

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月27日現在

機関番号：14501  
 研究種目：挑戦的萌芽研究  
 研究期間：2011～2012  
 課題番号：23656492  
 研究課題名（和文） 異常輸送現象の解明とプロセス強化への応用  
 研究課題名（英文） Elucidation of anomalous transport phenomena and its application to process intensification  
 研究代表者  
 大村 直人（OHMURA NAOTO）  
 神戸大学・工学研究科・教授  
 研究者番号：50223954

研究成果の概要（和文）：異常輸送は熱、物質が通常の拡散速度に比べて遙かに高速で輸送される現象であり、非平衡系プロセスにしばしば現れる。本研究では、物質の異常輸送現象に及ぼす時空間摂動の効果に着目し、この現象の解明と化学プロセスへの応用を試みた。テイラー渦流とタービン翼を用いた攪拌槽内の層流場における異常輸送現象を詳細に調べた結果、流れ場の組織構造と定常性が、異常輸送にとって重要な因子であることがわかった。時空間の摂動が流れ場の組織構造と共鳴するような摂動周期であれば、構造は安定化し、異常輸送が抑制される。一方、組織構造、対称性、定常性を破るような摂動を与えることで、異常輸送が促進されることがわかった。この異常輸送促進機構を応用した中空糸膜を用いた膜分離プロセスを提案した。この新規な膜分離プロセスは、耐ファウリング性能に優れ、従来プロセスよりも高透水性、高阻止率をもつことがわかった。

研究成果の概要（英文）：Anomalous transport phenomena which give faster transport rate of physical properties such as heat and mass than its normal diffusion rate are often observed in non-equilibrium processes. This work tried to elucidate the mechanism of anomalous mass transport phenomena and apply these phenomena to chemical processes by focusing on the effect temporal-spatial perturbations. This work investigated anomalous mass transport phenomena in Taylor vortex flow and laminar flow in a stirred vessel with turbine impeller. It has been found that coherent structures in flow field and their steadiness are important factors for anomalous transport phenomena. If temporal or spatial perturbations are imposed a flow field with a resonant frequency with a coherent flow structure, the flow structure is stabilized and the anomalous transport is suppressed. On the other hand, perturbations breaking coherent, symmetry or steadiness structures are imposed, anomalous mass transport is dramatically enhanced. This work also proposed a novel hollow membrane separation process utilizing the above mechanism for enhancement of anomalous mass transport. This novel membrane separation process showed not only higher anti-fouling property but also higher permeability and rejection than an ordinary hollow fiber membrane separation process.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学、化工物性・移動操作・単位操作

キーワード：流体、カオス混合、異常輸送、プロセス強化、変動操作、非定常性、非線形動力学、攪拌操作

## 1. 研究開始当初の背景

共軸二重円筒間流れであるテイラー渦流

系や循環流をもつ攪拌槽内の流れにおいて図1に示すとおり、極わずかな振動で循環渦外周部の領域では、バイパス流れが生じて、

軸方向の混合が急速に促進される異常輸送が生じる。この異常輸送現象では、非常に小さい外力を与えることで、運動量、熱、物質の輸送を超高速に行える可能性を秘めており、プロセスの性能を飛躍的に向上させる革新的なプロセス技術となり得る。この異常輸送現象の原理を積極的に応用する超高率で新奇な化学反応装置を開発するためには、流れ場に加えらるる時空間の微小な摂動に着目し、この現象の解明を行う必要があった。

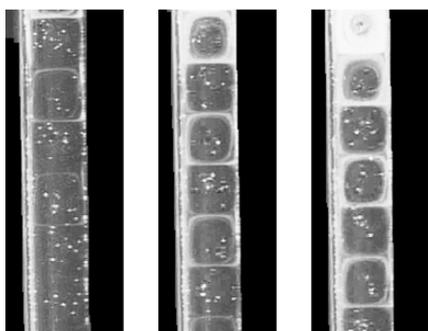


図1 テイラー渦流の異常物質輸送

## 2. 研究の目的

そこで本研究では、テイラー渦流やタービン翼を用いた攪拌槽内の層流場の物質輸送現象を対象とし、流れ場に付加される時空間の摂動の効果に着目し、異常物質輸送のメカニズムを解明するとともに、これを応用した熱・物質輸送速度を高速化した新規な化学プロセスを開発することを目的とした

