

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2008～2010

課題番号：20246115

研究課題名(和文) プロセス強化技術のためのダイナミカルネットワーク方法論の構築

研究課題名(英文) Constitution of Methodology of Dynamical Network for Process Intensification

研究代表者

大村 直人(OHMURA NAOTO)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：50223954

研究成果の概要(和文)：本研究は、プロセスのもつ機能要素のダイナミカルなネットワーク性に着目したプロセス強化の方法論を構築することを目的とした。ダイナミカルネットワークによる設計論とモデリング、個別プロセスのダイナミカルネットワークの解明の二つの部門に分けて、解析と設計の二つの観点から研究を遂行した。その結果、プロセスを機能ネットワークモデルで表現し、ネットワーク上のハブ要素を強化することで、プロセスの飛躍的向上が期待できることを見出した。

研究成果の概要(英文)：This research project aimed at construction of a methodology of process intensification in recognizing the importance of dynamical network of function elements in a process. This project consisted of two research sections: design and modeling using the concept of dynamical network, and analysis for dynamical network in individual processes. This research project revealed that performance of processes could improve tremendously by expressing function network models and intensifying hub elements in the network.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	20,700,000	6,210,000	26,910,000
2009年度	11,300,000	3,390,000	14,690,000
2010年度	7,500,000	2,250,000	9,750,000
年度			
年度			
総計	39,500,000	11,850,000	51,350,000

研究分野：プロセス工学

科研費の分科・細目：反応工学・プロセスシステム

キーワード：プロセス強化、ネットワーク、ダイナミクス、マルチスケール、モデリング、設計論

1. 研究開始当初の背景

本研究では、研究開始当初、以下の背景があった。

(1) プロセス強化では、プロセスの性能が量的に飛躍することが重要である。プロセスを従来の装置をベースとした単位操作で考えると、想定した装置のもつ最大性能以上の向上

は望めない。これに代わって、プロセスの持つ機能構造に着目し、機能ネットワークとして考える必要がある。この機能ネットワークに着目したプロセス強化手法では、設計論的なアプローチが重要である。

(2) プロセス強化手法の開発において、精密場活用プロセスのダイナミカルなネットワ

ーク構造の解析・合成を効率的に行うことのできるモデリング手法とシミュレーション手法の構築が求められている。

(3) バイオマスを原料とした石油資源代替燃料・化学原料生産(バイオリファイナリー)、特にバイオエタノール生産が顕著に増加している。食糧問題との競合を回避するため木草系バイオマスを分解して得られる混合糖中のグルコースに加えキシロースをも発酵原料として高効率にバイオエタノールに変換可能とする技術開発が必要である。

(4) 我が国では、CO₂排出量を2020年までに1990年比で25%削減する目標を掲げ、エネルギー部門を中心にその対応が求められている。発電所などの大口CO₂排出事業所において、プロセス出口の高濃度CO₂を発電所の排熱を利用して、他の化学物質へ転換できれば、CO₂の排出削減に係るコストを大きく抑制することが可能となる。

(5) 反応ネットワークプロセスは、関与する化学種の数と反応の数、反応場や反応器の種類と数、更には外部から加える操作により、システムのサイズ及び複雑さは多様である。しかし、複数のサブシステムあるいは要素から構成されるという特徴は共通であり、要素間の相互作用のダイナミクスを適切に設計することにより、システム全体の効率を向上させ、プロセス強化につなげることが可能であると考えられる。

(6) 化学プロセスの最も基本的な形は、混合、反応、分離の各操作から成る一連のプロセスの繰り返しとネットワーク構造にある。しかし、第1段階に流体混合の機構についての理論的解析はほとんど行われていなかった。

(7) 省エネルギープロセス、技術の開発は、ますます重要なものになってくる。物質とエネルギーを併産するコプロダクションプロセスにおいて、プロセス強化の考え方の導入により、大幅にエネルギー有効利用を促進できる可能性がある。

(8) 反応蒸留システムは熱回収と再利用を同時に行うことが可能であり、化学プロセスの物質生産性能を飛躍的に向上させる反応-分離プロセスの強化手法の一つである。

2. 研究の目的

本研究では、上記の各研究背景に対して以下の事項を目的とする。

(1) プロセスが、機能要素とその接続関係が動的に変化し、プロセスと外部環境が動的に相互作用するダイナミカルなネットワーク構造を持つと考え、このプロセスを強化するための設計論的な方法論を構築する。

