

令和元年6月6日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04262

研究課題名(和文) イオン液体静電噴霧と反応性プラズマを重畳した先進大気環境浄化法の確立と実証

研究課題名(英文) Development of advanced air purification system by coupling ionic liquid electro spray with reactive plasma

研究代表者

高奈 秀匡 (Takana, Hidemasa)

東北大学・流体科学研究所・准教授

研究者番号：40375118

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、ナノ秒パルス放電による高活性化学種生成とイオン液体静電噴霧法を融合した、革新的大気浄化法を確立することを目的としたものである。まず、数値シミュレーションにより、電圧印加によるテイラーコーンの生成および液糸分裂による微細液滴生成過程を明らかにした。イオン液体静電噴霧発生装置を構築し、高速度カメラによる可視化解析及び光散乱法による液滴径分布計測により、作動条件に対する静電噴霧の流体力学的特性を明らかにした。また、二酸化炭素吸収分離実験により、低濃度条件下においてもイオン液体静電噴霧を行うことで、CO₂分離回収性能が顕著に向上し、既存の技術よりも高い分離性能が得られることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、イオン液体静電噴霧による高効率な二酸化炭素分離吸収法が確立され、得られた結果は、我が国における地球温暖化対策として大きな進展を与えるものである。また、本研究はこれまでの学術領域にとどまらず、流体工学及び化学工学を融合した新たな学理を構築するものであり、本研究は、新たな電磁混相流動学の研究領域を切り拓くという意味で学術的意義は大きい。

研究成果の概要(英文)： This study aims the establishment of innovative environmental purification system by integrating the cutting edge technologies of ionic liquid electro spray and nano second pulsed discharge. Ultra-fine droplet generation process with Taylor cone formation followed by break up of liquid thread during ionic liquid electro spray was clarified by computational simulations. The ionic liquid generation system for CO₂ absorption was developed. The fluid dynamical characteristics of electro spray was clarified through high speed imaging and droplet size distribution analysis by light scattering method. Furthermore, it was successfully demonstrated that the amount of CO₂ absorption clearly increases by ionic liquid electro spray even under low CO₂ concentration conditions.

研究分野：機能性流体工学

キーワード：イオン液体 静電噴霧 二酸化炭素分離吸収 気液混相流 機能性流体

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 経済活動の発展や交通需要の増加に伴い、工場から排出される大気汚染物質や、自動車から排出される光化学オキシダントや浮遊粒子状物質による大気汚染が大きな社会問題となっており、呼吸器疾患などの健康被害が深刻化している。このような粒子状汚染物質や光化学オキシダントの主要な要因の一つは、揮発性有機化合物(VOC)であり、工場からの排出規制が年々強化されている。また、特に昨今では、中国から飛来するPM2.5に代表される越境大気汚染が拡大しており、この対策が我が国における急務の課題となっている。さらに、二酸化炭素などの温室効果ガスによる地球温暖化は、地球規模で我々が取り組まなければならない最重要課題の一つである。

(2) 汚染微粒子の捕集浄化には、コロナ放電により帯電した微粒子を静電気力により捕集する電気集塵機が既に実用化されており、産業界での環境浄化において主要な役割を果たしている。また、VOCの分解処理には、反応性プラズマ(非平衡プラズマ)による酸化分解法に関する研究が精力的に進められており、低コスト、省スペース型プロセスとして注目されている。一方、大気中に放出されるCO₂の処理としては、近年、イオン液体によるCO₂分離回収プロセスが注目されている。イオン液体とは、アニオンとカチオンのみから構成される「有機塩」であり、室温以下の融点を有する多機能性液体である。これまでの研究から、イオン液体は二酸化炭素ガスを選択的に物理吸収することが明らかとなり、新規の低コスト型二酸化炭素分離・回収技術として開発が進められている。以上に述べたように、現在開発されている大気環境浄化法は、個々の用途に応じた浄化法に特化したものであり、微粒子の捕集及びVOC分解処理、二酸化炭素回収を同時に達成し得る高度な大気環境浄化法は未だ存在しない。

