

先進計測・制御法と機械学習による熱流動・反応機構研究

研究代表者 古谷 正裕
(先進理工学科 共同原子力専攻 教授)

1. 研究課題

化学プラントやバイオプロセスでは、反応の選択性や効率を高めるために、攪拌により均一な場を形成させることが多い。これは偏流や対流により温度や速度、濃度が不安定になり予期せぬ分布となるため攪拌が必要とされている。さらに原料供給や反応生成が熱流動や濃度の場を不均一にする。このため熱流動や反応の方程式が既知であっても、寸法や形状が異なることで反応場が変化し、反応の予測が困難になる。

本研究の目的は、熱や流れ、化学反応を三次元過渡計測するセンサーや計測法を開発し、熱流動場と反応場を精緻に捉えることで、熱流動と反応機構を明らかにすることである。寸法や形状の違いが熱流動と反応に与える影響を把握するため、三次元付加造形技術を活用する。構造を三次元造形するだけでなく、計測センサーと制御機器を三次元造形して実装し、任意の流動・反応系をスケラブルに計測・制御するための技術開発を行う。化学プラントでは模擬実験は縮小寸法に、バイオプロセスでは拡大寸法となる場合があるが、計測制御を含めてスケラブルな実験が可能になることにより、熱流動と反応機構を解明し、化学及びバイオプロセスを統合的に解明し、実用に供する最適なスケールと形状、反応条件を見出すことを目的とする。

2. 主な研究成果

先進計測・制御法と機械学習による熱流動・反応機構研究として、初年度後期と2年目前期における主な成果を概説する。

2.1 マイクロチャンネルを利用した化学反応過程可視化デバイスの概念

化学反応過程を把握する実験は、主に手作業でビーカーや試験管を用いることが多い。多種類の液体混合では瞬時局所で、どの割合で混合されたかに従い、様々な生成物が顕れる場合がある。これに対して本研究では、流路幅が毛髪程度のマイクロチャンネルを利用した液体混合方式を提案する。

図1に開発したマイクロチャンネル内における化学反応過程のその場観察・分析法について概念図を示す。矩形流路の幅と高さを50 μm と細くすることで二次流れを抑制した一次元流とする。キャリア液に異なる種類の液体を注入して、流路が拡大・縮小する菱形部で液滴を合体させ、反応を開始させる。その後の経過を可視化し、成分分析を行う。この手法は合体前の溶液の体積が明確であり、瞬時に混合できることから、混合条件が明確となる。また一次元流を高速度撮影することで、混合開始からの時間経過として化学反応を明瞭に観察できる。

2.2 デジタルツインによる液滴整列注入と任意数の合体

図 2 に、キャリア油中に異なる液を自励振動により整列注入した実験例を示す。キャリア液はシリコン油で、注入する水溶液は可視化のため赤色と青色に着色した。界面張力の作用により両液体は互いに譲り合って油中に液滴として注入される。流路寸法や形状、界面活性剤の種類や濃度を工夫することで、液滴体積や注入間隔が制御可能である。なお、数値流体力学 (CFD) シミュレーションにおいても、実験で観測された自励振動による整列注入が再現できることを確認した。よってデジタルツインにより CFD を用いた流路設計が可能になった。

整列注入された液滴は、図 1 の流路の拡大縮小となる菱形流路に流入した際に、毎回同じ場所で合体した。本実験ではキャリア油の流量を変化させることにより、合体数は 2 液滴から連続的に 7 液滴まで可能であった。この合体も CFD により再現できた。

2.3 デジタルトリプレットによる機械学習の探索的利用

図 3 に、菱形流路における液滴合体数を機械学習するために必要な学習条件を示す。合体する液滴数が 1 (合体せず), 2, 3, 4, 5 となる撮影画像を対象とした。合体前における液滴流動の特徴を見出すために、合体前の上流側を切り取り (図 3(a)参照)、分類学習に用いた。詳細は省略するが、過学習を抑制しつつ、全ての画像を分類できる畳み込みニューラルネットワーク (CNN) を得た。機械学習が合体をどのように予測したかを LIME 法により可視化した。画像の LIME 法として、図 3(b) に示すパズルのピースのように類似した画像に分割し、ランダムに約 3 割の画像を隠す試行を 1000 回繰り返した。一部の画像を隠したために合体する液滴数を誤分類した場合には、隠した画像が重要と判断し、画像の重要度を図 3(c)~図 3(e) にカラースケールと共に示した。これらの画像の違いにより、実験撮影毎に異なる流路背景画像を除去することで良好な分類学習ができることを示している。この他に、合体する液滴数の違いは合体位置より上流の液滴流動から予測可能であり、菱形流路の入口 (流路拡大部) の角度などが重要であることを、機械学習した CNN から理解することができた。

さらに CFD では粘性率や界面張力を変化させた結果も機械学習させることに成功し、同様に合体位置より上流の菱形流路の入口から、合体する液滴数を予見できることが判明した。これらの成果はデジタルトリプレットして、化学反応機構の解明に CFD や機械学習が役立つことを示している。

