

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 24 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420158

研究課題名(和文) 屈折率調整された複雑流路を有する光触媒水浄化リアクター内のデジタルホログラム計測

研究課題名(英文) Digital hologram measurement in a photocatalyst water-purification reactor with complicated duct matched by a refractive index

研究代表者

佐竹 信一 (Satake, Shin-ichi)

東京理科大学・基礎工学部電子応用工学科・教授

研究者番号：90286667

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：球充填した円管(SPP)において、作動流体として使われた水に屈折率マッチング方法を使って複雑な流れを理解するために、デジタルのホログラフィックなPTVの3次元化可視化を実行した。球はMEXFLONで作られており、その屈折率が水と同じである。TiO₂で担持された球は、光触媒水処理反応炉において使われた。この水浄化反応炉の性能は、メチレンブルー水の溶液を使って再循環実験によって検証された。MEXFLONビーズによる速度定数は、球の屈折率を水のそれとマッチさせていることの有効性を確認されたため、ガラスビーズの速度定数より3.8倍大きかった。

研究成果の概要(英文)：We carried out 3-D visualization of digital holographic PTV to understand the complicated flow in a sphere-packed pipe (SPP) by using a refractive index-matching method with a water used as a working fluid, the spheres was made of MEXFLON, whose refractive index is the same as that of a water. Spheres coated with TiO₂ are used in water-treatment photoreactors. A water-treatment reactor was constructed containing TiO₂-coated spheres of the fluoropolymer MEXFLON, which has a refractive index identical to that of water. The performance of the reactor in water purification was examined by means of a recirculation experiment using an aqueous solution of methylene blue. The pseudo-first order rate constants on the MEXFLON beads was 3.8 times greater than that on glass beads, confirming the effectiveness of matching the refractive index of the spheres to that of water.

研究分野：熱流体工学

キーワード：水浄化 光触媒 デジタルホログラム

1. 研究開始当初の背景

掛け流し方式でない浴槽をもつ温泉でレジオネラ感染症の集団感染事故がたびたび起きている。また温泉プールなどでもレジオネラ菌が検出されている報告がある。これらは循環方式で水を循環させているあいだにレジオネラ菌が発生するからである。この菌を循環させながら除去する方法があれば温泉の安全が保障されかつ運用面での経費削減につながる。一方、光触媒は Honda and Fujishima によって発見されて以来、さまざまな応用がなされており上述のレジオネラ菌などの殲滅目的とした水浄化リアクター内に用いられている。このリアクターは繊維上に光触媒を担持しその繊維を円錐状のリップに取り付け水の流路内に取り付けている。成功を収めているものの繊維はフィルターの役割を果たし流れを持続させるには高圧下で行わなければならない。さらに圧損の問題もあり簡単に家庭用途の機器に取り付けることは難しい。実際実用化されたものは印刷工場内用の大規模施設用である。一方、繊維フィルター型ではなく、ペブルを導入しペブル内に光触媒を導入し効果を得ようとする方法がある。元来ペブルは化学混合や熱伝達促進に用いられる。その流れ場は圧損が生じポーラス内部流れに酷似しており流路内の流路パスに特殊なパスが生じることが結城らによって2次元 PIV(Particle Image Velocimetry)によって示されている。この手法だと2次元計測のため複雑な流れパスを同定することが難しい。一方、近年はホログラムの原理を用いた画像処理流速計である Holographic PIV(HPIV) が開発され発展している。PIVの原理にホログラムを応用した画像処理流速計であるが、本申請者らは HPIV を角柱内流れや円管内乱流への適用を行いマクロ領域の3次元計測法を開発した。さらにはシーディング粒子の像を得るだけでなくマイクロバブルの3次元取得方法を開発し光触媒において生ずるバブルの計測に成功した。この方法はホログラムを用い、粒子にレーザー光をあて、生じたホログラム像を直接 CCD に記録し、計算機上でホログラムを再生する DHPTV(Digital Holographic Particle Tracking Velocimetry) である。さらに本グループでは、マッチングインデックス法をこの DHPTV に応用した NaI 水溶液内のアクリルで作成されたペブル球を充填した円管内流れの3次元計測に成功した。しかしながら上述の水処理内の流れ場に適用する場合 NaI 水溶液を用いたマッチングインデックス法は適用不可能である。したがってアクリル球ではなくメックスフロン球を用いることで水を流動媒体としたマッチングインデックス法の DHPTV 計測を試みる。メックスフロンはほぼ水と同等の屈折率を有しかつ透過率が95%とペブルが2個、3個と重畳した領域においても光透過率が高い。さらに完全にペブルを通して水の

