

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な  
技術とシステム」

研究課題「モデルベースによる水循環系  
スマート水質モニタリング網構築技術の開発」

## 研究終了報告書

研究期間 平成22年10月～平成28年3月

研究代表者:三宅 亮  
(東京大学工学系研究科、教授)

## 目次

### § 1. 研究実施の概要

1. 実施概要
2. 顕著な成果
  - (1) 優れた基礎研究としての成果
  - (2) 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果

### § 2. 研究実施体制

1. 研究チームの体制について
2. 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

### § 3. 研究実施内容及び成果

1. マイクロ流体対応モデルベース型開発環境構築：(東京大学マイクロ・ナノグループ)【研究項目1】
2. 水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル化(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立製作所グループ、豊橋技科大グループ)【研究項目2】
3. 水質モニタ対応モデルベース型開発環境構築と開発効率の評価(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立プラントグループ、広大ナノデバイスグループ)【研究項目3】
4. 研究項目4:スマート水質モニタリング網対応モデルベース型開発環境構築と検証(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立プラントグループ)【研究項目4】

### § 4. 成果発表等

1. 原著論文発表
2. その他の著作物(総説、書籍など)
3. 国際学会発表及び主要な国内学会発表
  - (1) 招待講演
  - (2) 口頭発表
  - (3) ポスター発表
4. 知財出願
  - (1) 国内出願
  - (2) 海外出願
  - (3) プログラムの著作物
  - (4) データベースの著作物
5. 受賞・報道等
  - (1) 受賞
  - (2) マスコミ(新聞・TV等)報道
  - (3) その他
6. 成果展開事例
  - (1) 実用化に向けての展開
  - (2) 社会還元的な展開活動
  - (3) 他分野への波及効果

### § 5. 研究期間中の活動

1. 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

### § 6. 最後に

## § 1. 研究実施の概要

### 1. 実施概要

試薬反応等を用いて目的とする溶存化学物質を定量するタイプの水質モニタは、一連の化学分析プロセスを自動で行うための流体系を内部に備える。本研究では、それら流体系を構成するマイクロ流体要素( $\mu$ -fluidics)のレベルから、モニタを多点配置した監視システムに至るまで動作予測・評価が可能な、ミクロからマクロまで統合した、HILS(Hardware In the Loop Simulator)技術を核とした水質モニタリング網向けのモデルベース型開発環境基盤を構築する。また本開発環境を利用して、実際に水質モニタを試作し、開発効率(設計・試作期間の効率化、設計性能等)の向上度合いを評価する。さらに試作した水質モニタを実環境変動下に設置し動作安定性の評価を行うとともに、多点モニタリングに関する諸条件(設置台数、測定頻度等)の探索を行う。以上の研究を以下の4つの研究項目に分けて進めた。

#### (1) マイクロ流体対応モデルベース型開発環境構築

HILS 技術は、水質モニタ内の流体系を模擬した仮想流体システムと実マイクロ流体要素とを同期させてハイブリッドでシミュレーションを可能とするものである。仮想流体システムの一部に実マイクロ流体デバイスを備えた場合の同期動作や実給水圧力変動下と連動した仮想分析システム内の試薬反応挙動等で動作を実証した。その成果を利用し、仮想流体システムと実水質モニタを同化させて、水質測定値を補正する仮想モデル連動計測を新たに発案し、その有用性を確認した。本研究はモデルベース解析技術を保有する東大マイクロ・ナノグループが中心となって進めた。

#### (2) 水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル開発

水質項目に応じた化学分析プロセスに不可欠なマイクロ流体要素の開発とモデル化を行った。希薄な溶存成分の検出感度向上のための濃縮器(濃縮バラツキ 5%以内@10 倍濃縮)、試料水中の細菌数を計数するための前処理部一体化フローサイトメトリーチップ(連結部無効体積ゼロ)、硝酸態窒素の分析(ナフチルエチレンジアミン吸光光度法)のためのマイクロ還元カラム(基材:Cu)、水道水中の残留塩素を分析するためのマイクロ反応流路(断面  $0.5 \times 0.2 \text{ mm}^2$ 、長さ 500 mm)、水道水中のトリクロロアミン分析のための濃度勾配形成用滴定デバイス(8濃度)をそれぞれ試作・評価し、基本性能を確認、流体要素モデルに反映させた。さらに河川・湖沼等の環境水も測定対象とするために、試料水中の夾雑物を除去するためのサイクロン型試料水フィルタを開発し有用性(50  $\mu\text{m}$  以上、90%除去)を確認した。本研究は要素のモデル化及び設計・評価を東大グループ、滴定デバイスの開発を豊橋技科大グループ、様々な加工技術を保有する日立グループは主として試作技術を担当した。

#### (3) 水質モニタ対応モデルベース型開発環境構築と開発効率の評価

MBR 膜等の汚れ付着状態を監視するために、水中に実装しても漏電の恐れのない光ファイバ型センサを実験用膜浄化装置(膜サイズ:193 × 355  $\text{mm}^2$ )に設置し、遠隔監視実験(光ファイバ、10m)を実施し、汚れ付着および気泡の有無を検出した。また 60 mm立方サイズの水質計ユニットと処理ユニットとを様々に組み合わせることによって多項目に汎用対応する水質計システムの概念を提案した。これに合せて、モデルベース型開発環境と3D プリンタ/積層形成技術を利用して、ポンプユニット、試料分岐ユニット、サイクロン型フィルタユニット、濃縮器ユニット、残留塩素、硝酸態窒素、細菌数、トリクロロアミンの各水質計ユニットを試作し、基本性能を確認した。また新たな追加項目としてリン酸(モリブデン青法)、硬度(フタレインコンプレクソン法)の水質計ユニットを試作し、基本性能を確認した。またこれらの設計・試作を通じて、従来、月単位で必要であった設計・試作期間を、最短では2日程度まで大幅に短縮可能であることを確認した。以上、光共振リング型センサの開発は光導波路技術を保有する広大グループが担当、各ユニットの創案は主として東大グループが実施し、設計・試作・評価は日立グループと共同で実施した。

#### (4) スマート水質モニタリング網対応モデルベース型開発環境構築と検証

無線機能を一体搭載した超小型水質モニタ(残留塩素計測対応)を試作し、通信可能距離、データの安定性などを評価、課題を摘出し、省電力化の工夫や、安定な情報伝達のためのポスト・ログ化通信方式などを新たに提案した。また相対的に高硬度の試料水(硬度:~1300)による加速通

水試験を実施(モニタ内流路壁面スケール付着による圧損変化)、水道水中に溶存するガスの信号への影響、液状試薬の保管性などに関して諸課題を摘出した。対応策として、圧損変化に応じてその場で流量パラメータを検定する方法、ガス対策として3色 LED を用いた時間分解多波長測光・リアルタイム光量補正法、試薬の保管性向上に対しては高密閉・柔軟試薬パック構造を新たに考案、有効性を確認した。また3つの水質モニタを離れた位置に設置し、無線での測定制御及びホッピング方式により欠損・遅れなく計測データの伝達が可能であることを確認した。更に超遠隔屋外に無人設置した場合に発生する課題(温度影響等)の摘出を実施し、対応策(自動初期化操作)を提案、有効性を確認した。水質モニタリング網の創案は主として東大グループが実施し、その実装化は遠隔通信技術を保有する日立グループが担当した。またフィールド利用時の安定化技術については、水質モニタの開発・設置実績を有する日立グループが主として担当し、東大グループが解決策の創出等を担当した。

## 2. 顕著な成果

### (1)優れた基礎研究としての成果

#### ① 実流体デバイスと仮想流体システムのハイブリッド解析技術

概要:回路シミュレータのように迅速に仮想モデルが構成でき、内部流動の動特性予測を簡便に行うことのできるモデルベース解析技術はマイクロ流体分野において過去に例がない。更に本研究では、実存するマイクロ流体要素と仮想流体システムとを相互に干渉させながら同期してシミュレーション可能なハイブリッド解析技術に発展させた。本研究成果は水質モニタのみならず、今後益々、微小モジュール化、集積化が進む医用・バイオ向け検査装置の開発加速においても威力を発揮する基盤的技術である。

#### ② 高安定・強制対流型マイクロ濃縮技術

概要:気相/液相マイクロ流路間の薄膜(300 nm)に無数の微小孔( $\phi 1.2 \mu\text{m}$ )を設けた独創的形狀の強制対流型マイクロ濃縮デバイスは、微量試料を加熱することなく蒸発を促進させ、連続的に濃縮することが可能であり、本用途のみならず、試料の加熱変性を避けたい化学分析(質量分析など)の連続前濃縮などにも利用できるため、汎用的かつ有用性の高い研究成果である。

### (2)科学技術イノベーションに大きく寄与する成果

#### ① モジュール型分析プラットフォームの創案

概要:自動車などの生産において先駆的に導入されているモジュラーコンセプト(機能単位のモジュールを組み合わせることにより多様なシステムを構築)をマイクロ化学分析システムに展開した。マトリクス状に流体制御弁を設けた中間層の上下に、同じくマトリクス状にマイクロ流体要素を配置可能な流体回路層を配置した構造で、150 mm 立方程度の中に多様な分析系を迅速に構築可能であることを示した。またモジュラー構造とモデルベース解析技術を一对一に整合させることで、設計と製作を同時並行で進めることができるため、試作・開発期間、コストを大幅に削減可能となる。

#### ② 実機と仮想システムモデルの同化による計測

概要:水質モニタ実機の動作観測値(内部圧力など)を仮想システムモデルと同化させ、水質値の真値を逆解析推定する手法を提案し、その有効性を実証した。これにより分析精度を安定化させるために不可欠であった高精度な定量ポンプが不要となり大幅な部品点数の削減が可能となる。高精度なポンプを内蔵することが不要になることから、将来的には家庭や個人での利用に適した超小型・安価な水質モニタの実現も不可能ではない。また本研究成果は水質モニタに留まらず、今後益々微量化・微小化が望まれている医用・バイオ機器においても有効な技術である。

#### ③ ユニットモジュラー方式による汎用分析システム

概要:60 mm立方サイズの各種ユニット(フィルタ、濃縮、水質計測等)を組み合わせることによって多種多様な水質計を迅速に構築可能とするシステム構成を提案した。またそれら各種ユニットの設計・試作において、モデルベース型開発環境と3D プリンタによる積層形成技術とを組み合わせ

手法を適用し、設計から試作までを極めて短期間、最短では2日程度で遂行可能であるため、地域毎に関心が異なる水質項目の個別ニーズに対して迅速に水質計システムを提供可能とする新たな仕組みを構築した。

## § 2. 研究実施体制

### 1. 研究チームの体制について

#### (1)「東大マイクロナノ」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
三宅 亮	東京大学工学系研究科	教授	H22.10～H28.3
W.P.Bula	同上	CREST 研究員	H25.10～H28.3
佐藤友美	同上	学術支援専門職員	H26.1～H28.3
菅野修	同上	学術支援職員	H26.4～H27.8
遠藤喜重	同上	学術支援専門職員	H27.9～H28.3

