

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：32619

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24656146

研究課題名(和文)ソーレ効果を活用したガス分離用マイクロ流体デバイスの開発

研究課題名(英文)Development of a microfluidic device for gas separation utilizing the Soret effect

## 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) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：温度勾配によってガス分子が移動するソーレ効果を活用した水素分離デバイスの研究開発を実施した。具体的には水素と二酸化炭素の混合ガスをマイクロチャンネル内を通過させ、流れと垂直方向に温度差を印加し水素を濃化させる手法である。前半2年間ではMEMSプロセスを用いてシリコン基板とガラスを用いたデバイスを作成し、分離を2段化することで温度差80℃で0.8%の水素濃縮ができた。最終年度では濃縮を進めるため装置をステンレス化して300℃まで温度差をつけ、分離を3段化して1.22%まで濃縮できた。以上からソーレ効果および多段化の有効性は実証できたが、未だ実用的な濃縮とは言えず今後の新展開が望まれる。

研究成果の概要(英文)：The goal of this research is to develop a novel device for separating hydrogen gas utilizing the Soret effect, which produces a concentration difference only by imposing a temperature difference. In our experiment, the mixture gas of hydrogen and carbon dioxide was passed through a micro channel, in which temperature difference was imposed in the direction crossing the flow normally. In the first two years, we built a special device with silicon wafer and glass by MEMS fabrication technology, and imposed temperature difference of 80 Centigrade. With two-step separation, we obtained 0.8 % of hydrogen increment. In the last year, to enhance separation by increasing temperature difference, we remade the micro device by using stainless steel. With temperature difference of 300 Centigrade, and with three-step separation, we obtained 1.22 % increment of hydrogen concentration. We confirmed the validity of application of the Soret effect and multi-process to hydrogen separation.

研究分野：熱流体工学

キーワード：マイクロナノデバイス 熱工学 流体工学

### 1. 研究開始当初の背景

温度勾配下においてガス分子が移動する熱拡散現象であるソーレ効果は 40 年以上も前に発見されており当時は純粋に学術的な観点から研究がなされていた。しかしその後この現象をガス分離という実用技術に対して適用しようという取り組み例は非常に少ない。近年では庄司らの取り組み[1]のみと見られる。この現象は 2 種類の混合ガスに適用すると、軽いガスは高温側、重いガスは低温側に移動することにつながり、2 種のガスの分子量の差がとても大きな組み合わせ、例えば分子量の小さい水素と、二酸化炭素等の一般ガスのような混合ガスに適用すると、より大きな分離現象が起きることがわかっている。ソーレ効果を発生させる温度差の源としては例えば焼却炉の排熱や液化ガス蒸発時の冷熱などを利用することも可能で、省エネで環境に優しいガス分離技術につながる。

### 2. 研究の目的

上記で述べたソーレ効果を活用し、混合ガスを微細流路内で流動させて大きな温度勾配を印加すると、化学的な処理を一切することなくガス分離を行う全く新しい分離デバイスの実現が可能となる。単段プロセスのこれまでの研究では分離能力は小さいが確実にソーレ効果によってガス分離が生じていることがわかっている。本研究では微細加工技術を用いて超小型のデバイスを多数作成して連結するといった多重プロセス化デバイスを試作し、その分離性能と実用性の評価を目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1)MEMS デバイスその 1 (初年度)

著者らは先行研究[2]により内径 2mm の金属管に水素 - 二酸化炭素の混合ガスを流動させ、流れに直交する方向に温度差を印加して水素を濃化する実験を行った。しかしここでは実験装置は手作りによるもので加工精度上小型化に限界があった。そこで本研究ではまず今後の小型化や多段化を想定し、MEMS (Micro Electro-Mechanical Systems) 加工プロセス(産総研所有)を活用した小型デバイスを作成することにした。図 1 に作成した単段デバイスの装置の写真を示す。

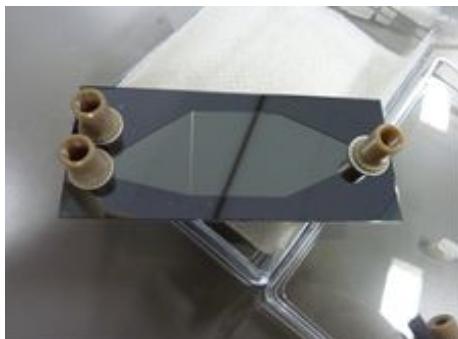


図 1 単段用デバイス (MEMS 加工)

