

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：13901
研究種目：基盤研究(B)（一般）
研究期間：2018～2020
課題番号：18H01776
研究課題名（和文）データサイエンス手法を活用したプロセス強化：反応クロマトグラフィーのモデリング

研究課題名（英文）Process intensification utilizing data science techniques: modeling reactive chromatography

研究代表者
川尻 喜章（Kawajiri, Yoshiaki）

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：20811087
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000円

研究成果の概要（和文）：化学工学におけるプロセス開発とプロセス強化を目的とした、データサイエンス手法を応用したモデリング手法の開発を行った。特に尤度テンパリングによる逐次モンテカルロ法を使い、並列計算が可能となるベイズ推定による不確実性定量化手法を開発した。更にはクロマトグラフィー分離プロセス、および反応分離クロマトグラフィープロセスの実験を実施し、その実験データに提案手法を適用することで実証例を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

化学産業におけるプロセス開発と、それを強化することを目的としたデータサイエンス手法を開発した。化学プロセスを設計し運転するためにはコンピュータによる予測が不可欠であるが、この予測に不可欠であるモデリングの手法を効率化し、計算時間を短縮する手法を開発した。提案手法は分離精製プロセスであるクロマトグラフィープロセスに適用され、実験を自ら行うことにより有効性を実証することに成功した。同手法は他の化学プロセスへの波及と展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：Modeling approaches were developed applying data science techniques for process development and process intensification in chemical engineering. In particular, a sequential Monte Carlo method with likelihood tempering which allows parallel computation was developed. Furthermore, chromatographic separation and reactive chromatographic separation experiments were performed, where the obtained data were utilized to demonstrate the proposed approach.

研究分野：化学工学

キーワード：プロセスモデリング 逐次モンテカルロ法 クロマトグラフィー 吸着 データサイエンス ベイズ推定 反応分離 統計

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

化学産業における効率化、省エネルギー化、低環境負荷化などを達成する「プロセス強化」が注目を集めている。これは従来の化学工学の概念を革新する新しい技術を導入することで、飛躍的な性能向上を目指すことを意味している。プロセス強化技術の有力な手法の一つとして、反応分離プロセスがある。これは化学反応と製品分離を同じプロセス内で行う。この統合された反応分離プロセス内では、反応生成物が連続的に分離されることにより、収率や選択率が向上する。例えば平衡で制限される反応に適用した場合、反応生成物を除去することにより反応が平衡を超えてすすむ。

申請者は過去に米国企業と共にプロセス強化に取り組んできた。例えば、工業用エステル生産のための反応分離擬似移動相クロマトグラフィープロセスの開発を行った。この中で数式モデルと設計法を提案し、工業的にも実現可能であることを実証したこの研究成果の中で、産業界におけるプロセス強化の実現には数々の問題を解決しなければならないことを示した。以下に例を挙げる。

モデル不確実性：パラメータ同士の相関、実験誤差、および測定の限界などにより、パラメータの推定精度が悪くなる。これによりモデルの信頼性が低下してしまう。

数値計算の困難（非線形、非凸性、偏微分方程式）：一般のデータサイエンス分野では大量のデータが得られ、線形や多項式などのデータ駆動モデルを多用する。これに対し、化学プロセス開発にはこれが当てはまらず、データ量が少ない代わりにモデルのほとんどは物理法則から導かれる。これらのモデルは非線形性、非凸性を有し、更には微分方程式や偏微分方程式になりうる。これらの複雑なモデルには統計手法をそのまま使えず、計算時間も膨大になる。更に実験データからパラメータを推定するには繰り返し計算が必要なため、モデルを一度解くだけのシミュレーションに比べると計算時間の桁が増えてしまう。

2. 研究の目的

本研究は化学工学分野、特にプロセスモデリング分野におけるデータサイエンス手法とそれに必要な数値計算技術を開発し、プロセス強化を支援することを目的とした。具体的に 実験データの取得、プロセスモデリング、モデルパラメータの不確実性評価、の3段階を実験を自ら行って実証した

