化学プロセスにおける可変長スラグ流生成用三方弁の開発*

門脇 信傑^{*1}, 鈴森 康一^{*2}, 武藤 明徳^{*3}Three-Port Valve to Generate Length-Controllable Slug Flow
for Chemical ProcessNobuhiro KADOWAKI^{*4}, Koichi SUZUMORI and Akinori MUTO^{*4} KYOWA FINE TECH Co., Ltd.,

948-9 Kanaokanishimachi, Higashi-ku, Okayama-shi, Okayama, 704-8193 Japan

We have developed a micro three port electromagnetic valve for micro chemical process. This study aims at integrating the micro three-port valve into micro reactor or micro flow control systems. We have applied the developed valve to slug flow generation by pouring two liquids into the ports to promote efficient chemical reaction. The slug flow is a stripe flow formed by serial segments of two liquids which appear alternately along the flow line. It greatly increases the interface between two liquids, resulting in very efficient chemical reactions. In addition, each set of the segments works as a kind of micro reactor chamber, in which many advantages of micro chemical reaction such as very uniform reactions and reactions under special conditions appear. Slug flow has been applied to copper ion extraction process. The effectiveness of the slug flow is clearly found. The results show the potential of the prototype valve to be applied to actual chemical processes.

Key Words: Electromagnetic Actuator, Micro-Channel, Interfacial Phenomena, Micro Valve, Three-Port Valve, Slug Flow

1. 緒 言

近年、マイクロリアクタと呼ばれる化学反応を行うためのマイクロデバイスの研究や μ TASと呼ばれている分析化学でのマイクロデバイスの研究が活発に行われている⁽¹⁾⁽²⁾。例えば一つのチップ上に化学合成システムや化学分析機能までも集積させる研究が行われている。マイクロリアクタとは、数 μ mから数百 μ mの流路を持つ反応容器であり、このマイクロ空間内での現象を利用した化学反応・物質生産のための装置である。一般的に、マイクロ空間内での現象は、以下の四つの特徴があげられる。

- (1) 拡散距離を小さくすることにより高速かつ効率的な混合が行なえる。
- (2) マイクロ空間の長さや流速を調節することにより滞留時間を短くすることができる。
- (3) 界面反応での効率化が図れる。

(4) 熱交換効率が高く、温度制御が容易に行なえる。

これらの特徴を持つマイクロリアクタの実現により、化学反応の効率化、高品質化がはかれるとともに省資源、省エネルギー、環境負荷の低減などの利点も生まれる。

これまでにマイクロリアクタ用の各種デバイスを用いた一つのチップ上に集積することを目標とし、各動作機構の実現に向けた取り組みが行われてきた⁽³⁾⁽⁴⁾。また、液液反応や気液反応など二相系の反応・抽出において、反応物質間の比界面積を大きくすることにより抽出操作に優れたマイクロリアクタの開発も行われている⁽⁵⁾⁻⁽⁹⁾。著者らは、マイクロリアクタに組み込むための流体制御機構の一つである三方弁についての検討を進めてきた。本報ではスラグ流生成用のマイクロ三方弁を開発し、化学プロセスに応用した。スラグ流とは、図1に示すように、管内を管内径と同程度か数倍程度

Fig. 1 Conceptual model of slug flow

* 原稿受付 2009年9月18日。

^{*1} 正員, 協和ファインテック(株) (〒704-8193 岡山市東区金岡西町948-9)。^{*2} 正員, フェロー, 岡山大学大学院自然科学研究科 (〒700-8530 岡山市北区津島中3-1-1)。^{*3} 岡山大学大学院自然科学研究科。

