

平成 22 年 3 月 31 日現在

研究種目：基盤研究（B）
研究期間：2007～2009
課題番号：19360102
研究課題名（和文） 非定常カオス混合反応過程の三次元構造解析による混合反応促進メカニズムの解明
研究課題名（英文） Three dimensional structure analysis of enhancement mechanism of mixing and reaction in non-steady chaotic mixing processes
研究代表者 植田 利久 (UEDA TOSHIHISA) 慶應義塾大学・理工学部・教授 研究者番号：10151797

研究成果の概要（和文）：

研究代表者が提案しているノンエレメントミキサーを対象に、非定常カオス混合反応過程について、実験、理論解析そして数値シミュレーション手法を用いて検討し、その詳細を明らかにした。混合の様子は PLIF 法により可視化した。また、複数の LIF 像を三次元的に再構成することにより、複雑なカオス混合過程を三次元的に再現し、その詳細な構造に検討を加えた。さらに、対流混合の特性幅、分子拡散の特性幅、および濃度の変化幅を用いることにより、混合の不均一性も考慮した混合度を評価し、また予測することができることを示した。

研究成果の概要（英文）：

The enhancement mechanism of mixing and reaction in non-steady chaotic mixing and reaction processes has been discussed in detail experimentally, analytically and numerically, taking into account the three dimensional structure. The mixing pattern is visualized by PLIF method. The three dimensional mixing pattern is visualized by using PLIF images. The estimation method of mixedness by using characteristic widths of advective mixing and molecular diffusion, and concentration variation are proposed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,600,000	1,380,000	5,980,000
2008年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	8,400,000	2,520,000	10,920,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：熱工学, 流体力学, 非定常混合, カオス混合, 三次元構造

1. 研究開始当初の背景

機械工学、化学工学などの分野において、熱物質移動の基本過程のひとつである混合反応過程は重要な過程のひとつである。その応用はリアクターからエンジン、また近年では環境問題にまで及んでいる。混合反応過程は、大別すると層流混合と乱流混合に別けることができる。層流混合は現象が決定論的であり、詳細な予測が可能である半面、混合が緩慢である。他方、乱流混合は、混合が速いが、現象が統計的であり、平均値など統計的数値で記述しなければならない。

一般的には混合を促進させるためには乱流とすることが効果的であるが、近年、乱流などにより混合することがむずかしい場での混合反応促進、評価が重要となりつつある。たとえば、高粘度液体流れでは乱流とすることは難しい、マイクロ流路では流路レイノルズ数が1以下の場合も多く乱流とすることは難しい。また、生体流、バイオリアクター内流れ、非ニュートン流など内部構造を有する流体では、流れを乱流にすると強いせん断により内部構造を破壊する可能性があり、乱流とすることは難しい。このような流れ場では、層流中での混合反応の促進が望まれる。層流中での遅い混合過程の促進には、流体のカオスの挙動を用いることが有用であることが示されており、「カオス混合」と呼ばれている。その場合、混合は分子拡散のみでなく、流体要素の分散や引伸ばし・折畳みにより、熱物質移動が起こる境界面の面積の増加や特性の変化が混合を促進する。このような混合は流体全体を完全に均一にすることはできず、不均一性を残すものである。そこで、混合・反応を評価する場合、これまでの均一な状態を想定した濃度による評価だけでは不十分であり、分散、引伸ばし・折畳みによる境界面の変化をも含めた「カオス混合」の適切な評価方法が求められる。

カオス混合を実現するためには、スタティックミキサーなど複雑な流路を用いた定常混合が一般的に用いられている。他方、流れに変動を周期的に与えることでカオス混合を実現する「非定常混合」がある。申請者は、その有用性にいち早く着目し、その一例として、ノンエレメント混合・反応器を提案した（特許第3629575号（2004））。ノンエレメント混合・反応器は1本の主流と複数の支流からなる単純な装置であるが、支流の流れを周期的に変動させることにより、混合を促進させることが可能であることを示した。このような非定常カオス混合は、流れ場は非定常であり、かつ三次元的であるため、その詳細については十分定量的

