

令和 4 年 5 月 16 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H03756

研究課題名(和文) 物理吸収・化学吸収を伴う高気相流量・高粒子濃度スラリー気泡塔の数値予測技術の開発

研究課題名(英文) Development of a Technology for Predicting High-Gas-Volume Flux Slurry Bubble Column with physical or chemical absorption

研究代表者

富山 明男 (Tomiyama, Akio)

神戸大学・工学研究科・教授

研究者番号：30211402

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,200,000円

研究成果の概要(和文)：物理吸収・化学吸収を伴う高気相流量・高粒子濃度スラリー気泡塔の数値予測技術開発を目標として、目的達成に必要な各種要素研究及び気泡塔内流動総合試験を推進し、主として以下の - に示す成果を得た。扁平及び扁長気泡に適用できる抗力モデルの開発、種々の液相物性及び気泡径に適用できる気泡揚力モデルの開発、気液間物質輸送モデルを実装した数値予測技術の開発、気泡の化学吸収におけるエンハンスメントファクターモデルの開発、高気相流量気泡塔詳細実験データベース及び塔内平均気相体積率関係式の開発、開発モデルを組み込んだ気泡塔数値予測技術の開発。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高気相体積率・高粒子濃度スラリー気泡塔内流動の数値シミュレーションに必要な各種要素モデルを構築し、気泡追跡法および界面追跡法と多流体モデルのハイブリッド手法に基づく数値解析手法に実装した。本研究で開発した気泡抗力・揚力係数モデルは、広範囲の流体物性系や広範囲の気泡径に適用できる。また、精密な実験により導出した物理吸収と化学吸収を伴う気泡溶解モデルは、学術的に価値ある成果である。開発した数値解析手法は、Fisher-Tropsch反応塔内の高気相体積率・高粒子濃度の反応性スラリー気泡流を予測可能であり、気泡塔設計に有効活用できる。

研究成果の概要(英文)：Closure relations required for numerical simulation of bubbly flow in a slurry bubble column of high void fraction and high particle concentration are developed and implemented in numerical methods based on a bubble tracking method and a hybrid method based on interface tracking and multi-fluid models. The bubble drag- and lift-coefficient models developed in this study are applicable to various fluid property systems and a wide range of bubble diameter. The bubble dissolution model with chemical absorption, which was developed through precise experiments, is a very useful outcome. The developed numerical method, which can predict a reactive slurry bubble flow of high void fraction and high particle concentration in a Fisher-Tropsch reactor, is of great use in bubble column design.

研究分野：混相流工学

キーワード：スラリー気泡塔 化学吸収 物理吸収 気泡流 数値計算技術 抗力係数 揚力係数

### 1. 研究開始当初の背景

単位エネルギー当りの CO<sub>2</sub> 排出量が他の化石燃料より低い天然ガスは環境に優しいエネルギー源であるが、天然ガス確認埋蔵量の大部分を占める中小規模ガス田の多くは未開発のままとなっている。これは、LNG 化やパイプライン敷設などのガス供給系設備コスト肥大化により対投資効果が得られないためである。この状況の打開技術として、GTL 技術や DME 技術の開発が世界的に推進されている。日本でも、H14～18 年に DME 直接合成実証プラントの開発研究、H18～24 年まで GTL 実証プラントの開発研究が実施されている。両技術の核心は FT 反応塔であるが、反応塔内流れは高濃度スラリー系固気液三相気泡流という極めて複雑な流れであり、所望の合成反応率の実現には塔内気相体積率を 30～40% 程度の極めて高い値とする必要があることが確認されている。現時点では内部流動状態の把握が十分になされないまま、かつ、実証プラントから商用プラントへのスケールアップ指針がない状態で手探りの設計・開発が進められている。従って、高気相体積率スラリー気泡塔内流動予測技術の開発は極めて重要な技術課題となっている。

