

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 25 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24860006

研究課題名(和文) グリーンケミストリーに向けた超臨界流体の数値解法

研究課題名(英文) Numerical Method of Supercritical Fluid Flows for Green Chemistry

研究代表者

古澤 卓 (FURUSAWA, TAKASHI)

東北大学・情報科学研究科・助教

研究者番号：80637710

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円、(間接経費) 630,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は数値流体力学と化学工学の分野融合領域によって、これまでの数値計算手法ではシミュレーションが難しかった化学反応器内の超臨界流体の流動および粒子生成の解明を行った。まず、三次元流動解析における大規模計算に特化した部分細分化参照テーブルを用いた熱物性値評価方法を提案を行い、実用的な三次元計算手法を構築した。また、粒子生成モデルを用いたT字管路および対向流管路における二次元流動解析を行い、粒子の生成位置を特定した。

研究成果の概要(英文)：In this study as a cross-sectional study for fluid dynamics and chemical engineering, we performed the numerical simulations of supercritical fluid flows in a chemical reactor and evaluated the particle formation. The method for the calculation of thermophysical properties was proposed and the supercritical fluid flows are investigated by 2-D and 3-D computation. The area of particle formation is also investigated in the T-shaped channel and counter flow channel.

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：超臨界流体 数値解法 連続水熱合成 前処理法

1. 研究開始当初の背景

これまでの数値流体力学(CFD)の研究の多くは、主に空気を対象とした圧縮性流れ、もしくは水を対象とした非圧縮性流れの数値解法の提案が中心に行われてきた。前者は理想気体を仮定し、後者は密度変化なしを仮定することで、今日の研究・開発等の分野で広く使用されている。しかし、高温高压条件下の超臨界流体(図1)では臨界点近傍で遅い流れであっても密度や定圧比熱が急激かつ連続的に変化(図2)することが知られており、超臨界流体の流動を正確に再現できる数値計算手法はいまだに確立されているとは言えない。超臨界二酸化炭素や超臨界水などは微粒子生成や洗浄、熱交換器などで有機溶媒やフロン等の代替として用いられるため環境負荷の小さなグリーンケミストリーとして注目を浴びており、今後の利用の拡大が期待されているものの、超臨界流体の流動はほとんど明らかになっていなかった。

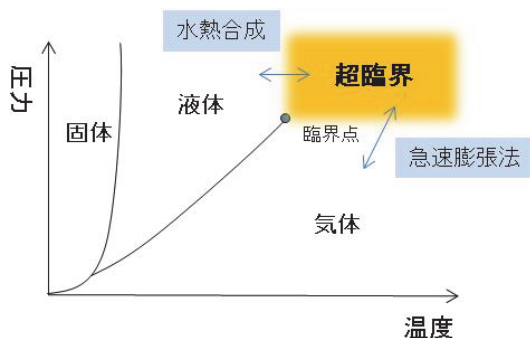


図1 一般的な状態図

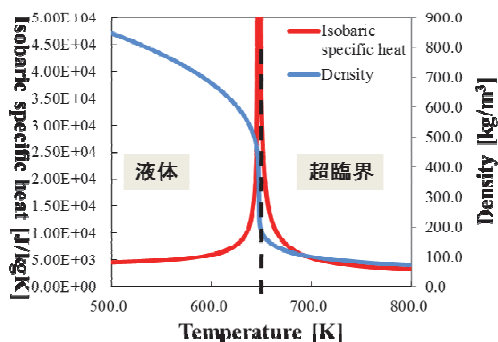


図2 臨界点近傍の熱物性値変化

化学工学の微粒子生成法において超臨界流体は有機溶媒等を用いない環境に優しい反応場として大きな期待が寄せられており、高品質の微粒子生成法として連続水熱合成法や急速膨張法、SAS法などの様々な技術が提案されている。近年では超臨界水を用いた連続水熱合成による金属ナノ粒子による新材料の開発も進んでおり、超臨界流体を用いた粒子生成手法では超臨界流体の流動に

