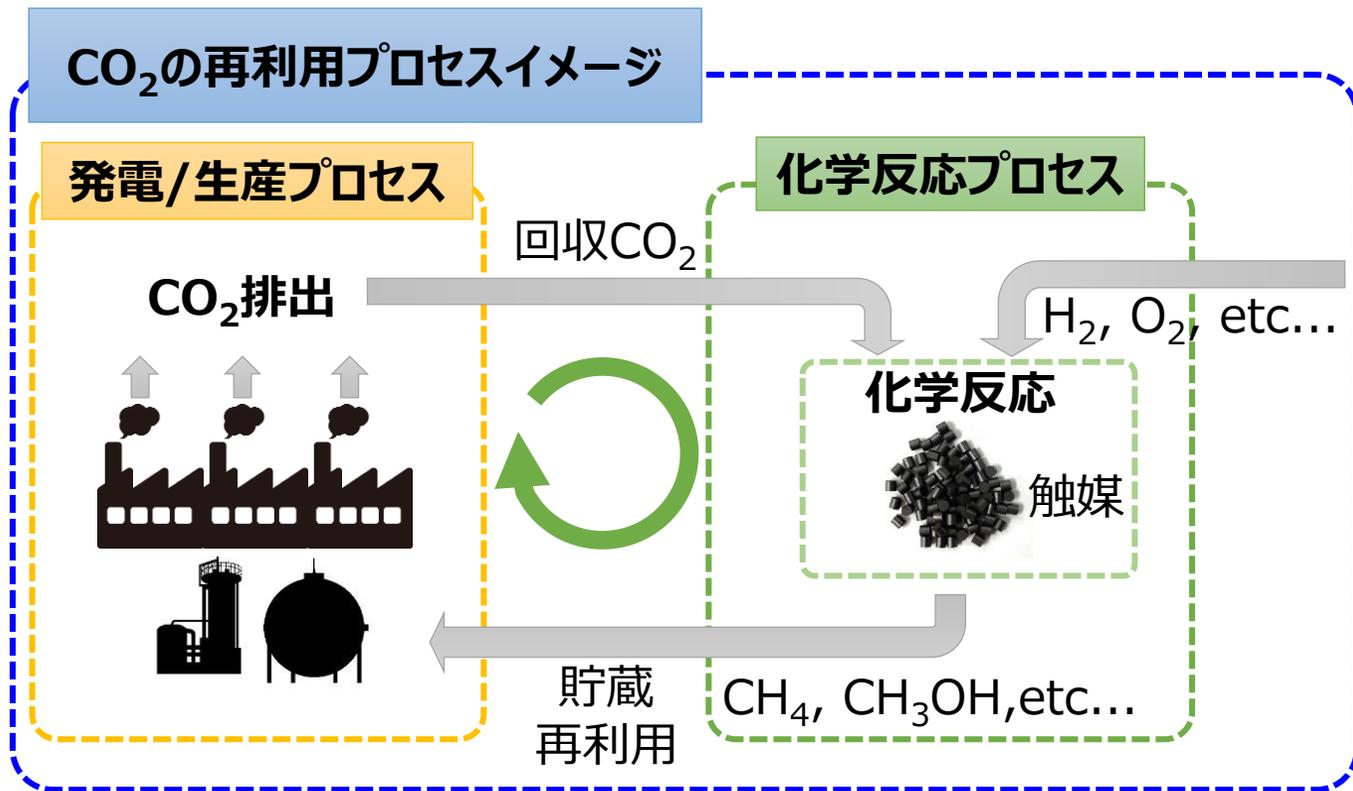


3次元ペレット触媒形状を考慮した 触媒反応器内の数値シミュレーション

株式会社 コベルコ科研
計算科学センター

カーボンニュートラル実現への取り組み

2050年カーボンニュートラルの実現のために、革新的な技術の開発とその早期の社会への実装は重要な課題となっている。



<課題>

- 発電/生産によるCO₂排出量の削減
- 化学反応プロセスの高効率化（最適化）

- 高効率・高選択性の触媒開発
- 反応器内の最適設計（反応効率の最適化）

<反応器設計における課題>

- 反応器・触媒の形状の最適化
- 反応器内の温度制御（不均一化の抑制）
