

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 17 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360070

研究課題名(和文) 高気相体積率・高粒子濃度の汚染系スラリー気泡塔内流れの把握と数値予測技術の開発

研究課題名(英文) Development of Numerical Method for Bubbly Flows in Slurry Bubble Columns at High Void Fractions and High Particle Concentrations

研究代表者

富山 明男 (Tomiyama, Akio)

神戸大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30211402

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,400,000円

研究成果の概要(和文)：GTL(Gas To Liquid)技術の核心である気泡反応塔内部の高濃度・高気相体積率スラリー系固気液三相気泡流の理解・モデル化と数値予測技術の開発を目的として、気泡の合体・分裂特性に及ぼす微小粒子の効果に関する基礎実験とモデル化、高気相体積率・高粒子濃度の気泡塔内流動特性の把握と実験データベースの構築、高気相体積率・高粒子濃度の固気液三相気泡流の計算手法の開発を実施した。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to understand the characteristics of three-phase bubbly flows in slurry bubble column reactors in GTL technologies and to develop a numerical method for predicting the flows. The followings were conducted for this purpose: (1) experiments on effects of solid particles on bubble coalescence and modeling the effects, (2) development of experimental databases of three-phase bubbly flows in slurry bubble columns, and (3) development of a numerical method for the three-phase bubbly flows in slurry bubble columns.

研究分野：混相流工学

キーワード：混相流 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。しかし、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取り残されている。これは、LNG 化やパイプライン敷設などのガス供給系の設備コストが膨大となるため対投資効果が得られないためである。この状況を打破する技術として、現在、GTL 技術や DME 利用技術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 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、両プラントとも所望の合成反応を実現する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判明しつつある。この値は気泡塔に関する従来研究の上限値 30% をはるかに超えている。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プラント開発が進められており、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得がたい状況にある。従って、高気相体積率スラリー気泡塔内流動特性の把握とモデル化が重要な技術課題となっている。

2. 研究の目的

本研究では、上述の流れの理解・モデル化と数値予測技術の開発を目的として、①気泡の合体・分裂特性に及ぼす微小粒子の影響に関する基礎実験とモデル化、②高気相体積率・高粒子濃度の気泡塔内流動特性の把握と実験データベースの構築、③高気相体積率・高粒子濃度の固気液三相気泡流の計算手法の開発、を実施した。

3. 研究の方法

③高気相体積率・高粒子濃度の気泡塔内流れの三次元計算技術の開発実現のための要素研究として、②スラリー気泡塔内流動特性の把握と実験データベースの構築、①気泡の合体・分裂特性に及ぼす微小粒子の影響に関する基礎実験とモデル化を実施した。

要素研究①の研究手法 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、気泡合体・分裂過程の外部観察のため、奥行き 3mm の小規模狭並行平板間内気泡流動観測装置 (以下、擬二次元容器) を製作した。流体に蒸留水と空気、粒子に親水性シリカ球形粒子 (直径 60、100、150 μm の 3 種) を使い、粒子体積濃度をパラメータとして、接触 2 気泡が合体に要する時間及び気泡サイズ等を測定した。気泡合体・分裂過程は高速度カメラと照明器具、開発済みの画像処理ソフトにより計測した。本実験より、気泡合体・分裂の粒子濃度・粒子径依存性に関する基本的知見を得た。

要素研究②の研究手法 高さ 2.0m、水力

等価直径 0.2m の中規模気泡塔を製作し、気相流量・粒子径・粒子濃度・初期スラリー液位を実験パラメータとしてスラリー気泡塔流動試験を行える環境を整えた。気相体積率分布・気泡通過頻度の測定には点電極ボイドプローブを用いた。局所液相速度計測には、既開発の小型液浸レーザドップラープローブを使用した。要素研究①の実験と同様に、流体に蒸留水と空気、粒子に親水性シリカ球形粒子 (直径 60、100、150 μm の 3 種) を使い、粒子体積濃度・気相流量・初期スラリー液位をパラメータとして、粒子が平均気相体積率・気泡塔内気相体積率分布・気泡通過頻度分布に及ぼす影響を計測した。

