

令和 4 年 6 月 10 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：2020～2021

課題番号：20K22381

研究課題名（和文）革新的汚染土壌改質に向けた超臨界流体中の溶解現象の高時空間分解能計測とモデル化

研究課題名（英文）High spatiotemporal measurement and modeling of dissolution phenomena in supercritical fluids for innovative soil remediation

研究代表者

神田 雄貴（Kanda, Yuki）

東北大学・流体科学研究所・助教

研究者番号：00885874

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、超臨界二酸化炭素中における模擬汚染物質の溶解現象の理解を目指し、独自の光学系を用いた輸送現象の観察、および数値モデルによる評価を行った。その結果、超臨界二酸化炭素中において、特異な熱輸送現象の観察に成功した。また模擬汚染物質としてアセトンを選定し、空気中へのアセトン蒸発による濃度変化計測に成功した。さらに数値計算により、超臨界二酸化炭素中へのアセトンの物質輸送について評価を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超臨界流体を用いた汚染土壌改質手法の実現において、超臨界流体中の非定常熱物質輸送の理解は重要である。本研究では、超臨界二酸化炭素中における輸送現象を高精度に観察し、計測技術の確立、および輸送現象に関する情報を取得した。伝熱工学および計測工学をはじめとする学問分野において学術的意義は高いと考える。また本研究で得た知見は、超臨界流体を用いた汚染土壌改質手法の実現に向けて学術的基礎を成すと考える。

研究成果の概要（英文）：In this study, heat and mass transfer phenomena were observed using special laser interferometry and evaluated by a numerical model to understand the dissolution phenomenon in supercritical carbon dioxide. As a result, it was succeeded to observe peculiar heat transfer phenomenon in supercritical carbon dioxide. In addition, acetone was selected as a pollutant, and the mass transfer due to the evaporation of acetone into the air was measured. The mass transfer of acetone in supercritical carbon dioxide was evaluated with numerical calculation.

研究分野：熱工学

キーワード：超臨界流体 二酸化炭素 光学計測 熱物質輸送 溶解現象

1. 研究開始当初の背景

1960年代の高度経済成長期を発端に我が国は産業的および経済的に発展してきた。一方で、排気ガスや土壤汚染をはじめとする「環境汚染問題」が露わになってきたのも事実である。

これに対し、近年、二酸化炭素をはじめとする超臨界流体を用いた大規模汚染土壤の改質手法が提案されている[④]。本手法は、超臨界流体の高拡散性や高溶解性を汚染物質の吸収・分離に応用することを想定している。また、既存の汚染物質の隔離や物理的改質等の改質手法に比べ環境負荷が小さく、国連のSDGsにも大きく寄与する。しかし本提案の実験的検証は未だ行われておらず、実証に至っていない。

超臨界流体を用いた大規模汚染土壤改質手法の実現においては、超臨界流体中における非定常熱物質輸送や、汚染物質の溶解特性の学術的な理解が必要不可欠となる。しかし、実用化に向けた熱物質輸送、および溶解速度等の溶解特性に関する知見は不足しているのが現状である。その背景として、超臨界状態における温度や圧力の高精度制御や、熱物質輸送の非接触かつ高時空間分解能な計測が必要という実験的検証の課題がある。

2. 研究の目的

超臨界流体を用いた汚染土壤の改質手法の実用化において、超臨界流体中の非定常熱物質輸送、および汚染物質の溶解特性の理解は重要な要素となる。そこで本研究では、汚染物質を模擬した有機化合物を用い、超臨界流体中における非定常熱物質輸送を定量計測し、超臨界条件下における溶解速度モデルを構築することを目的とする。

超臨界流体は液体に比して高い拡散性を有するため、汚染物質と超臨界流体の界面近傍における非定常熱物質輸送を理解するには、 10^{-6} s オーダーの高時間分解能計測が必要不可欠である。そこで本研究では、申請者の独自の計測技術である高速位相シフト干渉計の適用を行う。本干渉計は、マッハツェンダー型干渉計に独自の画像処理技術と光学プリズムを導入した光学手法であり、熱物質輸送現象を 10^{-6} s および 10^{-6} m の高時空間分解能で定量計測できる。本計測手法の適用により、これまでの研究に類を見ない高時空間の分解能で、超臨界流体中での非定常熱物質輸送を定量的に計測・評価することを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、上記の研究目的を達成するために、第一の目標として、高時空間分解能を有する光学手法を用いた、超臨界状態における二酸化炭素中の非定常熱物質輸送現象の定量計測を目指す。まず本研究では、これまでに申請者が確立したペルチェモジュールによる高精度な温度制御技術を用いた可視化容器の開発を行う。次に模擬汚染物質の超臨界二酸化炭素中における熱物質輸送現象を独自の光学手法を用いて評価する。

