

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月25日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360084

研究課題名（和文） 化学反応を伴う高濃度スラリー系多分散固気液三相気泡流の
モデル化と計算技術の開発研究課題名（英文） Modeling of poly-dispersed bubbly flow in three-phase slurry system
with chemical reaction and development of numerical method

研究代表者

富山 明男 (TOMIYAMA AKIO)

神戸大学大学院・工学研究科・教授

研究者番号：30211402

研究成果の概要（和文）：天然ガス液化技術の要である微粒子を固体触媒とする高濃度スラリー内固気液接触反応における化学反応塔内スラリー系固気液三相反応性流れの汎用計算技術開発と普及を最終目的として実験，モデリング及び数値計算を実施し，粒子径・粒子濃度等のパラメータに対するスラリー系固気液三相気泡流内の気相体積率分布等の実験データベースを構築した。また，スラリー系固気液三相気泡流計算技術の構成要素として，粒子が気泡合体・分裂に及ぼす影響をモデル化するとともに，化学反応計算モデルを構築した。

研究成果の概要（英文）：Experiments, modeling and numerical simulations on gas-liquid-solid three-phase flows in a slurry bubble column were carried out to develop a numerical method for simulating reactive bubbly flows in slurry systems of the GTL (Gas-To-Liquid) technology. Experimental databases of various quantities such as the void fraction in the column were obtained. The effect of fine particles on bubble coalescence was modeled and implemented into a numerical method. A numerical model for chemical reaction was also developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,400,000	2,520,000	10,920,000
2010年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2011年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
総計	15,000,000	4,500,000	19,500,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：混相流，スラリー

1. 研究開始当初の背景

天然ガスは単位エネルギー当りの二酸化炭素排出量が他の化石燃料より小さく，環境負荷の低いエネルギー源である。しかし，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取り残され

ている。その理由は LNG 化やパイプライン敷設などのガス供給系の設備コストが膨大となるため対投資効果が得られない点にある。GTL(Gas To Liquid)技術は，この状況を打破する技術として世界的に開発が進められている。GTL 技術の核心は

FT(Fisher-Tropsch)反応塔であるが、反応塔内の流れは高濃度スラリー系かつ高気相体積流量の化学反応を伴う固気液三相気泡流という極めて複雑な流れである。現状の計算技術では、このような複雑な流れは扱えない。このため、実証プラントから商用規模プラントへのスケールアップ方法や設計指針を得ることが極めて困難な状況にある。従って、気泡の合体や分裂、化学反応を伴う多分散固気液三相気泡流計算技術の確立は、エネルギー環境分野における重要な技術課題となっている。

2. 研究の目的

本研究では、化学反応塔内スラリー系固気液三相反応性流れの汎用計算技術の開発と普及に資する基盤技術構築を目的とし、気泡塔内スラリー系固気液三相気泡流の流動特性に関する実験データベースの構築、気泡の合体及び分裂特性に及ぼす粒子の影響のモデル化、及び化学反応を伴うスラリー系固気液三相気泡流の三次元流動計算用要素技術の開発を試みた。

3. 研究の方法

気泡塔内流動に関する既開発のモデル・計算技術・計測技術を活用して、化学反応を伴うスラリー系固気液三相気泡流の三次元流動計算に必要な各種要素技術を開発する。その実現のため、①気泡塔内固気液三相気泡流に関する実験データベースの構築、②スラリー環境下気泡合体分裂に関する基礎実験とモデル化、③スラリー系気泡流計算手法及び化学反応計算モデルの開発を実施する。要素研究①では気泡塔内の気相体積率分布等を測定し、計算結果との比較により計算に必要な各種モデルを改良、整備する。要素研究②では粒子が気泡合体・分裂に及ぼす影響を実験的に把握するとともに、その影響を考慮したモデルを構築する。要素研究③では②の合体分裂モデルを組み込んだスラリー系気泡流計算手法の開発と検証を行うとともに、既存の化学反応実験データを活用して反応計算モデルを開発する。

4. 研究成果

(1) スラリー系気泡塔内固気液三相気泡流の流動特性に関する実験データベースの構築

塔幅 $D = 200 \text{ mm}$ 、塔高 1200 mm の矩形断面を有するモデル気泡塔を用いて気泡塔内スラリー系固気液三相気泡流の流動特性を測定した。主な実験条件は、粒子体積濃度 C_s が 6 条件(0, 10, 20, 30, 40, 50 %), 粒子径 d_s が 3 条件(60, 100, 150 μm), 気相体積流束 J_G が 2 条件(0.020, 0.034 m/s)であり、粒子表面は親水性である。図 1 に $d_s = 100 \mu\text{m}$, $J_G = 0.034 \text{ m/s}$ における各 C_s の塔内流動の高速度