要素研究③の研究手法 まずこれまでに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計算手法を用いて、要素研究②で実施した実験条件で計算を実施し、計算結果と実験結果との比較から改善すべき要素モデルを順位付けした。また、要素研究①で得られた気泡合体に要する時間に関する知見を気泡合体モデルに、気泡分裂効率に関する知見を気泡分裂モデルに組み込み、粒子の混在の影響の考慮が気泡合体効率・分裂効率のモデル修正によって実現可能か否かを検証した。

4. 研究成果

①気泡の合体・分裂特性に及ぼす微小粒子の影響に関する基礎実験とモデル化

本研究組織では既報において粒子により気泡合体が促進することを明らかにし、粒子濃度が気泡合体に及ぼす影響を定量的に評価している。また実験結果に基づき粒子濃度 C_s の影響を既存の気液二相流用の気泡合体モデルに組み込み、スラリー気泡塔内流れを良好に予測できる数値計算手法を提案している。しかしながら、その妥当性の検証は粒子濃度の影響に関してのみしか実施していない。粒子濃度の影響に比べ、粒子径がスラリー気泡塔内流れに及ぼす影響を調べた例は非常に少ない。また、粒子径が気泡合体に及ぼす影響は定量的に評価されていない。そこで、擬二次元容器を用いて粒子径が気泡合体に及ぼす影響を定量的に評価した。

液相には常温、常圧の純水 (Millipore、Elix 3.0) を、気相には空気を、固相には平均粒子径 d_s が 60、100 及び 150 μm のシリカ粒子 (富士シリシア化学、CARiACT[®]、製品名 Q-10) を用いた。スラリーは内径 1.4 mm の気相流入ノズルから 276 mm 上方まで予め容器に満たした。高速度カメラ (IDT、Motion Pro X-3) を用いて二気泡の合体過程を観察した。

図 1 に二気泡の合体過程の典型例を示す。いずれの条件においても気泡合体過程は、後続気泡が先行気泡に接近する気泡接近段階、二気泡がほぼ一定の距離で接触を保つ液膜排出段階、液膜が破断する気泡合体段階の三つの素過程に分類できる。

$C_s = 0.20$ ではいずれの d_s においても $C_s = 0$ に比べ気泡合体段階の時間は短く、 d_s 低下に伴いその時間はさらに低下する傾向にある(図2)。すなわち、 d_s 低下に伴い気泡合体が促進する。しかしながら、この d_s の影響は図3に示す $C_s = 0.40$ のような高 C_s ではほとんどなくなり、いずれの d_s においても二気泡は接触後、ほぼ瞬時に合体する。

合体する二気泡間の液膜の排出時間 t_c [s] を測定し、粒子径が気泡合体に及ぼす影響を検討した。 t_c は確率変数であるため、100個の t_c の算術平均値を用いて C_s 及び d_s の気泡合体への影響を検討した。図4に t_c に及ぼす C_s 及び d_s の影響を示す。いずれの d_s においても、 C_s 増加に伴い t_c は低下し、また d_s 増加に伴い t_c は低下している。このとき、いずれの d_s においても $C_s \geq 0.45$ では二気泡は接触後ほぼ瞬時に合体したが、 t_c にもそれに相当する下限があり、 $C_s \geq 0.45$ では t_c の C_s 及び d_s 依存性は消失している。

本実験結果に基づき、気液二相流に対する Prince と Blanch の気泡合体効率式に粒子効果乗数を導入し、粒子濃度増加及び粒子径低下に伴う気泡合体促進効果を考慮した。本拡張モデルを気泡塔内流動三次元計算技術に組み込んだ。