2. 研究の目的

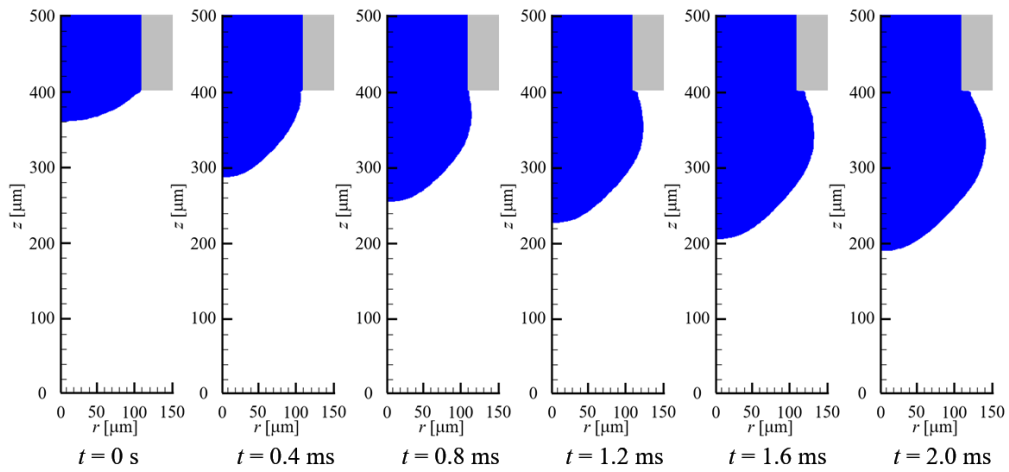
上述の背景の下、本研究においては、ナノ秒パルス放電による高活性化学種生成による環境浄化とイオン液体静電噴霧法とを融合することにより、革新的な高度大気環境浄化法を創出することを目的とする。本研究において提案する高度大気環境浄化法では、イオン液体を供給する細管と対向電極間に数kVの高電圧を印加することにより形成される、円錐状液体界面(テイラーコーン)から静電気により微小イオン液滴を空間中に噴出させる。さらに、印加電圧を最適制御することにより、イオン液体が電極として作用し、テイラーコーン先端から室温程度の反応性プラズマを生成することが可能となり、プラズマ中で生成された高酸化力を有するOHラジカルやOラジカルによる有害物質の酸化分解が可能となる。本方式では、比表面積の大きな微小液滴化されたイオン液体との界面反応により、VOC分解の最終生成物として発生する二酸化炭素が分離・回収されるとともに、帯電した汚染微粒子電極上で静電捕集され、または、液滴に吸着されて回収される。本研究においては、特に、イオン液体静電噴霧における微小液滴生成過程を明らかにするとともに、静電噴霧の流体力学的特性を実験・数値シミュレーションの両面から解明することを主眼におき、イオン液体静電噴霧による二酸化炭素分離吸収の高効率化を目指した。

3. 研究の方法

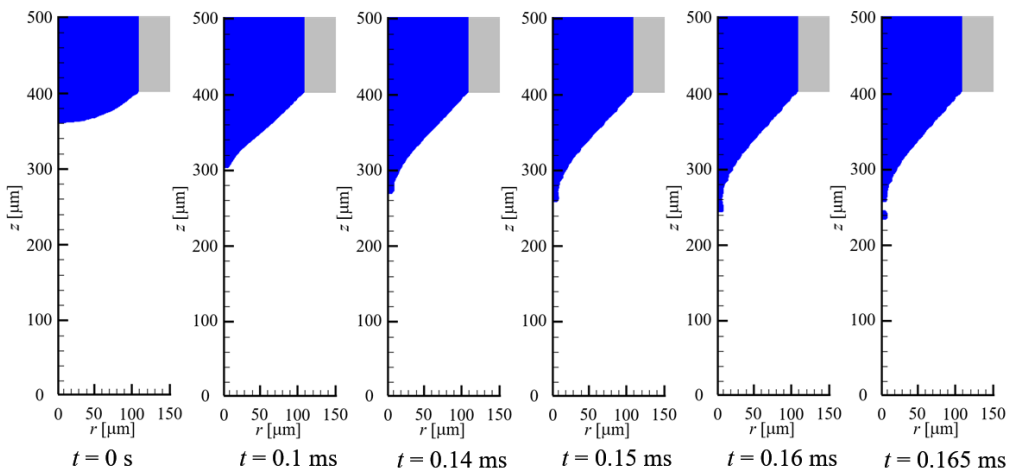
イオン液体静電噴霧における微小液滴形成過程を明らかにするため、界面追跡法を用いた2次元混相数値シミュレーションを行うことにより、イオン液体静電噴霧における液滴形成過程を詳細に解明するとともに、印加電圧や流量などの作動条件に対する噴霧特性を明らかにした。また、高速度カメラによる可視化計測により、作動条件に対する噴霧挙動を解明し、レーザー散乱法により生成液滴径分布を明らかにする。さらに、チャンバー内においてイオン液体静電噴霧を行い、低濃度の二酸化炭素・窒素混合ガスを流入させ、流出ガスの二酸化炭素濃度を計測することにより、イオン液体静電噴霧による二酸化炭素分離吸収特性を明らかにした。