的に解明されているとはいえず、また、カオス混合の評価法も確立していない。その結果、機械装置への応用はほとんど進んでいない。

2. 研究の目的

非定常カオス混合の詳細は、流れ場が非定常であり、かつ三次元的であるため、十分定量的に解明されているとはいえず、また、カオス混合の評価法も確立していない。その結果、機械装置への応用はほとんど進んでいない。そこで本研究では、レーザ測定技術と数値解析法を駆使し、申請者が発案したノンエレメント混合・反応器を題材に、非定常三次元カオス混合過程の基本的特性の詳細を解明し、カオス混合の評価法を提案することを目的とする。具体的には以下のようにすすめる。

- (1) 非定常三次元カオス流れ場における混合反応過程を時系列的、三次元的に実験的、数値解析的に検討を加え、その詳細を解明する。
- (2) (1)の結果を踏まえ、「カオス混合」の評価方法を、不均一性を含め、提案する。

3. 研究の方法

実験:

実験装置

図1に実験装置を示す。実験装置はφ10mmの1本の主流円管とφ3mmの複数本の支流円管からなる。主流は、上流側に設置された貯水槽から、定常に加圧されて流れてくる。支流はシリンジポンプを用いて周期的に主流に垂直に注入される。本研究では、複数の支流は同位相で注入される。支流の注入時間、注入間隔、注入測度などはコンピュータで設定され、シーケンサを介して精度よく注入される。全体の時間平均流量は、主流円管下流側に設定された制御バルブのより調整される。流体には、粘性係数が水の数百倍のグリセリンを用いた。主流円管には透明アクリル管を用いており、レーザ誘起蛍光法により断面可視化を行うことができる。任意の断面の可視化が可能のように、レーザ光源(ダイオードレーザ)と断面像撮影用にデジタルビデオカメラはひとつの可視化装置設置台に設置され、その装置がリニアールに乗せられている。可視化装置設置台は、コンピュータ制御によりリニアール上を任意の速度で、任意の位置で停止することができるようになっている。レーザ光により誘起蛍光像を得るために、もっとも上流側の支流の液体には、蛍光物質ローダミンBが添加される。すなわち、もっとも上流側の支流の流体の様子が可視化される。

実験方法:

まず主流を所定の流量で定常的に流す。つぎに、支流から、所定の流量、押し出し時間、押し出し間隔で周期的に流す。レーザシートを照射し、ローダミンBによる蛍光発光の時間変化をデジタルビデオカメラで撮影する。レーザシートは主流中心軸断面、中心軸に垂直な断面に照射し、それぞれの変化を二次元的に観察する。主流流量、支流本数、支流流量、支流押し出し時間、支流押し出し間隔、を系統的に変化させ、流れ、混合の様子を系統的に明らかにする。また、可視化像の境界線の長さを測定し、対流による混合の程度を定量化する。

つぎに、可視化装置をリニアールール上を一定速度で移動させ、主流中心軸に垂直な断面を一定間隔で可視化し、断層像を作成する。その断層像を用いて、流れ、混合の様子を3次元的可視化する。この際、撮影の時間差が誤差とならないように、流れは一時的に停止される。得られた断層像、3次元可視化像の境界面の面積を測定し、対流による混合の程度を定量化する。

数値解析：

汎用熱流体ソフトウェアFluentを用いて、流れ、混合の様子を数値的に解析し、実験結果と比較し、検討を加える。数値解析結果は3次元的可視化像と比較検討し、流れ、混合の様子について検討を加える。

得られた結果をもとに、引き延ばし、折りたたみによる境界の拡大と分子拡散に着目し、本研究で対象とする非定常カオス混合反応過程の混合の程度の定量評価法について検討を加える。その際、定常カオス混合反応過程であるKenicsタイプの混合についても同様の考察を行い、カオス混合反応過程の混合の程度の評価法としての汎用性について検討を加える。

4. 研究成果

流れ方向の可視化

Branch 1 から流入される液体には、ローダミンBが添加されており、レーザシートを照射することにより、蛍光発光が観察される。したがって、蛍光発光を観察することにより、Branch 1 から流入された液体が、主流中でど