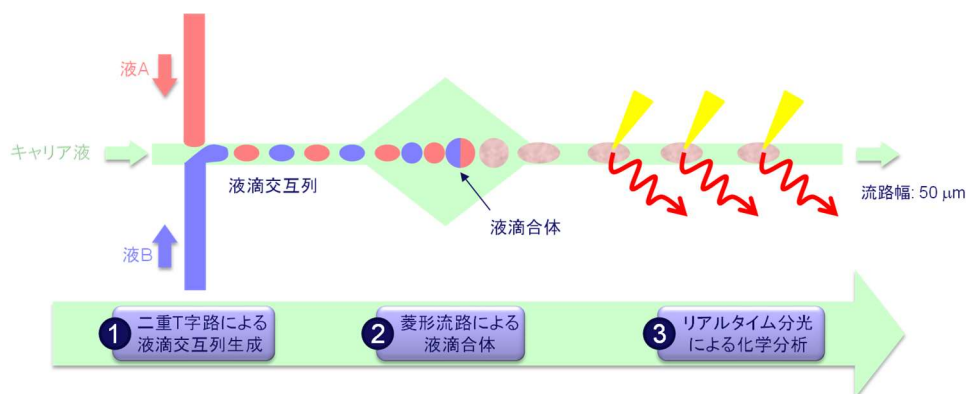


図 1 開発したマイクロチャンネル内化学反応過程のその場観察・分析の概念図



図 2 キャリア油流中に異なる液を自励振動により整列注入した実験例

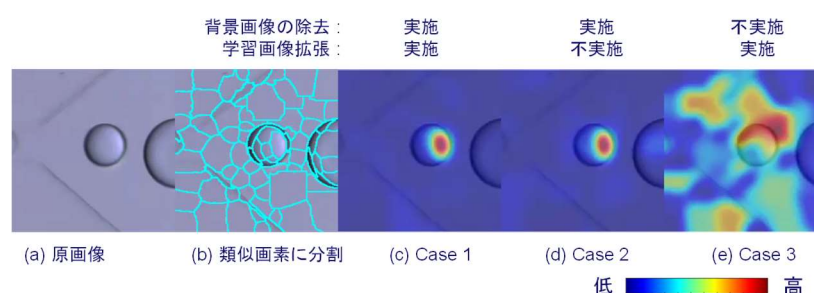


図 3 菱形流路における液滴合体数を機械学習するために必要な学習条件

3. 共同研究者

- 東京理科大学 理学部化学科 秋津貴城教授
- 埼玉大学 工学部応用化学科 鈴木美穂准教授
- 株式会社電力テクノシステムズ 楠憲司氏、鈴木広治氏、佐久間努氏
- 早稲田大学 基幹理工学部 電子物理システム学科 田中大器講師
- 早稲田大学 ナノ・ライフ創新研究機構 ナノテクノロジー研究センター 藤田理紗氏

4. 研究業績

4.1 学術論文

- Tanaka D, Zheng S, Furuya M, Kobayashi M, Fujita H, Akitsu T, Sekiguchi T, Shoji S. Efficient Separation of Methanol Single-Micron Droplets by Tailing Phenomenon Using a PDMS Microfluidic Device. *Molecules*. 2024 Apr 24; 29 (9): 1949. doi: 10.3390/molecules29091949. PMID: 38731440; PMCID: PMC11085517.
- Nan L, Zhang H, Weitz DA, Shum HC. Development and future of droplet microfluidics. *Lab Chip*. 2024 Feb 27; 24 (5):1135-1153. doi: 10.1039/d3lc00729d. PMID: 38165829.
- Okui A, Tsuchiya R, Nakane D, Akitsu T, Blundell TJ. High-Temperature X-Ray Crystal Structure Analysis of Schiff Base Cu(II) and Ni(II) Complexes and Data Statistics. *Molecules*. 2025 Mar 13; 30 (6): 1289. doi: 10.3390/molecules30061289. PMID: 40142064; PMCID: PMC11945826.
- Kriegner H, Weil M, Jones MJ. The methanol sesquisolvate of sodium naproxen. *Acta Crystallogr E Crystallogr Commun*. 2018 Oct 19; 74 (Pt 11): 1624-1627. doi: 10.1107/S2056989018014652. PMID: 30443394; PMCID: PMC6218915.

4.2 口頭発表

- Tanaka D, Kobayashi M, Fujita R, Furuya M, Akitsu T, Sekiguchi T, Shoji S, Tanii T. Synthesis and Crystallization of Proteins Containing Metal Complexes by Application of Microfluidic Devices for Both Liquid and Solid. Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences, uTAS2024, (2024).

5. 研究活動の課題と展望

今後は開発した計測・制御技術を活用し、実験とシミュレーション、機械学習を融合した創薬用デバイスや、プラント機器の照射脆化機構解明に向けた機器開発を行う予定である。