3. 研究の方法

3-1 クロマトグラフィー反応分離装置、および擬似移動相クロマトグラフィー分離装置の導入

実験データを取得するための実験装置を導入した。クロマトグラフィー反応分離装置は島津製作所製のものを購入して設置するのに対し、擬似移動相クロマトグラフィー分離装置は国内で購入できる物が限られていたため、ロータリーバルブやポンプなどの構成部品を購入し、配管と制御を実装して自らシステムを構築した。

3-2 プロセスモデルの構築と実装

上記 3-1 で得られる実験データを記述でき、さらに新しい条件で行う実験結果を予測出来るモデルを開発した。

3-3 モデルパラメータ不確実性定量化手法開発と評価

ベイズ推定手法を適用する上で、多くのパラメータ（数十個程度）を有し、偏微分方程式モデルで表される反応クロマトグラフィーに対応できる計算手法を開発した。特に、尤度テンプレートを利用した逐次モンテカルロ法の実装により計算時間が短縮されることを確かめた。具体例として、上記 3-1 で設置したクロマトグラフィー反応分離装置を使って取得した実験データ、反応分離クロマトグラフィー、および擬似移動相クロマトグラフィー分離試験装置によるデータを使った。

4. 研究成果

化学工学におけるプロセス開発とプロセス強化を目的としたデータサイエンス手法の開発のための、極めて有望な研究結果が得られた。

(1) 実験設備の導入および実験データ取得完了

実験データ取得と実験実証を目的とし、高速液体クロマトグラフィー分離試験装置を導入し設置した。この装置を使って、イオン交換樹脂を使った水溶液中の高濃度糖の分離、および C18 カラムと有機溶媒を使った有機化合物（シクロヘキサンノン/シクロペンタノン、およびフェノール/p-クレゾール）の分離実験、更には酢酸メチル合成のための反応クロマトグラフィー分離試験を行い、これらのデータを使って下記の推定手法が有効であることを確かめるのに利用し

た。更には、様々なインジェクション体積による実験データの取得に成功した。

更には、擬似移動相クロマトグラフィー装置を作成し（図1）実験に成功した。Kanuer社製のポンプ4台から、Valco社製ロータリーバルブ6台を通して4本のカラムに送液出来る装置を構成した。このロータリーバルブを一定時間おきに切り替えることにより、擬似移動相操作を可能にすることを確認した。この装置を使ってイオン交換樹脂を使った高濃度グルコース/フルクトース水溶液の分離試験を行うことに成功した。ここで得られた試験データは、下記の研究成果を得ることにつながった。

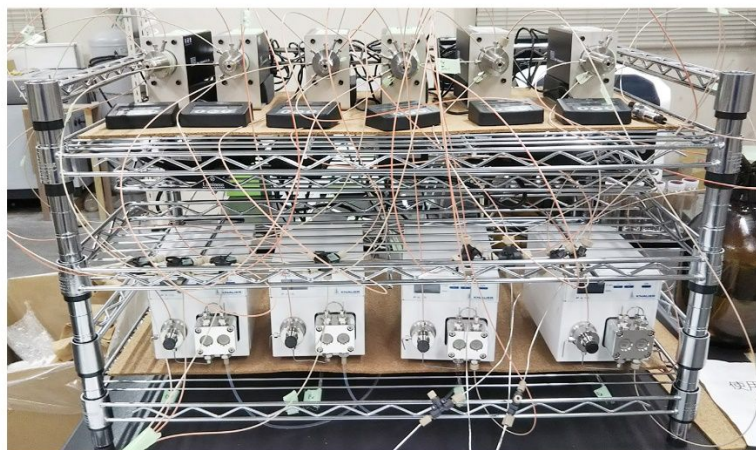


図1 構築した擬似移動相クロマトグラフィー分離試験装置

（2）プロセスモデルの構築と実装

上記の設備を使って得られる実験データとの整合性を確かめた。そしてこの実験データとモデルに対し、ベイズ推定手法、および非線形モデルを使った回帰によりモデルパラメータが推定できることを確かめた。具体的に、下記のマルコフ連鎖モンテカルロ法、逐次モンテカルロ法、および正則化による回帰の3つの手法を適用し、得られたモデルが実験データに適合することを確かめた。

