

平成 30 年 5 月 25 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03920

研究課題名(和文) 高気相体積率スラリー気泡塔のスケールアップ支援用流動予測技術の開発

研究課題名(英文) Development of a Technology for Predicting High-Gas-Volume Flux Slurry Bubble Column

研究代表者

富山 明男 (Tomiyama, Akio)

神戸大学・工学研究科・教授

研究者番号：30211402

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：高気相体積率スラリー気泡塔のスケールアップ支援用流動予測技術の開発を目的とし、スラリー気泡塔内流動試験を実施した。塔径、水位および気相体積流束を変化させて気相体積率の支配因子を明らかにし、幅広い実験範囲を網羅できるスラリー気泡塔内体積率評価式を構築した。また、高気相体積流束スラリー気泡流内を流動する大気泡の抗力係数には既存モデルは適用できないことを明らかにした。そこで、擬二次元気泡実験により、スラリー内気泡の速度を測定するとともに抗力係数相関式を作成した。実験で得たスラリー気泡塔内気泡流に関する知見を既開発の固気液三相気泡流計算技術に組み込み、高気相体積率スラリー気泡塔流動予測技術を開発した。

研究成果の概要(英文)：Experiments on bubbly flows in slurry bubble columns were carried out to develop a numerical method of flows in high gas-volume-fraction slurry bubble columns for supporting scale up of bubble columns from a pilot to a commercial scale. The gas volume fraction was measured under various flow conditions and a volume fraction correlation applicable to the conditions was developed. The experiments also revealed that the available drag correlations are not applicable to huge bubbles flowing in the slurry bubble columns. Experiments on pseudo-two-dimensional bubbles in slurry were therefore conducted to investigate the effects of the presence of slurry on the drag coefficient and a drag model was developed based on the experimental results. The knowledge obtained from the experiments were taken into account in our numerical method for bubbly flows in slurry bubble columns.

研究分野：混相流工学

キーワード：混相流 気泡塔 スラリー

1. 研究開始当初の背景

単位エネルギー当りの CO₂ 排出量が他の化石燃料より小さい天然ガスは環境に優しいエネルギー源であるが、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である。これは、LNG 化やパイプライン敷設などのガス供給系設備コスト肥大化により対投資効果が得られないためである。この状況の打開技術として、天然ガス液化技術 (GTL: Gas To Liquid) や DME (ジメチルエーテル) 直接合成の開発が世界的に推進されている。日本でも、DME 直接合成実証プラントの開発研究、GTL 実証プラントの開発研究が実施されている。両技術の核心は FT (Fisher-Tropsch) 反応塔であるが、反応塔内流れは高濃度スラリー系固気液三相気泡流という極めて複雑な流れである。特に、所望の合成反応の実現には塔内気相体積率を 50% 程度の極めて高い値とする必要があることが確認されている。現時点では内部流動状態の把握が十分になされないまま、かつ、実証プラントから商用プラントへのスケールアップ指針がない状態で手探りの開発が進められている。従って、スケールアップツールに真に役立つ高気相体積率スラリー気泡塔内流動予測技術の開発が重要な技術課題となっている。

当研究組織では、これまでに親水性微粒子が気泡合体・分裂に及ぼす影響の測定とモデル化、5~50% という広範囲の気相体積率をカバーするスラリー気泡塔内流動実験データベースの集積、気相体積率が 20%、固体粒子体積濃度 40% までのスラリー流動を界面追跡法と多流体モデルのハイブリッド手法で予測する技術の開発を実施した。その結果、気泡塔内の気相体積率・液相速度・乱流強度分布の良好な予測を実現した。また、粒子濃度、粒子径が相分布に及ぼす影響の予測にも成功した。しかしながら、高気相体積率で形成される塔径程度の大きさを有する大気泡に対する抗力係数等の気泡力学モデルが欠如しているため高気相体積率流れの予測は未だ困難な状況にある。また、気相流量・粒子濃度・粒子径が気相体積率に及ぼす効果に関するデータベースは取得したが、塔径・塔高・散気方法・流体物性・物質輸送率などの極めて重要な気泡塔設計変数をパラメータとした実験データは未取得のため、開発した数値計算技術がスケールアップ技術として真に役立つか否かの検証は不可能な状態にある。