- 副反応の抑制
- 触媒の劣化対策

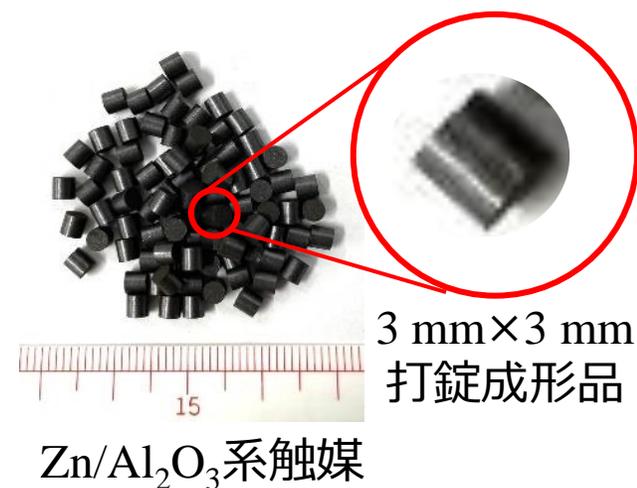
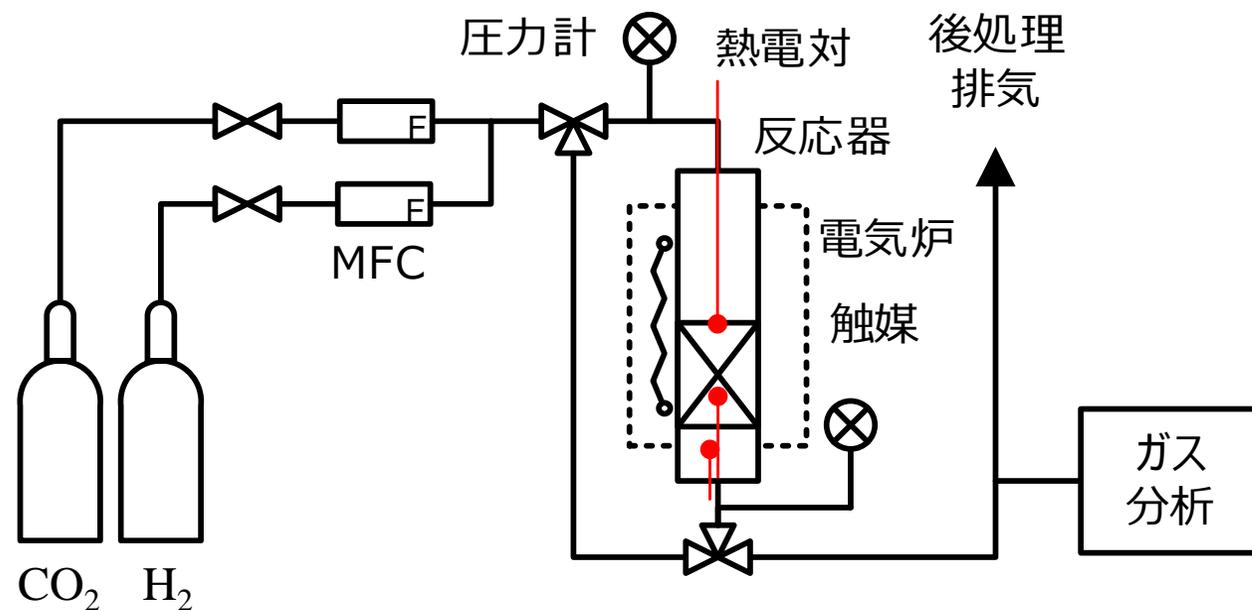
課題解決の手法の一つとして、数値シミュレーションの活用されている

CO₂の水素化反応によるメタノール合成

<実験条件>

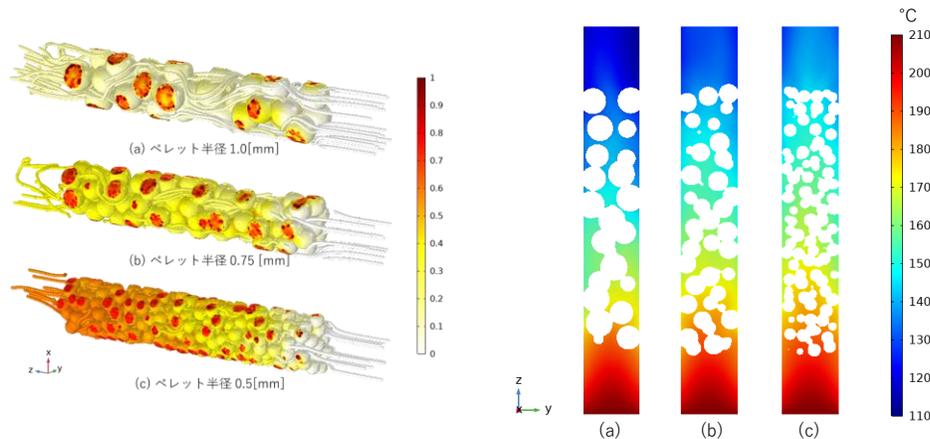
反応： $\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$

触媒：Zn/Al₂O₃ (3 mm×3 mm、打錠成形品)



