

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：57301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03961

研究課題名(和文) マイクロ流動層の開発

研究課題名(英文) Development of micro fluidized bed

研究代表者

城野 祐生 (Johno, Yuuki)

佐世保工業高等専門学校・物質工学科・教授

研究者番号：80353233

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)：マイクロ流動層の開発に関する研究である。小型の流動層装置にてPIVを用いた流動状態・流動特性の計測を行った。流動層のサイズが小さくなるほど粘性の影響が顕著であることが分かった。層内で生じた界面粒子の搬送は粒子層を通過後に形成される流速分布の影響のためと推察された。また、Open Foamを用いた粒子・流体の数値シミュレーションを行い、実験と同様の流動化状態が得られることを確認した。シミュレーション結果から実験で予想された流速分布の形成を数値的に確認した。マイクロ装置を用いた反応率の測定評価では、アルミナ担持白金触媒によるトルエン燃焼反応を用いて、反応率の温度依存性について評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本予算ではマイクロ流動層の開発を目的として基礎データの取得や現象の解明に取り組んだ。本予算で導入したPIVシステムでの可視化計測によりマイクロ流動層の流動状態が明らかになり、実験的に評価が難しい部分については数値シミュレーションから流動特性の評価を行った。また、それらの流動状態を踏まえて反応率についての評価を実施した。本研究から今後進展していくと予想されるマイクロリアクターでの粒子プロセスに関する知見を得ることができたと考える。これらの知見から、マイクロプロセスでの粒子ハンドリングに関する課題の解決が進み、省エネルギーでのマイクロプロセスやプロセスの自動化が進むと予想される。

研究成果の概要(英文)：This is a study on the development of micro fluidized beds. Flow state and flow properties were measured using PIV in a small fluidized bed apparatus. It was found that viscosity was strongly influenced by the smaller size of the fluidized bed. It was inferred that the transport of particles above the particle bed was due to the effect of the velocity distribution formed after passing through the particle bed. Numerical simulations of particles and fluids using Open Foam were performed, and it was confirmed that fluidization conditions similar to those in the experiment were obtained. The simulation results numerically confirmed the formation of the flow velocity distribution predicted in the experiment. In the measurement and evaluation of the reaction rate using the micro device, the temperature dependence of the reaction rate was evaluated using the toluene combustion reaction with an alumina-supported platinum catalyst.

研究分野：粉体工学

キーワード：流動層 マイクロリアクター 粒子 数値シミュレーション

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

マイクロリアクターは反応制御性やエネルギー効率等に優れており、高付加価値材料の製造や製薬等の分野で発展が期待されるシステムである。マイクロ流路、マイクロミキサー等様々なデバイスが開発されており、複数のデバイスの組み合わせや多段化によりフロー型反応プロセスを構築できる。一方、マイクロリアクターでは粒子状の物質の取り扱いが困難である。流路幅が小さいため、固体粒子が集中することにより生じる目詰まり、流路の中で粒子の偏析により生じる流れの偏り等の問題があり、マイクロリアクターの発展にはこれらの問題の解決が不可欠である。実験室で用いるサイズのラボスケールにおいて、固体粒子を充填した充填層反応装置では固体粒子が動かない場合を固定層、粒子が浮遊して動き回る場合を流動層という。近年、この充填層反応装置をマイクロ化し、マイクロリアクターに適用したマイクロ固定層、マイクロ流動層(以後、固定層も含めてマイクロ流動層と呼ぶ)に関する試みが行われ始めているが、系統的なデータはまだ少ない状況である。

マイクロ流動層はラボスケールの流動層と次の点で現象が異なると予想される。流路幅と流速が小さいためレイノルズ数が小さくなり流れは層流領域である。流路幅が小さいためシャープな速度分布が形成される。流速が小さいため穏やかな流動化状態となり粒子間や粒子壁間の付着性の影響が大きい。以上のマイクロ流動層の流動状態はリアクターとして用いる場合の反応効率に影響するため、マイクロ流動層を実用化するためにはこれらの解明が不可欠である。

2. 研究の目的

マイクロ流動層の流動状態はリアクターとして用いる場合の反応効率に影響するため、小型で高精度の反応装置として確立するためには、粒子・流体の流動状態を明らかにすることが不可欠である。本研究では、マイクロ流動層の流動状態の可視化測定および流動化特性を実測し、それらの特徴・特性について既往のラボスケールの研究データと比較検討する。また、流動層のような粒子・流体の混相流は現象が複雑で実測が限定されるため、数値的なアプローチとしてマイクロ流動層の数値シミュレーションを用いた流動状態の解明に取り組む。さらに、本研究では、モデル反応を用いてマイクロ流動層での反応実験を実施し、流動条件や流動状態に対する反応率の関係について調査する。以上が本研究の目的である。