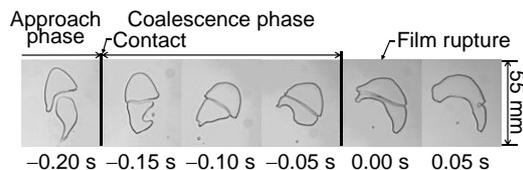


図1 $C_s = 0$ における二気泡の合体過程

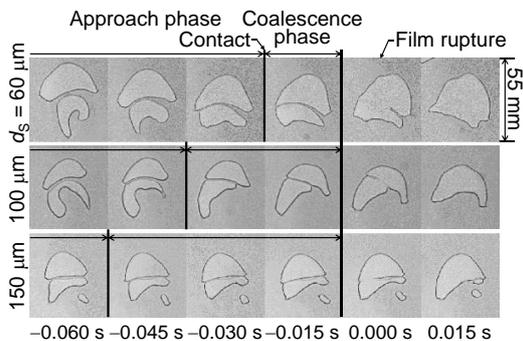


図2 $C_s = 0.20$ における二気泡の合体過程

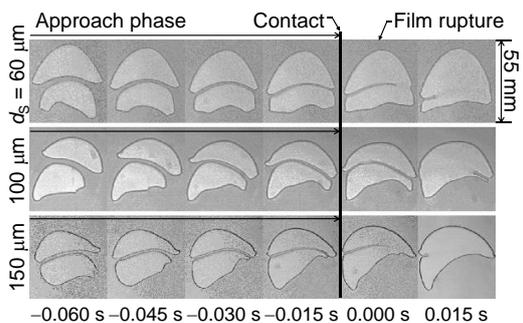


図3 $C_s = 0.40$ における二気泡の合体過程

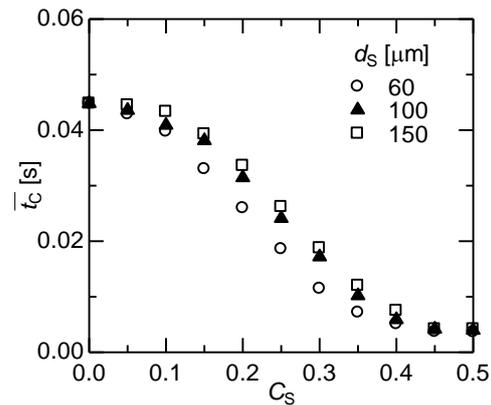


図4 粒子濃度及び粒子径が \bar{t}_c に及ぼす影響

②スラリー気泡塔内流動特性の把握と実験データベースの構築

気泡塔には正方形断面を有する高さ 2000 mm のアクリル樹脂製容器を用いた。水空気系では塔径が 150 mm 以上であれば、塔径(水力等価直径 D_H)が塔内平均体積率 α_G に及ぼす影響は無視できることが知られている。そこで、 $D_H = 200$ mm とした。容器底面には内径 1.4 mm の孔を 49 個有する板厚 5 mm の散気板を取り付けた。液相は水道水、固相は親水性の多孔質シリカ球とした。

初期スラリー液位 H_0 は 300 から 1000 mm、すなわち無次元初期液位 $H_0^* = H_0/D_H$ は 1.5 から 5.0 とした。気泡塔内に予めスラリーを満たし、コンプレッサ (ANEST IWATA、SLP-1501EB) から供給された空気をエアドライヤ (ANEST IWATA、RDG-150C) 及び容器下部のエアタンクを介して気泡塔内に流入させた。気相体積流量 Q_G は流量計 (日本フローセル、NVP-I (0-6 m³/h); FLT-H (5-25 m³/h); FLT-H (10-50 m³/h); 東京計装、AM-1000 (0-75 m³/h)) を用いて測定した。気相体積流束 J_G は FT 合成用気泡塔などにおいては 0 (10⁻¹ m/s) であるためその範囲を $J_G = 0.025 \sim 0.40$ m/s とした。

高速度カメラ (IDT、Motion Pro X-3) を用いて気泡塔内流動を撮影した。また自由表面近傍を撮影し、撮影した連続画像に画像処理を施して α_G を求めた。

