

機関番号：14301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20360357

研究課題名（和文）機能に基づくマイクロデバイスの構造・形状最適化

研究課題名（英文）Structure and Shape Optimization of Microdevices by Function Oriented Synthesis Approach

研究代表者

長谷部 伸治 (HASEBE SHINJI)

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60144333

研究成果の概要（和文）：本研究では、化学工学研究に基づく知見とシステム工学手法および飛躍的に発達した計算機能力を用い、構造までも考慮に入れた新たな設計法の提案を目標としている。目標達成に向けて、マイクロリアクタを対象に、与えられた操作・設計制約を満足する最適な流路構造・寸法・並列化数を導出する手法を開発した。開発した手法では、利用可能な流路構造毎に入出力関係を表すモジュールを作成し、スーパーストラクチャーを構築することにより、設計問題を混合整数非線形計画問題として定式化した。

研究成果の概要（英文）：The final goal of this research is to propose a method for deriving an optimal structure and shape of devices by using the chemical engineering knowledge, the systems engineering approach and the increasing computer power. The proposed method is applied to the channel structure and shape design problems of microreactors. In the first step of the proposed method, the input-output function module for each channel candidate is prepared. In the second step, the superstructure model that consists of all possible channel candidates is constructed. In the final step, the optimal design result is derived by using the mixed-integer nonlinear programming methods.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	3,600,000円	1,080,000円	4,680,000円
2009年度	6,200,000円	1,860,000円	8,060,000円
2010年度	3,000,000円	900,000円	3,900,000円
年度			
年度			
総計	12,800,000円	3,840,000円	16,640,000円

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：プロセスシステム設計，最適化，プロセス合成，マイクロリアクタ，モデル化

## 1. 研究開始当初の背景

プロセス強化に代表されるように、化学プロセスにはより一層の高機能化や効率化が要求されている。このような要求をモデルに基づいて検討するには、対象の詳細なモデルが不可欠である。しかしながら、装置設計に従来より用いられてきた単位操作モデルは、

温度や組成に対しては完全混合、流れに対しては押し出し流れ、気液は平衡状態、というように理想化された関係式に基づいていた。詳細なモデルも提案されているが、それらは研究者が自らの研究対象に特化した形で開発しているのが実情である。化学装置の最適設計を行う場合においても、その構造については固定して設計するのが一般的であった。

一方、近年数十  $\mu\text{m}$  から数百  $\mu\text{m}$  の流路を有する装置を用いた物質合成に関する研究が広く行われ、従来の反応装置と比較して目的成分の選択率を大幅に向上できることや粒径分布のシャープな微粒子製造が可能であることが報告されている。これらは、マイクロリアクタのもつ滞留時間や温度を精密に制御できることや、短時間での混合が可能であるという特徴を利用した結果である。しかしながら、これらの研究で利用されているマイクロリアクタの構造、形状、寸法、滞留時間といった設計・操作条件は、研究者が試行錯誤で定めたものである。マイクロリアクタの研究開発が応用ステージへシフトしてきている今日、マイクロリアクタ設計法の開発は急務であると言える。計算機性能の向上や数値流体力学 (CFD) の進歩により、構造が与えられた条件下ではモデルに基づいて流路形状や寸法を最適化することは、現状においても実施可能なレベルに至っている。

## 2. 研究の目的

従来、蒸留塔や反応器といった化学装置の設計法は、与えられた構造下でサイズを最適に定めることが中心であった。そして、新規な装置構造の提案は、経験豊かな技術者の「思いつき」によってなされてきた。本研究は、これまで蓄積されてきた化学工学研究に基づく知見とシステム工学手法および飛躍的に発達した計算機能力を用いて、装置構造までも考慮に入れた新たな装置設計法の提案を目標としている。具体的には、装置に対する入出力関係が与えられたとき、構造の選定や各部の形状や寸法までも変数に加えて最適化問題を解くことにより、望ましい構造・形状・寸法を導出する手法の開発を目指す。そして、これまで「単位操作」をベースに考えられてきたプロセス設計の考え方を一新する設計手法の提案を最終的な研究目標とする。

本科学研究費補助金に基づく研究内では、上記の最終目標に対し、特定のマイクロデバイスを対象として、設計手法を開発することを目的とする。マイクロデバイスでは流れが壁によって制約されるため、実際の装置内の物理的挙動を化学工学で蓄積された理論に基づくモデルで表現しやすいという特徴を有する。このような特徴を有するマイクロデバイスをまず取り上げ、モデルの構築とそのモデルを用いた設計手法の開発を本科学研究費補助金の研究期間内で実施する。