(2) コンパクト化学プロセスにおける反応、移動現象、動的操作のマルチスケールモデリングに着目し、スケールの異なるプロセスモデルと知的システム技術を組み合わせたハ

イブリッド型プロセスシミュレーション(以下、「HPSim」と略す)手法を構築する。

(3) キシロースからのバイオエタノール生産の効率化を目的とし、発酵微生物である酵母に付与するキシロース代謝ネットワークとキシロースの酵母細胞内への輸送の強化と最適化、ならびにこれらの数学的表現を目標とした速度解析を行う。

(4) 天然ガス中のメタンを利用したCO₂によるドライリフォーミング反応(CH₄+CO₂→2CO+2H₂)により、CO₂を削減すると共に化学原料として有用なH₂とCOを生産することができる。この反応は、担持Ni触媒を用いて実施可能であるが、一般的な水蒸気改質反応に比べ、触媒の安定性に問題がある。触媒に添加物を加えて安定性を高める手法がとられるが、なぜ有効であるかが触媒反応サイクル全体から理解されているわけではない。そこで、反応速度解析を行い、ドライリフォーミング反応のネットワーク構造を構築する。

(5) 反応プロセスに外部から加える操作と、反応ネットワークの相互作用に着目し、非定常操作により、系全体の効率向上が可能であることを明らかにする。

(6) 攪拌槽内の3次元流体混合機構と幾何学的構造を、非線形ダイナミクス理論に基づいて明らかにし、新しい技術開発に適用する。

(7) コプロダクションプロセス構築のために重要となるプロセスのヒートマッチングにおいて、低エクセルギー損失実現のため、ダイナミックな吸熱反応と発熱反応のネットワーク化を目指すとともに、プロセス強化の考えに基づいてのコプロダクションプロセスの設計手法を提案する。

(8) 反応-蒸留系のコプロダクションシステムを対象にしたシミュレーターを開発し、設計変数や操作変数の影響についてモデルベースによる検討する。

3. 研究の方法

本研究では、Iダイナミカルネットワークによる設計論とモデリングとして研究目的

(1)、(2)のテーマを、II個別プロセスのダイナミカルネットワークの解明とプロセス強化手法の開発として、研究目的(3)~(8)のテーマを設定して、以下の研究を行った。

(1) 攪拌槽を用いた乳化重合プロセス、テイラー渦流装置を用いた気泡流動プロセスなどを対象として、プロセスの機能要素とその接続関係を明らかにし、機能ネットワークを表現する方法を検討するとともに、検討した機能表現法によりプロセス強化手法を提案し、その妥当性を検証する。

(2) 交流電場を用いた流通式液相系触媒反応プロセスシステムを対象としたHPSim手法の検討において、プロセスシステム内の複雑なプロセス構造やデータ構造のネットワ

ークモデリング手法を適用する。

(3) キシロース代謝経路として安定なゲノム上への遺伝子組込みによりキシロースイソメラーゼ(XI)経路を導入するとともに、副生産物であるキシリトール生産経路を抑制することでキシロース代謝ネットワークの強化と最適化を行う。また、糖取り込みを媒介するトランスポーターの過剰発現による糖取り込み能を強化する。またフィッティングによるこれらの速度解析を行う。

(4) 固定床常圧流通管型反応器を用いてドライフォーミング反応を、反応温度 873 K、 $SV 10^5 h^{-1}$ 以上で行い、原料成分および生成物成分の分圧を変化させ、反応速度を測定した。得られたデータを解析して、ラングミュア-ヒンシェルウッド型速度式を求め、本反応のネットワーク構造を得る。

(5) 軽質オレフィン合成を触媒反応ネットワーク系を対象として、触媒反応器の壁面温度を周期的または区分的に非一様に設定した場合の挙動を解析するシミュレーターを開発し、それを用いて系の反応成績改善等によりプロセス強化が実現されることを明らかにする。

(6) 翼先端から伸びる流脈線の可視化と、3次元攪拌槽内の簡易流動モデルを併用して、混合機構の解明と新しいモデル作りを行う。

(7) 吸熱反応(メタノール改質反応)と発熱反応(水素燃焼反応)のヒートマッチングを熱交換型マイクロリアクターを用いることにより検討した。また、ダイナミックネットワークのため吸熱反応(2-プロパノール脱水素反応)の非定常原料供給操作を検討するとともに、非定常温度操作についてもマイクロリアクターを用いることにより検討した。