2. 研究の目的

本研究では、スケールアップに活用できる数値予測技術の開発を目的として、塔径・塔高・散気方法・粒子濃度・気相流量・流体物性をパラメータとする気泡塔内流動実験データの取得、高気相体積率流れの予測に不可欠な大気泡抗力係数関連式の開発、高気相体積率・高粒子濃度気泡流計算技術の開

発を実施する。

3. 研究の方法

スラリー気泡塔総合試験と塔平均気相体積率関連式の開発

種々の塔径・塔高・散気板の気泡塔を複数制作し、塔内の平均気相体積率、気相体積率分布、液相速度分布、大気泡運動移動速度等の数値計算検証用データを取得する。塔径・初期液位・散気孔径・散気孔数・気相流量・粒子濃度・粒子径・流体物性を実験パラメータとし、計算手法のスケールアップツールとしての有効性を多角的に検討するためのデータベースを構築する。また、これら諸因子を考慮したスケールアップに有効活用できる平均体積率関連式を構築する。平均気相体積率には二相水位画像計測手法、気相体積率分布・気泡通過頻度の測定には自作ボイドプロープを用いた。

高濃度スラリー中大気泡抗力係数モデル開発

高濃度スラリーは濁度が高く可視深度は 1cm 以下となる。そこで、大気泡運動の外部観察のため、奥行き狭い並行平板間スラリー中大気泡運動観測装置を製作する。種々のパラメータについて、大気泡上昇速度・気泡形状等を測定し、大気泡抗力係数実験値を求める。

気液間物質輸送モデル及びスラリー系固気液三相多分散気泡流三次元計算手法の開発

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スラリー系固気液三相多分散気泡流三次元計算手法に気泡界面物質輸送モデルを組み込み、物理吸収過程の計算も可能な手法とする。高気相体積率・高粒子体積率の実験を対象とした計算を実施し、計算結果と実験結果との比較から、抗力モデル、気泡合体・分裂モデル等の改良指針を得る。

4. 研究成果

スラリー気泡塔総合試験及び塔平均気相体積率関連式の開発

高気相体積率スラリー気泡塔のスケールアップ支援用流動予測技術の開発を目的とし、既開発のモデル・計算技術・計測技術、及び新規に製作した流動実験装置を活用し、スラリー気泡塔内流動総合試験を実施した。具体的には、塔径、水位および気相体積率を幅広い範囲で変化させ、スラリー気泡塔内気相体積率の支配因子を明らかにするとともに、既存の体積率評価式の適用性を調べた。Fig. 1 はスラリー気泡塔内気泡流を高速度カメラにより撮影した画像の例である。図中の D_0 は気泡塔径、 z は気泡塔底部を原点とする鉛直方向位置座標、 J_0 は気相体積流束であり、これらの画像はスラリー濃度 C_0 が 0.20、初期スラリー液位が 1.0 m のものである。本実験の結果、既存の評価式では適用範囲が限られ

ることがわかったため、幅広い実験範囲を網羅できるスラリー気泡塔内体積率評価式を構築した。

$$\alpha_G = \frac{C_1 J_G}{\sqrt{gH_0} + C_2 J_G}$$

ここで、 g は重力加速度である。 C_1 及び C_2 は粒子体積濃度に依存する係数であり、高気相体積流束の条件では各々以下の諸式で与えられる。

$$C_1 = \frac{11.4}{1.47 + C_S^{0.73}}$$

$$C_2 = 12.2$$

さらに、液相粘度が気相体積率に及ぼす影響に関する実験データも取得し、その影響を評価式に取り込んだ。

以上のほか、液体中に不純物が含まれる場合の数値予測技術の開発や、気泡塔に供給する気相の入口相分布を制御するためのスパーージャ技術の開発を行った (Fig. 2 は低気相体積流束でも均一な散気を実現した例)。