また第二の目標として、超臨界流体中における汚染物質の溶解特性および輸送現象を理解するために、実験で取得した物理情報を基にして数値モデルを構築し、実験結果の妥当性評価、および模擬汚染物質の溶解特性や輸送現象の理解を深める。

4. 研究成果

本研究では、超臨界二酸化炭素中における模擬汚染物質の非定常熱物質輸送や溶解特性の理解を目指し、独自の光学系を用いた輸送現象の観察、および数値モデルによる評価を行った。研究期間において高精度な温度制御技術を用いた超臨界二酸化炭素の可視化容器を開発した。本可視化容器と高速位相シフト干渉計を用いて、熱物質輸送現象の可視化実験を行った。また数値計算を用いて、実験結果の妥当性評価、および模擬汚染物質の輸送現象の評価を行った。以下に得られた研究成果をまとめる。

(1) 超臨界二酸化炭素の可視化容器の開発

二酸化炭素の臨界点は 7.4 MPa、31°C である。本研究ではまず既存の可視化セルを用いて、セル内に液体状態の二酸化炭素を充填し、カートリッジヒーターによる加熱により超臨界状態の実現および可視化に関する予備実験を行った。本予備実験により超臨界状態を実現するための温度および圧力条件を確定することができた。より高精度な温度の制御、および超臨界状態の安定した計測を目指し、独自の可視化容器の開発を行った。本装置の概要を図 1 に示す。本装置はこれまでに申請者が確立したペルチェモジュールを用いた高精度な温度制御技術を応用しており、高精度な温度制御によって可視化容器内での超臨界二酸化炭素の発生、および超臨界状態の維持を達成した。

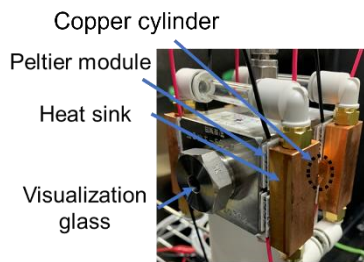


図 1 可視化容器

(2) 超臨界二酸化炭素中における熱輸送現象の評価

超臨界二酸化炭素中の複雑な熱物質輸送現象を理解するために、まず熱輸送現象に着目した評価を行った。超臨界二酸化炭素を上述の可視化容器に導入し、温度場は高速位相シフト干渉計を用いて可視化した。実験結果として、臨界点近傍(313 K、8 MPa)では、場のわずかな温度変化による熱物性値の急激な変化により、干渉計では定量評価が困難な複雑な熱輸送現象が観察された。一方で、臨界点遠方(323 K、8 MPa)の領域においては、臨界点近傍に比べ安定した干渉縞が観察できた。しかしながら、代表長さとして定義する可視化領域の高さが大きい(6 mm)場合、自然対流が生じ移流を含む熱輸送となることが確認できた(図 2)。

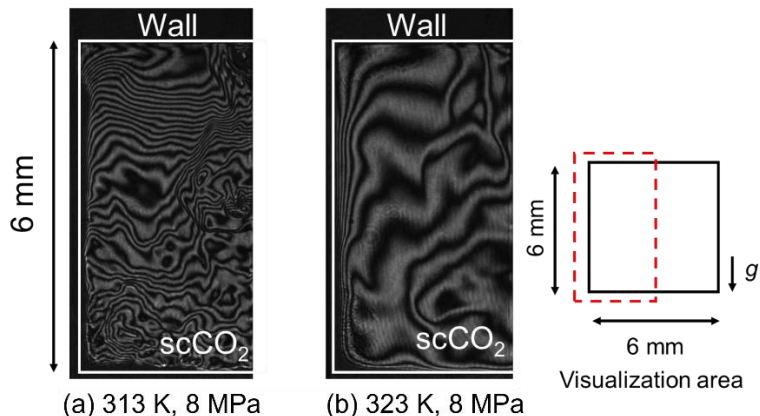


図 2 臨界点近傍(313 K、8 MPa)および遠方(323 K、8 MPa)における超臨界二酸化炭素(scCO₂)の可視化

代表長さを小さくした低レイリー数領域(313 K、7.5 MPa)では、移流の影響が抑えられた。次に容器壁面に設置した銅柱をペルチェ素子で加熱することで容器壁面と流体中に任意の温度差を与え、熱拡散支配による明瞭な干渉縞の計測に成功した(図 3)。