4. 研究成果

(1) 界面追跡法を用いた2次元混相数値シミュレーションによりイオン液体静電噴霧における液滴形成過程及び噴霧特性を明らかにした。図1(a)及び(b)に、流量0.3 mL/minの下での電場の有無における液滴形成過程を比較してそれぞれ示す。図1(a)より無電場においては、界面は半径方向に広がりつつ下流に進展し、0.4 ms後においては半球状の界面形状が形成される。無電場においては、供給圧力及び表面張力、重力のみの釣り合いによって、半球状の界面形状となる。一方、細管側を陽極とし、対向電極を陰極として400 Vを印加した際には、図1(b)に示すように、イオン液体中の界面近傍にカチオンが蓄積され、界面近傍に陰極方向に静電気力が作用することで、テイラーコーンが形成される。コーン先端での電場集中により局所的に強い静電気力が作用し、液系先端の流速が急激に増加することで液系が伸長する。このとき、液系への液体の供給が追い付かないため、液系が分裂し、液滴が連続的に形成されることが明らかとなった。



(a)



(b)

図1 電場の有無における液滴形成過程 (a) 0 kV , (b) 400 V.

(2) 図2に流量を0.3 mL/minとし、印加電圧を200 V及び400 V、600 Vとした際の液滴形成時の界面形状を比較して示す。印加電圧の上昇に伴い、テイラーコーンの頂角は鈍角化し、コーン高さが減少する。また、印加電圧を高くすると、より上流側で分裂が生じ、液滴形成に要する時間はより短くなる。生成液滴径は、印加電圧に対して減少することが明らかとなった。

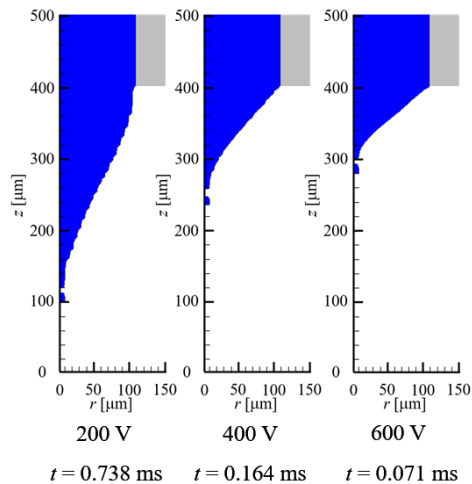


図2 印加電圧がテイラーコーン形状および分裂位置に与える影響

(3) 図 3 に高速度カメラを用い、キャピラリーノズル先端における界面挙動をシャドウグラフィ法により可視化した写真を示す。本実験におけるキャピラリーノズルの内径及び外径はそれぞれ 100 μm 及び 375 μm であり、使用したイオン液体は 1-ethyl-3-methylimidazolium acetate ([EMIM][Ac]) である。イオン液体静電噴霧は、作動条件に応じて、図 3 に示す 4 種類の噴霧形態が存在することが明らかとなった。Mode I は “dripping mode” と呼ばれ、0.2 mm 程度の液滴を断続的に生成する。なお分裂直後は図に示すように非球形ではあるが、下流においては球形の液滴になる。Mode II は Mode I のように比較的大きな液滴を生成するが、テラーコーンから伸びる液系の分裂によって微細な液滴が生成し始める。Mode III ではテラーコーンを形成後、三次元的に振れながら液系が伸長を続け、液系端から分裂する。分裂した部分では静電反発により微細液滴が形成され、0.1 μm 程度の超微細液滴が連続的に発生する。Mode IV は比較的高電圧を印加した場合に観察される。テラーコーン先端では、コロナ放電によって生成された電離層が電場を遮へいし、Mode II と似た静電噴霧の形態となるが、高電場による二次的な分解によって超微細液滴が発生する。これらの噴霧形態は、無次元数としてポンド数とウェーバー数により分類されることが明らかとなった。