当研究組織では、これまでに塔径及び塔高さ(初期液位)が高気相体積率スラリー気泡塔の気相体積率に及ぼす影響、高濃度スラリー中大気泡抗力係数モデルの開発、清浄系及び汚染系における気液間物質輸送モデル、多流体モデルと界面追跡法を統合したスラリー系固気液三相多分散気泡流三次元数値計算手法の開発などを実施してきた。しかしながら、気液界面物質輸送を伴う高気相流量の気泡塔内流動を高精度に予測するためには、種々の液相における気泡力学モデルが欠如しており、詳細な流動予測が未だ困難な状況にある。気液間物質輸送モデルについては、これまで当研究組織において物理吸収モデルは開発してきたが、化学吸収モデルは開発できていない。また、塔径・初期液位・気相流量・粒子濃度・粒子径が塔内平均気相体積率に及ぼす影響に関する実験データベースは構築してきたが、初期液位・気相流量が塔内平均気相体積率に影響を及ぼす要因については調べられていない。この影響を把握するためには塔内の局所気相体積率分布の実験データが必要であり、これらのデータはこれまで開発してきた数値計算技術が詳細な気泡塔内流動を予測可能であるかを検証においても有用である。

### 2. 研究の目的

本研究では、FT 反応塔の設計に活用できる物理吸収・化学吸収を伴う高気相体積率・高粒子濃度スラリー気泡塔数値予測技術の開発を目標として研究を実施する。具体的には、数値予測技術に必要な扁平及び扁長気泡に適用できる抗力モデル、種々の液相物性及び気泡径に適用できる気泡揚力モデルを開発する。これらの気泡力学モデルに加えて、気泡溶解モデルを実装した数値予測技術を開発し、種々の液相純度における気泡流実験及びシミュレーションを実施する。気泡の化学吸収におけるエンハンスメントファクター(物理吸収の速度定数に対する化学吸収の速度定数)データベースの構築とエンハンスメントファクターモデルの開発を実施する。さらに、気泡塔スケールアップに資する初期液位依存性を考慮した気泡塔内平均気相体積率相関式を開発する。

### 3. 研究の方法

#### 扁平及び扁長気泡に適用できる抗力モデル開発

これまで当研究組織において開発してきたスラリー系固気液三相多分散気泡流三次元数値計算手法において、気泡に作用する諸力のモデル化及びその評価精度は流動の数値予測精度に直結する重要な要素である。より広範囲の流動条件に適用できる抗力モデルを開発するため、単一気泡の上昇速度及び形状についてのデータを取得する。

#### 種々の液相物性及び気泡径に適用できる気泡揚力モデル開発

これまでの当研究組織における実験により得られた粘性支配域における実験データに加えて、Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf との共同研究により表面張力支配域における気泡揚力データを取得する。粘性支配域及び表面張力支配域に適用できる気泡揚力モデルを開発する。

#### 気液間物質輸送モデルを実装した数値予測技術開発

気液間物質輸送モデルを実装した数値計算手法を開発する。物理吸収及び化学吸収を取り扱えるだけでなく、液相中に界面活性剤や NaCl が含まれる場合においても流動を予測できる手法を開発する。

#### 気泡の化学吸収におけるエンハンスメントファクターモデル開発

精製水中及び水酸化ナトリウム水溶液中気泡の溶解による気泡径変化を当研究組織で開発した画像処理法により算出し、気泡径変化から物質輸送係数を算出する。物理吸収である精製水中気泡の物質輸送係数に対する化学吸収である水酸化ナトリウム水溶液中気泡の物質輸送係数と

してエンハンスメントファクターを実験的に取得する。水酸化ナトリウムの pH 及び気泡径を変化させて実験データを取得し、エンハンスメントファクターモデルを開発する。

#### 高気相流量気泡塔総合試験及び塔内平均気相体積率相関式の開発

十分に大きな塔径を有する気泡塔を用いて、塔内平均気相体積率の初期液位及び気相体積流束をパラメータとして、実験データベースを構築する。さらに、塔内平均気相体積率の初期液位及び気相体積流束依存性の要因を明らかにするために、局所的な時間平均気相体積率の分布を取得する。

