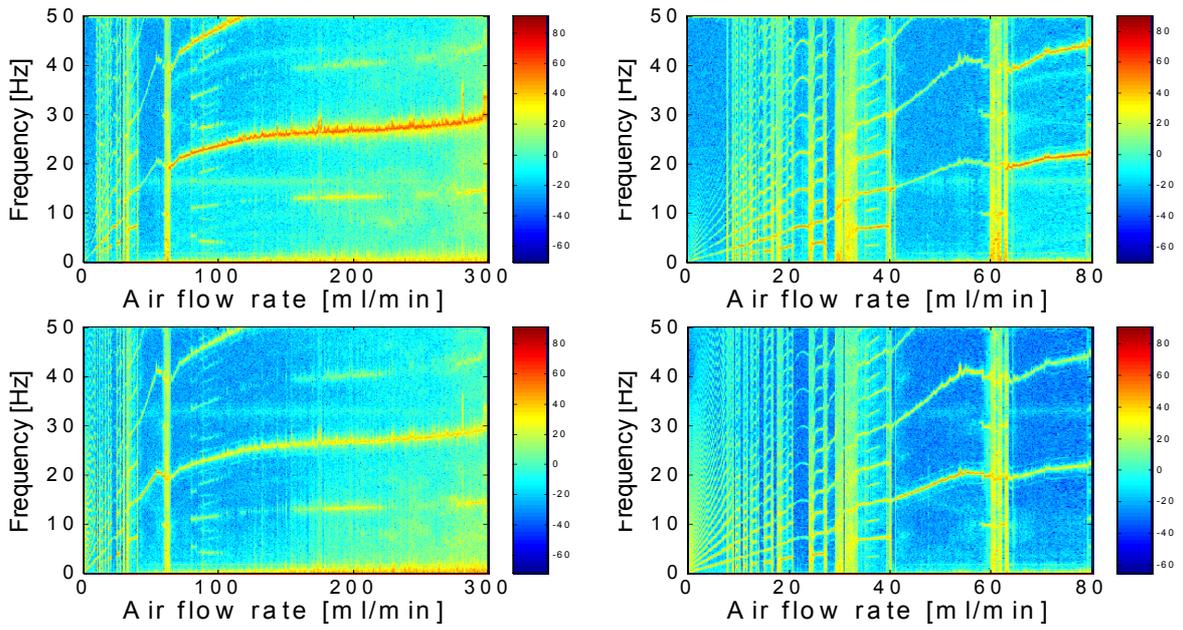


Fig.3.2.8 Spectrogram .d=2mm, Vc=10ml, s=8mm

(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

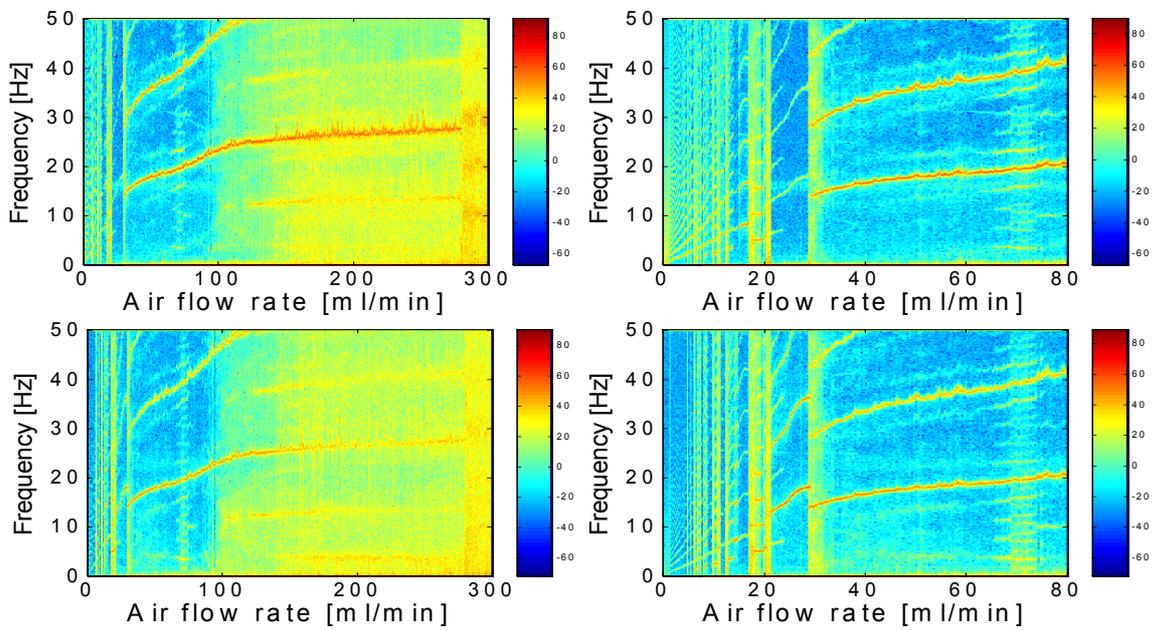


Fig.3.2.9 Spectrogram .d=2mm, Vc=10ml, s=6mm

(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

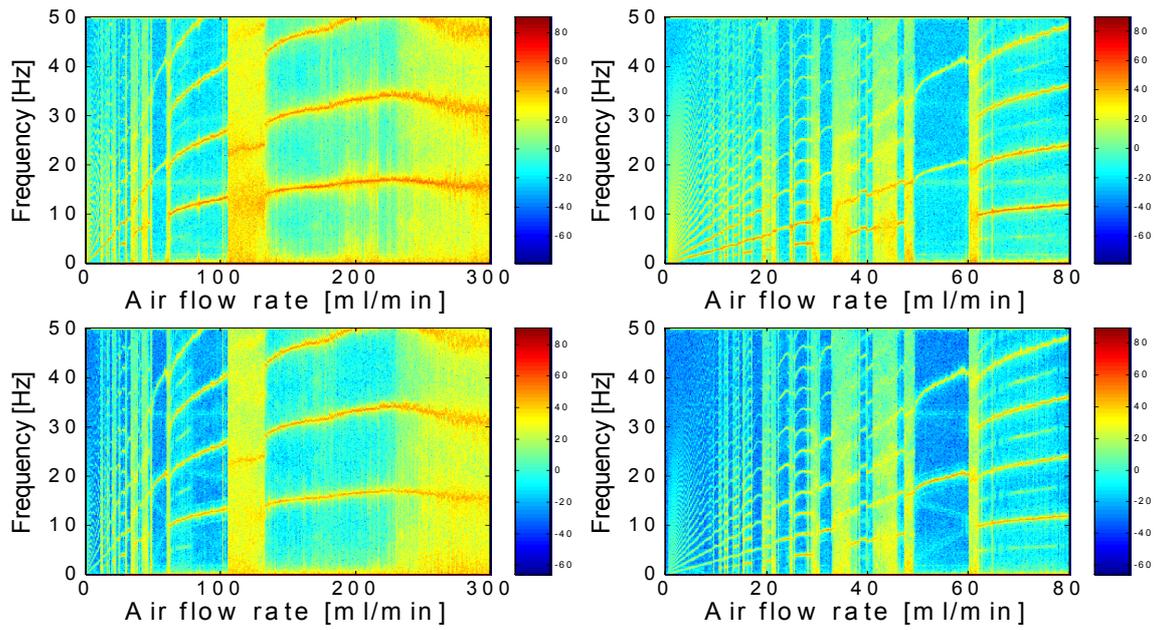


Fig.3.2.10 Spectrogram $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $s=4\text{mm}$
(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

