

令和元年6月11日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K18264

研究課題名(和文)閉塞監視機能を備えたマイクロ流体分配デバイスの設計

研究課題名(英文)Design of microfluidic distributor with the ability to monitor blockage

研究代表者

殿村 修 (Tonomura, Osamu)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：70402956

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：マイクロリアクタによる物質生産の実現に向けて，“処理量増大のための装置並列化”や“安定運転のためのモニタリング手法”の開発が重要である。本研究では「閉塞監視機能を備えたマイクロ流体分配デバイスの設計」を目的とし、リアクタ並列数、閉塞数(単一or複数)、流体分配構造、処理量(圧力or流量)センサ数が与えられたとき、正常時に等流量分配を達成し、閉塞時に閉塞検出性能を最大化するように、流体分配装置の流路抵抗およびセンサ位置を導出する問題を組合せ最適化問題として定式化した。そして、その有効性を実験とシミュレーションの両面から検証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

マイクロ化学プロセスの最大の課題である閉塞を検出・診断できる機能を備えた装置並列化(ナンバリングアップ)による生産量増大という考え方は他に類を見ない本研究の特色である。その実用に向けて流体分配構造・流路抵抗・センサ位置の最適化を図るアルゴリズムを開発した点は社会的に意義深く、また、計測や制御のし易さを評価に加えた装置設計に取り組んだ本研究は学術的にも極めて意義深い。

研究成果の概要(英文)：In order to realize mass production using microreactors, it is important to develop not only a method for realizing uniform flow distribution among the parallelized microreactors but also their monitoring method. The purpose of this study was design of microfluidic distribution devices with a function of detecting blocked microreactors. Given the number of reactors, the number of blockages, the fluid distribution structure, the throughput, and the number of sensors, the channel resistances and sensor locations in the microfluidic distribution device are optimized so as to achieve equal flow distribution under the normal condition and maximize the blockage detection performance under the abnormal condition. The effectiveness of the developed method and device is verified through both experiment and simulation.

研究分野：プロセスシステム工学

キーワード：マイクロリアクタ モニタリング 閉塞検出 流体分配 設計 センサ配置 最適化

## 1. 研究開始当初の背景

連続的な物質生産を目的としたマイクロリアクタの特徴は、精密温度制御、迅速温度変更、迅速混合、精密滞留時間制御といったキーワードで説明される。マイクロリアクタの開発や特性解析に加えて、マイクロリアクタを利用した化学合成、分析、ナノ材料生成、エネルギー生成に至るまで、マイクロ空間（一辺あたり概ね 1mm 以下の大きさの空間）を用いた化学プロセス技術（=マイクロ化学プロセス技術）に関する研究開発は世界中で活発に行われ、この十数年間に目覚ましい発展を遂げてきている。今後、マイクロ化学プロセス技術が産業界に普及するには、経験工学的な要素が多く含まれているマイクロリアクタの開発から脱却し、設計や運転の方法論を構築することが求められる。

生産量の増大と長期安定運転の達成は、マイクロリアクタを連続生産装置として用いる際に避けて通れない検討項目である。生産量の増大には、イコーリングアップ、内部ナンバリングアップにより 1 リアクタあたりの処理量を増加させた後、それを外部ナンバリングアップで並列化する方法が採用されることが一般的である。このとき、並列化されたリアクタに均一に物質が流れるようにしなければならない。さらに、流路の狭さゆえの閉塞がリアクタの安定運転の妨げとなるため、閉塞への対策も講じなければならない。

例えば、全ての箇所に流量センサを設置すれば閉塞を容易に判断できる。しかし、1 系列のプラントであってもナンバリングアップ数の増加につれ、流量センサ数は非常に多くなり、設備費用も莫大となる。よって、できるだけ少数の流量センサを用いてリアクタの閉塞を検知・診断できる方法の開発が望まれている。このような点を踏まえ、本研究代表者はこれまでに、少数点の流量計測情報により閉塞リアクタを特定できる流体分配構造、およびその構造を有する流体分配装置を用いた閉塞診断法について提案している。しかし、流体分配装置の設計やセンサ位置が適切に設計されないときに閉塞診断性能が低下する問題が指摘されていた。