#### 4. 研究成果

##### 扁平及び扁長気泡に適用できる抗力モデル開発

液相中への界面活性剤の含有の有無を含めた種々の液相物性における気泡の終端速度  $V_T$  データを取得した。気泡形状を気泡アスペクト比を用いて評価し、気泡アスペクト比の関数となる新たな気泡抗力モデルを開発した。Fig. 1 は、種々の液相物性における扁平気泡の終端速度データとモデルとの比較であり、実線は本研究で開発したモデル、点線は既存のモデルである。本研究で開発したモデルは、シンプルな関数形を持ちつつ幅広い条件において高精度に気泡の終端速度を評価できる。

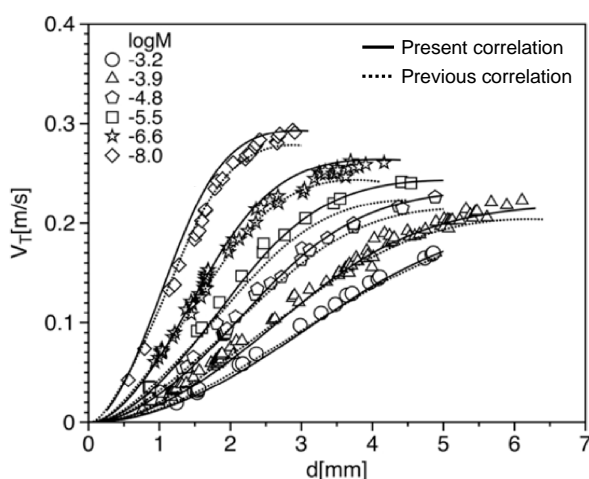


Fig. 1 扁平気泡の終端速度データとモデルとの比較

##### 種々の液相物性及び気泡径に適用できる気泡揚力モデル開発

これまでに当研究組織における実験により得られた粘性力支配域の気泡揚力係数  $C_L$  データに対して、抗力係数との相関に基づくスケージング法により、揚力モデルを開発した。Fig. 2 に示すように、開発したモデルは実験データを高精度に評価できている。さらに、スラリー気泡塔内気泡流の流動予測において非常に重要となる表面張力支配域の気泡揚力データを Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf との共同研究により取得した。表面張力支配域の揚力データに対してもスケージング法を適用し、粘性力支配域及び表面張力支配域のどちらにおいても適用できる揚力モデルを開発した。

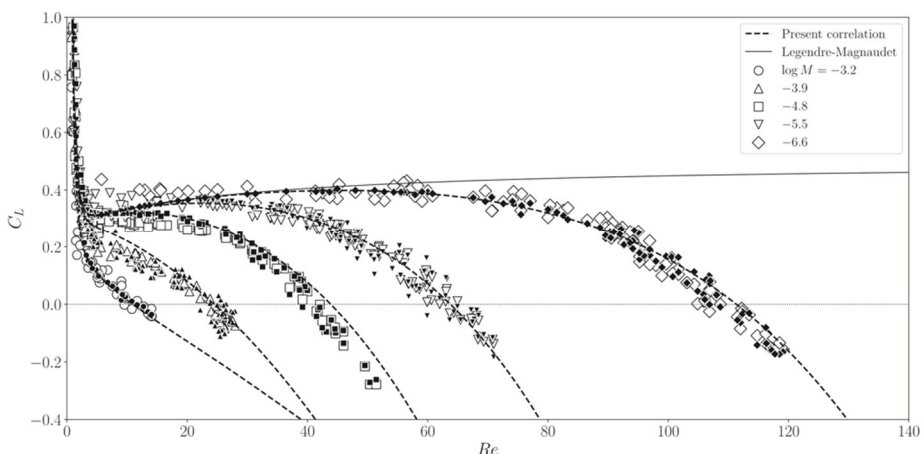


Fig. 2 揚力実験データと揚力モデルとの比較

### 気液間物質輸送モデルを実装した数値予測技術開発

気液間物質輸送モデルを実装した数値予測技術を開発し、溶解を伴う気泡流の数値シミュレーションを実施した(Fig. 3)．清浄系 NaCl 水溶液中、汚染系 NaCl 水溶液中におけるなど、種々の系において実験と数値シミュレーション結果を比較し、良好な一致を得た．

