

超音波および浮力対流を利用した液相乱流場での混合反応促進

京都大学大学院工学研究科機械工学専攻 伊藤靖仁 (Yasumasa Ito)

京都大学大学院工学研究科機械工学専攻 長田孝二 (Kouji Nagata)

京都大学大学院工学研究科機械工学専攻 小森 悟 (Satoru Komori)

Department of Mechanical Engineering, Kyoto University

1 緒言

乱流場で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、反応器などの工業装置内の流れや、 SO_x や NO_x といった反応性汚染物質が大気中を乱流拡散するような環境中の流れの中に数多く見られる。したがって、乱流混合反応機構を解明するとともに、乱流混合反応の進行を制御(促進および抑制)する方法を提案することは、流体力学的にも環境工学的にも非常に重要である。

反応装置内や環境中に見られるように、反応物質が予混合のない(初期状態では互いに完全分離された)状態で乱流場に供給される場合、化学反応はそれぞれの反応物質を含んだ流体の接触界面領域で分子拡散を通して進行する。よって、二次以上の不可逆反応を伴う反応乱流場における乱流混合反応を促進させるためには、この界面をいかに小スケール領域まで複雑に変形させるかと、接触界面領域で生成された反応生成物をいかにすみやかに未反応物質で置き換えるかが重要となる [1]。このような乱流混合反応を促進させる手段として、まず第一に流体の速度こう配に基づくシア(せん断力)の利用が考えられる。これは、シアによって接触界面を変形させる方法であり、実際の工業プラントでは、異種の反応物質が混入されている流体を反応器に速度差をつけて流入させる方法や攪拌翼を用いる方法が使用されている。しかし、低乱流の場合、シアによって増幅される乱れはおもに慣性領域より大きなスケールの乱れであり、化学反応の促進に重要な役割を果たす小スケールの乱れはあまり増幅されない可能性がある [2]。これに対して、シア以外の方法を用いることによって、小スケールの乱れを促進させることができれば、混合反応をより促進できるものと考えられる。本研究では、そのような混合反応を促進する効果をもたらす新しい手段として、超音波を用いる方法を提案した。

超音波を液体に照射すると、音場の非線形性や流体の粘性によるエネルギー損失により生じた音響流が物質輸送を促進することや、超音波の激しい圧力変動によって発生した気泡(キャビテーション)が乱れを作り出すこと、またこれらの現象の結果、流体攪拌効果 [3] や伝熱促進効果 [4] がもたらされることが知られている。しかし、液体に対する超音波照射の影響に関するこれまでの研究はおもに静止流体 [3] や層流場 [4] を対象としており、超音波が乱流場に及ぼす影響を調査したもの [4] は数少ない。特に超音波照射下での乱流混合反応の促進機構についてまで言及した研究例は皆無である。また、超音波照射によりもたらされる上記の効果は、音響流とキャビテーションとの複合作用によるものであると考えられているが、それらの効果に対して音響流とキャビテーションがそれぞれ具体的にどのように寄与するのかについては解明されていない。

一方、これまでの著者らの研究から、鉛直方向に正の温度こう配が存在する不安定密度成層下では、浮力対流によって乱流混合が促進され、その結果化学反応も促進されることが明らかにされている。 [2]

そこで本研究では、超音波が乱流構造と混合反応機構に及ぼす影響を明らかにするとともに、浮力対流を用いた乱流混合反応促進との比較検討を行うことを目的とした。具体的には、気泡をほとんど発生させない高周波超音波を格子乱流場に照射することにより、高周波超音波の照射を伴

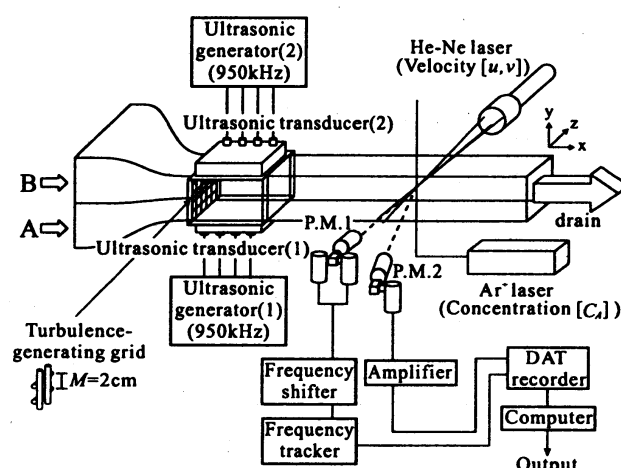


Fig. 1. Schematic of the experimental apparatus.