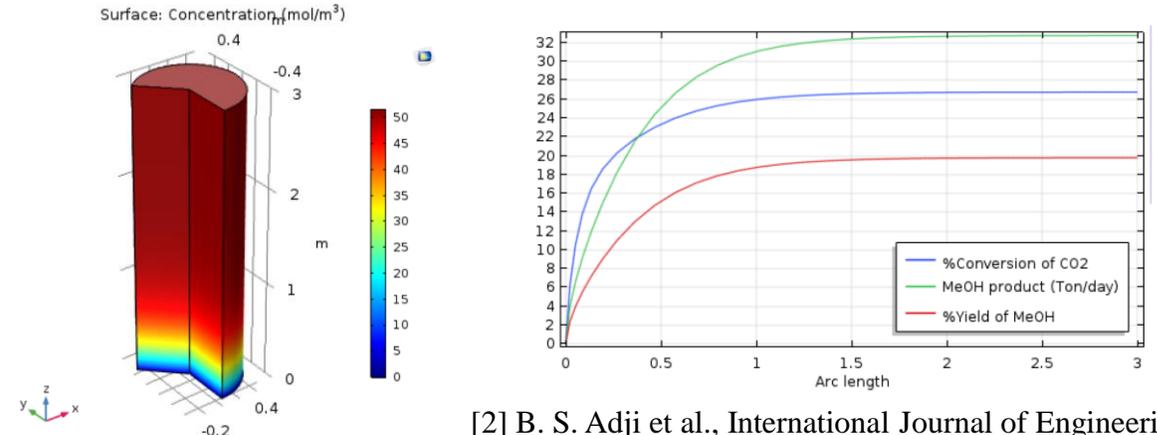
触媒層反応器内のモデル化事例

マイクロモデル
(凝集構造モデル)



[1]馬場ほか, こべるにくす, No. 54 (2022) 4

マクロモデル
(均質化モデル)



[2] B. S. Adjil et al., International Journal of Engineering Research and Technology 12 (2019),2592-2599

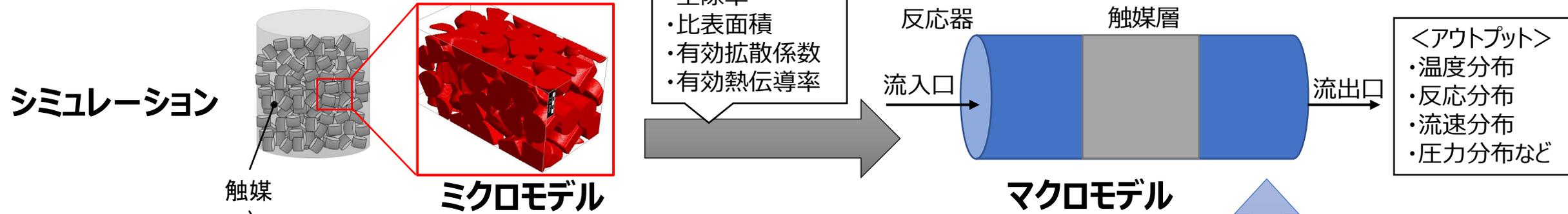
	マイクロモデル	マクロモデル
ペレット形状のモデル化	○ (陽に考慮)	△ (比表面積と体積分率)
モデル化領域	△ (狭い)	○ (広い)
計算コスト	× (高)	○ (低)
反応器内の温度分布	△ (マイクロ領域)	○ (マクロ領域)

本研究の目的

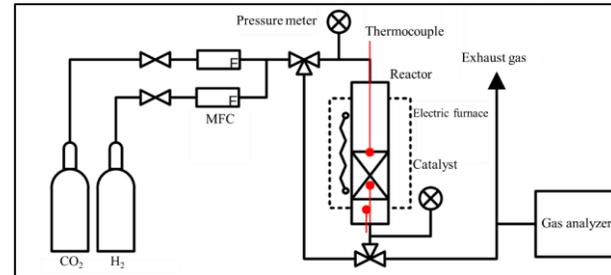
マイクロ構造反応器内のペレット形状の影響を均質化モデルに反映することで、触媒形状の違いが生成効率に及ぼす影響を効率的に評価する。
 更に、試験を行うことで実測追従性を確認する。