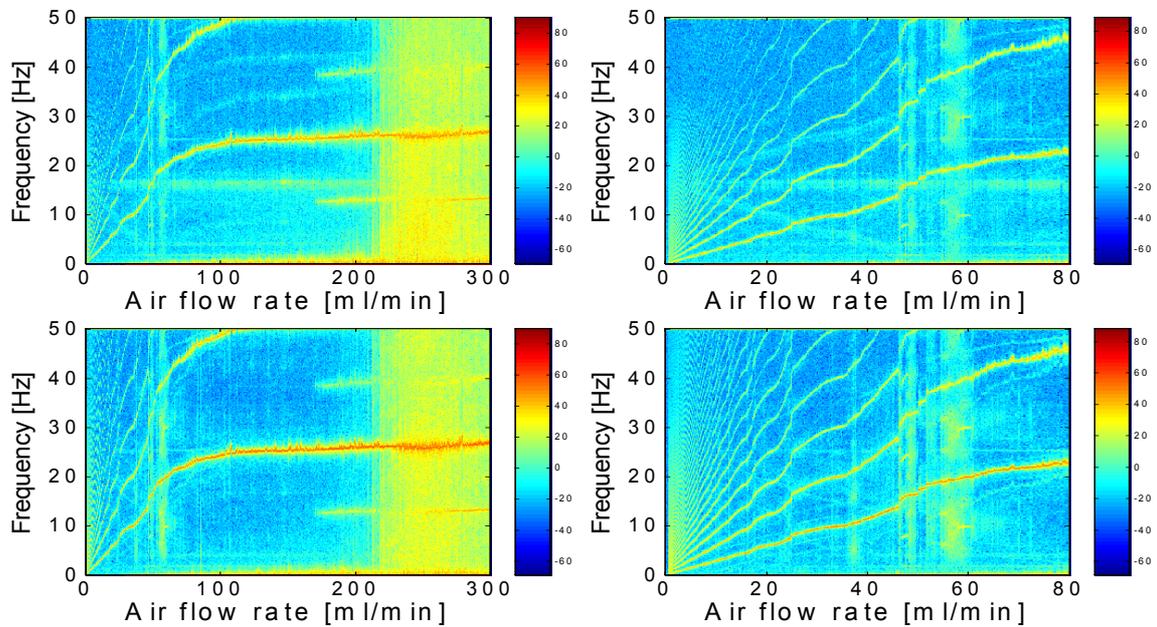


Fig.3.2.11 Spectrogram $d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $s=3\text{mm}$
(Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

3.2.3 オリフィス間隔による違い

オリフィス直径 $d=2\text{mm}$, チャンバー容積 $V_c=10\text{ml}$ について, オリフィス間隔を 7 種類 ($s=3, 4, 6, 8, 12, 16, 30\text{mm}$) 変化させたとき, 何れのパラメタにおいても, 空気流量が十分大きなときには両方発泡, 空気流量が十分小さなときには片方発泡となった. しかしそれらの境界部分にあたる空気流量の領域では複雑な発泡挙動であった.

遷移部分での発泡挙動には, オリフィス間隔が気泡径以上の場合 ($s/D>1$) と, オリフィス間隔が気泡径よりも小さい場合 ($s/D<1$) で気泡の生成挙動に大きな違いが見られた.

$s/D<1$

空気流量が大きいときにも片方のオリフィスからのみ気泡が発生した.

$s/D>1$

空気流量が低いときには空気流量の減少に従い交互発泡, 片方発泡の繰り返しが見られた.

また, その繰り返しが起こり始める空気流量に違いがあった.

交互発泡がおこる空気流量

横軸にはチャンバー容積を, 縦軸には空気流量をとり, 交互発泡が起こる空気流量の領域についてその流量の範囲を実線で表したものが Fig. 3. 2. 12 である. 実線どうしの間にある空白の領域では, 片方発泡またはランダムな発泡が生じている.

Fig. 3. 2. 13 は空気流量を準静的に減少させていく実験において交互発泡が起こりはじめた空気流量 (縦軸の値) と, 交互発泡の起こり始めた回数 (横軸の値) との関係についての両対数プロットである. 言い換えると, Fig で示した実線部分の上端 (空気流量が最も大きいところ) の空気流量をそれぞれの実線部分について取り出し, 各オリフィス間隔について空気流量の大きい順に並べると数列 $\{Q_n\}$ を得る. その $\{Q_n\}$ について横軸に n , 縦軸に Q_n を両対数グラフにプロットしたものである.

以上のようにして得た Fig から, n と Q_n には

$$\log_{10} Q_n = \alpha - \beta \log_{10} n \quad (\alpha, \beta : \text{const.})$$

の関係があると推測できる. この関係はベキ乗則 (Power Law) と呼ばれ, このような関係は地震のマグニチュードと発生数, $1/f$ ゆらぎやジップの法則など, 様々な分野で見られるものである.

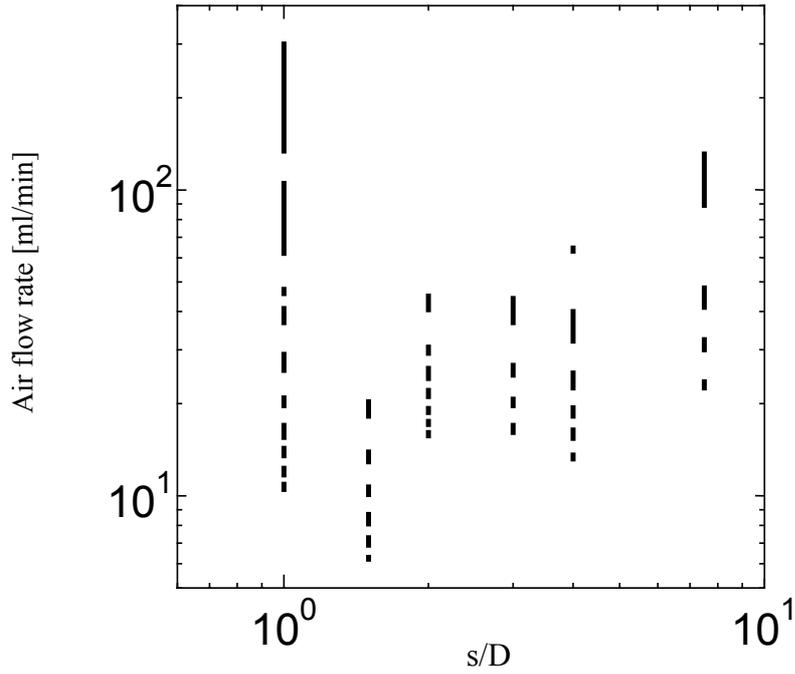


Fig.3.2.12 Air flow range of alternant bubbling
($s/D=0.75, 1, 1.5, 2, 3, 4, 7.5$. bubble diameter $D=4\text{mm}$)