## 3. 研究の方法

(1) テイラー渦流の渦セル境界に発生する波運動が異常輸送に及ぼす効果を調べるため、蛍光染料をトレーサとし、トレーサをインパルス状に注入することで、その拡散過程をビデオカメラに記録した。測定領域におけるトレーサの濃度変化を画像処理により求め、1次元拡散モデルを用いて、有効拡散係数を求めることで、軸方向拡散を評価した。波運動が起こらない層流テイラー渦流から波運動がカオス的になる弱い乱流テイラー渦流までの流動範囲（テイラー数  $Ta = 300 \sim 2500$ ）で実験をおこなった。

(2) テイラー渦流の渦セルの軸方向波長（一对の渦の長さ）に相当する間隔で、空間的摂動として図2のようなリブを内円筒に設置した。このリブの設置により異常輸送がどのように促進あるいは抑制されるかを、渦の構造安定性の観点から調べた。渦の構造が極端に不安定化する気泡流動において、リブがどのような効果を持つのかを流れの可視化と、ガ

スホールドアップの測定により調べた。

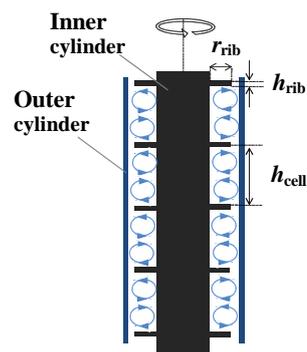


図2 リブ付き内円筒を有するテイラー渦流

(3) 時間的外部摂動場の例として、タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場を取り上げた。低レイノルズ数域の層流混合では、攪拌翼の上下に孤立混合領域（Isolated Mixing Region: IMR）が存在し、このIMRの周囲に異常輸送領域があるが、この混合場に非定常な温度変動が加わることで、IMRの構造がどのように変化し、これとともに異常輸送がどのような影響を受けるのかを調べた。実験では、攪拌槽外周に設置されたジャケット温度をステップ状に変化させることで、攪拌槽内の温度を非定常変化させて、蛍光染料で可視化されたIMRの構造と断面積の時間変化を調べた。

(4) タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場において、流れの対称性を破ることで、異常輸送がどのように促進されるかを調べるために、タービン翼を斜めに設置し、攪拌槽内の混合がどのように変化するかを、混合過程の可視化と攪拌所要動力の測定を行い、調べた。

(5) 抗力や浮力の影響を受ける non-passive な物質が輸送される場合、異常輸送現象がどのようになるかを調べるために、タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場を用い、直径5mmのポリマー微粒子を用い、粒子の分散挙動を調べた。

(6) 流体物性の変化や化学反応が起こる場合を検討するために、テイラー渦流反応器を用いて、デンプンの連続糖化を試みた。デンプンの糖化では、デンプンの糊化と糊化デンプンの加水分解による糖化の2つのステップからなるが、デンプンを糊化するときには粘度が著しく上昇するため、その糊化度をレオロジー測定と吸光度測定により調べた。一方、酵素を用いた加水分解による糖化では、流体粘度は低下し、還元糖が生産されるので、還元糖濃度をジニトロサリチルサン法（DNS法）を用いて評価した。

(7) 上記の研究により、流れ場の組織構造、対称性、定常性を破るような摂動を与えるこ

とで、異常輸送が促進されることがわかったので、このメカニズムを応用した新しい中空糸を用いた膜分離プロセスを提案した。図3に示すような中空糸を収納した膜モジュールにヘリカル状のバップルを設置し、中空糸外側流体の供給流量を周期的に変化させた。バップルによる後流渦の発生と振動流によりこの後流渦に非定常性の付与することで、膜分離性能と膜表面のファウリングが、通常の膜分離法と比べどのように変化するかを、ファウラントとしてフミン酸を用いて調べた。