なかにレーザー光を透過できるため、流体計測の利点だけでなく、このペブルの表面に光触媒を担持することでより効果的な光触媒反応ができる。TiO₂の担持方法は例えば Marco Faustini et al.のような MEMS 技術を用いて最適な整理された配置にペブル球上に配置する。この特殊な光特性を持ったペブル球を用いた水浄化システムの構築とその最適化について DHPTV を用いた実験計測を実施することで行う。

2. 研究の目的

光触媒を担持したペブルを充填した円管内流れをデジタルホログラフィック計測手法をペブル間の複雑流れのフローパスを伴う3次元流れ場に応用を試みる。本研究は、光反応を伴う3次元流体計測を実施するために、メックスフロンでペブル球を作成することでインデックスマッチング法の適用を可能としペブル内複雑流れをペブルによる光路を阻害させることなくホログラム計測を可能とする。また、光触媒反応によるマイクロバブルの3次元位置同定も行う。光反応を伴うペブル内円管の流体計測を行うことを目的とする。すでに、光触媒から発生するバブルの挙動に関するトラッキングの取得に成功しておりこれをペブル内流れにも適用し、ペブル内3次元フローパス中に計測中に発生するバブルの挙動を捉えることを想定している。さらにこのバブル発生による圧損の増加も定量的に計測を行う。レジオネラ菌水溶液のシミュラントとしてメチレンブルー水溶液を用いてリアクターの浄化効率を定量的に検出する。ペブルの配置と径における最適化をこの浄化効率を用いて行う。

3. 研究の方法

3.1 可視化の方法

本研究では、循環方式内に光触媒の殺菌効果を用いたリアクターを設置することにより菌を殲滅させる装置の小型化と高効率化を目指す。その際、実験と数値計算の両側面から検討を行う。本研究で用いられているホログラムを用いた方法では、1台のカメラ構成で3次元の粒子画像が得られ、高速度カメラを使うことにより高時間分解での計測を可能としペブル内部の流れの同定を可能とする。本研究では、マイクロチャンネル内の計測に成功しているこの技術をベースにし、光触媒を担持したペブル充填層の計測に適用することを目的としている。また、反応発生するマイクロバブルの同定もデジタルホログラムで行う。マイクロバブルの発生は、管内部に付着し圧損を引き起こしポンプの効率劣化を引き起こす。メックスフロンペブル充填層管を有する実験装置の概略図を図1に示す。本実験では、ダブルパルス Nd:YLF レーザ ($\lambda = 527 \text{ nm}$) を光源として使用し、繰り返し周波数 1kHz で2台のカメラと同期して撮影を行った。レーザーはビームエキスパンダによって直径 5cm のビームとし、これをハーフミラーで分割して観察領域越しに2台のカ

メラに入射した．ハーフミラーを透過したレーザーが入射する水平方向の光軸にカメラ1を，ハーフミラーに反射された後さらに2枚のミラーで反射したレーザーが垂直入射する光軸上にカメラ2を設置した．カメラ1に届くビームの方が明るいいため，カメラ1にはNDフィルタを装着し撮影画像の輝度を合わせてある．2台のカメラの光軸は同じペブル充填領域を通過し，直交している．流路の円管にはFEP樹脂押し出しパイプ(外形12mm, 内径10mm)を用い，観察領域には図2に示すように直径5mmのメックスフロン球を充填し，ウォータージャケットを設けている．図3(a)，(b)に，メックスフロンペブルが水中で透明化する様子を示す．作動流体として脱気した水を循環させ，トレーサ粒子として直径 $40\mu\text{m}$ の球状ポリスチレン粒子を用いた．充填層内のレイノルズ数($Re_d=U_d d/\nu$)は1050で流れるように調整した．ここで U_d は流量から換算した平均流速， d はメックスフロン球直径を示す．このとき円管内の平均流速は 0.21m/s であった．2台のカメラとレーザーをシグナルジェネレータによって同期し，サンプリングレート1kHz，ダブルパルスの間隔 $100\mu\text{s}$ にて $1024\times 1024\text{pixels}$ のホログラム画像を812フレーム撮影した．カメラは最大解像度 2336×1728 ($7\mu\text{m}/\text{pixel}$)のデジタルCMOSカメラ(IDT NR5-S2, NX5-S2)を使用した．