E-mail: nobuhiro_kadowaki@kyowa-ft.co.jp

のピッチで二種の流体が交互に入れ替わりながら流れる間欠流である。

化学工学分野の合成・反応において図1に示すような二液のスラグ流を生成することが反応効率に有効とされている⁽¹⁰⁾。従来の化学合成プロセスでは、ピーカー、タンクなどの大きな反応容器を用い、物質の生産がおこなわれている(バッチ処理と呼ばれる)が、物質や熱の移動が遅いため温度、濃度が不均一となり、実際のプロセスの運転では化学的に必要とされる以上の反応時間を取らざるを得なかった。そこで意図的に細かくしたスラグ流を適用することにより、接触界面の比界面積を大きくし、液層を薄くすることで反応速度や混合効率を向上させることができる。従来、スラグ流生成には、Y字やT字の流路を用い、流量などの調整により受動的に発生させる方法が取られてきた。しかし、このような静的手法では液層幅や流量や圧力といった条件を自由に制御することは難しい。そこで、著者らは、高い応答性と小さなデッドボリュームをもつ三方弁を新たに開発してこれらを切り替えることにより、動的にスラグ流を生成する。これにより、流量や粘性に依存せずに液層幅を制御することができ、このことにより生成物の制御も可能になる。

本三方弁の駆動には電磁力を用いた。電磁力は、一般的に数mm程度の大きさの駆動体に対しては、高い発生力と高い応答性を生む。本報告では、図2に示すような円筒形状をし、可動子が左右に動作する構造を対象に検討する。二つのソレノイドにそれぞれ電流を流すことでスライダの位置を切換え、これによりAポートとSポートの接続、またはBポートとSポートの接続の二つの状態を切り替える。この構造に基づいたバルブの設計・試作を行い、特性を評価した。また、スラグ流生成の実験を行い、銅イオン抽出プロセスに適用し、スラグ流の有効性を実証した。さらに、実用化に向け、接液部の材質、耐圧力を考慮した三方弁の設計・試作を行った。

2. 設計, 試作

一般に弁体の駆動機構の構成は、永久磁石、コイル、磁性体、非磁性体をどのように配置するかによって分

Fig. 2 Fundamental model of three-port valve

類できる。

可動子に磁性体、ノズルに磁性体又は非磁性体を配置する構成は、どちらか一方のコイルに通電することで磁束が作られ、可動子が引き寄せられノズルの端面に接触することで流路の切り替えを行う。そのため可動子の位置を保つにはコイルに通電し続ける必要がありまた駆動時には一方のコイルのみを用いるので吸引力が小さくなり得策ではない。また、可動子に永久磁石、ノズルに磁性体を配置する構成、および可動子に磁性体、ノズルに永久磁石を配置する構成は、自己保持可能な構成になるが、磁性体から永久磁石を引き離す時にコイルに大きな電流を流す必要がある。永久磁石と磁性体ノズルの間に非磁性体を配置し、この問題を解決する方法があるが、シールの接触面が増えるため漏れやすくなるためこれも得策ではない。

本研究では、これらの観点から可動子に永久磁石、ノズルに非磁性体を配置する構成について設計、検討を行った。

2.1 磁場解析 電磁駆動アクチュエータを使用し、適当なデバイスの寸法や通電する電流の大きさを決定するために、磁場解析を行い、発生する電磁力を求める必要がある。本研究では、その発生する磁力の計算のために有限要素法を用いた。

本三方弁を正常に駆動させるには、永久磁石の端面に受ける圧力に対抗して可動子を駆動する吸引力を必要とする。本解析では、適当な通電電流によって必要な力が発生可能か否かの検証を行なう。

磁場解析は2次元平面軸対称静的磁場解析モデルとして扱い、四角形四接点要素を用い非線形解析を行っている。図3に示すサイズで構成した。また、三方弁を構成する部位の寸法と特性を表1に示す。解析では、電流源部に与える電流密度に変化をもたすことで、永久磁石に発生する力の大きさを求めた。

上記に定義した要素をもとに得られた結果を示す。ここで、図3に示す x は、コイルの片端面から永久磁石の端面までの距離とし、この永久磁石の可動子は、 $x=1.95\text{ mm}$ から $x=2.25\text{ mm}$ の 0.3 mm を駆動ストロークとした。また、本三方弁の構造により永久磁