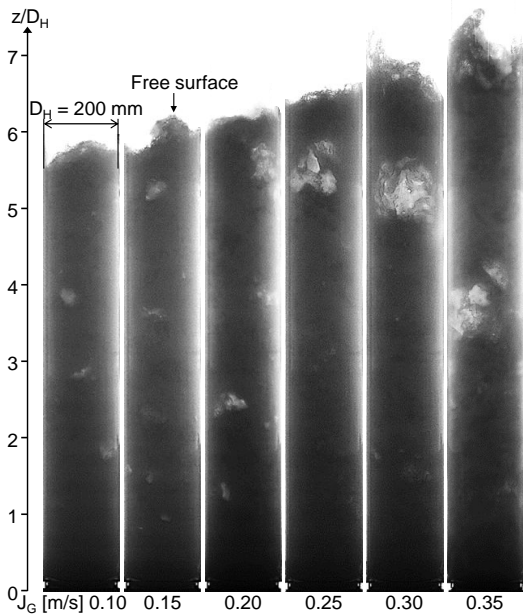


Fig. 1 スラリー中気泡流

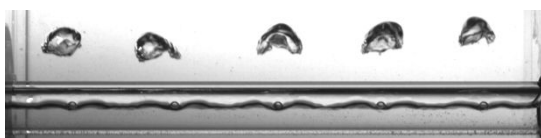


Fig. 2 低気相体積流束における均一散気

高濃度スラリー中大気泡抗力係数モデル開発

高気相体積流束スラリー気泡流内を流動する大気泡 (Fig. 1 の $J_G \geq 0.25$ m/s の画像において塔内部に見える塔幅近くに広がった輝度の高い領域が大気泡である) に着目し、高速度カメラの撮影画像から大気泡速度を測定するとともに、既存の気泡の抗力係数相関式の適用性を検討した。その結果、スラリー内気泡の抗力係数は既存のモデルでは精度よく評価できないことを明らかにした。そこで、擬二次元気泡実験装置を作成し、スラリー内を上昇する気泡の上昇速度を精密に測定した。Fig. 3 は純水中の擬似二次元気泡の高速度カメラ画像で、図中の d_b は気泡円面積等価直径である。気泡の運動は d_b が小さい範囲では揺動型であるが、ある d_b において直線型に急に変化することを明らかにした。また、Fig. 4 に示すように種々のスラリー濃度における擬似二次元気泡実験の結果、スラリー内気泡の抗力係数に及ぼす粒子体積濃度の影響を明らかにするとともに、抗力係数相関式を作成した。

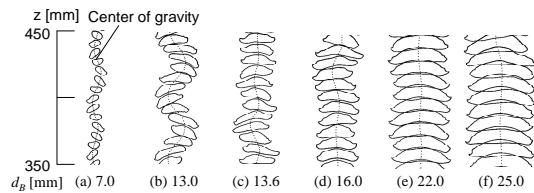


Fig. 3 純水中擬似二次元気泡

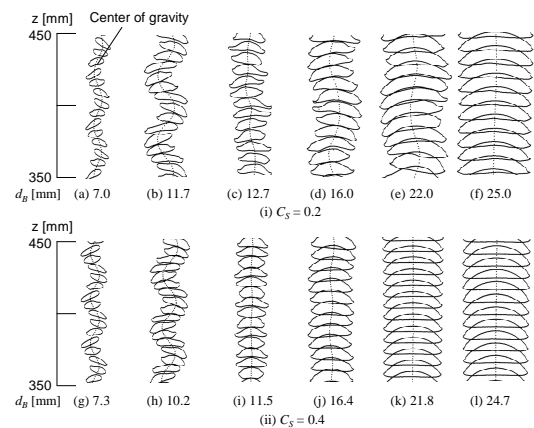


Fig. 4 スラリー中擬似二次元気泡

気液間物質輸送モデル開発とスラリー系固気液三相多分散気泡流三次元計算手法の開発

気泡からの物質移動に関する実験データ整備 (Fig. 5、 D : 気泡を投入した円管の直径) 及び評価式の開発と評価式を用いた気泡溶解過程数値予測 (Fig. 6、 d_{in} : 初期気泡径、 X_{in} : 初期 CO_2 モル分率、横軸: 時間) を行うと

ともに、その評価式内で必要となる気泡形状の相関式についても清浄系・汚染系気泡実験を広範囲の条件で行い高精度な相関式を開発した。これらの実験により得られた高気相体積率スラリー気泡塔内気泡に関する知見を既開発の固気液三相気泡流3次元計算技術に組み込むとともに、計算手法の改良も行った。

