

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔平成28年度研究進捗評価用〕

平成25年度採択分
平成28年3月15日現在

**超精密／高効率化学プラント構築のための大量生産型
マイクロデバイス設計・操作**

Design and Operation of Micro Chemical Devices and
Plants for Mass Production of Functional Materials

課題番号：25220913

長谷部 伸治 (Hasebe Shinji)

京都大学・大学院工学研究科・教授



研究の概要

大量生産を行うことを前提とした、マイクロデバイス、マイクロ化学プラントの設計法の確立と、長期安定運転を行うための、マイクロプラントの設計法、運転法、計測制御法の確立をめざし研究を進めている。具体的には、混合器、反応器、熱交換器、分配器などのデバイスの設計、内部／外部並列化法を確立し、1万トン／年レベルのプラントの設計法を確立する

研究分野：工学

キーワード：ナノマイクロ化学システム、反応装置、プロセスシステム設計

1. 研究開始当初の背景

日本の化学産業はこれまで以上に高機能製品生産への構造シフトが求められているが、これまでは汎用型の装置での生産を前提に製品開発が行われてきたため、装置が開発される製品やその機能・品質を限定していた。今後化学産業の構造改革を進めていくためには、既存の装置での生産を前提とした製品開発から、新製品生産が要求する機能を有する装置、プラント開発というように発想を転換する必要がある。申請者らはマイクロリアクターとそれに関連する技術が、これまでの化学産業の殻を破る技術になると判断し、研究を進めてきた。

2. 研究の目的

上記の背景で説明した発想に基づいて、種々の製品機能を厳密に制御しつつ、広範囲な生産量に対応できるマイクロデバイスおよびプラントの設計法を確立することを最終目標とした。具体的には、汎用的な手法であることを検証するため、1万トン／年の生産を行うプラントをターゲットとする。その目標に向け、研究期間の前半では(1)マイクロデバイスの設計論の構築と各種デバイス設計・検証、(2)マイクロデバイス集積化・安定操作手法の開発を、また後半では(3)高効率バルク生産システム及びその操作法の開発をめざし研究を推進する。

3. 研究の方法

期間前半は、「マイクロデバイスの設計論の構築」と「集積化および操作法の開発」の

2項目について2グループ体制で研究を遂行した。設計論の構築では、単一流路および多流路のデバイスの最適設計までを対象範囲とし、設計手法の提案と提案した手法に基づくデバイスの試作、液相、気相、液液、気液のモデル反応、分離操作を実施して、統一的な設計論を確立し妥当性を検証した。集積化および操作法の開発では、デバイス単位での集積化法の確立と長期安定運転に不可欠な制御法、状態推定法、異常診断法の確立とその実験による検証を行った。

期間後半では、全研究者一体となってそれまでの成果を融合し、大容量生産用マイクロデバイス・プラントを設計するための統合的手法を開発するとともに、実際にプロトタイププラントを試作し、その性能を評価する。そして、その成果をもとに、従来の化学工学の考え方を一段階精密化した設計、操作の方法論を提示する。

4. これまでの成果

研究項目1 マイクロデバイスの設計論の構築と各種デバイス設計・検証

1) 迅速混合デバイス設計論

これまでに提唱してきた「流体セグメント」という概念に基づいたミキサー設計法を発展させるために、流体セグメントのサイズ分布を評価する手法を提案した。この手法は流路内で生成したナノ粒子の粒径分布が安定剤との混合比に依存することに基づいており、数 μm ～数百 μm までのセグメントサイズ分布を評価可能である。本手法を用いることで、これまでは平均的な評価しか実施されて

こなかった混合挙動をより詳細に評価することができるようになった。この方法を用い、衝突部と屈曲部を有するマイクロ流路では、流体の衝突と屈曲はともに混合を進行させるが、衝突では主に大きな流体セグメントサイズを切断し、屈曲においてさらに微小化、均一化することを示した。

2) 迅速熱交換デバイス設計論

迅速な目的温度到達と所望の精度での温度制御のためのデバイス設計論を確立した。そして、1) 迅速混合デバイス設計論と合わせて、所望の混合速度と熱交換速度を保障できる種々のパターンの流路のマイクロリアクターを作製し、デバイス設計法の検証および妥当性を示した。