う乱流場での混合反応機構（特に音響流が乱流混合反応に及ぼす影響）を明らかにするとともに、不安定温度成層（浮力対流）が存在する場合、および速度差に基づくシアをかけた乱流場での混合反応機構と比較することによって、乱流混合反応を促進させる手段としての高周波超音波の有効性について検討した。

2 実験

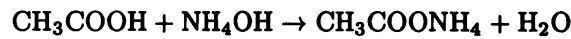
実験装置の概略を図1に、実験条件を表1に示す。アクリル (PMMA) 製の矩形テストセクション（主流方向長さ 1.5m, 断面 $0.1\text{m} \times 0.1\text{m}$ ）の入口部に乱流格子（格子間隔 $M=2.0 \times 10^{-2}\text{m}$, 格子径 $d=3.0 \times 10^{-3}\text{m}$ ）を取り付け、主流方向断面平均流速 $\bar{U}_a = 0.125\text{m/s}$ で、スプリッタプレートを用いて上下層流体を完全に分離した状態で供給した。この条件下での格子間隔 M に基づくレイノルズ数は $Re_M = 2500$ であった。格子乱流場に超音波を照射した場合 (Run II) の実験では、超音波発振器および振動板を用い、共振周波数 $f_U = 950\text{kHz}$ の超音波を $x/M = 3.3 \sim 11.5$, $z/M = -2.5 \sim 2.5$ の領域に対して上面部 ($y/M = 2.5$) および底面部 ($y/M = -2.5$) から鉛直上下方向に照射した。この超音波の強度は、超音波発振機への電気入力値 P_U にして 100W であった。なお、この条件下では流体中にキャビテーションに伴う気泡がほとんど発生しないことを、流動場を可視化することにより確認した。格子乱流場に流体の速度こう配に基づくシアをかけた場合 (Run III) の実験では、反応を伴わない場合の A（下層流）成分のテストセクション中心部付近での濃度こう配が格子乱流場に超音波を照射した場合のそれとほぼ同程度になる、つまり A（下層流）成分の鉛直方向に対する乱流拡散量がほぼ等しくなるように、上下層流の流速差を $\Delta\bar{U} = 4.0 \times 10^{-2}\text{m/s}$ とした。ただし、この場合にもレイノルズ数 Re_M を等しくするために、断面平均流速を $\bar{U}_a = 12.5 \times 10^{-2}\text{m/s}$ （上層流の初期流速 $\bar{U}_1 = 14.5 \times 10^{-2}\text{m/s}$, 下層流の初期流速 $\bar{U}_2 = 10.5 \times 10^{-2}\text{m/s}$ ）に設定した。不安定温度成層が存在する場合の実験にも、反応を伴わない場合の A（下層流）成分のテストセクション中心部付近での濃度こう配が超音波を照射した場合およびシアをかけた場合と同程度になるように、下層流の水温を上層流の水温よりも $\Delta\bar{T} = 10\text{K}$ 高く設定し、上下層流の流速を $\bar{U}_a = 0.125\text{m/s}$ の等流速 ($Re_M = 2500$) とした。

実験に用いた流体の成分は以下の通りである。反応を伴わない場合の実験では、上層に蛍光物質であるウラニン ($\text{C}_{20}\text{H}_{10}\text{Na}_2\text{O}_5$) を均一に混入させた水道水を、下層に水道水のみを流入させ

Table. 1. Experimental conditions.

Run	$\bar{U}_a$ [m/s]	P_U [W]	$\Delta\bar{U}$ [m/s]	$\Delta\bar{T}$ [K]	Flow type
I-NR	12.5×10^{-2}	0	0	0	Non-reacting
I-R	12.5×10^{-2}	0	0	0	Reacting
II-NR	12.5×10^{-2}	80	0	0	Non-reacting
II-R	12.5×10^{-2}	80	0	0	Reacting
III-NR	12.5×10^{-2}	0	4.0×10^{-2}	0	Non-reacting
III-R	12.5×10^{-2}	0	4.0×10^{-2}	0	Reacting
IV-NR	12.5×10^{-2}	0	0	10	Non-reacting
IV-R	12.5×10^{-2}	0	0	10	Reacting

た．また反応を伴う場合の実験では，下層に酢酸（成分 A）を，上層に水酸化アンモニウム（成分 B）($C_{A0} = C_{B0} = 0.01N$) を流入させ，2 次の不可逆瞬間反応である中和反応