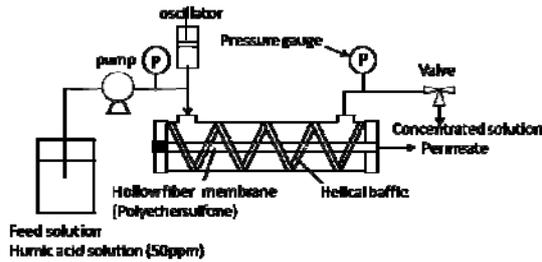


図3 ヘリカルバップル付き膜分離プロセス

#### 4. 研究成果

(1) テイラー渦流の渦セル境界に発生する波運動が異常輸送に及ぼす効果を調べた実験では、渦境界の波運動により渦セル内への物質輸送が促進されることで、図1に示したようなバイパス状の異常輸送領域は存在せず、図4に示すように物質は1次元的に軸方向に輸送されることがわかった。また、内円筒の回転を増加させても、軸方向の拡散は単調には増加せず、波運動と連動し、波運動が大きい流動領域では、有効拡散係数は顕著に増加し、波運動が小さい領域では拡散係数の増加は小さいことがわかった。

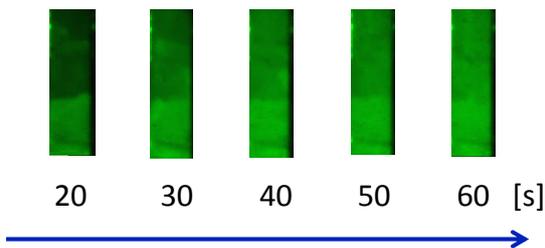


図4 波運動存在下でのトレーサの拡散過程

(2) テイラー渦流の渦セルの軸方向波長（一对の渦の長さ）に相当する間隔で、空間的摂動としてリブを内円筒に設置した場合、この空間的摂動は、渦構造の安定化に寄与する。図5に示したように、気泡を導入して渦を不安定化させることで、リブのない場合は、トーラス状の渦構造を外観から確認することは難しいが、リブを設置した場合は、気泡

流動化でも、安定した渦構造が得られることがわかった。またリブを設置した場合は、

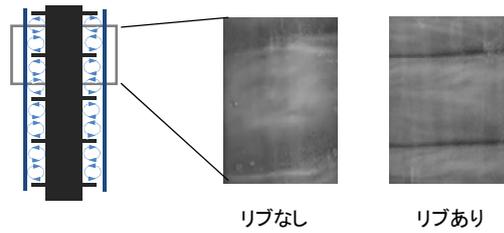


図5 気泡流動化でのテイラー渦流の外観

異常輸送が抑制され、図6に示すように、ガスの滞留時間が大きく増加し、ガスホールドアップも増加することがわかった。このことから、循環流の組織構造を強化することで、異常輸送を抑制することができることがわかった。

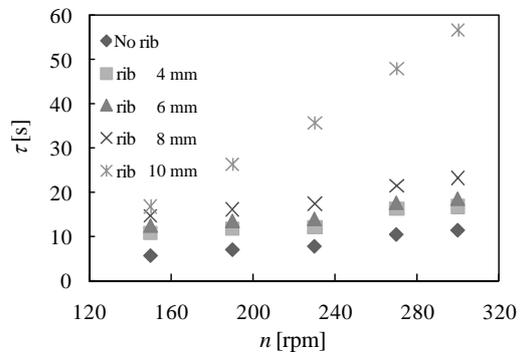


図6 気体の平均滞留時間

(3) タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場に非定常な温度変動が加わった場合、図7に示すとおり、等温での混合と比較して、迅速にドーナツ状の孤立混合領域（IMR）が消滅することがわかった。また、図8に示す

