

不安定温度成層乱流場での混合反応機構

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)

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環境中の流れや工業装置内の流れの中に数多く見られ、その現象を解明することが汚染物質の拡散予測や燃焼・反応装置の設計問題と関連して重要である。

通常的环境中や反応装置内でみられる反応乱流のように予混合のない乱流場では、それぞれの反応物質を含む流体塊が不均一に混ざり合って存在し、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。したがって、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 [1]。

乱流場での混合状態、すなわちそれぞれの反応物質を含む流体塊が接触する界面の状態を変化させる因子として、まずシアア (せん断力) が考えられる。シアアが存在する場合には、反応性物質が接触する界面領域がシアアによって複雑に乱され、その結果、乱流混合反応が促進される [2]。一方、シアアの他にも乱流混合を促進する外力因子として不安定成層下で存在する浮力の効果が考えられる。鉛直上方に正の密度こう配が存在する不安定温度成層下では浮力対流によって乱流混合が促進され [3]~[5]、その結果化学反応も著しく進行することが予想される。しかし、従来の反応を伴う乱流に関する研究では、燃焼器内の流れなど化学反応そのものが熱発生に伴う浮力を生み出す場合や、まったく浮力が働かない等温の反応系のみを対象としており、浮力が混合反応現象にどのように影響するかについての基本的な問題は明らかにされていない。また、工業的には、バイオリアクターや重合反応器のようにせん断力による細胞や高分子の損傷を防ぐために低せん断場での混合反応促進が要求される場合がしばしば見られる [6]。このような用途に対しては、Taylor 渦を利用する方法 [6] などが検討されているが、不安定成層下での浮力対流を利用することによっても低せん断場での混合反応促進を達成できることが期待される。しかしながら、不安定成層の利用がシアアの利用に比べて混合反応促進の効果にどれほど有効で、また、低せん断混合反応促進の面でどれほど有利であるのかについては、これまでのところ定量的な考察がまったくなされていない。

そこで本研究では、不安定温度成層とシアアが存在する場合の二つの場合に対して、瞬間反応を伴う格子乱流場で瞬間速度と瞬間濃度の同時測定実験を行うことにより、浮力とシアアが乱流混合反応現象に及ぼす効果の差異を明らかにすることを目的とした。なお、本報告の詳細については、著者らの論文 [7] を参照されたい。

2. 実験

実験装置および測定システムの概略図を図 1 に示す。長さ 1m、断面 0.1m × 0.1m のアクリル (PMMA) 製のテストセクションの入口部に乱流格子 (格子間隔 $M=2\text{cm}$, 格子径 $d=3\text{cm}$) を取り付け、乱流格子下流域に等方性に近い格子乱流場を形成させた。上下層流体を縮流部に取り付け

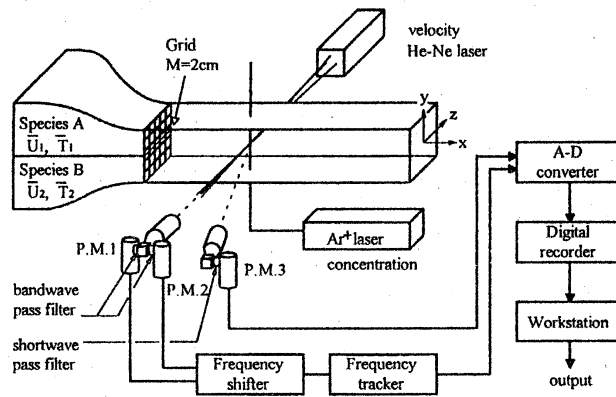


Fig.1 Measuring system and test apparatus.

Table 1 Experimental conditions.

Run	$\Delta\bar{T}$ [K]	$\Delta\bar{U}$ [m/s]	\bar{U}_{ave} [m/s]	Re_M [-]	Flow type
I-NR	0.0	0.0	0.125	2500	Non-reacting flow
I-R	0.0	0.0	0.125	2500	Reacting flow
II-NR	10.0	0.0	0.125	2500	Non-reacting flow
II-R	10.0	0.0	0.125	2500	Reacting flow
III-NR	0.0	0.03	0.125	2500	Non-reacting flow
III-R	0.0	0.03	0.125	2500	Reacting flow
IV-NR	0.0	0.04	0.125	2500	Non-reacting flow
IV-R	0.0	0.04	0.125	2500	Reacting flow