3) デバイス設計論の検証と応用

確立したデバイス設計論に基づいて、フロー晶析システム、スラグガス吸収・抽出デバイス、迅速蒸発濃縮デバイス、精密重合反応器を設計し、その有効性を検証した。

研究項目 2 マイクロデバイス集積化・安定操作手法の開発

1) 2階層ナンバリングアップ法の開発

2次元構造の外部ナンバリングアップ (NU) 法を3次元に拡張し、マイクロリアクター (MR) 並列数 16 を対象に、その流量変動を4器の流量計で推定できることを流体シミュレーションにより確認した。提案した外部 NU 法と内部 NU 法を組み合わせることで、1万トン/年の生産を少数の計測器でモニタリングできる見込みが立った。

2) 少数の計測データに基づく状態推定法、異常診断法の開発

2次元構造の外部 NU 法で流量計を圧力計に置き換え、T字の気液混合・スラグ生成部を有するデバイスからなる4並列システム (システム A)、触媒が固定化されたモノリス充填 MR の5並列システム (システム B) にそれぞれ適用した。その結果、全ての流路の状態を計測することなく、少数の計測データからデバイスあるいはプラント全体の状態を推定、診断できることを示した。

3) 制御や計測のしやすさを考慮した集積化構造の設計

オリフィス付流路を同デバイスに用い、均等流体分配に必要な圧力損失を削減する手法を考案した。オリフィス付流路を用いることで、単純な直管流路により流体分配を行う場合と比べて最大で約 50%の圧力損失削減が可能であることを理論により示し、2並列流路に関して CFD シミュレーションを行って実際に 30%以上もの圧力損失を削減することも確認した。

4) 不確定性を考慮した分配デバイス設計法の開発

不確定性を考慮した流体分配デバイス設計法をミニマックス戦略に基づいて開発した。ケーススタディを通して、生産量や MR

の流路抵抗の変化に対して設計条件を満たす設計結果を導出することにより、開発した設計法の有用性を流体シミュレーションにより確認した。

5. 今後の計画

研究項目 (1) (2) の研究を統合し、高効率バルク生産システムの設計、運転・制御手法の確立を目指す。具体的には、これまでに構築してきたマイクロ流体セグメントモデル、ナンバリングアップのモデルを統合し、大容量のデバイス・プラントの設計手法を確立する。そして、対象を定めて大容量デバイス・プラントを設計し、そのプロトタイププラントを試作して、研究項目 (2) で開発したモニタリング手法を組み込み、数千トン/年オーダーのマイクロ化学プラントの設計手法、運転管理手法の有効性を検証する。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- “Generation and Reaction of Carbamoyl Anions in Flow: Applications in the Three-Component Synthesis of Functionalized β -ketoamides,” Nagaki, A., Takahashi, Y., *Yoshida, *J. Angew. Chem., Int. Ed.* (2016), in press.
- “Design of a Numbering-up System of Monolithic Microreactors and Its Application to Synthesis of a Key Intermediate of Valsartan,” Nagaki, A., Hirose, K., Tonomura, O., Taga, T., Taniguchi, S., Hasebe, S., Ishizuka, N., Yoshida, *J., Org. Process Res. Dev.* (2016), in press.
- “Evaluation of Mixing Profiles for a New Micromixer Design Strategy,” Asano, S., Maki, T. and Mae, K., *AIChE J.*, **62**, 1154-1161, (2016).
- “気液スラグ流を伴う並列 T 字マイクロリアクターのスラグ長さ推定,” 宮林圭輔, 殿村修, 谷口智, 長谷部伸治, 化学工学論文集, **41**, 246-252, (2015).
- “Estimation of gas and liquid slug lengths for T-shaped microreactors,” Miyabayashi, K., Tonomura, O., Hasebe, S. *Chem. Eng. J.*, **262**, 1137-1143, (2015).
- “2- and 3-Stage temperature ramping for the direct synthesis of adipic acid in micro-flow packed-bed reactors,” Shang, M., Noel, T., Wang, Q., Su, Y., Miyabayashi, K., Hessel, V., Hasebe, S. *Chem. Eng. J.*, **260**, 454-462, (2015).

ホームページ等

<http://www-pse.cheme.kyoto-u.ac.jp/>
hasebe@cheme.kyoto-u.ac.jp