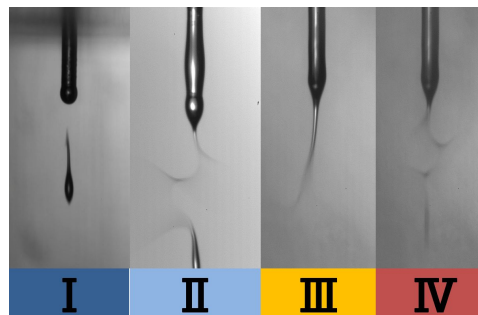


図 3 イオン液体静電噴霧における 4 種類の噴霧形態

(4) 図 4 に光散乱法により計測した印加電圧に対する生成液滴径分布を示す。印加電圧の増加に伴い計測された液滴数は増加し、6.4 kV (MODE III) で最多となる。6.4 kV よりも高い印加電圧では液滴数が減少するが、それは静電分裂により半径方向に噴霧がより広がりを持つことで、チャンバー内を浮遊、または壁面に付着する液滴が増加し、サンプリングチューブに導入される液滴数が減少したためだと考えられる。

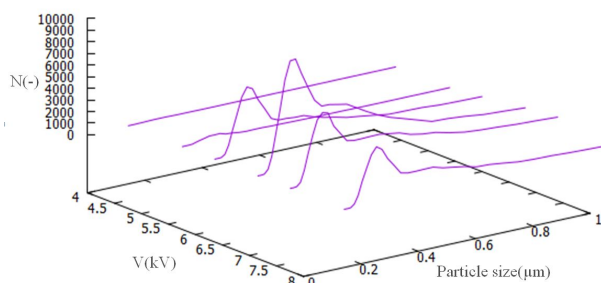
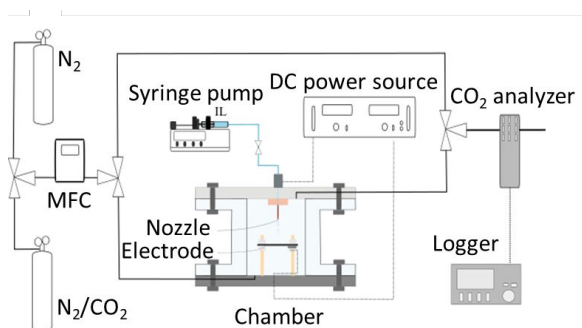
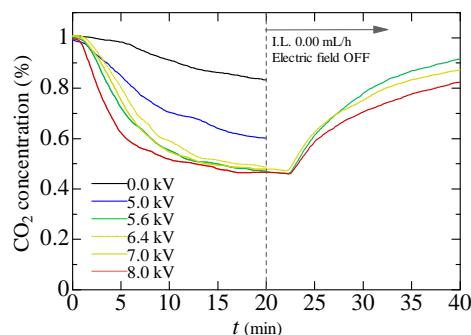


図 4 印加電圧に対する生成液滴径分布

(5) 図 5 (a)及び(b)にイオン液体静電噴霧による二酸化炭素分離吸収特性の評価システム及び二酸化炭素吸収量の経時変化をそれぞれ示す。イオン液体静電噴霧発生部は容量 50.3 cm^3 のアクリル容器内に設置され、 N_2 ガスで装置内を完全置換した後、 CO_2 濃度 1.03 %の CO_2/N_2 混合ガスを一定流量 20 ml/min で導入して吸収実験を行った。アクリル容器下流において CO_2 濃度を計測し、流入出前後での CO_2 濃度差から吸収量を評価した。図 5 (b)より、電圧を印加し、静電噴霧を行った場合には、無電場に比べ電圧印加直後に CO_2 濃度が急激に低下しており、減少量は 8.0 kV の時に最も大きくなるのがわかる。初期の CO_2 濃度変化から見積もられる反応速度は、8.0 kV を印加した場合では、無電場に比べて約 10 倍となり、20 分間で積算した CO_2 吸収量も 220 %程度増加する。5.6 kV 及び 7.0 kV、8.0 kV では、開始から 20 分後にイオン液体の供給を停止し、さらに無電場とした上で、20 分間の CO_2 濃度計測を行った。どの条件においても、濃度は上昇し、初期濃度に漸近することから、静電噴霧の有用性が示された。以上より、低濃度条件下においてもイオン液体静電噴霧を行うことで、 CO_2 分離回収性能が顕著に向上し、より高い分離性能が得られることが実証された。



(a)



(b)

図 5 (a) イオン液体静電噴霧による二酸化炭素分離吸収特性評価装置，
(b) 二酸化炭素吸収量の経時変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

川谷康二, 高奈秀匡, 「イオン液体静電噴霧における液滴形成過程および噴霧特性の数値シミュレーション」, 混相流, 査読有, 32巻1号, 2018, 97-107.