た分離板により完全に分離し、予混合がない状態で格子乱流場に供給し乱流混合させた。反応がない場合の実験には上層成分として蛍光物質ウラニン ($C_{20}H_{10}Na_2O_5$; 成分 A) を用い、初期濃度 $C_{A0} = 5.0 \times 10^{-5} \text{ mol/m}^3$ で均一に混入させた。また、反応を伴う場合の実験には二次の不可逆瞬間反応である酢酸 (成分 A) と水酸化アンモニウム (成分 B) (ともに初期濃度 $C_{A0} = C_{B0} = 0.01 \text{ N}$) の中和反応を用いた。この反応の反応速度定数は $k \approx 10^8 \text{ m}^3/(\text{mol} \cdot \text{s})$ であり、乱流拡散の時間スケール $\tau_t (= L/(\bar{q}^2)^{1/2})$ と反応の時間スケール $\tau_r (= (k(C_{A0}C_{B0})^{1/2})^{-1})$ との比で表されるダムケラー数 [8] は $Da \approx 4 \times 10^5$ であった。ここで、 L は積分スケールである。なお、この反応に伴う反応熱、および 10°C 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とを確認した。この反応を伴う場合も、レーザ蛍光法による A 成分 (酢酸) 濃度の測定を可能とするために、上下層流中にあらかじめ等量 ($5.0 \times 10^{-5} \text{ mol/m}^3$) のウラニンを均一に混入させた。この濃度測定の場合、蛍光の pH 依存性を利用した [2][9]。

実験条件を表 1 に示す。シアアが存在せず不安定成層が存在する場合の実験 (Run II) では、下層流の水温を上層流の水温よりも $\Delta\bar{T} (= \bar{T}_2 - \bar{T}_1) = 10 \text{ K}$ 高く設定し、上下層流の流速を 0.125 m/s の等流速とした。このとき、断面平均流速 \bar{U}_{ave} と上下層流温度差 $\Delta\bar{T}$ に基づくバルクリチャードソン数 $Ri_b (= -\beta g \Delta\bar{T} M / \bar{U}_{ave}^2)$ は -2.60×10^{-2} であり、グラスホフ数 $Gr (= \beta g \Delta\bar{T} M^3 / \nu^2)$ は 1.62×10^5 であった。また、格子間隔 M と断面平均流速 \bar{U}_{ave} に基づくレイノルズ数 Re_M は 2500 であった。成層が存在せずシアアが存在するせん断乱流場での実験では上下層流の水温を同じに

し、上下層流の流速差を $\Delta\bar{U} (= \bar{U}_1 - \bar{U}_2) = 0.03\text{m/s}$ (Run III) および 0.04m/s (Run IV) とした。いずれの実験においてもレイノルズ数 Re_M を等しくするため、断面平均流速が $\bar{U}_{ave} = 0.125\text{m/s}$ の一定値となるように上下層流速を設定した。なお、これらの流速差は、不安定温度成層が存在する場合と乱流エネルギーがほぼ等しい場合 (Run III)、鉛直方向の速度変動強度がほぼ等しい場合 (Run IV) に相当する。

瞬間速度と瞬間濃度の測定には、二成分流速測定用レーザドップラ流速計 (DANTEC 55X modular system) とレーザ蛍光法 [2][9][10] を用い、非接触で同時測定 [9][10] を行った。

3. 結果および考察

3.1 反応生成量に及ぼす不安定成層とシアアの効果 反応生成物の量を評価するために、 $x/M = 14$ の位置で鉛直 (y) 方向に測定した反応物 A と生成物 P の時間平均濃度分布を図 2 に示す。但し、反応生成物の時間平均濃度 \bar{C}_P は反応がない場合の 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 を用いて次式により求めた。

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

図 2 より、不安定成層が存在する場合 (図 2(b)) には反応生成物の濃度が断面全域で大きく増加するのに対して、シアアが存在する場合 (図 2(c),(d)) には断面全体での反応生成物濃度の増加が少ないことがわかる。

反応生成物の量をより定量的に評価するために、それぞれの場合について生成物濃度を鉛直 (y) 方向に積分し [11]、成層もシアアも存在しない場合 (図 2(a)) の積分値との比をとることによって浮力とシアアが反応量に及ぼす影響を評価した。