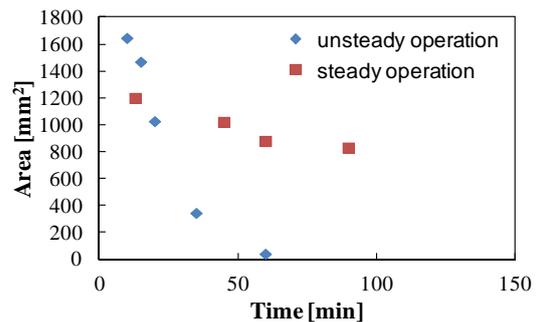


図7 IMRの断面積の時間変化

ようなIMRの構造変化が観察されたが、46 minと60 minで上部のIMRに見られるような構造は、等温場での混合では見られず、時間的溫度変動により混合場が促進されるだけでなく、IMRの構造変化にも影響を及ぼすことがわかった。

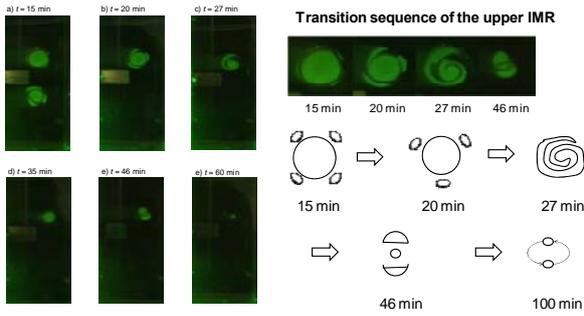


図 8 IMR の断面構造の時間変化

(4) タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場において、流れの対称性を破ることで、異常輸送がどのように促進されるかを調べた結果、図 9 に示すとおり、攪拌軸を  $30^\circ$  傾けると、IMR は容易に消滅させることができることがわかった。このことより、流れ場の対称性を破ることで、IMR の組織構造は容易に消滅することがわかった。

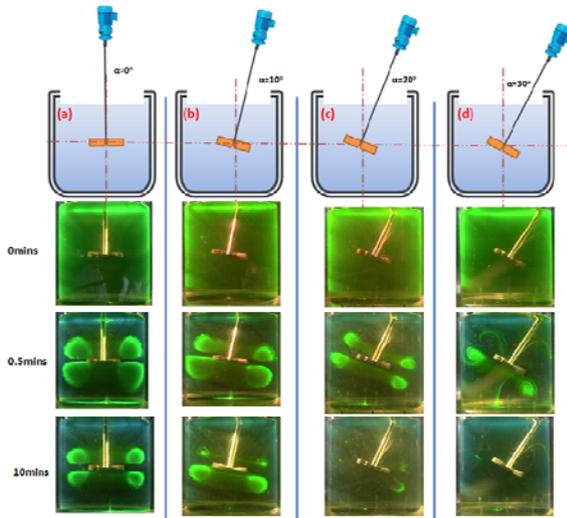


図 9 攪拌軸の傾斜が混合に及ぼす影響

(5) 抗力や浮力の影響を受ける non-passive な物質が輸送される場合、異常輸送現象がどのようになるかを調べた。Non-passive な物質の例として、粒径  $5 \text{ mm}$  程度のアクリルや尿素樹脂などのポリマー粒子を用いて、タービン翼を用いた攪拌槽内の層流混合場における粒子の分散状態を調べた。その結果、図 10 に示すとおり、ある攪拌レイノルズ数の範囲で粒子がドーナツ状に集積する現象を見出した。この粒子の集積領域は、混合場において観察された IMR とは一致せず、粒子が IMR 内にトラップされたのではないことがわかった。

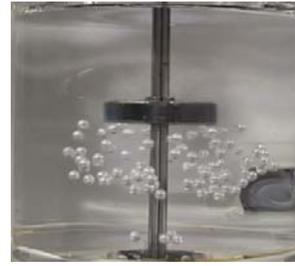


図 10 攪拌槽内の粒子の集積現象

(6) 流体物性の変化や化学反応が起こる場合を検討するために、テイラー渦流反応器を用いて、デンプンの連続糖化を試みた結果、内円筒をわずかに回転させるだけでも、デンプンの糊化は大きく進行することがわかった。また、図 11 に示すとおり、糊化デンプンの糖化においては、テイラー渦セルが発生する内円筒回転条件 ( $Ta > 50$ ) で糖化が促進することがわかった。このことより、テイラー渦流を用いることで、デンプンの糖化プロセスの強化の可能性を見出せた。