本研究で対象とした全ての流れは、様々な大きさの気泡が混在し、かつ大規模な渦構造を有する非均質気泡流であった。図5に $C_s = 0$ 及び $H_0^* = 5.0$ における気泡塔内流動を例示する。 J_G 増加に伴って液位が高くなっている、すなわち J_G 増加に伴って体積率が增加している。 J_G 増加に伴い気泡合体頻度が増加するため、高 J_G ほど大きな気泡が見受けられた。 $J_G = 0.10$ m/s では塔径の半分程度の大きさの気泡が、 $J_G \geq 0.20$ m/s においては塔径程度大きさの気泡が観察された。塔径程度の大気泡の生成はほとんど $z/D_H \sim 2$ で生じ、大気泡のほとんどは細かい気泡に分裂することなく自由表面に到達して大きな自由表面の変動を引き起こした。

$C_s = 0$ における α_G を図6に示す。いずれの H_0^* においても J_G 増加に伴って α_G は増加し、 $J_G = 0.20$ m/s程度で J_G 増加に伴う α_G 増加率は著しく減少している。これは J_G 増加に伴い気泡合体頻度が増加し、上昇速度の高い大きな気泡が生成するためと考えられる。また、 H_0^* の増加に伴い α_G は低下している。これは H_0^* 増加に伴い気泡合体が促進され気泡径が大きくなるためと考えられる。

気泡塔内スラリー気泡流を図7に例示する。いずれの H_0^* においても C_s 増加に伴い自由表面高さが低下、すなわち C_s とともにボイド率が低下している。これは、粒子により気泡合体が促進されて上昇速度の速い大きな気泡が増えたためと考えられる。また、スラリー系においても水系と同様に自由表面の激しい変動が見られた。粒子が加わると塔内の可視性が著しく低下するため壁面近傍の気泡のみしか観察できないが、その自由表面変動から、水系と同様に塔径程度の大きさの大気泡が生じているものと考えられる。

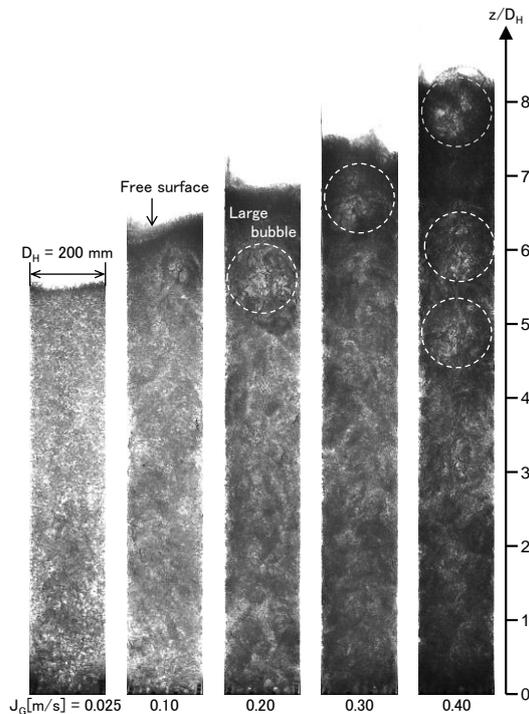


図5 気泡塔内流れ($H_0^* = 5.0$)

