

国際共同研究事業 令和 5(2023)年度実施報告書

令和 6 年 4 月 17 日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]
東北大学・流体科学研究所
[職・氏名]
教授・小宮敦樹
[課題番号]
JPJSJRP 20191801

1. プログラム名 中国との国際共同研究プログラム(JRP with NSFC)

2. 研究課題名

(和文) 超臨界流体による汚染土壌の改質・浄化 -高効率分離促進技術の開発-

(英文) Supercritical Fluid Assisted Contaminated Soil Remediation:

Key Mass Transfer Issues and Technological Development

3. 共同研究実施期間

令和 2 年 1 月 1 日 ~ 令和 6 年 12 月 31 日 (5 年 0 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

Chinese Academy of Sciences・Professor・CHEN Lin

5. 当該年度実施状況

- ・当該年度実施計画書の「当該年度実施計画の概要」の内容と対応させつつ、当該年度の実施状況を簡潔に記載してください。再委託又は共同実施を行った場合は、それぞれの実施状況がわかるように記載してください。
- ・当該年度又は前年度(複数年契約を締結し繰越を行った場合)の各費目における増減が研究経費総額の 50% (この額が 300 万円を超えない場合は 300 万円)に相当する額を超えた場合は、その理由と費目の内訳を変更しても計画の遂行に支障がないと考えた理由を記載してください。

本事業では、超臨界条件下における二酸化炭素の特異な熱・物質移動現象とその相互作用を理解し、超臨界流体を用いた高効率低環境負荷の汚染土壌改質手法を確立することを目的としている。研究 5 年目にあたる本年度は、これまで研究計画通りに進んできたことから、申請書記載の年度目標である「大スケールの実験実施、多成分汚染物質系での実験実施」を行い、主として「基軸 2:超臨界流体と汚染物質の相互作用を分子スケールで明らかにする」および「基軸 3:汚染土壌内における複雑物質輸送現象を明らかにし、土壌汚染の改質技術を確立する」に関する以下の 3 項目について研究を進めてきた。

1. 汚染土壌を用いた物質分離実験(大スケール実験)の実施
2. 超臨界流体中の諸熱物性値計測実験の実施
3. 超臨界流体による物質分離のモデル構築

このうち、項目 1 の大スケール実験の実施は、具体的な汚染土壌や重金属といった毒性の強い物質を使用することから、使用が許可されている中国側で行い、日本側では項目 2, 3 を実施した。また、令和 5 年度は互いのサイトビジットを実施し、大スケール実験装置や物性値計測実験装置の見学を行い、これまでオンライン会議のみで確認してきた装置詳細の説明を対面で行うことができ、互いの研究理解につながった。一方、これまで通りオンラインでの研究報告会も 2 か月おきに実施し、各々の研究成果の速報を共有した。以下、各 3 項目についてまとめる。

汚染土壌を用いた物質分離実験(大スケール実験)の実施

上述のように、本実験では数十 kg の毒性の強い実際の汚染土壌サンプルを用いて分離実験を実施するため、2022 年度に中国北京市郊外の Chines Academy of Sciences 施設内に大型分離装置を製作し、超臨界流体中での物質分離実験を行った。実験パラメータはオンライン定例会で十分に議論し、2022 年度の日本側の実験で得られた高圧条件下での物質輸送速度を基に決定した。装置の稼働・試運転については前年度に実施済みであったので、実験パラメータ決定後ただちに実験を実施した。実験担当は中国側の学生が行い、得られたデータはオンライン定例会で共有化を図った。実験結果より、超臨界近傍では gas-like, liquid-like に差異は観られなかったものの、20-30MPa の高圧領域では超臨界の状態により分離の傾向に差異が生じることが観察された。Cr 等の重金属の分離実験では、liquid-like 領域では分離効率が低いものの、超臨界流体内滞在時間を長くすることで効率が徐々に上昇することが確認された。一方で gas-like 領域では、滞在時間に関わらず分離効率は処理開始直後から 80-100%程度を示し、滞在時間の依存性が低いことが明らかとなった。より高圧条件下ではその時間依存性が強く表れ、より早い段階で高い効率を示すことも明らかとなった。これは、前年度に得られた知見である「Liquid-like」な状態と「Gas-like」な状態の違いによる物質移動現象の違いが起因しており、場の影響を強く受けることが実験的に明らかとなった。

