超音波による乱流混合反応促進*

伊藤 靖 仁^{*1}, 長 田 孝 二^{*2}, 小 森 悟^{*2}

The Effects of Ultrasound on Turbulent Mixing and Chemical Reaction

Yasumasa ITO, Kouji NAGATA and Satoru KOMORI^{*3}^{*3} Department of Mechanical Engineering, Kyoto University,
Kyoto, 606-8501 Japan

The effects of ultrasound on turbulent mixing and chemical reaction were experimentally investigated in reacting and non-reacting liquid mixing-layer flows downstream of a turbulence-generating grid. The experiments were carried out under the condition that the ultrasound hardly causes acoustic cavitation. Instantaneous velocity and concentration were simultaneously measured using a combination of a laser-Doppler velocimeter and a laser-induced fluorescence method. The results show that both turbulent mixing and chemical reaction are promoted by high-frequency ultrasound. The ultrasound can be regarded as a better tool for promoting turbulent mixing and chemical reaction than mean shear, because turbulent mass transfer at smaller scales is more enhanced by ultrasound compared to the sheared case.

Key Words: Turbulent Mixing, Flow Control, Shear Flow, Ultrasound, Chemical Reaction

1. 結 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、流体工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)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^{(3)~(5)}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)⁽⁶⁾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⁽⁷⁾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⁽⁷⁾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⁽⁷⁾は数少ない。特に超音波照射下での乱流混合反応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

* 原稿受付 2001年4月19日。

^{*1} 正員, 京都大学大学院(〒606-8501 京都市左京区吉田本町)。^{*2} 正員, 京都大学大学院工学研究科。

E-mail: komori@mech.kyoto-u.ac.jp

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。

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う乱流場での混合反応機構を明らかにするとともに、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. おもな使用記号

C_i	: 物質 i の濃度 (mol/m ³)
D	: 反応物の分子拡散係数 (m ² /s)
Da_L	: ダムケラ数 = τ_1/τ_3
Da_λ	: ダムケラ数 = τ_2/τ_3
k	: 反応速度定数 (m ³ /(mol·s))
d	: 乱流格子径 ($=3.0 \times 10^{-3}$ m)
f	: 周波数 (Hz)
f_U	: 超音波の共振周波数 (=950kHz)
P_U	: 超音波発振機への電気入力値 (W)
ν	: 動粘性係数 (m ² /s)
M	: 乱流格子間隔 ($=2.0 \times 10^{-2}$ m)
Re_M	: 乱流格子間隔基準のレイノルズ数 $= \bar{U}_a M / \nu$
U, V, W	: x, y, z 方向瞬間流速 (m/s)
u, v, w	: x, y, z 方向速度変動 (m/s)
$\bar{U}_a$	: 主流 (x) 方向断面平均流速 (m/s)
$\bar{U}_1$	: 上層流の初期流速 (m/s)
$\bar{U}_2$	: 下層流の初期流速 (m/s)
$\Delta \bar{U}$	: 上下層の初期流速差 $= \bar{U}_1 - \bar{U}_2$ (m/s)
P_T	: 断面全体での反応生成物量

添字

A	: A (下層流) 成分の
B	: B (上層流) 成分の
P	: 反応生成物の
0	: 初期の
*	: 反応を伴わない場合の
-	: 時間平均した

3. 実験

実験装置の概略図を図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 0.1m × 0.1m) の入口部に乱流格子 (格子間隔 $M=2.0 \times 10^{-2}$ m, 格子径 $d=3.0 \times 10^{-3}$ m)

Fig. 1 Schematic of the experimental apparatus

を取り付け、等温 (24℃) の流体を主流方向断面平均流速 $\bar{U}_a = 0.125$ m/s で、スプリッター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 (KAIJO 68101 型) および振動板 (KAIJO 7857S 型) を用い、共振周波数 $f_U = 950$ 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 80 W (3.6×10^{-5} W/m²) 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。したがって、キャビテーションによる加水分解作用が混合反応に及ぼす影響は無視できる。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 $\Delta \bar{U} = 4.0 \times 10^{-2}$ 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 $\bar{U}_a = 12.5 \times 10^{-2}$ m/s (上層流の初期流速 $\bar{U}_1 = 14.5 \times 10^{-2}$ m/s, 下層流の初期流速 $\bar{U}_2 = 10.5 \times 10^{-2}$ m/s) に設定した。