(8) 平衡ならびに速度論モデルを用いた反応蒸留定常非定常シミュレーターを作成し、本システムの静動特性について最適ネットワーク構造を構築する。

4. 研究成果

本研究の主な成果について、以下に目的ごとに述べる。

(1) 攪拌槽を用いた、酢酸ビニルの連続乳化重合プロセスを Freund and Sundmacher が提唱した機能モジュール表現法を用いて、機能表現を試みた。この機能表現法をもとに、図1に示す反応装置を3つの機能ゾーンに分けたコンパートメント反応器を提案した。第1区画ではパドル翼を用いて混合を強化し、第2、第3区画では回転円板を用いて粒子間の凝集を抑制する空間変動操作を行った結果、単一攪拌槽では得られない高重合率と安定した粒子径分布を持つ重合体粒子を得た。また、機能モジュール表現法の表現形式の欠点を補うため、図2に示す多層機能ネットワーク表現法を提案した。



図1 コンパートメント反応器外観

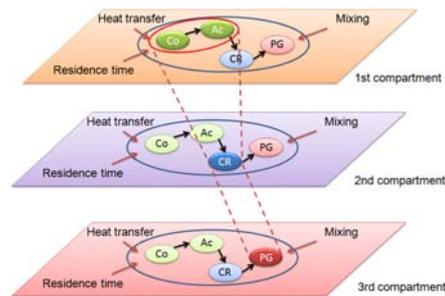


図2 多層機能ネットワーク表現

(2)

①操作設計のためのネットワークモデリング

交流電圧印加による触媒相分離操作の設計を対象に、電場・流れ場に関する物理モデルと相変化に関わるプロセスモデルに基づく数値シミュレーションを行った。HPSim 手法の構築においては、ネットワーク表現可能な ISM (Interpretive Structural Modeling) を用いたプロセス機能の構造モデルの適用(図3)が HPSim 手法構築の効率化につながることを明らかにした。

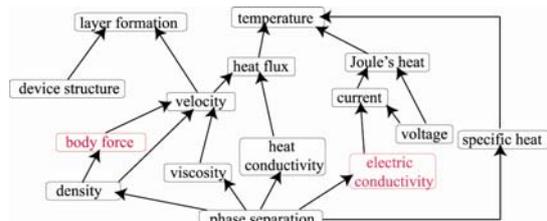


図3 ISM を用いた動的プロセスの構造解析

②モニタリングのためのネットワークモデリング

装置内の圧力変動データ解析に基づく、流通式多相系プロセスのモニタリング手法を検討し、ニューラルネットワークの一つである自己組織化マップ(SOM)を適用した。SOMを用いたデータ解析法の構築において、CFDシミュレーションの併用を検討した。CFDより収集された界面挙動と圧力に関するデータを SOM で解析した結果と SOM による圧力変動データのクラスタ解析結果を組み合わせることで、モニタリングにおける圧力変動デー

タ解析の有意性が明らかになった。

(3) バイオリファイナリープロセス強化

ゲノム上への XI 遺伝子組み込み技術として δ インテグレーション法を採用し他コピーを組み込むことで、酵母への XI 経路の導入に成功した。また、キシリトール生産経路を触媒する非特異的アルドース還元酵素を遺伝子レベルで欠失させることで抑制した結果、エタノール収率の向上に加え、キシロース消費速度の向上に起因するエタノール生産性の向上が確認された。安定性が高く産業利用に適したゲノム組み込みによる XI 経路の導入例ならびに、副産物生産経路の抑制と組み合わせた代謝ネットワークの強化は報告されておらず、本成果は競争が激化する当該分野において非常に重要性の高いものである。トランスポーターとして *Candida intermedia* 由来 glucose/xylose facilitator 1 を過剰発現させることでキシロース消費速度、特に低濃度域での消費速度を向上させキシロースの完全消費に必要な時間を 1/3 に短縮することに成功した。さらにこれらを数学的に表現するための足がかりとなる反応速度式と速度定数を決定した。