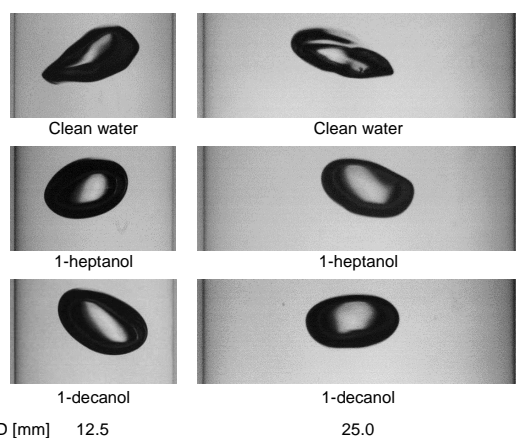


Fig. 5 アルコール水溶液中二酸化炭素気泡の溶解過程

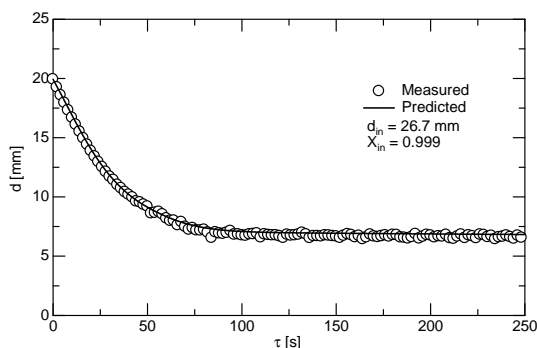


Fig. 6 1-ヘプタノール水溶液中二酸化炭素気泡の長時間溶解過程の数値予測

Fig. 7 に気泡流の3次元計算による $J_0 = 0.05$ m/s における塔内平均気泡体積率の数値予測結果を実験結果と比較している。本数値予測技術は初期液位に対する気相体積率依存性を良好に評価できている。さらに高い気相体積率流束においては、気泡合体により生じる大きな気泡を多流体モデルから界面追跡法で扱うように切り替えるモデルを導入した。現状のモデルでは生じた体積率が分散しており単一の大気泡として精度よく界面追跡可能な程度まで気泡は成長しなかったが、気相体積率を集約する数値的处理を追加することでより高精度な予測が実現できる見通しを得た。

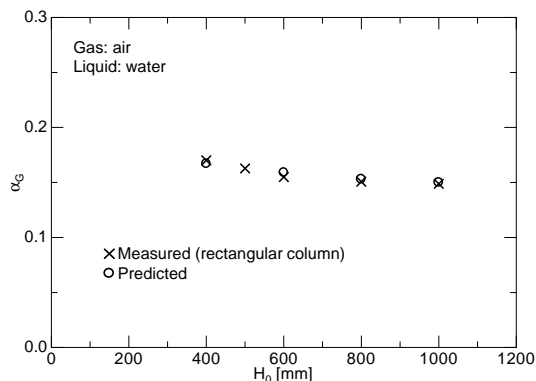


Fig. 7 塔内平均気相体積率 α_{g0} の数値予測

以上の研究成果は項目5に示すように当該分野における主要学術雑誌において国内外に広く発信している。

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16件)

Shohei Aoyama, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Shapes of Single Bubbles in Infinite Stagnant Liquids Contaminated with Surfactant, Experimental Thermal and Fluid Science, 査読有, Vol.96, 2018, pp.460-469, 10.1016/j.expthermflusci.2018.03.015

Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Surfactant on Lift Coefficients of Bubbles in Linear Shear Flows, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol.99, 2018, pp.86-93
佐藤稜, 林公祐, 富山明男, 散気管内外の流れに散気孔周方向角度および液相粘度が及ぼす影響, 化学工学論文集, Vol.44, No.1, 査読有, 2018, pp.59-66, 10.1252/kakoronbunshu.44.59

Yohei Hori, Kosuke Hayashi, Shiego Hosokawa, Akio Tomiyama, Mass Transfer from Single Carbon-Dioxide Bubbles in Electrolyte Aqueous Solutions in Vertical Pipes, International Journal of Heat and Mass Transfer, 査読有, Vol.115, 2017, pp. 663-671, 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2017.07.087

