

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03926

研究課題名(和文) 分子交換流を利用した卓上型の微量気体濃縮装置の開発

研究課題名(英文) Fabrication of innovative desktop trace gas concentrator by molecular exchange flow

研究代表者

杉元 宏 (Sugimoto, Hiroshi)

京都大学・工学研究科・講師

研究者番号：50222055

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：温水・冷水の数十度の温度差だけをエネルギー源として、混合気体を分離・濃縮可能であることが実験的に示された。試作した実験装置は、温水・冷水の供給があれば、格段に制御しなくても材料気体を吸引し成分を濃縮・加圧して排出する能力を有している。これは、従来の混合気体濃縮のいずれの手法とも異なる性質である。微細孔を有する多孔膜の表裏の温度差が、膜を通過する熱遷移流を誘起し、それが多孔膜を周回する間に分子交換される構造であり、運動する部品が無いので頑丈である。現時点では温冷水の必要量が多いため、効率の改善が望まれる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

混合気体・同位体の分離は工業および環境に関連して新規なアイデアが求められている。本研究は、低品位廃熱程度の温度差をエネルギー源として、混合気体の成分を分離・濃縮する、新しい方法を提案するものである。熱遷移流の効率的駆動方法や、それに代わる駆動方法を組み合わせれば、大きな社会的意義を有するものになるだろう。

研究中には、分子気体流の解析効率を数桁向上させるアイデアも提案している。これは、現在巨大計算が必須である分子気体解析を実用的レベルで可能にする点で、大きな学術的意義を有している。

研究成果の概要(英文)：The present experimental research shows the possibility of gas mixture separation that uses of the low-grade waste heat of several tens of degrees between hot and cold water as the only energy source. The prototype device sucks the material gas, concentrates and pressurizes the components, and discharges them without significant control and electric power. This property is unique compared with any other method of gas separation. The device makes use of the thermal transpiration flow through a membrane with ultra-fine pores. The system is devised to make the material gas circulate along the membrane, and the molecular exchanging flow leads to significant variation of gas components along the membrane. The system has no moving parts. The size of energy consumption is, however, quite large and needs some improvements for practical applications.

研究分野：流体力学

キーワード：気体膜分離 センソンプ マイクロ流 廃熱利用 希薄気体力学 熱遷移流 分子流体力学 省エネルギー クヌー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

混合気体の分離は、化学工学など多くの産業で重要なものであり、種々の物質による環境への影響を抑えるためにも研究が進められている。混合気体や同位体ガスの特定成分を濃縮・分離する方法には様々なものが知られているが、それらを実現する装置は大型(あるいはプラント設備)であることが多く、その操作は簡単とは言い難い。気体膜分離法による機器にはメートル単位の寸法の小型機器もあるが、膜分離法は微量成分の操作に困難があり、同一の装置で任意の気体が分離できる汎用性も有していない。気体分離の可能性を総合的に検討するには、新しい混合気体分離方法の可能性も検討する必要がある。

2. 研究の目的

研究では、代表者が2016年に実証した新手法を用い、混合気体中の安定同位体など種々の微量成分を濃縮できる卓上装置が実現可能であることを示す。混合気体中の安定同位体や有機化合物などの種々の微量成分の濃縮を、同一の卓上サイズの装置で実現できることを示す。この装置は、2016年に代表者が実験に成功した分子交換流による混合気体分離を動作原理として用いる。分子交換流は、混合気体中のある成分気体が、別の成分気体とは逆方向に流れる現象である。この新しい分子気体の効果は、多孔膜のマイクロチャンネルを用いれば、大気圧程度の圧力、常温程度の温度範囲の穏やかな環境において発生させることができる。物理的な流体現象であり、どの化学種でも分離効果が期待できることに注目し、有機化合物や同位体を含む多様な混合気体の成分濃縮が可能であることを示す。