を起こさせた．また，化学反応を伴う場合も，ウラニンの蛍光の pH 依存性を利用したレーザ蛍光法 [2, 5, 6] による濃度測定を可能とするために，あらかじめ上下層流中に等量 ($C_{A0} = 5.0 \times 10^{-5} \text{ mol/m}^3$) のウラニンを均一に混入させた．主流方向および鉛直方向の瞬間速度 U , V および A 成分の瞬間濃度 C_A の測定には，それぞれ偏光法に基づく二成分流速測定用レーザドップラ流速計 LDV (DANTEC 55X modular system) およびレーザ蛍光法 [2, 5, 6] を用い，非接触で同時測定した．ここで，LDV およびレーザ蛍光法のレーザ光源としては，He-Ne レーザ (Spectra Physics model 106-1; 波長 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$) および Ar^+ レーザ (LEXEL model 95-4; $\lambda = 488 \text{ nm}$) をそれぞれ用いた．測定を 60 秒間行い，サンプリング周波数 4kHz で信号をコンピュータを用いて統計的に処理した．

なお，本論文では，これ以降，超音波もシアーも付加しない格子乱流のみの場合 (Run I) を「格子乱流のみの場合」，格子乱流に超音波を照射した場合 (Run II) を「超音波を照射した場合」，格子乱流にシアーをかけた場合 (Run III) を「シアーをかけた場合」，格子乱流に不安定温度成層（浮力対流）が存在する場合 (Run IV) を「不安定温度成層が存在する場合」と呼ぶ．

3 実験結果と考察

3.1 時間平均濃度

$x/M = 14$ における反応を伴わない場合の A 成分の時間平均濃度 $\bar{C}_A^*$ ，反応を伴う場合の A 成分の時間平均濃度 $\bar{C}_A$ ，および反応生成物 P の時間平均濃度 $\bar{C}_P$ の鉛直方向分布を図 2 に示す．ここで， C_A^* , C_A , C_P は，A 成分の初期濃度 C_{A0} で無次元化されている．また， $\bar{C}_P$ は，反応を伴わない場合の A 成分時間平均濃度 $\bar{C}_A^*$ と反応を伴う場合の A 成分時間平均濃度 $\bar{C}_A$ を用いて次式より求めた．