Shohei Aoyama, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Dirk Lucas, Akio Tomiyama, Lift Force Acting on Single Bubbles in Linear Shear Flows, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol.96, 2017, pp.113-122, 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2017.07.03

Ryo Sato, Tatsuya Miyayoshi, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Azimuthal Angle of Aeration Hole on Flows Inside and Outside an Air Diffuser Pipe, Experimental Thermal and Fluid Science, 査読有, Vol.89, 2017, pp.90-97, 10.1016/j.expthermflusci.2017.07.023

Shohei Sasaki, Kengo Uchida, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Column Diameter and Liquid Height on Gas Holdup in Air-Water Bubble Columns, Experimental Thermal and Fluid Science, 査読有, Vol.82, 2017, 359-366, 10.1016/j.expthermflusci.2016.11.032

Shohei Sasaki, Kengo Uchida, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Hydrophilic Particles and Slurry Height on Gas Holdup in a Slurry Bubble Column, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有, Vol.49, 2016, 824-830, 10.1252/jcej.15we280

Jiro Aoki, Yohei Hori, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Alcohol Aqueous Solutions in Vertical Pipes, International Journal of Heat and Mass Transfer, 査読有, Vol.108B, 2017, 1991-2001, 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2017.01.058

Shohei Sasaki, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Liquid Height on Gas Holdup in Air-Water Bubble Column, Experimental Thermal and Fluid Science, 査読有, Vol.72, 2016, 67-74, 10.1016/j.expthermflusci.2015.10.027

Shohei Aoyama, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Shapes of Ellipsoidal Bubbles in Infinite Stagnant Liquids, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol.79, pp.23-30, 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2015.10.003

Shogo Hosoda, Gretar Tryggvason, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Dissolution of Single Carbon Dioxide Bubbles in Glycerol-Water Solution, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有, Vol.48, No.6, pp.418-426, 10.1252/jcej.14we241

[学会発表](計17件)

Masaaki Hashida, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Terminal Velocities of Single Bubbles Rising through Stagnant

Liquids and Slurry in a Hele-Shaw Cell, 9th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, 2017

Yohei Hori, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Effects of Electrolyte on Mass Transfer from Single Carbon-Dioxide Bubbles in Vertical Pipes, 3rd International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering, 2017

内田賢吾, 橋田昌明, 佐々木翔平, 林公祐, 富山明男, 塔径及び初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響, 混相流シンポジウム, 2017

堀陽平, 青木二郎, 林公祐, 細川茂雄, 富山明男, 鉛直円管内電解質水溶液中単一酸化炭素気泡の物質移動に関する研究, 混相流シンポジウム, 2017

竹川稔彦, 青山昌平, 林公祐, 細川茂雄, 富山明男, 静止液中単一気泡の形状に及ぼす界面活性剤の影響に関する研究, 混相流シンポジウム, 2017

Kosuke Hayashi, Yuya Masukura, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Numerical Simulation of Surfactant Concentration at an Interface of Single Spherical Drop, 9th International Conference on Multiphase Flow, 2016

Ryo Sato, Tatsuya Miyayoshi, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Azimuthal Angle of Aeration Hole on Flows inside and outside an Air Diffuser Pipe, 9th International Conference on Multiphase Flow, 2016

Yohei Hori, Jiro Aoki, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Water-Alcohol Solutions in a Vertical Pipe, 9th International Conference on Multiphase Flow, 2016

Shohei Aoyama, Iztok Zun, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Lift Force Acting on Single Bubbles in Linear Shear Flow, 9th International Conference on Multiphase Flow, 2016

佐藤稜, 宮吉達也, 林公祐, 富山明男, 散気管内外の流れに散気孔の周方向角度が及ぼす影響, 日本機械学会関西支部第19期定時総会講演会, 2016

Shohei Sasaki, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Liquid Height on Gas Holdup in a Rectangular Bubble Column, 9th International Symposium on Measurement Techniques for Multiphase Flow, 2015

青山昌平, 竹川稔彦, 林公祐, 細川茂雄, 富山明男, 一樣せん断流中単一気泡に働

く揚力に関する研究，混相流シンポジウム，2015

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

林 公祐 (HAYASHI, Kosuke)
神戸大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：60455152