研究項目

- ・研究項目1において「マイクロ流体対応モデルベース型開発環境の構築」全般を担当する。
- ・研究項目2において「水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル開発」全般を担当する。
- ・研究項目3において「水質モニタ対応モデルベース型開発環境構築と開発効率の評価」全般を担当する。
- ・研究項目4において「スマート水質モニタリング網対応モデルベース型開発環境構築と検証」全般を担当する。

#### (2)「日立製作所」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
津留英一	日立製作所インフラシステム社・土浦事業所・電機・制御技術本部	主任技師	H24.4～H28.3
伊藤禅	同上	技師	H24.4～H28.3
浅野由花子	同上	主任研究員	H22.10～H28.3

研究項目

- ・研究項目2において「水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル開発」の内、主として②マイクロ流体要素の試作、③長期使用時の流路閉塞の評価・解析を担当する。
- ・研究項目3において「水質モニタ対応モデルベース型開発環境構築と開発効率の評価」の内、主として①水質モニタリングの現状調査と適用先の提案、③水質モニタ設計・試作効率の評価、④超小型水質計の追加開発・試作を担当する。
- ・研究項目4において「スマート水質モニタリング網対応モデルベース型開発環境構築と検証」の内、③モニタリング網運用データベース取得、④フィールド利用安定化技術、⑤超遠隔での水質監視に関する課題抽出と対応策呈示を担当する。

#### (3)「広大ナノデバイス」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
横山新	広島大学ナノデバイス・バイオ融合科学研究所	教授	H24.4～H28.3

研究項目

・研究項目3において「水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル開発」の内、連続監視センサの試作研究を担当する。

(4)「豊橋技科大」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
村上裕二	豊橋技術科学大学電気電子情報工学系	准教授	H22.10～H28.3
柿本紘希	同上	M1	H27.4～H28.3
竹迫良紀	同上	B5	H27.4～H28.3
七崎信	同上	M1	H27.4～H28.3
金澤大志	同上	M1	H27.4～H28.3

研究項目

・研究項目2において「水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル開発」の内、主として②マイクロ流体要素の試作とモデル化を担当する。

## 2. 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

ナノレベルの先端加工技術で強みを持つオランダ Twente 大学とはマイクロ流体要素に対して当初から共同試作等の連携を推進した。またシンガポールの公的水道事業団とは、共同研究機関である日立製作所を通じて間接・直接的に情報交換等のネットワーク形成を行った。さらに国内においては、本領域幹部・アドバイザーの支援を得て、各地の水道事業体との情報交換及び浄水場視察、水関連企業との対話による課題・ニーズの探索などを実施し、将来展開に向けた顧客とのネットワークづくりを推進した。事業化のための産業界とのネットワークづくりではモニタ単体で(株)日立ハイテクノロジーズ等との連携を進めている。

1. マイクロ流体対応モデルベース型開発環境構築：(東京大学マイクロ・ナノグループ)  
【研究項目1】

HILS 技術は、コンピュータ上の仮想流体システムと、外部の実マイクロ流体要素を同期させて動作させ、ハイブリッドでシミュレーションを可能とするものである。これを用いてシステム動作条件の下でのマイクロ流体要素の応答プロファイルを取得することで、実験データに基づくモデル化を行う。研究項目1では、本 HILS 技術を核としたマイクロ流体対応のモデルベース型開発環境を構築する。

具体的には、まず仮想流体システムモデルを作製するためのコンピュータ(以下ホスト PC と称す)、前記モデルを高速でエミュレーションするためのコンピュータ(以下ターゲット PC と称す)、ターゲット PC に接続される高速入出力装置、高速入出力装置と接続されているマイクロ流体要素用テストベンチ(送液や圧力負荷を与える微量流体制御装置と各種センサを装備)から成る HILS の基本構成を開発する。次に仮想流体システムの様々な動作条件下での実マイクロ流体要素の応答プロファイルを的確に取得するために、これらを繋ぐ電気的・流体的インターフェースの応答性を高める。また応答パラメータとして流動系(流量、圧力)に加えて温度、濃度などの取得も可能とする。更に、より複雑なモデル、例えば水質モニタリング網の一部に実モニタを組み込んだモニタリング網モデルにおいても同期動作を可能とするために、下位モデルの簡略化手法の開発を行う。

まず、マイクロ流体対応のモデルベース型開発環境の基盤を構築するために、モデル作成環境、コンパイラ、リアルタイムコントローラ、DAQ から成る高速入出力装置部分の選定・導入を行い、次に前記高速入出力装置に加えて、マイクロ流体要素へ流動や負荷を与えるための大流量2連、微小流量1連のポンプ・アクチュエータ系及び流体インターフェースから成る微量流体制御装置を導入した。またマイクロ流体要素からの応答プロファイルを取得する系(4系統; 流量、圧力、温度、濃度)と組み合わせたマイクロ流体対応のモデルベース型開発環境の基本構成を構築した。ただしセンサ系のノイズ対策が不十分であり、応答速度 1m 秒を確認するに至らなかったため、実要素との間の応答速度に見合うモデルベース解析速度(～1 m 秒)を確保するために演算能力の強化(ワークステーションの導入等)及び、アクチュエータと実要素を結ぶ流体インターフェースの改良を行い、入出力の同期性を高めた系に改善した。これを用いて、仮想流体システムと実要素のハイブリッド動作の有効性を確認した。



- 7 -

具体的には図1に示すように、分岐管の一方を細管の仮想モデルに繋ぎ、もう一方を実際の流体要素(弾性のある素材で出来たマイクロ流路)を繋いだ流体システムにおいて、上流の流路入口に流量変動(脈動)を与えた場合の各々の管での流速応答を記録したものである(図1右側)。脈動周波数が大きくなるにつれて弾性のある実マイクロ流路が変動を吸収していく様子が捉えられ、同期動作が成立していることが確認された。

## ② マイクロ流体対応モデルベース型開発環境の高度化と改良

マイクロ流体要素を集積化したマイクロ流体システムモデルや、光検出部や制御系を組み合わせた水質モニタの仮想システムモデルなど、さらに上位のモデルでの HILS の動作を可能とするために、演算能力の強化(FPGA(Field Programmable Gate Array)の導入)を図るとともに、下位のモデルを簡略化する方法論(変動の少ないパラメータと大きいパラメータを峻別し、パラメータを省く等)の開発を進めた。一つの例として、実際の水道配管に水質モニタを模擬した仮想流体システムを接続した場合を想定し、水道内の圧力変動が、以後の流体システム内の反応にどのような影響を示すかを評価した。そのため、図2に示すように水道水压の時間変化を入出力制御装置を介して、Host-PC 内の仮想流体システム(試薬インジェクション反応系)に与え、仮想的に試薬を一定時間吐出した。図2にその応答例を示す。水道利用状況により、最大で10%程度の圧力変動が生じるのに対し、試薬インジェクション後の反応では、濃度の時間積分で評価した場合にはバラツキが 5%以下に収まることが予測された。このことは圧力変化の時定数に対して試薬の拡散の時定数は大きいため、変化は抑制される方向に働き、その結果、反応進行のバラツキは抑えられたためと考えられる。以上のように、同期動作を検証するとともに、構築した HILS を用いることで、流体システムの動作予測が仮想的に可能であることを確認した。

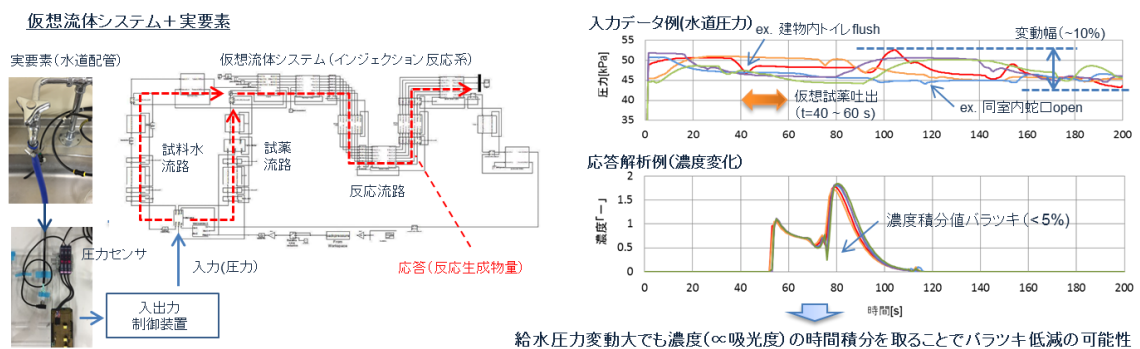


図2. マイクロ流体 HILS による仮想流体システムと実要素のハイブリッド動作(拡散反応)

## 2. 水質分析に必要なマイクロ流体要素の試作とモデル化(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立製作所グループ、豊橋技科大グループ)【研究項目2】

### (1) 研究のねらい

研究項目2では、細管や分岐管などの基本流体要素と、水質分析の鍵となるマイクロリアクタやカラムなどマイクロ流体要素のモデル化を行う。マイクロ流体要素のモデル化は、ひとつは物理モデルを組み合わせることでモデルを構築する方法と、もう一つは該当するマイクロ流体要素を試作し、それを研究項目1で開発する HILS に接続し、仮想流体システムに組み込んだ状態での応答プロファイルを実験的に取得して、それを基に要素モデルを作成する方法で進める。

### (2) 研究実施方法

流動方向が一様であり逆流など3次元的な流れを呈さない、細管や分岐管、合流管など比較的簡素な流路構造から成る場合は、流体要素を微小流管に分解し、さらに流れ方向に差分化した要素ブロックを作成し、化学反応、熱、物質拡散を含めた物理モデルを作成する。次に微細なピラー構造などを有するような複雑な流路構造のマイクロ流体要素については、研究項目1で構築する HILS を利用して、流動、物質、温度などの応答をデータとして取得し実験値に基づくモデ



ルを作成する。モデル化対象とするマイクロ流体要素は、研究項目3で実施する水質モニタリングに関する調査結果を基に選定する。

### (3) 研究成果

#### ① 反応系基本要素のモデル化

細管、合流管から成る比較的構造が簡易な混合・反応流路要素を対象に、物質拡散(テイラー拡散)、化学反応を含めた物理モデルを作成し、シミュレーションが動作することを確認した。また混合・反应用流路モデルに熱現象を追加、流路幅方向に拡張した数値モデルを作成した。

#### ② マイクロ流体要素の試作とモデル化

本研究開始時点で、MEMS 技術の応用の観点から、一般生菌数、硝酸態窒素、トリクロロアミンを測定対象項目として選択した。それに応じて各水質項目に応じた化学分析プロセスに不可欠なマイクロ流体要素の開発・改良とモデル化を行った。

