

平成 22 年 5 月 28 日現在

研究種目：若手研究 (B)
研究期間：2008～2009
課題番号：20760523
研究課題名 (和文) 数値流体解析法と最適化法の融合によるマイクロ反応場の精密設計
研究課題名 (英文) CFD-BASED OPTIMAL SHAPE DESIGN OF MICROREACTORS
研究代表者
殿村 修 (TONOMURA OSAMU)
京都大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：70402956

研究成果の概要 (和文)：

流路のサイズと形状が重要な設計変数となるマイクロ装置設計問題を対象に、数値流体解析法と最適化法を融合した設計支援システムを開発した。マイクロ流路圧力損失最小化のケーススタディを通して、開発した設計支援システムの有効性を確認した。また、物質移動促進を目的として電極に溝を掘ったマイクロ電解リアクタ (MER-GE) を提案し、その有効性を数値流体力学シミュレーションおよび実験により検証すると共に、開発した設計支援システムを MER-GE の溝形状パラメータ最適化問題に適用した。

研究成果の概要 (英文)：

The shape of microchannels is an important design variable to achieve the desired performance. Computational fluid dynamics (CFD) is often used to rigorously examine the influence of the shape of microchannels on heat and mass transport phenomena in the flow field. In this research, a CFD-based shape optimization system is developed. To validate the effectiveness of the developed system, pressure drop minimization problems of microchannels are solved. In addition, micro electrolytic reactors having herringbone grooves are proposed to accelerate mass transfer of raw materials and products in the cross-sectional direction. The size and shape of grooves are optimally designed on the developed system.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2009 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・反応工学・プロセスシステム

キーワード：システム工学，マイクロ・ナノデバイス，モデル化，形状最適化，数値流体解析

1. 研究開始当初の背景

マイクロ化学プロセス技術は、その特異的な機能を有用な物質生産や医療診断等に利用するために世界中で活発な研究が行われ、この10年間に目覚ましい発展を遂げている。μTAS (Micro Total Analysis Systems, 1994年～), IMRET (International conference on Micro REaction Technology by AIChE and DECHEMA, 1997年～), ICMM (International Conference on Micro and Mini channels by ASME, 2003年～)といった国際会議の動向をみても、基礎研究だけでなく応用研究の報告例が増えつつある。日本で2002年より4年間実施されたNEDO「マイクロ分析・生産システム」プロジェクトでは、Grignard 試薬交換反応、ハロゲン-リチウム交換反応、ラジカル重合反応などの試験マイクロプラントが運転されるまでに至っている。

既往の研究では、多種多様なマイクロ装置(マイクロ反応器、マイクロ熱交換器、マイクロ混合器など)が試行錯誤で開発され、様々な化学反応に対してテストされ、従来デバイスと比較・検討されることが中心であった。しかし、2005年の「マイクロ化学システムに関する調査研究」アンケート調査結果によると、“現象モデルおよび装置モデルの開発を進め、システムティックな装置設計の方法論を構築する必要がある”という回答が多くを占めた。今後、マイクロ化学プロセス技術を実生産プロセスへ広く適用するには、マイクロ装置の設計法や操作法の確立が急務であり、ケミカルエンジニアの得意とするところである。

2. 研究の目的

本研究は、研究開発が活発なマイクロ化学プロセスの実生産化に向けて、マイクロ装置の設計法の確立を目指す。本科学研究費補助金申請の期間内での達成目標は、流路の"サイズ"と"形状"が重要な設計変数となるマイクロ装置設計問題を対象に、数値流体解析法と最適化法を融合した設計支援システムを開発することと、開発システムを用いて得られた最適流路形状の有効性を実験的に検証することである。

3. 研究の方法

マイクロ流路の形状最適化を行うためのフレームワーク構築、および、設計モデルの開発・検証実験・モデルの精度向上に取り組んだ具体的方法について以下に述べる。

(1) 形状最適化を行うためのフレームワークの構築

数値流体力学による設計法の問題点(=評価値を計算するために流れの支配方程式を解く必要があり、設計変数の数が増えるにつれ多大な計算時間を要する)を解決すべく、全ての設計変数に対する評価値の感度を2度の評価値の計算と同程度の計算負荷で求めることができ、多設計変数問題に有利である随伴変数法に基づく設計フレームワークを構築した。

設計問題の定式化は、目的関数 $J(Q, x)$ (Q : 状態変数, x : 設計変数) を、制約条件 $F(Q, x) = 0$ (流れの支配方程式, 設計上に関する制約) を満たす条件下で、最小化(最大化)する問題となる。ここで、流れの支配方程式は、流路形状・サイズ, 反応速度定数, 拡散係数, 粘度, 流量, 濃度, 温度などを含む偏微分方程式で表現される。ラグランジュ係数(関数)を導入し、変分法により最適性の条件を導出して最適解を求める。このとき、大規模な連立非線形偏微分方程式系を解かねばならず、従来の決定論的手法では、 N 個の設計変数に対する感度を求めるために N 回程度の評価値の計算が必要であり、設計変数の数に比例して計算負荷が大きくなってしまふ。今回採用した随伴変数法では、設計変数の数に依らず、全ての設計変数に対する感度を2度の評価値の計算と同程度の計算負荷で求めることができる。