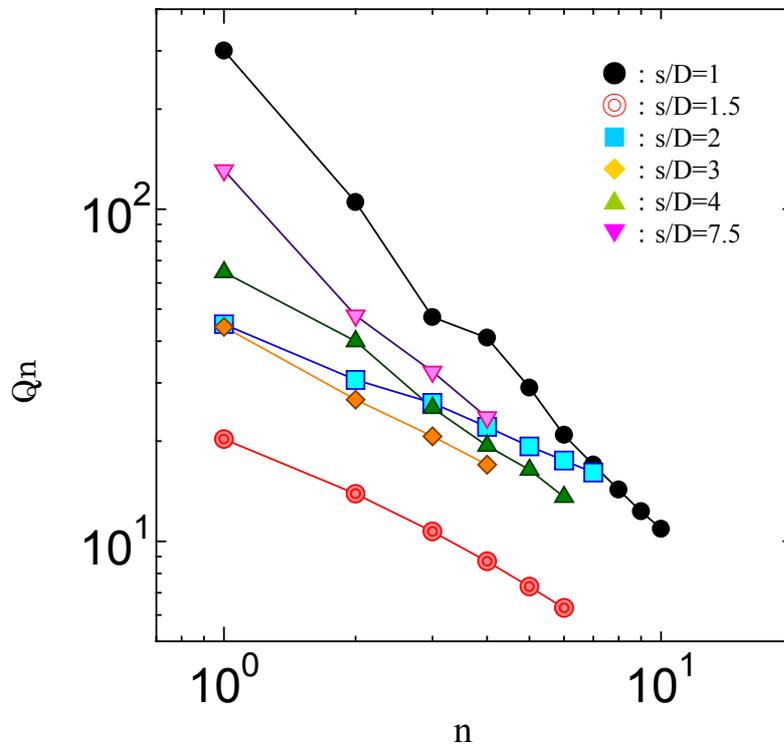


Fig.3.2.13 Relation between the numbers of alternant bubbling and the air flow rate of the bubble departure type in quasi-static decline of air flow rate

まとめ

本研究の実験結果によって新たに分かったことは次のようなことである。

・単一オリフィスの実験

スペクトログラムにおいて、単周期→倍分岐→単周期が見られた。この倍分岐が起こるときの発泡挙動には、前後の気泡で成長時間が異なることが確認された。

・対オリフィスの実験

片方発泡と両方発泡との遷移領域での発泡挙動は、全体的にみると、空気流量の減少に伴って交互発泡と片方発泡が繰り返し現われること、そしてそれら2つの発泡挙動の間にランダムな発泡をする領域があることが分かった。

また、交互発泡のときの空気流量について、法則性があることが分かった。

更に、オリフィス間隔を変化させることによって、オリフィス間隔がある値 $s=3\text{mm}$ ($s/D=0.75$) のときには片方のオリフィスが不活性になることが分かった。

4. 考察

4.1 単一オリフィス

4.2 対オリフィス

4.1 単一オリフィス

過去に報告された周期倍分岐現象との相違点及びその原因について

単一オリフィスで空気流量をパラメタとした場合，周期倍分岐現象が見られることは既に報告されている．以前の研究においては，空気流量が大きく，気泡の離脱周期が変化しなくなった後についてのものであり，倍分岐が始まると順に倍加されてカオスになるというものであった．一方本研究での実験では，気泡の離脱周期がまだ一定となっていない比較的低流量で分岐現象がおこり，且つ分岐後にもう一度単周期に戻るという結果を得た．

これは本研究ではオリフィス厚さが小さいために，オリフィスでの流路抵抗が小さく，チャンバー内の圧力変動が気液界面に及ぼす影響が大きいためと考えられる．

また，落下液滴の実験では本研究で分かったような単周期→倍分岐→単周期がみられている．

熱線流速計の出力波形について

スペクトログラムにおいて，基本周波数は気泡の離脱間隔に対応していることが分かっている．つまり，熱線流速計の出力波形は，気泡 1 個の発生に測定される波形を繰り返したものである．

しかし気泡ひとつが成長し，離脱するときの熱線流速計の波形に注目すると，実験条件によって全く異なる形をしている．しかも，気泡 1 つ分の波形で山が 1 つではなく，2 つ，あるいは 3 つということもあった．

気泡ひとつが発生する過程において，熱線流速計の波形が山となる（周辺流体の流速が極大になる）のは，実験結果から，

- ①気泡成長（気泡がオリフィスから発生し，膨らんでいく過程）
- ②気泡離脱（気泡の下部が変形してオリフィスから切れていく過程．ネッキング）
- ③気泡上昇（離脱した気泡が上昇していく過程）

の過程で 1 度ずつ計 3 回あることが分かる．ただ，実験パラメタにより山が 1 つ，あるいは 2 つに見える場合もあるが，それは 3 つの山のうち 2 つまたは 3 つが重なっているか，または周辺流体の流速変動が小さく波形に明確に現われていないと考えられる．

チャンバー容積によって気泡径が大きく異なることについて

空気流量によって気泡径が変化しない程度に小さな空気流量においてチャンバー容積ごとに気泡径を比較すると，チャンバー容積が 10ml, 100ml 300ml の順に，気泡径（の垂直補方向と水平方向の平均値）は 4.0mm, 7.8mm, 15.5mm となった．

気泡体積で比較するとチャンバー容積と気泡体積は線形の関係にあるといえる．つまり気泡径を決めるパラメタは，チャンバー容積であるといえる．チャンバー内の圧力がある値以下になるまで気泡は加速度正で成長を続けるためと考えられる．

4.2 対オリフィス

実験式

現象の物理的な理解を深めるために実験で得られたデータを数式で表すことを試みた。

単一気泡の研究では、

1. 気泡の成長過程
2. 気泡の離脱条件, 待ち時間

を考慮してモデル化を行っているが, 対気泡では, 更に

3. 気泡が生成するオリフィスの選択
4. 気泡の引き込み

について検討しなければならない。

実験結果により分類した発泡挙動は, 3 番目に挙げた気泡が生成するオリフィスの選択に深く関わっているため, ここでは, 気泡の成長過程と離脱条件に関しては, 実験結果から推測したものを利用して, 気泡が生成するオリフィスがどのように選択されているかに着目していく。

1. 気泡の成長

実験結果からひとつの気泡が成長する際の気泡体積の時間変化 $dV_b/dt = Su = \pi d^2 u/4$ (オリフィスを通る空気の流速) は, Fig. 4.2.1 に見るように大きな振幅をもった周期的な波形であることがわかった. そこでこの流速変動波形の近似式を次のようにおいた.

$$\frac{dV_b}{dt} = A(1 - \cos(2\pi \cdot B \cdot t))$$

ここで V_b は気泡体積, t は時間, A, B はともに定数としている.