超臨界流体中の諸熱物性値計測実験の実施

諸熱物性値計測実験においては、2022 年度に実施をしてきた実験系を引き続き利用し、熱移動および物質移動現象可視化の両実験を並行して行った。温度-圧力条件については、亜臨界領域から超臨界領域の広範囲とした。特に、臨界点近傍(307K-7.6MPa)においては、測定系内の時空間的な不均衡壁温度が原因で定量的なデータの取得ができなかったことから、より高精度な温度制御機能を付して実験を進めた。具体的にはペルチェ素子の性能を向上させるとともに、新たな手法である動的ペンダントドロップレット法(DPDVA 法)も採用し評価を行った。観察実験では気相条件下および超臨界条件下における動的な物質輸送を直接可視化し、理論式を用いて物質拡散係数を計測した。実験は安定した条件で行うことができ、実験結果より物質輸送現象は圧力に大きく依存することは明らかとなったが、中国側で行ってきた理論推算値に比して 1 オーダーほどの差異が生じ、現在はその差異の原因を検討しているところである。数値計算を援用し周囲環境を含めた解析を行ったところ、局所的に生じる液滴周りの自然対流が影響を及ぼしていることが明らかとなり、次年度以降は観察セルのデザインを含めた再検討を行っていくこととした。得られた知見は中国とのオンライン会議にて共有しており、中国側でも理論解析を見直していくこととなった。

超臨界流体による物質分離のモデル構築

物質分離モデルの構築については、日中両国にてそれぞれの実験データを持ち合うことで進めてきた。2 か月毎のオンライン定例会にて双方が研究進捗状況を報告し、それぞれの実験(大スケール実験および物性計測実験)の観点からモデル化を検討してきた。キーとなる現象は時間的に変化する密度場とそれに起因する浮力対流の存在である。Liquid-like と gas-like の条件の違いにより、大規模実験においても物性計測においても優れた差異を示していることから、密度による物質分離モデルの表記を検討してきた。前年度に中国側で数値計算を進めており、これらの解析データも参考にし、モデル構築の基礎となるデータおよび考え方をまとめた。

以上、本年度得られた研究成果は定期オンライン会議にて共有化し、また互いのサイトビジットの他、2023 年 11 月には仙台開催の国際会議にてオーガナイズドセッションを企画し、超臨界流体を利用した物質分離促進に関する研究会を開催した。この他に 8 月に南アフリカで開催された国際会議、および 9 月にイタリアで開催された国際会議においても成果発表を行った。次年度はサイトビジットを再度行うとともに中国側でもワークショップを開催する。

7. 研究発表(当該年度において本共同研究の一環として本事業による支援を受けたことを明示して発表したものについて記載してください)

[雑誌論文] 計(1)件 うち査読付論文 計(1)件

通番	共著の有無*1	著者名、論文標題等*2
1	○	Yuki Kanda, Haruki Ito, <u>Lin Chen</u> and Atsuki Komiya, Optical visualization of heat transfer in supercritical carbon dioxide under near-critical, liquid-like, and gas-like conditions, Physics of Fluids, 35 (2023), 067108. DOI: 10.1063/5.0149005
2		