大きな影響を受けるため、超臨界流体と粒子生成との関係の解明が極めて重要である。しかし、超臨界流体は高温高压条件となるために流動の様子や粒子生成との関係はほとんど解明されておらず、超臨界流体流動の正確な予測が可能な数値解法および粒子生成モデルの構築が望まれている。

2. 研究の目的

本研究では、グリーンケミストリー実現に向けて化学工学と数値流体力学の分野融合によって化学工学領域において実際に使用されている反応器内部の流動および粒子生成の解明を目指し、超臨界流体の大規模三次元解析に向けた数値解法の開発および粒子生成モデルの確立を行う。また、この数値解法を用いることで超臨界流体と液体の流動の特徴および超臨界流体の流動と粒子生成の関係を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では前処理とPROPATHに基づく超臨界流体の数値解法を用いて、超臨界流体の圧縮性および熱物性値変化を正確に考慮することで既存の数値解法よりも正確な流動の再現が可能である。

まず、本研究で対象とする超臨界流体の流動解析において大きな問題となるのが熱物性値評価の計算時間である。臨界点近傍では密度や定圧比熱、定積比熱、熱伝導率、粘性係数、音速などが大きく変化し、その正確な評価が非常に超臨界流体の流動解析において重要である。これまでに提案してきた数値解法では熱物性値変化をPROPATHに定義されているベリアル型の状態方程式を用いて算出しており、正確な熱物性値の評価ができる一方で数十項からなる多項式を計算する必要があるために、莫大な計算時間を必要とした。これまでに二次元解析であっても熱物性値の算出は全体の計算時間の8割から9割を占めており、大規模三次元計算を行う上で非常に大きな問題となっていた。そこで大規模計算に特化した部分細分化参照テーブルを用いた熱物性値評価方法を提案し、計算時間の大幅な短縮を行う。

超臨界水を用いた連続水熱合成において、いくつかのグループによって様々な反応器形状が提案されているものの、それらは経験的に形状や流量等の条件を設定しており、効率的な粒子生成のために、いくつかの反応器形状で、粒子生成モデルを用いた超臨界流体の流動解析を行い、それぞれの反応器における流動と粒子生成の関係を明らかにし、新たな反応器設計への知見を得る。また、超臨界流体は化学工学、熱工学、エネルギー工学、環境科学など様々な分野での利用がされており、本数値解法の特徴を生かして、急速膨張法などの衝撃波を伴う粒子生成や翼列流

れなどへの適用も行う。

4. 研究成果

PROPATH には密度や定圧比熱、定積比熱、熱伝導率、粘性係数、音速などの熱物性値がビリアル型の状態方程式によって定義されている。これら対して、温度圧力領域において細分化の領域を変更することで効率的に数値計算が可能な大規模計算に特化した部分細分化参照テーブルを用いた熱物性値評価方法を提案、実装した。この方法を用いることで従来よりも熱物性値計算での計算時間の9割以上を削減できることを実証した。また、この方法では、ベクトルマシンおよびスカラーマシンの双方に対応でき、両者において計算時間の削減が可能であることを確認した。

粒子生成モデルおよび化学反応モデルの構築を行なった。連続水熱合成では粒子生成は非平衡核生成で起こるものの、それらの形成位置や粒子の成長および流動との関係は明らかにされてこなかった。本研究ではモーメント法に基づく非平衡核生成の計算手法に基づき、粒子生成モデルおよび化学反応モデルを構築した。提案した粒子生成モデルおよび超臨界流体の流動解析手法を用いて、流体の温度圧力から管路内の局所的な反応率および溶解度を評価し、化学反応器内における化学反応の位置および粒子生成の位置を特定した。特にT字型の管路や対向流型の管路においては流量、温度条件、管径等が粒子生成位置に大きく影響を与えるため、それらを考慮した管路設計が必要不可欠であることを示した。この結果は上記の超臨界流体の流動解析手法および粒子生成モデルによる大きな成果であり、水熱合成によって得られる微粒子を用いた機能相反材料などへのさらなる改良などが期待される。