表2に上下層の流体の成分を示す。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ン (C₂₀H₁₀Na₂O₅) 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た。また反応を伴う場合の実

Table 1 Experimental conditions

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

Table 2 Combinations of species A and B

Flow type	Species A	Species B
Non-reacting flow	H_2O	H_2O
		+
		uranine
Reacting flow	CH_3COOH	NH_4OH
		+
		uranine

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）（ $C_{A0} = C_{B0} = 0.01\text{N}$ ）を流入させ、化学反応として、これらの中和反応

を用いた。この反応は反応速度定数 $k \approx 10^8 \text{ m}^3 / (\text{mol} \cdot \text{s})$ の二次の不可逆瞬間反応であり、このとき乱流拡散に要する時間スケール $\tau_1 [= L / (\bar{q}^2)^{1/2}]$ と反応に要する時間スケール $\tau_3 [= \{k(C_{A0}C_{B0})^{1/2}\}^{-1}]$ との比で表されるダムケラ数は $Da_L \approx 4.0 \times 10^5$ 、分子拡散に要する時間スケール $\tau_2 [= \lambda^2 / D]$ と τ_3 との比で表されるダムケラ数は $Da_\lambda \approx 4.0 \times 10^9$ であった。また、化学反応を伴う場合も、ウランの蛍光の PH 依存性を利用したレーザ蛍光法⁽²⁾⁽⁸⁾⁽¹⁰⁾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)(8)~(10)}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、出力信号のサンプリング周波数 4kHz で 60 秒間行い、それらの信号

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」と呼ぶ。

4. 実験結果および考察

主流方向および鉛直方向の速度変動強度のテストセクション中心軸上における主流方向分布を図 2 に、 $x/M = 18$ での鉛直方向分布を図 3 に示す。ただし、速度変動 u , v は主流方向時間平均流速 $\bar{U}$ で無次元化されている。図 2 より、格子乱流のみの場合には、主流および鉛直方向の速度変動強度がほぼ一致しながら x/M の -1.31 乗に従って直線的に減少することから、等方性に近い理想的な格子乱流場が形成されていることがわかる。一方、超音波を照射した場合およびシアーをかけた場合には、主流方向および鉛直方向の両方向の速度変動強度が大きく増幅される。

また図 3 から、 $x/M = 18$ において、超音波を照射した場合には、主流方向速度変動および鉛直方向速度

Fig. 2 Streamwise distributions of the turbulence intensities of the streamwise and the vertical velocity fluctuations: $\circ$, $\bar{u}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence (Run I); $\triangle$, $\bar{v}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence (Run I); $\bullet$, $\bar{u}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence with ultrasound (Run II); $\blacktriangle$, $\bar{v}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence with ultrasound (Run II); $\blacksquare$, $\bar{u}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence with mean shear (Run III); $\blacklozenge$, $\bar{v}^2/\bar{U}^2$ in grid turbulence with mean shear (Run III)

Fig. 3 Vertical distributions of the turbulence intensities of the streamwise and vertical velocity fluctuations in grid turbulence (a) with ultrasound (Run II), (b) with mean shear (Run III). Symbols as in Fig. 2

変動が格子乱流のみの場合に比べて共に約 1.5 倍から 2.3 倍に増幅されるのに対して、シアーをかけた場合には、速度こう配が大きい $y/M = 0$ 付近では $\overline{u^2}/\overline{U^2}$ が約 5.3 倍に、 $\overline{v^2}/\overline{U^2}$ が約 4.4 倍に増幅されるが、速度こう配が小さい $y/M = \pm 1.0$ 付近ではそれぞれ 1.3 倍、1.2 倍程度にしか増幅されないことがわかる。なお、超音波を照射した場合には、超音波による流体の激しい密度変動により、超音波振動板上での LDV による速度の測定が困難であったため、 $3 \leq x/M \leq 12$ の領域のデータは図 2 に記入されていない。

