

平成 30 年 5 月 17 日現在

機関番号：32619

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05841

研究課題名(和文) ソーレ効果を用いたガス分離デバイスの微細連続構造による高性能化

研究課題名(英文) Improvement aiming at high performance of gas separating device with Soret effect by applying consecutive microstructure

研究代表者

小野 直樹 (Ono, Naoki)

芝浦工業大学・工学部・教授

研究者番号：20407224

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：この研究は温度勾配の印加に伴い物質拡散を生じるソーレ効果を利用し、化学的処理を用いずに混合ガスの成分分離を行う高性能なガス分離デバイスの実現を目指す研究である。実験では水素50%・二酸化炭素50%のガス分離を実施した。初期に試作したネットワーク構造のデバイスでは水素の分離濃度は理論予測値の約1/15の値(+0.7%増)にとどまったため、単ユニットのみの基礎実験や流路厚みを400 μm まで大きくする等の改善の結果、理論予測値の1/7まで分離効果が向上した。しかし実用化に向けては未だ分離効果は小さく、今後はネットワーク内のユニット数の大幅な増加や断熱構造のさらなる改善が必要であることが分かった。以上

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to develop a novel device for separating gas species utilizing the Soret effect. It is mass diffusion phenomenon caused by temperature gradient only. The separation of hydrogen from mixture of hydrogen(50%) - carbon dioxide(50%) was investigated in the experiment. By using an initial test device of network structure, the separation of hydrogen was found to be so small as 1/15 (+0.7% increase) of the theoretically predicted value. Through basic experiments using a single element unit of the network structure and the increase of the device thickness up to 400 micrometer, the separation was successfully improved to 1/7 of the theoretical value. However, its separation ability is still too small for practical use. Significant increase of the number of element units in the network structure, and further improvement of the thermal insulation of the device body will be necessary in the future.END

研究分野：熱流体工学

キーワード：ソーレ効果 ガス分離 水素ガス MEMS マイクロデバイス 物質移動

1. 研究開始当初の背景

水素エネルギーは究極のクリーンエネルギーのひとつと言われているが、実際に社会で広く活用するためには低コストでかつ簡易な小型装置での水素製造・水素精製ができることが望ましい。従来から膜分離や化学処理を用いて水素を製造・精製する手法が知られているが、例えば家庭用の燃料電池(電源)を考えた場合、原料となる化石燃料ガスから分解して水素を得ようとすると、昇圧用の大型コンプレッサーや、事後処理を要する薬液を用いることは不適である。著者らは温度差のみで物質移動が生じるソーレ効果に着目し、この原理を応用して化学的処理を一切必要とせず、温度差のみで動作し、また小型化が可能なガス分離デバイスの研究開発を実施してきた。平成24年から平成26年までは、挑戦的萌芽研究(科研費)にて、基礎実験から開始し、数cmサイズの分離装置を用いて水素分離の実験を実施した。このサイズを単純にシリアルに連結することによって、三段連結までの装置を作成し、水素50%と二酸化炭素50%の混合ガスから、水素濃度を50%から51.2%へ濃縮されることが確認できた。しかし水素を実用レベルの90%程度まで濃縮するためにはこのままの単純連結では収率が急激に低下してしまい、現実的な手法にはなり得なかった。その後、微細(数百マイクロン大)な分離器を列方向・段方向(流れ方向)にネットワーク状に多数連結することによって、個々の分離器の能力は小さくても、全体としては高性能な分離を可能とするアイデアに至り、数理的なモデルを用いてその理論的な確認に成功した(文献[1,2])。この方法の概念図を図1に、またこのネットワーク構造でのガス分離の状況の概念図を図2に示す。