## 2. 研究の目的

マイクロリアクタによる物質生産の実現に向けて、「処理量増大のための装置並列化法」や「安定運転のためのモニタリング手法」の開発が重要である。本研究では「閉塞監視機能を備えたマイクロ流体分配デバイスの設計」を目的とした。

## 3. 研究の方法

均一相および不均一相の流体分配を例にとり、流動モデルの構築、構築したモデルに基づく最適設計手法を開発した。それらの有効性を実験とシミュレーションの両面から検証した。

### 1) 流体分配部の流動モデルの開発

流体分配部の流動パターンは圧力バランスによって支配される。直管路の完全発達層流を仮定し、設計・操作条件（流路幅・深さ・長さ、流速、物性）と圧力損失の関係を表す単位モデルを作成した。そして、単位モデル同士を結合して流体分配部の流動パターンを表現する全体モデルを構築した。数値流体力学シミュレーション結果と照らし合わせて、開発したモデルの妥当性を確認した。

### 2) 最適化問題の定式化

リアクタの並列化数、流体分配構造、処理量、利用可能な流量 / 圧力センサ数が与えられたとき、正常運転時に等流量分配を達成し、かつ、閉塞診断性能を最大化するように、流体分配部の流路サイズおよび流量 / 圧力線センサ位置を最適化する問題を組合わせ最適化問題として定式化した。定式化の後、multistart scatter search 付き非線形ソルバ（内点法）または粒子群最適化を活用し、効率的に最適解を導出した。

### 3) 実験検証用プラントの作製と提案法の有用性評価

設計結果を反映したデバイスを作製し、流量 / 圧力センサ・配管・継手・バルブあるいは 3D プリンティングを用いて実験検証用プロセスを作製した。そして、定常特性（例えば、流体均等分配性）および閉塞診断特性（バルブの開閉により閉塞を模擬）を評価した。

## 4. 研究成果

3 節の 1) において、並列数を与えれば流体分配部の流動モデルを自動生成できるように工夫を図った。さらに、混合器内の気液界面挙動をマイクロスコプで観察すると共に、設計・操作変数がスラグサイズに及ぼす影響を定量的に評価した。その結果に基づき、流路サイズと流量を入力とし、スラグサイズを出力とするモデルを開発した。同モデルは、モデルパラメータを少数の実験データから同定し、装置設計に利用可能である。構築したスラグ長さ予測モデルと先に開発した全体モデルを組み合わせることにより、監視機能を備えた並列気液スラグ流

プロセスの設計・操作論の体系化に展開していくことが可能になった。

3節の2)において、リアクタの単一閉塞、さらには複数閉塞に対する診断手法について検討し、物理的考察を加える(測定値の変化量ベクトルの向きを考慮する)ことで閉塞リアクタ群の候補を効率的に絞り、診断成功率を向上させることに成功した。また、複数閉塞診断において、流体分配構造(分合式、マニホールド式)、利用可能なセンサ(圧力センサ、流量センサ)のどの組み合わせが閉塞リアクタ特定に有利であるかについて検討し、測定値に、平均が0、標準偏差が正常値の1%程度の正規分布に従う誤差があるとき、分合式と流量センサを用いた場合は閉塞リアクタ特定成功率が99%以上となったのに対し、その他の組み合わせを用いた場合の閉塞リアクタ特定成功率はいずれも90%を下回ることを示した。

3節の3)において、鈴木カップリング反応を対象とした5並列プロセスを構築し、90分の連続運転、閉塞診断手法の有効性を確認した。また、リアクタ閉塞時、プロセス全体のシャットダウン・スタートアップといった複雑な操作を行うことなく、プロセス全体の連続運転を継続したまま、閉塞の検出・診断・回復の一連の操作を実現できる操作法の有用性も実証した。さらに、多段・並列化した混合・反応系における流体分配構造について検討し、1段目の一方の原料供給操作に分合式流体分配装置、残り全ての原料供給操作にマニホールド式流体分配装置を用いることで、より単純な並列化構造で閉塞診断が可能であることを確認した。

