

令和 6 年 5 月 31 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04771

研究課題名（和文）液液スラグフローリアクターによる微粒子およびゲルカプセル連続製造プロセスの開発

研究課題名（英文）Development of a Continuous Manufacturing Process for Fine Particles and Gel Capsules Using a Liquid-liquid Slug Flow Reactor

研究代表者

藤岡 沙都子 (Fujioka, Satoko)

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・准教授

研究者番号：50571361

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では液液スラグ流のリアクターとしての利用を目指し、(1)液スラグの形状予測および制御手法の確立、(2)液スラグ内部循環流の混合効果を利用した微粒子製造ならびに粒径制御手法の確立、(3)微細気泡含有ゲルカプセル連続生成法の提案、を目的とした。2液体の物性が液スラグの形状に及ぼす影響を実験的に明らかにし、スラグ長さや界面形状を予測する無次元相関式を提案した。

分散相スラグを反応場としてゾルゲル法によりシリカ微粒子を生成し、内部循環流制御による粒径分布制御の可能性を示した。また、ゾル水溶液で分散相スラグを形成し管内でゲル化を進行させ形状の揃ったゲルカプセルの連続製造に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液液スラグ流は優れた物質移動性能を示すことが知られており、特に抽出に関する応用例が多数報告されている。一方で、内部の流速分布に関する直接可視化や解析結果は不足しており、混合促進のための条件が明らかでなく、プロセス設計が困難である。本研究では、PIV解析により装置および操作条件がスラグ内部流動に及ぼす影響を定量的に明らかにし、混合性能を促進するための設計指針を提案した。本研究成果の活用により、環境負荷を低減し、安全なものづくりを可能にするフローリアクター活用プロセスの確立が期待される。

研究成果の概要（英文）：The objectives of this study were (1) to establish a method for predicting and controlling the shape of liquid slug, (2) to establish a method for producing fine particles and controlling particle size by utilizing the mixing effect of the circulating flow inside the liquid slug, and (3) to propose a method for continuously generating gel capsules.

We experimentally clarified the effects of liquid properties on the shape of the liquid slug and proposed a dimensionless correlation equation to predict the slug length and interface shape. The characteristics of the circulating flow inside the slug were clarified by PIV analysis. Silica particle generation by the sol-gel method was carried out inside the dispersed phase slug, demonstrating the possibility of controlling particle size distribution by controlling the internal circulation flow. The gelatin gel beads of uniform size were successfully produced continuously by using L-L slug flow.

研究分野：化学工学

キーワード：slug flow multiphase flow flow reactor

### 1. 研究開始当初の背景

互いに不溶な 2 流体が管内を交互に流れる液液スラグ流は、分散相スラグと管壁の間に形成される液膜の存在による比表面積の大きさと分散相スラグ内部に形成される循環流による混合促進効果により優れた相間物質移動性能を示すことが知られており、特に液液抽出プロセスの連続化に関する応用が多数報告されている。また内部循環流による分散相スラグ内滞留時間分布の均一化を利用し、分散相スラグを反応場としたフローリアクターとしての応用研究が報告されている。一方で、内部循環流の直接可視化や流速分布の解析に関する知見は不足しており、液スラグ形状の予測や内部循環流の制御方法が明らかでなく、プロセスの設計を困難にしている。そこで本研究では、操作条件や液物性からスラグ形状を予測する無次元相関式を提案し、スラグ形状と内部循環流の関係を明らかにしたいと考えた。さらに内部循環流により液スラグ内を混合しながらゲル化を進行させ、微細気泡あるいは微粒子を均一に分散させた機能性ゲルカプセル材料の連続製造の可否を明らかにしたいと考えた。

### 2. 研究の目的

本研究では液液スラグ流のリアクターとしての利用を目指し、(1)液スラグの形状予測および制御手法の確立、(2)液スラグ内部循環流の混合効果を利用した微粒子製造ならびに粒径制御手法の確立、(3)微細気泡含有ゲルカプセル連続生成法の提案、を目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1)液スラグの形状予測および制御手法の確立