（3）モデルパラメータ不確実性定量化手法開発と評価

パラメータの精度と計算時間の比較を行い、複数の手法の利点と欠点について整理した。更には、得られたモデルパラメータの不確実性も定量化できることを確かめ、これがプロセス開発におけるロバスト性を高められることを示した。

クロマトグラフィー分離試験の実験データを、正則化付き回帰、マルコフ連鎖モンテカルロ法、更には尤度テンパリング逐次モンテカルロ法の3種類で解析することにより、プロセスモデルパラメータの不確実性を定量化することに成功した。特に高濃度のフルクトース、グルコース混合水溶液から擬似移動相クロマトグラフィー分離によりフルクトースの分離を実証し、モデル誤差を解消するためのパラメータ推定手法を実装した。このような成果は得られたものの、欠点も明らかとなった。特に、正則化付き回帰では計算時間が短い一方で、不確実性を正しく評価出来ない可能性があることがわかった。この欠点を補う手法としてマルコフ連鎖モンテカルロ法も適用したが、計算に数日間以上の時間が必要であることがわかった。

これらの問題を解決するため、計算時間を削減できる逐次モンテカルロ法の開発を行った[1]。これを上記のフルクトース/グルコースのクロマトグラフィー分離に適用したところ、従来の計算法に比べて著しい収束の優位性を確認出来た。更には、同手法を並列計算として実装することで、計算時間を減少させることが出来ることを報告した（図1）。他にもシクロヘキサノン/シクロペンタノンの分離、およびフェノール/p-クレゾールの分離（図2）への適用にも成功した。更には、同手法をメタノールと酢酸から酢酸メチルを合成する反応クロマトグラフィー分離に応用し、現実的な時間でパラメータ推定とその不確実性定量化が出来ることを確認した。

これらの研究から派生した成果として、既存の吸着剤データベースから得られたデータの不確実性定量化に成功した[2]。特に階層ベイズモデリング手法を使い、異なる研究者が報告する吸着等温線データからモデルパラメータを推定する手法を開発した。