## 3. 研究の方法

本研究では、マイクロリアクタの入出力の要求が与えられたとき、設計・操作に関する制約条件を満たし、かつ与えられた評価を最適とするマイクロ流路を設計する手法を開

発する。具体的には、以下の項目について研究を実施した。

### (1) 構造を考慮できる設計用モデルの開発

これまで、様々な構造を有するマイクロ流路が提案されてきている。ゆえに、想定した対象に対して処理手順が与えられたとき、ある処理手順で要求される機能を実現可能な流路構造は複数存在する。本研究では、「単位操作」という考え方ではなく、ハードウェアとしての流路構造毎に入出力関係を表すモジュールを用意することにより、構造を考慮できる設計用モデルを作成する。図1はモジュールの概略図である。ユニットの出力  $y$  は入力  $x$  および設計変数  $D$  の関数で表される。 $D$  は流路のサイズや並列化数といった設計変数、 $x$  は流体の状態量 (例: 線速, 濃度, 圧力)、 $y$  は状態量, 混合時間, 反応収率, 反応時間, 反応時間, 装置コストである。

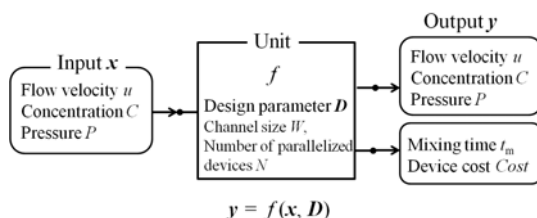


図1 モジュールの概略図

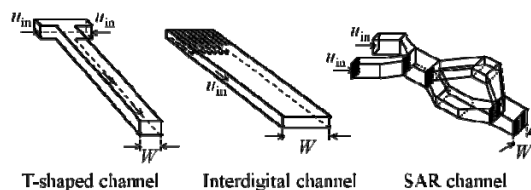


図2 利用可能な流路構造例

図2に示す3種の流路構造を例に、混合時間, 反応収率, 反応時間, 圧力損失, 装置コストの順で、モジュールの入出力関係の定式化について説明する。ただし、2流体の等流量混合および液相反応を想定し、2流体の物性値は等しいとする。

### ① 混合時間

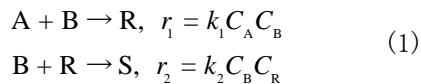
混合度を評価するために温度依存性のない非常に速い反応系  $X + Y \rightarrow Z$  を導入し、生成物  $Z$  の収率  $I_z$  を混合度と定義する。そして、2流体が接触したのち  $I_z = 0.99$  となるまでに要する平均滞留時間を混合時間  $t_m$  と定義する。

2流体が層を成して流れ、分子拡散により混合が進行する場合、 $t_m$  は2流体層の厚さ  $W_{\text{seg}}$  の2乗に比例する。比例定数はCFDシミュレーション結果に基づいて決定する。 $W_{\text{seg}}$  は交互に配列された2流体の層の1ペア分の厚さに相当する。例えば、T字流路の場合は  $W_{\text{seg}} = W$ 、入口において2流体を  $m$  個ずつ交互に配

列した Interdigital 流路の場合は  $W_{\text{seg}} = W/m$ , 流体の分割・再結合を  $n$  回繰り返す Split and Recombine 流路 (以下 SAR 流路) の場合は  $W_{\text{seg}} = W/2n-1$  となる。

T 字流路においては, 処理流量に応じて流動状態が変わることが知られていて, 拡散のみならず対流による混合が支配的になる場合がある。本研究では, 対流拡散混合をもたらす Engulfment flow を伴う T 字流路について, 研究代表者らが開発した Lamellar model を用いてモジュールの入出力関係を定式化する。Lamellar model を用いることにより, Engulfment flow による対流拡散混合を, 2 流体が交互に並んだ薄層に基づく拡散混合により近似することができる。このとき,  $W_{\text{seg}}$  は CFD シミュレーション結果と Lamellar model による濃度推定結果の差が最小となるように決定される。その上で,  $t_m$  と流体線速および Re 数の関係を導出する。