連続相（シリコンオイル）に分散相（グリセリン水溶液）を垂直に合流させ円管内に液液スラグ流を形成させ(図 1)、高速度ビデオカメラの撮影画像から分散相スラグの前縁および後縁の輪郭と軸方向長さを解析した。

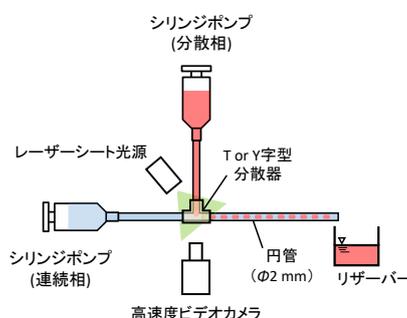


図 1. T 字あるいは Y 字合流によるスラグ流の生成

#### (2)液スラグ内部循環流の混合効果を利用した微粒子製造ならびに粒径制御手法

①連続相とする不活性流体(フロリナート)に分散相とする反応液を垂直に合流させスラグ流を形成させた。モデル反応系としてゾルゲル法によるシリカ微粒子合成を採用した。生成されるシリカ微粒子の粒径分布測定のため、管出口で回収した反応液をレーザー回折散乱式粒度分布解析装置で解析した。

②分散相スラグ内部循環流を解析するため、蛍光微粒子を分散させたグリセリン水溶液を分散相とし、高速度カメラによる撮影を行った。2 流体の合流部では分散相流体の速度分布の経時変化、流れが十分に発達した下流部ではスラグ移動速度に対する相対速度の分布に着目した。特に下流部での混合促進効果を定量化するため、内部循環流のサイズや循環周波数を画像から求めた。

#### (3)ゲルビーズの連続生成

微細気泡や微細粒子を添加したゲルカプセルの製造には至らなかったが、以下の方法で気泡や粒子の添加がないゲルビーズの連続製造を行った。

①ドデカンにアルギン酸ナトリウム水溶液を垂直合流させた後に塩化カルシウム水溶液を垂直合流させた。分散相スラグがゲル化した後に管出口で回収し、撮影画像からゲルビーズのサイズを求めた。

②2 段階合流による複雑性を排除するため、ゼラチン水溶液を分散相としてスラグ流を形成させ、管を外部から冷却してゲル化を進行させ、出口で回収したゲルビーズの撮影画像からサイズを求めた。

### 4. 研究成果

#### (1)液スラグの形状予測および制御手法の確立

高速度カメラの撮影画像(図 2)を解析し、分散相スラグを回転楕円体と円錐台により近似することとし、その代表長さを予測する無次元相関式(式 1)を次元解析と物理的考察により導出した。

$$\frac{a}{a} = k_0 C_a^{k_1} C_d^{k_2} B o^{k_3} \quad (1-1)$$

$$\frac{a}{b} = k_4 C_a^{k_5} C_d^{k_6} B o^{k_7} \quad (1-2)$$

(dは管径)

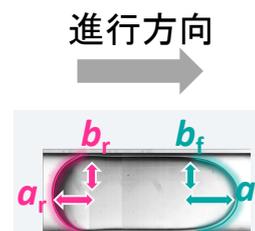


図 2. 分散相スラグの形状モデル化

## (2)液スラグ内部循環流の混合効果を利用した微粒子製造ならびに粒径制御手法

### ①液液スラグ流で生成したシリカ微粒子の粒径分布

連続相(不活性流体)流量に対する分散相(反応液)流量の比を増加させると平均粒子径は増大した(図 3-1)。このとき内部循環流に着目すると流量比増加により内部循環領域が拡大した(図 3-2)ため反応液全体の混合度が増大し2次粒子の成長が促進されたと考えられる。同様に断面平均流速の増大による平均粒径の増加および内部循環領域の拡大が確認され、循環流動の制御による粒径制御の可能性が明らかになった。