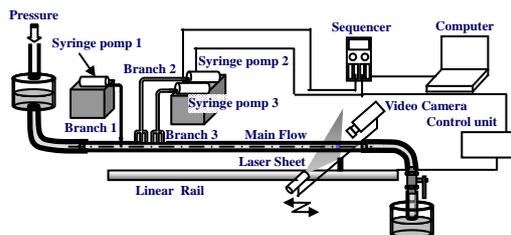


図1 実験装置の概略

のように広がるかを観察することができる。図2に主流流れ方向に平行にレーザシートを照射した場合の結果を示す。支流1から流入した液体が、下流に行くに従って引き延ばされ、また、Branch 2からの液体により折りたたまれていることが分かる。

図3に、Branch 1から第1回目に注入した蛍光流体塊の境界線の長さの変化を示す。図中横軸は、着目する流体塊の下流先端位置 x_T を支流間距離測定 l_1 で無次元化した無次元先端位置、縦軸は境界線長さ L_p を示す。 n は使用した支流の本数を示す。 $n=1$ の場合、すなわち図2におけるBranch 1のみを用いた場合、境界線長さは、○で示すように、ほぼ直線的に増加している。 $n=2$ の場合、すなわち図2におけるBranch 1およびBranch 2を用いた場合、▲で示すように、支流2以降でこう配が大きくなり、境界線長さは、 $n=1$ の場合に比べて大きくなることが分かる。 $n=3$ の場合、すなわち、図2におけるBranch 1、Branch 2およびBranch 3を用いた場合、Branch 3以降、こう配が増加し、境界線長さが、 $n=1, n=2$ の場合にくらべて、境界線が長くなることが分かる。これらの結果は、支流を増加させることにより、境界線長さを増加させることができることが明らかになった。

流れに垂直方向の可視化

図4に、流れに垂直にレーザシートを照射した場合の一例を示す。流れが非定常であることから、断面のパターンは時間とともに周期的に変化しており、また、Branch 1からの液体が多層化していることが分かる。

流体の混合を考えた場合、引き延ばし、折りたたみなどの対流による界面の増加と分子拡散により混合を促進させる。そこで、流体の混合を定量化するためには、対流混合の特性長さと分子拡散の特性長さを評価することにより、混合の程度を定量化することができる。その概念図を図5に示す。混合にお



図2 流れに平行な方向の混合パターン

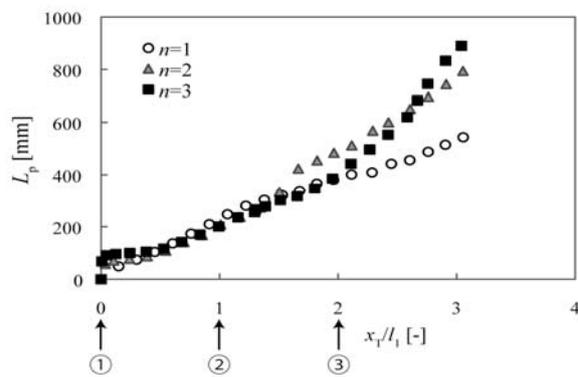


図3 支流本数による界面長さの変化の違い

いて、混合されるふたつの流体は、引き延ばし、折りたたみの対流の効果により、二つの流体は層状化する。その層の幅を対流混合の幅 l_a と定義する。また、分子拡散は濃度勾配に比例して起こることから、ふたつの流体塊の間の濃度勾配の幅を l_d と定義する。図 5(a) に $l_a > l_d$ の場合を示す。 $l_a > l_d$ の場合、分子拡散は対流による形成される層よりも狭い範囲で起こるため、濃度は 0 から 1 まで変化する。すなわち、濃度の変化幅 ΔC は 1 となる。他方、 $l_a < l_d$ の場合、図 5(b) に示すように、拡散混合の幅 l_d のほうが、ふたつの流体の層の幅、すなわち対流混合の幅 l_a よりも広がる。実際には、二つの流体の層を超えて分子拡散が起こることはないので、実際の濃度分布は破線で示すように、各層のなかでの分子拡散の分布をなめらかに結んだような形になり、濃度の変化幅 ΔC は 1 より小さくなる。