Fig. 3 Arrangement of coils and magnet

Table 1 Size and material characteristics of the valve parts

Permanent magnet	Material : Neodymium Size : $\phi 2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ Density : 7.5 g/cm^3 Mass : 0.047 g bHc : 923000 A/m
Solenoid Coil	enameled wire $\phi 0.1 \text{ mm}$ 220 turn
Sectional area	$2.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2$
Number of rolling	220 turn
Current density	$I \times 10^8 \text{ A/m}^2$ (I : Current)

Fig. 4 Analytical results of magnetic field

石を動作させるためには、図3に示す永久磁石が $x = 2.25 \text{ mm}$ と $x = 1.95 \text{ mm}$ にあるときに、最も吸引力を必要とする。それぞれこの位置は、図2に示す可動子が $x = 2.25 \text{ mm}$ のときはAポートを $x = 1.95 \text{ mm}$ のときはBポートを閉塞している状態である。この永久磁石の位置は、本三方弁は、対称形状となっているため左右どちらの位置でも同じ吸引力となる。図4に計算の結果求めた磁束線図の解析結果を示す。図4において $x = 1.95 \text{ mm}$ に可動子が位置した状態で非通電時と通電方向の違いによるようすを示している。図4(a)は非通電時の状態で、可動子の永久磁石による磁束のみが現れ吸引力がどちらにも発生していないことがわかる。図4(b)は可動子が駆動し、バルブとしてはポートが切り替わる状態になるようコイルの通電した場合の磁束を示す。左右のコイルでは通電方向は逆方向となっている。図4(c)に(b)と通電方向を逆にした場合の磁束を示す。このときは可動子がノズルに押しつけられている状態を示している。

図5に電流密度を上げていった場合の可動子に働く

Fig. 5 Analytical results of magnetic force ($x = 1.95 \text{ mm}$)

Fig. 6 Structure of three-port valve

吸引力の計算値を示す。吸引力は、仮想現実仕事の原理に基づいたものとマクスウェル応力に基づいたものの二種類の計算方法で解析した。

ここで三方弁のスイッチングを行うためには、開ポート側の永久磁石の端面に印加する圧力による力より大きな吸引力を発生させなければならない。しかし、大電流を長時間コイルに流せば発熱によりケーシング部品等の寸法に歪などの悪影響を及ぼしてしまう。そのため適当な電流値を最大 1 A 以内とした。 1 A の通電で発生する吸引力は、図5より 0.16 N である。このとき印加可能な圧力は、通電による吸引力と可動子の受圧面積の関係より 0.05 MPa となる。

2・2 構造設計 前述の磁場解析結果に基づき試作を行った。試作した三方弁の構造を図6に示す。円筒形状の非磁性体であるステンレス鋼製ケーシング内に永久磁石を配置し、ケーシングの周囲にエナメル線でコイルを形成する。図6に示すようにケーシングの両端とその間に液体の出入口ノズルとなるA, B, Sポートを配置する。ポジション1に示す位置に永久磁石の可動子が配置されるとBポートの流路を閉塞するためAポートとSポートに流体が流れる。また、ポジション2に示す位置に可動子が配置されるとB

ポートとSポートに流体が流れる。これらのノズルも非磁性体であるステンレス鋼を用いた。図6の写真に示す試作した三方弁のサイズは、外径 $\phi 6\text{ mm}$ であり、ノズルを含まない本体部の長さは 8.3 mm とした。

本構造は、電磁力によりコイル内部の鉄芯を駆動させる従来の電磁アクチュエータ構造ではないためバネなどを配置する必要がなく小型化に都合が良い。また、通流中は永久磁石に対して背圧がかかるためポジショニング保持のための電力消費は少なくとも良く、省エネルギーにつながる。このことはコイルへの通電は、スイッチングの瞬間に駆動電圧を印加し、スイッチング後は電圧を下げる図7に示すような入力波形でも良いということを表す。すなわち、Sポートを供給口とした場合、流体の供給方向と永久磁石の動作方向は垂直関係にあるため流体による動作への影響が少なく圧力平衡がとりやすい。