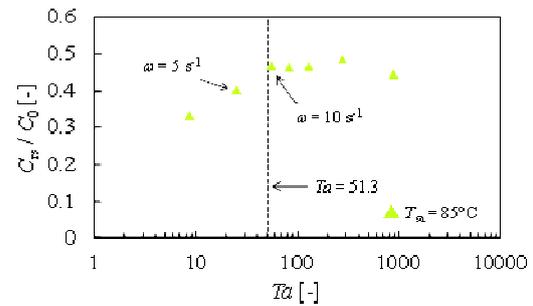


図 11 還元糖濃度のテイラー数依存性

(7) 中空糸膜を用いた膜分離プロセスで、ヘリカルバブルと振動流を組み合わせ、バブルから発生する後流渦を発生、消滅させることで非定常性をもたせ、膜分離性能の向上を図った。図 12 に示すとおり、透水率およ

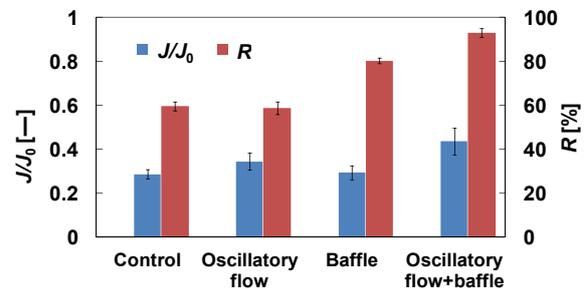


図 12 膜性能の比較:  $J/J_0$  は初期等水量に対する相対透水率,  $R$  は阻止率を示す

び阻止率は、バッフルと振動流が内通常の場合に比べて大きく向上した。さらに、図 13 に示すように膜に付着するファウリングの量

も劇的に減少することがわかった。したがって、異常輸送メカニズムを応用して、新規な膜分離プロセスの開発が可能であることがわかった。

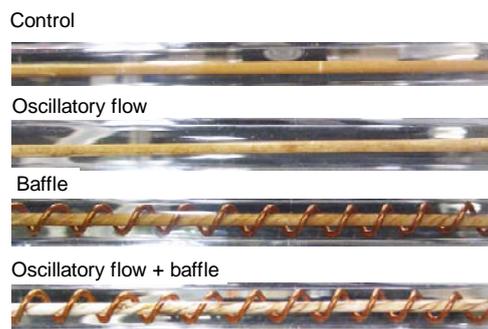


図 13 膜外表面の性状比較

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 14 件)