3. 研究の方法

本研究の基盤となるものは、マイクロチャンネル内部の熱遷移流である。図1(a)のように、微細な流路において、気体分子の平均自由行程の距離(大気圧では $0.1\mu\text{m}$ 程度)で温度差があったとしよう。このとき、低温度側から高温度側に気体流れる。これが**熱遷移流**である。熱遷移流の速度は分子が軽いほど速い。図1(b)は、これに圧力駆動流を重ね合わせた一例である。圧力駆動流は、過度に低圧でなければ速度は分子の重さに依存しない。よって、重ね合わせの比率を調整することによって、図1(b)のように重い分子と軽い分子が逆向きに流れることも起こる。代表者はこれを**分子交換流**と名づけ、混合気体の分離に適用する。問題となるのは、マイクロチャンネルでは、分子運動の効果が支配的なことである。これは、分子拡散が非常に強いことを意味する。分子交換流によって濃度変化が生まれると、拡散がその効果を打ち消してしまう。マイクロチャンネルに沿った温度勾配が数十度のレベルでは、一本のチャンネルで得られる濃度変化は0.1%以下である。

そこで代表者が考案したのが図2に示す分子交換デバイスである。赤色で示される高温メタルプレートと、青色で示される低温メタルプレートとの間に、マイクロチャンネルで構成される多孔膜(メンブレン)が配置され、熱遷移流を駆動する。メタルプレート

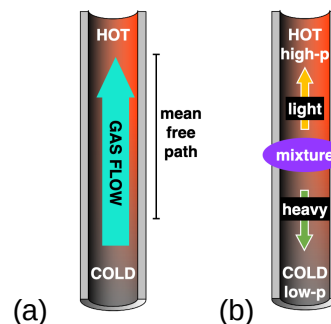


図1. (a)熱遷移流と (b)分子交換流。

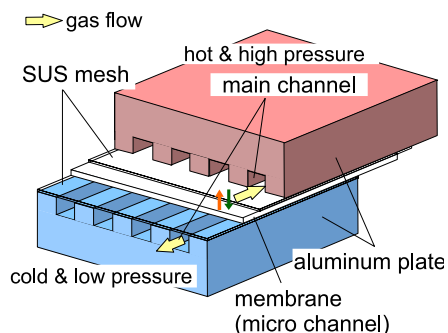


図2. 分子交換デバイス。

にはマクロサイズの流路(以下、マクロ流路と書く)が配置され、ここに黄色の矢印で示された流れを供給する。流速 1 m/sec 程度でも分子交換流の速度よりも十分に速く、分子交換流で得られた成分気体をただちに下流に吹き飛ばすことができる。結果として、マイクロチャンネル内の拡散を防ぎ、分子交換効果をマクロ流路に沿った濃度変化に集積できる。

本研究では、まず、図2の分子交換デバイスを組み合わせることによって、際限なく濃度変化が集積可能な数理モデルを構築し、その結果を実験的に確かめる。

4. 研究成果

混合気体分離システムの数理的研究

前回の科学研究費補助金(課題番号15K05974)では、最終年度に図3に示す装置を作成し、混

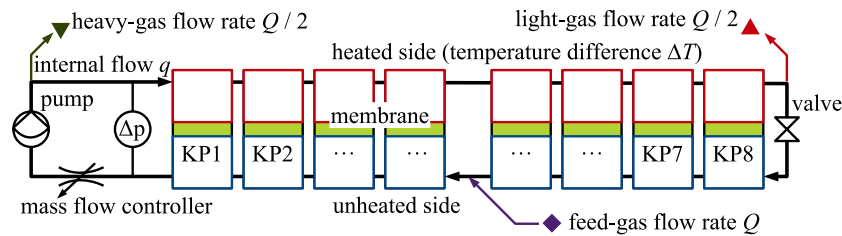


図3. 科学研究費補助金(課題番号 15K05974)における気体分離装置.

合気体の分離に成功した. この装置は, 図2の分離ユニットを単純に8個直列し, 図の左端の機械式ポンプによって, 分離ユニットのマクロ流路を矢印方向に巡る循環流を発生させる. 装置中央から混合気体を供給し, 半量を装置左端から, 残る半量を装置右端から取り出す.

混合気体はマクロ流路を循環するのだが, 図1(b)に示すように, 軽い成分気体は膜を通して高温側(図3の赤色側)に染み出し, 重い成分気体は膜を通して低温側(図3の青色側)に染み出す. その結果, 図の右側に軽い成分気体が集まり, 左側には重い成分気体が集まる. 前回の科学研究費補助金期間内では, その分離効果を測定することにも成功した.

図3の装置は, しかし, これ以上の拡張が不可能である. マクロ流路の流路抵抗のため, 循環流は実は装置右端に到達せず, 右端のバルブではほとんど圧力差が存在していないことが判明した. 本研究では, この問題を解決する.