図 4 に、テストセクション中心軸上での A 成分の鉛直方向乱流物質フラックスの主流方向分布を示す。ただし A 成分の濃度変動 c_A 、鉛直方向速度変動 v はそれぞれ C_{A0} 、 $\overline{U}$ で無次元化されている。図 4 より、鉛

Fig. 4 Streamwise distributions of the normalized vertical mass fluxes of species A: $\blacktriangle$, $\overline{v c_A^*}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence (Run I-NR); $\triangle$, $\overline{v c_A}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence (Run I-R); $\bullet$, $\overline{v c_A^*}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence with ultrasound (Run II-NR); $\circ$, $\overline{v c_A}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence with ultrasound (Run II-R); $\blacksquare$, $\overline{v c_A^*}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence with mean shear (Run III-NR); $\square$, $\overline{v c_A}/\overline{U C_{A0}}$ in grid turbulence with mean shear (Run III-R)

直方向への物質輸送は、シアーをかけた場合の方が超音波を照射した場合よりも大きく促進されることがわかる。

ここで、どのスケールの乱流渦によりおもに物質が輸送されているかを調べるために、 $x/M = 18$, $y/M = 0$ での v と c_A^* のコスペクトルを計算した。その結果を図 5 に示す。ただし、この図の縦軸のコスペクトルには周波数 f が乗じられているため、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 5 からわかるように、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全スケールの渦による物質輸送が促進される。一方、シアーをかけた場合には、5Hz 程度までの大スケールの物質輸送は大きく促進されるものの小スケールの渦による輸送はほとんど促進されない。つまり、超音波を照射した場合にはシアーをかけた場合に比べて未反応物質の接触界面が小スケールまでより複雑に変形されることがわかる。このため、超音波を照射した場合には化学反応がより速く進行し、図 4 において、反応を伴わない場合における鉛直方向乱流物質フラックス ($\overline{v c_A^*}$) と反応を伴う場合における鉛直方向乱流物質フラックス ($\overline{v c_A}$) を比較した場合、その差

Fig. 5 Normalized cospectra of the vertical velocity fluctuation and concentration fluctuation of species A in non-reacting flow: dashed line, in grid turbulence (Run I-NR); thick line, in grid turbulence with ultrasound (Run II-NR); thin line, in grid turbulence with mean shear (Run III-NR)

は超音波を照射した場合に最も大きくなる。

図6に、A成分の時間平均濃度 $\overline{C_A}$ および反応生成物Pの時間平均濃度 $\overline{C_P}$ のテストセクション中心軸上における主流方向分布を示す。ここで $\overline{C_P}$ は、反応を伴わない場合のA成分時間平均濃度 $\overline{C_A^*}$ と反応を伴う場合のA成分時間平均濃度 $\overline{C_A}$ との差をとることにより求めた。

$$\overline{C_P}/C_{A0} = 2(\overline{C_A^*} - \overline{C_A})/C_{A0} \dots\dots\dots (1)$$

これらの図から、テストセクション中心軸上において、超音波を照射した場合の方がシアーをかけた場合に比べて反応を伴う場合におけるA成分の濃度が低く、反応生成物濃度が高いことがわかる。

格子乱流のみの場合、超音波を照射した場合、およびシアーをかけた場合の、 $\overline{C_A^*}$, $\overline{C_A}$, $\overline{C_P}$ の $x/M=18$ における鉛直方向分布を図7に示す。超音波を照射した場合 [図7(b)] およびシアーをかけた場合 [図7(c)] における反応を伴わない場合のA成分の鉛直方向に対する濃度こう配が格子乱流のみの場合 [図7(a)] に比べてテストセクション中心部で緩やかであることから、超音波およびシアーによって乱流混合が促進されることがわかる。またこれらの図から、超音波を照射した場合とシアーをかけた場合との間で反応を伴わない場合におけるA成分の濃度こう配を等しくするという実験条件が満足されていることが確認できる。こ