(4) それぞれの成分、 CH_4 、 CO_2 、 CO 、 H_2 に関する分圧依存性から、873 Kにおける反応速度式は、

$$(-r_{\text{CH}_4}) = \frac{kP_{\text{CH}_4}}{1 + K_{\text{CO}_2}P_{\text{CO}_2}^{0.5} + K_{\text{CO}}P_{\text{CO}}}$$

である。反応の各素過程を検討するために、パルス反応装置を用いて触媒サイクルを調べた。図 4 に示すように、 CO_2 パルスを触媒床に送ると、 CO が生成し、Niと CO_2 と強く相互作用することがわかる。その際、 CH_4 パルスを供給すると水素が生成することが示された。以上の結果より、Niは、 CO_2 と極めて強く相互作用し、表面は、解離吸着した CO と O で覆われており、活性化された CH_4 からの吸着種、 CH_x と反応する図 4 に示した反応ネットワークが明らかとなった。 CH_x 種の生成速度が、主反応速度を決める重要な中間体であることが判ったが、同時に活性劣化の原因となる炭素様物質の前駆体であることも示された。

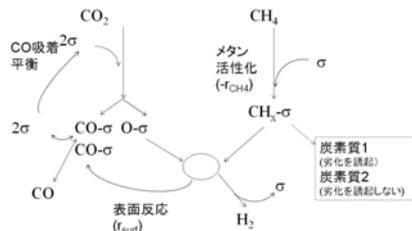


図 4 ドライリフォーミング反応のネットワーク構造

(5) 軽質オレフィン合成反応ネットワーク

系において、触媒反応器の壁面温度を非一様に最適設定を行うことにより、壁面温度一定で最適な定常条件での目的生成物の収率を上回る反応成績改善が実現可能なことを明らかにした。

(6) 攪拌槽内の層流混合に関しては、実験結果を説明し得る新しい混合モデルを構築することができた。さらに、このモデルを用いて、従来よりも高い混合性能を示す新しい攪拌翼の提案を行った。

(7) 熱交換反応操作によって、熱交換せずに外部加熱操作で反応を行う場合に比べて、同じガス出口温度における吸熱反応によるメタノール転化率が向上することを確認し、反応が起こる触媒基板を介しての直接熱交換により伝熱と反応が促進されることを示した。また、吸熱反応側に用いる触媒について担持法の検討を行い、耐久性を向上させた。吸熱反応非定常操作では、非定常原料供給において触媒基板構造を従来の平板状から伝熱性に優れるフィン状の構造にすることにより、反応性を大幅に向上させた。そして、非定常温度操作において、定常操作に対する反応性の向上を確認した。また、その向上の度合いは温度変動の周期が大きくなるほど大きいことを見出した(図 5)。さらに、非定常操作の導入により、吸熱反応操作に必要な供給エネルギーを減少させることができることも示した。

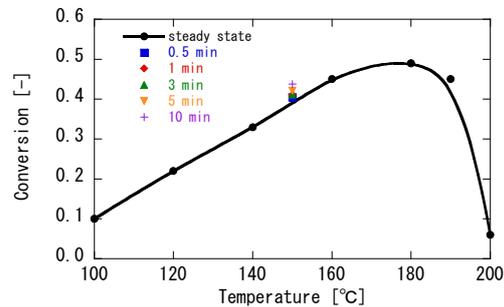


図 5 非定常温度操作による反応性向上

(8) シミュレーションを実施した結果、多重定常状態が出現することが明らかとなった。また、この領域は塔内の液ガス比によって影響を受けることが分かり、これを考慮した最適なネットワーク構造を確立できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 65 件)

① 大村直人, 堀江孝史 (他 2 名, 1 番目, 4 番目), 酢酸ビニルの連続乳化重合における機能モジュール表現法によるプロセス強化, 化学工学論文集, 査読有, 37(2), 2011, 134-139

② 堀江孝史, 大村直人, 西山 覚(他 3 名, 2 番目, 5 番目, 6 番目), 炭酸ガスからの合成ガス生成反応のプロセス強化に向けた速度論的解析, 化学工学論文集, 査読有, 37(2),

2011, 128-133.