本装置は, マイクロチャンネル内部は流路がサブミクロンスケールである一方, マクロ流路は mm スケールであり, 両者を同一の理論で取り扱うことが困難である. そこで, マイクロチャンネル内部は1本の円筒断面管であると仮定して分子気体に基づいて考え, その結果をマクロ流路内部の連続体流体モデルに反映させる数理モデルを構築し, 適切な装置デザインを検討を行なった.

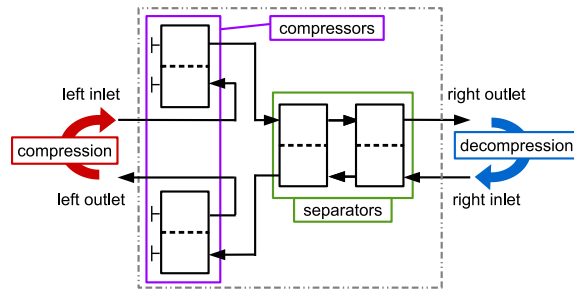


図4 本研究で提案する気体分離ユニット.

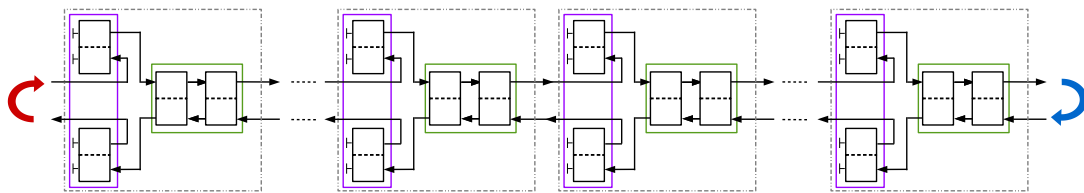


図5. 気体分離ユニット接続方法.

研究の結果得られた基本ユニットの構成を図4に示す. この例では, 基本ユニットが4基の分離デバイス(図2)から構成されている. 図4の左端に流入口と流出口のペアがあるが, 右端にも同じようなペアがある. この基本ユニットは, 図5のように4つのポートを接続することによって, 際限なく成分濃度を変更できることを想定している.

図4のユニットでは, 分離ユニット(図中の separator)とポンプ(compressor)を一組として運用する. ポンプによって循環流を加圧し, 分離ユニットのマクロ流路の流路抵抗をキャンセルする. これにより, 図4右端の流入・流出口の圧力は, 左端の流入・流出口と近い値を保つが, 右端と左端では気体の組成が異なり, 混合気体の濃縮を再現なく行うことができる.