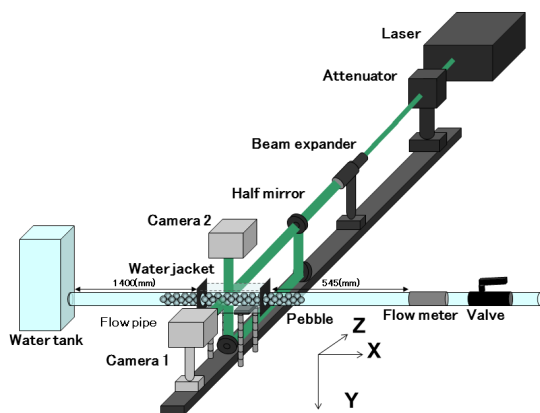


Fig.1 Experimental setup

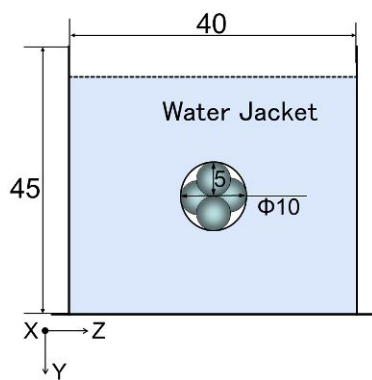


Fig.2 The cross plane of an observation region in the Y-Z plane

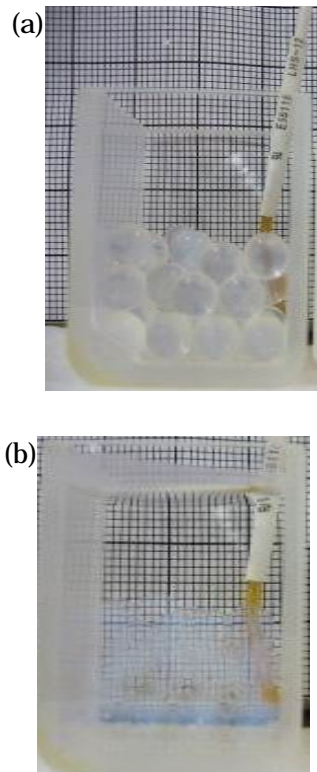


Fig.3 (a) MEXFLON pebble without water (b) MEXFLON pebble in water

3. 2 反応実験方法

本測定で用いた直径5mmのペブルを充填したリアクターを図4に示す．リアクターは，内径が10mmのFEP管，光触媒を担持していないペブル4球，ディップコーティングにより光触媒を担持したペブル20球からなる．ペブルは図5のように最密充填配置を層状に組み合わせて充填した．ペブルの材質をSUS，ガラス，MEXFLONと変化させ3種類のリアクターを試作した．

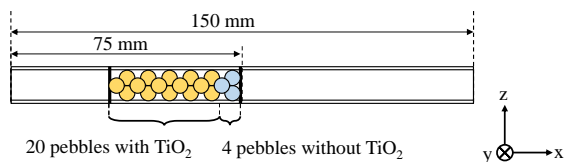


Fig.4 Water-purification reactor

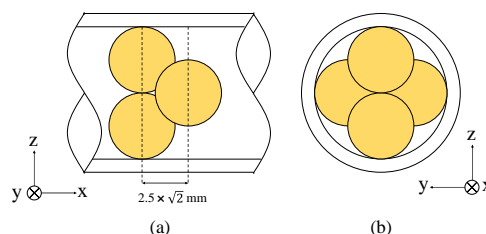


Fig.5 Packing structure of pebbles: (a)

Flont view, (b) Side view

実験装置の概要を図 6 に実験条件を Table 1 に示す。実験装置は試作したリアクター、流量計、リザーバー、マグネットポンプ、恒温水槽で構成した。初期濃度が 1 ppm の MB 溶液 650 mL をリザーバーに注入し、液温が 20℃ になるまで循環させた。液温が 20℃ になったタイミングから 1 時間は UV 照射を行わないで溶液を循環させ、その後 8 時間は UV 照射を行って溶液を循環させた。

MB 溶液は UV 照射を開始してから一定時間ごとに流路内から溶液の採取を行い、分光光度計（浜松ホトニクス、PMA-12, C10027-01）を用いて濃度を測定した。MB 溶液の浄化特性は UV 照射を開始したときの MB 溶液濃度で各時間の MB 溶液の濃度を正規化し、MB 溶液の擬一次速度定数 k_{app} [h⁻¹] を算出することで評価した。 k_{app} は正規化した濃度データ A/A_0 を $\exp(-k_{app}t)$ でフィッティングすることで算出した。

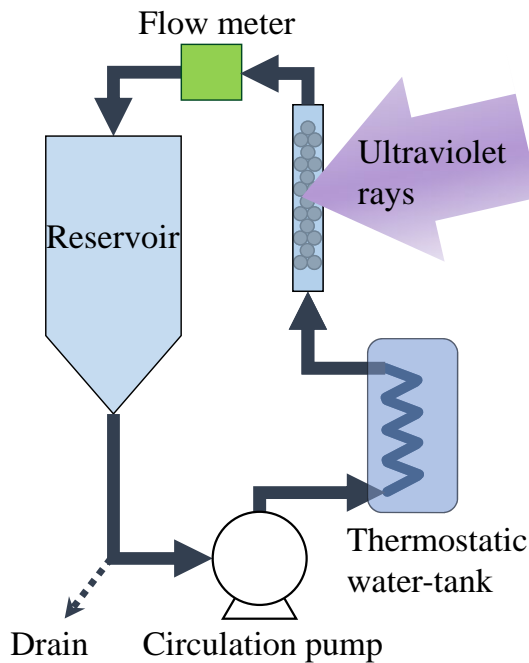


Fig.6 Experimental setup of the water-purification reactor

Table 1 Circulation condition of water-purification reactor

| | |
|-----------|------------------------|
| 溶液容量 | 650 mL |
| MB 溶液初期濃度 | 1 ppm |
| UV 照度 | 2.5 mW/cm ² |
| 流量 | 1.5 L/min |

4. 研究成果

4. 1 可視化実験結果

図 7 にカメラ 1 で撮影したホログラム画像を、図 8 にカメラ 2 のホログラム画像を示

す。水とメックスフロンの屈折率がほぼ等しいためペブルは水中で見かけ上透明化し、画像の全域でトレーサ粒子のフリンジ像を観測することができた。

次にカメラ 1、カメラ 2 で撮影したホログラム画像をコンピュータ上で再生し、トレーサ粒子像を再構築した。このとき、812 枚の画像を平均化して作成したバックグラウンド画像を用いて背景除去処理を行った。各カメラで得られた、812 フレームの粒子座標をトラッキングして流速場を取得し重ね合わせた。カメラ 1 とカメラ 2 で、約 5000 個の総ベクトル数を得られた。図 9 に 2 台のカメラで得られた流速場を示す。同じペブルの周辺に対して水平・垂直両方向よりベクトルを得ることに成功した。

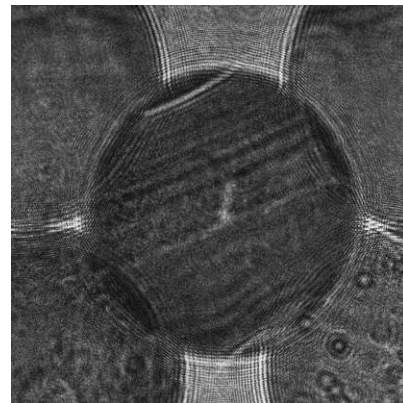


Fig.7 Hologram image captured by the Camera 1

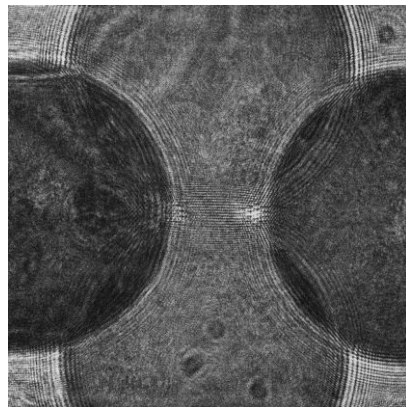


Fig.8 Hologram image captured by the Camera 2

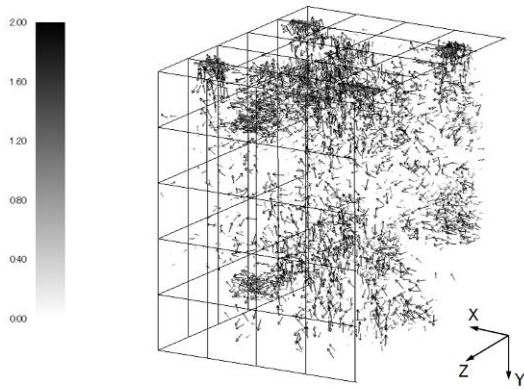


Fig.9 Velocity vectors obtained by two-cameras

4.2 反応実験結果

図10にSUS, ガラス, MEXFLONを用いたリアクターにおけるMB溶液浄化特性を示す. また, このグラフにフィッティングを行い, k_{app} を算出した結果をTable 2に示す. Table 2からMEXFLONを用いたリアクターはガラスを用いたリアクターよりも k_{app} が3.8倍高いことが確認された.

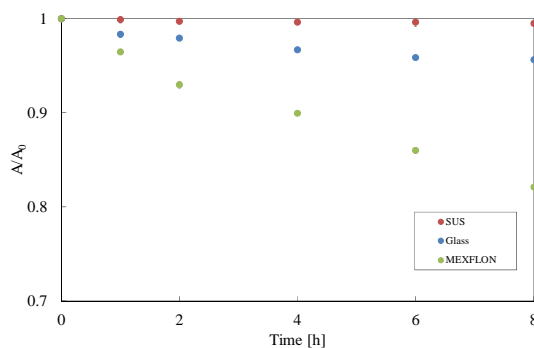


Fig.10 Photocatalytic degradation of methylene blue

Table 2 The pseudo-first order rate constants k_{app}

| 材質 | 擬一次速度定数 k_{app} [h^{-1}] |
|---------|--------------------------------|
| SUS | 7.17×10^{-4} |
| Glass | 6.64×10^{-3} |
| MEXFLON | 2.55×10^{-2} |

また, 図11にFEP管底部におけるリアクター透過後のUV光の様子を示す. SUSではUV光がFEP管底部まで透過しないことが確認された. また, ガラスでは底部までUV光が透過するものの, 作動流体とガラスにおける屈折率の不整合によりUV光が集光することが確認された. 一方, MEXFLONにおいては作動流体との屈折率整合により

歪みのないUV光が確認された. これによりUV光が光触媒に効率よく照射され k_{app} が上昇したと考えられる.



Fig.11 UV radiation transmitted through pebbles: (a) SUS, (b) Glass, (c) MEXFLON

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 3件)

S. Satake, Y. Aoyagi, N. Unno, K. Yuki, Y. Seki, M. Enoda, "Three-dimensional flow measurement of a water flow in a sphere-packed pipe by digital holographic PTV", Fusion Engineering and Design, 98-99, (2015) pp. 1864-1867.

Masataka Kuniyasu, Yusuke Aoyagi, Noriyuki Unno, Shin-ichi Satake, Kazuhisa Yuki, Yohji Seki, "Digital holographic PTV for complicated flow in a water by two cameras and refractive index-matching method," Optical Review, Volume 23, Issue 3, 2016, pp.529-534

Masataka Kuniyasu, Noriyuki Unno, Shin-ichi Satake, Kazuhisa Yuki, Yohji Seki, "Water-treatment reactors using titanium dioxide-modified polymer beads with an identical refractive index to water", Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, Volume 338, 1 April 2017, Pages 8-12,

[学会発表](計 10件)

Shin-ichi Satake, Yusuke Aoyagi, Takuma Tsuda, Noriyuki Unno, and Kazuhisa Yuki, "Three Dimensional Flow in a Sphere-packed pipe by digital holographic PTV and numerical simulation" in "5th International Conference on Porous Media and Their Applications in Science, Engineering and Industry", June 22-27, 2014, Kona, Hawaii, Eds, ECI Symposium Series, Volume (2014).

Shin-ichi Satake, Yusuke Aoyagi, Noriyuki Unno, Kazuhisa Yuki, Yohji Seki, Mikio Enoda, "Three-dimensional flow measurement of a water flow in a

sphere-packed pipe by digital holographic PTV", the 28th Symposium on Fusion Technology (SOFT 2014), San Sebastian, Spain, Kursaal Congress Center, from 29th September to 3rd October 2014.

Masataka Kuniyasu, Yusuke Aoyagi, Noriyuki Unno, Shin-ichi Satake, Kazuhisa Yuki, Yohji Seki, and Mikio Enoeda, "Three-dimensional measurement with two cameras of a water flow in a sphere packed pipe by digital holographic-PTV", Proc. of 7th International Conference on Porous Media & Annual Meeting, Centro Congressi Padova "A. Luciani", May 18 - 21, 2015, Padova, Italy

國安 政孝,青柳 湧介,海野 徳幸,佐竹 信一,関 洋治,榎枝 幹男,"二台カメラを有する DHPTV 法による水中におけるペブル充填された円管内流れの三次元可視化",第52回日本伝熱シンポジウム講演論文集 (2015-6.3-6.5),福岡国際会議場、福岡市

Masataka Kuniyasu, Yusuke Aoyagi, Noriyuki Unno, Shin-ichi Satake, Kazuhisa Yuki, Yohji Seki and Mikio Enoeda, "Digital holographic-PTV for complicated flow in a water by two cameras and refractive index-matching method (Invited)", Proc. of OIE'15,, pp. 12-13, Sep. 1-3, Carelicum, Joensuu, Finland, (2015)

Noriyuki Unno, Masataka Kuniyasu, Shin-ichi Satake, "Digital holographic-PTV measurement of microbubbles caused by photocatalytic reaction," First International Symposium on Recent Progress of Energy and Environmental Photocatalysis(Photocatalysis 1), Noda, Tokyo University of Science, Sep. 2-3, (2015)

國安 政孝,青柳 湧介,海野 徳幸,佐竹 信一,結城 和久,関 洋治,"デジタルホログラフィック PTV と屈折率整合法を用いた水中の複雑な流動場の3次元計測,"日本機械学会熱工学コンファレンス 2015 講演論文集 [2015.10.24-25, 大阪大学] F122

M. Kuniyasu, N. Unno, S. Satake, K. Yuki and Y. Seki, "Effect of UV illumination on the pressure drop measurement in a pebble bed reactor coated with TiO₂", The 27th International Symposium on Transport Phenomena, 20-23 September 2016, Honolulu, USA.

Masataka Kuniyasu, Noriyuki Unno, Shin-ichi Satake, Kazuhisa Yuki,

Yohji Seki, " Three-dimensional flow measurement of a sphere-packed pipe by Digital holographic-PTV", Proceedings of the 4th International Forum on Heat Transfer, IFHT2016, November 2-4, 2016, Sendai, Japan, IFHT2016-1932

國安 政孝,海野 徳幸,佐竹 信一,結城 和久,関 洋治" DHPTV 法による光触媒水浄化リアクター内流れの三次元可視化",ホログラフィック・ディスプレイ研究会 (HODIC),高知・高知大学 (2016.12.2) HODIC Circular ホログラフィック・ディスプレイ研究会 Vol. 36, No. 4 (Dec. 2016) pp. 22-25

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

佐竹 信一 (SATAKE SHINICHI)

東京理科大学・基礎工学部・教授

研究者番号：9 0 2 8 6 6 6 7

(2)研究分担者

関 洋治 (SEKI YOHJI)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 那珂核融合研究所 ITER プロジェクト部・研究員 (定常)

研究者番号：0 0 4 6 9 7 9 3

(3) 研究分担者

海野 徳幸 (UNNO NORIYUKI)

山口東京理科大学・工学部・講師

研究者番号：7 0 7 2 1 3 5 6