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

その結果、不安定成層が存在する場合には、成層もシアアも存在しない場合と比較して 1.83 倍もの生成物が生成されるのに対して、シアアが存在する場合には $\Delta\bar{U} = 0.03\text{m/s}$ の場合 (乱流エネルギーがほぼ等しい場合) で 1.18 倍、 $\Delta\bar{U} = 0.04\text{m/s}$ の場合 (鉛直方向の速度変動がほぼ等しい場合) でも 1.24 倍にしかならないことがわかった (図 3)。

不安定成層が存在する場合の方がシアアが存在する場合よりも化学反応が大きく促進される原因を調べるため、混合反応の進行に大きく影響する鉛直方向の速度変動強度のパワースペクトルをそれぞれの場合について計算した。その結果を図 4 に示す。図の横軸は周波数 f 、縦軸は周波数 f を乗じたパワースペクトルであり、パワースペクトルで囲まれる部分の面積が速度変動強度の大きさに相当する。この図より明らかなように、シアアが存在する場合には主に大スケールの乱れが増加する [10][12] のに対して、不安定成層が存在する場合には大スケールの乱れはもとより小スケールの乱れも増加することがわかる。すなわち、不安定成層が存在する場合には小スケールの乱れが増加することによって界面領域が複雑に乱され、さらに大スケールの浮力対流によって生成物が界面領域から取り去られるために、反応が著しく促進される。一方、シアアが存在する場合には、シアアによって与えられるエネルギーは主に大スケール渦の生成に寄与し、小スケールの乱れに対する寄与は不安定成層の場合ほど大きくないので、反応促進の効果は不安定成層の場合に比べて小さくなる。