- (1) Masuda, H., Zheng, W., Horie, T., Ohmura, N., “Enhancement of Gas Hold-Up with a Taylor Vortex Flow System Equipped with a Rib,” *J. Chem. Eng. Japan*, Vol. 46, 27-32 (2013) 査読有  
DOI: 10.1252/jcej.12we067
- (2) Sugie, A., Song, H., Horie, T., Ohmura, N., Kanie, K., Muramatsu, A., Mori, A., “Synthesis of Thiol-Capped Gold Nanoparticle with a Flow System Using Organosilane as a Reducing Agent,” *Tetrahedron Lett.*, Vol. 53, 4457-4459 (2012) 査読有  
DOI: 10.1016/j.tetlet.2012.06.056
- (3) Shahirudin, N. H., Alatengtuya, Kumagai, N., Horie, T., Ohmura, N., “Effect of Temperature Change on Geometric Structure of Isolated Mixing Regions in Stirred Vessel,” *Int. J. Chem. Eng.*, Vol. 2012, Article ID 287051, 6 pages (2012) 査読有  
DOI: 10.1155/2012/287051
- (4) Ohmura, N., Horie, T., Kumagai, N., Yamazaki, T., “Process Intensification of Emulsion Polymerization Using a Compartment Reactor,” *Chem. Eng. Technol.*, Vol. 35, 1273-1280 (2012) 査読有  
DOI: 10.1002/ceat.201200034
- (5) Horie, T., Sakano, N., Aizawa, E., Kumagai, N., Ohmura, N., “Operation for Fine Particle Dispersion in Shear-Thinning Fluid in a Stirred Vessel,” *J. Chem. Eng. Japan*, Vol. 45, 258-264 (2012) 査読有  
DOI: 10.1252/jcej.11we048
- (6) Masuda, H., Horie, T., Hubacz, R., Ohmura, N., “Process Intensification of Continuous Starch Hydrolysis with a Taylor-Couette Flow Reactor,” *Proceedings of 14<sup>th</sup> European Conference on Mixing, Warsaw, Poland, 10-13 September*, Vol. 1, 293-298 (2012) 査読有
- (7) Ohmura, N., Tanaka, H., Kumagai, N., Horie, T., “Effect of temperature Change on Transient Organized Structure of Isolated Mixing Regions in Stirred Vessel,” *Proceedings of 14<sup>th</sup> European Conference on Mixing, Warsaw, Poland, 10-13 September*, Vol. 1, 341-346 (2012) 査読有
- (8) 大村直人, 熊谷宜久, 江崎竜行, 堀江孝史, “酢酸ビニルの連続乳重合における機能モジュール表現法によるプロセス強化,” *化学工学論文集*, Vol. 37, 134-139 (2011) 査読有  
DOI: 10.1252/kakoronbunshu.37.134
- (9) Horie, T., Nakatsune, K., Matsumoto, T., Tateishi, K., Ohmura, N., “Liquid-Liquid Two Phase Flow of Millichannel with a Dynamic Mixer,” *Chem. Eng. Proc.*, Vol. 50, 1-8 (2011) 査読有  
DOI: 10.1016/j.ccep.2010.10.007
- (10) Jia, N., Horie, T., Ohmura, N., “Process Intensification of Water Purification Using Taylor Vortex Photocatalytic Reactor,” *Symposium Series: Proceedings of the 3<sup>rd</sup> European Process Intensification Conference*, Vol. 157 149-154 (2011) 査読無
- (11) Masuda, H., Zheng, W., Ohmura, N., “Enhancement of Gas holdup with a Taylor Vortex Flow System Equipped with Ribs,” *Proceedings of 1<sup>st</sup> International Symposium on Multiscale Multiphase process Engineering*, P-46-1-P46-5 (2011) 査読無
- (12) Ohtsuka, Y., Tateishi, K., Horie, T., Ohmura, N., “Synthesis of Silica Particles with a Segmented Flow Tubular Reactor,” *Proceedings of 1<sup>st</sup> International Symposium on Multiscale Multiphase process Engineering*, P-50-1-P50-4 (2011) 査読無
- (13) Jia, N., Horie, T., Ohmura, N., “Evaluation of pH and Photocatalyst Concentration Effects on Reaction Rate for Water Purification Using Taylor-Couette Flow,” *Proceedings of 1<sup>st</sup> International Symposium on Multiscale Multiphase process Engineering*, P-56-1-P56-5 (2011) 査読無
- (14) Masuda, H., Matsuka, S., Hubacz, R., Horie, T., Ohmura, N., “Continuous Starch Gelatinization and Hydrolysis with a Taylor-Couette Flow Reactor,” *Proceedings of the 3<sup>rd</sup> International Congress on Green Process Engineering*, ID 209: 1-8 (2011) 査読無

〔学会発表〕(計 14 件)

