

平成 30 年 5 月 23 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14453

研究課題名(和文) ヘルムホルツ共振を利用したマイクロスケール攪拌励起

研究課題名(英文) Excitation of microscale agitation using Helmholtz resonance

研究代表者

岩井 一彦 (Iwai, Kazuhiko)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：80252261

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ヘルムホルツ共振容器を用いて、化学反応促進、物質移動促進を図るプロセスの基礎的な知見を得ることを目的として、超音波印加による化学反応促進の観察実験を行った。このプロセスの特長はコンパクトなサイズで共振を実現可能なことである。得られた結果として、対流を抑制した条件下での容器内の局所的な化学反応速度、経時変化の推定を可能としたことが挙げられる。また、今後の検証が必要ではあるものの、ヘルムホルツ共振容器は化学反応を促進する可能性があることを見いだした。

研究成果の概要(英文)：Experimental work has been done to obtain basic knowledges of a newly proposed process for chemical reaction enhancement and mass transfer enhancement using a Helmholtz resonance vessel under the imposition of ultrasound. The advantage of this process is excitation of the resonance using a compact size vessel. Estimation of local chemical reaction rate and its time dependence in the reaction vessel has been achieved under the suppression of convection. Furthermore, the chemical reaction rate might be enhanced using the Helmholtz resonance vessel.

研究分野：材料プロセス

キーワード：超音波 化学反応促進 共振

1. 研究開始当初の背景

(1) マイクロリアクターの反応促進

マイクロリアクターでは、一般的にマイクロスケールの流路が反応容器である。流路径が小さく処理量が制限されるので、医療分野など、高付加価値で多品種少量生産の用途に適している。また、流路径が小さいので流れは層流となり、二つの原料の混合は対流ではなく拡散支配となる。よって流路径は小さくとも長い流路長が必要である。

一方、超音波(音波)は化学反応促進、音響流(流動)励起による攪拌など、工業的に有用な機能を多く有している。その超音波(音波)が有する化学反応促進機能を低エネルギーで効率的に利用するためには共振が望ましく、特にマイクロリアクターに適用するためには、共振をコンパクトな容器で励起することが望ましい。

(2) ヘルムホルツ共振

ビール瓶に口を近づけると音が鳴る現象として知られているヘルムホルツ共振は、容器と内部流体との音響インピーダンスの違いを利用した共振であり、小さなパワーで大きな振幅を得ることが出来る。身近なものではバイオリンなどの弦楽器、コンサートホールの吸音材、自動車の消音器などとして利用されている。チャンネルなどの1次元容器の場合、共振を起こすための最小長さは1/4波長であるが、ヘルムホルツ共振容器はコンパクトなサイズにできる。よって、容器をコンパクトにするためには、超音波(音波)波長より小さなサイズで共振可能なヘルムホルツ共振容器が適切である。

(3) ヘルムホルツ共振の化学反応容器への適用

上述の通り、ヘルムホルツ共振容器を音響工学的に用いるのではなく、超音波が有する化学反応促進機能、物質移動促進機能を増幅させる反応容器として捉えれば、コンパクトかつ高化学反応速度である、新たな反応容器を供することとなり、その現象解明が求められている。

2. 研究の目的

コンパクトなサイズで共振を実現可能な、ヘルムホルツ共振容器を用いて、化学反応促進、物質移動促進を図るプロセスの基礎的な知見を得るために、ヘルムホルツ共振容器に超音波を印加したときの流動や化学反応速度などの容器内現象を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

研究経過を含めて以下に記述する。

H28年度

(1) ヘルムホルツ共振容器の設計と超音波印加

まず、容器や液相の音響インピーダンスなどを考慮しながらヘルムホルツ共振容器の設計を行い、それに基づいて実験装置を構築した。

作製したヘルムホルツ共振容器に炭酸水水溶液を満した後に、超音波振動子を用いて超音波を印加したが、共振現象は観察されなかった。そこで、ヘルムホルツ共振容器の共振容器部分をピストン形状とすることでその容積を可変とすること(共振周波数の微調整に相当)、液面高さの微調整(共振周波数の微調整に相当)、あるいは溶液の炭酸濃度変更(超音波による圧力変動に伴う気泡発生量を変化させること)、炭酸水水溶液から過マンガン酸水溶液への変更、等の様々な工夫を凝らしたが、いずれの方法においても共振現象は観察されなかった。

