

令和 2 年 6 月 6 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18835

研究課題名（和文）マランゴニ対流を利用した気液界面での革新的二酸化炭素吸収分離への挑戦

研究課題名（英文）Experimental Trial of Carbon Dioxide Absorption and Separation Utilizing Marangoni Convection at Gas-liquid Surface

研究代表者

小宮 敦樹（Komiya, Atsuki）

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：60371142

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、気液界面近傍における二酸化炭素吸収過程を、特殊な光学系を用いて観察し、流れ場と濃度場の同時計測を行った。また、温度差マランゴニ対流が二酸化炭素吸収量に及ぼす影響について評価した。その結果、マランゴニ対流は吸収量の促進と抑制の両方の面に影響を及ぼすことを明らかにした。自然沈降を阻害するような配置でのマランゴニ対流が存在する場合は、二酸化炭素吸収量が減少する結果となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

二酸化炭素の吸収メカニズム解明には、気液界面近傍濃度境界層内の濃度場と流れ場の過渡詳細情報が必要である。本研究では、二酸化炭素吸収過程を高精度観察し、吸収過程に係るこれらの情報を同時取得することで吸収メカニズムとその促進のための情報群を提供した。計測工学の観点からも学術的意義は高いといえる。また、これにより二酸化炭素の高効率吸収技術を提案することができ、新たな分離方法の提案が期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, visualization experiment of carbon dioxide absorption process in the vicinity of gas-liquid surface was performed by using special-designed optical system. The system can simultaneously visualize the concentration and flow fields of CO<sub>2</sub> absorption process. In the visualization experiments, the influence of Marangoni convection due to temperature difference on absorption process was evaluated. The experimental results reveal that the Marangoni convection affects both enhancement and attenuation of CO<sub>2</sub> absorption process. In the case of layout that the Marangoni convection prevents the sedimentation, the amount of absorbed CO<sub>2</sub> was decreased.

研究分野：熱工学

キーワード：二酸化炭素吸収 アミン溶液 イオン液体 気液界面 可視化

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

燃料燃焼による二酸化炭素排出量の問題は、地球環境維持において最も深刻な問題となっており、現在でも増加の一途をたどっている。日本においてもその傾向は例外ではなく、世界で5番目の排出国となっている。今後の我が国の産業界活動と国民生活レベルを維持するには、排出量増加は不可避な事実となり、今や二酸化炭素の回収分離と隔離 (Carbon Capture and Storage(CCS)) は、人類が早急に解決すべく主課題となっており、各種回収技術が提案・実施検証に至っている。

工場レベルにおける二酸化炭素回分分離法としては、吸収塔による化学吸収法が最も一般的であり実用化にまで至っている。この吸収過程の促進に関する基礎研究ではイオン液体による吸収促進が研究の主眼点となっている。しかし、吸収量が劇的に増加する手法は未だなく、この問題の打破には、流れを伴う気液界面での吸収過程の原理現象を多角的に理解し、そこから表面張力流を考慮した吸収促進に向けた革新的なアイデア創出を行わなければならない。

この観点は吸収剤として挙げるアミン溶液とイオン液体の併用吸収液が有する特異な吸収メカニズムの解明に向けた計測工学上の斬新な突破口の開拓であり、そこから得られる学術的知見から、従来の二酸化炭素吸収分離法を格段に進化および深化させた新たな吸収分離法を提案できると考えている。

### 2. 研究の目的

本研究では、複雑現象として取り扱われてきた気液界面近傍における二酸化炭素吸収分離過程の促進化に挑戦する。これまでに開発してきた気液界面近傍計測システムを改良利用し、温度差マランゴニ対流起因の表面流れを有する二酸化炭素吸収過程の二次元非定常濃度場と三次元流れ場を多次元同時可視化する。吸収剤にはアミン溶液とイオン液体の併用吸収液を用い、気液界面での二酸化炭素吸収過程を伝熱工学的かつ流体力学的見地から測定する。得られる実験結果を多角的に評価し、これまで実験的に捉えることが難しかった濃度場情報と流れ場情報の関連性を精緻に捉え、二酸化炭素吸収分離促進化の実現につながる高信頼性実験データの取得、およびマランゴニ対流を有効利用したこれまでにない高吸収能を有する吸収分離法の実現を目指す。