まず試料水を濃縮するための濃縮器(希薄な溶存成分の検出感度を見かけ上向上させるため)に着目した。水道水中の細菌数の計測を対象とすると、通常、その濃度は極めて希薄(～10個以下/mL)なため、細菌数計数の統計的バラツキを抑えるためには試料水の前濃縮が不可欠となる。そこで濃縮時の制約条件(濃縮効率、細菌へのダメージ等)を検討し、水を低温で蒸発させることで濃縮を行うマイクロ蒸発器を開発対象とした。具体的には、微小液滴と超撥水表面を持つ流路によるデバイスや、気相/液相流路界面を無数の微細孔( $\phi 1.2 \mu\text{m}$ )を設けた薄膜で隔てた強制対流型のマイクロ蒸発器等、複数の構造について製作可能性等を検討した。その結果、図3(a)上に示す強制対流型のマイクロ蒸発器構造を創案した。導入ガス流量に対する蒸発速度(単位時間当たりの蒸発量)を取得後、実験データと理論モデルによるモデルを作成した。さらに蒸発速度を増大させるために 16 本の並列気液流路から成る蒸発器を試作し単一流路型に対して 10 倍以上の処理量を確保できることを確認した(図3(b)参照)。

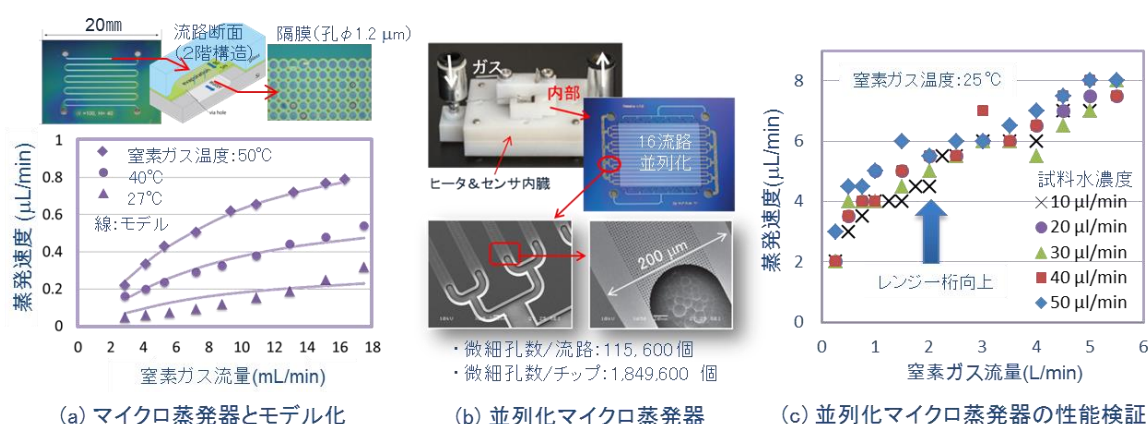


図3. 強制対流型マイクロ蒸発器

さらに、マイクロ蒸発器を備えた濃縮デバイスを屋外オンサイトに多点設置して利用する場合、デバイスの低コスト化が課題となる。これに対し半導体プロセスによって作成する現状のマイクロ蒸発器では製作コスト低減に限界があることが明らかになった。そこでより簡素な隔膜材料として微細ポーラス構造を持つ樹脂膜(Nafion)を検討した。ただし膜を利用した場合、流路との接合性を確保しつつ一体で製作可能かどうかは製作コスト低減の鍵となる。そこで膜を基材として、その上部に直接、3D プリンタにてマイクロ流路を積層形成する方法を試みた。その結果、積層開始位置などの微調整を図ることで、図4に示すように、膜を一面に備えたマイクロ蒸発器を簡便に作成可能となった。また上記ポーラス膜は高湿潤性を有しているため、瞬時に膜面に液膜が形成され、その結果、蒸発面積が増大し、同図(b)に示すとおり、前記微細孔型の蒸発器と比較しても2倍以上の蒸発性能を有することも確認した。

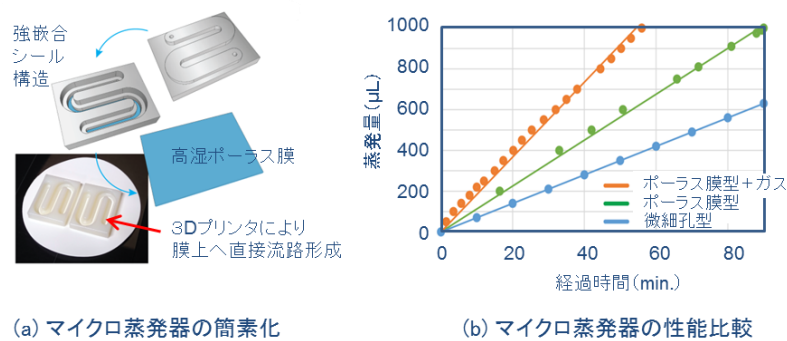


図4. オンサイト多点設置向け低コスト・簡素マイクロ蒸発器の製法と蒸発性能比較

次にオンサイトにて試料水中の細菌数を簡便に計数するために、研究用途で利用されているフローサイトメータを小型・簡素化することを目指した。そのためには細菌を染色するための前処理部と細菌を流して計測するシースフローセル部の間の無効体積を極限まで削減、一体化することが有効である。また低コスト・小型化のためには、組立不要な簡素な構造とすることが望まれる。そこでまずシースフローセル部に着目した。図5に示すように、微細流路型をシリコンエラストマー (PDMS) に転写成形し、2次元的な流路構造を得る。その後、シースフローセルの中間部分を振ることで、図5に示すように、微粒子計測に不可欠の流体力学的焦点合わせが可能となった。

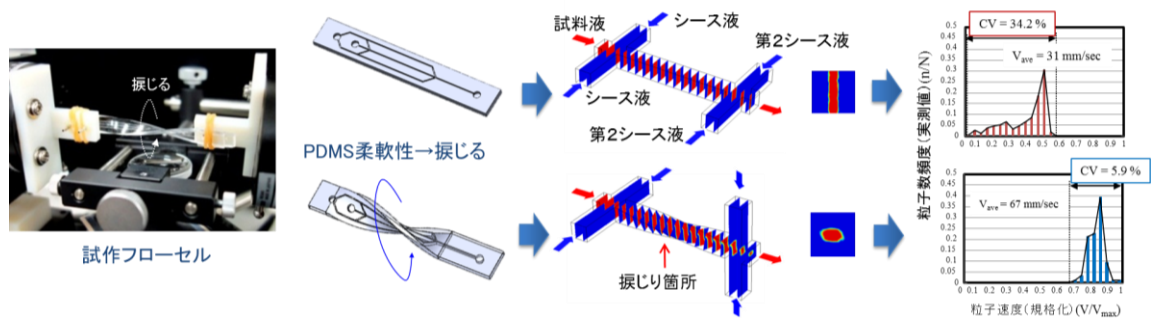


図5. 振りシースフローセルと解析によるシースフロー形成の予測と実験による確認

続いて細菌を染色する前処理部とシースフロー形成・計測部を一体化したフローサイトメトリチップ (図6 参照) を試作し一貫処理が可能であるかを検証した。同図 (b) に示すとおり試料液 (酵母菌懸濁) を導入して2分程度の短時間で各菌からの信号を取得できた。

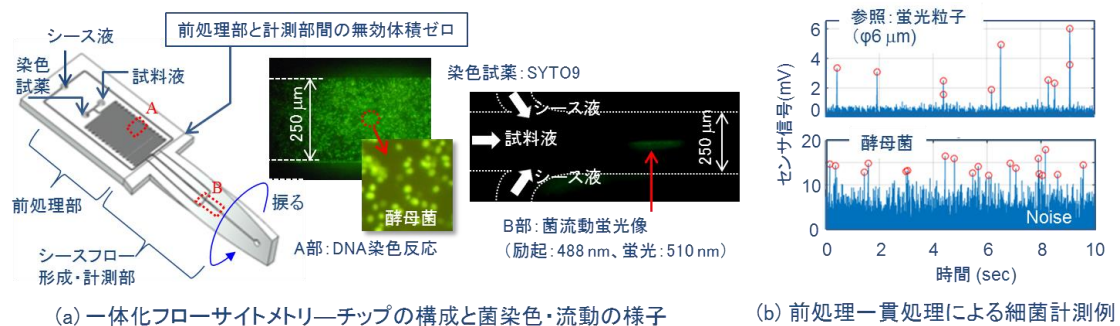


図6. 一体化チップの構成と前処理一貫処理による細菌計測例

次に試料水中の硝酸態窒素の分析(ナフチルエチレンジアミン吸光光度法)のための還元カラム(硝酸→亜硝酸)の開発に着手した。環境負荷の少ない亜鉛プレートに樹脂製マイクロ流路を組み合わせたカラム構造を提案・試作し、還元反応の基本的な応答プロファイルを取得、実験データと理論モデルを組み合わせたモデルを作成した(図7(a)参照)。一方、上記カラムにおいて接合部の耐久性が不十分で10時間以上の連続使用で液漏れが発生するという問題が顕在化した。そこで同じ流路構造であるが、表1に示すように、流路形成及び接合方法が異なるいくつかの製作法を検討し、最終的に表中4の高耐圧シームレス加工による流路製作法を選定した。その結果、極めて耐圧性の高い還元カラムを製作することが可能となった。

表1. 還元カラムの高耐圧化製作法の検討

	製作法	試作・評価結果	耐久性	還元性能	安全性
1	上面:マイクロ流路(PDMS) 下面:亜鉛フラットプレート	現状	× ~10hr	○	○ (亜鉛)
2	上下面:亜鉛フラットプレート 中層:樹脂流路層(レーザCut)  亜鉛プレート 薄層テープ(~20μm) 亜鉛プレート	 連続使用2日程度で漏れ発生	△	○	○ (亜鉛)
3	上面:亜鉛フラットプレート 下面:メタルエンボス加工流路層(亜鉛)  亜鉛プレート 拡散接合 マイクロ流路エンボス 形成亜鉛プレート	メタルエンボス加工状況  マイクロ流路加工条件 温度: 400°C 時間: 30 min 加圧力: 0.6MPa	未評価	未	○ (亜鉛)
4	全面:高耐圧シームレス加工*  Niマイクロ構造形成 →銅被覆→Ni溶出 →内部に微細流路形成 銅シームレスデバイス	 耐圧性良好、漏れなし	◎	◎	△ (銅)

\* (株)テクニスコ社と共同開発

モデルによるマイクロ流路内の還元動態の解析結果(図7(a)下)から、試料の還元処理量を増大させるには流路表面積が相対的に不足していることが予測された。そこで、同図(b)に示す作成方法にて4層構造のマイクロ還元カラムを試作、その評価を行ったところ、同図(c)に示すように、単層に比較して同じ還元率の下、約6倍の処理量(~0.2 μL/s→~1.3 μL/s)が得られることを確認した。