③ 松本秀行、梶内円香、寺西幸子、黒田千秋、ポリエチレングリコールを用いた相分離型反応プロセスにおける交流電界操作の影響解析、化学工学論文集、査読有、Vol.37、No.2、2011、140-146

④ 大森隆夫、谷口智、片岡祥、山本拓司、中岩勝、周期操作による反応成績の改善、化学工学論文集、査読有、37(2)、2011、125-127

⑤ 岡田文太郎、石丸 拓、橋本俊輔、井上義朗、流体混合概念の再考、化学工学論文集、査読有、37(1)、2011、4-11

⑥ 桜井 誠、加藤 智大、亀山 秀雄、温度周期操作による 2-プロパノール脱水素反応の基礎的検討、化学工学論文集、査読有、37(2)、2011、120-124

⑦ Matsuda, K.、T. Ikoshi、T. Yamaki、M. Shishido、K. Iwakabe、T. Ohmori and M. Nakaiwa; “Steady State simulation of Reactive Distillation for TAME Synthesis,” Kagaku Kogaku Ronbunshu, 37(2), 2011, 104-109

⑧ T. Horie、N. Ohmura(他 2 名、1 番目、4 番目)、Characteristics of Continuous Emulsion Polymerization of Vinyl Acetate with a Compartment Reactor, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有、43(1)、2010、70-75

⑨ T. Horie、N. Ohmura(他 4 名、2 番目、6 番目)、Dispersion of Floating Particles in a Taylor Vortex Flow reactor, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有、43(4)、2010、319-325

⑩ T. Tanino、N. Ohmura (他 8 名、1 番目、8 番目)、Construction of a xylose-metabolizing yeast by genome integration of xylose isomerase gene and investigation of the effect of xylitol on fermentation, Applied Microbiology and Biotechnology, 査読有、88(5)、2010、1215-1221

⑪ Chaichanawong Jintawat、山本拓司、大森隆夫、Enhancement effect of carbon adsorbent on ozonation of aqueous phenol、Journal of Hazardous Materials、査読有、175(1-3)、2010、673-679

⑫ 井上義朗、橋本俊輔、流脈線ローブに基づく 3 次元攪拌槽内の層流混合機構の解析、化学工学論文集、査読有、36(4)、2010、355-365

⑬ 井上義朗、伊藤寛之、中田繕和、橋本俊輔、攪拌槽内における孤立混合領域の理論的解析、化学工学論文集、査読有、36(1)、2010、1-16

⑭ T. Nakano、M. Sakurai、H. Kameyama、Periodic temperature cycling operation using microreactor、Extended abstract of IWPI2010、査読無、2010、PB-02

⑮ Matsuda, K.、K. Iwakabe、T. Ohmori and M. Nakaiwa、Dynamic Behavior of an Internally Heat-Integrated Distillation Column (HIDiC), Chem. Eng. Transaction, 査読有、21、127-132 (2010)

⑯ T. Horie、N. Ohmura(他 3 名、3 番目、5 番目)、Effect of Particle Motion in Isolated Mixing Regions on Mixing in Stirred Vessel, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有、42(7)、2009、459-463

⑰ Hideyuki Matsumoto、Ryuichi Masumoto、Chiaki Kuroda、Feature Extraction of Time-series Process Images in Aerated Agitation Vessel using Self Organizing Map、Neurocomputing、査読有、Vol. 73、2009、60-70

⑱ 片岡祥、遠藤明、大山真紀子、大森隆夫、Enzymatic reactions inside a microreactor with a mesoporous silica catalyst support layer、Applied Catalysis A: General、査読有、359(1-2)、2009、108-112

⑲ Shunsuke Hashimoto、Hiroyuki Ito、Yoshiro Inoue、Experimental study on geometric structure of isolated mixing region in impeller agitated vessel, Chem. Eng. Sci., 査読有、64、2009、5173-5181

⑳ T. Kanaomori、K. Mizoguchi、Analysis of Solute Transport by Diffusion and Convection in Boundary Layer by the Finite Element Method, Proceedings of 20th International Symposium on transport Phenomena (ISTP-20)、査読有、2009、#245

[学会発表] (計 159 件)

① N. Ohmura、T. Horie、Methodology of Dynamical Network for Process Intensification, International Workshop on Process Intensification 2010、2010 年 12 月 3 日、福岡

② N. Kumagai、T. Esaki、T. Horie、N. Ohmura、Process Intensification of Emulsion Polymerization of Vinyl Acetate by Conversion to Continuous Processing in a Compartment Reactor, International Workshop on Process Intensification 2010、2010 年 12 月 3 日、福岡

