工学としての流体混合機構の解析と混合評価

阪大院・基礎工 井上義朗 (Yoshiro INOUE) Graduate School of Engineering Science, Osaka University

1. はじめに

混合操作は、化学反応、分離とともに化学プロセスにおける基本操作のひとつである. そのため、新しい攪拌翼の開発研究は今も活発に続けられている.しかし、攪拌槽内の 流動状態はあまりにも複雑であるため、攪拌・混合操作は経験とノウハウが支配するア ートの世界と言われてきた.工業的な攪拌操作の大部分は乱流条件下で行われるため、 理論的な研究はあまり進展していない.工学的に見れば、層流混合は乱流混合ほど多く ないが、高分子の重合反応器やバイオリアクターでは重要な混合操作である.高分子の 重合反応系では、重合の進行とともに流体の粘度が上昇するため、最終的には流れが層 流になることが多い.他方、バイオリアクター内で激しく攪拌すると細胞が損傷を受け るため、穏やかな層流条件下での混合操作が要求される.本稿では層流混合に限定して、 工学的な立場からの混合機構の捉え方と混合評価の手法について概説する.

2. 流体混合現象の意外性

非線形ダイナミクス理論やカオス理論等の知識を持たなかった現場の攪拌技術者にとっては,層流混合でさえ理解し難い複雑な現象であった.そのため,以下に挙げるような誤解や誤った先入観が,混合現象の真の理解を妨げてきた.

(1) "流線やトレーサー粒子の軌跡がわかれば、その流れ場における混合パターンは容易に予測できる"

この推測は、定常流れでは正しいが、非定常流では正しくないことは、Hama Flow の例^[1]やOttinoの実験^[2,3]からも明らかである.実際、非定常流れでは、流線、 流脈(色素線)、粒子線(粒子軌跡)はどれも一致しないばかりか、流体力学でお馴染 みのこれらの概念は、流体混合現象の理解には直接役立たない.流体混合に直接 関与するのは、双曲型不動点に属する安定多様体と不安定多様体である.これら 両多様体の絡み合いの錯綜構造によって形成されるターンスタイル・ローブが、 以下に述べるように混合パターンを生み出す際のテンプレートとなる^[4].しかし、 安定多様体は実験で直接可視化することができないため、混合機構についての実 験的解明は遅れた.

(2) "流れ場を詳しく観測するほど、混合現象はよりよく理解できる"

まじめな攪拌技術者ほど陥りやすい誤りである.非線形力学系の解析にポアンカ レ写像が有効であるように、流れ場を連続的に観測するよりも、流れ場の摂動周期 に合わせて断続的に観測するか、あるいは攪拌翼が特定の位置に来たときだけ測定 を行うことにより、流れ場の構造と混合機構との関係がより明確になる. 混合現象 にとって本質的な情報だけを残し、それ以外の間接的な情報を削ぎ落とすことによ って、かえって混合現象の本質が理解しやすくなる.

(3) "複雑な混合パターンは複雑な流れから生じる"

これが正しくないことは、すでにカオス力学系においてよく知られている事実で ある.しかし、乱流混合のイメージを層流混合場にまで延長し、激しく攪拌するこ とが最良の混合法と信じる攪拌技術者が多いことも事実である.ラグラジアン乱流 として知られている、カオス的な混合状態を生み出す層流の流れ系では、系全体を 見れば緩やかな引き伸ばしと折り畳みの大域的流れが存在するだけで、局所的に強 い剪断場はどこにも見あたらない.混合の推進力を、高速回転する攪拌翼近傍の流 体の強い剪断変形に頼ってきた攪拌技術者にとって、このような穏やかな流れ場に おいても高い混合状態が得られることは、ほとんど理解し難いことであった.

(4) "粘性流体の混合解析には保存力学は役立たない"

通常, 層流混合場では粘性が支配的である. そのため, 層流混合場におけるカオス的混合の解析には散逸力学系のカオスが重要であり, 保存力学系のカオスはそれほど重要でないと思われがちである. しかし, Aref によって指摘されたように^[5], 流れ関数 $\Psi(x,y,t)$ をハミルトン関数H(x,p,t), y を共役運動量 p と見なすと, 形式的には2次元流れ系と保存力学系を同一視することができる.