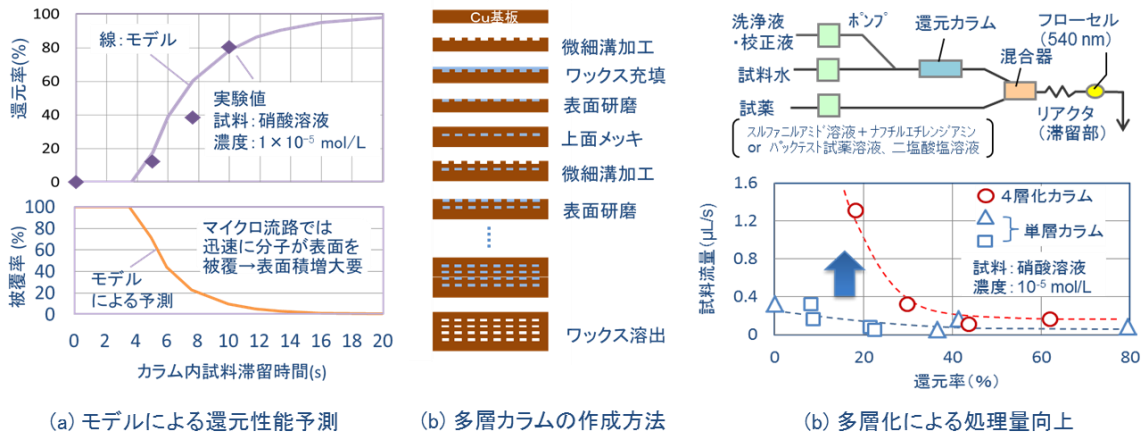


図7. 多層化カラムによる還元性能向上



また平成24年度からは、水道水中のトリクロロミンを測定対象に、その分析のために鍵となる流体要素として滴定デバイスの開発に着手した。通常、滴定操作はバッチ処理を必要とするが、オンサイトに設置して連続的に計測するためには、図8(a)に示すように、フロー型の流体システムを構築する必要がある。特に滴定部において、滴定液との間に連続的な濃度勾配を形成し、下流の電極センサ(8濃度)により当量点を判定する濃度勾配式滴定デバイスを新たに考案した。濃度勾配を迅速・短距離に実現するには、流路の合流だけでは不十分であり、同図(b)に示す流路埋め込み型の分岐-合流-分岐-合流を局所で繰り返す高速ミキサを提案・試作した。同図(c)に示すように、蛍光色素を用いて混合性能を評価したところ良好な混合性能を示した。

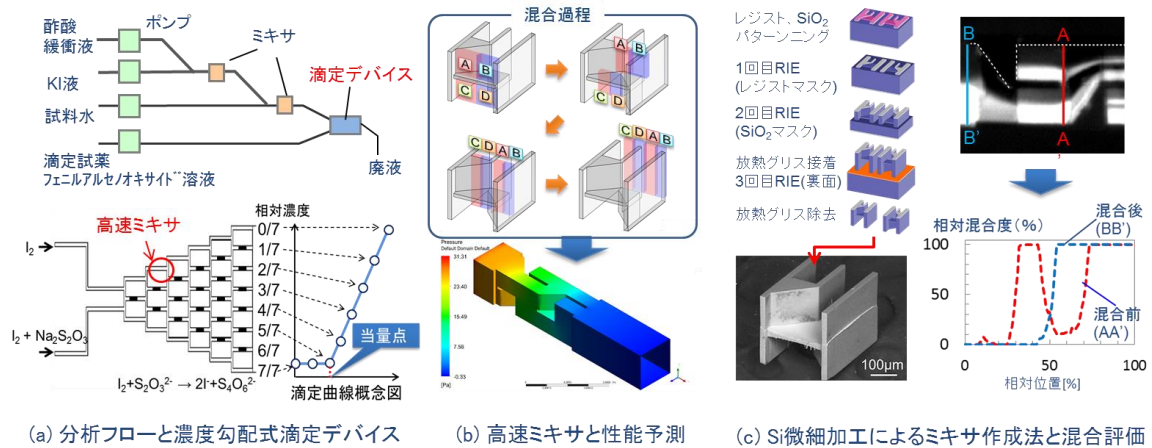


図8. トリクロロミン計測用濃度勾配式滴定デバイスの構成と高速ミキサ

次に、図9(a)に示すように異なる2色の色素を用いて濃度勾配の形成を確認した。また同図(b)に示すように濃度勾配形成デバイスに白金電極を取り付け、模擬試料(クロロミン溶液)を用いて還元電流による検出性能の評価を実施した。その結果、後述する水質計ユニットを用いた試料液の送液圧による他試薬同時送液方式によっても当量点を示すことが確認された。

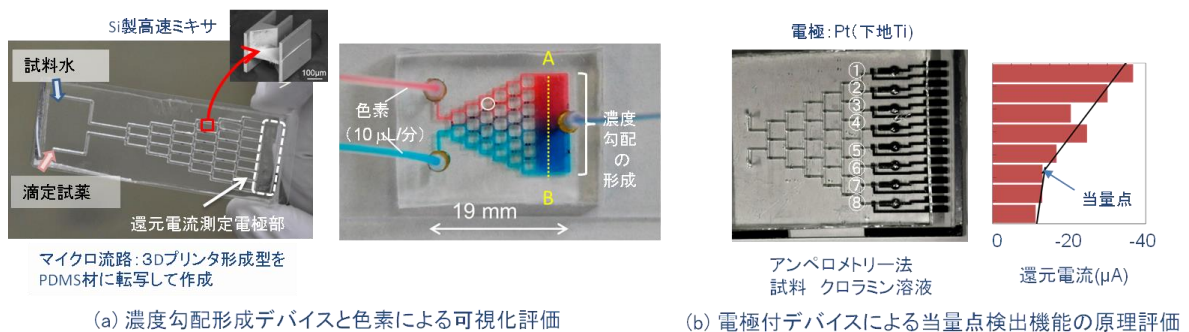


図9. 滴定デバイスの評価(濃度勾配形成、当量点検出機能)

また次項で詳細記載するが、水質モニタリングに関する各地の浄水場や水道局等への調査から、上水の配管末端における残留塩素の遠隔監視に対して、多点化、簡便化、装置小型化等の強い潜在的ニーズがあることが判明した。そこで平成23年度から、分析項目として水道配管末端での残留塩素を取り上げ、研究を開始した。特に、これに対しては、試薬添加時に圧力感度の高い反応流路系を求め、それらを反映した流路モデルを構築した。

上水や地下水など比較的清浄な水以外に、河川や湖沼等の環境水や浄化施設での処理水等の水質のオンサイト・連続監視は有用である。それらの試料水には通常、土や汚泥などに由来

する微粒子を多く含み、そのまま水質モニタに入れると内部の流路での閉塞は避けられない。そこで溶存水質成分への影響を最小限に抑えつつ、微粒子を除去するフィルタが求められる。またオンサイトでの連続監視に供するには、コストのかかる複雑なフィルタ機構は避けなければならない。一方、本研究で対象とする水質モニタにおいては計測に必要な試料量は微量(～100  $\mu\text{L}$ /テスト程度)で済むため、フィルタで分離する試料量も微量で良い。そこで、図10(a)に示すサイクロン型試料水フィルタ(懸濁粒子の除去)を考案した。サイクロン流路にて粗分離し、全体導入量の1/100を孔0.2  $\mu\text{m}$ 程度の細孔フィルタで精密分離を行う。こうすることで細孔フィルタを長期連続的に利用可能とする。同図(b)(c)に模擬試料( $\mu\text{m}$  オーダーから数百  $\mu\text{m}$  オーダーの粒子を懸濁)を用いてサイクロン部の除去性能の評価を実施したところ、一定以上の流速を与えることで有用(50  $\mu\text{m}$  以上、90%除去)な除去性能が得られることを確認した。

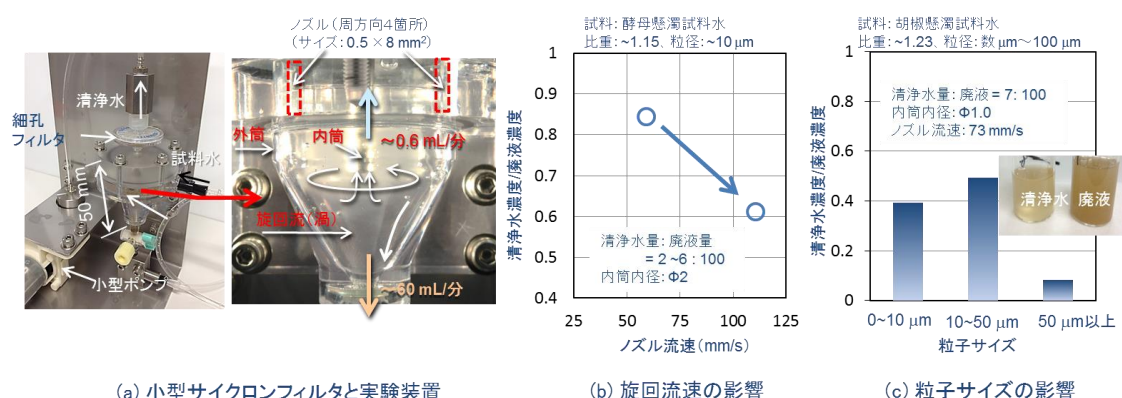


図10. 小型サイクロンフィルタと分離評価

### 3. 水質モニタ対応モデルベース型開発環境構築と開発効率の評価(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立製作所グループ、広大なナノデバイスグループ)【研究項目3】

#### (1)研究のねらい

研究項目3では、まず水利用領域(水源から給水まで)におけるモニタリングの現状を調査・整理後、測定対象項目の選定を行い、MEMS 技術の利点を生かしたシステム形態を提案する。さらに分析機能、制御、信号処理機能等を組み込んだ水質モニタ対応のモデルベース型開発環境の構築、それを利用して前記水質項目毎に水質モニタの設計・試作を行い、最終的には従来からの開発プロセスと比較して、どの程度、開発効率(設計・試作効率)が向上するのかを検証する。

#### (2)研究実施方法

まず水利用領域(水源から給水まで)におけるモニタリングの現状の調査・整理の後、測定対象項目の選定を行い、更に MEMS 技術の利点を生かしたシステム形態を提案する。次にこれら水質モニタに相当する仮想システムモデル(水質モニタ対応モデルベース型開発環境)を開発する。これはモニタの設置環境での温度変化や圧力変化など外部擾乱を仮想的に与えた場合に発生する分析性能のバラツキなどを設計段階で予測可能とするためである。一方、選択した測定対象項目毎に水質モニタを順次試作する。出来上がった試作機の分析性能のバラツキを計測、仮想システムモデルで予測されたバラツキと比較・検証する。以上より、モデルベース型開発環境を用いることで、設計・試作効率がどの程度改善されるかを解析・評価する。評価指標として、設計・試作期間の短縮度合いを取り上げる(目標:従来比1/3(市販水質モニタの試作期間事例約3年))。