さらに、応答局面法に基づく最適化機能を設計フレームワークに加え、大規模かつ複雑なモデルに基づく最適設計の効率化を可能にした。応答局面法の導入により、設計問題の最適点周りの評価値に対する感度を定量的に把握することが可能になった。

(2) 設計モデルの開発・検証実験・モデルの精度向上

設計モデル開発に向けて取り組んだシミュレーションによる特性解析を通して、反応成績の向上に繋がる様々な知見(例: 流路構造・形状の工夫による流体混合効果)が得られた。また、望ましい流れ場を実現するデバイス設計問題の定式化に於いて、流れの支配方程式に対してラグランジュ関数を導入し、変分法により最適性の条件を導出して最適解を求めた。

また、マイクロ電解リアクタの効率化の鍵は物質移動促進であり、分子拡散のみに頼る従来の平行平板電極型マイクロ電解リアクタでは限界がある。本研究では、物質移動促進を目的として電極に溝を掘ったマイクロ電解リアクタを提案し、そのモデルを構築し、溝形状パラメータが反応成績に与える影響を解析すると共に、開発した設計フレームワ

ーク／システムを用いて溝形状パラメータを最適化した。また、実験を通して設計結果の有効性を確認した。

4. 研究成果

開発した設計フレームワーク／設計支援システムは図 1 の通りである。まず、(1)初期形状を決定し、格子を生成する。(2)状態方程式を解き、各格子点での状態変数の値を求め、評価値を計算する。(3)手順 2 で求められた状態変数の値を用い、随伴方程式を解き、各格子点での随伴変数の値を求める。(4)状態変数と随伴変数の値を用い、全ての設計変数に対する評価値の感度を求める。(5)感度に基づいて新しい形状を決定し、格子を再生成する。(6)手順 2 へ戻る。評価値が収束条件を満たせば計算を終了する。そうでない場合は手順 3 へ進む。

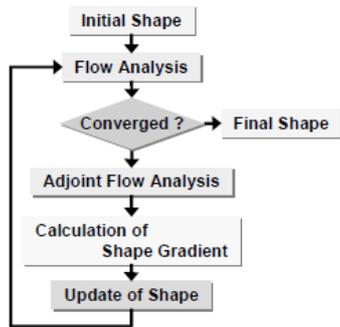


図 1 数値流体解析法と随伴変数法に基づく形状最適化システム

開発した設計フレームワーク／設計支援システムを、図 2 に示すマイクロ分岐流路の圧力損失最小化問題に適用した結果について述べる。マイクロ分岐流路内の流れは非圧縮性のニュートン流体とすると、状態方程式は、連続の式と Navier-Stokes 方程式である。設計変数は分岐前の流路壁 Γ_{w1} 、分岐後の流路壁 Γ_{w2} 、 Γ_{w3} における各格子の位置とする。評価関数は流路の入口と出口の圧力差とする。この問題を解くために C 言語でプログラムを組んだ。流れ場、随伴場の計算にはフラクショナルステップ法を、計算格子にはスタガード格子を用いた。また、座標変換を用いて、曲線格子上で定義された変数の微分量を直交等間隔格子上で計算した。本プログラムの計算結果が商用の流体計算ソフトウェアを用いた場合と良く一致することは確認済みである。

Re = 1, 100 の最適形状を導出した。結果を図 3 に示す。それぞれ 70, 95 回目最適形状が得られており、1 回の形状更新に要した計算時間はおよそ 20 秒であった。分岐前の流路幅が狭まり、領域右下の分岐部が丸みを帯びて体積が減り、分岐後の流路幅が広

がることで、圧力損失がそれぞれ 35.9 %, 38.0 % 低減されている。Re = 100 では慣性力が大きいので、湾曲流路の場合と同様の理由で、分岐後の流路の x 方向への傾きが大きくなっており、分岐部が T 字型から Y 字型へ変形している。