(2) 矩形容器を用いた共振現象観察

矩形容器を用いた単純な実験系で共振現象観察実験を行った。超音波を矩形容器内の炭酸水水溶液あるいは脱気水に印加したところ、いずれの場合も超音波伝播方向に対して等間隔に気泡集積帯が形成された。また、気泡は時間の増加に伴い増加した。理論的には、定在波が形成された水溶液内の気泡は放射圧によって音圧の節に集まることとなるので、定在波が形成されていたことがわかる。この実験結果は、定在波が形成されており、かつ、脱気水においても気泡が形成されたことから共振状態にあると判断した。

次に、アルミ箔を容器側面に貼り付けて超音波を印加したところ、溶液が脱気水の場合には何の変化も見られなかったが、炭酸水水溶液の場合にはキャビテーションに起因すると推測される圧痕が見られた。そこで、炭酸水水溶液と脱気水とで圧痕の有無について差異が生じた原因が超音波の入力パワーに起因するの否かについて検討した。超音波を印加しつつ炭酸水水溶液、脱気水のそれぞれの昇温速度を求めることで、超音波の入力パワーを推定したところ、両者は大差ないことが判明した。従って、圧痕の有無は超音波による入力パワーの差異ではなく、炭酸水水溶液と脱気水との気泡発生頻度に違いに起因すると結論づけた。

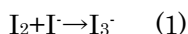
容器サイズを変化させて共振励起実験を行ったところ、大きな容器では共振が観察されなくなったが、これは超音波のパワー不足であると推測された。また、気泡生成を超音波による化学反応促進効果の指標としたが、今回の実験系では、カメラの精度が十分ではなく定量的な評価が困難であった。よって、これについては別の指標を検討することとした。

H29年度

(3) 化学反応速度の経時変化計測

前年度の結果を踏まえて、実験方法の細部や超音波による化学反応促進効果の評価方

法について検討した。前者については、容器を小型化、かつ周波数制御の高精度化が可能なるように実験系、実験方法を改良した。後者については、種々の方法を比較・検討した結果、化学反応による変色を伴う KI 水溶液を用いることとした。本水溶液へ超音波を印加することにより、下記の化学反応が促進される。



(1)式で示す化学反応により生成する I_3^- は、波長が 355nm の光を吸収するので、この波長の吸光度と種々の I_3^- 濃度との関係を表す検量線を作成すれば、この波長の吸光度から水溶液中の I_3^- 濃度が求められる。

改良した実験系において、本水溶液に対する超音波印加実験を行った。吸光度計を用いて、波長が 355nm の光の吸光度を超音波印加の前後で計測したところ、超音波印加により、吸光度が増加したことがわかった。すなわち、本実験系において、超音波印加による上述の化学反応の促進効果が確認された。

一方、参考文献②の Fig.1 (ヘルムホルツ共振容器設計に資する化学反応の観察方法、材料とプロセス (CAMP-ISIJ)、Vol. 30 (2017) p. 611 (CD)) に示す通り、カメラ撮影から得られた輝度は経時変化に伴い、徐々に減少していった。すなわち、超音波印加前後の吸光度の変化と輝度の変化とが対応することから、波長を特定した光 (具体的には波長 355nm) ではなく、市販カメラの輝度から化学反応を捉えることができたといえる。この方法は、連続撮影することで、局所的な溶質濃度の経時変化を捉えることが可能である。

(4) 対流抑制による局所的な化学反応速度計測

局所的な溶質濃度は、化学反応ばかりではなく、対流によっても変化する。そこで、局所的な化学反応速度のみを評価するために、対流の抑制に取り組んだ。

まず、仕切り板を鉛直方向に挿入することで水平方向の対流を抑制した実験装置を用いて超音波印加実験を行い、超音波印加前後の吸光度を測定した。その結果、超音波印加後の容器中央部における吸光度は容器側壁近傍における吸光度に比べると、その値が大きかったことから、容器側壁近傍に比べて容器中央部付近における化学反応速度は速かったことが確認された。これは、上述の通り、容器内に仕切り板を挿入することで、容器内の対流が抑制されるためであると推測された。

次に、対流現象を観察するために、理論上、超音波が透過する厚さの仕切り板を容器内で水平方向に設置して、容器上部に置かれた超音波振動子から容器内部へ向かう対流が容器下部まで到達しないようにした。そして、