また有限要素法を用いた数値モデルにより、熱輸送現象を評価した結果、数値計算結果は実験結果と定性的に同様な温度場を形成することが確認でき、実験結果の妥当性が明らかになった。さらに干渉縞の非定常変化から推定した熱拡散率は $10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ のオーダーであり、文献値と比較して妥当な値であった。以上の結果から、超臨界二酸化炭素中における熱輸送現象を高精度に計測する技術を確認したと考える。

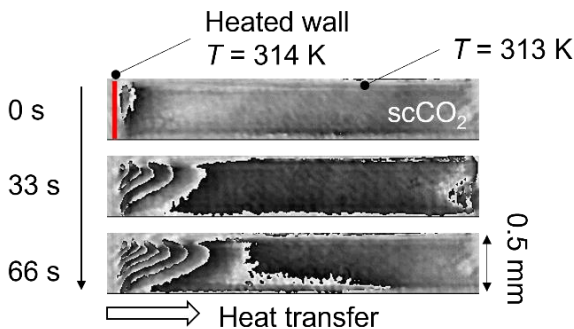


図 3 低レイリー数領域(313 K、7.5 MPa)における熱輸送の可視化

(3) 模擬汚染物質の物質輸送現象の評価

物質輸送現象について、本研究では模擬汚染物質として揮発性を有するアセトンを選定した。超臨界流体中での実験の比較対象として、まず空気中におけるアセトン蒸発による濃度変化を、位相シフト干渉計を用いて定量計測した。ガラスセル中におけるアセトンの蒸発現象は、蒸発による空気中へのアセトン物質拡散のみでなく、潜熱による自然対流が生じることが明らかとなった。またガラスセル下面を銅製のプレートとすることで、潜熱による自然対流の影響を小さくし、物質拡散を計測することに成功した。また対流の影響を考慮した物質輸送現象の数値モデルにより実験結果を評価し、妥当性を明らかにした。本結果は当初の計画では予期していない実験および結果であったが、相変化を含む物質輸送現象の評価において意義のある結果となった。また超臨界二酸化炭素中における物質輸送実験には及ばず、今後の課題となったが、超臨界二酸化炭素中における物質輸送評価に向けた今後の研究展開において重要な知見を得たと考える。

また本研究の第二の目標である、超臨界流体中における汚染物質の溶解特性および輸送現象を理解するために、熱輸送実験の知見を基に、模擬汚染物質であるアセトンの超臨界二酸化炭素中への溶解現象を数値モデル化した。計算の結果、超臨界二酸化炭素中へのアセトンの物質輸送は、空気中へのアセトン物質拡散に比べ、物質輸送の速度が抑制される可能性が示唆された。

<引用文献>

① Lin Chen and Yuhiro Iwamoto, Advanced Applications of Supercritical Fluids in Energy Systems, IGI Global, USA, (2017), ISBN13: 9781522520474

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 神田雄貴
2. 発表標題 汚染土壌改質・浄化に向けた超臨界二酸化炭素中の熱物質移動現象の可視化技術
3. 学会等名 超臨界流体部会 第20回サマースクール 「シミュレーション技術の最前線と物性情報に立脚した材料・プロセス設計」 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuki Kanda, Haruki Ito, Lin Chen, Atsuki Komiya
2. 発表標題 Accurate visualization of carbon dioxide heat transfer under supercritical condition using high-speed phase-shifting interferometer
3. 学会等名 The 2nd Asian Conference on Thermal Sciences (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Haruki Ito, Yuki Kanda, Lin Chen, Atsuki Komiya
2. 発表標題 Experimental Visualization of Transient Heat Transfer under Supercritical Conditions Near and Far from Critical Point on p-T diagram
3. 学会等名 18th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神田雄貴, 伊藤春輝, 陳林, 小宮敦樹
2. 発表標題 光干渉計を用いた超臨界二酸化炭素中の非定常熱輸送現象の可視化と熱拡散率の評価
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuki Kanda, Atsuki Komiya
2. 発表標題 High Spatio-Temporal Visualization of Heat and Mass Transfer Phenomena During Gas Hydrate Decomposition
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Haruki Ito, Yuki Kanda, Atsuki Komiya
2. 発表標題 Numerical Study of Passive Thermal Control for Uniform Temperature Field of Supercritical Fluid
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yongchang Feng, Lin Chen, Yuki Kanda, Atsuki Komiya
2. 発表標題 Lattice Boltzmann Simulation of Convection and Heat transfer in a Square Side-Heated Cavity Filled with Supercritical CO2
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
中国	Chinese Academy of Sciences			