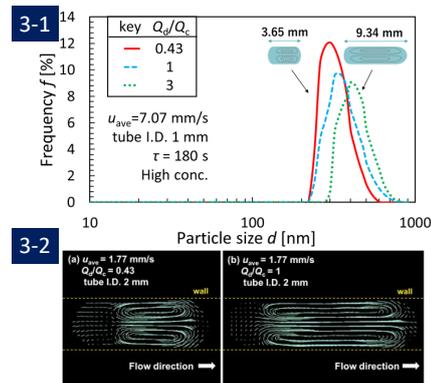


図 3. 分散相スラグでのシリカ生成

### ②操作条件と液物性が内部循環流に及ぼす影響

2 流体の合流部において分散相スラグ内部の PIV 解析を行った結果、分散相流体が主流路に侵入し壁面に到達するまでの期間に分散相内に循環渦が形成、加速される様子が明らかになった。この循環渦の加速は流量比の減少により増大した。また 2 流体の合流角の減少(T 字から Y 字)により渦強度が増加することが明らかになった。これらのことから、合流部において相間物質移動を促進させるには Y 字型合流部を用い、合流させる分散相流体を分割して合流させるなどの工夫により流量比を減少させることが効果的であると示唆され、既往の論文による報告との定性的な一致も確認された。

下流部では、PIV 解析により求めた流速ベクトルについてスラグの移動速度に対する相対速度を解析し、循環流の構造を明らかにした。断面平均流速の増加、流量比の増加および連続相粘度の増加により内部循環領域が拡大することが明らかになった。よって液液スラグ流を利用して粒子製造を行うなど、分散相スラグを反応場として利用する際は、圧力損失の許容範囲内で粘度の大きい不活性流体を選択するのがよいとわかった。

### (3)ゲルビーズの連続生成

#### ①アルギン酸カルシウムゲルカプセル

流量比の増加に伴い増加する分散相ゾルスラグのアスペクト比を保持したアルギン酸カルシウムゲルビーズの連続製造に成功した(図 4)。一方、形状の保持には成功したもの、可視化のために添加した色素の分布から内部を様に混合するのは難しく、その原因の一つとして 2 段階目の分散相流体注入時の流動不安定性が考えられた。よって反応性ゲルの連続製造を行う際は特に合流部の設計に注意が必要である。

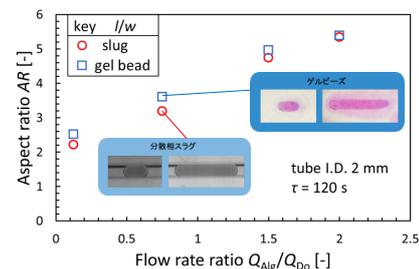


図 4. アルギン酸カルシウムゲルビーズ製造

#### ②ゼラチンゲルカプセル

まず、粘度の高いゼラチンゾルを用いて液液スラグ流を形成させるための条件を検討し、キャピラリー数とレイノルズ数を用いて整理されるフローパターンマップを作成した。次に、スラグ流形成範囲で冷却ゲル化実験を行ったところ、流量比の調整により分散相ゾルスラグのアスペクト比を制御でき、冷却により分散相ゾルスラグのアスペクト比を保持したゼラチンゲルビーズの連続製造に成功した(図 5)。