### ② 反応収率と反応時間



に示す逐次反応を例題にモジュールの定式化について説明する。設計・操作条件が与えられたとき, 目的生成物 R の流路出口における収率  $Y_R$  を推算することを考える。マイクロ流路は比表面積が大きく熱交換性能に優れ, 等温反応器と見なすことができる。拡散支配下において鍵成分である原料 A, B の物質収支式を立て, 無次元化する。その結果, 流路入口における A, B の濃度比および拡散係数の比を固定すると,  $Y_R$  は 2 つの無次元数  $\phi$ ,  $\kappa$  に依存する。 $\phi$  は Second Damkohler number と呼ばれ, 反応速度と拡散速度の比を表し,  $\kappa$  は反応速度定数の比を表す。そこで,  $\phi$  および  $\kappa$  を変化させたときの  $Y_R$  を CFD シミュレーションより求め, 応答曲面法を用いて,  $Y_R$  と  $\phi$ ,  $\kappa$  の関係をモデル化する。また, Engulfment flow を伴う T 字流路については先に紹介した Lamellar model に基づいて同様に,  $Y_R$  と  $\phi$ ,  $\kappa$  の関係をモデル化する。

さらに, 2 流体合流後, 収率が最大となる反応時間/流路長さを定義し,  $\phi$ ,  $\kappa$  を変えながら実施した CFD シミュレーション結果を用いて, 反応時間と  $\phi$ ,  $\kappa$  の関係をモデル化する。

### ③ 圧力損失

2 流体が合流するまでの導入部流路における圧力損失と合流した後の流路における圧力損失の和を, モジュールの出力に相当する圧力損失とする。なお, 圧力損失の推算には完全発達層流に対する圧力損失推算式を用いる。

### ④ 装置コスト

$$Cost = a W^{-1.5} N^{1.1} L \quad (2)$$

のように, 流路幅  $W$ , 流路長さ  $L$ , 並列化数  $N$  の関数として装置コストを推算する。 $a$  はコスト係数を表す。なお, Interdigital 流路および SAR 流路については流路加工が困難であるため, 必要となるコストは, 同じ  $W$ ,  $N$ ,  $L$  を有する T 字流路のそれぞれ 2.5 倍, 3.5 倍とする。

### (2) 最適設計法の開発

必要な処理手順が増えるにつれ, また利用可能な流路構造の種類が増えるにつれ, 流路構造の候補の数は増大する。このような状況下での最適設計解導出法として, 考えられる全ての構造を含んだ構造 (スーパーストラクチャー) をまず構築し, 最適化により不要な構造を除去する, という手法を採用する。スーパーストラクチャーを構築する際に (1) で作成したモジュールを用い, 設計問題を混合整数非線形計画問題として定式化する。

## 4. 研究成果

ケーススタディ (Case 1, Case 2) を通じて提案手法の有効性を例証する。ケーススタディで利用可能な流路構造は図 2 に示した 3 種とする。

### (1) Case 1

298 K の水と同じ物性をもつ原料 A, B, D を対象に, 2 段の等流量混合・反応を伴うプロセスを考える。1 段目 (MR1) では, 式 (1) の等温反応が進み, 2 段目 (MR2) で R と D を混合させてクエンチする。反応速度定数  $k_1$ ,  $k_2$  の値はそれぞれ 3.25, 1.28  $\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$  とする。制約条件として, MR1 の出口における収率  $Y_R$  が 0.45 以上, MR2 における混合時間が 0.15 s 以下, 各流路の操作圧力が表 1 に示す値以下, 生産量が 1.05 g/min という操作制約, および,  $50 \mu\text{m} \leq W \leq 500 \mu\text{m}$ , 流路断面のアスペクト比を 0.5 に固定,  $m \leq 10$ ,  $n \leq 4$ , Interdigital 流路の入口流路幅  $W_1 \geq 10 \mu\text{m}$  という設計制約を与える。評価指標は式 (2) を用いて推算されるコスト (最小化), 最適化変数は流路構造,  $N$ ,  $W$ ,  $m$ ,  $n$  とする。

表 1 各流路の操作圧力上限値

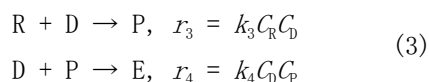
流路構造	上限値 [MPa]
T 字流路	10
Interdigital 流路	0.2
SAR 流路	3.0

本設計問題を, 流路構造,  $N$ ,  $m$ ,  $n$  に整数変数を導入した混合整数非線形計画問題として定式化し, GAMS®ソルバーを用いて求解した。その結果, MR1 の反応工程, MR2 の混合工程の双方に対して Interdigital 流路が