このような関係を、図 6、図 7 に示す。図

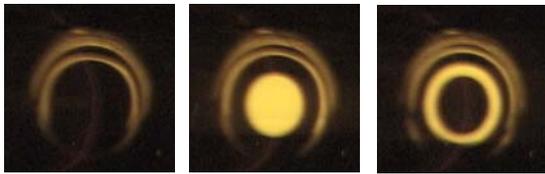


図 4 流れに垂直方法の混合パターン

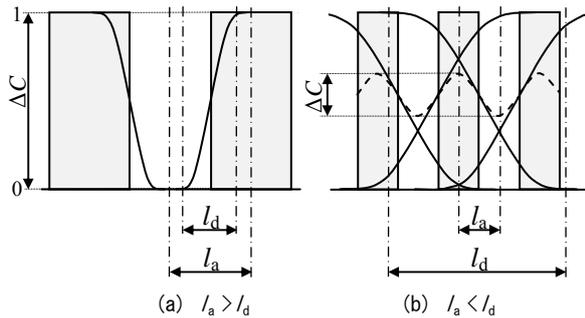


図 5 l_a , l_d , ΔC の関係

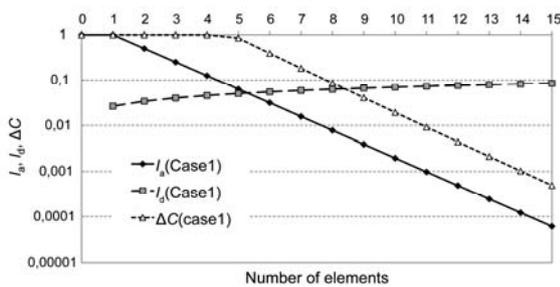


図 6 Kenics スタティックミキサーにおける混合度

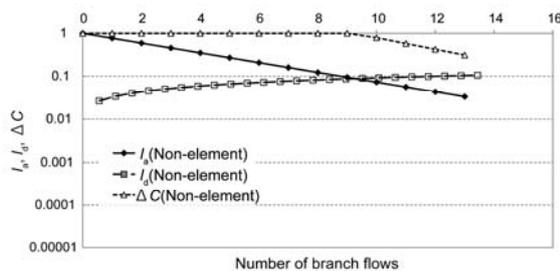


図 7 ノンエレメントミキサーにおける混合度

6 に Kenics スタティックミキサーの場合を示す。図中横軸はエレメントの数を示す。 l_a は、対流混合の幅、 l_d は分子拡散による混合幅を、 ΔC は混合濃度の変動幅を示している。 Kenics スタティックミキサーの場合、 l_a は 1 エレメント通過するごとに 1/2 ずつ小さくなる。他方 l_d は下流に行くにしたがって、すなわち、 Branch 1 から注入されてからの時間が経過するにしたがって広がる。この広がり、1次元非常分子拡散を解析的に解くことにより求めることができる。エレメント 5 までは、 $l_a > l_d$ となっており、図 5(a) において説明したように、対流混合の幅が分子拡散の幅より大きいため、濃度は 0 から 1 まで変化するため、濃度の変化幅 ΔC は 1 のままとする。エレメントが 6 を超えると、 $l_a < l_d$ となる。したがって、図 5(b) で説明したように、 ΔC は 1 より小さくなる。また、 ΔC の値をみると、エレメント 10~11 付近で、 ΔC の値は 0.01 程度まで減少している。すなわち、混合の変化幅を 1% 付近でよいとすると、エレメントを 10~11 付近で可能となることを示している。

図 7 にノンエレメントミキサーの場合を示す。横軸には、図 6 のエレメントの数のかわりに支流の数を示している。対流混合の幅 l_a は、 Kenics スタティックミキサーの場合とはひとつのエレメントごとに 1/2 ずつ小さくなったが、ノンエレメントミキサーの場合には、ひとつの支流ごとに 1/1.3 ずつ小さくなるのが実験より求められた。 l_d は Kenics スタティックミキサーと同様、時間とともに大きくなってゆく。その結果、 l_a と l_d は支流 10 本付近で交差し、支流 10 本目以降では、 ΔC が小さくなっている。すなわち、ノンエレメントミキサーは、 Kenics スタティックミキサーと同様の方法で混合の経過を見積もることができると思われる。