### 3. 研究の方法

上記研究目的の達成のために、(1) 研究代表者がこれまでに開発してきた可視化システムを改良し、図1に示すような時空間に精度の高い微小領域多次元測定システムを製作する。製作したシステムおよびアミン溶液とイオン液体の併用液を用いて、(2) 二酸化炭素吸収過程における気液吸収界面詳細情報の多次元取得をもって、濃度場と流れ場の相互関連性を明らかにし、吸収過程の高効率最適化条件を探索する。得られるデータを総合的に判断し、(3) 単位時間単位体積あたりで高吸収能を誘出する気液界面の最適形状および反応条件を提示する。



図1 微小領域多次元計測システム

### 4. 研究成果

本研究では、複雑現象として取り扱われてきた気液界面近傍における二酸化炭素吸収分離過程の促進を目的とし、マランゴニ対流を利用した高吸収能を有する二酸化炭素吸収分離法確立する。研究期間において三次元流れ場計測を可能とする可視化システムを構築し、濃度場計測用の干渉計に取り付け流れ場/濃度場同時計測システムを製作した。この可視化システムを用いて二酸化炭素-吸収液の気液界面における吸収過程可視化実験を実施した。以下に得られた研究成果をまとめる。

#### (1)吸収過程の経時変化

可視化観察の結果から、二酸化炭素の吸収過程は拡散支配の段階と対流支配の段階の二段階に分けることができることが明らかとなった。この二段階の分離は、吸収液であるアミン溶液の種類によって大きく異なることも実験から明らかとなった。第一段階では、吸収された二酸化炭素が気液界面近傍に留まり、液相内を拡散現象で液深部まで浸透し始めることを干渉計で観察した。液相内での自由拡散であるため、物質移動は  $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  のオーダーとなり、吸収過程は液相内の拡散律速であることを明らかにした。

二酸化炭素を含んだ吸収液は比重が大きくなるため、液相内の拡散後は浮力と粘性力のバランスが崩れ、自然沈降が生じる第二段階での吸収現象が進む。この段階では対流による物質移動が支配的となり、図2に示すように気液界面から局所的な沈降流が生じた。気液界面近傍の干渉縞の本数から導出が可能な二酸化炭素の吸収量の時間変化を図3に示す。図から明らかなように、第一段階と第二段階では不連続的に吸収量が増加している。このことから、吸収促進のためには如何に早期の時点で第二段階に移行させるかが重要な要素となる。