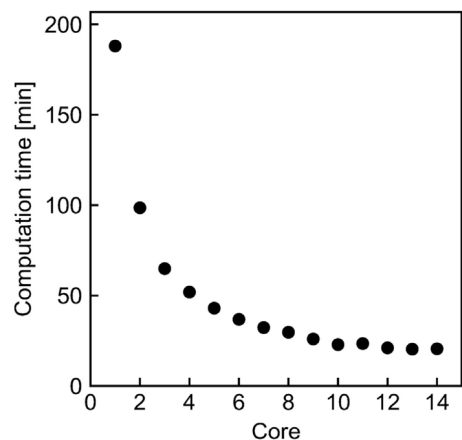


図2 逐次モンテカルロ法並列計算による計算時間の短縮効果（文献1より Elsevier 社の許可を得て転載）

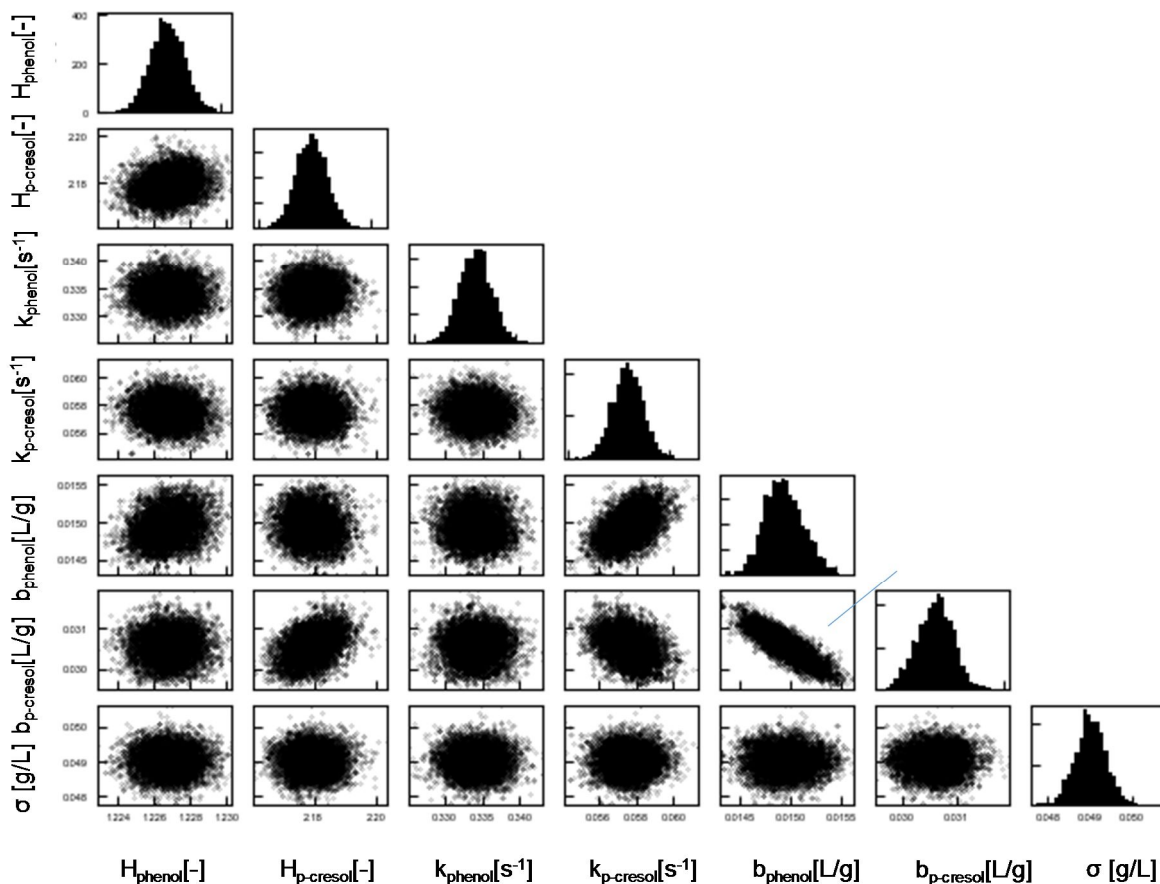


図3 フェノール/p-クレゾール分離におけるモデルパラメータ不確実性。図中の記号定義は文献1を参照

参考文献

1. Yamamoto, Y.; Yajima, T.; Kawajiri, Y., Uncertainty quantification for chromatography model parameters by Bayesian inference using sequential Monte Carlo method. Chem. Eng. Res. Des. 2021, 175, 223-237.
2. Shih, C.; Park, J.; Sholl, D. S.; Realff, M. J.; Yajima, T.; Kawajiri, Y., Hierarchical Bayesian estimation for adsorption isotherm parameter determination. Chem. Eng. Sci. 2020, 214.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Shih Chunkai, Park Jongwoo, Sholl David S., Realff Matthew J., Yajima Tomoyuki, Kawajiri Yoshiaki | 4. 巻 214 |
| 2. 論文標題 Hierarchical Bayesian estimation for adsorption isotherm parameter determination | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Chemical Engineering Science | 6. 最初と最後の頁 115435 ~ 115435 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ces.2019.115435 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Yamamoto Yota, Yajima Tomoyuki, Kawajiri Yoshiaki | 4. 巻 175 |
| 2. 論文標題 Uncertainty quantification for chromatography model parameters by Bayesian inference using sequential Monte Carlo method | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Chemical Engineering Research and Design | 6. 最初と最後の頁 223 ~ 237 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cherd.2021.09.003 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Park Jongwoo, Rubiera Landa Hector Octavio, Kawajiri Yoshiaki, Realff Matthew J., Lively Ryan P., Sholl David S. | 4. 巻 59 |
| 2. 論文標題 How Well Do Approximate Models of Adsorption-Based CO2 Capture Processes Predict Results of Detailed Process Models? | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Industrial & Engineering Chemistry Research | 6. 最初と最後の頁 7097 ~ 7108 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.iecr.9b05363 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Kalyanaraman Jayashree, Kawajiri Yoshiaki, Realff Matthew J. | 4. 巻 135 |
| 2. 論文標題 Bayesian design of experiments for adsorption isotherm modeling | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Computers & Chemical Engineering | 6. 最初と最後の頁 106774 ~ 106774 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.compchemeng.2020.106774 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 7件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yota Yamamoto Tomoyuki Yajima Yoshiaki Kawajiri |
| 2. 発表標題 Parameter Estimation by Bayesian Inference Using Monte Carlo Sampling for Liquid Chromatography Process Model |
| 3. 学会等名 Asian Symposium on Process Systems Engineering (PSE Asia) (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiaki Kawajiri |
| 2. 発表標題 Bayesian approaches for chemical process modeling |