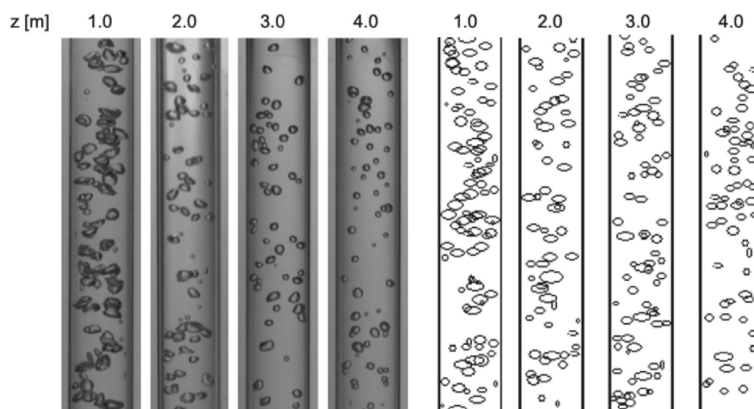
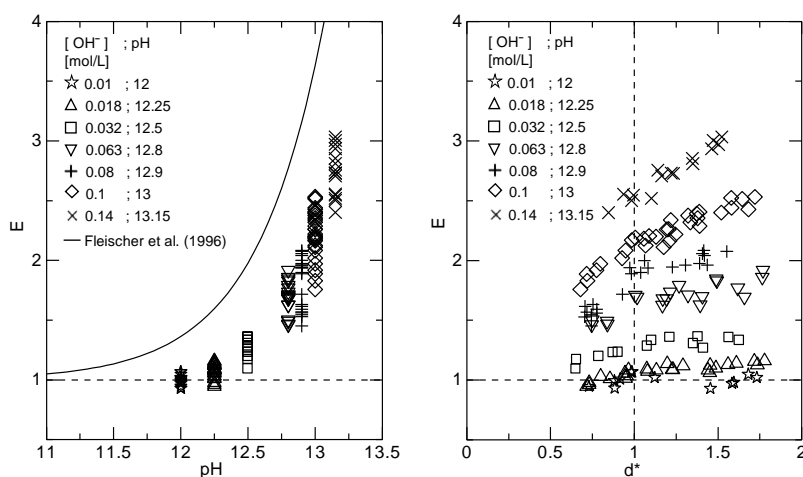


Fig. 3 溶解を伴う気泡流の実験と数値予測

### 気泡の化学吸収におけるエンハンスメントファクターモデル開発

水酸化ナトリウム水溶液中気泡の上昇速度及び気泡径変化を測定した．気泡の上昇速度に関しては、純水中の気泡の上昇速度と変化しないことを確認した．純水中の気泡の物質輸送係数を算出し、水酸化ナトリウム水溶液中の気泡の化学吸収を伴う物質輸送係数を算出することで、エンハンスメントファクター $E$ を取得した．気泡のエンハンスメントファクターは、Fig. 4 に示すように pH 及び無次元気泡径  $d^*$  ( $= d/d_T$ ,  $d$ : 気泡径;  $d_T$ : セミテイラー気泡となる気泡径)に依存することを明らかにした．さらに、pH 及び  $d^*$  の関数となるエンハンスメントファクターモデルを開発し、種々の実験結果と良好な一致を得た．



(a) Enhancement factor for each pH

(b) Enhancement factor for each  $d^*$

Fig. 4 単一気泡のエンハンスメントファクターの pH および気泡径依存性

### 高気相流量気泡塔総合試験及び塔内平均気相体積率相関式の開発

高気相体積率スラリー気泡塔のスケールアップ支援用流動予測技術の開発を目的とし、既開発のモデル・計算技術の妥当性検討のための実験データベースを既開発の計測技術を活用し、スラリー気泡塔内流動総合試験を実施した．初期液位及び気相体積流束を幅広い範囲で変化させ、塔内平均気相体積率の実験データを取得するとともに、気泡塔内流動構造を把握するため局所的な時間平均気相体積率の分布を取得した．Fig. 5 は塔内平均気相体積率の初期液位依存性を示している．初期液位の増加に伴い塔内平均気相体積率は減少し、その減少傾向は気相体積流束により異なることが明らかとなった．Fig. 6 は断面平均気相体積率 $\alpha_G$ の鉛直方向分布である．この図は各条件の平均液位 $\bar{h}$ からの各高さにおける $\alpha_G$ を示しており、平均液位からの減少に伴い断面平均気相体積率は減少し(この領域をフォーム領域と呼ぶ)、ある長さ以下の領域では一定となる(この領域をバルク領域と呼ぶ)．このような内部構造の把握から次式で表される二領域モデルを基に、塔内平均気相体積率( $\alpha_G$ )の評価を試みた．