これはシリコン基板とホウケイ酸ガラスを貼り併せて作成しており、内部の流路構造は、厚み 200  $\mu\text{m}$ 、幅 20mm の扁平な流路となっている。その上面(水冷)と下面(ヒータ加熱)に温度差 80 を印加し、流量 20 ~ 200 ml/min として、水素 - 二酸化炭素の混合ガスのガス分離実験を実施した。

#### (2)MEMS デバイスその 2 (2 年目)

2 年目においては、初年度での成果を踏まえ、水素の濃縮効果をさらに向上させるには多段化が必要となることから、同じ MEMS プロセスを使用して今度は複数のデバイスを作成し、プロセスを 2 段まで可能にできるような装置を作成した。図 1 とほぼ同形状のデバイスを 3 セットシリコン基板上に作成した装置を図 2 に示す。内部の流路構造は、厚み 200  $\mu\text{m}$ 、幅 15mm の扁平な流路となっている。3 セットのうちの 2 セットでまず 1 段目の分離を実施し、半分の流量になった各出口からのガスを集めて残りの 1 セットの入口に流入させて 2 段目の分離を実施するものである。

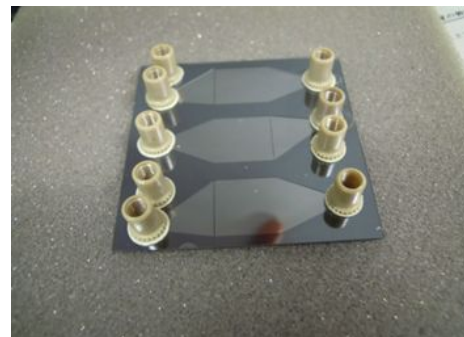


図 2 2 段用デバイス (MEMS 加工)

#### (3)ステンレスデバイス (最終年度)

2 年目までの実験結果から分かってきた課題として、シリコン基板 - ホウケイ酸ガラスのデバイスでは、ガス流路のコネクタ部分の接着剤の耐年温度の制約から高温側温度として 80 までしか加えられないことがわかり(低温側温度は 0 )、印加温度の高温化が必要となった。また本来シリコン基板 - ホウケイ酸ガラスのデバイスでは 200 程度までが耐熱限界であるため、3 年目では抜本的に改善するためにデバイスのボディー材料をステンレスに変更することにした。具体的には厚さ 200  $\mu\text{m}$  の薄いステンレス板を積層し拡散接合して内部に流路を作り込む手法を採用し外注加工にてデバイスを製作した。作成したステンレス製デバイスの写真を図 3 に示す。下部のステンレス板部分の内部に流路のデバイスが内蔵されており、写真では板上部に溶接で接続されたガスの流入管・流出管等が示されている。

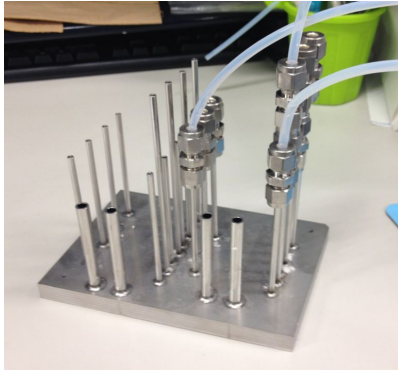


図3 ステンレス製デバイス

このデバイスの内部の流路の構造は図2のものと同じであるが、このステンレス製デバイスでは7セットのデバイスが作り込まれている。これはまず4セットで1段目のプロセスを実施し、その出口からのガスを集めて次に2セットを用いて2段目のプロセスとし、さらにその出口からのガスを集めて残りの1セットに流して3段目とするためである。つまり段数を3段まで実施可能としてあり、その効果も検証できるようにした。