撮影画像を例示する。図中の z は塔底部からの高さである。低 C_s では、ほとんどの気泡は 10 mm 程度の直径を有しているが、高 C_s になると数十 mm の大気泡が形成されることを確認した。

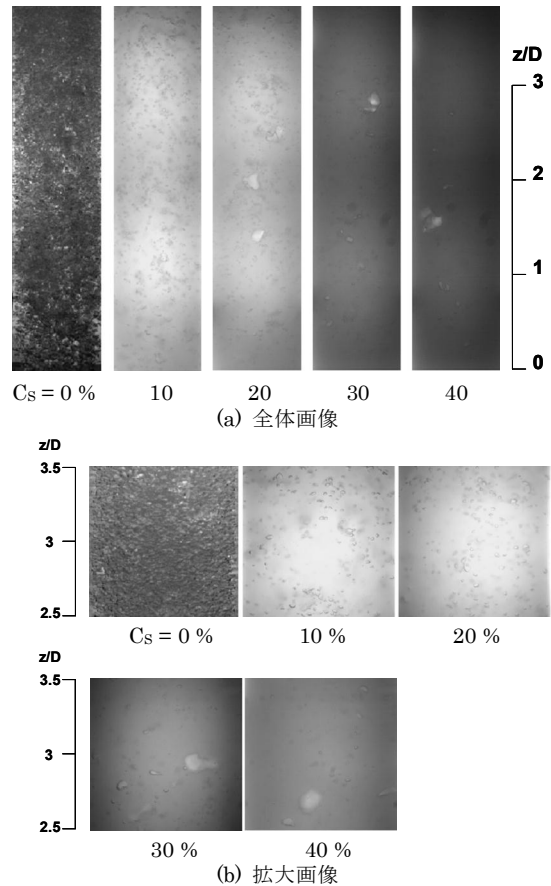


図 1 スラリー系気泡流撮影画像 ($d_s = 100 \mu\text{m}$, $J_G = 0.034 \text{ m/s}$)

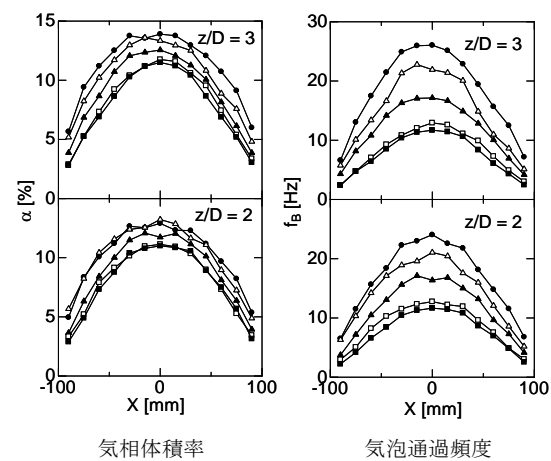


図 2 気泡塔水平断面内気相体積率及び気泡通過頻度の分布 ($d_s = 100 \mu\text{m}$, $J_G = 0.034 \text{ m/s}$)

図2に気相体積率 α 及び気泡通過頻度 f_B の測定値を例示する。 C_s 増加に伴い気相体積率及び気泡通過頻度がともに低下している。すなわち、粒子により、気泡合体が促進し総気泡数が減少するとともに、上昇速度の高い大気泡の割合が増加した結果、気相体積率が低下することがわかった。また、 α と f_B の減少傾向は C_s の増加とともに小さくなり、 $C_s=30\%$ と 40% の α , f_B には大きな差がない。

粒子径が気相体積率分布に及ぼす影響を図3に示す。粒子濃度は20%である。粒子径低下とともに気相体積率が低下している。また、 C_s 増加とともに粒子径の影響は小さくなり、 $C_s = 40\%$ ではいずれの粒子径においてもほぼ同じ気相体積率分布となることを確認した。

以上、親水性粒子を含むスラリー系気泡流においては、粒子の存在により気泡合体が促進されること、その結果粒子体積濃度の増加とともに気相体積率が低下すること、また粒子径の低下とともに気相体積率は減少するが、粒子体積濃度の増加に伴いその減少率は低下することを明らかにした。