※モデル構築にはCOMSOL Multiphysics™ ver6.0を使用

モデル構築イメージ



実測試験

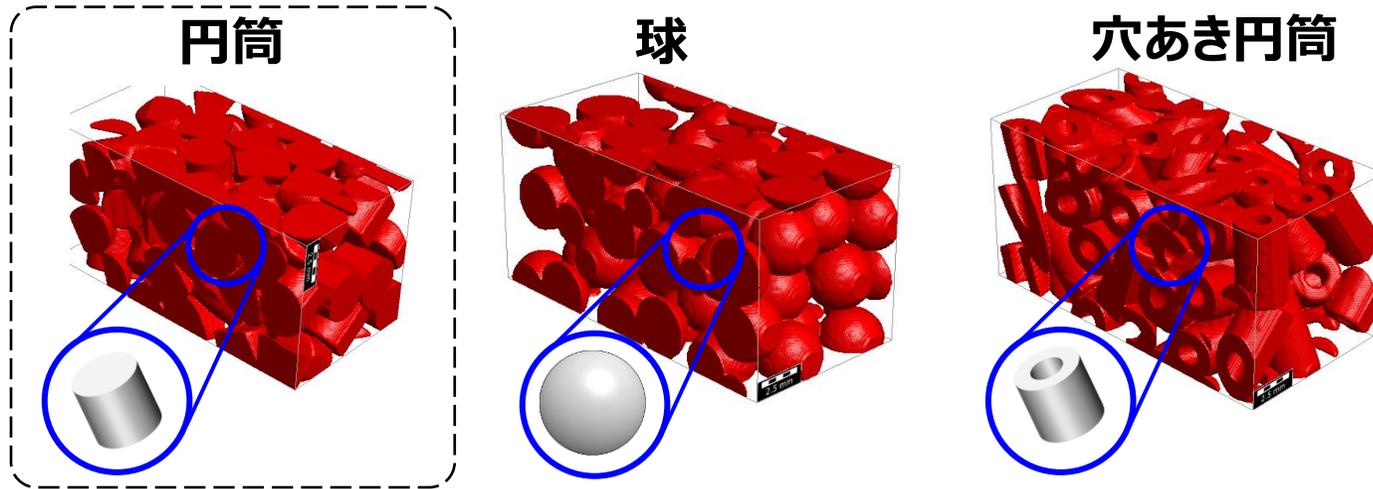


実験

モデルとの検証

ミクロモデル

3種類のペレット形状を想定し、凝集構造を生成



マクロモデルと実験結果を検証

支配方程式

・Navier-Stokes方程式および連続の式

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = \nabla \cdot [-p\mathbf{I} + \mathbf{K}], \quad \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0$$

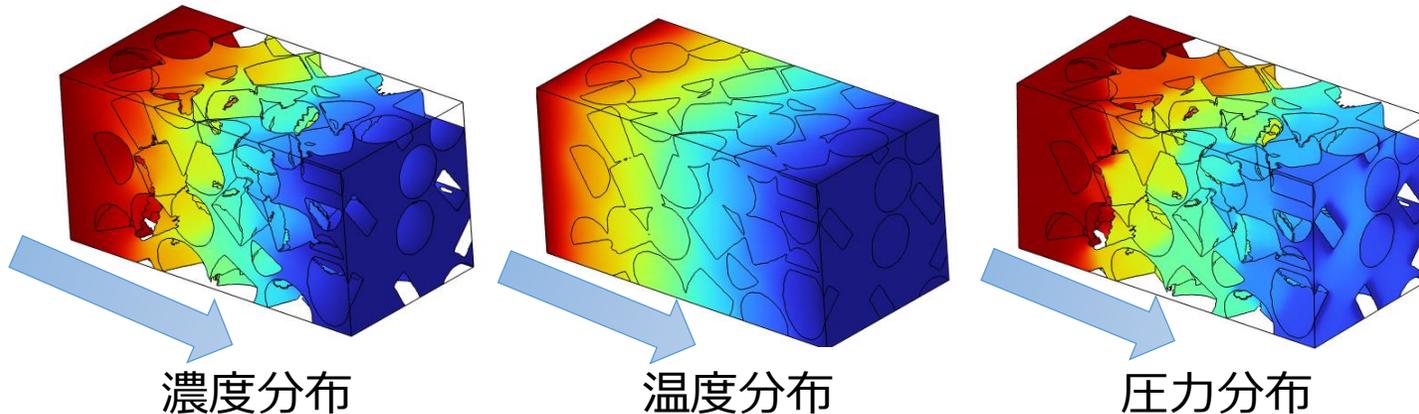
・熱伝導方程式

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T)$$

・移流拡散方程式

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} + \nabla \cdot (-D_i \nabla c_i) = 0$$