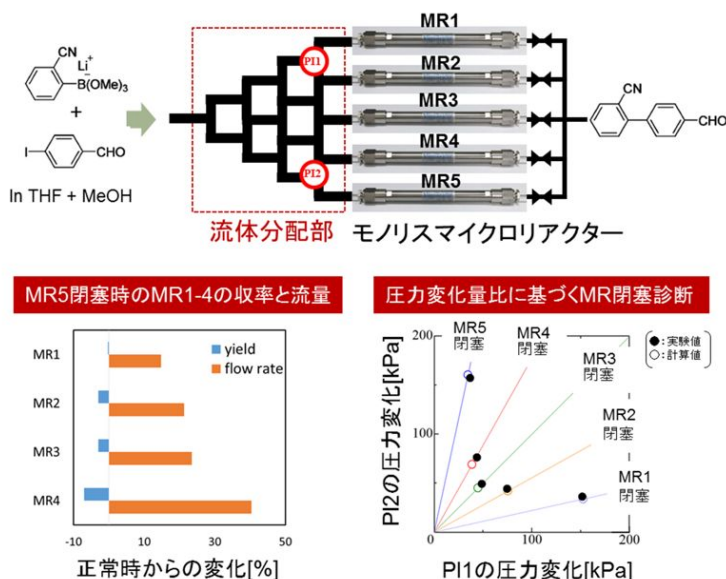


図. 設計したナンバリングアップ反応プロセスの閉塞診断結果

## 5. 主な発表論文等

### [雑誌論文](計2件)

Osamu Tonomura, Satoshi Taniguchi, Kei Hata and Shinji Hasebe, Detection of Multiple Blockages in Parallelized Microreactors, Chemical Engineering & Technology (査読有) (accepted)

Osamu Tonomura, Satoshi Taniguchi, Kazuki Nishi, Aiichiro Nagaki, Jun-ichi Yoshida, Katsuyuki Hirose, Norio Ishizuka and Shinji Hasebe, Blockage Detection and Diagnosis of Externally Parallelized Monolithic Microreactors, Catalysts, 9(4), 2019, 308-319 (査読有) DOI: 10.3390/catal9040308

### [学会発表](計11件)

殿村修・辻諒太郎・谷口智・長谷部伸治, 閉塞診断機能を有する流体分配装置を用いた並列多段混合プロセスの設計, 化学工学会 第50回秋季大会, 2018

Osamu Tonomura, Satoshi Taniguchi and Shinji Hasebe, Blockage detection and diagnosis in micro chemical plants with numbering-up structure, 15th International Conference on Microreaction Technology (IMRET), 2018

Osamu Tonomura, Design and Operation of Micro Chemical Processes: Recent Research Activities, Ajinomoto Bio-Pharma Services, 2018

殿村修, マイクロ化学合成・生産システム研究とその応用, スマートコンビナート研究会, 2018

Gwangnoh ahn, Osamu Tonomura, Satoshi Taniguchi, Aoyama Tomoya and Shinji Hasebe, Development of Predictive Model for Sizes of Gas Liquid Slugs Formed in Millimeter-scale T-shaped Channels, AIChE Annual Meeting, 2017

殿村修, マイクロ化学プラントの設計・運転・制御, 化学工学会関西支部マイクロプロセス最前線シリーズ, 2017

谷口智・畑慶・殿村修・長谷部伸治, 並列マイクロリアクタの複数閉塞診断のための流体分配器とセンサ位置の最適化, 化学工学会 第49回秋季大会, 2017

殿村修・西和希・谷口智・永木愛一郎・廣瀬勝幸・長谷部伸治・石塚紀生・吉田潤一, 触媒担持モノリス充填カラムを用いた並列反応システムの開発: 閉塞診断機能を有する流体分配器の最適設計, 日本化学会 第97春季年会, 2017

殿村修・尾鍋洋次郎・宮林圭輔・谷口智・長谷部伸治, マイクロ化学プロセスにおける気液スラグ流生成システムの設計と操作, 化学工学会 第82年会, 2017

西和希・多賀敏暉・殿村修・谷口智・永木愛一郎・廣瀬勝幸・吉田潤一・石塚紀生・長谷部伸治, モノリス充填マイクロリアクタの並列化と運転監視, 化学工学会第81年会 (査読無), 2016

Osamu Tonomura, Takahiro Momono, Satoshi Taniguchi and Shinji Hasebe, Design of Flow Distributor with Orifices for Realizing Uniform Flow Distribution with Low Pressure Drop, Flow Chemistry congress, 2015

〔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)研究分担者

なし

(2)研究協力者

なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。