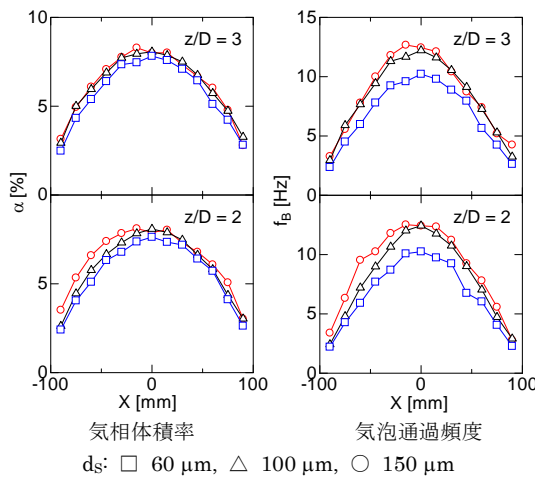


図3 気泡塔水平断面内気相体積率及び気泡通過頻度の分布 ($C_s = 20\%$, $J_G = 0.020$ m/s)

スラリー系気泡流では液相内の微粒子により光が減衰するため、気泡塔外部からの光学計測は困難である。そこで、スラリー流動場内にプローブを挿入することにより微粒子による光の減衰を緩和し、速度測定を可能とする挿入型LDV(Laser Doppler Velocimetry)プローブを開発した。本LDVシステムでは、2方向成分同時計測を可能とするため、Ar-ionレーザを光源とした2カラー4ビーム方式を採用した。開発した光学系は光ファイバにレーザビームを入射する入射光学系と流れ場内に挿入可能な小型LDVプローブからなる。逆流の計測を可能とする

ため、入射光学系にブラッグセルを導入し、レーザビームに周波数シフトを施した後、4本の光ファイバに導入した。プローブ内で4本の光ファイバから出射したビームはフロントレンズ(焦点距離: $f = 25$ mm)で1点に集光され、測定点(直径: 54.6 μm)を形成する(図4)。測定点からの散乱光は、フロントレンズと受光用レンズで集光され受光用光ファイバに導入される。プローブの直径は、市販光ファイバ先端金具を用いて実現できる最小径である7mmとした。なお、プローブ先端のフロントレンズは交換可能であり、流れ場に適した焦点距離のレンズを使用できる。また、LDVの信号処理には市販の信号処理器(Dantec, 58N10)を用いた。

開発したLDVプローブの測定精度を検証するため、鉛直矩形ダクト内水流を対象として、本LDVと市販LDV(Dantec 60X)で測定した速度を比較した。試験部断面は幅方向(y方向)に50mm、奥行き方向に5mmの矩形であり、水力等価直径 D_H は9.1mmである。計測位置は試験部入口から1m下流であり、流れが十分発達していることを市販LDVを用いた予備実験で確認している。奥行き方向中心断面において、軸方向及びy方向速度成分(U, V)のy方向分布を測定した。散乱粒子には、平均粒径3 μm のSiC粒子を用いた。

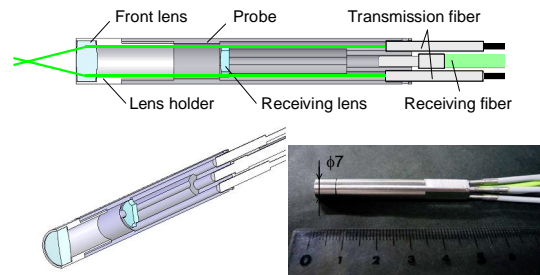


図4 開発した挿入型LDVプローブのモデル及び写真

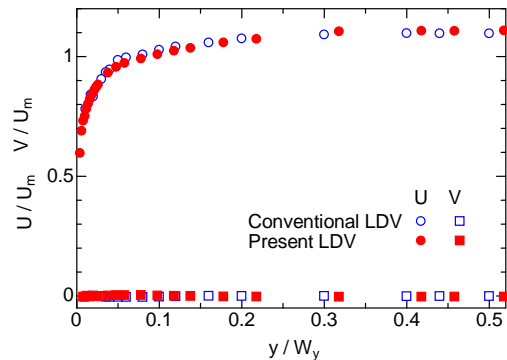


図5 挿入型LDVプローブと商用プローブによるダクト内液相速度分布測定結果の比較 (W_y :ダクト幅)

測定条件は層流(断面平均流速 $U_m = 0.098$ m/s, レイノルズ数 $Re = U_m D_H / \nu = 1000$, ν は動粘度)及び乱流($U_m = 1.28$ m/s, $Re = 13000$)の2条件とした. 乱流条件における U, V の y 方向分布を図5に示す. 開発したLDVによる測定値は市販LDVのものと良好に一致しており, 開発したLDVの測定精度が市販LDVと同等であることを検証できた.