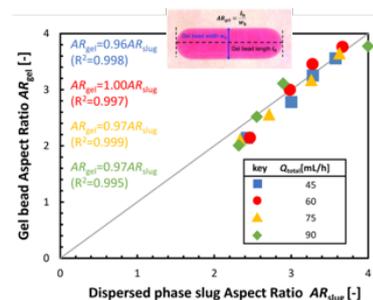


図 5. ゼラチンゲルビーズ製造

以上、(1)～(3)の結果から、円管内を流れる液液スラグ流について、2 流体の合流様式や流量比の制御により 2 流体合流部に形成される循環渦および流れの発達した下流部で形成される内部循環流による混合を促進することが可能になり、分散相スラグを反応場として活用する際の設計指針が得られた。また、分散相スラグのサイズや形状を操作条件と液物性から予測することが可能になり、スラグの良好な形状制御性を利用してサイズの揃ったゲルビーズの連続製造に成功した。化学ゲル、物理ゲルの両方についてビーズの連続製造を行ったが、微細気泡や微細粒子が一様分散したゲルカプセルの製造は今後の検討課題である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 岡屋光紀, 藤岡沙都子, 寺坂宏一
2. 発表標題 液液スラグ流を用いたゼラチンゲルビーズの合成
3. 学会等名 化学工学会第89年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Satoko Fujioka, Arisa Hirata, Tomoya Tetsuka, Koichi Terasaka
2. 発表標題 Hydrodynamics of liquid-liquid slug flow in circular channels: The effects of fluid properties and channel geometries
3. 学会等名 ICMF2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 藤岡沙都子
2. 発表標題 スラグフローリアクターの設計と応用
3. 学会等名 省エネルギーに貢献する粒子設計・粉体プロセスの薬工連携研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Satoko FUJIOKA, Arisa HIRATA, Tomoya TETSUKA, Koichi TERASAKA
2. 発表標題 Hydrodynamics of liquid-liquid slug flow in circular channels: The effects of fluid properties and channel geometries
3. 学会等名 The 11th International Conference on Multiphase Flow (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平田有理冴, 藤岡沙都子, 寺坂宏一
2. 発表標題 T字型合流による液液スラグ流形成時の流動及び混合度の解析
3. 学会等名 混相流シンポジウム2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 手塚智哉, 寺坂宏一, 藤岡沙都子
2. 発表標題 ミニチャンネル内液液スラグ流において操作条件が内部循環流に及ぼす影響
3. 学会等名 第27回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 手塚智哉, 寺坂宏一, 藤岡沙都子
2. 発表標題 液液スラグ流におけるスラグ長さの推算と内部循環流の可視化
3. 学会等名 化学工学会秋田大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 手塚智哉, 寺坂宏一, 藤岡沙都子
2. 発表標題 液液スラグ流形成において操作条件がスラグ長さとの内部循環流に及ぼす影響の解析
3. 学会等名 化学工学会第52回秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Satoko FUJIOKA, Arisa HIRATA, Tomoya TETSUKA, Koichi TERASAKA
2. 発表標題 Hydrodynamics of liquid-liquid slug flow in circular channels: The effects of fluid properties and channel geometries
3. 学会等名 The 11th International Conference on Multiphase Flow (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平田有理冴, 藤岡沙都子, 寺坂宏一
2. 発表標題 T字型合流による液液スラグ流形成時の流動及び混合度の解析
3. 学会等名 混相流シンポジウム2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岡屋光紀, 藤岡沙都子, 寺坂宏一
2. 発表標題 液液スラグ流を用いたゼラチンゲルビーズの合成
3. 学会等名 化学工学会第89年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Mizuho Iwasaki, Satoko Fujioka, Koichi Terasaka
2. 発表標題 Synthesis of silica fine particles using liquid-liquid slug flow in a mini channel
3. 学会等名 4th International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Satoko Fujioka
2. 発表標題 Effect of various operating conditions on the internal circulation of liquid-liquid slug flows
3. 学会等名 4th International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Satoko Fujioka
2. 発表標題 Hydrodynamics of liquid-liquid slug flow in mini-channel and its application for fine particle production
3. 学会等名 ICCC12022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤岡沙都子
2. 発表標題 フローリアクター設計のためのスラグ流の流動解析
3. 学会等名 令和4年度東日本地区ミキシング技術サロン
4. 発表年 2022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
---------	---------