A 及び B は次のようにして求めた.

空気流量を様々に変化させて dV_b/dt の波形を描いたところ (Fig. 4.2.1), A は空気流量によって変化する, 振動の周期は空気流量に依らずほぼ一定値 (20ms) であった. dV_b/dt の波形について気泡が成長を始めてから最初の極大値となる点 (振幅の2倍の値) を, 空気流量に対してプロットする (Fig. 4.2.2). それらの点から (原点を通過するという条件を付けて) 最小2乗法で直線近似したものが実線の直線で表したものである.

以上により近似式として, Q を空気流量 [ml/min], t を時間 [sec] とおいて次式を得た.

$$\frac{dV_b}{dt} = 0.028 * Q(1 - \cos(2\pi \cdot \frac{t}{0.015}))$$

また, Fig. 4.2.3 から, 2つのオリフィスそれぞれを通過する空気流量の合計 ($dV_{bA}/dt + dV_{bB}/dt$) は, ほぼ同じ波形を描くとみなすことができる. そしてその波形は上式で近似できることがわかった. この実験系においては, 発泡挙動に関係なく, チャンバー内への空気流量が等しければオリフィスを通過する空気流量の時間変化は同じであるということができるということである.

このことから, 2つのオリフィスそれぞれを流れる空気流量は, 上式の値 (dV_b/dt) を2つに分配することで決める. 空気流量を分配する割合は気泡が成長を始めた時に決定し, 基本的に気泡の成長途中には変化しないものとする.

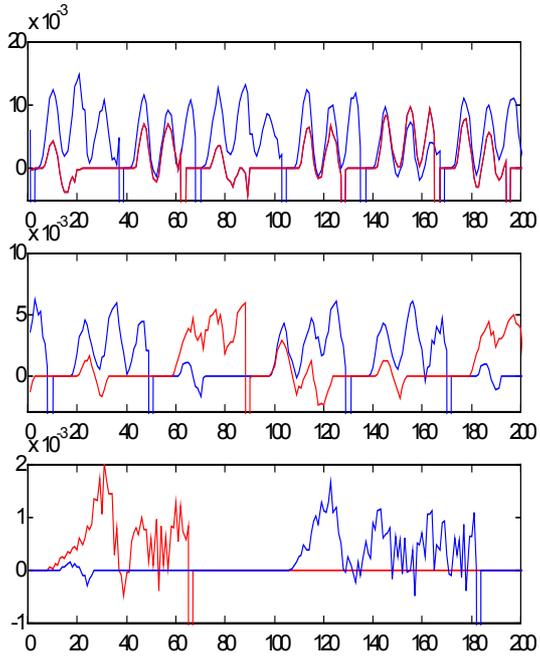


Fig.4.2.1 Bubble volume fluctuation (d=2mm, Vc=10ml, s=30mm)