$$\bar{C}_P / C_{A0} = 2(\bar{C}_A^* - \bar{C}_A) / C_{A0} \quad (1)$$

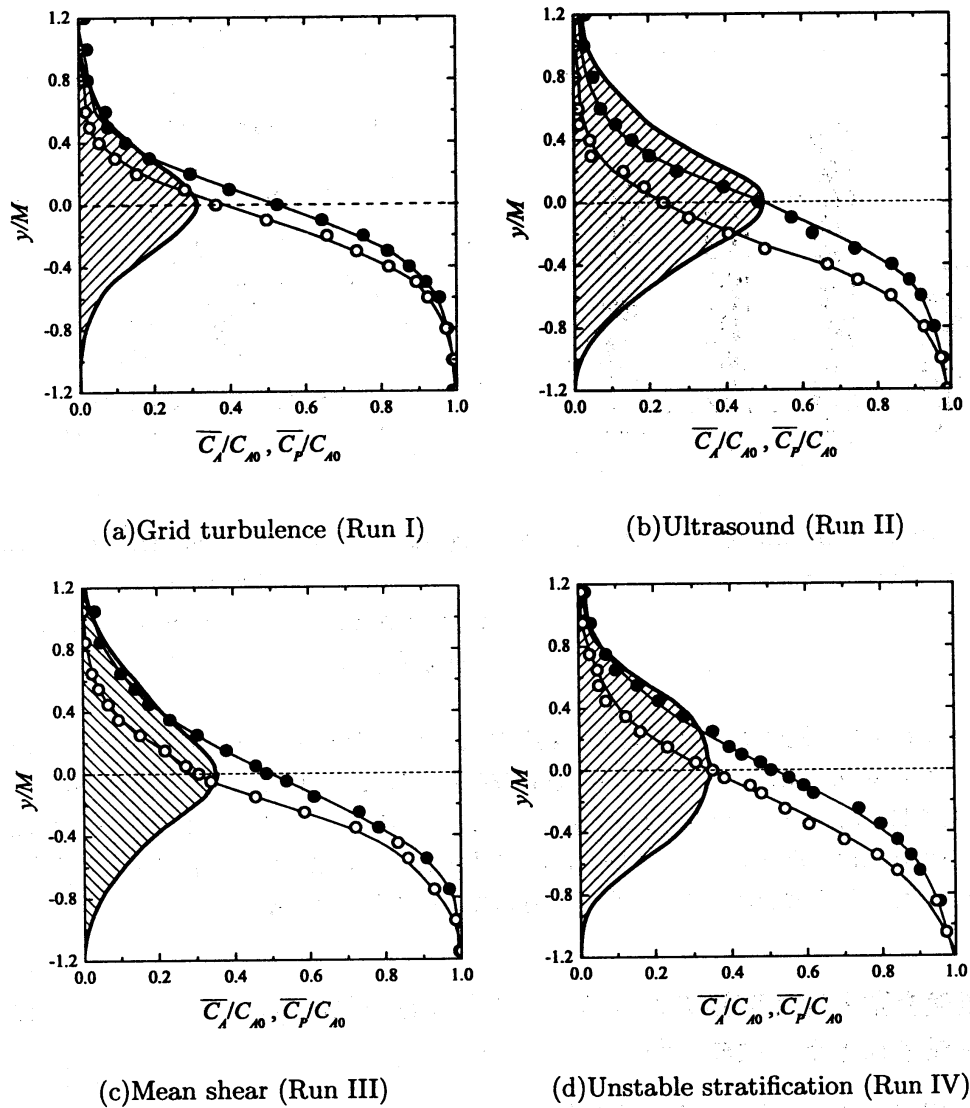


Fig. 2. Vertical distributions of the mean concentrations of species A and product P at $x/M=14$; $\bullet$, $\overline{C_A^*}/C_{A0}$ in non-reacting flow; $\circ$, $\overline{C_A}/C_{A0}$ in reacting flow; —, $\overline{C_P}/C_{A0}$.

図2より、シアーをかけた場合、超音波を照射した場合、および不安定温度成層が存在する場合には、反応を伴わない場合のA成分の濃度こう配が格子乱流のみの場合に比べて $y/M = 0$ 付近で緩やかであることから、乱流混合が促進されていることがわかる。また、実験条件で述べたとおり、反応を伴わない場合におけるA成分の濃度こう配、つまり反応物質の鉛直方向への乱流拡散量が、超音波を照射した場合、シアーをかけた場合、および不安定温度成層が存在する場合でほぼ等しいことがわかる。それにもかかわらず、断面全体での反応生成量は、超音波を照射した場合が最も大きくなる。

そこで、超音波、シアーおよび不安定温度成層が乱流混合反応に及ぼす影響をより定量的に評価するために、反応生成物濃度を鉛直方向に積分し、断面全体での反応生成量 P_T を計算した [2].

$$P_T = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\overline{C_P(y)}}{C_{A0}} dy \quad (2)$$

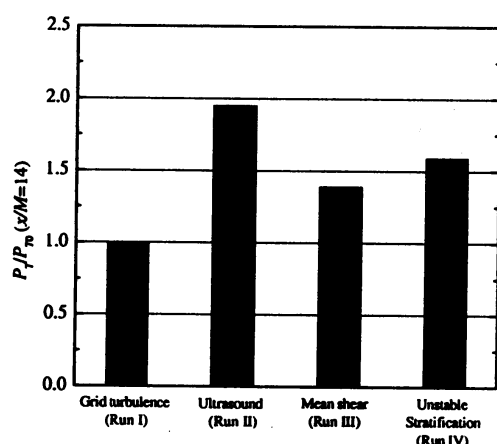


Fig. 3. Comparison among the amount of chemical product at $x/M=14$.

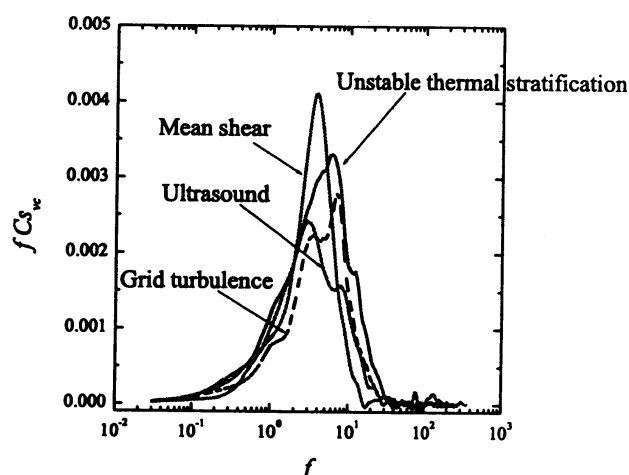


Fig. 4. Normalized cospectra of vertical velocity fluctuations and concentration fluctuations of species A in the non-reacting flow at $x/M=14$ and $y/M=0$.