#### 4. 研究成果

##### (1) MEMS デバイスその1 (初年度)

シリコン基板-ホウケイ酸ガラスの単段用デバイスでの実験結果を図4に示す。横軸は水素(ここでは使用ボンベ内の濃度48.7%) - 二酸化炭素(同51.3%)の混合ガスの流量で、縦軸は出口2つから流出したガス中の水素濃度の測定結果である。水素濃度はガスクロマトグラフィーを用い、装置に連結する状態で測定した。図中 High のシンボルは高温側出口(ソーレ効果により水素が濃化する側)からのガス中の水素濃度であり、図中 Low のシンボルは低温側出口(水素が薄くなる、つまり二酸化炭素が濃化する)からのガス中の水素濃度である。印加温度は低温側0、高温側80である。グラフからわかるように、どの流量においても水素は濃化されており、入口濃度48.7%から49.0%前後まで、0.3%程度の濃化が実現していることがわかる。理論的にはこの温度差80では、入口濃度から水素は0.9%上昇する予測であったが、二つの出口に流れが分かれる際のガスの再混合と、印加温度の装置内部での鈍化が原因で、実際分離濃度が小さくなったものと考えている。

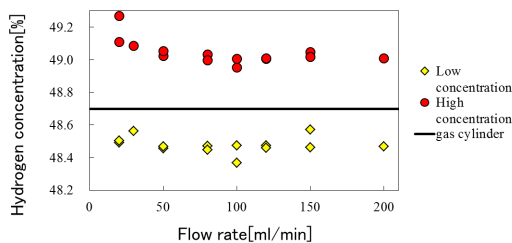


図4 単段用デバイスの実験結果

##### (2) MEMS デバイスその2 (2年目)

上記(1)と同様なデバイスであるが、プロセスを2段階化する実験の結果を図5に示す。横軸は水素(ここでは使用ボンベ内の濃度48.2%) - 二酸化炭素(同51.8%)の混合ガスの流量で、縦軸は出口から流出したガス中の水素濃度の測定結果である。図中黄色のシンボルは1段目の高温側出口での水素濃度であり、赤色のシンボルは2段目の高温側出口での水素濃度である。また黄色のシンボルは1段目の低温側出口での水素濃度であり、赤色のシンボルは2段目の低温側出口での水素濃度である。印加温度は(1)と同様に低温側0、高温側80である。

図5からわかるように低流量側で、分離濃度の変化が見られるが、概ね水素濃度は1段目で入口濃度から0.2%濃化し、2段目で入口濃度から0.4%濃化していることがわかる。上記(1)と同様に理論濃度と比べて低い分離となっているが、2段目の濃度は1段目の濃度の約2倍となっているので、プロセスの多段化による線形的な濃縮は可能であることが分かった。

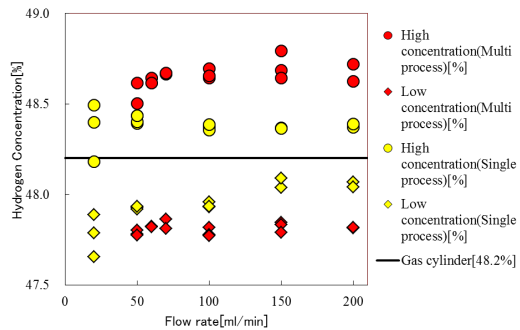


図5 2段用デバイスの実験結果

しかし再混合等による分離効果の鈍化は無視できず、これを解決するためには、印加温度を大幅に大きくし、またプロセスの段数を飛躍的に大きくする(例えば数十段)必要があることも明確になった。

##### (3) ステンレスデバイス (最終年度)

上記(1)(2)の結果を踏まえて、オールステンレス製にて作成したデバイスでの実験結果を図6に示す。ステンレス製にすることで、高温側温度を310まで上げられるようになった。低温側は10であり、温度差としては300であった。

図6の横軸は水素(ここでは使用ボンベ内の濃度48.9%) - 二酸化炭素(同51.1%)の混合ガスの流量で、縦軸は出口から流出したガス中の水素濃度の測定結果である。図中赤色のシンボルは1段目の高温側出口での水素濃度であり、水色のシンボルは2段目の高温側出口での水素濃度で、また緑色のシンボルは3段目の高温側出口での水素濃度である。

これからわかるように、1 段目で入口濃度より 0.48%の濃化が見られる。理論値では、入口濃度より 1.63%濃化する予測であるが、かなり実験では低下していることがわかった。これは前述した出口部分でのガスの再混合と同時に、ステンレスの熱伝導率の悪さにも起因していると考えられる。デバイス表面に 300 の温度差を印加しても内部のガス流路部分では 200 程度の温度差しかかかっていない状況が別に実施した熱伝導の数値モデルによる計算からもわかっている。

水素濃度は予測値より下回ったものの、プロセスを 2 段にすると 0.88%になり、3 段にすると 1.30%と濃化しており、多段化の効果はほぼ線形に増加していることがあらためて実証できた。