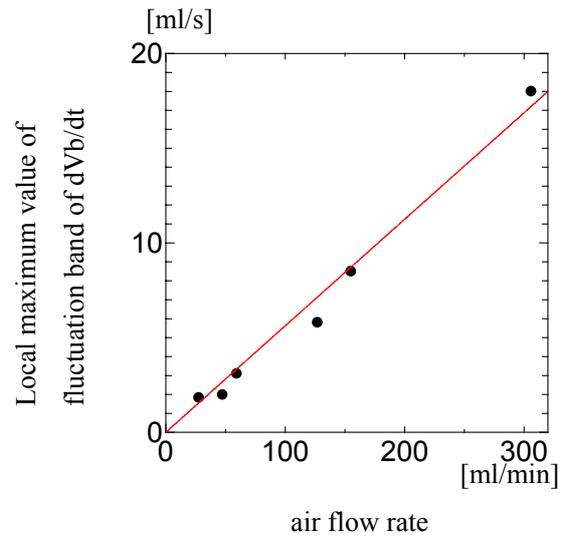


Fig.4.2.2 Local maximum value of fluctuation band of dVb/dt

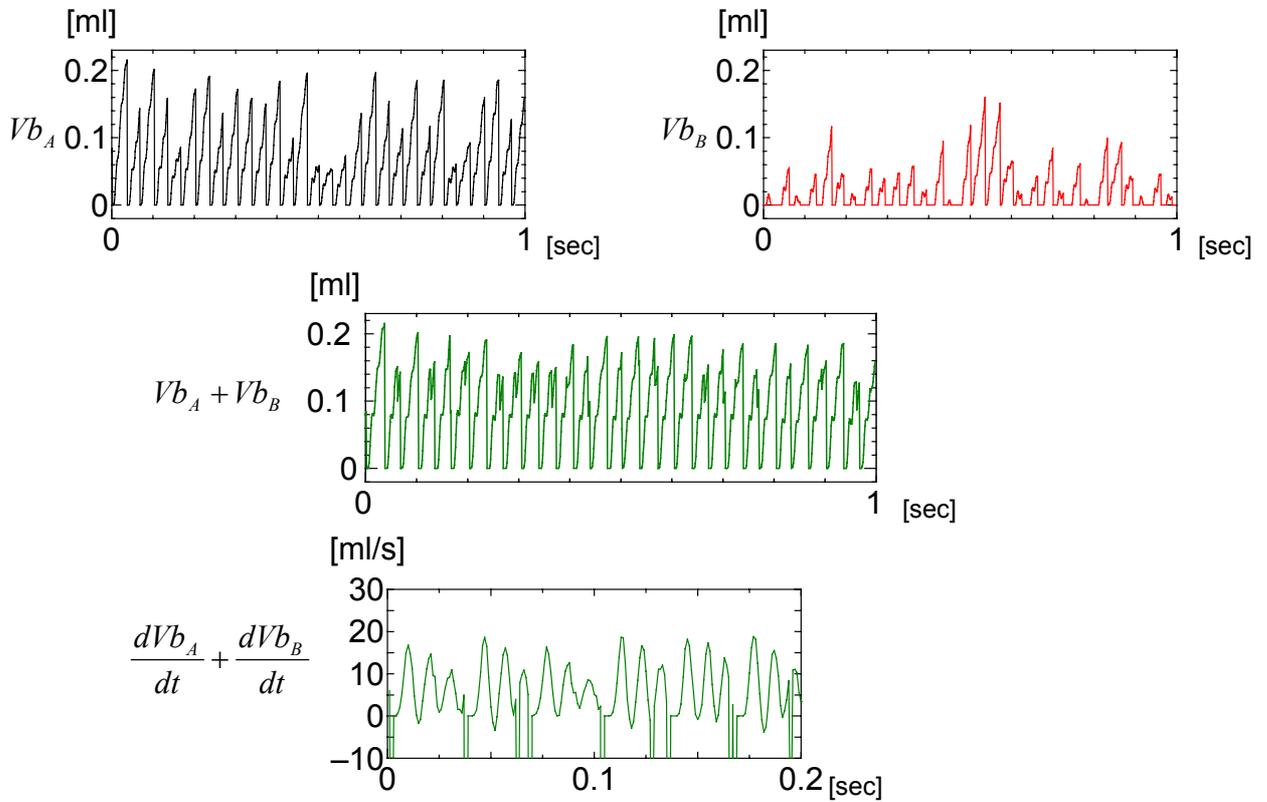


Fig.4.2.3 Bubble volume and total bubble volumerate of change. d=2mm, Vc=10ml, s=30mm, Q=220ml/min

2. 気泡の離脱条件, 待ち時間

気泡体積の加速度が最初にゼロとなったとき以降に, 気泡径が浮力, 慣性力を上回ったときに気泡が離脱するとおく. 実際には先行気泡の影響等もあるが, 空気流量が小さく離脱周期が長いのでここでは十分小さいものとみなす.

どちらか一方のオリフィスで気泡が離脱したとき, もう一方のオリフィスで気泡が成長途中であっても離脱したものと仮定する.

空気流量が小さい範囲では気泡径は同じである. その値は気泡の形を球の一部として, 表面張力と浮力とが釣り合うときの気泡体積に近い値となっている. しかし空気流量が大きいときには気泡の成長時間はある値より小さくならないため, 空気流量が増加するにつれて気泡径が増加していく. その成長時間のある値とは, 気泡成長の加速度が負になったときであり, その値は $\frac{d^2V_b}{dt^2} = 0$ から求められる.

また, 待ち時間はそれぞれのオリフィスから離脱した気泡の体積を空気流量で割った値とした.

3. 気泡が生成するオリフィスの選択

A を空気流量の割合, 待ち時間を T とする. 大きな気泡が離脱したオリフィスでは, 気泡成長の近似式と同じ周期の波を使って,

$$A = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \cos\left(2\pi \cdot \frac{t}{0.015}\right) \right\}$$

に従って空気流量の分配を行うものとする. そしてもう一方のオリフィスを通過する空気流量の割合は

$$B = 1 - A$$

とおく.

この式は以下のような実験結果から考察したものである.

片方発泡でも両方のオリフィスから気泡が成長をはじめることから, 気泡が成長を始める際に, 空気流量の分配比を決定し, 常に両方のオリフィスから気泡が成長をはじめる, 発泡挙動は気泡の引き込みに拠るものと仮定した. 気泡成長の近似式は, オリフィスを通過する空気流量は振動していることを示している. そしてその周期は, 実験結果から空気流量と独立であること, 気泡径に依らないこと, オリフィス間隔が変化しても変わらないといえた. そこでこの振動はチャンバー内圧力と気液界面の表面張力とによるもので, 気泡の待ち時間においてもこの振動は存在すると考えた.

気泡が離脱した時の気泡の形は半球状であり, このとき表面張力は最大である. 気泡離脱直前の表面張力から急激に大きくなるので気泡が生成した側のオリフィスでは下向き (チャンバー内に水が流れ込む方向) に力がかかる. 気泡の待ち時間の間にはこれを加速度の初期値とした振動が起こっている. これに伴いもう一方のオリフィスでは, 気液界面での振動は逆位相となる. 次に気泡が成長するとき, これらの位相の差によって気泡が発生するオリフィスが決まるとした.

4. 気泡の引き込み

単一オリフィスと対オリフィスでの大きな違いに、成長途中の気泡がチャンバー内に引き戻される現象がある。

これは2つのオリフィスから気泡が成長するときに、チャンバー内圧力が気泡内圧力に比べて小さくなったとき、気泡の成長が小さい方のオリフィスで生じる。つまり、気泡の引き込みが起こるのはチャンバー内の圧力 (P_c) と気泡内の圧力 (P_b) の間で

$$P_c - P_b < 0$$

の関係が成り立つときである。

ここで、直径 d のオリフィスから生成する気泡の体積を V_b 、気泡への空気流入速度を $u = u(t)$ とおくと、

$$\frac{dV_b}{dt} = Su = \frac{\pi}{4} d^2 u$$

が成り立つ。(Sはオリフィス断面積)

また、Navier-Stokes の式から、流れは流速方向成分のみとして、粘性項を除き、瞬時に発達した流れになるとした場合

$$\frac{du}{dt} = -\frac{1}{\rho} \frac{dP}{dx}$$

であるので、これらの式から次式を得る。

$$\frac{d^2 V_b}{dt^2} = -\frac{S}{\rho} \frac{dP}{dx} = \frac{S}{\rho} \frac{P_c - P_b}{\Delta x}$$

従って、 $\frac{d^2 V_b}{dt^2} < 0$ のときに気泡の引き込みが起こるものとする。

また、気泡が引き込む条件として、気泡が半球状に満たないときとした。ただし、2つのオリフィスから成長している気泡がともに気泡径に満たないときは引き込みが起こらないものとする。

さらに、2つのオリフィスから流出する空気流量の合計は一定の関数であるという条件を満たすため、片方の気泡に引き込みが生じたとき、引き込みが生じたオリフィスでは分配比はゼロに、もう一方の空気流速の分配比は1とする。この理由は、気泡が半球状で表面張力が最大値となるために、一度引き込みがおこったオリフィスでは、もう一方のオリフィスから気泡が離脱するまで気泡成長が起こらないからである。

これを計算してスペクトログラムを描いたものが Fig. 4. 2. 4 である。スペクトログラムを描くにあたり、実験での熱線流速計の波形は流速変動を波形として得ることから、計算結果からオリフィスを通過する空気の流速変動を計算してそのスペクトログラムを描いている。