$x/M = 14$ での反応生成量 $P_T(x/M=14)$ を格子乱流のみの場合の反応生成量 $P_{T0}(x/M=14)$ で無次元化したものを図 3 に示す。これより、超音波を照射した場合には、格子乱流のみの場合に比べて反応生成量が約 2.0 倍になることがわかる。一方、シアをかけた場合および不安定温度成層が存在する場合には、それぞれ約 1.4 倍、1.6 倍となった。このことから、乱流混合反応を促進させる手段として、超音波を用いる方法が最も有効であることがわかる。

3.2 濃度変動と速度変動のコスペクトルおよび $x/M=14$ から $x/M=18$ の間に生成される反応生成物量

鉛直方向速度変動 v と A 成分の濃度変動 c_A の $x/M = 14$, $y/M = 0$ におけるコスペクトルの計算結果を図 4 に示す。ここで、コスペクトルによって内包される図上の面積は、鉛直方向への乱流物質フラックスの大きさに相当する。図 4 より、不安定温度成層が存在する場合には、格子乱流のみの場合に比べて、大スケールから小スケールに至る全スケールの乱流渦による物質輸送が大きく促進されることがわかる。一方、シアをかけた場合には、大スケールの乱流渦による物質輸送は著しく促進されるものの、小スケールの渦による物質輸送は促進されない。また、超音波を照射した場合には、超音波が直接照射されていない $x/M=14$ では、格子乱流のみの場合とほぼ同程度しか鉛直方向に物質が輸送されない。つまり、不安定温度成層が存在する場合には、超音波を照射した場合およびシアをかけた場合に比べて、未反応物質の接触界面が大スケールから小スケールまでより複雑に変形し、未反応物質の接触界面領域が増大する。そこで、 $P_T(x/M=18)$ と $P_T(x/M=14)$ の差を取ることで、 $14 \leq x/M \leq 18$ における反応生成量 ΔP_T を計算した。その結果を図 5 に示す。ここで、 ΔP_T は、前述の P_{T0} で無次元化されている。シアをかけた場合および超音波を照射した場合にこの領域で生成された反応生成量は、格子乱流のみの場合とほぼ同程度であったのに対して、不安定温度成層が存在する場合には、約 2.0 倍の反応生成量が得られた。このことから、シアをかけた場合には、乱流混合は促進されても化学反応はあまり促進されないこと、また、超音波を照射した場合にも、超音波を直接照射されていない領域においては化学反応があまり促進されないのに対して、不安定温度成層が存在する場合には、下流へ進む

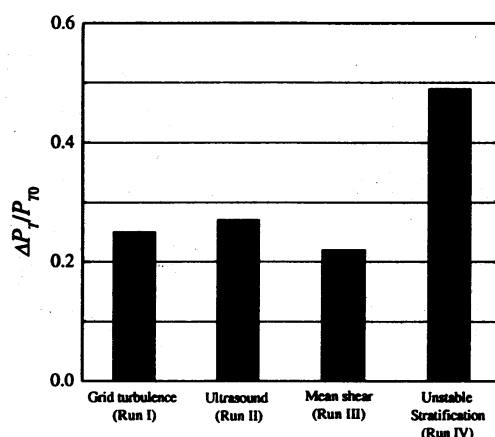


Fig. 5. Comparison among the amount of chemical product obtained in the region between $x/M=14$ and 18.

に従って乱流混合反応の促進効果が顕著に現れることがわかる。

しかし、それにもかかわらず、 $x/M = 18$ の断面で得られた反応生成量 ($=P_T(x/M=14)+\Delta P_T$) は超音波を照射した場合が最も多かった。つまり、超音波を照射した場合には、超音波が照射された領域において化学反応が著しく促進されていると言える。