#### (3)研究成果

##### ① 水質モニタリングの現状調査と適用先の提案

まず本研究開始時点で、MEMS 技術の応用の観点から、一般生菌数、硝酸態窒素、トリクロミンを測定対象項目として選択した。一方、平成 23～24 年度にかけて文献調査及び、国内施設（東京都、岡山市、広島市等の浄水場及び水質検査センタ）、海外の施設（シンガポール PUB/Water HUB）における、水質モニタリングに関する現場ニーズについて調査を実施、その結果、当初候補とした測定対象に加えて、上水道配管網末端における残留塩素の計測に関して、多点化、簡便化、装置小型化等の強い潜在的ニーズがあることがわかったため、残留塩素を新たな測定対象項目として追加することとした。また調査を進める中で、MBR など膜を用いた浄化技術において生物由来物質による膜の閉塞状態の予測・推定の必要性が高いことが確認されたため、平成 24 年度は、浄化設備メーカーへのヒアリングを通して連続監視の条件などについて調査した。これを受け、表面への異物付着を直接検知可能で、かつ漏電の恐れのない光共振リング型のセンサを用いて、表面汚れの経時変化計測に関する予備実験を行い、連続計測への利用可能性を確認した（図11参照）。その後、図12に示すように、センサ感度の安定化のために一方を標準液に浸し温度変化に対して頑健な差動型のセンサを提案、センサ寸法・形状と信号量のシミュレーション及び実験による検証など、感度バラツキ低減のための条件探索（リング間距離 100  $\mu\text{m}$ ）を行った。また同図（b）に示すように、伝送と検出を兼ねる簡便・安価な光ファイバを利用した水質センサを開発し、実験用の MBR 浄化装置を組み上げ、遠隔（10 m）での汚れ経時変化計測を行うシステムを開発した。

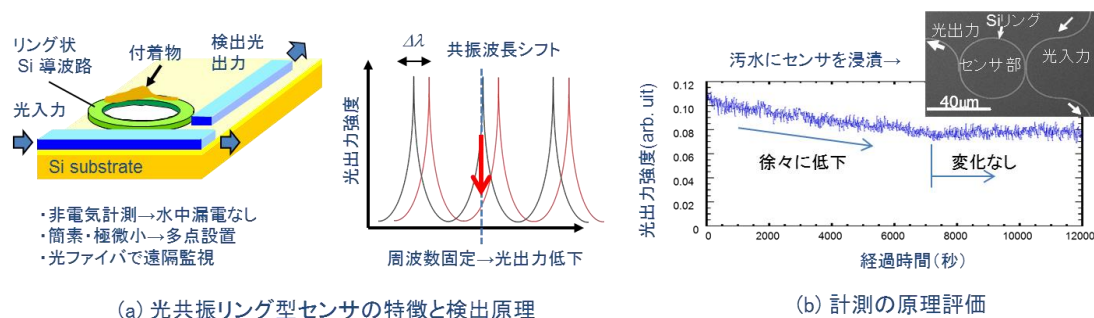


図11. 光共振リング型センサを用いた表面汚れの計測に関する予備実験

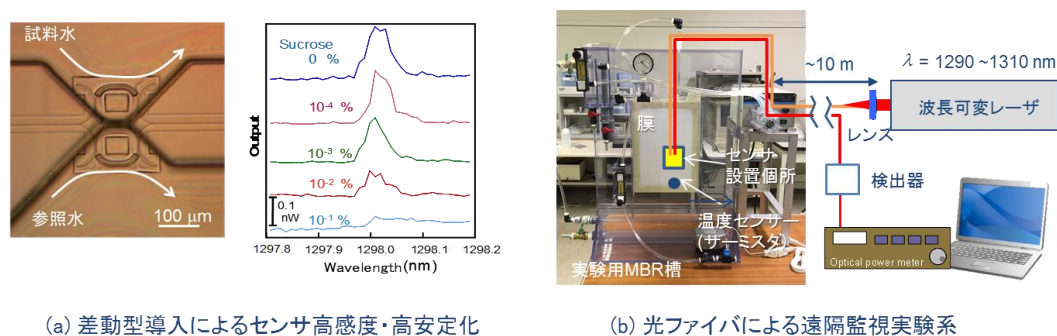


図12. MBR 膜汚れ検知のためのセンサ安定化策及び光ファイバ経路による遠隔監視実験系

## ② 水質モニタ対応モデルベース型開発環境の構築

本研究では、制御・信号処理機能等の要素を加えた水質モニタの仮想システムモデルを作成し、水質モニタ対応のモデルベース型開発環境の基本構成を構築した。図13に示すように、背圧変動を伴う場合のシステム内の試薬や試料水の流動の変化、それに伴うフローセル部分での試料試薬反応による吸光度の時系列プロファイルなどが細かく予測可能となっている。特に同じ成分濃度の試料であっても試薬が希薄かあるいは濃いかで、得られるプロファイルが著しく異なる



ることも予測された。すなわち同図下中央の試薬吐出のプロファイルに示すように、試薬導入始めと終わりにおいて試薬添加量の少ない区間が生じるが、添加する試薬の濃度が小さい場合は、その区間において試料中の対象分子に未反応のモノが残る。その結果、同図右上に示すように、山状のプロファイルとなる。一方、試薬の濃度が大きい場合（試薬リッチ）は、その区間においても十分な試薬量があるので、反応は十分に進むのに対し、試薬そのものの容積による希釈は小さいため、見かけ上濃度が大きくなり、同図右下にあるようなふたコブ状のプロファイルとなる。

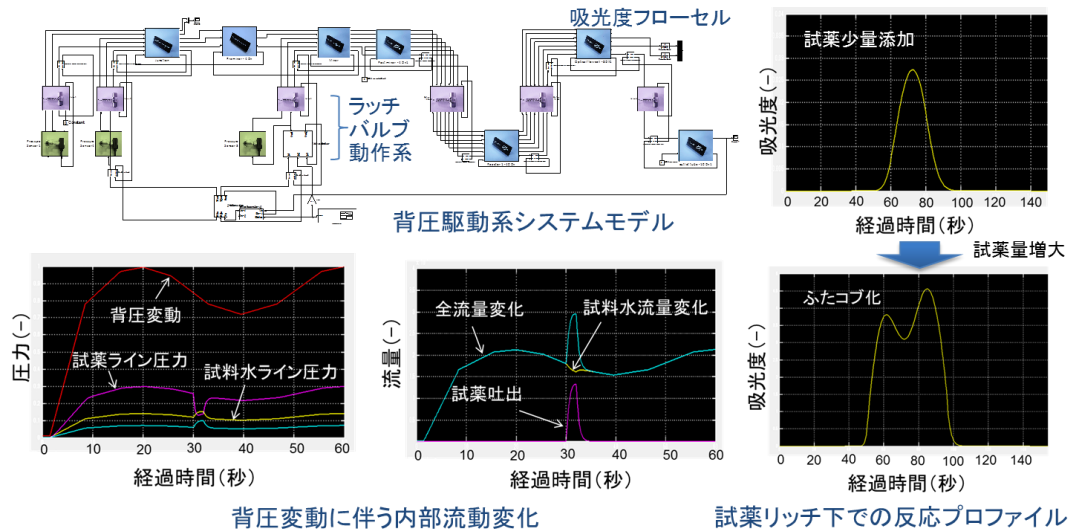


図13. 試作水質モニタに対応した仮想システムモデル(背圧駆動系)

仮想システムモデルを用い、実際の水質モニタ内の流動や試薬反応をある程度予測可能となってきたため、図14左に示すように、現場での実水質モニタと遠隔監視センタ内に設置したコンピュータ内の仮想システムモデルを、ネットワークを介してリアルタイムに同化させる計測法を提案した(関連特許2件出願)。

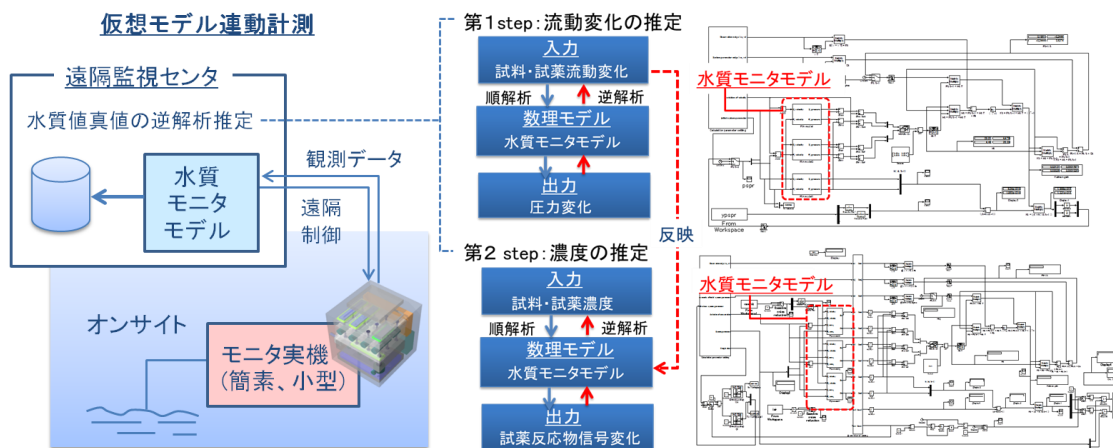


図14. 仮想システムモデル連動計測と水質値真値の逆解析推定アルゴリズム

例えば実水質モニタ内の流動を既定する圧力などの情報を取得し、それを、ネットを介して仮想システムモデルに反映させることで、実モニタ内の動作の様子を逐次、再現することが可能となる。このことは試料水の供給水圧変動など外部擾乱があっても、それに応じた試薬反応結果を

予測できることを示しており、その予測結果と実モニタからの吸光度信号を照合、逆解析を行うことで、元の水質値の真値を推定することも可能となる。水質モニタ単体にとっては、定量ポンプや高精度バルブなどの精密な流動制御機構に代わって簡単な圧力センサを搭載すればよいことになるため、従来と比較して大幅な部品点数の削減や小型化が可能となる。図14右には、本アイデアに合せて新たに開発した、時々刻々変動するモニタ内部の動作状態(圧力)の観測データから水質濃度値の真値を逐次推定・補正可能なモデルベースによるデータ同化アルゴリズムを示す(関連特許1件出願)。

### ③ 水質モニタ設計・試作効率の評価

本研究では、多種の水質モニタを迅速に構成可能とするために、分析処理プロセスに応じてマイクロ流体要素を柔軟に交換・配置出来る、モジュラーコンセプトに基づく水質モニタ汎用プラットフォーム(サイズ約 150 mm角、モデルベース連携型)を新たに創案し、プロト機を設計・試作した(図15右参照)。最上部には吸光度測定を行うための光源等を設けた計測モジュール層、その下部にはマイクロ流体要素を配置した接続流路モジュール層、その下にはマイクロ流体要素の流れを制御するための電磁バルブを配置した流体制御モジュール層、更にその下には図には示していないがもうひとつの接続流路モジュール層、さらに試薬を充填したシリンジ型のポンプや圧力センサを保持したポンプモジュール層がその下にあり、最下層には試料水を導入するためのタンクがある。このタンクは試料水の給水圧を利用してポンプモジュール層の試薬シリンジを背圧にて動作させる役割も持つ。試料水はタンクに導入され、そのままポンプモジュールを経て、接続流路モジュールの流体要素へと導かれる。一方、試薬はタンクの背圧が印加されている状態で、電磁バルブが開放された時のみ上部の流体要素に導入される。このようにして試料水と試薬が制御される。図15右上に硝酸態窒素を分析するためのフローダイアグラムを示す。また同図右下に前記プロセスに沿って還元カラム、試薬反応デバイス(ナフチルエチレンジアミン吸光度法)、吸光度測定用のフローセルデバイスを汎用プラットフォーム上に配置した構成例を示す。