3. 流量評価実験

三方弁としての機能を評価するため、水道水を用いて流量特性を測定した。評価装置は、密閉したタンクに水道水を充填し一定の空気圧力をタンク内に印加することにより一定圧力で水道水を三方弁のSポートへ供給可能な液回路を構成した。そしてA、Bポートからの吐出される水道水の重量を単位時間測定することにより流量測定をした。図8にその結果を示す。横

Fig. 7 Driving signal for the micro valve

Fig. 8 Experimental results of P - Q curve

軸にSポートからの加圧圧力 [MPa]、縦軸にA、Bポートからの吐出流量 [ml/min] を示す。永久磁石駆動時のコイルに印加する電圧を 5 V とした。

4. スラグ流生成・銅イオン抽出実験

試作した三方弁は、水道水(動粘度 $1 \times 10^{-6}\text{ m}^2/\text{s}$)程度の液体を送液した場合、数十 Hz 程度までのスイッチング動作を行うことができる。この機能を利用してスラグ流の生成実験を行った。また、本三方弁により生成したスラグ流の有効性確認のため銅イオン抽出実験を行った。

4.1 スラグ流生成実験

4.1.1 実験構成 図6のAポートから無色透明のシリコンオイル、Bポートから食紅で着色した水をそれぞれ供給する。そしてSポートより混合したスラグ流を吐出する。シリコンオイルは、GE 東芝シリコン社製 TSF 451-101 を用い、食紅は、つけもと社製食用色素を用いた。シリコンオイルは石油系で非水溶性の溶媒であるため、水と混合しにくく、スラグ流の目視による観察が容易であるので実験に用いた。三方弁は常に通電状態にし、周期毎に通電方向を反転させる。流体が三方弁内を通過する際に、三方弁内の永久磁石が周波数に応じて供給口を塞ぎ連続流体を遮るため、分断された定量の流体が吐出される。

図9にスラグ流生成実験システム構成を示す。関数発生器と電源を組み合わせ三方弁の駆動を行う。また、送液にはシリンジポンプを用い、三方弁とシリンジポンプの接続にはシリコンチューブを用いた。三方弁の吐出ポートには、内径 0.5 mm のシリコンチューブを接続し、形成されたスラグ流を観察した。

4.1.2 実験結果 本実験では、関数発生器により発生させた矩形波を三方弁に通電してスイッチングを行なった。2液をそれぞれ供給すると、そのスイッチング周期に応じてそれぞれ一定量ずつの液が吐出され、吐出口にスラグ流の生成が確認された。図10に生成したスラグ流の様子を示す。

その周波数に追従した吐出量を測定するためにチューブ内に吐出されたスラグ流の液層幅の長さを測定

Fig. 9 Experimental setup for slug flow generation

Switching frequency : 1Hz

Switching frequency : 8Hz

Fig. 10 Slug flow generated by the developed valve

Fig. 11 Relationship between the valve frequency and slug volume (0.5 ml/min, 1.5 V_{p-p})

Fig. 12 Extractive reaction of copper ion

し、その長さチューブの内径を考慮し、吐出量を算出した。このとき使用したチューブ内径は、 $\phi 0.5$ mmである。図 11 に三方弁の駆動周波数 [Hz] とスラグ流 1 層の吐出量 [μ l] の関係を示す。A, B ポートへそれぞれ 0.5 ml/min の流量で供給した。このように、本三方弁を用いてスラグ流の生成が可能となり、また、そのスラグ流 1 層の吐出量の制御も駆動周波数を変化させることにより可能となった。

4・2 銅イオン抽出プロセスへの適用 本三方弁により生成したスラグ流を水相中の銅イオンを油相へ抽出する液液抽出反応プロセスへ適用した。図 12 に示すように、水相中の銅イオンが油相中のリン酸ジ(2-エチルヘキシル)と錯形成することで油相中に移る反応である。生成したスラグ流の状態を調べて銅イオンの抽出実験を行い、三次元マイクロリアクタを用いた並行二層流における銅イオン抽出実験の結果と反応速度を比較した。