 $dx/dt = \partial \Psi/\partial y$, $dy/dt = -\partial \Psi/\partial x$ \Leftrightarrow $dx/dt = \partial H/\partial p$, $dy/dt = -\partial H/\partial x$ (1) この場合,粘性は流れ関数 $\Psi(x,y,t)$ を決める段階で関与するだけで,ひとたび流れ 関数 Ψ の形が決まれば,その流れ系における流体混合の解析は,形式的には保存力 学系の場合とまったく同じになる.したがって,保存力学系の力オスについての多

くの知見は、そのまま2次元流体系のカオス的混合の解析に応用することができる.

3. 流体混合における安定・不安定多様体の役割^[6,7]

安定多様体のように、流体混合場を背後で支配している構造には、実験で直接可視化 できない部分がある.流体混合の機構についての以下の説明を具体化するために、次の ような流れ関数で表される、分子拡散のない非定常流れを用いた流体混合を考える.

$$\Psi(x,z,t) = -\frac{1}{\pi} \left(\frac{1}{4} - z^2\right) \sin(\pi x) - \frac{\varepsilon}{2\pi} \sin(\omega t) \cos(2\pi z)$$
(2)

右辺第1項は2つの渦状流れを表す定常項,第2項が周期 $T = 2\pi/\omega$,振幅 ε で時間変化 する摂動項である.この流れでは図1のように左右2つの渦の中心位置が固定されたま ま,渦の相対的な大きさだけが交互に周期的に変化する.x = 0 とx = 2 の境界は周期境 界条件でつながっているとする.左半分と右半分がそれぞれ白と黒に塗り分けられた流 体を混合したときの,混合パターンの時間変化を図2に示す.2つの摂動パラメータ ε



と ω の組み合わせによって混合パターンの様子は大きく異なる. このような混合パタ ーンの形成を陰で支配しているのが, 図3のような構造である. このような概念図は, 摂動周期の整数倍時間ごとに流体粒子軌跡をプロットしたポアンカレ写像から得られる. ここには2種類の不動点が存在する. 一つは x = 0, 1, 2 付近の渦境界を表すセパラトリ ックスと上下壁面 z = ± 0.5 との交点の双曲型淀み点であり,もうひとつは定常流と摂動 流との共鳴効果によって, 渦の内部領域に形成される不動点列で, 楕円型不動点と双曲 型不動点が交互に並ぶ配置をとる. これらの双曲型不動点から伸びた安定多様体と不安 定多様体は, ヘテロクリニック錯綜によって無限個のターンスタイル・ローブを形成し, それらが渦内部の領域を埋め尽くすように伸びる. このようなローブで埋め尽くされた 領域が, カオス的な良混合状態を生み出す領域で, 通常 "カオスの海"と呼ばれる. カ オスの海は KAM トーラスによっていくつかの小領域に分断されるため, 一般に, 系全 体を完全に均一な混合状態にすることは難しい.

図4は、渦境界部分に形成される安定多様体と不安定多様体、およびそれらで囲まれ たターンスタイル・ローブの図である。流体が非圧縮性であれば、不変多様体の性質に より、各ローブ内の面積は等しく、一つのローブ内に含まれる流体は、1周期ごとに矢 印で示された2つ先のローブ内部に移動する。この移動を繰り返すごとに各ローブ内の 流体はどんどん引き伸ばされる。安定多様体同士あるいは不安定多様体同士が交差する





図4 安定・不安定多様体の錯綜と ターンスタイル・ローブ





図5 混合パターン(上) 図6 不安定多様体(右)

図7 ヘテロクリニック錯綜

ことはできないが、有限領域内では、引き伸ばされたローブの先端は再び元のローブの 内側に畳み込まれるようにして戻ってくる. このような回帰が幾重にも重ね合わされて 無限回繰り返されるため、系内部は安定多様体と不安定多様体から成る自己相似的な微 細なローブの編模様で稠密に埋め尽くされる. どのような隣接した2点でも、それらが 異なるローブ群に属していれば、時間が経つと全く異なる挙動をする. ここにカオスの 特徴である、初期値鋭敏性の一面を見ることができる.図4と図5の対応からわかるよ うに、流体塊はローブ単位で移動することから、ローブの編模様が混合パターンを生み 出すテンプレートとなる. 流体は不安定多様体の方向に大きく引き伸ばされるため、ロ ーブの一辺を形成する不安定多様体の形が、混合パターンの実質的な輪郭をなす(図6). 墨流し模様のような一見複雑な2次元混合パターンも、ターンスタイル・ローブをテン プレートとする規則的な構造に従って作り出されることがわかる. ターンスタイル・ロ ーブの面積が小さく、その伸び方が弱い系では混合が悪い、流体混合場の特性を解析す ることは、ターンスタイル・ローブの空間構造を調べることと同じであると言っても過 言ではない. 渦内部の領域に形成される安定多様体と不安定多様体の錯綜構造を図7に 示す. この領域においてもターンスタイル・ローブが形成される. この流れ系では, 渦 境界近傍で形成されたターンスタイル・ローブと、渦の内部領域で形成されたターンス タイル・ローブの両方がせめぎ合ってカオスの海を形成している.