3. 研究の方法

本研究は流動実験と数値シミュレーションによって、小型の流動層の流動特性を評価した。また、触媒粒子を用いた反応率の評価を行った。

(1) 流動実験

流動実験では、流動層の縮小に伴う挙動の変化を観察するため、内径 3mm の流路・目開き 30 μm の分散板・圧力タップから成るミリスケールの流動層を製作し、液体を流した際の層高および圧力損失を設定流速毎に測定した。この時用いた粒子は粒径 50 μm のガラス粒子(充填量: 400mg)であり、設定流速は 0.0~1.6mL/min とした。

(2) 数値シミュレーション

数値シミュレーションでは、数値流体力学の前後処理用ツールボックス「OpenFOAM」に含まれる粒子追跡計算ソルヴァー-DPMFoam を用いて、実験と同スケールの流動層を再現した。DPMFoam は固体粒子群と流体から成る混相流の挙動を逐次的に計算するソルヴァーである。粒子に対しては、その接触力を接線方向と法線方向の粘弾成分に分け、個々の粒子の有限な変位および回転を模擬的に再現する離散要素法を適用する。流体については、流体力学計算の基本となる連続の式と粒子・流体間の相互作用を考慮した Navier-Stokes 方程式により流れ場の変化が計算される。本研究では 3mm x 3mm x 50mm の流路内で静置した径 0.2mm の粒子から成る流動層モデルと 0.2mm x 3mm x 18mm の流路内に静置した最大限の径 50 μm の粒子から流動層の二種類を作成した。

(3) 反応率評価

接触燃焼反応の例としてアルミナ担持白金触媒によるトルエン燃焼反応を用いて、反応率の温度依存性がロジスティック関数で表現できるかについて検討した。

4. 研究成果

(1) 流動実験 流動化特性

図1、図2はそれぞれ流動実験における設定流量に対する層高と圧力損失の変化をプロットしたものである。層高は流動化に伴い、流速に比例して初期状態から単調に増加する様子が見られ、圧力損失は一定値に収束した。これらの結果はラボスケールの流動層の流動特性と類似しており、スケールダウンの影響は見られなかった。しかし、本測定ではラボスケールの場合に比べてデータが安定するまでに長い時間を要した。マイクロ化によって粘性の影響により定常状態となるまでの時間が長くなることが示唆された。

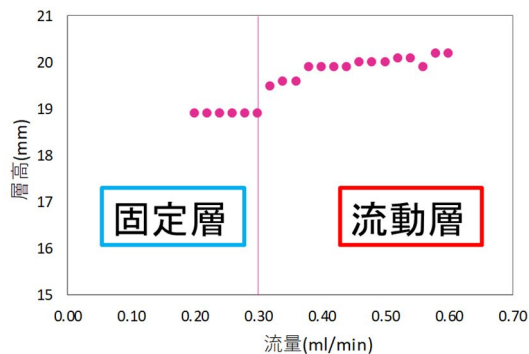


図1. 流量に対する層高変化

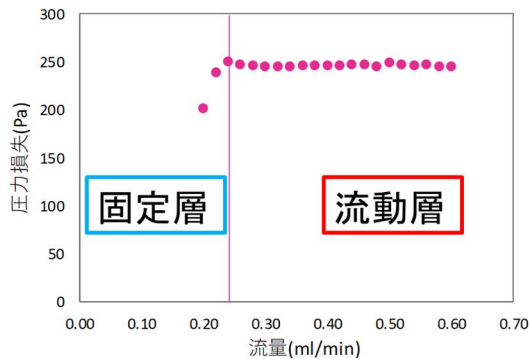


図2. 流量に対する圧力損失変化

(2) 流動実験 粒子の挙動

図3は粒子層の界面付近で観察された粒子の写真と、その挙動を図示したものである。ラボスケールの流動層では、粒子の終末沈降速度を下回る流速で明確な界面を維持する様子が見られるのに対し、ミリサイズの流動層では計算上の終末沈降速度を下回る流速で粒子層界面付近の粒子が流路の中央から輸送され、内壁付近で粒子層へと沈降する様子が見られた。粒子の挙動から、流路の内壁付近から中央にかけて流速が急激に上昇する層流の流速分布が生じていると考えられる。流路のスケールダウンにより流体の粘性が流れに及ぼす影響が増大し、粒子の存在により通常は乱流を示す層界面の流れが層流化した結果であると考えられる。