〔学会発表〕(計15件)

Hidemasa Takana and Koyo Saegusa, “Dynamic Behavior of Micro Droplet Ejection by Ionic Liquid Electrospray”, 5th Asian-Pacific Conference on Ionic Liquids and Green Process (APCIL-5), 2016年10月26-29日, 中国

高奈秀匡, 「静電混相流動における先端可視化解析」, 日本機械学会年次大会2016, 2016年9月11-14日, 九州大学, (招待講演)

高奈秀匡, 「静電混相流動制御法の確立とエネルギーおよび材料分野への応用展開」, 磁性流体連合講演会, 2016年12月8日, 北海道大学, (招待講演)

Hidemasa Takana and Koyo Saegusa, “Effect of Pulsed Voltage on Characteristics of Ionic Liquid Electrospray”, 2017 Annual Meeting of the Electrostatic Society of America, 2017年6月13-15日, Canada

Hidemasa Takana and Koyo Saegusa, “Experimental Analysis on Fluid Dynamical Characteristics of Ionic Liquid Electrospray”, 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference (TFEC9), 2017年10月27-30日, 沖縄

Koji Kawatani and Hidemasa Takana, “Numerical Simulation on Droplet Ejection in Ionic Liquid Electrospray”, 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference (TFEC9), 2017年10月27-30日, 沖縄

Hidemasa Takana, “Experimental Study on Fundamental Characteristics of Ionic Liquid Electrospray”, 2017 UW-TU: AOS Workshop AOS-Fall 2017, 2017年11月15-17日, 米国

Hidemasa Takana, “Fundamental Characteristics of Ionic Liquid Electrospray and Its Application to Energy and Environmental Technologies”, Taiwan-Japan International Conference on Magnetic Fluids 2017 (TJ-ICMF2017), 2017年12月14-16日, 台湾, (招待講演)

高奈秀匡, 「イオン液体静電噴霧の流体力学的特性解析と二酸化炭素分離吸収への応用」, 第一回熱流体フォーラム, 2018年5月9日, 東京, (招待講演)

原 望, 山本和輝, 高奈秀匡, 牧野貴至, 金久保光央, 「イオン液体静電噴霧による二酸化炭素吸収の高性能化に向けた実験的研究」, 2018年8月8日, 日本混相流学会 混相流シンポジウム2018, 仙台

Hidemasa Takana, “Numerical Modeling on Enhancement of CO₂ Absorption by Ionic Liquid Electrospray”, 18th International Symposium on Advanced Fluid Information (AFI-2018), 2018年11月7-9日, 仙台

Takashi Makino, Yuki Kohno, Mitsuhiro Kanakubo, Nozomi Hara and Hidemasa Takana, “CO₂ Absorption Separation Using Acetate-based Ionic Liquids”, 15th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2018), 2018年11月7-9日, 仙台

Nozomi Hara, Kazuhiro Yamamoto, Hidemasa Takana and Mitsuhiro Kanakubo, “Fluid Dynamical Characteristics of Ionic Liquid Electrospray for Efficient CO₂ Absorption”, 15th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2018), 2018年11月7-9日, 仙台

原 望, 山本和輝, 高奈秀匡, 牧野貴至, 金久保光央, 「イオン液体静電噴霧の特性解析と高効率CO₂分離回収への応用」, 2018年11月29, 30日, 日本機械学会 第96期流体工学部門講演会, 北海道

高奈秀匡, 「イオン液体静電噴霧による高効率二酸化炭素分離吸収」, JFPS 機能性流体フルードパワーシステムに関する研究委員会, 2019年3月7日, 仙台, (招待講演)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計1件)

名称: 酸性ガス分離装置及び酸性ガス分離方法

発明者: 高奈秀匡, 山本和輝, 原 望, 金久保光央, 牧野貴至

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願2018-060923

出願年: 2018年

国内外の別: 国内

取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.ifs.tohoku.ac.jp/takana/japanese.html>

http://www.ifs.tohoku.ac.jp/jpn/crfrd_effdl.html

6．研究組織

(1)連携協力者

連携研究者氏名：竹村研治郎

ローマ字氏名：Kenjiro Takemura

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。