<境界条件>

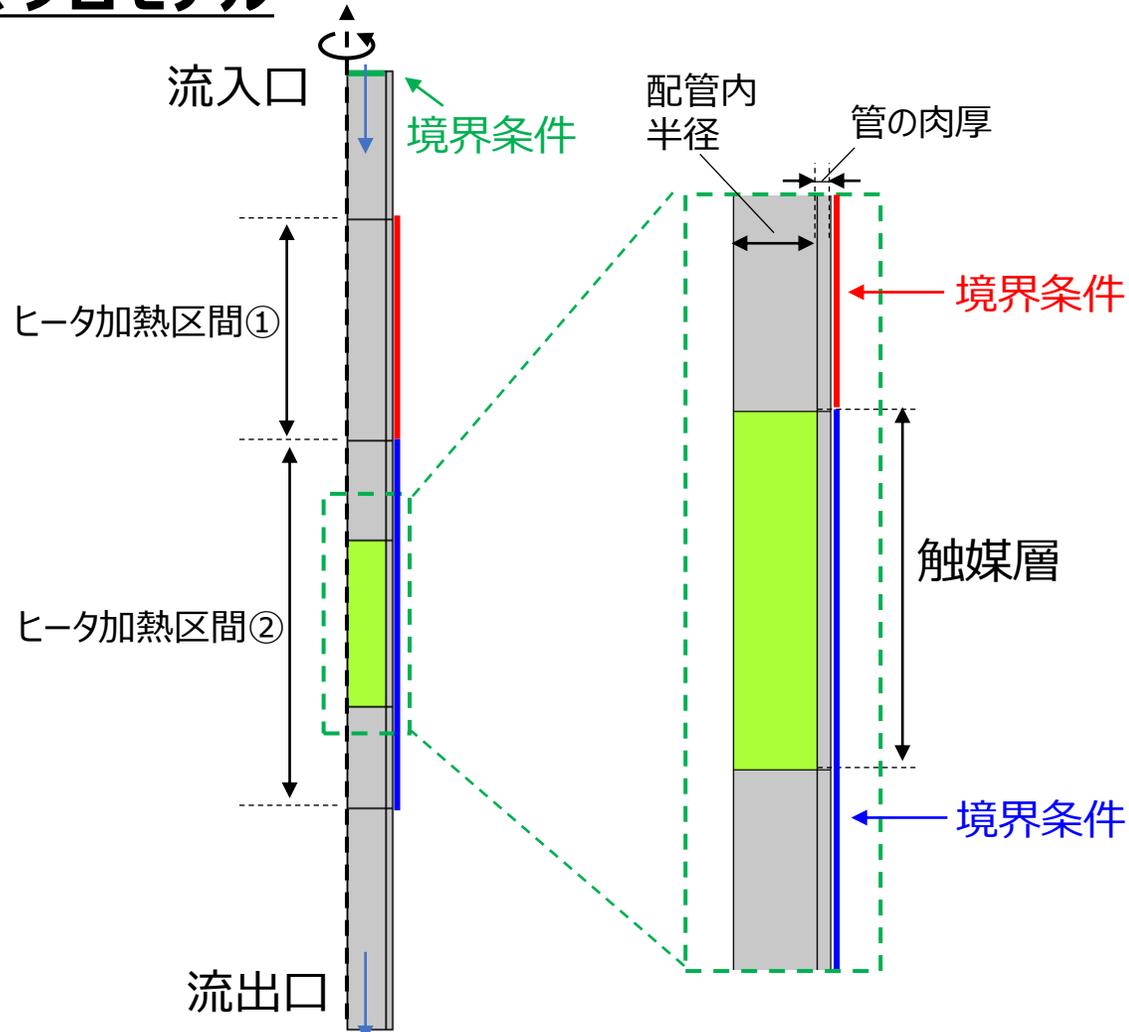


<パラメータ>

- ・浸透係数
- ・空隙率
- ・比表面積
- ・有効熱伝導率
- ・有効拡散係数

マクロモデルに
反映

マクロモデル



ペレットの形状の効果をマクロモデルに反映

支配方程式

・反応速度論

化学反応式： $\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$

$$r = k^f [\text{CO}_2][\text{H}_2]^3 - k^r [\text{CH}_3\text{OH}]$$

$$k^f = A^f (T/T_{ref}) \exp(-E^f/R_g T)$$

・Navier-Stokes方程式および連続の式

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = \nabla \cdot [-p\mathbf{I} + \mathbf{K}], \quad \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0$$

・熱伝導方程式

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q$$

・移流拡散方程式

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} + \nabla \cdot (-D_i \nabla c_i) + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = r_i$$

CO₂の水素化反応によるメタノール合成

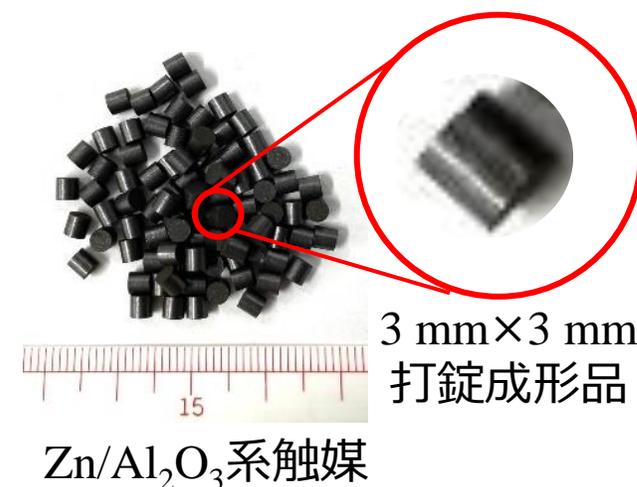
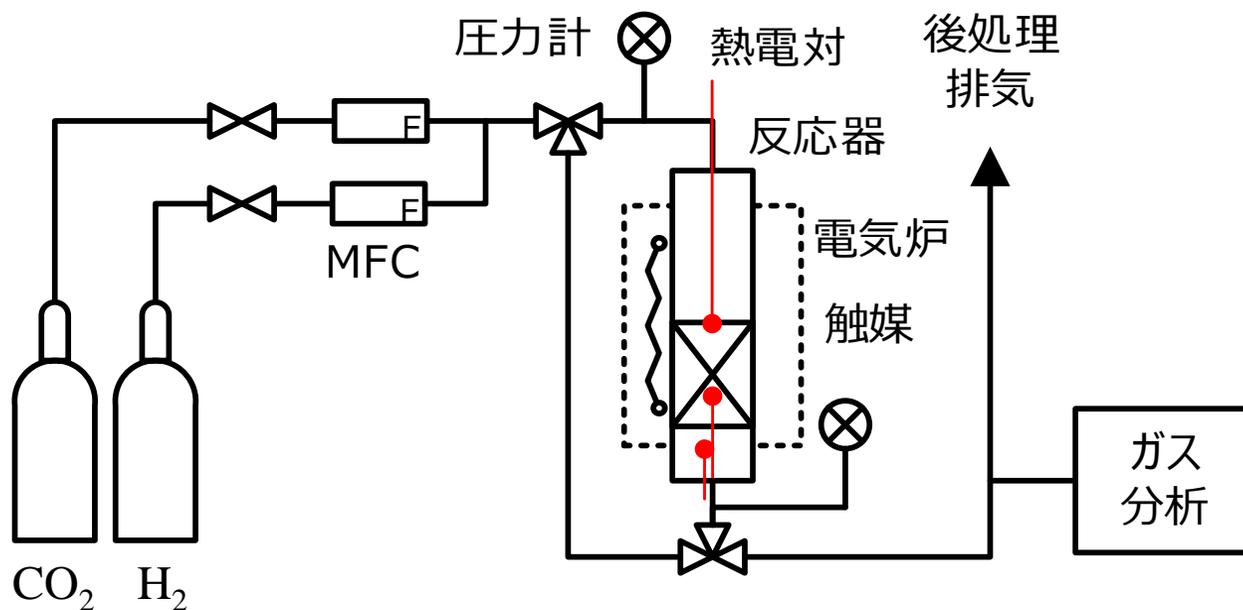
<実験条件>