③ 大村直人、プロセス強化のための化学工学の新たな枠組み構築をめざして、第 42 回化学工学会秋季大会、2010 年 9 月 6 日、京都 (招待講演)

④ Chiaki Kuroda、Process Intensification and Inherently Safer Compact Process、The 13th Asia Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress、2010 年 10 月 8 日、Taipei、Taiwan (Plenary Lecture)

⑤ Tanino T. “Construction of a xylose-metabolic *Saccharomyces*

cerevisiae by integration of xylose isomerase gene into the genome and investigation of the effect of xylitol on fermentation”. YABEC2010 (The 16th symposium of Young Asian Biochemical Engineers’ Community) 2010. 11. 12、Yuan Ze University, 台湾

⑥ T. Maeda, K. Taniya, Y. Ichihashi, and S. Nishiyama, Effect of La Addition to Cu-Zn-Al Catalysts for Water-Gas Shift Reaction, The Proceedings of 13th Asia Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress, 2010, P.12 (10292)

⑦ 大森隆夫, 谷口智, 片岡祥, 山本拓司, 中岩勝、Global Reaction Enhancement by Non-Uniform Temperature Setting of Reactor Wall, International Workshop on Process Intensification 2010, 2010年12月3日、福岡

⑧ 岡田文太郎, 石丸 拓, 橋本俊輔, 井上義朗, 流体混合概念の一般化, 化学工学会第42回秋季大会, 2010年9月7日, 京都

⑨ M. Nakaiwa, K. Huang, K. Iwakabe and K. Matsuda; Targeting Synergetic Effect in Distillation Processes, 8th World Congress of Chemical Engineering, 590, Montreal, Canada, 2009 (招待講演)

⑩ 松本秀行、物質生産プロセスのコンパクト化と制御、第52回自動制御連合講演会、2009年11月22日、大阪(招待講演)

⑪ N. Ohmura, R. J. Hubacz, M. N. Noui-Mehidi, Intensification of Chemical Processes Utilizing Rotating Flows, International Workshop on Process Intensification 2008, 2008年10月15日, 東京(招待講演)

[図書] (計2件)

(1) 大村直人, 鈴木 洋, 他, 朝倉書店, 乱流工学ハンドブック, 2009, 628

(2) 井上義朗, 他, 三恵社, 化学工学の進歩24 最新のミキシング技術の基礎と応用, 2008, 251

[その他]

大村直人, プロセス強化のための化学工学の新たな枠組み, ケミカルエンジニアリング, 56(4), 2011, pp. 249-253(解説を執筆)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大村 直人 (OHMURA NAOTO)
神戸大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 50223954

(2) 研究分担者

黒田 千秋 (KURODA CHIAKI)
東京工業大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号: 80114867

大森 隆夫 (OHMORI TAKAO)
産業技術総合研究所・環境化学技術部門・主幹研究員

研究者番号: 90356668

井上 義朗 (INOUE YOSHIRO)
大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授
研究者番号: 30093371

桜井 誠 (SAKURAI MAKOTO)
東京農工大学・大学院共生科学技術研究院・准教授

研究者番号: 60262052

松田 圭悟 (MATSUDA KEIGO)
山形大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号: 60415792

松本 秀行 (MATSUMOTO HIDEYUKI)
東京工業大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 90313345

金森 敏幸 (KANAMORI TOSHIYUKI)
産業技術総合研究所・環境化学技術部門・研究チーム長

研究者番号: 50356797

谷野 孝徳 (TANINO TAKANORI)
群馬大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 50467669

(3) 連携研究者

玉置 久 (TAMAKI HISASHI)
神戸大学・大学院システム情報学研究科・教授

研究者番号: 10227267

西山 覚 (NISHIYAMA SATORU)
神戸大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 00156126

堀江 孝史 (HORIE TAKAFUMI)
神戸大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 20513550

中岩 勝 (NAKAIWA MASARU)
産業技術総合研究所・環境化学技術部門・副部門長

研究者番号: 10356700

片岡 祥 (KATAOKA SHO)
産業技術総合研究所・環境化学技術部門・研究員

研究者番号: 50435765

山本 拓司 (YAMAMOTO TAKUJI)
産業技術総合研究所・環境化学技術部門・研究員

研究者番号: 30358228