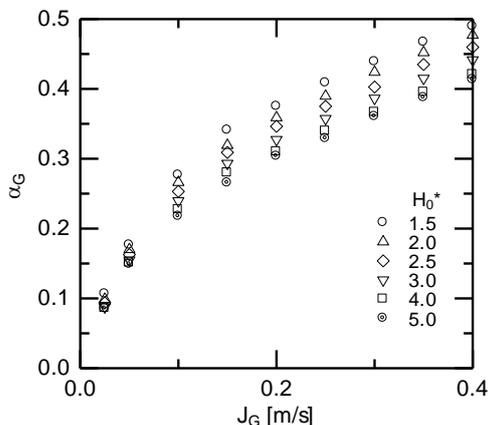


図6 気泡塔内平均体積率

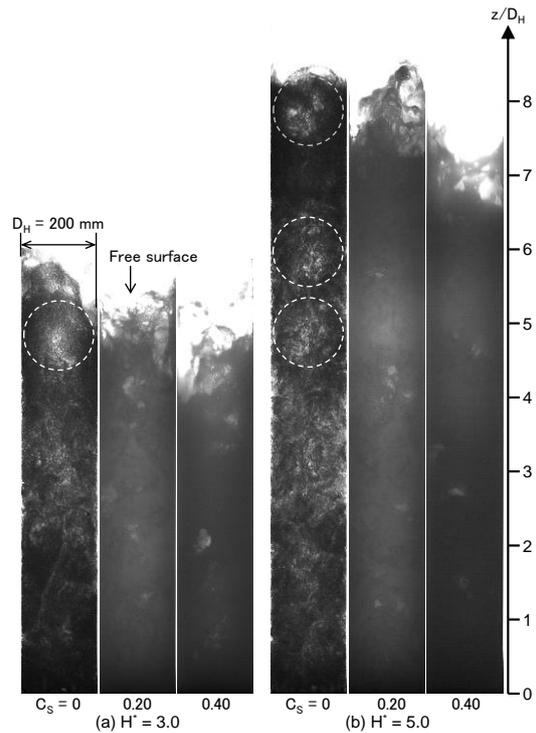


図7 気泡塔内スラリー気泡流($J_G = 0.40$)

この他、界面活性剤として Triton X-100 を用いた場合及び濡れ性の異なる粒子を用いた場合の気泡塔内流動や平均体積率などについても実験データを取得した。

③高気相体積率・高粒子濃度の気泡塔内流れの三次元計算技術の開発

要素研究①で得た粒子径の影響を考慮した粒子効果乗数の妥当性を検証するために、種々の C_s 及び d_s におけるスラリー気泡塔内気泡流を対象に、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計算手法による数値計算を実施した。

図8に $J_G = 0.034$ m/sにおける気泡塔中央断面の瞬時局所体積率 ε_G の分布を示す。いずれの条件においても体積率は中央領域で高く、壁面近傍で低い傾向がある。重力により粒子濃度に多少の軸方向分布が生じたが、 C_s との差は小さくほとんど一様な分布であった。

体積率の計算結果と実験結果の比較を図9に示す。粒子効果乗数を考慮しない場合、計算では体積率を過大評価している。これは元の気泡合体モデルでは粒子による気泡合体促進効果が再現されず、上昇速度の高い大気泡が生成されないためである。粒子効果乗数を用いて合体促進効果を考慮した場合、いずれの C_s 及び d_s においてもボイド率分布を良好に予測できている。以上の結果より、 t_c の測定値に基づき粒子効果乗数を既存の気液二相流用の気泡合体モデルに導入するこ

とにより、 C_s 及び d_s が気泡合体に及ぼす影響を良好に考慮できることを確認できた。この粒子による気泡合体促進効果は、気泡塔のような大規模な装置を用いなくとも擬二次元容器のような小型の装置を用いて評価できる。

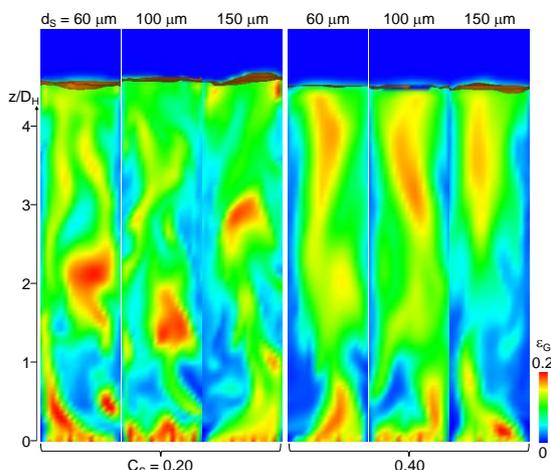


図8 気泡塔中央断面における瞬時ボイド率分布 ($J_G = 0.034$ m/s)