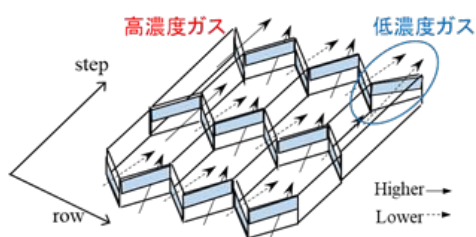


図1 ネットワーク構造のガス分離デバイス

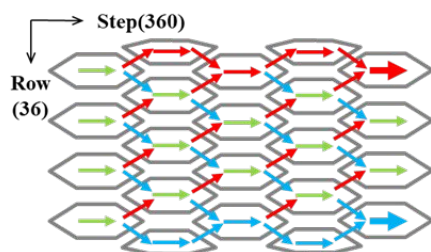


図2 ガス分離が進む状況

図1に示すような六角形の微細な分離ユニットが多数連結されており、各ユニット内で上下方向に印加された温度差によってソーレ効果が生じることで、わずかに高濃度化したガスおよび低濃度化したガスが二つの出口から流出し、各々次に連結されているユニットに流入していく。これを繰り返すと図2に示すように、左側の入口から流入した一樣濃度の混合ガスは、下流に進みながら徐々に濃縮され、最終的に右側の出口から各成分を高濃度化して取り出すことができる。

このアイデアを実際実験で実証し、分離能力の高い新デバイスを開発することを目的として、平成27年から29年までのこの基盤研究(C)(科研費)にて取り組んだ。

2. 研究の目的

本研究では、上述した分離デバイスの微細連続構造による高性能化理論の実証を目的として、ネットワーク構造を持つ流体デバイスを試作し、水素・二酸化炭素の混合ガスを用いて水素高濃度化の実験を行った。

理論によれば、水素・二酸化炭素の混合ガスで実用的な分離を達成するには、温度差450度の条件で、少なくとも10の5乗個規模の分離ユニット数が必要と見積られる。本基盤研究では、実証に向けた最初の取り組みとして、比較的小規模なデバイスを試作して部分的な実証を試みることにした。本研究での実験データの評価指標としては、与えた温度差(実際には10~80までを印加)と、製作したデバイスの列数・段数から理論的に得られる水素の分離濃度(理想値)に対しての到達度(比率)を見ることにした。

3. 研究の方法

(1) 平成27年度(初年度)

初年度はMEMS技術によりシリコンおよびガラス基板上に図1のようなネットワーク構造のパターンを形成・接合したデバイスを作成した(図3)。幅80μm、長さ310μm、高さ40μmの分離ユニットが36列36段連結されている。混合ガスはデバイス左上の流入口から入ってS字状に流れ、右の3つの出口から分けて取り出される。各出口からのガスの水素濃度をガスクロマトグラフィー装置にて計測する。

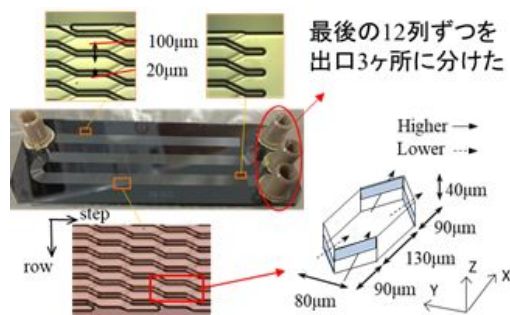


図3 シリコンとガラスで製作したデバイス

(2) 平成 28 年度 (2 年目)

2 年目は、分離性能の向上を目的として、分離ユニット単体での分離効果を評価する基礎実験を行った。具体的には、図 4 に示すように、ネットワーク中の六角形の微小分離ユニット一つだけを取り出した構造の分離デバイス (十分な総流量を得るため 6 ユニートを並列している) を用いて、水素・二酸化炭素混合ガスの分離実験を行った。分離ユニットの設計最適化のため、形状の異なる複数パターン of デバイスを作成し、その効果を見る取り組みも実施した。デバイスの製作に関しては、大温度差への対応を可能とするため、厚み 50 μm のステンレス薄板にパターンをエッチングで形成し、それを複数枚積層し拡散接合して作成する方法を採用した。

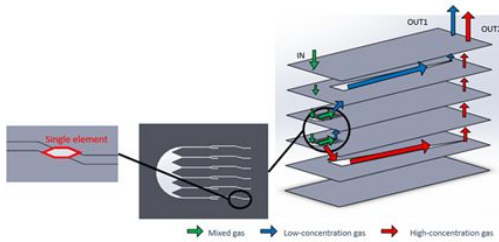


図 4 ユニット単体でのガス分離実験装置

(3) 平成 29 年度 (最終年度)

最終年度では、2 年目の基礎実験から得られた知見をもとに、流路の形状を改良し、またデバイス (ステンレス薄板の拡散接合による積層品) の上下面の温度差がつきやすくなるように断熱性の向上にも配慮したネットワーク構造のデバイスを試作した。