反応： $\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$

触媒：Zn/Al₂O₃系触媒(打錠成形品)

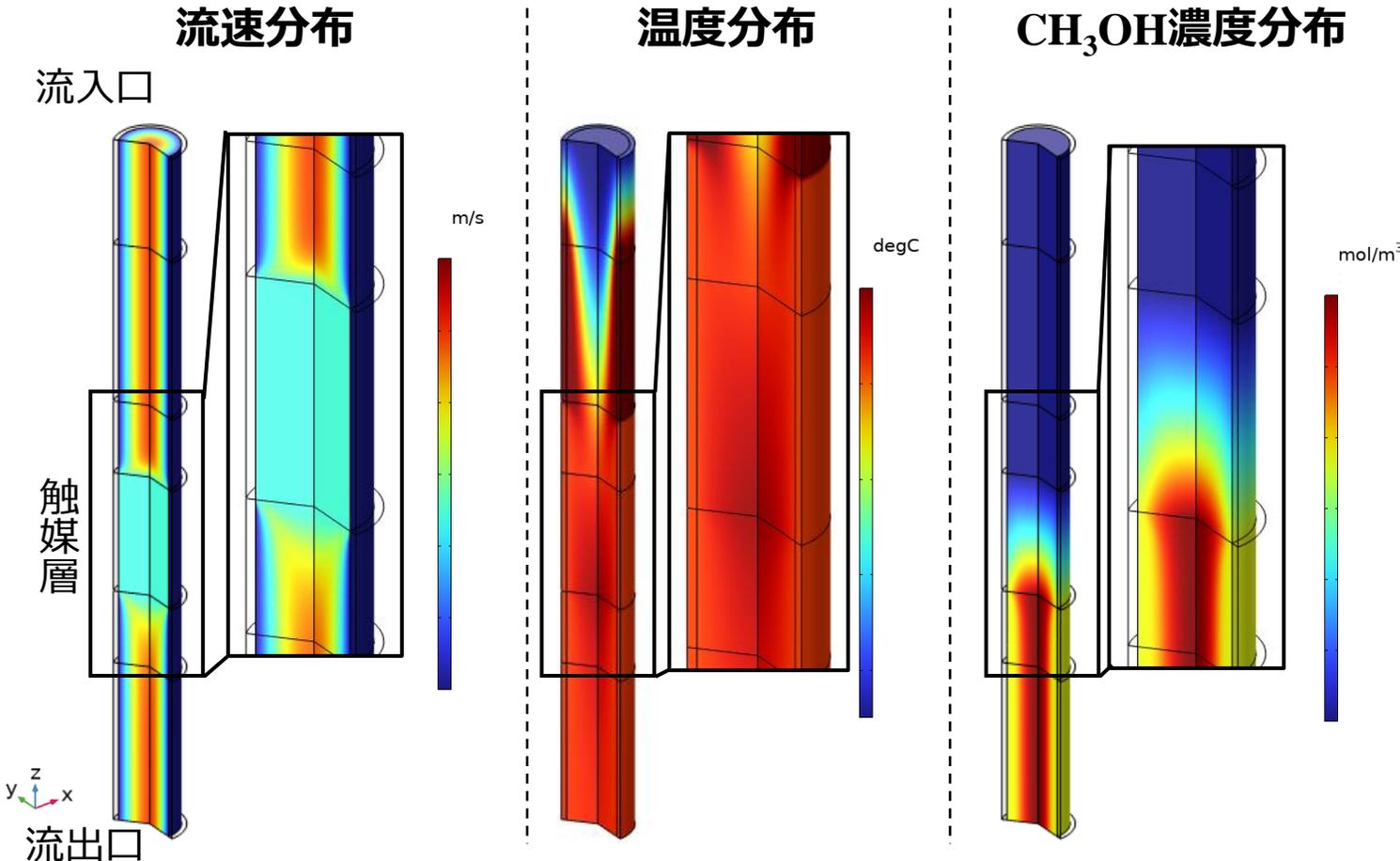
圧力：最大0.4 MPa-G、反応温度：210～280°C、ガス流量：CO₂: 最大3.3 NL/min, H₂: 10 NL/min