またグラフには示していないが、1 例として高温側温度を 520 まで上げ、低温側温度を 20 とした単段プロセスのみの実験をしたところ、どの流量でも水素は入口濃度から 0.60%濃化するデータを得ている。つまり温度差を大きくしていくと濃化は進むこと自体は実証できたことになる。

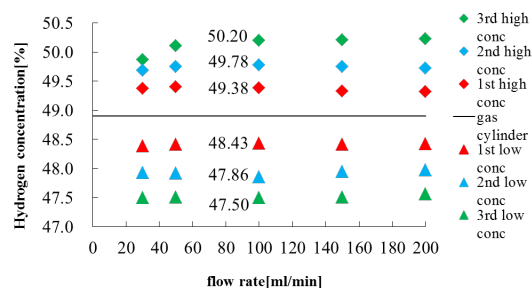


図 6 ステンレス製デバイスの実験結果

以上の 3 年間の研究から、ソーレ効果自体をうまく機能させ、また多段プロセスによる濃縮効果は成立することが実証できたと言える。しかし実際の分離濃度を向上させるためにはかなりの多段化が、理論値に基づく予測以上に必要になることも分かった。例えば今回作成したステンレス製のデバイスを用い、また実験の結果わかった濃縮効果（これは理論的な分離効果より小さい）のデバイスで段数を増加させて、入口濃度 50%の水素を出口で 90%となるのに必要な段数を試算すると、約 130 段も必要であることがわかった。これらのことから、将来的に装置を巨大化せず実用的な分離濃度を得るためには更なる斬新なアイデアが必要になるものと思われる。

#### <引用文献>

[1]庄司正弘、井上満、松本壮平、“ソーレ効果を用いた水素混合ガスの成分分離デバイスの開発に関する基礎研究”、科研費萌芽研究(2004~2005)。

[2]S.Kuwatani, S.Watanabe and N.Ono, Study and development of a mini-tube gas separator utilizing the Soret effect,

Journal of Thermal Science and Technology (JSME), Vol.7(2012), No.1, p31-44.

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

T.Wako, M.Shimizu, S.Matsumoto and N.Ono, Development of a MEMS channel device for hydrogen gas separation based on the Soret effect, Journal of Thermal Science and Technology(JSME), Vol.9(2014), No.1, pp1-12.

〔学会発表〕(計 7 件)

T.Higurashi, Y.Yoshikawa, S.Matsumoto and N.Ono, Improvement of mini-channel gas separator utilizing Soret effect, The 11th International Conference on Flow Dynamics(Oct.8-10,2014,Sendai,Japan), Proceedings, OS10-39(USB Memory).

N.Ono, T.Wako, T.Higurashi, S.Matsumoto, Development of a mini-channel gas separator utilizing Soret effect, The 15th International Heat Transfer Conference (IHTC-15), (Aug.10-15,2014,Kyoto)Paper No. IHTC15-8752.

日暮智博、若生貴裕、小野直樹、微細流路を用いたソーレ効果ガス分離器の多段化、日本機械学会関東支部第 53 回学生員卒業研究発表講演会(2014 年 3 月 14 日) 講演番号 1601.

T.Wako, A.Omomo, T.Higurashi and N.Ono, Development and evaluation of a mini-tube multistage gas separator utilizing Soret effect, The 10th International Conference on Flow Dynamics (Nov.25-27, 2013, Sendai, Japan), Proceedings, GS1-19(USB Memory).

若生貴裕、清水雅恵、松本壮平、小野直樹、ミニチャンネルを用いたソーレ効果ガス分離器の試作と評価、第 50 回日本伝熱シンポジウム(2013 年 5 月 29 日~31 日)講演番号 C135、講演論文集 p72-73.

清水雅恵、若生貴裕、小野直樹、微細流路を用いたソーレ効果ガス分離器の開発、日本機械学会関東支部第 52 回学生員卒業研究発表講演会(2013 年 3 月 15 日) 講演番号 1015、講演前刷集 p379-380.

T.Wako, M.Shimizu and N.Ono, Development of micro-tube gas separator utilizing the Soret effect, The 9th International Conference on Flow Dynamics (Sept.19-21,2012,Sendai,Japan), Proceedings, OS11-3 (USB Memory).

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.meo.shibaura-it.ac.jp/ono/index\\_eng.html](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・研究チーム長  
研究者番号：70358035

以上