図 5 に製作したネットワーク構造のデバイスの外形写真と流路概念図を合わせて示す。各分離ユニットのサイズは、幅 500 μm 、長さ 1250 μm 、高さ 400 μm となっている。また列数は 10 列、段数は 96 段であり、ユニット総数 10 の 3 乗個の規模となっている。図 5 の右側の各図が示すエッチングで形成された各ステンレス薄板が積層されて図の左下のような流路を形成している。図の左上の写真の外形は、幅 30 mm、長さ 80 mm、厚みは 1 mm である。

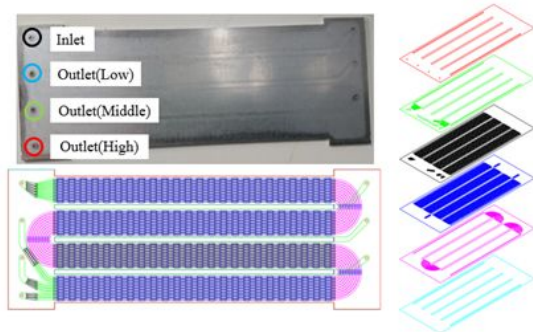


図 5 ネットワーク構造のデバイス (最終版)

4. 研究成果

(1) 平成 27 年度 (初年度)

図 3 に示すシリコンとガラスで構成したネットワーク構造のデバイスに、初期濃度水素 48.7 %・二酸化炭素 51.3 % の混合ガスを流量 27 ml/min で流し、デバイスの上下面に 30 ~ 80 までの温度差を与えてソーレ効果を発生させた。結果を図 6 に示す。印加する温度差の増大につれて分離が進んでいる様子がわかる。この結果からソーレ効果による分離が確認できたが、デバイス出口で得られた最終的な水素濃度差は最高でも 1.3% と、理論による予測値 (15.8%) の約 1/12 にとどまり、ネットワーク効果の実証には不十分であった。

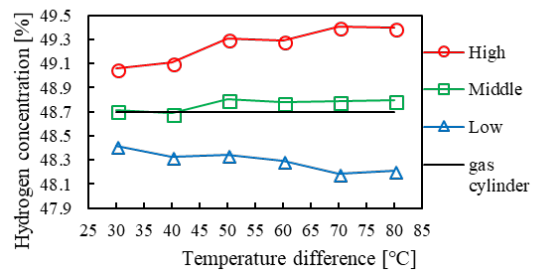


図 6 シリコンとガラス製のネットワーク構造のデバイスのガス分離実験結果

(2) 平成 28 年度 (2 年目)

初年度の結果を踏まえて、図 4 に示すようなデバイスを製作してユニット単体の評価を実施した。ガス流量 (総流量) 10 ml/min、印加温度差 80 の条件で、分離後の水素濃度差は最大で 0.13% となった。理論値 (0.67%) との比で 1/5 程度であり、初年度の結果 (約 1/12) から改善されている。この性能向上の要因としては、分離ユニット単体での流路高さを大きくしたこと (40 μm から 100 μm へ) および分離ユニット出口の 2 方向に分岐する部分 (六角形の先端) の角度を小さくしたことなどによる温度分布の適正化および再混合の低減効果が考えられる。特に流路高さを大きくすることの効果の知見は重要である。

(3) 平成 29 年度 (最終年度)

ユニット単体での結果を踏まえてネットワーク構造のデバイスを再設計し、拡散接合によるステンレス薄板の積層金属にて製作した。前年の実験結果から流路高さが大きい方が有利であったため、ここでは流路高さを最大 400 μm とした。また六角形の先端角度をやや浅くした形状となっている。またデバイスの素材がステンレスであり熱を通しやすい金属であることに留意してガス流路以外の部分を極力減肉化するなどの対策を施して上下の温度差が緩和しないようにその断熱性に配慮した。また加熱冷却装置も精密に温度制御しながら上下対称に温度差を印加できる装置に変更して実験を行った。入口流量は 30 ml/min である。