最適な流路構造となり、その他の設計結果は表2 (Case 1) の通りとなった。Interdigital流路が選定された理由を考察すると、流路入口で2流体を複数個に配列させてフィードすることにより、T字流路やSAR流路よりも $W$ を狭めることなく操作制約を満たし、結果としてコストを抑えることができたためと考えられる。

## (2) Case 2

MR1にて式(1)の反応が進行し、MR2にて



の反応が生じるとする。目的生成物はPであり、反応速度定数  $k_1=10$ ,  $k_2=2.0$ ,  $k_3=50$ ,  $k_4=1.0$   $\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$ とする。そして、MR1の出口における $Y_R$ 、MR2の出口におけるRに対するPの収率 $Y_P$ の下限値をそれぞれ0.45, 0.60, 生産量を105 g/minに変更し、他の制約についてはCase 1と同じとする。最適化の結果、MR1, MR2の双方の工程に対してT字流路が最適な流路構造として導出され、その他の設計結果は表2(Case 2)の通りとなった。Interdigital流路、SAR流路が最適解とならなかった理由は、操作圧力の上限値がT字流路よりも小さいゆえに、並列化数を非常に多くする必要があつてコスト高であるためと考えられる。

表 2 最適設計結果

変数	Case 1		Case 2	
	MR1	MR2	MR1	MR2
流路構造	Interdigital	Interdigital	T字	T字
流路幅 [ $\mu\text{m}$ ]	366	210	500	500
並列化数 [-]	1	2	4	7
流体線速 [ $\text{m/s}$ ]	0.13	0.40	1.8	2.0
薄層ペア数 [-]	10	10	-	-
流路長さ [ $\text{m}$ ]	0.06	0.06	0.92	5.8
反応時間 [ $\text{s}$ ]	0.45	-	0.53	2.9
混合時間 [ $\text{s}$ ]	0.45	0.15	0.06	0.05
収率 [-]	0.48	-	0.46	0.62
操作圧力 [ $\text{MPa}$ ]	0.11	0.09	4.2	3.7
コスト [-]	12		291	

以上より、本研究で提案した最適流路構造導出法の有効性を確認した。本研究は、装置の構造も考慮した設計モデルを作成し、それに基づく設計法を開発したものである。モデル化が比較的容易なマイクロリアクタを対象として選択し、多段の混合・反応を伴うプロセスにおける流路構造・寸法・並列化数を最適化した。本手法を用いることにより、マイクロリアクタ開発に要する時間の大幅な削減が可能となった。従来の最適設計の考え方は、与えられた構造に対してその容積や運

転条件を最適化するものであった。装置の改良ではなく、新しい装置をシステムティックに提案していくためには、装置の構造・形状・寸法と発現する機能の関係を表す設計モデルを構築する必要がある。本研究の結果を発展させることにより、これまで経験豊かな技術者の思いつきで提案されていた装置構造をシステムティックに導出できるようになり、「アートの世界」と言われていた装置構造設計を「工学」に近づけることができる。

## 5. 主な発表論文等

[学会発表] (計6件)

- ① Yuto Tsuji, Osamu Tonomura, Manabu Kano, Shinji Hasebe, Channel Structural Design of Microdevices by Superstructure-Based Approach, AIChE Annual Meeting, 2010年11月8日, 米国 (Salt Lake City)
- ② 辻勇斗, 殿村修, 加納学, 長谷部伸治, マイクロリアクタの最適流路構造導出手法の開発, 第3回化学工学3支部合同徳島大会, 2010年10月23日, 徳島大学 (徳島市)
- ③ Lin Wang, Osamu Tonomura, Manabu Kano, Shinji Hasebe, Pseudo-Three-Dimensional Lamellar Model of T-Shaped Microreactors with Secondary Flow, The 5th International Symposium on Design, Operation and Control of Chemical Processes, 2010年7月28日, シンガポール (Singapore)
- ④ Lin Wang, Osamu Tonomura, Manabu Kano, Shinji Hasebe, Development of Lamellar Model for Non-Isothermal T-Shaped Microreactors with Secondary Flow, 11th International Conference on Microreaction Technology, 2010年3月9日, 日本 (Kyoto)
- ⑤ 佐々木啓伍, 殿村修, 加納学, 長谷部伸治, T字マイクロミキサ内二次流れのCFD解析と合流部流路構造設計, 化学工学会第41回秋季大会, 2009年9月17日, 広島大学 (東広島市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長谷部 伸治 (HASEBE SHINJI)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 60144333

### (2) 研究分担者

加納 学 (KANO MANABU)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 30263114