測定：温度(触媒入口ガス、触媒中央、触媒出口)、圧力(触媒充填部)、ガス濃度：出口CH₃OH



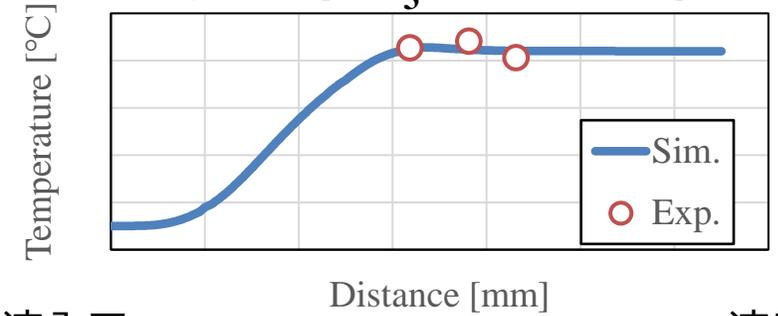
マクロモデルにおける数値シミュレーション

円筒ペレットの凝集構造から取得したパラメータを使用

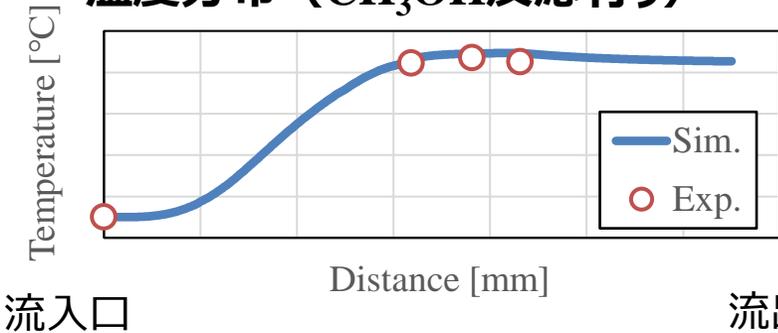


マクロモデルにおける温度分布は実測と概ね一致した。

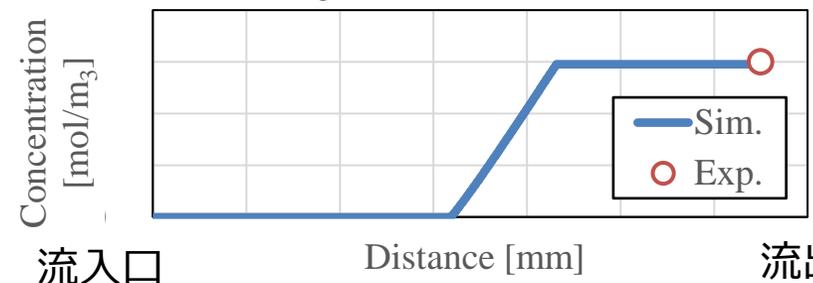
温度分布 (CH₃OH反応無し)



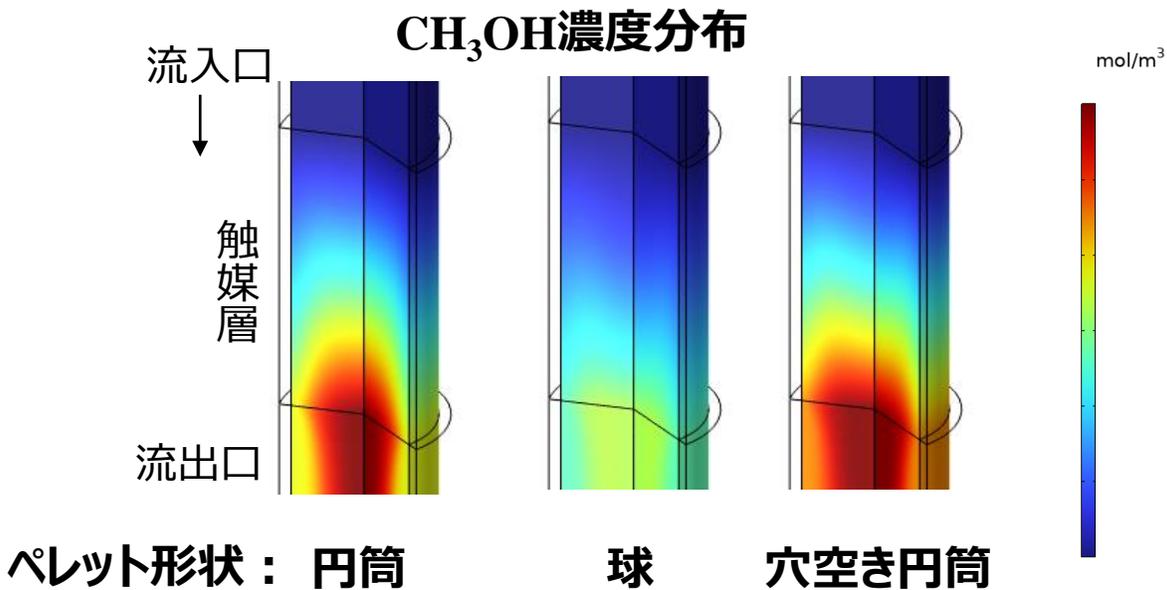
温度分布 (CH₃OH反応有り)