実験の結果を図7に示す。この加熱冷却装置は精密に温度制御が可能であるが、現状では今回のデバイスに対して最大 20 の温度差印加までの能力となっている。図7から分離濃度の明確な温度依存性が現れ、温度差 20 で 0.41%の最終的な水素濃度差が得られたことがわかる。さらに流量を変化させたところ、120 ml/min で濃度差 0.56%が得られた。理論値(2.12%)との比で約 1/4 であり、ネットワーク構造による性能向上が確認できたと言える。初年度の図3のデバイスの性能(理論値の 1/12)からは約3倍の改善を実現した。以上の結果から、今後の実用化に向けて、印可温度差の増大とネットワーク規模の拡大により必要な性能向上を達成するための見通しが得られた。

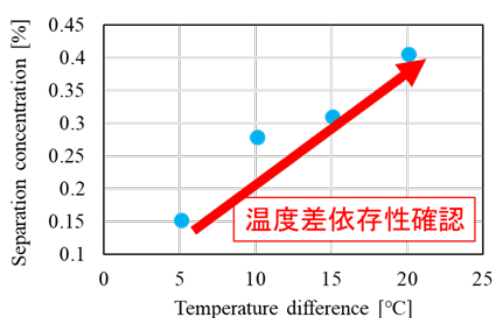


図7 ネットワーク構造のデバイス(最終版)の実験結果

(4) その他の成果

上記のガス分離に関する実験的検討に加えて、ネットワーク型分離デバイスの数理モデルに関する以下の検討を行った。本研究で対象とするネットワーク型分離デバイスの挙動は、各ユニットの濃度等の物理量を連続関数で近似することにより、流束ゼロ境界条件を課された非線形の Burgers 方程式で記述されるが、その厳密解が得られることを初めて証明した。また、応用時に想定される状況への拡張として、流入する混合流体の濃度が一様でない場合やネットワークに欠陥が存在する場合の収束安定性の確認、流体の成分が希薄な場合への理論の一般化、等を行った。

さらに、本技術による分離デバイス内における濃度分布の発達過程を詳細に観察する試みとして、水に分散した蛍光ポリマー微粒子の熱泳動分離実験を行った。一般に液中の熱拡散現象はガスの場合と比べて複雑だが、濃度範囲を限れば、類似のメカニズムに基づく挙動が予想される。実験では、図3と同等なシリコン・ガラス製デバイス(36列360段)を使用し、直径 0.2 μm のポリスチレン粒子分散液を流量 0.5 $\mu\text{l}/\text{min}$ で流入させた。蛍光微粒子の輝度値から得られた濃度分布発達過程は、上記理論の流体成分が希薄な場合に相当する予測と良好に一致した(図8)。この結果は、ネットワーク型分離デバイスの理論を部分的に裏付けるものである。

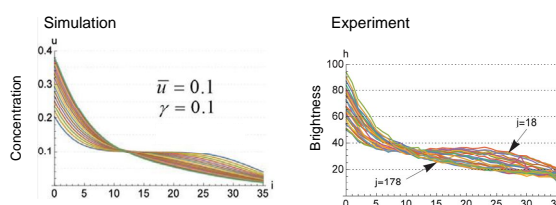


図8 微粒子分離実験の結果(理論との比較)

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 2 件)

[1]S.Watanabe, S.Matsumoto, T.Higurashi and N.Ono, Burgers equation with no-flux boundary conditions and its application for complete fluid separation, *Physica D*, vol.331(2016) pp1-12.

[2]S.Watanabe, S.Matsumoto, T.Higurashi, Y.Yoshikawa, N.Ono, Almost Complete Separation of a Fluid Component from a Mixture Using the Burgers Networks of Microseparators, *Journal of Physical Society of Japan*, vol.84, no.4, 043401 (2015).

[学会発表](計 14 件)

1) K. Matsumoto, N. Takeda, K. Okamoto, S. Matsumoto, S. Watanabe and N. Ono, Optimization of Micro-structured Gas Separator Utilizing the Soret Effect, 14th International Conference on Flow Dynamics, (Nov.1-3, 2017, Sendai, Japan), Proceedings, OS16-50 (USB Memory).

2) 松本一弥、渡邊辰矢、松本壮平、小野直樹、微細連続構造を用いたソーレ効果ガス分離器に関する性能分析、日本機械学会 2017 年度年次大会(2017 年 9 月 3 日~6 日) 講演番号 G0600303.

3) S. Matsumoto, S. Watanabe and N. Ono, Thermophoretic Separation of Dispersed Particles by Networked Micro-Separators, International Symposium on Micro-Nano Science and Technology 2016, Tokyo, Japan, December 18 (2016).