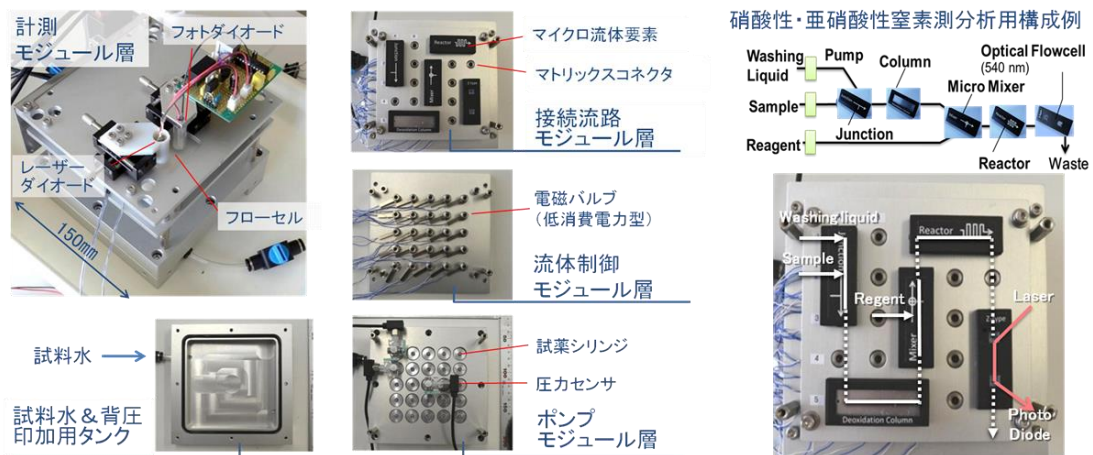


図15. モジュラー型水質モニタ汎用プラットフォーム

②で述べた仮想水質モニタシステムモデルとモニタ実機を連動させる手法について、図15のプラットフォームに一試薬混合系のフローダイアグラムを構成し、測定対象としては水道水中の残留塩素を想定し原理検証を行った。残留塩素の分析には SBT 法を用いた。図16(a)は水道水給水圧が計測中に変動した場合を想定し、意図的に背圧を変動させた場合の背圧変動パターンである。まず、第一ステップでは図16に示すように、背圧変動の下、プラットフォーム内の圧力センサを用いて逐次取得される水試料ライン圧力と、仮想水質モニタシステムモデル内の水試料ライン圧力を同化させ流動状態の推定を行う。同図(b)に同化結果を示すが、極めて忠実に圧力履歴が再現されていることがわかる。この同化により、仮想システムモデルを用いて実機内各部位



での流動状態が予測可能となる。ここでは第二ステップ向けに特に試料水と試薬の逐次流量を抽出し、それを動作データとして仮想システムモデルに与えた。その後、第二ステップでは、実機で得られた吸光度信号値と仮想システムモデルでの試薬反応データを同化させ、オリジナルの試料濃度を推定する。同図(c)に、手分析による実測値と、その時点で計測した吸光度信号値から推定した濃度値を比較したものを示す。異なる背圧変更パターンを与えた場合においても、実測値に沿った推定結果が得られている。

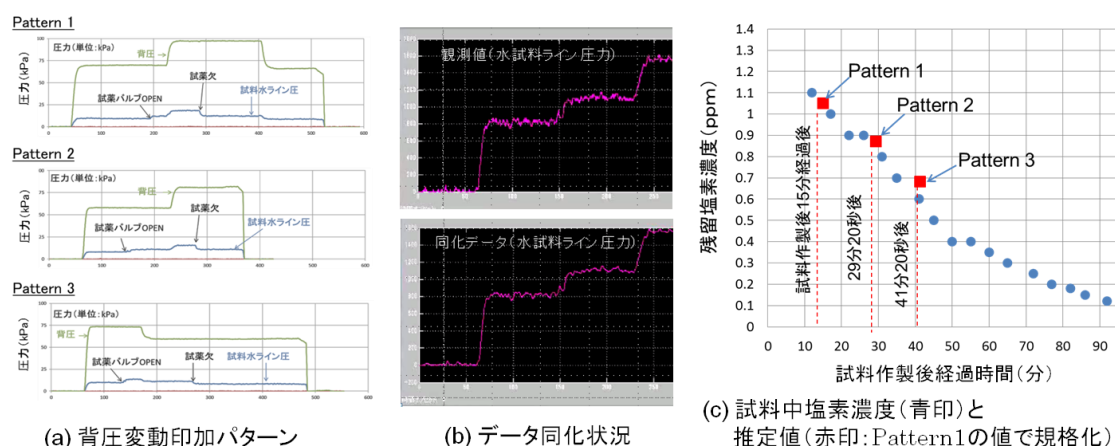


図16. データ同化状況と水質値推定

図15で示した水質モニタ汎用プラットフォームは比較的堅牢なアルミ金属製で構成されている。外乱に対して筐体や流体系が変形し、分析精度のバラツキつくことを懸念した対応策である。しかしながら仮想モデル連動計測法により、予めモデルに水質モニタの機械特性(流路の圧力歪み等)を反映させておけば、それに基づく同化・推定が可能となる。例えば金属に代わり、樹脂やPDMS等、圧力により伸縮・変形しやすい材料も利用可能となる。そこで水質モニタ汎用プラットフォームのマイクロ流体要素の製作に利用した3Dプリンタを筐体全体の作成に適用することとした。更に樹脂板材等の精密工芸加工に用いられるレーザ彫刻機も利用する。具体的には、モデル化技術によりマイクロ流体要素や積層構造を仮想的に配置して、それらを3Dプリンタやレーザ彫刻の造形デザインに落とし込む。図17(b)に示すように寸法精度が要求されるマイクロ反応流路は、レーザ彫刻を用いて作製し、液体制御用バルブや試薬パックの装着部、それらを支持する筐体など比較的複雑な立体構造が要求される部分は同図(a)に示すように、3Dプリンタを用いて作製する。

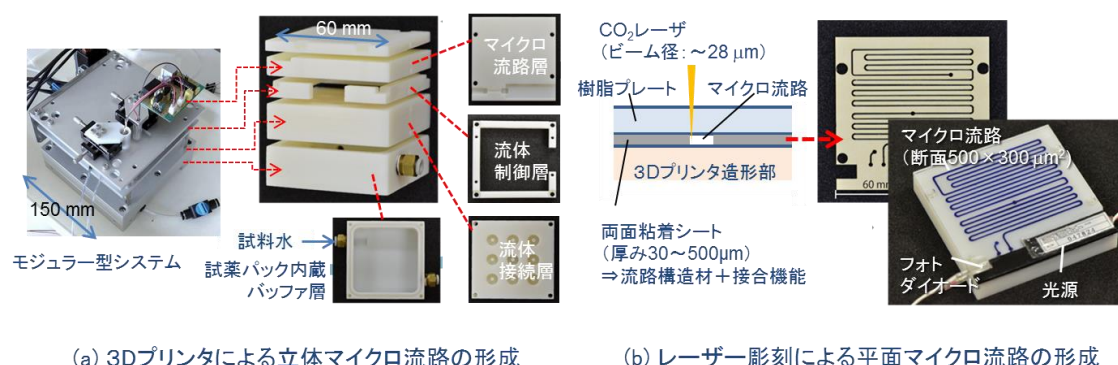


図17. 3D マイクロ流路の迅速製作法

仮想モデル連動計測を前提としてモデルベースによる設計技術と迅速製作法を組み合わせる

ことで、図18に示すように、試作してからの手戻りや、要素部品と筐体を別々で製作することや、組立・調整の時間が削減されるので、設計・試作期間を大幅に短縮することが可能となる。

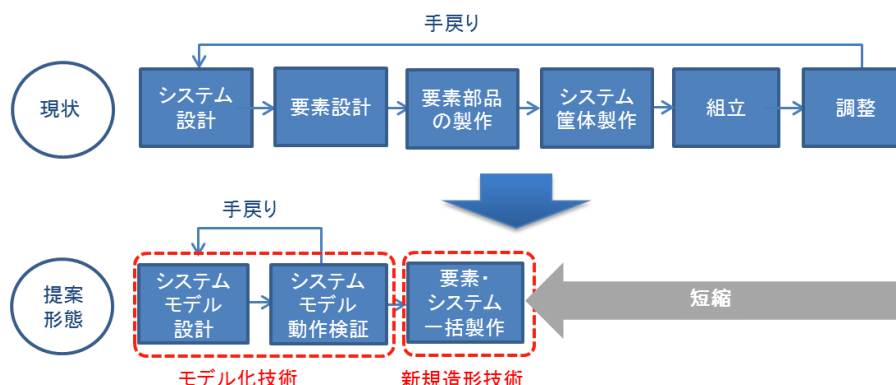


図18. モデル化技術と新規造形技術によるオーダーメイド設計・試作技術

以上の設計・製作技術を活かす新たな水質計のプラットフォームとして図19に示すように、ユニット組合せによるシステム構成を提案した。例えば測定対象とする試料が環境水の場合には、夾雑物の除去が必要となるため、2. (3)②で述べたサイクロン型のフィルタをユニットとして前段階に接続する。また水道水の場合には給水圧があるため、試料や試薬の流動には、そのまま利用可能であるが、水質浄化施設などでは処理水を汲み上げて計測する必要がある。その場合は、ポンプユニットを前段に接続する。また希薄な試料の場合は濃縮器ユニットを接続する。このようにユニット化することで多種多様な水質項目に対応可能な水質計システムを迅速に構成可能となる。

以上のシステム構成に合わせて、モデルベース型開発環境と3D プリンタ/積層形成技術を利用し、60 mm立方のポンプユニット、タンクユニット、サイクロン型フィルタユニット、濃縮器ユニット、水質計測用では残留塩素、硝酸態窒素、細菌数、トリクロロミンの水質計ユニットを各々試作した。これらの設計・試作を通じて、設計・試作期間を最短では2日程度まで大幅に短縮可能であることを確認した。以下順にそれぞれのユニットについて示す。

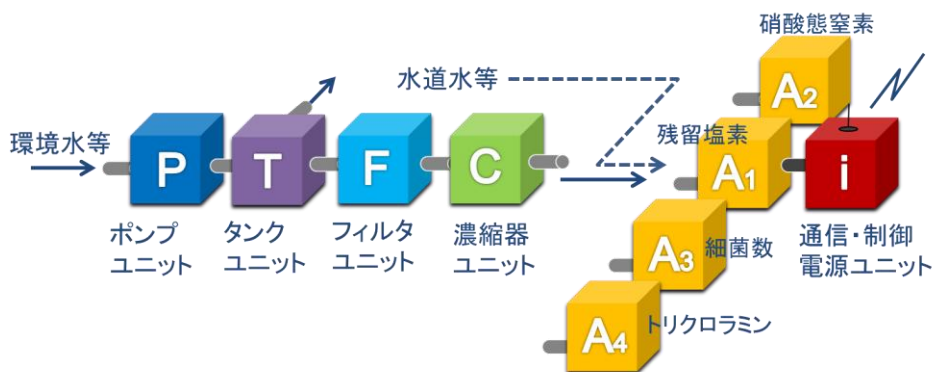


図19. ユニットモジュラー方式による水質計システム構成

図20に、ポンプ、タンク、フィルタユニットの試作例を示す。同図(a)は蠕動型のポンプを搭載したポンプユニットであり、チューブを交換することで、長期的な運転が可能となる他、夾雑物を含む試料も吸引可能である。また無線にて ON/OFF 動作が可能であり、一定時間無給電稼働可能な畜電池を内蔵する。ユニットの両端にはワンタッチで流体接続可能な磁気流体継手を備え、他のユ