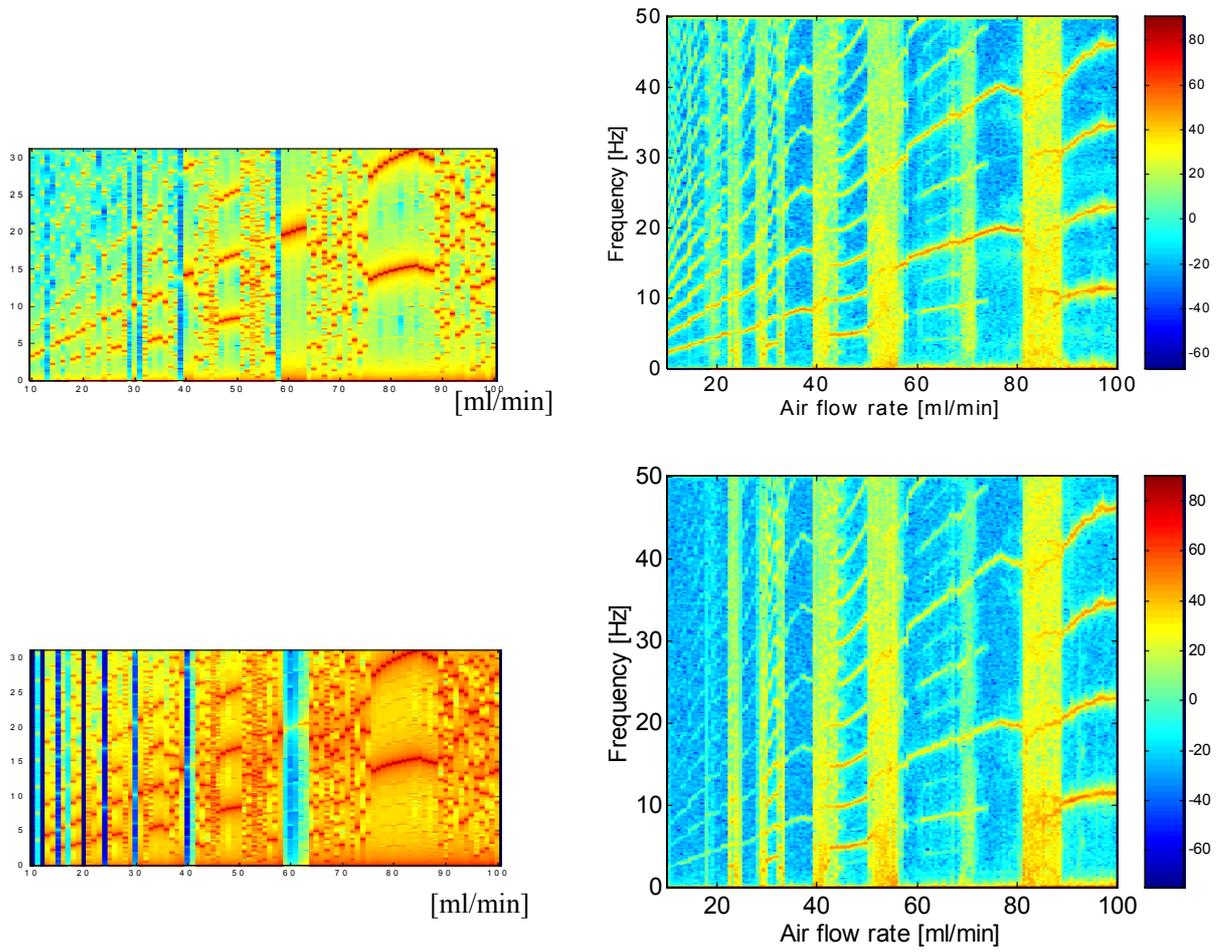


Fig.4.2.4 Calculation(Left). and experiment(Right). $d=2\text{mm}$, $V_c=$ (Upper: Orifice A, Lower: Orifice B)

5. 結論

- ・単一オリフィスの実験から、周期倍分岐が低流量でも生じること、単周期→倍分岐→単周期と倍分岐したあとで単一周期にもどることが新たに分かった。
- ・対オリフィスの実験から、両方発泡と片方発泡の間では、チャンバー容積が 10ml の場合には空気流量の変化に伴って交互発泡と片方発泡が交代で現われることが分かった。そして交互発泡の現われる回数とその空気流量にはベキ乗則に従う関係があることが分かった。

参考文献

- [1]庄司正弘, 久島弘太郎, 阿部憲幸, “気泡生成の非線形特性” 第 34 回日本伝熱シンポジウム, pp813-814,1997
- [2]高木裕登, 庄司正弘, “核沸騰における発泡機構の簡略化モデル”, 第 37 回日本伝熱シンポジウム, pp729-730, 2000
- [3]佐井正子, 小川真史, 庄司正弘, ”気泡間の相互干渉と動的特性”, 第 38 回日本伝熱シンポジウム, pp401-402, 2001
- [4]戸松正仁, ”ツインオリフィスからの気泡生成と臨界現象”, 卒業論文, 2002
- [5]Wenxing Zhang, R.B.H.Tan, “A model for bubble formation and weeping at a submerged orifice”, Chemical Engineering Science, pp6243-6250, 2000

謝辞

研究にあたり、多くの方々にご指導を賜りましたので、この場を借りて御礼申し上げます。

庄司正弘教授はお忙しい中時間を割いて指導を頂きました。特に沖縄での熱工学講演会では宿泊先の確保や移動の際の交通手段などについてもお世話して頂き感謝しております。研究以外でも就職活動中にいろいろと助言を頂くなど挙げればきりがないかもしれないくらいお世話になりました。ありがとうございました。

丸山茂夫助教授の研究会発表での鋭いご意見は大変参考になりました。単一気泡の実験を自分で実際にするきっかけを与えていただきました。また、時折ピザの差し入れを下さったときには随分ご馳走になりました。

渡辺誠技官には材料の発注や実験室の整備など、陰ながら私たちの研究を支えて頂きました。面倒事を頼んだときにも笑顔で対応して下さるのでつい色々頼ってしまいました。本当に感謝しております。

博士課程 3 年生の伊藤浩二さんには、卒業論文で共同研究をさせて頂いたこともあり、研究についてお話することも多く、非常にお世話になりました。

中国からの留学生の張さん、汪さん、姜さんは皆さん日本語が上手だったので何かあれば気軽に話し掛けられるのは私にとって大変有難かったです。

修士 2 年の山神くんには、研究内容だけでなく、講義の資料を貸してくれたり明け方まで一緒に研究室でがんばったりしたのは良い思い出となると思います。

手島くんは私以外では唯一の就職組だったので、就職活動について色々とう有用な話を聞くことができました。また、プログラムについても相談に乗って頂きありがとうございました。

千足くんには私が体調を崩したときには特にお世話になりました。研究室の夏合宿では本当にありがとうございました。研究室での手島くんとのやりとりは密かに楽しく聞かせてもらいました。