(2) 粒子が気泡合体に及ぼす影響のモデル化

スラリー系気泡塔内固気液三相気泡流の流動特性に関する実験の結果, 液相への粒子の添加により気泡合体が促進され, 気泡径が大きくなることがわかった. 粒子による気泡合体促進効果をモデル化するための具体的指針を得るため, 高粒子濃度でも気泡挙動を可視化できる幅100 mm, 高さ330 mm, 厚さ3 mmの気泡観察装置を用いて実験を実施した. 気泡合体挙動を高速ビデオカメラにより撮影し, 画像処理により2つの気泡が接触してから合体に至るまでの過程を調べた.

気泡の合体挙動を図6に示す. 入口における気泡の大きさには差はほとんどないが, 粒子体積濃度の増加に伴って下流に大きな気泡が出現しており, 粒子が気泡合体を促進することを再確認できた. また, 低 C_s では気泡が接触後すぐには合体せず接触しながら上昇することが多いが, 高 C_s では気泡は接触後直ちに合体し, 接触状態を維持した気泡は殆ど存在しない. 本結果は, 粒子による気泡合体促進の主因は, 気泡接触から合体までの時間 t_c の減少に伴う合体確率の増加であることを示している.

図7に粒子濃度が t_c に及ぼす影響を示す. C_s 増加に伴って低 t_c の気泡の割合, すなわち, 接触後直ちに合体する気泡の割合が増加している. また, $C_s = 40, 50\%$ のCDFはほぼ同じである. 図8に $C_s = 20\%$ における t_c を粒子径ごとに示す. d_s 低下とともにCDFは低 t_c で増加しており, 特に $d_s = 60 \mu\text{m}$ ではほとんどの気泡が接触後直ちに合体している($t_c \sim 0$ s). ただし, 図9に示すように, 高 C_s (40%)ではいずれの d_s でもほとんどの気泡が接触後直ちに合体している. 本結果から, 高 C_s では合体促進効果は飽和し, 粒子径の影響は小さいといえる.

以上, 粒子体積濃度の増加に伴って t_c が短くなること, 粒子体積濃度が40%程度以上になると t_c は0に近い一定値をとること, 粒子径が小さいほど t_c が小さいことがわかった. そこで, PrinceとBlanchが提案した気液二相流用の合体効率モデルに含まれる t_c を本実験結果に基づいて調整するための係数 β を乗じ, β を粒子濃度及び粒子径の関数としてモデル化した(次節参照).

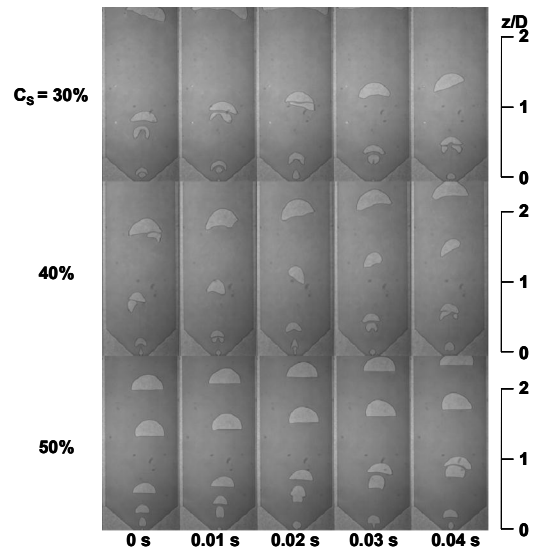


図6 スラリー系気泡の合体挙動 ($d_s = 100 \mu\text{m}$, $J_G = 13 \times 10^{-3}$ m/s)