Fig. 6 Streamwise distributions of the mean concentrations of (a) species A and (b) product P: Δ , $\overline{C_A}/C_{A0}$ in grid turbulence; $\blacktriangle$, $\overline{C_P}/C_{A0}$ in grid turbulence; $\circ$, $\overline{C_A}/C_{A0}$ in grid turbulence with ultrasound; $\bullet$, $\overline{C_P}/C_{A0}$ in grid turbulence with ultrasound; $\square$, $\overline{C_A}/C_{A0}$ in grid turbulence with mean shear; $\blacksquare$, $\overline{C_P}/C_{A0}$ in grid turbulence with mean shear

の鉛直方向に対する乱流拡散量を同じにした実験条件にもかかわらず、図6と同様に、反応生成物濃度は超音波を照射した場合の方がシアーをかけた場合より断面全体で高くなることがわかる。

そこで、超音波およびシアー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、それぞれの場合に対して生成物濃度を鉛直方向に積分することにより、断面全体での反応生成物量を次式により算出した(2)。

Fig. 7 Vertical distributions of the mean concentrations of species A and product P in (a) grid turbulence, (b) grid turbulence with ultrasound, (c) grid turbulence with mean shear: ●, $\bar{C}_A^*/C_{A0}$ in non-reacting flow; ○, $\bar{C}_A/C_{A0}$ in reacting flow; □, $\bar{C}_P/C_{A0}$

Fig. 8 Comparison among the amounts of the chemical product

$$P_T = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\bar{C}_P(y)}{\bar{C}_{A0}} dy \dots \dots \dots (2)$$

$x/M = 18$ での反応生成物量 P_T を格子乱流のみの場合での反応生成物量 P_{T0} で無次元化したものを図 8 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約 2.2 倍の反応生成物が得られることがわかる。これに対してシアーをかけた場合には、反応を伴わない場合の鉛直方向に対する A 成分の乱流拡散量 (濃度こう配) が超音波を照射した場合とほぼ等しいにもかかわらず、約 1.6 倍の反応生成物しか得られない。つまり、超音波を照射した場合には、シアーをかけた場合に比べても約 1.4 倍の反応生成物が見られることがわかる。

以上の結果から、超音波を用いる方がシアーを用いるより乱流混合反応を促進させる手段としては効果的であることがわかった。

5. 結 言

格子乱流場に、気泡をほとんど発生させない高周波超音波を照射した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、流体の瞬間速度および瞬間濃度の同時測定を行った。その結果、次の知見を得た。

超音波を照射した場合には、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促進されるため、未反応物質の接触面積が著しく増大し、その結果、乱流混合反応が大きく促進される。一方、シアーをかけた場合には、おもに大スケールでの乱流混合しか促進されないため、未反応物質の接触面積はそれほど増大しない。このため、乱流混合反応は超音

波を照射した場合ほど促進されない。

乱流混合反応を促進させる手段として超音波を用いることは、反応生成量を著しく増加させるという点だけでなく、超音波発振機への電気入力値を変化させることにより容易に反応生成量を制御することができる点においても、シアーを用いるより優れているといえる。これらのことから、超音波の反応装置などへの今後の応用が期待される。

謝 辞

本実験に対して協力いただいた杉岡健一氏(京都大学大学院)に感謝する。

本研究は、新規産業創造型提案公募事業(プロジェクト番号 99E 省 04-001-1) の援助を受けて行われた。

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) Lighthill, J., *J. Sound Vib.*, **61-3** (1978), 391-418.
- (5) Kamakura, T., Sudo, T., Matsuda, K. and Kumamoto, Y., *J. Acoust. Soc. Am.*, **100** (1996), 132-138.
- (6) Bergles, A. E. and Newell Jr., P. H., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **8** (1965), 1273-1280.
- (7) 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.
- (8) Komori, S., Kanzaki, T. and Murakami, Y., *J. Chem. Eng. Jpn.*, **27-6** (1994), 742-748.
- (9) Komori, S. and Nagata, K., *J. Fluid Mech.*, **326** (1996), 205-237.
- (10) Komori, S., Nagata, K., Kanzaki, T. and Murakami, Y., *AIChE J.*, **39-10** (1993), 1611-1620.