解析結果の一例を図6に示す. これは3基の気体分離ユニットを接続し, ヘリウム-ネオン混

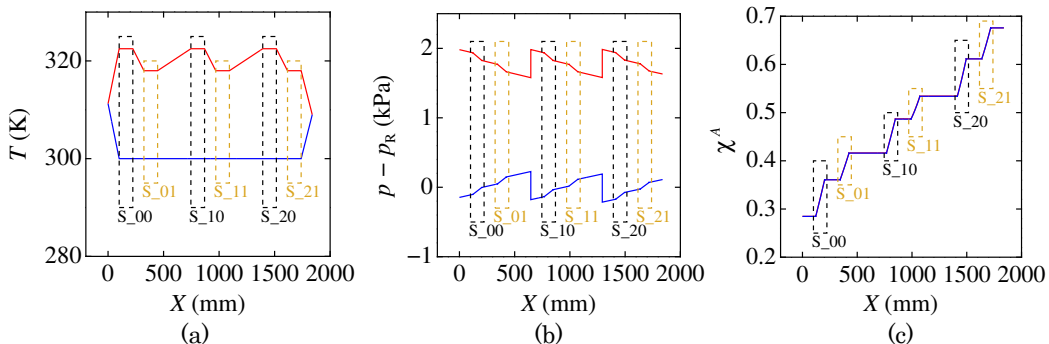


図6. 気体分離システム解析結果. (a) 温度設定, (b) 圧力分布, (c) 濃度分布, (d) 流速分布

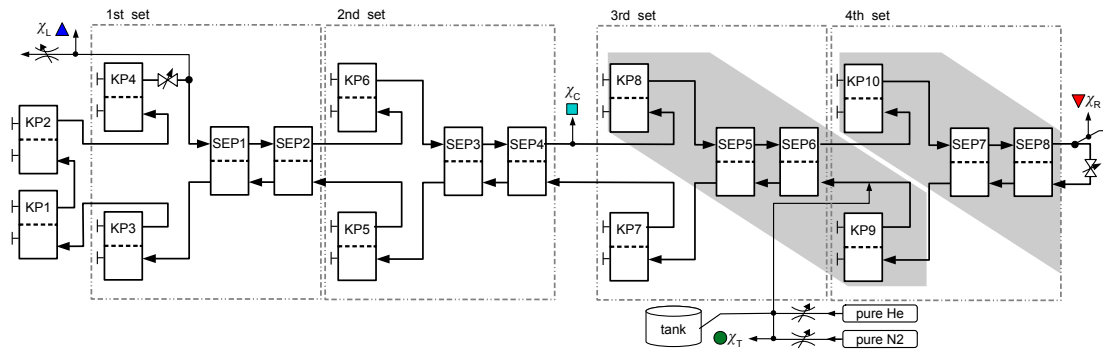


図7. 本研究で試作した気体分離システム. グレー部分は図8の集積デバイスである.

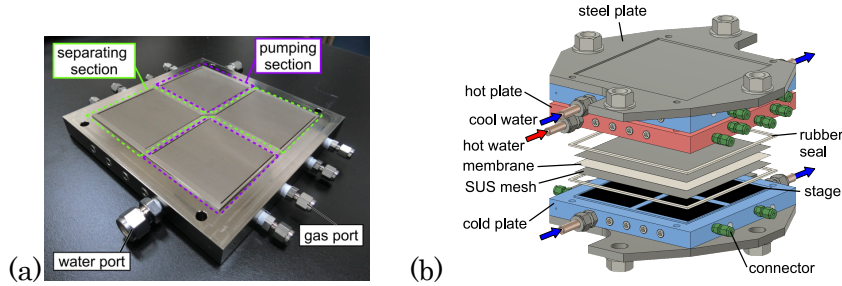


図8. 集積型気体分離ユニット. 4個の気体分離デバイスが配管済みである.

合気体を分離した結果である. 図6(a)は計算の設定である流路の温度分布である. 図5の循環流路のうち, 図上側の左から右に向かう高温流路を赤色で, 下側の右から左に向かう流路を青色で示している. 両者の温度差は, 低レベル廃熱の利用を想定し, 20-30度の温度差を設定している. 図6(b)は, マクロ流路の圧力分布である. 赤色が高温側の流路で, 流れ方向は図の右向きである. 分離デバイス内部で減少した圧力が, ポンプによって復元されるというパターンを繰り返す. 青色は低温側の流路で, 流れが図の左向きであることに注意すると, ここでも分離デバイス内部で減少した圧力が, ポンプによって復元されるというパターンを繰り返していることがわかる. こうして, 多数の分離ユニットで温度・圧力の環境が維持されるため, 分子交換流がどのユニットでも稼働する. 図6(c)がヘリウム濃度の分布であり, 装置にそって左右の濃度分布が得られる様子がわかる.

混合気体分離システムの実験的研究

本研究では, まず図3の気体分離システムについて詳細な実験を行った. また, 図7の解析結果を受けて, 図2の気体分離デバイスが熱遷移流を生み出すことを利用し, 一部のデバイスをポンプとして, その他のデバイスを分離デバイスとして利用することも試みた. 実験的研究の後半において試作した気体分離システムの概略を図7に示す. 実験においては, 図2の気体分離デバイスが熱遷移流ポンプとして流用可能なことに注目し, 機械式ポンプを一切有さず, 温冷水の供給を除けば, **計測以外に電力を必要としない気体分離装置**として構築した. 熱遷移流ポンプは図7でKP, 気体分離デバイスはSEPと表記されている. 両者が同一デバイスであるので, 4つのデバイスを配管済みで作成する集積型デバイスも作成した(図8). これは, 一台で図7のグレー部分として稼働する.