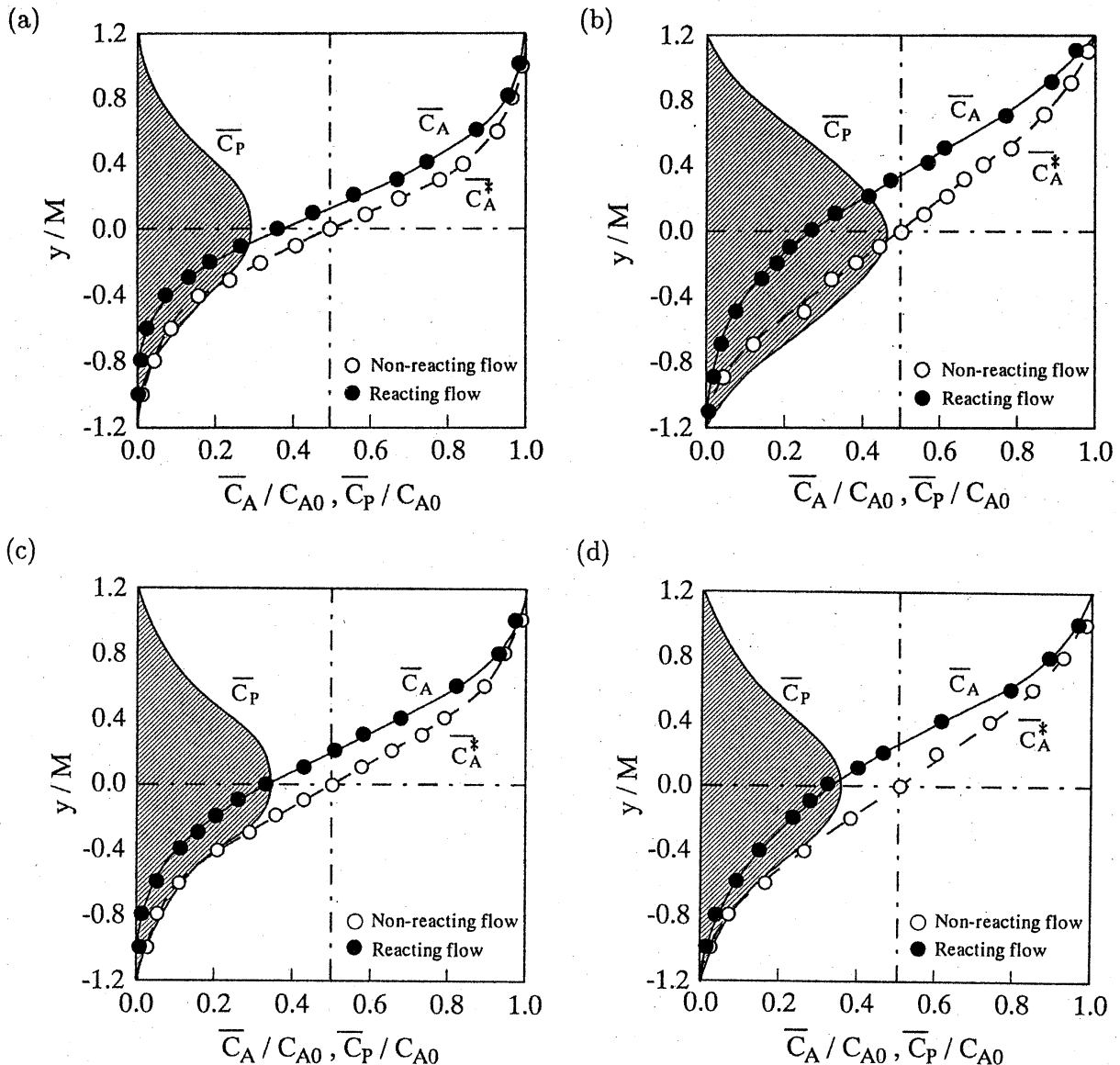


Fig.2 Vertical profiles of the mean concentrations of species A and P: (a) unshered neutrally-stratified flow (Run I), (b) unstably stratified flow (Run II), (c) sheared flow with $\Delta\bar{U}=0.03\text{m/s}$ (Run III), (d) sheared flow with $\Delta\bar{U}=0.04\text{m/s}$ (Run IV).

3.2 浮力混合の有用性 不安定成層が存在する場合 (Run II) とシアーが存在する場合 (Run III) について、 $x/M = 14$ の位置でレイノルズ応力 $R_{uv} (= \overline{uv}/\sqrt{u^2}/\sqrt{v^2})$ を実測した結果を図 5 に示す。この図より、不安定成層が存在する場合 (●) には、レイノルズ応力は断面全域でほぼ零になる。これに対して、シアーが存在する場合 (○) には、流速が異なる上下層流が接する装置中央部 ($y/M = 0$) 付近でレイノルズ応力の値が大きく、強いせん断力が作用することがわかる。この結果は、シアーよりも不安定成層による浮力対流を利用することによって低せん断場での混合反応促進を実現することができることを示しており、低せん断混合を必要とするバイオリクターや重合反応器などの工業装置への応用に期待がもたれる。

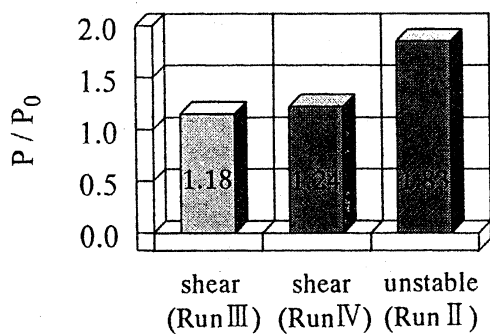


Fig.3 Comparison between the amounts of the chemical product for unstably stratified and sheared flows.

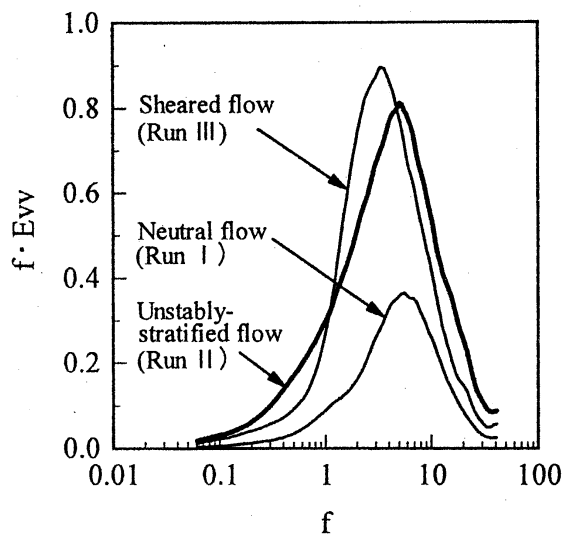


Fig.4 Power spectra of the vertical velocity fluctuations.