| 3. 学会等名 Asian Symposium on Process Systems Engineering (PSE Asia) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kosuke Wakita Tomoyuki Yajima Yoshiaki Kawajiri |
| 2. 発表標題 Uncertainty Quantification for Estimating Molecular Weight Distribution by Gel Permeation Chromatography |
| 3. 学会等名 Asian Symposium on Process Systems Engineering (PSE Asia) (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 C. Shii J. Park D. Sholl M. Realff T. Yajima Y. Kawajiri |
| 2. 発表標題 Hierarchical Bayesian Estimation for Adsorption Isotherm Parameter Determination and Applications to CO ₂ Capture |
| 3. 学会等名 AIChE Annual Meeting (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 原田秀喜 佐藤 康平 岡田 一夫 鶴田 正樹 矢島 智之 川尻 喜章 |
| 2. 発表標題 擬似移動層クロマトグラフィー分離装置における運転データからのモデルパラメータ推定 |
| 3. 学会等名 化学工学会 第50回秋季大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 磯部 祐輝 矢島 智之 川尻喜章 |
| 2. 発表標題 マルコフ連鎖モンテカルロ(MCMC)法を用いた吸着プロセスのパラメータ推定 |
| 3. 学会等名 化学工学会 第50回秋季大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Y. Isobe Y. Yamamoto K. Suzuki T. Yajima Y. Kawajiri |
| 2. 発表標題 Bayesian Approach for Adsorption Process Modeling |
| 3. 学会等名 Fundamentals of Adsorption (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 川尻喜章 |
| 2. 発表標題 データ科学手法を援用したプロセス開発 |
| 3. 学会等名 スマートエンジニアリングTOKYO 産学官マッチングフォーラム (招待講演) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 川尻喜章 |
| 2. 発表標題 化学プロセス開発におけるデータ活用 |
| 3. 学会等名 材料バックキャストテクノロジーシンポジウム: 未来を拓くものづくり (招待講演) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 川尻喜章 |
| 2. 発表標題 データサイエンス手法を援用した化学プロセス開発の新展開 |
| 3. 学会等名 インフォマティクスと連携したモノづくりと計測技術 日本金属学会東海支部・日本鉄鋼協会東海支部学術討論会 (招待講演) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Ziting Yuan, Yota Yamamoto, Tomoyuki Yajima, Yoshiaki Kawajiri |
| 2. 発表標題 Parameter Estimation of Chromatography By Bayesian Inference Using Two Monte Carlo Methods |
| 3. 学会等名 AIChE Annual Meeting (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yoshiaki Kawajiri |
| 2. 発表標題 Bayesian approaches for adsorption isotherm and process modeling |
| 3. 学会等名 International Adsorption Society Webinar Series (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 杉山輝、山本陽多、矢嵐智之、川尻喜章 |
| 2. 発表標題 ベイズ推定による反応クロマトグラフィープロセスモデルのパラメータ推定 |
| 3. 学会等名 新化学技術推進協会 (JACI) GSC シンポジウム |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 川尻喜章 |
| 2. 発表標題 化学プロセスモデリングにおけるデータサイエンス技術の活用 |
| 3. 学会等名 表面技術協会 第142回講演大会 (招待講演) |
| 4. 発表年 2020年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---------------------------------|--|----|
| 研究協力者 | レルフ マシュー (Realf Matthew) | ジョージア工科大学・Professor | |
| 研究協力者 | ショール デヴィット (Sholl David) | ジョージア工科大学・Professor | |
| 研究協力者 | パーク ジョンウー (Park Jongwoo) | 米国立エネルギー技術研究所・Post-Doctoral Research Associate | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | |
|---------|-----------|----------------|--|
| 米国 | ジョージア工科大学 | 米国国立エネルギー技術研究所 | |