流体粒子の軌跡を摂動周期ごとにプロットして得られる,ポアンカレ断面上のパター ンとそれに対応する混合パターンを図8に示す.点が不規則に分布するカオスの海の中 に,楕円型不動点を中心とする島状領域が点在するパターンとなっている.カオスの海 は良混合域、島状領域は不良混合域に対応する.摂動の振動数 ω を固定にして,摂動の 振幅 ε だけを変えた図8(a)から分かるように,振幅 ε を大きくするにつれて,渦の外 周部に位置する島状領域から侵食されて消滅あるいは縮小化し,その分だけカオスの海 の占める領域面積が増加する.しかし,残っている島状領域の位置は変化しない.これ に対して,摂動の振幅 ε を固定して振動数 ω だけを変化させた図8(b)では,島状領域 の形や配置パターンそのものが根本的に変る.これは Poincaré-Birkhoff の定理からもわ かるように,摂動により流れ場の共鳴構造自体が変化するためである.



図8 ポアンカレ断面とそれに対応する混合パターン

4. 混合の離散化モデル

流体混合の評価には、混合状態の評価と混合性能の評価の2種類がある.混合状態の 評価では、混合パターンが混合前と比較してどの程度均一混合に近づいたかを定量的に 表現するもので、混合パターンの静的な幾何学的性質を評価の対象とする.そのため、 評価値は速度分布だけでなく初期混合パターンにも依存する.これに対して混合性能の 評価では、混合を行う流れ場自身が持っている固有の混合能力を評価の対象とする.し たがって、混合の初期パターンには依存せず、流れ場の持つ動力学的特性だけで決まる. これら2つの混合特性を明確に分離して評価するためには、混合過程を離散化モデルで 表現するのが便利である.

流体系を等体積の N 個の微小セルに分割し,各セル内の濃度は均一とする. 第 i 番 目の微小セル内の濃度を C_i とすると,系の混合状態は N 次元の混合パターンベクトル $C^{t}=(C_{1},C_{2},...,C_{N})$ として表現できる. また,第 i 微小セル内の流体が時刻 t から一定時 間後 t + Δt に第 j セルに移動する割合を $p_{ji}(t)$ とする. ただし, $\Sigma_{i=1}^{N}p_{ji}(t) = 1$ である. $p_{ji}(t)$ を第 (j, i) 成分とする遷移行列を T(t) とすると,時刻 t の混合パターンベクトル C(t) は Δt 時間後には $C(t+\Delta t) = T(t) C(t)$ に変化する. 混合パターンの時間変化を,この ようなマルコフ過程として表現すると,混合性能の評価は混合パターンベクトル C(t) と C(0) から,また混合性能の評価は遷移行列 T(t) だけから評価できることになる.

このような離散化モデルを用いて混合パターンの時間変化を計算すると、分子拡散 ko 効果を除外しているにもかかわらず、微小セルのサイズを極端に小さくしないかぎり、 人工拡散によって急速に濃度分布がぼやける.これを防止するために、微小セル内の流 体の移動先をただ一つの微小セルに制限する.すなわち、遷移行列 T(t) が表す写像を1 対1写像に限定する.これによって、系内すべての流体要素の運動は周期軌道となるた め、力学系の数学的構造は元の流体系とは本質的に変わってしまう.しかし、1対1離 散写像モデルと離散写像近似を行わない直接計算による混合パターンとを比較した**図9** からも分かるように、微小セルサイズを十分小さくすれば、少なくとも工学的取り扱い においては、両者の混合パターンの違いは無視できる.速度分布から1対1写像の遷移 行列を高速かつ高精度で計算するには、領域分割法を用いればよい¹⁸¹.