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_b \rangle L_b + \langle \alpha_f \rangle L_f}{L_b + L_f}$$

ここで、 $\langle \alpha_b \rangle$ はバルク領域の平均気相体積率、 $\langle \alpha_f \rangle$ はフォーム領域の平均気相体積率、 $L_b$ はバルク領域の鉛直方向距離、 $L_f$ はフォーム領域の鉛直方向距離である。上式及び実験により得られたデータを基に塔内平均気相体積率を評価した結果が Fig. 5 中の実線であり、良好な一致が得られた。

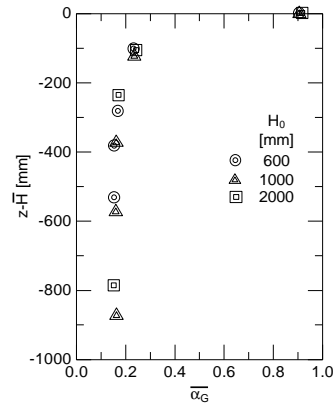
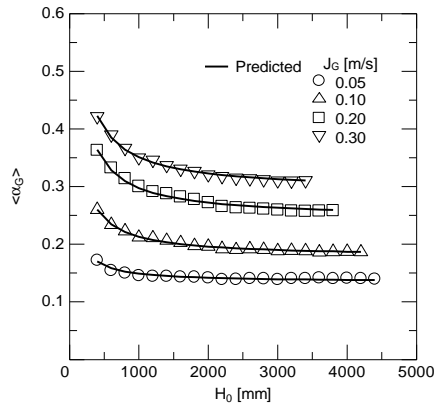


Fig. 5 塔内平均気相体積率の水位依存性      Fig. 6 断面平均気相体積率の鉛直方向分布

以上の研究成果は項目 5 に示すように当該分野における主要学術雑誌において国内外に広く発信している。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 13件／うち国際共著 5件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 K. Hayashi, J. Chen, R. Kurimoto, A. Tomiyama	4. 巻 -
2. 論文標題 An ANN Correlation of Lift Coefficients of Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1615/MultScienTechn.2022042904	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 D. S. Sa'adiyah, Y. Matsuo, M. Schluter, R. Kurimoto, K. Hayashi, A. Tomiyama	4. 巻 245
2. 論文標題 Effects of Chemical Absorption on Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Aqueous Sodium Hydroxide Solution in a Vertical Pipe	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Science	6. 最初と最後の頁 116852 ~ 116852
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ces.2021.116852	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K. Hayashi, D. Lucas, D. Legendre, A. Tomiyama	4. 巻 33
2. 論文標題 Critical Diameter for Lift Reversal of Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 69 ~ 85
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1615/MultScienTechn.2021039246	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 N. Kobayashi, S. Adomi, R. Kurimoto, K. Hayashi, A. Tomiyama	4. 巻 33
2. 論文標題 Effects of Initial Liquid Height on Total and Local Gas Holdups in an Air-Water Bubble Column	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 87 ~ 101
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1615/MultScienTechn.2021039046	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 D. S. Sa'adiyah, K. Hayashi, R. Kurimoto, A. Tomiyama	4. 巻 93
2. 論文標題 Spatial Evolution of CO2-Contaminated Water Bubble Flows in a Vertical Pipe	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemie Ingenieur Technik	6. 最初と最後の頁 247-259
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cite.202000138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. Kurimoto, K. Hayashi, A. Tomiyama	4. 巻 32
2. 論文標題 Bubble Tracking Simulations Using Simple Models for Fluctuating Bubble Motion	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 221-236
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1615/MultScienTechn.2020034484	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Hayashi, H. Hessenkemper, D. Lucas, D. Legendre, A. Tomiyama	4. 巻 -
2. 論文標題 Scaling of Lift Reversal of Deformed Bubbles in Air-Water Systems	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103653
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103653	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Hayashi, D. Legendre, A. Tomiyama	4. 巻 129
2. 論文標題 Lift Coefficients of Clean Ellipsoidal Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103350
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2020.103350	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Hashida, K. Hayashi, A. Tomiyama	4. 巻 127
2. 論文標題 Effects of Fine Particles on Terminal Velocities of Single Bubbles in a Narrow Channel between Parallel Flat Plates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103270
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2020.103270	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Hori, D. Bothe, K. Hayashi, S. Hosokawa, A. Tomiyama	4. 巻 124
2. 論文標題 Mass Transfer from Single Carbon-Dioxide Bubbles in Surfactant-Electrolyte Mixed Aqueous Solutions in Vertical Pipes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103207
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2020.103207	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 J. Chen, K. Hayashi, S. Hosokawa, A. Tomiyama	4. 巻 31(3)
2. 論文標題 Drag Correlations of Ellipsoidal Bubbles in Clean and Fully-Contaminated Systems	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 215-234
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1615/MultScienTechn.2019031210	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Hori, Y. Hirota, K. Hayashi, S. Hosokawa, A. Tomiyama	4. 巻 136
2. 論文標題 Combined Effects of Alcohol and Electrolyte on Mass Transfer from Single Carbon-Dioxide Bubbles in Vertical Pipes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 521-530
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.02.094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