実験結果の一例を図9に示す. いずれもヘリウム50%, ネオン50%の混合気体の分離を試みた結果である. 供給気体の濃度がT, 図の左側で得られる濃度がL, 右側がRで表されている. (a)および(b)は図3のシステムの結果である. 材料ガスの供給速度は毎分 3 cm^3 であり, 装置構造上,

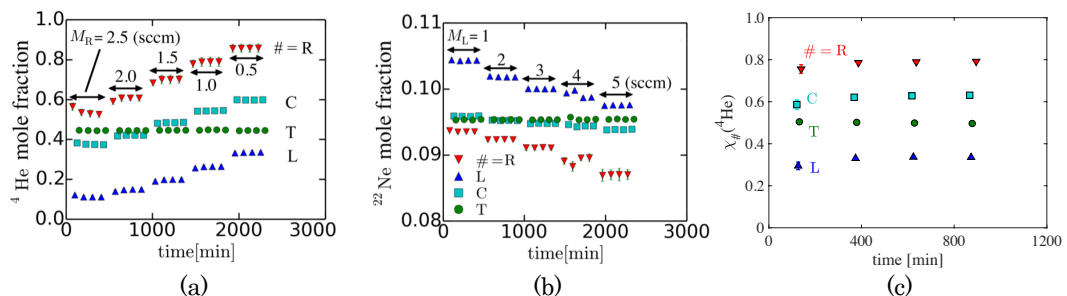


図9. 気体分離実験結果. ヘリウム-ネオン混合気体. (a), (b): 図3のシステム (c): 図7のシステム.

生成気体の流量も同じ値である。ただし左右の流出量の比率は我々が調整できる。(a)は左右の流出バランスを調整した時のヘリウム濃度を示す。どの比率であっても、単一の材料混合気体から、左右で濃度差が50%異なる気体が流出する。(b)は、同じ実験においてネオンの同位体比率を調べた結果である。ネオンは質量数20の同位体が約90%、残りが質量数22の安定同位体である。実験においては、ネオン同位体も、ヘリウムと同様、左右に分離されることがわかる。

図9(c)は、図7のシステムの結果である。左右の出力流量比率は1:1に固定している。図3のシステム同様に、約50%の濃度変化が得られる。図3と図7の濃度変化量は同レベルであるが、図3のシステムではこれ以上の濃度変化を得ることができないが、図7のシステムは無制限に拡張できる点が大きく異なる。

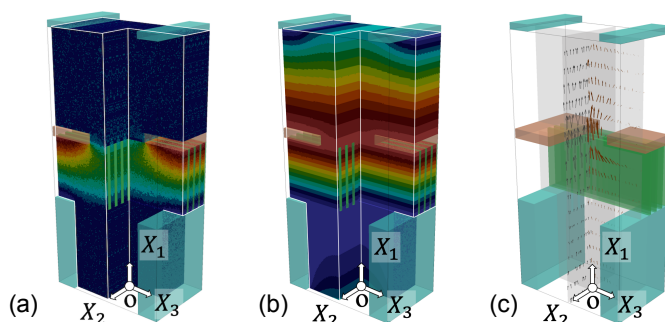


図8. マイクロチャンネル内部の熱遷移流の解析例. $Kn=0.1$ のケース. (a) 圧力 (b) 温度, (c) 流速の分布を示す.

熱駆動流の効率化に関する研究

本研究では、数理モデルに従って実験装置を設計している。数理モデルは、しかしながら、多分に経験的係数も取り入れたものであり、その基礎は十分ではない。本研究では多孔膜（メンブレン）で発生する熱遷移流によって、いわゆる「Knudsen ポンプ」を構築して用いる。この場合、最適な Knudsen 数(平均自由行程)が理論と実験に乖離があった。本研究では、多孔膜および単一流路の2通りのモデルに対し DSMC 法を用いた徹底的な数値解析を行い、両者の駆動原理が全く異なることを明らかにした。具体的には、多孔膜タイプにおける気体の流れは熱遷移流と孔終端の熱尖端流で定まるが、単一流路タイプにおける流れは熱遷移流と圧力駆動流で決定される。これは解析によって装置性能を改善するために必要不可欠な知見である。解析では、素材表面における適応係数や流路形状、2次元流と3次元流の違いなど様々な誤差要因を考慮し、本研究で用いた経験的係数が、およそ流路の複雑形状が原因であることを明らかにした。