混合の 3 次元可視化

本研究では、図 1 に示すように、可視化撮影装置は電動リニアレールに設置されており、主流流路のそって任意の速度で定常的に移動できるようになっている。そこで、流体の流れを一時停止させ、可視化撮影装置を電動リニアレールを用いて定常速度で移動させ、撮影を行うと、主流流れ方向、一定間隔で、いわゆる断層像を撮影することができる。本研究では、1mm 間隔で撮影を行った。その

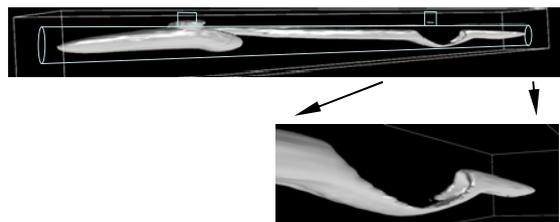


図 8 混合の 3 次元可視化像

断層像を主流流れ方向にならべ、三次元像化することにより、混合の様子を図8に示すように3次元的に可視化することができた。今後、このような3次元可視化を行うことにより、混合の様子の詳細を検討することができるものと期待される。

まとめ

本研究では、非定常カオス混合装置として提案されたノンエレメントキミサーを対象に、混合過程の詳細を、現象の3次元性、非定常性を考慮して明らかにした。また、その結果を用いて、対流混合の幅 l_a 、分子拡散の幅 l_d 、混合度 ΔC を用いた混合の評価法を提案した。

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 5 件)

- ① 兪 善昊, 樋口 尚孝, 藤岡 沙都子, 植田利久, ノンエレメントキミサーの対流混合促進過程, 化学工学論文集, 35 巻, 6 号, pp. 589-595, 2009, 査読有
- ② You, S., Higuchi, N. and Ueda, T., Macroscopic estimation method of the mixedness of Kenics type static mixer, The Korean Journal of Chemical Engineering, Vol.26-6, pp.1497-1503, 2009, 査読有
- ③ 兪善昊, 杉川裕介, 植田利久, ノンエレメントキミサーの対流混合メカニズムに関する検討, 化学工学論文集, 35 巻, 4 号, pp.357-363, 2009, 査読有
- ④ 島添雅紀, 杉川 祐介, 植田 利久, ノンエレメントキミサーにおける周期操作による混合強化の基本特性とその評価法, 化学工学会論文集, 34 巻, 1 号, pp.40-47, 2008, 査読有

[学会発表] (計 12 件)

- ① 久保貴則, 奥田徳幸, 藤岡沙都子, 兪善昊, 横森剛, 大村亮, 植田利久, ノンエレメントキミサーにおける混合挙動の三次元可視化, 化学工学会第 75 年会研究発表講演要旨集, pp.220, 2010 年 3 月 18 日
- ② 奥田徳幸, 兪善昊, 樋口尚孝, 大村亮, 横森剛, 藤岡沙都子, 植田利久, ノンエレメントキミサーの対流混合過程に関する数値解析的検討, 化学工学会第 41 回秋季大会講演要旨集, pp.432, 2009 年 9 月 16 日, 査読無

- ③ 兪善昊, 杉川祐介, 植田利久, ノンエレメントキミサーの内部流動可視化, 化学工学会第 74 年会研究発表講演要旨集, C318, 2009 年 3 月 20 日, 査読無

- ④ You, S., Higuchi, N. and Ueda, T., Longitudinal cross sectional mixing images of the pipe flow with periodical branching flow injections, The 61st Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics, pp.217, 2008 年 11 月 24 日, 査読無

[その他]

ホームページ:

<http://www.ueda.mech.keio.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

植田 利久 (UEDA TOSHIHISA)
慶應義塾大学・理工学部・教授
研究者番号: 10151797

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし