



Process intensification of Taylor-Couette flow reactor with complex fluids

Masuda, Hayato

(Degree)

博士 (工学)

(Date of Degree)

2016-03-25

(Date of Publication)

2018-03-25

(Resource Type)

doctoral thesis

(Report Number)

甲第6644号

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/D1006644>

※ 当コンテンツは神戸大学の学術成果です。無断複製・不正使用等を禁じます。著作権法で認められている範囲内で、適切にご利用ください。



論文内容の要旨

氏 名 増田 勇人

専 攻 応用化学専攻

論文題目 (外国語の場合は、その和訳を併記すること。)

Process intensification of Taylor–Couette flow reactor

with complex fluids

(テイラー・クエット流反応装置を用いた

複雑流体プロセスの強化に関する研究)

指導教員 大村 直人 教授

(注) 2, 000 字～4, 000 字でまとめること。

持続性社会の実現に向けて、化学工学の新しいパラダイムになり得るとして「プロセス強化」が注目されている。プロセス強化とは、単なる既存のプロセス改良ではなく、コンパクト化かつ飛躍的な性能向上を狙った革新的なプロセス設計論である。達成すべきポイントとして 1) 運動量・熱・物質の移動速度を強化すること、2) すべての分子に同じ履歴を持たせるということ、が挙げられる。つまり、プロセス強化の有力な手法の一つは高い押し出し性能(シャープな滞留時間分布)かつ各移動速度が強化された装置を提案することである。その装置設計戦略に加え、対象プロセスのボトルネックを克服することで、飛躍的な性能の向上が狙える。例えば、対象系が平衡反応であるならば、反応装置と分離装置を組み合わせることで、平衡の制約を超えることが可能となる。本論文では、プロセス強化を達成しうる反応器としてテイラー・クエット流装置(TCFR)を提案する。テイラー・クエット流は固定式外円筒と回転式内円筒の同心円筒間流れで、ある臨界レイノルズ数(Re_c)を超えるとテイラー渦流が形成される。テイラー渦流は互いに逆方向に回転するドーナツリング状の渦セルが軸方向に連なった流れで、この渦運動により混合・伝熱が促進される。さらに、小さな軸流を与えると各渦セル対が崩壊することなく押し出されることから、押し出し性の高い反応器とみなせる。これらの特徴を活かして、TCFR を化学プロセスに適用する研究は 30 年以上行われてきた。しかし、これらの研究の多くは単純なプロセス(ニュートン流体かつ单相流)に限定されており、実産業の需要を考えれば、非ニュートン流体や混相流などの複雑流体プロセスへの適用および装置設計の知見が必要となる。本研究では非ニュートン流体プロセスと気液二相流プロセスを取り上げる。

非ニュートン流体プロセスのボトルネックは装置内で、せん断速度の分布に起因する粘度分布が生じることである。せん断がかかりにくい領域では高せん断速度領域に比べ、流体粘度が高くなり、流動性の悪化を招くため、できるだけ均一なせん断場で操作する必要がある。また、流動パラメータであるレイノルズ数(Re)をどのように定義するかについても、検討を行う必要がある。一方、気液二相流プロセスの例として、バイオプロセスや食品プロセスが挙げられるが、これらのプロセスではせん断に対して脆弱な物質を扱う。それらの物質を損傷せずに物質移動を促進させるには、穏やかで効率的な混合が必要となる。

TCFR は上記のようなプロセスのボトルネックを克服しうる。まず、通常の撹拌槽などに比べ、TCFR はギャップ幅が狭いため、非ニュートン流体系において、粘度分布を抑えることができる。さらに、低せん断で効率的な混合が可能である。これらの特徴に加え、プロセス強化を目指した装置設計戦略に基づくと、TCFR は複雑流体プロセスの強化に適した装置であると考えられる。本研究では、TCFR を用いた複雑流体プロセス強化の知見を得ることを目的とした。

本論文では第二章・第三章で非ニュートン流体プロセス強化、第四章で気液二相流プロセス強化について、それぞれ論じた。本論文は五つの章から構成されており、各章の概要を以下に示す。

第一章では、プロセス強化を目指した装置設計論について詳しく述べ、さらに TCFR を用いた複雑流体プロセスへの適用を考えた際の課題を、これまでの他者の研究動向などを交えて、論じている。

第二章では非ニュートン流体プロセスを設計する際、基礎となる無次元パラメータであるレイノルズ数(Re)の定義について、検討した。非ニュートン流体プロセスでは、装置内のせん断速度分布に伴い、粘度が局所的に分布するため、 Re の定義が困難となる。現実的な対応としては、装置内の粘度分布を明らかにし、系に有効な粘度に基づく有効 $Re(Re_{eff})$ を定義することである。中でも、テイラー・クエット流系においては、テイラー渦流が形成される Re_{cr} の把握が特に重要である。本章では、様々な半径比の TCFR を対象に、数値解析によって粘度分布を明らかにした後、得られた分布から有効粘度の見積もり方について検討を行い、 Re_{eff} を定義した。ここで、非ニュートン流体の粘度モデルには Carreau モデルを用いて、shear-thinning 性(非ニュートン性の一つで、せん断速度の増加に伴い、粘度が減少する性質)に焦点を絞り、検討を行った。また、その臨界値をニュートン流体系の場合と比較した。

有効粘度を算出する際、装置内のせん断速度分布の二乗で重み付けされた装置内の算術平均粘度を有効粘度とした。これは、内円筒を回転させるのに必要な動力(所要動力)が局所粘性散逸エネルギーの総和と等しいと考えられることがベースとなっている。このように定義された Re_{eff} の臨界値は幅広い装置半径比で、ニュートン流体系の臨界レイノルズ数と一致した。このことは有効レイノルズ数に基づけば、渦形成条件の選定が容易であることを意味しており、装置設計の重要な指針となり得る。

さらに、数値解析を行わずに渦形成が起こる条件の予測を行うために、有効せん断速度と内円筒回転速度の関係を調べた。ここで、有効せん断速度とは、有効粘度に対応するせん断速度である。その結果、有効せん断速度は内円筒回転速度に一次比例し、その比例定数は装置半径比とレオロジー特性に依存することがわかった。また、それらの相関式を構築することで、内円筒回転速度、装置半径比、レオロジー特性から有効せん断速度、つまり有効粘度の推算が可能となった。算出された Re_{eff} をもとに、 Re_{cr} を超える内円筒回転速度を予測し、流動可視化実験を行った結果、提案された相関式の妥当性が示された。

第三章では、反応を伴う非ニュートン流体プロセスの代表例として、デンプン加水分解反応を取り上げ、第二章で提案した Re_{eff} をもとに TCFR の性能評価を行った。デンプン加水分解反応は、デンプン懸濁液に熱を加える糊化プロセスと、得られた糊化デンプンに酵素を加える糖化プロセスから成る二段階プロセスである。本プロセスには通常、攪拌槽が用いられるが、糊化デンプンが shear-thinning 性を示すため、槽内のせん断速度分布に起因する粘度分布が流動性の悪化を招き、酵素との混合が不十分となる。また、糊化プロセスでは伝熱、糖化プロセスでは混合が重要な操作であり、求められる操作が異なることから攪拌翼の選定などが困難となる。そこで、本章ではデンプン加水分解プロセスに TCFR を適用し、プロセスの連続化および効率化を試みた。入口より、連続的に原料を供給し、装置中央部から酵素を供給した。また、本装置には二つのジャケットが取り付けられており、装置前半部(糊化プロセス)では糊化させるために高温に、後半部(糖化プロセス)では酵素の最適温度になるようジャケット温度を設定した。 Re_{eff} を用いて、糖収率と装置内流動状態の関係を整理すると、テイラー渦流が形成される条件では渦形成なしのときと比べ、糖収率が2~3 倍向上することがわかった。さらに、産業レベルで求められる高濃度デンプンの効率的かつ連続的な加水分解も行えた。以上より、TCFR の適用はデンプン加水分解プロセスの強化に有効であった。

第四章では、テイラー・クエット流装置を用いた気液二相プロセス強化について論じた。気液二相流では、気泡の浮力が遠心力よりも強いいため、流れが安定せず、液単相流における Re_{cr} を超えたあたりでも渦形成は見られない。一方で、さらに Re を上昇させることで、遠心力が強くなり、テイラー渦流が形成され、渦内部に気泡がトラップされるため、ガスホールドアップおよび気泡の滞留時間が増加することが知られている。しかし、高 Re 領域では、エネルギー消費量が多い上に、バイオプロセスや食品プロセスのような生物を扱うプロセスでは高せん断力により生物が死滅・損傷されるため、適さない。本研究では、内円筒回転速度が低い場合においても、テイラー渦流が安定化するように遠心力の強化を狙い、内円筒にリブを装着した。リブを装着することで遠心力が強化され、低回転速度においても渦が安定化し、ガスホールドアップが増加した。その結果、リブなしの場合と比べて、最大で2.5 倍程度、気液比界面積が増加することがわかった。また、リブを装着した際、内円筒回転速度の増加に伴い、リブ近傍に蓄積した気泡の合いが起こりやすくなり、平均気泡径も大きくなった。このトレードオフ関係により、気液比界面積は内円筒回転速度に対しピークをもち、最適な操作条件が存在することがわかった。

第五章では、本研究の総括および、TCFR を用いた複雑流体プロセスの強化に関する将来展望を述べた。

(氏名：増田 勇人 NO. 4)

以上のように、本論文では非ニュートン流体プロセスと気液二相流プロセスを例として、TCFR を用いた複雑流体プロセスの強化について論じた。各プロセスにおいて、ボトルネックに着目し、そこを克服・強化することで、複雑流体においてもプロセス強化が行えることを見いだした。本論文で示した、プロセス強化戦略をもとに反応器を提案し、ボトルネックを強化するという手法は、その他の系に対しても普遍性があり、今後のプロセス設計の中枢をなすことが期待される。

氏名	増田 勇人		
論文 題目	Process intensification of Taylor-Couette flow reactor with complex fluids (テイラー・クエット流反応装置を用いた複雑流体プロセスの強化に関する研究)		
審査委員	区 分	職 名	氏 名
	主 査	教授	大村 直人
	副 査	教授	鈴木 洋
	副 査	教授	富山 明男
	副 査	教授	太田 光浩
	副 査		
要 旨			
一般に、非ニュートン流体プロセスのボトルネックは、装置内でせん断速度の分布に起因する粘度分布が生じることである。低せん断領域では高せん断速度領域に比べ、流体粘度が高くなり、流動不良を招くため、できるだけ均一なせん断場で操作する必要がある。また、流動パラメータであるレイノルズ数(Re)をどのように定義するかについても、検討を行う必要がある。一方、気液二相流プロセスの例として、バイオプロセスや食品プロセスが挙げられるが、これらのプロセスではせん断に対して脆弱な物質を扱う場合が多く、それらの物質を損傷せずに物質移動を促進させるには、穏やかで効率的な混合が必要となる。本論文では、非ニュートン流体および、気-液混相流を複雑流体と位置づけ、テイラー・クエット流反応装置(TCFR)が、これら複雑流体を扱うプロセスのボトルネックを克服しうものと考え、この反応装置を利用したプロセス強化について検討している。 第1章では、プロセス強化を目指した装置設計論について詳しく述べ、さらに TCFR を用いた複雑流体プロセスへの適用を考えた際の課題を、これまでの他者の研究動向などを交えて論じている。 第2章では、非ニュートン流体プロセスを設計する際、基礎となる無次元パラメータであるレイノルズ数(Re)の定義について検討している。テイラー・クエット流系においては、テイラー渦流が形成される Re_{cr} の把握が特に重要であるが、非ニュートン流体プロセスでは、装置内のせん断速度分布に伴い、粘度が局所的に分布するため、Re の正確な定義が困難となる。実際の攪拌槽などの設計では多くの場合、装置内の粘度分布を明らかにし、系に有効な粘度に基づく有効 Re (Re_{eff})を定義することで対応している。本章では、様々な半径比の TCFR を対象に、数値解析によって粘度分布を明らかにした後、得られた分布から有効粘度の見積もり方について検討を行い、Re_{eff}を定義する方法を提案している。非ニュートン流体の粘度モデルには Carreau モデルを用いて、shear-thinning 性に着目した検討を行っている。内円筒を回転させるのに必要な所要動力が局所粘性散逸エネルギーの総和と等しいと考えられることから、有効粘度を算出する際、装置内のせん断速度分布の二乗で重み付けされた装置内の算術平均粘度を有効粘度としている。この有効粘度に基づき算出された Re_{eff}の臨界値は、幅広い装置半径比でニュートン流体系の臨界レイノルズ数と一致することを確認している。このことは、本論文で提案された有効レイノルズ数に基づけば、渦形成条件の選定が容易であることを意味しており、装置設計の重要な指針となり得ることを見出している。さらに、数値解析を行わずに渦形成が起こる条件の予測を行うために、有効せん断速度と内円筒回転速度の関係を調べている。有効せん断速度は内円筒回転速度に比例し、その比例定数は装置半径比とレオロジー特性に依存することを見出している。それらの相関式を構築することで、内円筒回転速度、装置半径比、レオロジー特性から有効せん断速度、つまり有効粘度の推算を可能にしている。算出された Re_{eff}をもとに Re_{cr}を超える内円筒回転速度を予測し、流動可視化実験結果と比較することで、提案された相関式の妥当性を明らかにしている。 第3章では、反応を伴う非ニュートン流体プロセスの代表例として、デンプン加水分解反応を取り上げ、第2章で提案した Re_{eff}をもとに TCFR の性能評価を行っている。デンプン加水分解反応は、デンプン懸濁液に熱を加える糊化プロセスと得られた糊化デンプンに酵素を加える糖化プロセスの二段階の反応プロセスからなっており、通常用いられる攪拌槽では、糊化デンプンが shear-thinning 性を示すため、槽内の低せん断領域が流動不良を招き、酵素との混合が不十分となる場合がある。また、糊化プロセスでは伝熱、糖化プロセスでは混合が重要な操作であり、求められる操作が異なることから攪拌翼や攪拌条件の選定が困難となる。そこで、本章ではデンプン加水分解プロセスに TCFR を適用し、プロセスの連続化および効			

氏名	増田 勇人
率化を試みている。原料投入口より、連続的にデンプン懸濁液を供給し、装置中央部から酵素を供給する実験を行っている。実験装置に二つのジャケットを取り付けることで、装置前半部(糊化プロセス)では糊化させるために高温に、後半部(糖化プロセス)では酵素の最適温度になるよう温度制御を可能にしている。Re_{eff}を用いて、糖収率と装置内流動状態の関係を整理すると、テイラー渦流が形成される条件では渦形成なしのときに比べ、糖収率が 2~3 倍向上することを明らかにしている。さらに、産業レベルで求められる高濃度デンプンの効率的かつ連続的な加水分解も可能であることを示しており、TCFR の適用はデンプン加水分解プロセスの強化に有効であることを明らかにしている。 第 4 章では、テイラー・クエット流装置を用いた気液二相流プロセス強化について論じている。気液二相流では、気泡の浮力が遠心力よりも強いいため、流れが不安定であり、液单相流における Re_{cr}を超えたあたりでは渦形成は見られない。Reをさらに上昇させることで遠心力が強くなり、テイラー渦流が形成され、渦内部に気泡がトラップされるため、ガスホールドアップおよび気泡の滞留時間が増加することが報告されている。しかし、高 Re 領域では、エネルギー消費量が多い上に、バイオプロセスや食品プロセスのように微生物などの脆弱な物質損傷を取り扱う場合は、高せん断力により物質の損傷が懸念されている。本章ではこの点を考慮して、内円筒回転速度が低い場合においても、テイラー渦流が安定化するよう遠心力の強化を狙い、内円筒にリブを装着している。リブを装着することで遠心力が強化され、低回転速度においても渦が安定化し、ガスホールドアップが増加し、リブなしの場合と比べて、最大で 2.5 倍程度、気液比界面積が増加することを見出している。また、内円筒回転速度の増加に伴い、リブ近傍に蓄積した気泡の合いが起こりやすくなり、平均気泡径も大きくなることで気液比界面積が減少することを見出し、内円筒の回転数増加に対して、ガスホールドアップと気液比界面積がトレードオフの関係があることを明らかにしている。その結果、気液比界面積は内円筒回転速度に対して、最適な操作条件が存在することを明らかにしている。 第 5 章では、本研究の総括および、TCFR を用いた複雑流体プロセスの強化に関する将来展望を述べている。 以上、本論文は非ニュートン流体プロセスと気液二相流プロセスを例として、TCFR を用いた複雑流体プロセスの強化について論じたものである。プロセスのもつボトルネックに着目し、これを克服・強化することで、複雑流体においてもプロセス強化が行えることを見いだしていること、提案されているプロセス強化戦略と手法は普遍性を有しており、今後のプロセス設計の中核をなすことが期待されることから、本論文は工学的価値が高いものである。よって、提出された論文は工学研究科学位論文評価基準を満たしており、学位申請者の増田 勇人は、博士（工学）の学位を得る資格があると認める。	