しかし、流路内の流れ場の測定は困難であるため、マイクロ流動層の流れ場を数値シミュレーションにより評価した。

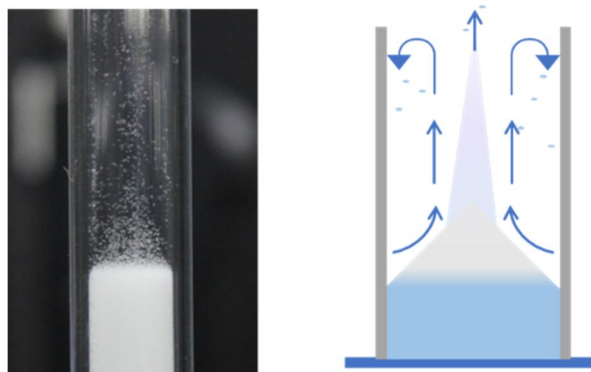


図3. 層界面の粒子とその挙動

(3) 数値シミュレーション 流れ場の評価

図4では、流動層($u = 0.015\text{m/s}$)と輸送層($u = 0.03\text{m/s}$)について、1秒経過時の空隙率分布と流速分布を比較する。流速の上昇に伴い、流路中央と内壁付近の流速差が拡大し、内壁の摩擦設定が機能する様子が見られる。また、層内の空隙率分布から気泡の発生が見られず、固・液混相流に特徴的な均一流動化が見られる。以上の二点から、流体の物性のみを液体のそれに設定した状態で固・液混相流が再現されていると考えられる。

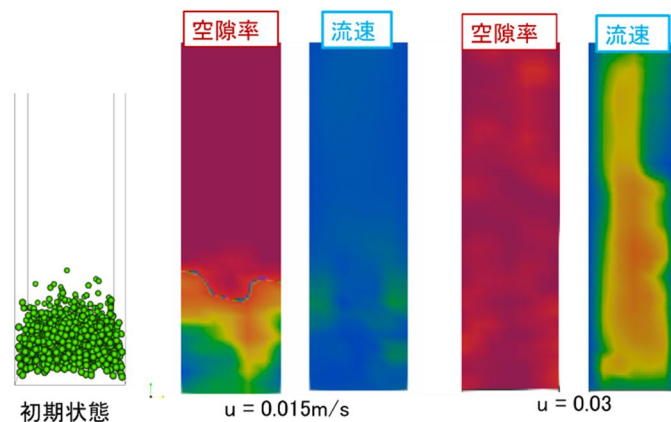


図 4. 流動層と輸送層の流れ場

(4) 数値シミュレーション 粒子の運動・流れ場の評価

数値シミュレーションでは全粒子の配置および流路の空隙率分布が求まるため、層高を目視で判断することなく、計算から得られる。シミュレーションに関しては、全粒子の平均粒子高を層高として用いる。図 5 は、固定層($u=2.5 \times 10^{-5} \text{m/s}$)、流動層($u=0.015 \text{m/s}$)と輸送層($u=0.03 \text{m/s}$)における平均粒子高の経時変化を比較した。

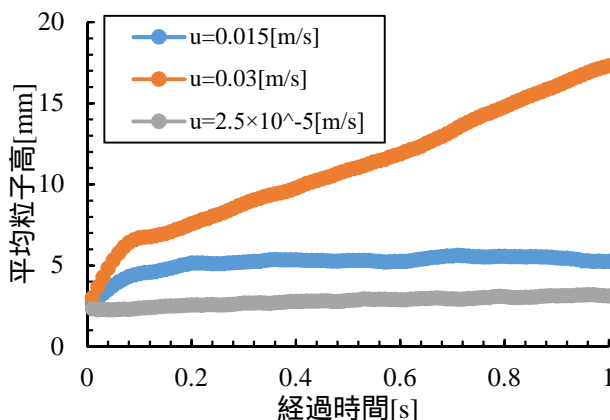


図 5. 平均粒子高変化

計算上の最小流動化速度と終末沈降速度の中間点($u=0.015 \text{m/s}$)では流動層を形成すると予想され、上図では粒子層が膨張後、限られた範囲内で変動し続け、流動層に特徴的な挙動が見られた。終末沈降速度($u = 0.03 \text{m/s}$)では平均粒子高が単調に増加し続け、輸送される様子が見られる。これにより、粒子の挙動と平均粒子変化から、明確な固定層・流動層・輸送層の三形態が確認された。

(5) 数値シミュレーション 流速分布から見る流れの推移

図 6 は粒子層の界面付近の流速分布をプロットしたものである。層内では流速分布が絶えず変化し続ける乱流が見られ、流路の上方では層流の流速分布に収束した様子が見られた。層内と同様、粒子の存在により乱流の流速分布を示すと予想された層界面では、上図からほぼ層流の流速分布を示す様子が見られる。この結果から、乱流と層流の境目は粒子層内部にあり、流路のスケールダウンにより流れが「層流化」した様子が見られた。この層流化により粒子が存在する空間で流速の極大値が平均の 2 倍に昇る流速分布が形成された。更に $50 \mu\text{m}$ 粒子試料中に実験条件を下回る大きさの粒子が含まれているため、これらの要因が実験で観察された界面の分散に寄与していると考えられる。現状の流動層モデルでは粒子の揚力など、粒子・流体間に作用する力が全て考慮しきれていないため、これらを接触計算式に導入することで、より現実に近い流動層シミュレーションが得られると予想される。