また、本研究の手法は水熱合成のみならず、様々な条件の超臨界流体流動および粒子生成に応用可能である。特に本数値解法は圧縮性解法に基づいているために低速流れのみならず衝撃波を伴う高速流れなどへの拡張も容易である。超臨界二酸化炭素を用いた急速膨張法の有機物の微粒子生成手法における流動と粒子生成における衝撃波と微粒子生成を伴う流動に本数値解法を適用し、衝撃波の位置および温度圧力等の条件による粒子生成の違いを明らかにした。また、高速流動として翼列流れへの適用を行い、超臨界流体の熱物性値変化と衝撃波近傍の流れについての評価を行った。

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 0 件)

[学会発表] (計 10 件)

1. 牧野幸太郎, 古澤卓, 山本悟, “3DSFS+BCを用いた連続水熱合成反応器内流れの数値解析”, 第27回数値流体力学シンポジウム講演論文集, 名古屋, 2013年12月18日.
2. 相原瑛学, 古澤卓, 山本悟, “粒子生成を伴う超音速二酸化炭素流れの数値シミュレーション”, 第27回数値流体力学シンポジウム講演論文集, 名古屋, 2013年12月18日.
3. 古澤卓, 山本悟, “化学反応と粒子生成を伴う超臨界水熱合成の流動シミュレーション”, 第27回数値流体力学シンポジウム講演論文集, 名古屋, 2013年12月18日.
4. Shibo Qi, Takashi Furusawa, Satoru Yamamoto, “前処理法とIB法に基づく超臨界流体の流動解析”, 第27回数値流体力学シンポジウム講演論文集, 名古屋, 2013年12月18日.
5. Kotaro Makino, Takashi Furusawa and Satoru Yamamoto, “Numerical Simulation of Internal Flows using 3DSFS+BC”, Proc. Tenth Int. Conf. on Flow Dynamics, Sendai, JAPAN, 2013年11月27日.
6. Shibo Qi, Kotaro Makino, Takashi Furusawa and Satoru Yamamoto, “Numerical Simulation of Supercritical-fluid Flows around Complex Geometry based on SFS+BC”, Proc. Tenth Int. Conf. on Flow Dynamics, Sendai, JAPAN, 2013年11月27日.
7. Shibo Qi, Takashi Furusawa, Satoru Yamamoto and Kazuhiro Nakahashi, “Comparison of Different Wall Boundary Treatments for Preconditioning Method coupled with Building-Cube Method”, Proc. 25th International Conference on Parallel Computational Fluid Dynamics (ParCFD), 長沙, 中国, 2013年5月22日.
8. Takashi Furusawa, Satoru Yamamoto, Tadafumi Adschiri and Edward Lester, “Numerical Simulation of Supercritical Water Flows in Continuous Hydrothermal Synthesis Reactors”, Proc. The 3rd International Solvothermal and Hydrothermal Association Conference, p. 60, オースティン, アメリカ, 2013年1月15日,

招待講演.

9. 古澤卓, 山本悟, “連続水熱合成におけるノズル型反応器内の超臨界水流動シミュレーション”, 第26回数値流体力学シンポジウム講演論文集, 東京, 2012年12月19日.
10. 古澤卓, 芦澤秀典, 王寧, 笹尾泰洋, 山本悟, “超臨界流体のタービン翼列遷音速流れの数値解析”, 日本機械学会2012年度年次大会講演論文集, 金沢, 2012年9月10日.

〔図書〕 (計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.caero.mech.tohoku.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古澤 卓 (FURUSAWA TAKASHI)

東北大学・大学院情報科学研究科・助教

研究者番号：80637710