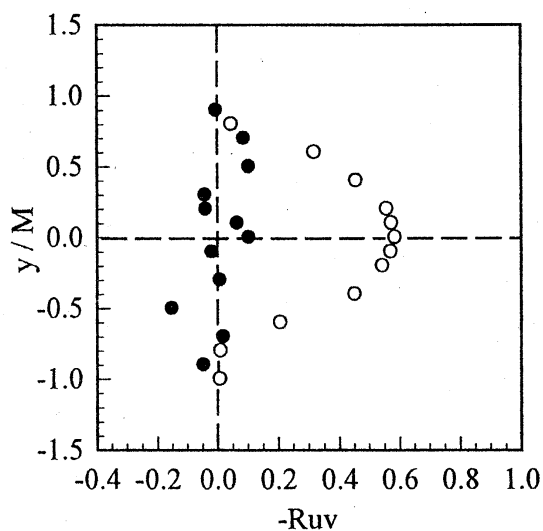


Fig.5 Vertical profiles of the Reynolds stress in unstably stratified and sheared flows: ●, unstably stratified flow (Run II); ○, sheared flow with $\Delta\bar{U}=0.03\text{m/s}$ (Run III).

4. 結言

不安定温度成層と乱流シアが存在する格子乱流場で反応物質が混合反応する場合について、瞬間速度と瞬間濃度の同時測定を行い、浮力とシアが混合反応現象に及ぼす効果について考察を行った。その結果、次の結論を得た。

(1) 不安定成層が存在する場合、浮力によって大スケールから小スケールに至るまでの全スケールで混合が促進され、その結果、化学反応も大きく促進される。

(2) シアーが存在する場合には、大スケールの乱れの増加に伴い乱流混合が促進される。しかし、小スケールの乱れは不安定成層の場合ほど大きくなるため、反応促進の効果は不安定成層の場合に比べて小さい。

(3) シアーが存在する場合には混合界面で強いせん断力が働くのに対して、不安定成層が存在する場合にはせん断力はほとんど働かない。したがって、不安定成層による浮力対流の利用により無せん断混合反応促進技術を開発できる可能性がある。

参考文献

- [1] 小森 悟, 化学反応と乱流, 流体力学の世界 (朝倉書店) (1990), 141-168.
- [2] Komori, S., Kanzaki, T. and Murakami, Y., Concentration correlation in a turbulent mixing layer with chemical reactions, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **27** (6) (1994), 742-748.
- [3] Komori, S., Ueda, H., Ogino, F. and Mizushima, T., Turbulence structure in unstably-stratified open-channel flow, *Phys. Fluids*, **25** (9) (1982), 1539-1546.
- [4] Arya, S. P. S., Buoyancy effects in a horizontal flat-plate boundary layer, *J. Fluid Mech.*, **68** (2) (1975), 321-343.
- [5] Pruitt, W. O., Morgan, D. L. and Lourence, F. J., Momentum and mass transfers in the surface boundary layer, *Quart. J. R. Met. Soc.*, **99** (1973), 370-386.
- [6] 平田雄志, 低剪断ミキシング技術, 最近の化学工学 44 ミキシング -変貌する攪拌・混合技術- (化学工業社), (1992), 114-120.
- [7] 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アの効果, 日本機械学会論文集 (B編) 63 巻 612 号 (1997), 274-281.
- [8] Bennani, A., Gence, J. N. and Mathieu, J., The influence of a grid-generated turbulence on the development of chemical reaction, *AIChE J.*, **31** (7) (1985), 1157-1166.
- [9] Komori, S., Nagata, K., Kanzaki, T. and Murakami, Y., Measurements of mass flux in a turbulent liquid flow with a chemical reaction, *AIChE J.*, **39** (10) (1993), 1611-1620.
- [10] Komori, S. and Nagata, K., Effects of molecular diffusivities on counter-gradient scalar and momentum transfer in strongly stable stratification, *J. Fluid Mech.*, **324** (1996), 205-237.
- [11] Breidenthal, R., Structure in turbulent mixing layers and wakes using a chemical reaction, *J. Fluid Mech.*, **109** (1981), 1-24.
- [12] Deissler, R. G., Effects of inhomogeneity and of shear flow in weak turbulence fields, *Phys. Fluids*, **4** (10) (1961), 1187-1198.