1. 著者名 M. Hashida, K. Hayashi, A. Tomiyama	4. 巻 111
2. 論文標題 Rise Velocities of Single Bubbles in a Narrow Channel between Parallel Flat Plates	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Internation Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 285-293
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2018.09.015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 安富舜, 小林暢也, 栗本遼, 林公祐, 富山明男
2. 発表標題 気泡塔内平均及び局所ポイド率の初期液位依存性に関する研究
3. 学会等名 混相流シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松尾優樹, Sa'adiyah Devy Setiorini, 栗本遼, 林公祐, 富山明男
2. 発表標題 鉛直円管内アルカリ溶液中二酸化炭素気泡の化学吸収に関する研究
3. 学会等名 混相流シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 A. Tomiyama
2. 発表標題 Gas-Liquid Two-Phase Flow with Complex Boundary Conditions
3. 学会等名 9th International Energy Conference REM00 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Tomiyama
2. 発表標題 Some Experimental Studies on Bubble Dynamics for Multiphase CFD
3. 学会等名 16th Annual German-Japanese Colloquium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Kobayashi, M. Hashida, K. Hayashi, Q. Marashdeh, A. Tomiyama
2. 発表標題 Effects of Initial Liquid Height on Gas Holdup in an Air-Water Bubble Column
3. 学会等名 10th International Conference on Multiphase Flow (ICMF) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Hori, D. Bothe, K. Hayashi, S. Hosokawa, A. Tomiyama
2. 発表標題 Combined Effects of Surfactant and Electrolyte on Mass Transfer from Single Carbon-Dioxide Bubbles in Vertical Pipes
3. 学会等名 10th International Conference on Multiphase Flow (ICMF) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Tomiyama
2. 発表標題 Some Experimental Studies on Bubble Dynamics for Multiphase CFD
3. 学会等名 8th International Energy Conference REM00 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 廣田雄高, 堀陽平, 林公祐, 細川茂雄, 富山明男
2. 発表標題 鉛直円管内単一二氧化碳素気泡の物質移動に及ぼすアルコールと電解質の相互作用の影響
3. 学会等名 混相流シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Multiphase Fluid Dynamics Lab <a href="http://www.lab.kobe-u.ac.jp/eng-mfd/index.html">http://www.lab.kobe-u.ac.jp/eng-mfd/index.html</a>
--

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	林 公祐  (Hayashi Kosuke)  (60455152)	神戸大学・工学研究科・准教授    (14501)	
研究分担者	細川 茂雄  (Hosokawa Shigeo)  (10252793)	関西大学・社会安全研究科・教授    (34416)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf	Hamburg University of Technology		
フランス	トゥールーズ流体研究所 (IMFT)			
チェコ	ICPF of Czech Academy of Sciences			
米国	Tech4Imaging			