SUPAPOUG さんにはチューターとして色々とお世話する立場だったのですが、拙い英語で随分と苦勞をかけてしまい、逆に私のほうが母国タイのお祭りを紹介して頂くなどお世話になってしまいました。ここでお詫びと感謝を申し上げます。

修士 1 年生の丹下くん、湯浅くん、石川くんには、研究で大変お世話になりました。皆さんとても優秀で頼もしい一方で非常に不安な毎日でした。また、夏ごろと一緒に実験をする予定が私の体調不良のために数ヶ月も延期してしまい申し訳ありませんでした。

共同実験者である宮原くんには、あまり良い助言をしてあげられなかったのが悔やまれますが、自分の力で研究を進めていく姿はすばらしいと感じました。

4 年生のみなさん、個人的にお話する時間はほとんどありませんでしたが、皆さん無事卒業できそうでなによりです。

最後に、研究室のみなさんには、夏に体調を崩したときには色々ご心配、ご迷惑をお掛けしたことをお詫び致します。

付録

サンプリングについて

本研究においては、熱線流速計、ビデオカメラともに 1000 [1/sec]としている。

Fig. 6.1 は 1000Hz での測定を元に、上から順に 1000Hz, 500Hz, 250Hz, 100Hz で測定した時に得られる熱線流速計の波形を作成した。

このグラフから、250Hz 以上では周期性が認められる。グラフに用いた空気流量は約 200ml/min で、実験で用いる空気流量は最大で 500ml/min であるため、250Hz の 2.5 倍以上の周波数であれば周期的なものは測定できると考えて 1000Hz とした。

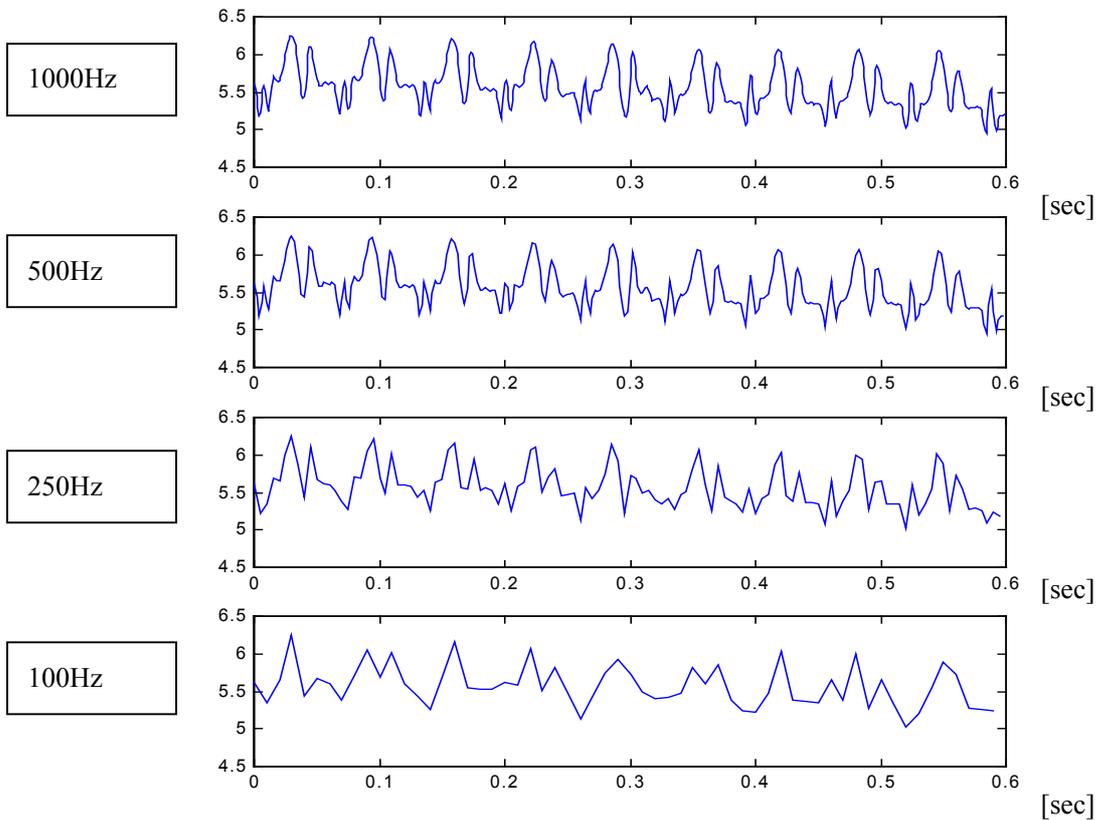


Fig.6.1 Comparison of sampling frequency
($d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$, $s=4\text{mm}$, $Q=185\text{ml/min}$)

オリフィス径による発泡挙動の違い

オリフィス径が小さいときには両方発泡と片方発泡のみで、それらの境界（臨界流量）もはっきりと決められるものであった。しかしオリフィス径を 1mm, 2mm と大きくしていくと、交互発泡、ランダムな発泡が見られるようになり、臨界流量をひとつの値に決めることは出来なくなる。