流動観察のために、ストークス数が十分小さいトレーサー粒子を水溶液に入れて、超音波印加時の様子をカメラで観察した。超音波により励起される対流によって、仕切り板より上部のトレーサー粒子は高速で運動したものの、仕切り板より下部のトレーサー粒子の移動速度は極めて遅く、容器下部での対流抑制が確認された。このとき、波長 355nm の吸光度は超音波印加により仕切り板の上部、下部のいずれの位置においても増加したもので、超音波が仕切り板下部にも伝播して化学反応を促進したものと推測される。また、吸光度の増加量は、下部の方が上部に比べて少なかった (参考文献①の Table 1 (流動抑制下における、超音波による化学反応促進効果の評価、材料とプロセス (CAMP-ISIJ)、Vol. 31 (2018) p. 203 (CD)))。この原因は、仕切り板下部の超音波強度は上部のそれに比べて弱かったために、化学反応促進の程度も弱くなったからであると推測された。カメラから得られた輝度は、仕切り板上部ばかりではなく、下部においても減少した。輝度の減少速度は下部に比べて上部の方が大きく、この傾向は吸光度測定の結果と一致した。さらに、仕切り板下部における輝度の経時変化は位置により異なった。具体的には、仕切り板下部の領域のうち、容器中央に相当する位置の輝度は、容器側壁近傍における輝度より常に低下速度が速かった。すなわち、化学反応速度の位置による違いが輝度となって観察されたと推測される。

よって、本方法を用いることで、対流を抑制した条件における局所的な化学反応の経時変化を簡便な方法で計測することが可能となったといえる。

なお、輝度の経時変化は超音波出力が弱いときには観察されなかった。この結果は、超音波による化学反応促進効果には臨界値が存在することを示唆している。

(5) ヘルムホルツ共振容器への適用

容器形状を矩形容器からヘルムホルツ共振容器に変更して、超音波印加による化学反応促進実験を行った。ヘルムホルツ共振容器の共振領域へ十分な量の光を照射することは困難であり、現有のカメラを用いて輝度から化学反応促進効果を明らかにすることはできなかった。しかしながら、ヘルムホルツ共振容器と矩形容器のそれぞれの水溶液について、超音波印加終了後に吸光度計を用いて波長 355nm の吸光度を比較したところ、前者は後者に比べて、化学反応が促進しているとおぼしきデータが得られた。これについては、今後検証実験が必要である。

4. 研究成果

従来の超音波による化学反応促進効果の評価としては、超音波印加前後の化学種の変化量を容器などのマクロなスケールで比較する方法がもっぱらであったが、対流を抑制

した条件下における容器内の化学反応速度の空間分布、経時変化の推定が可能となった。将来的に超音波強度の空間分布計測と組み合わせることで、化学反応促進効果に及ぼす超音波強度の影響を定量的に評価する道を拓いたといえる。また、今後の検証が必要ではあるものの、ヘルムホルツ共振容器は化学反応を促進する可能性があることを見いだした。

熊谷 剛彦 (KUMAGAI Takehiko)
北海道大学・工学研究院・助教
研究者番号： 20250475

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2件)

- ① 浅羽南海輝 岩井一彦、流動抑制下における、超音波による化学反応促進効果の評価、材料とプロセス(CAMP-ISIJ)、査読なし、Vol. 31(2018) p. 203 (CD)
- ② 浅羽南海輝 岩井一彦、ヘルムホルツ共振容器設計に資する化学反応の観察方法、材料とプロセス(CAMP-ISIJ)、査読なし、Vol. 30(2017) p. 611 (CD)

[学会発表] (計 4件)

- ① 浅羽南海輝 岩井一彦、流動抑制下における、超音波による化学反応促進効果の評価、日本鉄鋼協会第175回春季講演大会、2018年
- ② 浅羽南海輝 岩井一彦、超音波による反応促進効果解明のための、超音波印加時の流動評価、平成29年度日本鉄鋼協会・日本金属学会両北海道支部合同冬季講演大会、2018年
- ③ 浅羽南海輝 岩井一彦、ヘルムホルツ共振容器設計に資する化学反応の観察方法 日本鉄鋼協会第174回秋季講演大会、2017年
- ④ 浅羽南海輝 岩井一彦、ヘルムホルツ共振を利用した超音波による化学反応促進、平成29年度日本鉄鋼協会・日本金属学会両北海道支部合同夏季講演大会、2017年

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩井 一彦 (IWAI Kazuhiko)
北海道大学・工学研究院・教授
研究者番号：80252261

(2) 研究分担者

大参 達也 (OHMI Tatsuya)
北海道大学・工学研究院・准教授
研究者番号：90169061