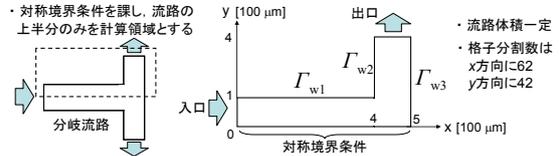


図 2 マイクロ分岐流路とその設計条件

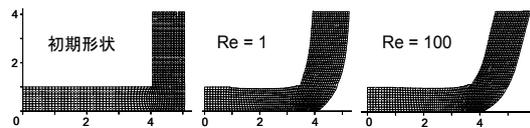


図 3 初期形状と Re = 1, 100 の最適形状

また、本研究では、マイクロ電解リアクタ (micro electrolytic reactor; MER) を対象として、溝を電極に掘ることにより、対流渦による物質移動促進だけでなく、電極表面積増加も同時に狙った「溝付電極型 MER (MER having a grooved electrode; MER-GE)」を提案した。MER-GE の概略図を図 4 に示す。MER-GE において、拡散係数 $5 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 、入口 Re 数 1.3 として数値流体力学シミュレーションを行った。溝形状パラメータの中で溝間隔 q 、溝深さ d_g については共に $50 \mu\text{m}$ で固定し、残りの溝形状パラメータである溝非対称度 p 、溝角度 θ 、溝幅 q_g を最適化した。手順としては、まず何度か試行錯誤的に数値流体力学シミュレーションを行ったところ、溝非対称度は最大収率に大きな影響を与えないことがわかったので、加工の容易さを考慮して $p = 0.5$ (対称溝) とした。次に、収率最大化を目的として、溝幅 q_g と溝角度 θ を二次応答曲面法を用いて最適化した結果、 $q_g = 156 \mu\text{m}$ 、 $\theta = 62^\circ$ となった。その時の応答曲面を図 5 に示す。図 5 を見ると溝形状パラメータは最大収率に対して大きな影響を及ぼし、MER-GE において溝形状パラメータを最適化することは非常に重要であると言える。

最適化した溝形状パラメータを用いて無次元印加電圧 E_0^* と最大収率 $Y_{B, \text{MAX}}$ の関係を調べた結果を図 6, 7 の三角印に示す。図 6 より、MER-GE を用いることで平行平板電極型 MER に比べ、最大収率が 10~20 % 程度向上し、拡散係数を $1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ とした時とほぼ同等の最大収率を得られることがわかる。また、図 7 より、MER-GE はチャンネル長さの短縮にも有効であることがわかる。以上より、MER-GE は平行平板電極型 MER に比べ、高効率であると言える。

以上の研究成果について、次節で示すように、国内外の学会で発信し、一流の研究者と議論を行った。これらの成果は、マイクロ化学プロセスの実生産化に向け、経験工学的な要素が多く含まれたマイクロ化学装置開発から脱却し、現象モデル化法と最適化法を融合した装置設計法の構築へと発展する成果である。今後は、マイクロ化学装置の高スループット化、長期連続運転による安定性の評価にも取り組む必要がある。

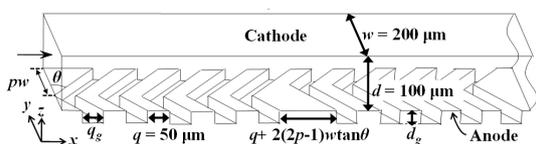


図4 MER-GEの概略図

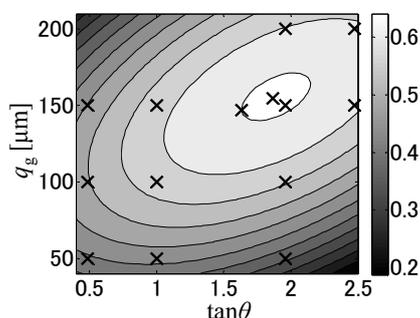


図5 収率最大化問題の応答曲面

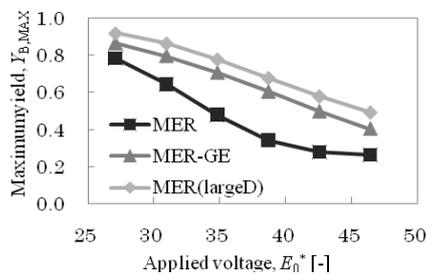


図6 無次元印加電圧と最大収率の関係

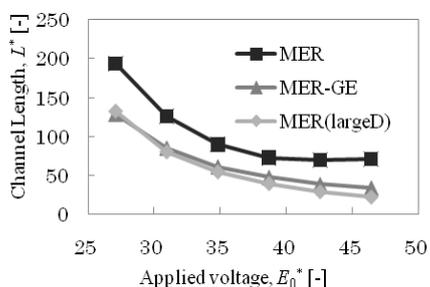


図7 図6の各点におけるチャンネル長さ

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計5件)

- ① Osamu Tonomura, 他, Design of Micro Electrolytic Reactors towards Acceleration of Mass Transfer, 11th International Conference on Microreaction Technology, 2010年3月9日, 京都市リサーチパーク (京都市)
- ② 殿村修, 他, 物質移動促進を目的としたマイクロ電解リアクタの設計, 化学工学会第41回秋季大会, 2009年9月7日, 広島大学 (東広島市)
- ③ Osamu Tonomura, 他, CFD-Based Shape Optimization of Pressure-Driven Microchannels via Adjoint Formulation, AIChE Annual Meeting, 2008年11月18日, 米国・Philadelphia
- ④ 殿村修, 他, CFDシミュレーションによるマイクロ電解リアクタの特性解析と設計, 化学工学会第40回秋季大会, 2008年9月26日, 東北大学 (仙台市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

殿村 修 (TONOMURA OSAMU)

京都大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：70402956