- (1) 鈴木隆之, 堀江孝史, 赤尾信介, 坂野紗恵子, 賈寧, 谷屋啓太, 西山寛, 大村直人, “反応工学的モデルを用いた超音波微粒子分散の解析,” 化学工学会第 78 年会, 2013 年 3 月 19 日, 大阪
- (2) 増田勇人, 堀江孝史, Robert Hubacz, 大村直人, “テイラー・クエット流反応装置を用いたデンブ連続糖化プロセス強化,” 化学工学会第 78 年会, 2013 年 3 月 19 日, 大阪
- (3) 佐藤通展, 長友大地, 堀江孝史, 大村直人, “細管内の Taylor flow を用いたシリカ粒子の連続合成,” 化学工学会第 78 年会, 2013 年 3 月 19 日, 大阪
- (4) Wang Steven, Metcalfe Guy, Wu Jie, Stewart Robert, Ohmura Naoto, “Transport of Passive and Non-Passive Particles in Chaotic Flow,” 化学工学会第 78 年会, 2013 年 3 月 18 日, 大阪
- (5) Kumagai Norihisa, Esaki Tatsuyuki, Nagatomo Daichi, Horie Takafumi, Ohmura Naoto, “Intensification of Emulsion Polymerization Process by Conversion to Continuous Processing in a Compartment Reactor,” International Workshop on Process Intensification 2012, 2012 年 11 月 8 日, ソウル, 韓国
- (6) Horie Takafumi, Akao Shunsuke, Suzuki Takayuki, Sakano Saeko, Jia Ning, Taniya Keita, Nishiyama Satoru, Ohmura Naoto, “Kinetic Model Analysis of Ultrasonic Dispersion of a Layered Compound,” International Workshop on Process Intensification 2012, 2012 年 11 月 8 日, ソウル, 韓国
- (7) 田中久登, 熊谷宜久, 堀江孝史, 大村直人, “温度変動場における攪拌槽内の孤立混合領域の動的挙動,” 化学工学会第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 20 日, 仙台
- (8) 賈寧, 熊谷宜久, 堀江孝史, 大村直人, “光触媒分解反応における触媒濃度の反応速度に与える影響,” 化学工学会第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 19 日, 仙台
- (9) 今井昭寿, 熊谷宜久, 堀江孝史, 大村直人, “ダイナミカルネットワーク方法論の攪拌槽内の粒子運動挙動解析への適用,” 化学工学会第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 19 日, 仙台
- (10) 熊谷宜久, 江崎竜行, 長友大地, 山本奈美, 堀江孝史, 大村直人, “コンパートメント反応器を用いた乳化重合プロセス強化,” 化学工学会第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 19 日, 仙台
- (11) 堀江孝史, 増田勇人, Hubacz Robert, 大

村直人, “テイラー・クエット流反応装置を用いた連続操作による糖化プロセス強化,” 化学工学会第 77 年会, 2012 年 3 月 15 日, 東京

- (12) 大村直人, Shahirudin Nor Haniza, Alatengtuya, 田中久登, 熊谷宜久, 堀江孝史, “攪拌槽内の孤立混合領域に及ぼす温度変化の効果,” 化学工学会第 43 回秋季大会, 2011 年 9 月 14 日, 名古屋
- (13) 江崎竜行, 山崎崇芸, 山本奈美, 熊谷宜久, 堀江孝史, 大村直人, “空間変動操作による酢酸ビニルの乳化重合プロセス強化,” 化学工学会第 43 回秋季大会, 2011 年 9 月 14 日, 名古屋
- (14) 大塚惟, 立石一矢, 佐藤通展, 堀江孝史, 大村直人, “Segmented flow tubular reactor を用いたシリカ粒子生成プロセス強化,” 化学工学会第 43 回秋季大会, 2011 年 9 月 14 日, 名古屋

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称: 膜分離処理方法および膜分離処理システム

発明者: 堀江孝史, 大村直人, 塩田彩織, 平田雄志

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2013-28096

出願年月日: 平成 25 年 2 月 15 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大村 直人 (OHMURA NAOTO)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 50223954

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし

(4) 海外協力研究者

Mr. Wang Steven (CSIRO, Australia)

Dr. Wu Jie (CSIRO, Australia)

Dr. Hubacz Robert (Warsaw University of Technology, Poland)