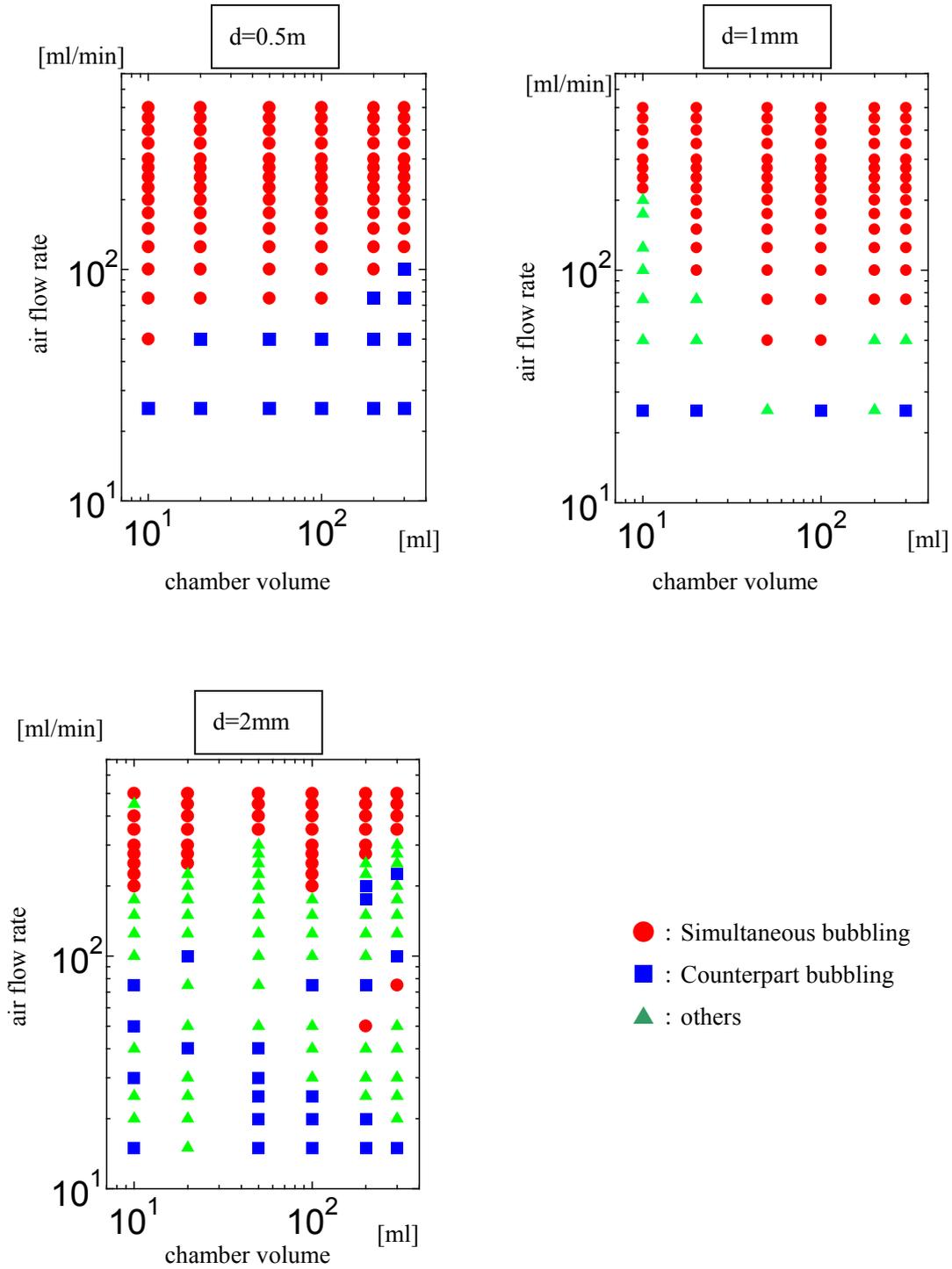


Fig.6.2 bubbling formation

相関次元

Fig.6.3 は $s=4, 8, 30\text{mm}$ のそれぞれについて、相関次元を求めたものである。計算にはポーランドの Mosdorf 先生から頂いたソフトを使用した。

Fig.6.3 から次元は 2 以上であり、発泡挙動によって明確な次元の違いは認められなかった。

空気流量が小さい領域で次元が上がっているのは、気泡の発生による波形の振幅が小さく、また気泡離脱周波数が小さいために水の自然対流の影響などが効いてしまったものと思われる。

なお、単一オリフィスの次元は 2～3 の間であった。

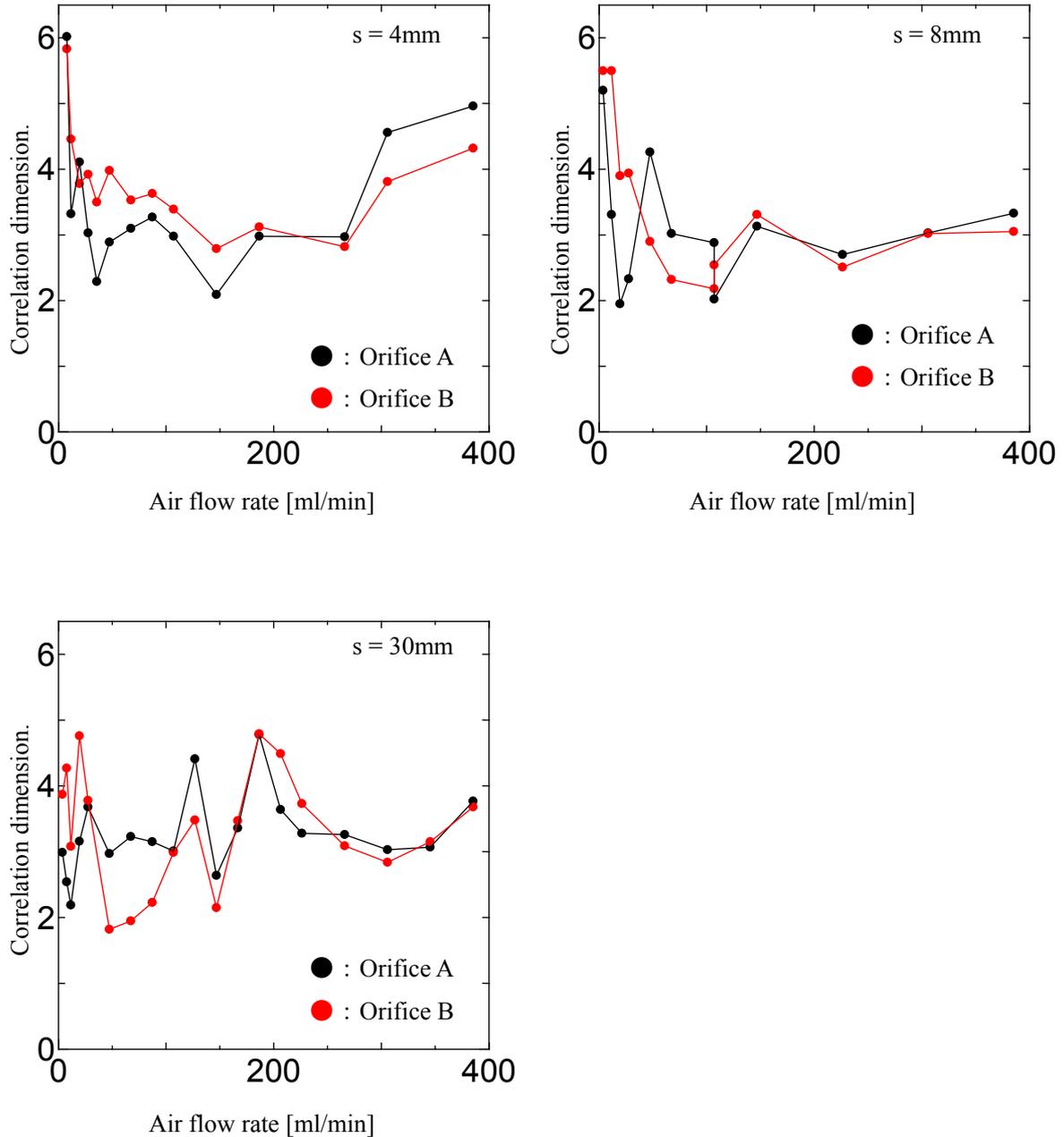


Fig.6.3 Correlation dimension. ($d=2\text{mm}$, $V_c=10\text{ml}$)

以上

1 ~ 53 ページ 完

修士論文

平成 15 年 2 月 14 日 提出

16196 宮崎大輔