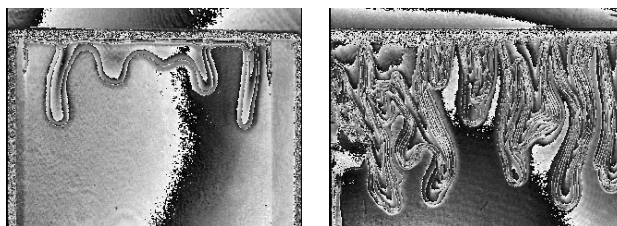


図2 気液界面近傍の局所的沈降流

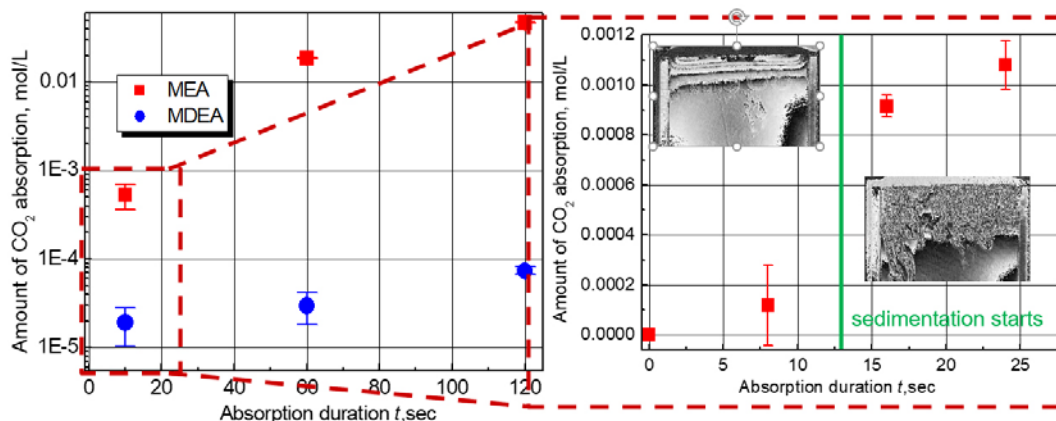
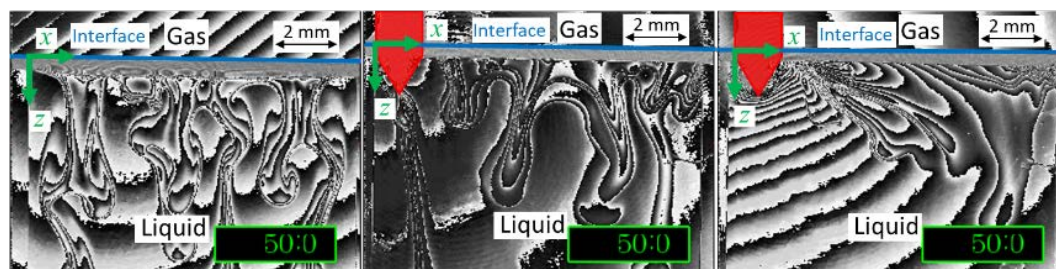


図3 二酸化炭素吸収量の時間変化

(2)表面張力流（マランゴニ対流）による吸収促進

温度差マランゴニ対流を生じさせた場合の吸収過程について精緻な可視化実験を行った。特殊な装置を用いて気液界面に吸収の初期段階から温度勾配を生じさせ、温度差マランゴニ対流が二酸化炭素吸収量に及ぼす影響について評価した。気液界面上の熱源を点状のものおよび線上のものとし、二酸化炭素吸収流動場がマランゴニ対流起因の流動様相の違いに対してどのように変わってくるかを定性的に評価した。その結果、マランゴニ対流は吸収量の促進と抑制の両方の面に影響を及ぼすことを明らかにした。温度差が小さくマランゴニ対流が支配的とならない流動様相では、図4(b)に示すように、二酸化炭素吸収による自然対流沈降流を維持したまま液相内が攪拌され単位時間当たりの二酸化炭素吸収量は増加するが、温度差が大きくマランゴニ対流が支配的となる流動様相では、図4(c)に示すように二酸化炭素吸収による自然沈降が阻害され、結果として気液界面近傍に二酸化炭素を含んだ溶媒が定在することになり二酸化炭素吸収量は減少する。この知見は当初の予測とは違ったものとなり、大変意義のある結果となった。また、熱源の位置も二酸化炭素吸収量に大きな影響を及ぼし、上記と同様に自然沈降を阻害するような配置でのマランゴニ対流が存在する場合は、二酸化炭素吸収量が減少する結果となった。



(a) マランゴニ対流無し (b) 弱いマランゴニ対流 (c) 強いマランゴニ対流

図4 マランゴニ対流の有無による吸収濃度場分布の違い

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Menghua Duan, Lin Chen, Yongchang Feng, Junnosuke Okajima and Atsuki Komiya
2. 発表標題 Experimental Study of Natural Convection in a Cavity: Precise Visualization Method of Temperature Field
3. 学会等名 16th International Heat Transfer Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsuki Komiya and Toru Saito
2. 発表標題 Precise Measurement of CO <sub>2</sub> Absorption Process into Alkanolamine at Gas-Liquid Interface
3. 学会等名 29th International Symposium on Transport Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsuki Komiya
2. 発表標題 Enhancement of CO <sub>2</sub> absorption through the understanding of heat and mass transfer mechanism at gas-liquid interface
3. 学会等名 UW-TU:AOS Workshop AOS-Fall 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 伊藤春輝, 神田雄貴, 小宮敦樹
2. 発表標題 マランゴニ対流場での二酸化炭素吸収家庭の濃度場・流動場計測
3. 学会等名 第20回日本伝熱学会東北支部学生発表会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	岡島 淳之介  (Okajima Junnosuke)  (70610161)	東北大学・流体科学研究所・助教    (11301)	