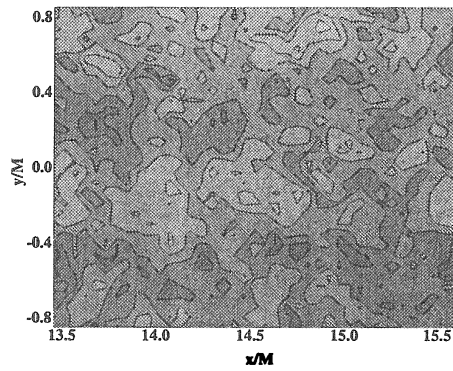
3.3 渦度

$13.5 \leq x/M \leq 15.5$, $-0.85 \leq y/M \leq 0.85$ の領域における渦度分布を図6に示す。シアーをかけた場合には、 $y/M = 0$ 付近において大きな速度こう配が存在するために、渦度の絶対値が大きい。それに対して、超音波を照射した場合および不安定温度成層が存在する場合には、渦度の絶対値が小さい。このことから、超音波および不安定温度成層により、低せん断場での乱流混合反応促進を実現できることがわかる。

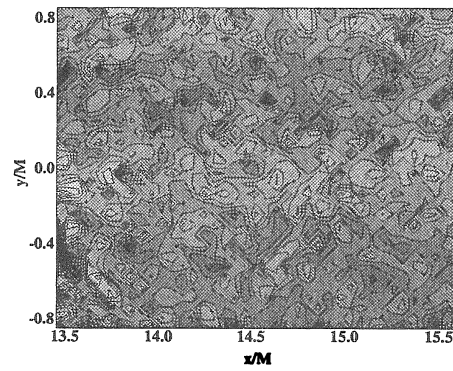
4 結言

化学反応を伴う格子乱流場に、高周波超音波を照射した場合、不安定温度成層が存在する場合、および流体間の速度こう配に基づくシアーをかけた場合に対して、流体の速度および濃度の測定を行った。その結果、次の知見を得た。

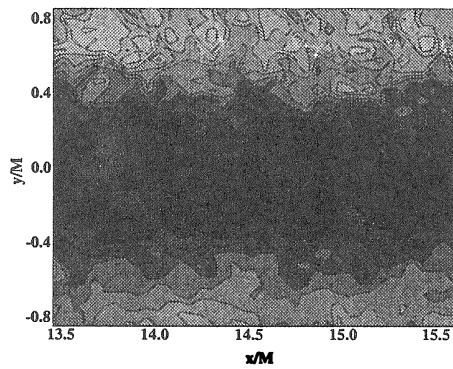
- (1) 超音波を照射した場合には、音響流の作用により乱流混合反応が著しく促進される。また、乱流混合反応の促進効果が、シアーおよび不安定温度成層の効果に比べて大きい。
- (2) 不安定温度成層が存在する場合には、下流へ進むに従って乱流混合反応の促進効果が顕著に現れる。
- (3) シアーをかけた場合には、大スケールの乱流渦による物質輸送は促進されるものの、小スケールの乱れは増大しないため、乱流混合反応の促進効果は、超音波を照射した場合および不安定温度成層が存在する場合に比べて小さい。
- (4) 超音波を照射した場合および不安定温度成層が存在する場合には、せん断力がほとんど働かないため、低せん断場での乱流混合反応促進を実現できる。



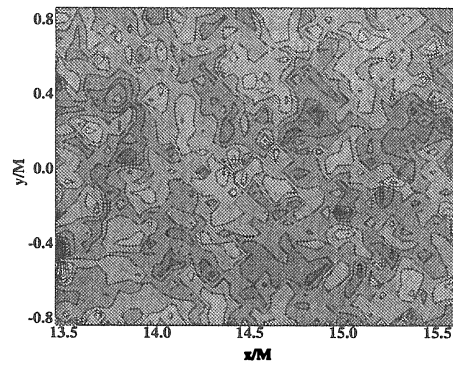
(a) Grid turbulence (Run I)



(b) Ultrasound (Run II)



(c) Mean shear (Run III)



(d) Unstable stratification (Run IV)

Fig. 6. Spanwise vorticity in the region of $x/M = 13.5 \sim 15.5$ and $y/M = -0.85 \sim +0.85$.

参考文献

- [1] Komori, S., Hunt, J. C. R., Kanzaki, T. and Murakami, Y., *J. Fluid Mech.*, **228** (1991), 629–659.
- [2] Nagata, K. and Komori, S., *J. Fluid Mech.*, **408** (2000), 39–52.
- [3] Liebermann, L. N., *Phys. Rev.*, **75-9** (1949), 1415–1422.
- [4] 野村信福・村上幸一・佐々木雄一・徳永賢一, 日本機械学会論文集B編, **66-643** (2000), 716–721.
- [5] Komori, S. and Nagata, K., *J. Fluid Mech.*, **326** (1996), 205–237.
- [6] Komori, S., Nagata, K., Kanzaki, T. and Murakami, Y., *AIChE J.*, **39-10** (1993), 1611–1620.