さらに、Michigan 大学のグループが作成した MEMS 装置を模擬した3次元流の分子気体計算を行なった(図10)。上の結論が正しければ、流路が単純形状であるため、適応係数を調整するだけで現象が模擬できるはずである。実際、数値解析の結果は、ある適応係数の値で、装置で得られる流量と圧力差の両方を十分な精度で近似しており、上の結論を補強する結果が得られた。

本研究ではさらに、熱遷移流を発生させる新しい仕組みを考案した。物質表面の分子反射の適応係数を周期的に変化させた面を、高温壁面に接触しないように近づけると、面に平行な方向に熱遷移流が発生する。この手法を用いると、熱遷移流を誘起するマイクロチャンネルを、表面加工技術で安価に作成できる可能性がある。

実用的希薄気体の数値解法

分子気体の解析では、気体分子が有意な距離を自由飛行し、分子速度に応じてその多寡が定まる。多くの分子速度に対し分子の分布を求めるため、計算負荷が高くなる。近年提案された球面配置を利用し、効率的な数値解法を考案した。DSMC 法による確率論的解法は、分子気体の実用解析のほぼ唯一の選択肢だが、非常に計算負荷が高いものである。本研究では、全球表面の平均を高精度に求める球面配置の理論が、分子気体力学の解析に非常に有効に利用できることを見いだした。この成果を利用すれば、気体分離装置に数理モデルを用いることなく、そのまま分子気体力学に基づいて解析できる可能性があるだろう。

本研究の国内外における位置付けとインパクト

本研究では、温水・冷水の数十度の温度差だけをエネルギー源として、混合気体を分離・濃縮可能であることが実験的に示された。試作した実験装置は、温水・冷水の供給があれば、格段に制御しなくても材料気体を吸引し成分を濃縮・加圧して排出する能力を有している。これは、従来の混合気体濃縮のいずれの手法とも異なる性質であり、大きなインパクトを持っている。

今後の展望

本研究で開発した混合気体分離装置は、数十度の温排水のエネルギーで混合気体を濃縮するという点で特異なものである。ただし、利用エネルギーの量がかなり大きく、実用化には効率の改善が必須である。本研究の後半で実施した数値解析は、流路形状の影響が熱遷移流に大きな影響を与えることが示されている。多孔膜ではなく表面加工技術を利用するなど、新しいブレークスルーが必要であることも示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tamura S., Sugimoto H., Yashima M.	4. 巻 2132
2. 論文標題 Desktop gas isotope separation by Knudsen pump	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 190007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5119679	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 八島 雅史, 杉元 宏	4. 巻 38
2. 論文標題 積層式 Knudsen ポンプを用いた卓上混合気体分離装置の試作	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ながれ	6. 最初と最後の頁 114-118
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 S. Tamura, H. Sugimoto, M. Yashima	4. 巻 in printing
2. 論文標題 Desktop Gas Isotope Separation by Knudsen Pump	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	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） なし	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 Sugimoto Shogo, Sugimoto Hiroshi	4. 巻 10
2. 論文標題 Driving mechanism of thermal transpiration pump with porous material	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 105007 ~ 105007
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0023403	査読の有無 無
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7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 杉本 祥悟, 杉元 宏
2. 発表標題 多孔膜を用いた Knudsen ポンプの流路における分子気体流の数値解析
3. 学会等名 日本流体力学会年会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平塚 康介, 八島 雅史, 杉元 宏
2. 発表標題 無制限に濃度変化を拡大できる温水駆動型気体分離装置の実証実験
3. 学会等名 日本流体力学会年会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 八島 雅史, 杉元 宏
2. 発表標題 積層式 Knudsen ポンプを用いた卓上混合気体分離装置の試作
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 平塚 康介, 杉元 宏
2. 発表標題 Knudsen ポンプにおける混合気体分離の気体挙動シミュレーションシステム
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Tamura, H. Sugimoto, M. Yashima
2. 発表標題 Desktop Gas Isotope Separation by Knudsen Pump
3. 学会等名 31st International Symposium on Rarefied Gas Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杉本 祥悟, 杉元 宏
2. 発表標題 マイクロ熱遷移流ポンプの気体論による定量的数値解析
3. 学会等名 第34回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shogo Sugimoto, Hiroshi Sugimoto
2. 発表標題 Thermal transpiration flows induced by differences in accommodation coefficients
3. 学会等名 Pre-RGD32 Online Workshop on Recent Hot Topics in Rarefied Gas Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------