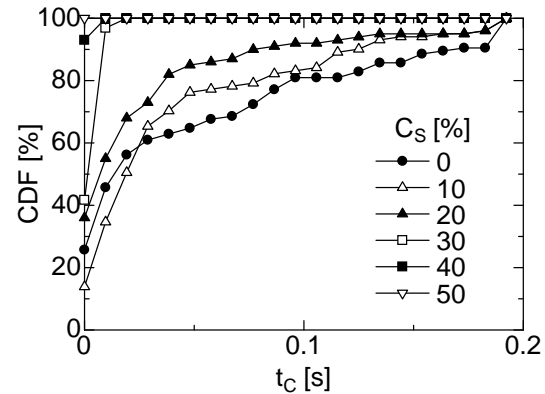


図7 粒子体積濃度が t_c の累積分布関数(CDF)に及ぼす影響

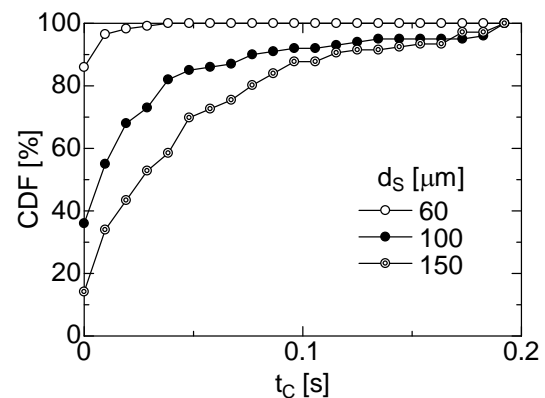


図8 粒子径が t_c の累積分布関数に及ぼす影響 ($C_s = 20\%$)

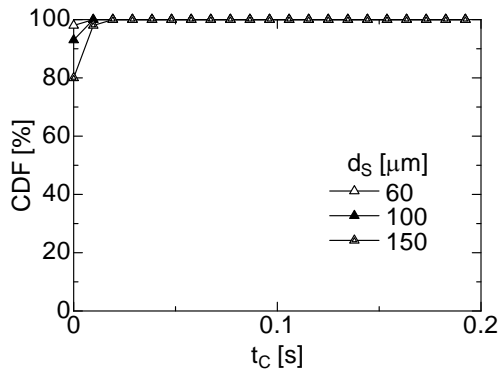


図9 粒子径が t_c の累積分布関数に及ぼす影響 ($C_s = 40\%$)

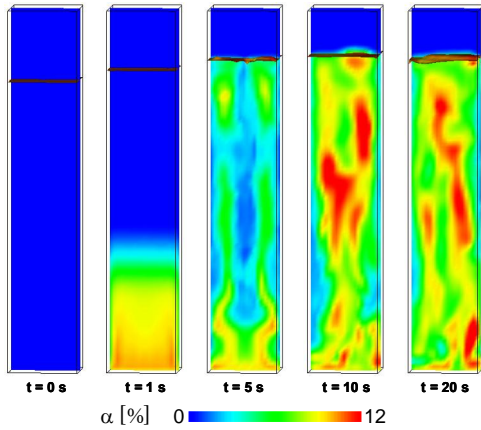


図10 スラリー系気泡塔内気相体積率 α の予測結果 ($J_G = 0.034$ m/s, $C_s = 40\%$)

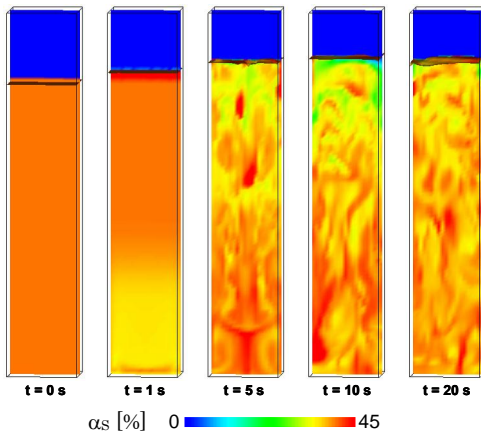


図11 スラリー系気泡塔内固相（粒子相）体積率 α_s の予測結果 ($J_G = 0.034$ m/s, $C_s = 40\%$)

(3) スラリー系固気液三相流動計算の要素技術開発

既に開発済みの多流体モデルと界面追跡法をハイブリッド化した気液二相気泡流計算手法を以下のようにスラリー系固気液三相気泡流計算手法に改良した。既開発の二相流用計算手法は N 種の分散相と 2 種の連続相（連続液相と連続気相）を扱える。そこで、分散相の内 N_B 個を気泡、 N_S 個を粒子として ($N = N_B + N_S$)、気泡径分布に加えて粒子の粒径分布や粒子種による密度の相違も考慮できる手法とした。また、(2)で構築した合体効率モデルを上記計算手法に組み込んだ。