5. 混合状態と混合性能の評価

混合状態を評価する指標としてよく用いられるのは Danckwerts の分離の強度 $I_s(t)$ と分離のスケール $L_s(t)$ である ^[9].

$$I_{s}(t) = \frac{1}{\overline{C}(1-\overline{C})} \cdot \frac{1}{L} \int_{0}^{L} \left\{ C(x,t) - \overline{C} \right\}^{2} dx \quad (3)$$

$$L_{s}(t) = \frac{1}{C'^{2}} \int_{0}^{L} \overline{C'(x,t)C'(x+r,t)} \, dr \qquad (4)$$



図9 離散モデルと直接計算の比較

ここに上付きバーは空間平均を表し、 $C'(x,t) = C(x,t) - \overline{C}$ は濃度変動値である.分離の 強度 $I_s(t)$ を,混合前の初期値 $I_s(0)$ と理想的に混合が行われたと仮定した場合の値 I_{id} を用いて規格化された $M(t) = (I_s(0) - I_s(t)) / (I_s(0) - I_{id})$ も,混合指標としてよく利用され る.そのほか,情報エントロピーを用いた混合指標もある^[10].これらは何れも単一のス カラー量を用いて混合状態の評価を行うため、複雑な混合パターンの特徴を十分に反映 させることはできない.混合途中の状態や不良混合状態では、場所によって混合の強さ が異なる.これら多様な混合パターンの特徴を表現するために、ここではマルチフラク タル次元を利用する方法を紹介する.この評価法では、混合パターンの特徴を、あるフ ラクタル次元を持つ局所領域が系全体に占める割合、あるいは、それらの局所領域が系 全体に分布する大域的なフラクタル次元を用いて表現する^[11].

系全体を $N_{\rm G}$ 個の等体積の粗視化セルに分割したときの代表長さスケールを $\epsilon_{\rm G}$ とする、通常のマルチフラクタル解析では、セルスケール $\epsilon_{\rm G}$ を無限小に近づける極限操作を行ってフラクタル次元を計算する ^[12]. しかし、通常の工学的な問題では系内の濃度分布を $\epsilon_{\rm G} = 0$ の高分解能で測定することは困難である. このため $\epsilon_{\rm G}$ を有限サイズに保ってフラクタル次元(的な量)を計算する手法を用いる. $\epsilon_{\rm G}$ の値は、すべての粗視化セルが着目成分で占められたとき、その分布に対する(容量次元としての)フラクタル次元が空間のユークリッド次元 D_0 と一致するように定める.

$$N_{\rm G} = \varepsilon_{\rm G}^{-D_0} \tag{5}$$

通常のマルチフラクタル解析手法に従って, 第 i 粗視化セルに着目成分を見出す確率 p_i を用いて, crowding index $\alpha_i \geq \beta$ 次の escort 分布密度 $P_i(\beta)$ を次式で定義する.

$$p_i = \varepsilon_G^{\alpha_i} \tag{6}$$

$$P_i(\beta) = p_i^{\beta} / \sum_{j=1}^{N_{\rm q}} p_j^{\beta} = p_i^{\beta} / Z(\beta)$$
⁽⁷⁾

 α_i の $P_i(\beta)$ による平均値を $\alpha(\beta)$ とする.

$$\alpha(\beta) = \sum_{i=1}^{N_{\rm g}} \alpha_i P_i(\beta) \tag{8}$$

 $P_i(\beta)$ に関する crowding index f_i とその平均値 $f(\beta)$ も式 (6), (8) と同様に定義する.

$$P_i(\beta) = \varepsilon_G^{f_i} \tag{9}$$

$$f(\beta) = \sum_{i=1}^{N_{\rm G}} f_i P_i(\beta) = 1/\ln \varepsilon_{\rm G} \sum_{i=1}^{N_{\rm G}} P_i(\beta) \ln P_i(\beta)$$
(10)

$$= \beta \alpha(\beta) - \ln Z(\beta) / \ln \varepsilon_{\rm g}$$
⁽¹¹⁾

 $\epsilon_{G} \rightarrow 0$ の極限では、通常のマルチフラクタル解析と同様に、 $\alpha(\beta)$ と $f(\beta)$ はそれぞれ局 所フラクタル次元に関係した local scaling exponent と大域的フラクタル次元に収束する.