ユニットとの連結・離脱が迅速に行える。同図(b)は、一時的に試料を保持するためのユニットであり、内部に処理タンクを有する。給水压の開放や、夾雑物の沈殿や、固相を添加することで様々な前処理をこの中で行うことができる。廃液の排出は電磁弁を動作させておこない、その ON/OFF はポンプユニット同様に無線にて可能である。同図(c)には図10で示したサイクロンフィルタを内蔵したユニットである。定期交換が必要な細孔フィルタは交換容易とするために外部に設けている。

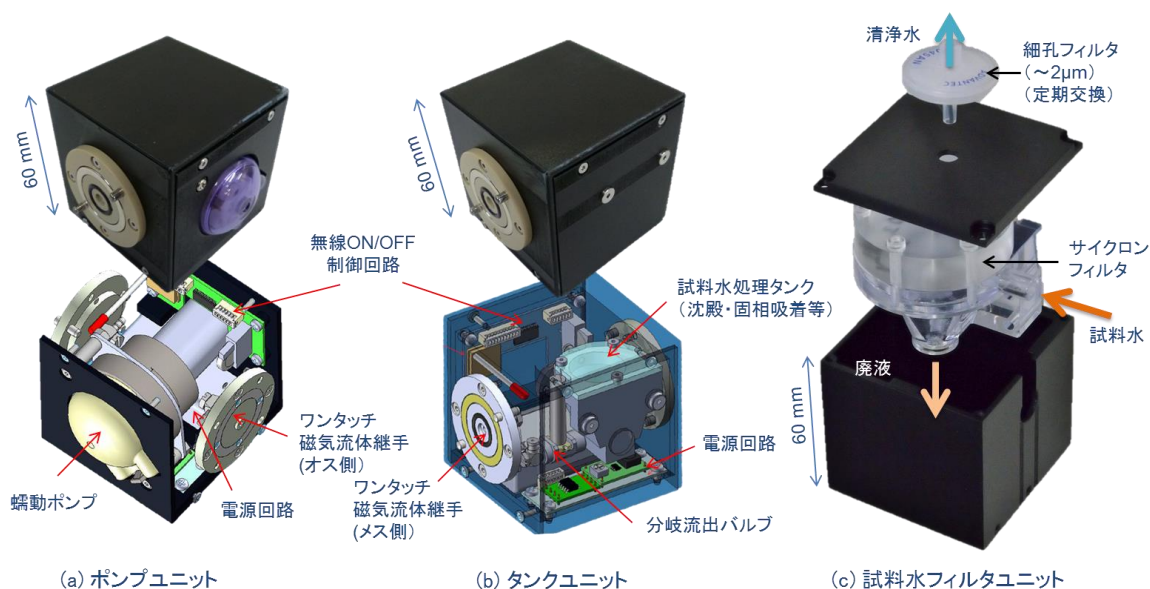


図20. 前処理ユニット

2. (3)②で説明したマイクロ蒸発器を備えた濃縮ユニットを図21に示す。マイクロ蒸発器、試料液を駆動するための蠕動ポンプ、マイクロ蒸発器を加熱するためのヒーター、濃縮度を測定するための光センサ、濃縮した試料液を排出するためのバルブ、通信・制御回路など、必要な機能をひとつに集積化させた。実用的な時間内で高倍率に濃縮するために、同じ試料液を繰り返し蒸発器に通して循環させる方式を考案した。同図(b)に、濃縮装置のフロー系統図を示す。最終的に一定量の濃縮液が秤量部に残るため、濃縮液の定量精度も確保される。形状は一片 60 mm の立方体である同図(c)に本装置を用いて色素溶液(1.25 mL)を 100  $\mu$ L まで定量濃縮した例を示す。流路系の無効体積を切り詰めたことで、最終濃縮液量の再現性は 5% 以下となった。

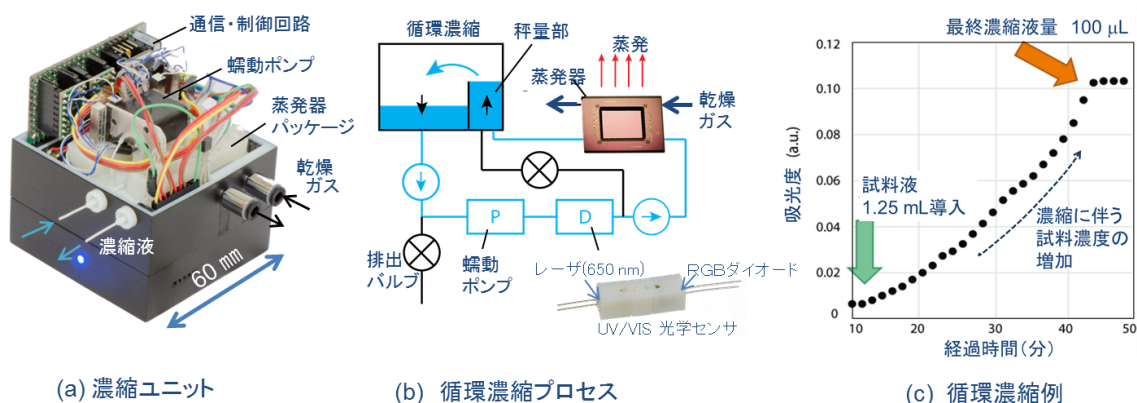


図21. 濃縮ユニット

図22に、残留塩素分析用の水質計ユニットを示す。下部の試料水タンク内の圧力を計測するセンサや試料水の温度センサ、吸光度センサ(半導体レーザ:650 nm)、それらの情報の制御・通信系すべてを60 mm 立方の筐体内に内蔵する。試料水は背圧印加の下、制御バルブを開くと下タンクから上部の反応流路へ供給される。試薬は、背圧印加の下、制御バルブを一時的に開放することで、マイクロ流路の途中から試料水に添加される。同図(c)に示すように、本ユニットに残留塩素試料(0.5 ppm)を導入したところ、圧力と吸光度信号の同時取得・無線送信が可能であることを確認した。再現性を評価したところ、4%以下であった。

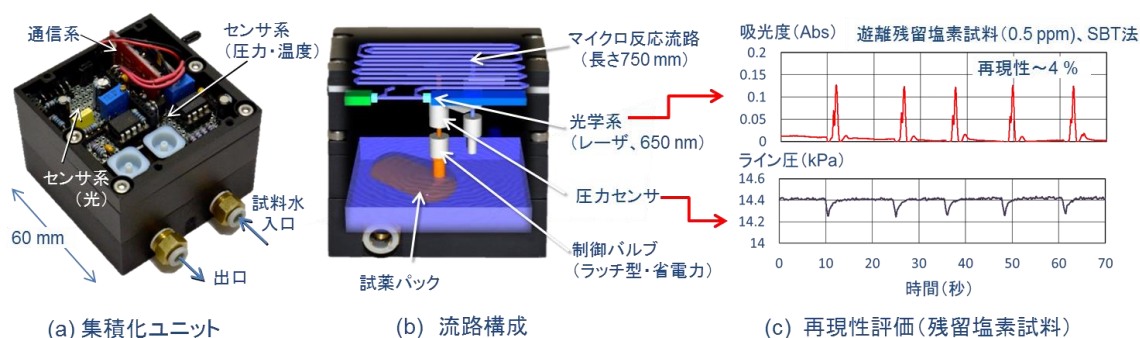


図22. 水質計ユニット(残留塩素)

図23に、上記、残留塩素用の分析ユニット向けの仮想システムモデルを示す。仮想モデル連動計測の解析効率を上げるために、Step1の流動予測と、Step2の拡散反応予測で、それぞれの解析負荷を考慮してモデルの簡素化を行った。具体的には流動予測では、拡散反応ブロックを省き、拡散反応予測では、背圧駆動流路は省いた。

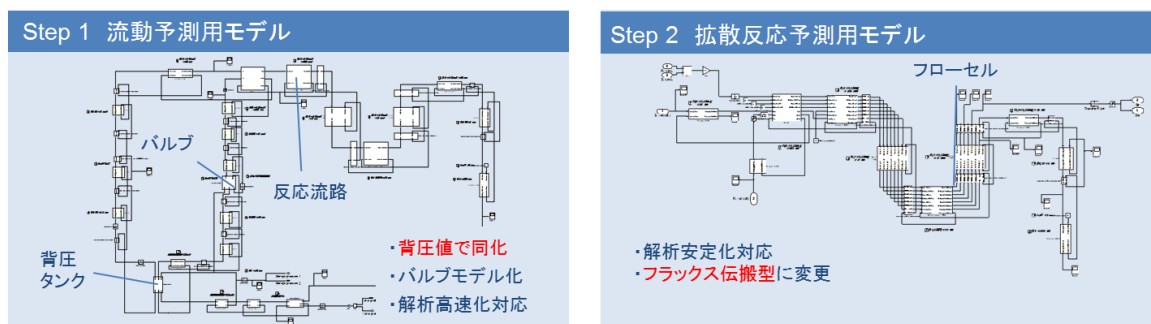


図23. 超小型水質計ユニット対応仮想システムモデル

図24に2. (3)②で説明した4層化還元カラムを搭載した硝酸態窒素用の水質計ユニットを示す。分析方法として、ナフチルエチレンジアミン法を用いるため、光源としては LED(中心波長540nm)を搭載している。試料水、試薬の制御方法は図22の残留塩素用の水質ユニットと同様である。還元カラムの還元性能が内部への気泡残留等により変動するため、還元カラムの還元率パラメータのその場検定法を提案し、その有効性の見通しを得た。具体的には、標準校正液を流しての吸光度値、試料水を高速で通過させての吸光度値(未還元)を用いて校正を行う。校正液を追加するだけの簡素な系で実現可能である。水質計モニタへの搭載のための動作条件を導出した。



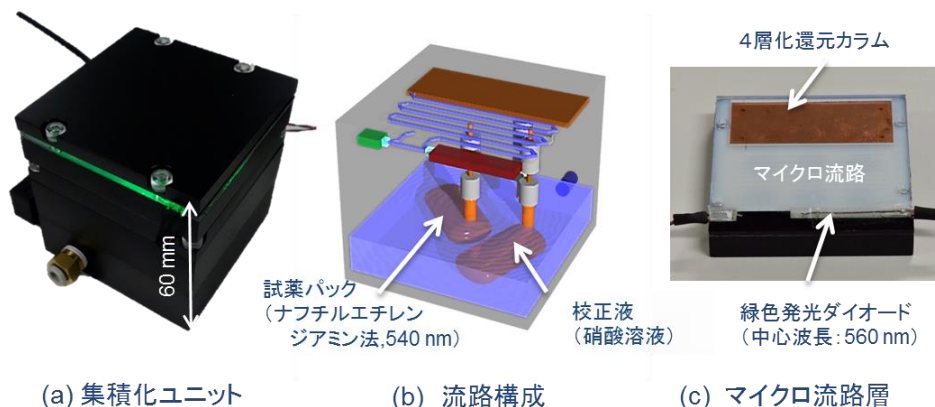


図24. 水質計ユニット(硝酸態窒素)