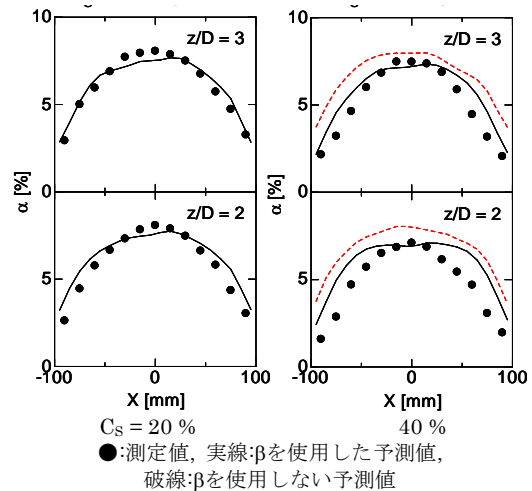


図12 気相体積率の測定値と予測値の比較 ($d_s = 100$ μm, $J_G = 0.020$ m/s)

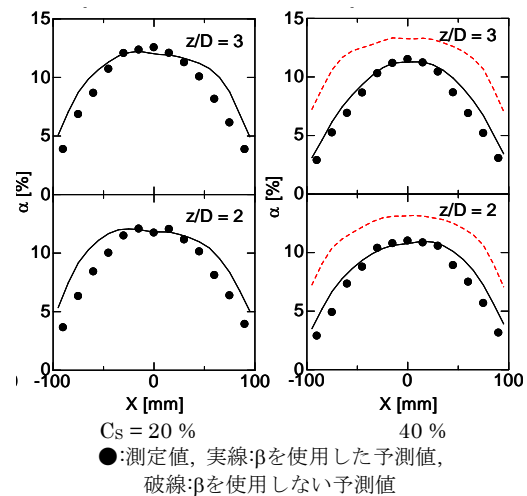


図13 気相体積率の測定値と予測値の比較 ($d_s = 100$ μm, $J_G = 0.034$ m/s)

本手法を用いて(1)の実験条件で計算した塔内気相体積率分布及び固相体積率分布を図10及び11に各々例示する。塔底部から吹き込まれた気相が塔内に複雑な流動をもたらすと同時に、気泡によって誘起された流れによって固相が沈降せずに塔内全体に分布している様子がみられる。これらの傾向は実験による観察結果と定性的に一致している。図12及び13に気相体積率の測定値と予測値の比較を示す。いずれの条件においても、合体モデルに修正係数 β を導入したことによって、実験とよく一致する結果が得られている。

化学反応を伴うスラリー系固気液三相気泡流の三次元流動計算手法の要素技術として、化学反応計算モデルを開発した。本モデルは上述の既開発ハイブリッドモデルを基礎としており、さらに図14に示す各化学種の流動及び化学反応を扱うための化学種保存式及びエネルギー保存式を組み込んでい

図 15 に本計算モデルを使用した気泡塔内反応性流れの一計算例を示す。ボイド率の高い部分に強い液相の上昇流が生じ、一方ボイド率の低い部分には下降流が形成される。しかしながら、塔全体に及ぶ大きな循環流はなく、塔径よりも小さなスケールの循環流が複数形成されている。また、ボイド率の高い部分は水平揺動すること、すなわち非均質流動状態に近いことを確認した。この他、複数の検証計算により、本手法の妥当性を確認した。