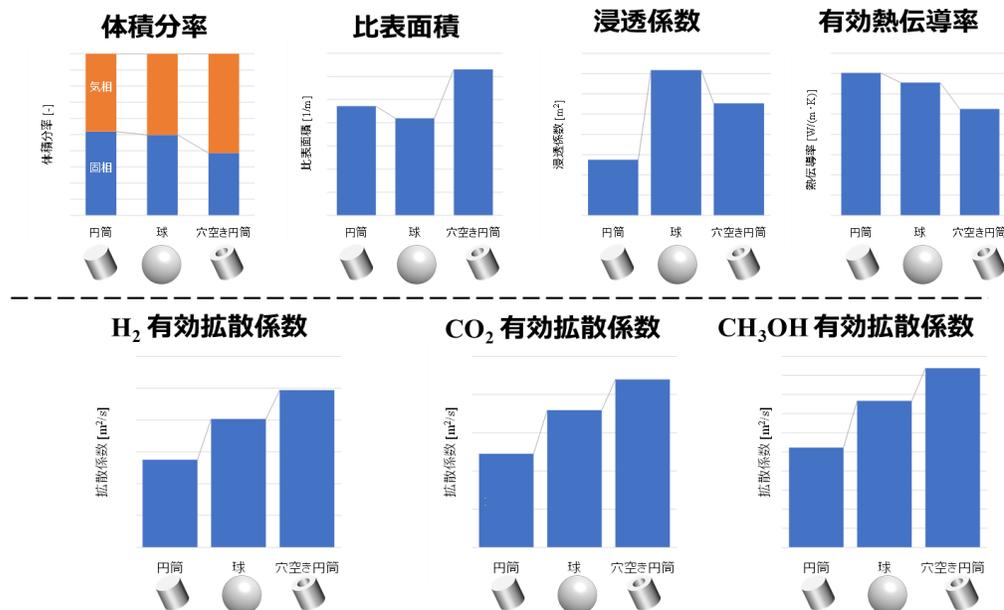
CH₃OH濃度分布



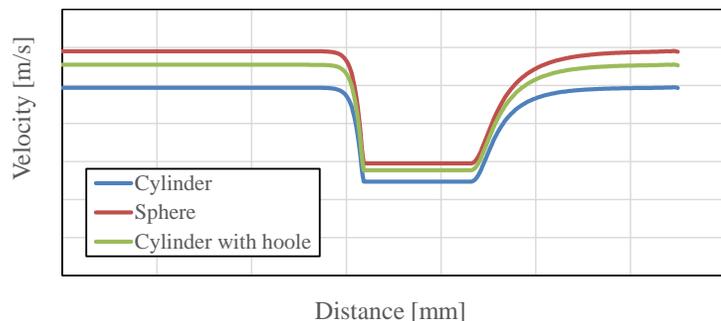
ペレット形状による影響評価



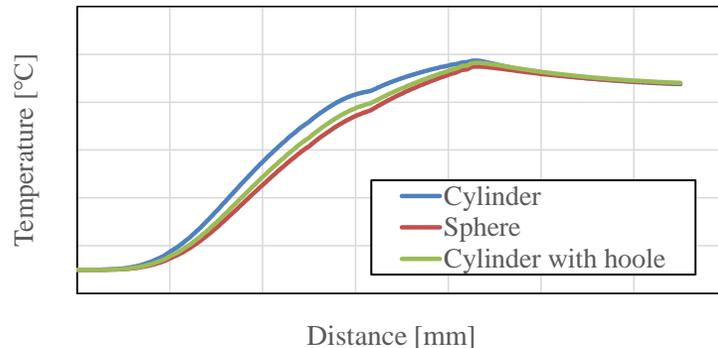
ペレット形状の違いによる各種パラメータ比較



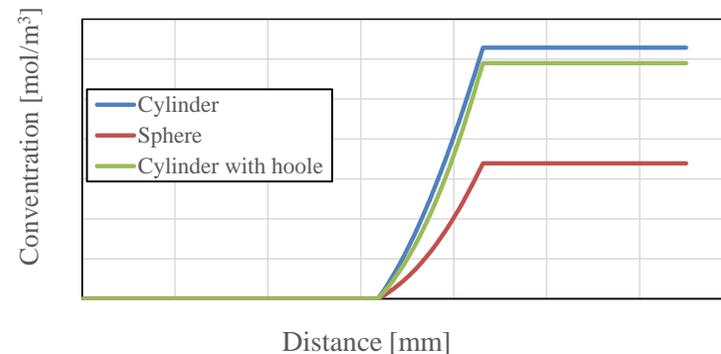
流速分布



温度分布



CH₃OH濃度分布



- ◆触媒反応器内の反応、流れ、温度分布を予測する均質体モデルを構築し、触媒反応としてメタノールの合成の実験を行うことで実験値との検証を行った。
その結果、実験で得られた温度、反応生成量を良好に再現した。
検証モデルからは、メタノール生成反応が飽和していないことが示唆された。
- ◆また、検証モデルを基に、触媒ペレット形状の違いによる影響を評価した。
触媒ペレット 1 個の体積が同じであると仮定したとき、比表面積が大きいほど反応生成量の増加に寄与することが確認できた。

今後の展望

構築した検証モデルをもとに、より実用的な条件（圧力・温度など）を想定した解析を実施し、反応器内の流れ・反応・温度評価を行う。