4・2・1 実験構成 実験の構成を図 13 に示す。A, B ポートよりそれぞれ水相溶液、油相溶液をシリンジポンプにより供給し、S ポートより混合したスラグ流を吐出させた。抽出反応後は、比重差を利用して

Table 2 Result of experiment of copper ion extraction

Flowing quantity	Frequency	Average length of slug flow	Specific interfacial area	Reactive time	Sampling fraction
[ml/h] Aqueous phase / Liquid phase	[Hz]	[mm]	[ml/cm ²]	[s]	[%]
3.0/3.0	2	1.38	2.16	22.5	78
3.0/3.0	3	0.89	3.24	22.5	77
3.0/3.0	5	0.95	3.03	22.5	74
6.0/6.0	2	2.02	1.5	11.3	75
8.0/6.0	3	1.54	1.91	11.3	76

Fig. 13 Experimental system for copper ion extraction

Fig. 14 Comparison of valve reactor with 3D micro reactor

分離するセトラーにより水相溶液と油相溶液を分離した。供給水相溶液には、0.01 M 硫酸銅水溶液、油相溶液には、1.44 M リン酸ジ(2-エチルヘキシル)-ヘキサン溶液を用いた。S ポートからセトラーまでの接続チューブは、内径 0.5 mm、長さ 50 mm のテフロンチューブを使用した。

4・2・2 実験結果 銅イオン抽出の結果を表 2 に示す。供給流量を変化させることにより、反応時間を制御し、三方弁の駆動周波数を変化させることにより、比界面積を制御している。この反応の抽出限界は、78%であるから、どの条件でも平衡に至っている。

この結果を接触時間と抽出率の関係について大波型三次元マイクロリアクタと比較したものを図 14 に示

す。大波型三次元マイクロリアクタは、平行二相流を形成し反応抽出を行う受動的な反応装置である。三次元マイクロリアクタよりも短時間で高い抽出率に至ることが確認できた。

5. 実用化に向けた新規三方弁

製造プロセスへの適用を目指すために、耐圧力、接液部材質等を考慮した三方弁を製作し、適用可能性試験を行った。

5.1 高耐圧力、テフロン三方弁

5.1.1 設計 スラグ流適用可能性試験に使用する三方弁は、均一な長さのスラグ流を生成することを目的とする。ステンレス鋼等に対して腐食性液体を使用するため接液部は、テフロン樹脂とする。また、送液チューブは、内径1 mm、外径2 mmのものを使用し、最高使用圧力は、0.7 MPaとする。三方弁内のデッドボリュームは、0.009 ml以下とした。ここでデッドボリュームとは、可動子の移動によって押しのけられる流体容積であり、生成できる最小のスラグ容積を決めるものであり、できるだけ小さくする必要がある。この仕様を元に設計した三方弁の概略図を図15に示す。ここで、最高使用圧力の0.7 MPaが印加された場合の永久磁石の駆動に必要な吸引力の計算を行う。図15中の永久磁石の受圧面A1、A2に受ける力をそれぞれ算出する。永久磁石に接する面の形状を図15のようにすることにより、小さな吸引力で駆動が可能となる。この設計では、可動子にかかる力は下記のようになる。

受圧面A1への力：

$$\phi 5.4 \times \phi 5.4 / 4 \times \pi \times 0.7 (\text{圧力}) = 16.03 \text{ N}$$

受圧面A2への力：

$$(5.4 \times 5.4 - 1.5 \times 1.5 + 1.2 \times 1.2) / 4 \times \pi \times 0.7 = 15.58 \text{ N}$$

必要吸引力：16.03 - 15.58 = 0.45 N

0.45 Nの吸引力を発生させるためには、有限要素法解析より710 アンペアターンの電流密度が必要となった。コイルの巻き数を1800巻きとすると0.39 Aの電流値が必要となる。

5.1.2 スラグ流生成実験 スラグ流の生成可否を確認するために、シリコンオイルと食紅で着色した水道水でスラグ流生成実験を行った。実験の構成は、図9で示した構成と同様である。シリンジポンプにより各液を0.35 ml/minで送液し、スラグ流を生成するチューブ長さは1 mとし、吐出部は大気開放とした。駆動周波数を1~8 Hzまで1 Hz毎に変化させ、スラグ流の生成状態を確認した。駆動周波数とスラグ