[学会発表]計(10)件 うち招待講演 計(1)件

通番	共著の有無*1	発表者名、発表標題等*2
1	○	神田雄貴, <u>陳林</u> , 小宮敦樹, 位相シフト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定量評価, 第60回日本伝熱シンポジウム, (2023)
2	○	<u>Yizhi Zhang</u> , <u>Lin Chen</u> , <u>Qixian Wu</u> , Yuki Kanda, Atsuki Komiya, J.G. Zang, Y.P. Huang, Transient boundary heat transfer analysis of a near-critical experimental chamber realized by pixelated phase-shifting interferometry, The 2023 International Workshop of Energy Conversion (IWEC 2023), (2023).
3		Yuki Kanda, Heat transfer visualization under supercritical condition using optical interferometry, 2nd International Conference on Energy Storage and Saving, (2023), China (online), Invited.
4	○	<u>Rui Zhang</u> , <u>Lin Chen</u> , Yuki Kanda, Atsuki Komiya and Haisheng Chen, Asymptotic analysis for the thermal-mechanical effects of CO ₂ near its gas-liquid critical point with different approaches in thermo-physical properties, The 17th International Heat Transfer Conference (IHTC17), (2023), South Africa
5	○	Yuki Kanda, Ryuhi Mukai, <u>Yingxue Hu</u> , <u>Lin Chen</u> and Atsuki Komiya, Accurate measurement for transient heat and mass transfer in the vicinity of gas-liquid interface during acetone vaporization utilizing the phase-shifting interferometer, The 17th International Heat Transfer Conference (IHTC17), (2023), South Africa
6	○	Ryuhi Mukai, Yuki Kanda, <u>Yingxue Hu</u> , <u>Lin Chen</u> and Atsuki Komiya, Measurement and Evaluation of Diffusion coefficients of water and propylene glycol in CO ₂ under different pressure using the DPDA method, The European Conference on Thermophysical Properties (ECTP2023), (2023), Italy
7	○	<u>Karim Ragui</u> , <u>Lin Chen</u> , Yuki Kanda and Atsuki Komiya, Heat and mass transfer of aggregate contaminants in porous media structures of a soil sample under supercritical CO ₂ injection, 20th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2023), (2023).
8	○	<u>Mengshuai Chen</u> , <u>Lin Chen</u> , Yuki Kanda and Atsuki Komiya, Numerical analysis of CO ₂ flows across critical region in porous media on a microchip, 20th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2023), (2023).
9	○	Ryuhi Mukai, Yuki Kanda, <u>Yingxue Hu</u> , <u>Lin Chen</u> and Atsuki Komiya, Evaluation of organic solvent diffusion in Pressurized CO ₂ gas utilizing dynamic pendant drop volume analysis, 20th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2023), (2023).
10	○	<u>Yingxue Hu</u> , Yuki Kanda, Ryuhi Mukai, Junwei Su and Atsuki Komiya, Pore-scale simulation of two-phase displacement and mass transfer in porous media, 20th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2023), (2023).

〔図 書〕 計(0)件

通番	共著の有無*1	著者名、著書名等*2
1		

*1 相手国側参加者との共著(共同発表)がある場合は○と記入。

*2 当該発表等を同定するに十分な情報を記載すること。例えば学術論文の場合は、著者名、論文標題、雑誌名、巻号、発行年(西暦)、最初と最後の頁、掲載論文の DOI、学会発表の場合は発表者名、発表標題、学会等名、発表年(西暦)、発表地(国名、国外開催の場合のみ)、図書の場合は著者名、著書名、出版社名、発行年(西暦)、総ページ数、ISBN、など(順番は入れ替わってもよい)。相手国側参加者との共著となる場合は、著者名が複数であっても省略せず、その氏名を記入し下線を付すこと。

*3 足りない場合は適宜行を追加すること。

8. 本事業による産業財産権の出願・取得状況(当該年度に出願又は取得したもの)

〔出 願〕 計(0)件

通番	産業財産権の名称、発明者、権利者、産業財産権の種類、番号、出願年、国内・外国の別
1	

〔取 得〕 計(0)件

通番	産業財産権の名称、発明者、権利者、産業財産権の種類、番号、取得年、国内・外国の別
2	

* 必要に応じて、欄を追加してください。