混合の離散化モデルを用いると、crowding index α_i を局所フラクタル次元 d_i に関係付けることができる。各粗視化セルをさらに等体積の n_p 個の微小セルに分割したとき、その中で着目成分によって占められた微小セル数を n_i (= $p_i N_p$) とする。ただし、 N_p は系内に含まれる着目成分の微小セルの総数(着目成分の仕込み量)、微小セルの長さスケ

ール ϵ_p は、 ϵ_G を決めたときと同じ理由で $n_p = \epsilon_p^{-D_0}$ と定める.

$$p_i N_p = n_i = \varepsilon_p^{-d_i} \tag{12}$$

によって定義される d_i は、 $\epsilon_G \rightarrow 0$ の極限では容量次元の意味で、第 i 粗視化セルの局所フラクタル次元となる.式 (6) と式 (12) より d_i と α_i の関係が得られる.

$$\alpha_i \ln N_{\rm G} + d \ln n_{\rm G} = D_0 / N_{\rm p} \tag{13}$$

両辺を $P_i(\beta)$ で平均化することにより $d(\beta)$ (= $\sum_{i=1}^{N_{\alpha}} d_i P(\beta)$) と $\alpha(\beta)$ の間にも同様の 関係が得られる. 混合パターンの時間変化とそれに対応する $f(d(\beta)) - d(\beta)$ のマルチフラ クタル・スペクトルの時間変化を図 10 に示す. 混合の進行とともに, 横軸の局所フラク



図10 混合パターン (左) に対応するマルチフラクタル・スペクトル (右)

タル次元の分布幅が狭くなり, d(β) = 1.8 の局所フラクタル次元のところで極大値2を示 すことから,系全体が局所次元 1.8 の領域でほぼ一様に占められた状態に近づくことが わかる. このようにマルチフラクタル解析を利用すると,スペクトル曲線の形から混合 の状態をより詳細かつ定量的に知ることが可能になる.

マルチフラクタル解析と統計熱力学との間に形式的なアナロジーが存在することはよく知られている^[12]. このアナロジーによれば,式 (11) は熱力学関係式 S = U/T - F/T に対応し,スキャンパラメータ β は逆温度と解釈される. この対応を利用すると,流体混合評価 \Leftrightarrow マルチフラクタル解析 \Leftrightarrow 統計熱力学 の関係から,統計熱力学変数に対応する新しい混合指標を定義し,それらの間に成り立つ関係を見出すことも可能である. たとえば,混合場における濃度ゆらぎを"混合場の比熱"と見なし,粗視化セルサイズ ϵ_{G} を変えたときの Rényi 次元の変化率を"混合場の圧力"と解釈することも可能である.

6. おわりに

流体混合はごくありふれた日常的現象であり,誰でも簡単に混ぜ,すぐにその結果を 見ることができる.しかし,その単純さとは裏腹に,それを理解することは予想以上に 難しい.流体混合を工学的問題として捉えるとき,本稿で述べた混合機構の解明や混合 評価以外に,流体をいかに速く少ないエネルギーで混合するかという混合速度と撹拌エ ネルギーの問題,気泡や固体粒子が混在した混相流系の混合の問題などがある.混合理 論がさらに発展し,良混合場を実現するための条件が充分に明らかにされたとしても, そのような流れ場をいかにして設計するかという逆問題は大きな課題として残る.これ は工学の宿命といえるかも知れない.流体混合機構や混合状態の評価に関する研究を通 じて痛感することは,混合操作の真の対象は物質ではなく情報だということである.そ の意味で,流体混合は「情報流体工学」と呼ぶのがふさわしいのではないだろうか.

参考文献

- [1] Hama, F. R.; Phys. Fluids, 5, 644-650 (1952)
- [2] Leong, C. W. and J. M. Ottino ; J. Fluid Mech., 209, 463-499 (1989)
- [3] Ottino, J. M.; The kinematics of mixing: stretching, chaos, and transport, Cambridge Univ. Press (1989)
- [4] Camassa, R. and S. Wiggins; Phys. Rev. A., 43, 774-797 (1991)
- [5] Aref, H.; J. Fluid Mech., 143, 1-21 (1984)
- [6] 井上義朗, 平田雄志; 化学工学論文集, 25, 294-302 (1999)
- [7] 井上義朗, 平田雄志; 化学工学論文集, 26, 31-39 (2000)
- [8] 橘 裕司, 井上義朗, 平田雄志; 化学工学論文集, 26, 596-603 (1999)
- [9] Danckwerts, P. V.; Appl. Sci. Res., A3, 279-286 (1952)
- [10] Ogawa, K. and S. Ito; J. Chem. Eng. Japan, 8, 148-151 (1975)
- [11] 井上義朗, 平田雄志; 化学工学論文集, 29, 313-319 (2003)
- [12] Beck, C. and F. Schlögl; Thermodynamics of chaotic system, an introduction, Cambridge Univ.Press (1993)