Fig. 15 A new valve design for practical chemical uses

Fig. 16 The characteristics of new valve shows in Fig. 15 (Experimental data)

Fig. 17 Generated slug flow in 50 m tube; slug flows after 1 m flow and 50 m flow (valve frequency is 1 Hz)

流長さの関係を図16に示す。プランジャーのサイズを変えても駆動周波数を変化させることにより、選択的にスラグ流の量を選択的に吐出可能であった。

また、製造プロセスへの適用可能性を確認するために類似試薬のベンゼンと水を使用した実験も行った。この実験は、必要反応時間を想定し、スラグ流を送液するチューブ長さを50 mとした。駆動周波数1 Hz時のスラグ流の写真を図17に示す。

6. まとめと今後の展望

本研究では、コイルの芯部に可動子を配置した電磁駆動型の三方弁を試作し評価を行った。また電磁駆動の高応答性を利用し化学工学分野において有効なスラグ流生成実験を行った。銅イオン抽出を行う化学プロセスにスラグ流を適用し、有効性について確認した。さらに実用化に向けた取り組みとして接液部材質、デ

ッドボリュームの低減, 使用圧力を考慮した設計を行い, スラグ流生成の確認を行った。

本研究は, 文部科学省都市エリア産官学連携促進事業(発展型)による研究成果の一部であり, ここに関係各位に謝意を表します。

文 献

- (1) Yoshida, T., *Microreactor Technology*, (2005), pp. 3-7, NTS inc.
- (2) Kitamori, T., Shoji, S., Baba, Y. and Fujita, H., *Technology and Application of Microchemical Chip* (in Japanese), (2004), pp. 47-58, MARUZEN Co., Ltd.
- (3) Suzumori, K., Nagata, T., Kanda, T., Sakata, Y. and Muto, A., Shaking Catalysts Accelerating Chemical Reaction in Micro Reactor, *IEEJ Transactions on Sensors and Micromachines*, Vol. 125, No. 12 (2005), pp. 467-471.
- (4) Suzumori, K., Furusawa, H., Kanda, T., Yamada, Y. and Nagata, T., Micro Linear Pump with Electromagnetic Actuator, *IEEJ Transactions on Sensors and Micromachines*, Vol. 125, No. 12 (2005), pp. 461-466.
- (5) Asao, F., Suzumori, K., Kadowaki, N. and Kanda, T., Development of Electro magnetic Micro Valve, *The 18th Symposium on Electromagnetics and Dynamics*, (2006-5), pp. 295-296.
- (6) Kadowaki, N., Asao, F., Suzumori, K. and Kanda, T., Three port valve for micro reactor realizing slug flow, *The 6th Machine Design and Tribology Division Meeting in JSME*, (2006), pp. 261-262.
- (7) Nakahira, T., Kadowaki, N., Suzumori, K. and Kanda, T., Development of Micro Three-way Valve for Micro Reactors and Experiment of Generation plug flow, *Fluid Power System of Autumn* (in Japanese), (2006), pp. 40-42.
- (8) Nakahira, T., Kadowaki, N., Suzumori, K. and Kanda, T., Development of Micro Valve Application to Generation Slug flow, *the 19th Symposium on Electromagnetics and Dynamics*, (2007-5), pp. 115-117.
- (9) Nakahira, T., Kadowaki, N., Suzumori, K., Kanda, T., Muto, A. and Bukawa, H., *15th CHEMINAS*, (2007), p. 30.
- (10) Okamoto, H., Ushijima, T. and Kitoh, O., New methods for increasing productivity by using microrreactors of planar pumping and alternating pumping types, *Chemical Engineering Journal*, 101 (2004), pp. 57-63.