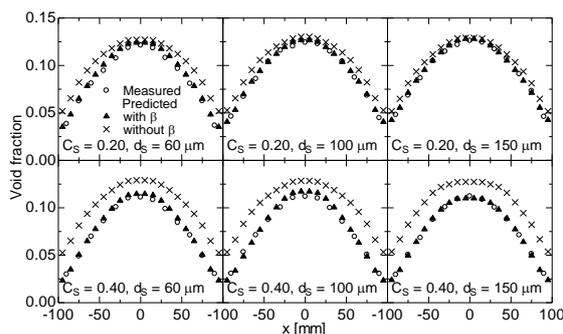


図9 体積率の計算結果と実験結果の比較 ($J_G = 0.034$ m/s。βは粒子効果乗数)

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23件)

- ① Shimpei Ojima, Shohei Sasaki, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Particle Diameter on Bubble Coalescence in a Slurry Bubble Column, Journal of Chemical Engineers of Japan, 査読有, Vol. 48, 181-189, 2015
DOI:http://doi.org/10.1252/jcej.14we248
- ② Jiro Aoki, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Contaminated Water in a Vertical Pipe, International Journal of Heat and Mass Transfer, 査読有, Vol. 83, 652-658, 2015
doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2014.12.062
- ③ Shimpei Ojima, Kosuke Hayashi, Shigeo

Hosokawa, Akio Tomiyama, Distributions of Void Fraction and Liquid Velocity in Air-Water Bubble Column, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol. 67, 111-121, 2014

doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2014.05.008

- ④ Shimpei Ojima, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Hydrophilic Particles on Bubbly Flow in Slurry Bubble Column, International Journal of Multiphase Flow, 査読有, Vol. 58, 154-167, 2014

doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2013.09.005

- ⑤ Shigeo Hosokawa, Ikumi Mikiyama, Akio Tomiyama, Development of a Submersible LDV Probe and its Application to Flows in a 4x4 Rod Bundle, Nuclear Engineering and Design, 査読有, Vol. 263, 342-349, 2013

doi:10.1016/j.nucengdes.2013.06.009

- ⑥ Mohd Hatta bin Mohd Akbar, K. Hayashi, Akio Tomiyama, Dirk Lucas, Effects of Inlet Condition on Flow Structure of Bubbly Flow in a Rectangular Column, Chemical Engineering Science, 査読有, Vol. 104, 166-176, 2013

doi:10.1016/j.ces.2013.09.019

[学会発表] (計15件)

- ① Akio Tomiyama, Bubbly Flow in Two-Phase & Three-Phase Bubble Column, 52nd European Two-Phase Flow Group Meeting (Plenary lecture), 2014. 5. 7, ドレスデン (ドイツ)
- ② Shohei Sasaki, Simpei Ojima, Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama, Effects of Height-to-Diameter Ratio on Gas Holdup in a Slurry Bubble Column, 2nd International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (MMPE2014), 2014. 9. 25, ハンブルグ (ドイツ)
- ③ Jiro Aoki, Shogo Hosoda, Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Effects of Surfactant on Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Vertical Pipes, 2nd International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (MMPE2014), 2014. 9. 26, ハンブルグ (ドイツ)
- ④ Jiro Aoki, Kosuke Hayashi, Shogo Hosoda, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama, Mass Transfer from Single Carbon Dioxide Bubbles in Contaminated Water, ASME 2014 4th joint US-European Fluids Engineering Division Summer Meeting and 11th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels (FEDSM2014), 2014. 8. 4, シカゴ (アメリカ)

- ⑤小嶋晋平, 佐々木翔平, 林公祐, 細川茂雄, 富山明男, スラリー気泡塔における気泡合体に粒子径が及ぼす影響, 混相流シンポジウム 2014, 2014. 7. 29, 道民センターかでの 2・7 (札幌・北海道)
- ⑥佐々木翔平, 小嶋真平, 林公祐, 富山明男, スラリー気泡塔内平均ボイド率に及ぼす初期液位の影響, 混相流シンポジウム 2014, 2014. 7. 29, 道民センターかでの 2・7 (札幌・北海道)

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