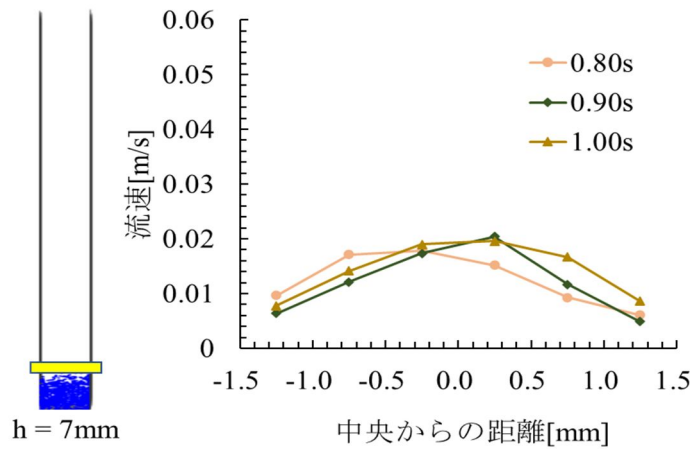


図 6. 層界面付近の流速変化

(6) 反応率評価

-アルミナ担持白金触媒によるトルエンの燃焼反応における反応率の温度依存性を調べた。反応率の温度依存性はS字曲線となった。得られたデータを式に代入して単回帰分析を行った。直線がデータを説明する程度を表す決定係数 (R²) の値が 0.99 以上と高く、直線に対する相関性が著しく高いことがわかった。回帰分析により得られたパラメータを式に代入して実測データと比較したところ、ロジスティック関数は実験結果をよく表していることがわかった。

参考文献

- 1) C. Fernandez et al, Granular Matter、20 巻、論文番号 64、2018 年

5. 主な発表論文等

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

| | |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名 NAGATA Hideo, IZUMI Sakiho, YAMASHITA Rina, JOHNO Yuki | 4. 巻 64 |
| 2. 論文標題 Application of Logistic Regression Analysis to Combustion of Toluene over γ -Alumina-supported Platinum Catalyst | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute | 6. 最初と最後の頁 340 ~ 343 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1627/jpi.64.340 | 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 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 ジョーンズ ジェームス, 前田 泰佑, 津留崎 優斗, 濱田 裕康, 城野 祐生 |
| 2. 発表標題 マイクロ流動層の流動化特性に関する研究 |
| 3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 James Earl JONES, Yuuki JOHNO, Yasuhiko TANAKA, Tadashi OKOBIRA, Kenji NAKASHIMA and Fuminori MATSUYAMA |
| 2. 発表標題 Research Regarding the Application of Fluidized Beds in Micro-Reactors |
| 3. 学会等名 30th Annual Meeting of MRS-Japan 2020 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長田秀夫, 出水咲帆, 山下莉奈, 城野祐生 |
| 2. 発表標題 - アルミナ担持白金触媒によるトルエンの燃焼反応に対するロジスティック関数の適用 |
| 3. 学会等名 触媒学会第126回触媒討論会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 荒木泰成, 城野祐生 |
| 2. 発表標題 水蒸気蓄積量で評価した付着性と流動化特性に関する研究 |
| 3. 学会等名 第56回化学関連支部合同九州大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|-----------------------------|
| 1. 発表者名 山本竜也, 城野祐生 |
| 2. 発表標題 石膏粒子の堆積抑制に関する研究 |
| 3. 学会等名 第56回化学関連支部合同九州大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 城野祐生, 山本竜也, 藤瀬空, 山本健太, 中島賢治, 松山史憲 |
| 2. 発表標題 石膏汚泥の堆積抑制に関する研究 |
| 3. 学会等名 粉体工学会 2018年度第2回西日本談話会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 城野祐生, 森田翔, 飯星伶奈 |
| 2. 発表標題 DEMを用いた液架橋付着を有する粉体流動の数値シミュレーション |
| 3. 学会等名 化学工学会九州支部第5回九州地区大学・高専若手研究者研究・教育セミナー |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 荒木泰成, 藤永嵩規, 城野祐生 |
| 2. 発表標題 水蒸気蓄積量で評価した粒子付着性と流動化特性に関する研究 |
| 3. 学会等名 化学工学会九州支部第5回九州地区大学 - 高専若手研究者研究・教育セミナー |
| 4. 発表年 2018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 | 長田 秀夫 (Nagata Hideo) (70221463) | 佐世保工業高等専門学校・物質工学科・教授 (57301) | |

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 |
|---------|---------|