気相密度	$\frac{1}{\rho_{Bm}} = \sum_i \frac{Y_{Bmi}}{\rho_{Bmi}(P, T_k)}$	Y_i : 質量分率
液相密度	$\rho_L = \sum_i C_{Li} M_{Li}$	C_i : モル濃度
化学種保存	$\frac{DY_{Bmi}}{Dt} = \frac{M_{Bmi}}{\alpha_{Bm} \rho_{Bm}} \{ \alpha_{Bm} w_{Bmi} - (1 - Y_{Bmi}) B_{LBmi} \}$ $\frac{DC_{Li}}{Dt} = \frac{1}{\alpha_L \rho_L} \nabla \cdot (\alpha_L \rho_L D_{Li} \nabla C_{Li}) + w_{Li}$ $+ \frac{1}{\alpha_L} \sum_m B_{LBmi} + \left(\frac{\partial C_{Li}}{\partial T_L} \frac{DT_L}{Dt} + \frac{\partial C_{Li}}{\partial P} \frac{DP}{Dt} \right)$	w : 化学反応, B : 溶解と放散
エネルギー保存	$\frac{D_{Bm} T_{Bm}}{Dt} = - \frac{1}{\alpha_{Bm} \rho_{Bm} c_{Bm}^p} \nabla \cdot (\alpha_{Bm} \mathbf{q}_{Bm})$ $+ \frac{Q_{Bm}^w + Q_{Bm}^e}{\alpha_{Bm} \rho_{Bm} c_{Bm}^p} - \frac{1}{\alpha_{Bm} \rho_{Bm} c_{Bm}^p} (Q_{LBm}^h + Q_{Bm}^r)$ $\frac{DT_C}{Dt} = - \frac{1}{\alpha_L \rho_L c_L^p} \nabla \cdot (\alpha_L \mathbf{q}_L) + \frac{Q_L^w + Q_L^e + Q^h}{\alpha_L \rho_L c_L^p}$ $+ \frac{1}{\alpha_L \rho_L c_L^p} \sum_{m=1}^N (Q_{LBm}^h + Q_L^r)$	

図 14 化学反応を伴う混相流動の基礎方程式

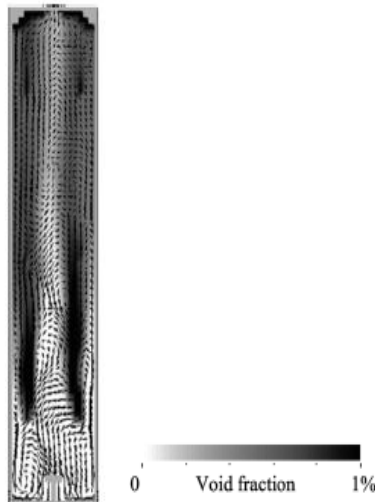


図 15 化学反応を伴う気泡塔内流動の数値予測 (気相体積率及び速度場)

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 4 件) (総計 10 件)

- ① Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Interface Tracking Simulation of Mass Transfer from a Dissolving Bubble, Journal of Computational Multiphase

Flows, 査読有, Vol. 3, 247-261, 2012

- ② Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Surfactant on Terminal Velocity of a Taylor Bubble in a Vertical Pipe, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol. 39, 78-87, 2012

- ③ Iztok Zun, Matjaz Perpar, Jurij Gregorc, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Mixing of Thermally Stratified Water Layer by a Free Rising Wobbling Air Bubble, Chemical Engineering Science, 査読有, Vol. 72, 155-171, 2012

- ④ 田中正博、林公祐、富山明男、スラリー気泡塔設計のための進化する数値計算手法の構築、化学工学論文集、査読有、36 巻 1 号、17-24、2010

[学会発表] (計 5 件) (総計 21 件)

- ① 内田拓真、細川茂雄、富山明男、小型挿入型光ファイバ LDV の開発、日本機械学会関西支部第 87 期定時総会講演会、2012 年 3 月、大阪

- ② Akio Tomiyama, Shinpei Ojima, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Multiscale Simulation of Dispersed Flow in Bubble Columns, 1st International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (Keynote lecture), 2011 年 10 月、金沢

- ③ 小嶋真平、小幡聖、林公祐、富山明男、スラリー系気泡塔における気泡合体に及ぼす粒子濃度及び粒子径の影響、日本混相流学会年会講演会 2011、2011 年 8 月、静岡

- ④ Akio Tomiyama, Kosuke Hayashi, Interface Tracking and Multi-Fluid Simulation of Bubbly Flows in Bubble Columns, 8th International Conference on COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS in the Oil & Gas, Metallurgical and Process Industries (Plenary lecture), 2011 年 6 月、トロンハイム・ノルウエイ

- ⑤ Akio Tomiyama, Hybrid Simulation of Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Bubbly Flows in Bubble Columns, Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering Congress (Plenary lecture), 2011 年 6 月、ブラガ、ポルトガル

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富山 明男 (TOMIYAMA AKIO)
神戸大学大学院・工学研究科・教授
研究者番号：30211402

(2) 研究分担者

細川 茂雄 (HOSOKAWA SHIGEO)
神戸大学大学院・工学研究科・准教授
研究者番号：10252793