4) S. Watanabe, S. Matsumoto and N. Ono, Almost complete separation of a fluid component from mixture using the Burgers networks of micro-separators, Interdisciplinary Applications of Nonlinear Science, (Nov. 3-6, 2016, Kagoshima University, Japan) oral presentation.

5) K. Matsumoto, M. Tsuchiya, S. Ootaki, S. Matsumoto, S. Watanabe and N. Ono, Development and Evaluation of Micro-structured Gas Separator Utilizing

the Soret Effect, 13th International Conference on Flow Dynamics, (Oct.10-12, 2016, Sendai, Japan), Proceedings, OS16-50 (USB Memory).

6)松本一弥、大和田朋子、日暮智弘、松本壮平、渡邊辰矢、小野直樹、微細連続構造を用いたソーレ効果ガス分離器の高性能化、日本機械学会関東学生会第55回学生員卒業研究発表講演会、(2016年3月10日、東京工業大学大岡山キャンパス)、1119.

7)松本壮平、渡邊辰矢、日暮智博、小野直樹、高性能流体分離に向けた大規模ネットワーク構造を有するマイクロ流体デバイス、第7回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、(2015年10月29日、新潟)。

8)S. Watanabe, S. Matsumoto, N. Ono, Almost complete separation of a fluid component from mixture using the Burgers' networks of micro-separators、International Conference on Mathematical Modeling and Applications (ICMMA) 2015 'Self-Organization Modeling and Analysis', (Meiji Institute for Advanced Study of Mathematical Sciences, Nakano, Tokyo, Japan, October 28 (2015)), Poster presentation.

9)T. Higurashi, K. Matsumoto, T. Owada, S. Matsumoto, S. Watanabe, N. Ono, Improvement of Mini-channel Gas Separator Utilizing Soret Effect, 12th International Conference on Flow Dynamics, (Sendai International Center, Japan, October 28 (2015)), GS1-17.

10)S. Watanabe, S. Matsumoto, N. Ono, Almost complete separation of a fluid component from mixture using the Burgers' networks of micro-separators、International Congress on Industrial and Applied Mathematics (ICIAM) 2015, (China National Convention Center, Beijing, China, August 13 (2015)), CP-Th-E-47-4.

11)渡邊辰矢、微小素子の Burgers ネットワーク化による混合流体のほぼ完全な分離、RIMS 研究集会「力学系とその諸分野への応用」(2015年7月1日、京都大学数理解析研究所)。

12)日暮智博、吉川雄也、松本壮平、渡邊辰矢、小野直樹、微細流路を用いたソーレ効果ガス分離器の性能改善、第52回日本伝熱シンポジウム(福岡国際会議場、6月3日(2015年))、I131.

13)松本壮平、渡邊辰矢、日暮智博、吉川雄

也、小野直樹、大規模ネットワーク構造による流体成分分離デバイスの性能向上の検討、第52回日本伝熱シンポジウム(福岡国際会議場、6月3日(2015年))、I133.

14)S. Watanabe, S. Matsumoto, T. Higurashi, Y. Yoshikawa, N. Ono, Almost Complete Separation of a Fluid Component from a Mixture Using the Burgers Networks of Micro-separators, SIAM Conference on Dynamical Systems, (Snowbird Ski & Summer Resort Cliff Lodge, Utah, USA, May 20 (2015)), PP2.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 1 件)

名称:素子配列,素子,流体の成分分離方法,および素子配列の製造方法
発明者:松本壮平,渡邊辰矢,小野直樹
権利者:産総研,茨城大学,芝浦工大
種類:特許
番号:特願 2014-255463、特開 2016-112534
出願年月日:2015年12月17日
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.meo.shibaura-it.ac.jp/ono/index_eng.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

小野 直樹 (ONO, Naoki)
芝浦工業大学・工学部・教授
研究者番号: 20407224

(2)研究分担者

松本 壮平 (MATSUMOTO, Sohei)
国立研究開発法人産業技術総合研究所・
集積マイクロシステム研究センター・副研究センター長
研究者番号: 70358035

渡邊 辰矢 (WATANABE, Shinya)
茨城大学・理学部・准教授
研究者番号: 10302324

(3)連携研究者
なし

(4)研究協力者
なし