図25(a)に、細菌数計測用の水質計ユニットを示す。図6で示した前処理部一体化チップと同様の流路構造であるが、60 mm角内に実装するために、染色用流路を横に広げた構造となっている。染色液のみ試薬パックで供給され、シース液は、比較的清浄な試料水を対象とするため、試料水をシース液として代替利用する。流体制御系としては図22で説明した残留塩素分析対応の水質計ユニットと同様、2つの制御バルブ(試料・シース液制御用の制御バルブと染色液用のバルブ)を下部に備える。同図(b)にクロラミン向けの水質計ユニットの試作結果を示す。最上部に図9で示した電極付の滴定デバイスを備える。試薬の供給には、緩衝液、滴定試薬2系統(混合比変更用)、KI液、試料水と5系統の制御が必要となるため、制御バルブを5つ備える。滴定試薬の混合比の変更は、制御バルブを周期開放させ、その周期を相互に変更して行う。

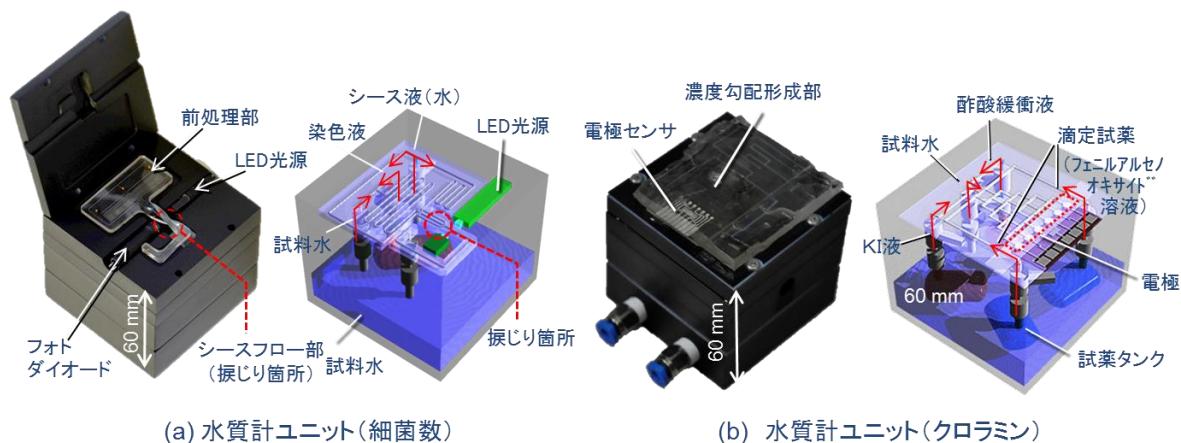


図25. 水質計ユニット(細菌数、クロラミン)



図 2 6 . 試作したユニット群

#### 4. 研究項目4:スマート水質モニタリング網対応モデルベース型開発環境構築と検証(東京大学マイクロ・ナノグループ、日立製作所グループ)【研究項目 4】

##### (1)研究のねらい

研究項目4では、IT 利用スマートモニタリング網対応のモデルベース型開発環境の構築、それを利用した実フィールドでの試作水質モニタの動作評価と運用向けデータベース取得を行う。

##### (2)研究実施方法

まず複数の水質モニタとそれらを制御するコントローラ及び各水質モニタとの情報(制御信号、計測値、運転状態、設置環境情報等)をやりとりするネットワーク回線から成るモニタリング網の仮想システムモデルを構築する。次に、このモデルを高速で演算可能なモニタリング網対応の開発環境の構築を図る。また試作した水質モニタを実際のモニタリングサイト、あるいは類似サイトに設置して、気温や気圧など環境変動の下での装置内部の流体要素への影響や、分析性能のバラツキに関するデータを取得する。これらのデータを基に、モデルベース型開発環境を用いた設計・試作方法の有効性について検証・改良するとともに、水質モニタの配置密度や測定頻度など運用条件の探索を行う。

##### (3)研究成果

##### ① モニタリング網モデルベース型開発環境構築

本研究項目に対して、仮想水質モニタとそれらを制御するコントローラ及び各水質モニタとの情報(制御信号、計測値、運転状態、設置環境情報等)をやりとりするネットワーク回線から成る仮想モニタリング網システムモデルを作成した。

## ② フィールドでの水質モニタ性能評価

フィールドに複数の水質モニタを設置して諸データを取得可能とするために、研究項目3で構築した汎用プラットフォームに太陽電池給電系、無線による制御・通信系を付加した水質モニタを試作し、遠隔での制御及び各種動作情報(試料水供給水圧変動値、吸光度信号値等)を連続的に取得可能であることを確認した(図27参照)。

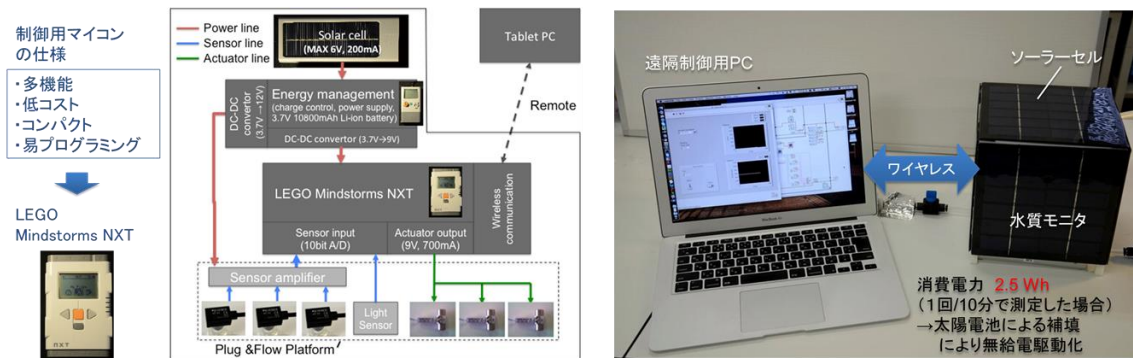


図27. 無給電・無線制御水質モニタシステムの回路系統図及び外観

図27に示したシステムで一对一での無線・無給電での動作が確認できたので、図19で示した水質計ユニットに対しても同様の通信・制御方法を移植し、次に多数点に水質モニタを配置した場合の通信制御形態について検討を実施した。サイト環境を想定して幾つかの無線形式 (Bluetooth、短距離無線、WiFi 等) を比較し、距離・消費電力の観点から通信規格として短距離無線を選定した。図28にそれに合わせて試作した給電ユニット及び多点モニタリングの形態を示す。遠隔地や海外等との通信にはインターネット接続によりセンターの PC と現場 PC 間をリモートデスクトップにより接続する。現場 PC から各水質モニタには、安価な短距離無線を利用し制御情報や取得データの回収は、各モニタに設けた通信端末を介してホッピングにより伝達する。こうすることで効率良く、安価に多くのモニタの制御・通信が可能となる。各モニタ間の通信距離は、通信実験により見通しの良いところで300m程度、屋内では100m程度であった。ホッピングによる接続では即時性が損なわれるが、水質計測では1回/時間程度の頻度を想定しているので、多点からの情報回収は可能と考えた。



図 28. ユニット対応給電方法及び多点モニタリング網

次に、仮想モデル連動計測では、水質に相当する吸光度信号のみならず、モニタ内の状態を観測する圧力、温度などの時系列データを同時に送信する必要がある。その場合、図29に示すように、複数モニタを経由すると、時系列データの同期性が損なわれたり、一部データの欠損が現れ



ることがわかった。そこで、水質モニタ内にクロック機能を搭載し、時間情報を付加したデータをメモリーに一時的に蓄えて、測定が終了後に送信するポスト・ログ化通信方式を提案した。その結果、同図右に示すようにほぼ欠損、遅れの無いデータ通信が可能となった。

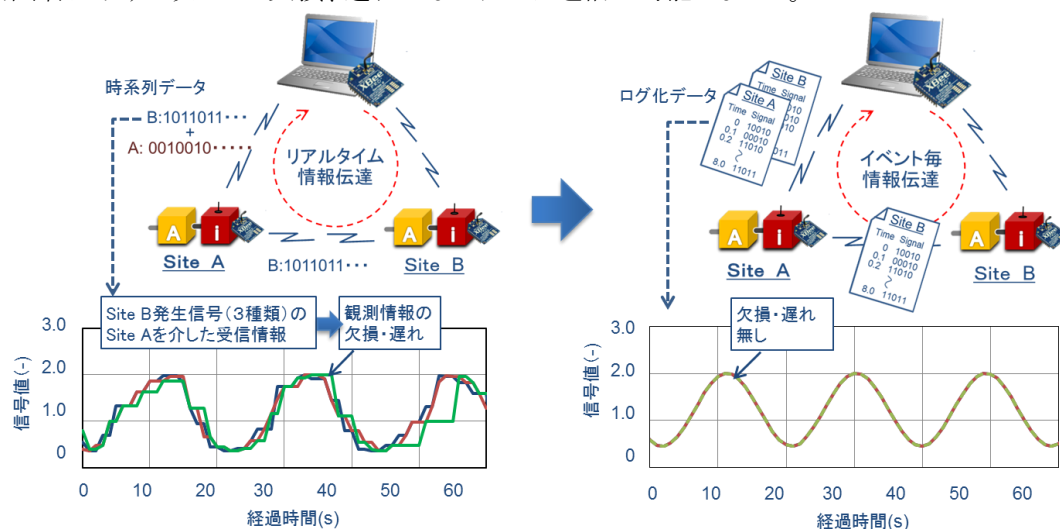


図29. ポスト・ログ化通信方式による多元高密度時系列データの通信

水質モニタをオンサイトに長期設置した場合に懸念されるモニタ内の流路の汚れについて評価した。実験では、水道水による通水で課題となるスケール形成を想定した。実験を加速するために、硬度の大きい水(硬度1300;通常 100 以下)を通水(スタート時 $\sim 0.2$  mL/min)し続け、定期的に流路への付着状況の観察及び付着による流量低下(同じ背圧下)状況の評価した。その結果、1ヶ月程度でモニタ内流路へのスケールの形成が確認され、流量も1/3程度まで低下することが判明した(円形流路を想定すると元径 0.76 倍相当)。そこで対応策として、図30に示すように、その場で流量パラメータを検定する方法を提案した。モニタ内の流路に試料水を通水中に短い試薬パルスを導入し、下流の吸光度セルにて信号を取得する。初期の流路抵抗から予め想定される到達時間に対する遅れを検出して、その時点での圧力/流量係数を求め流動状態の推定に利用するものである。また試料中ミネラル分の前除去を目的に、イオン交換樹脂詰め透水パックを備えたタンクユニット(図 20(b))を考案・試作、除去性能を確認した(硬度 300 $\rightarrow$ 30、15 分)。

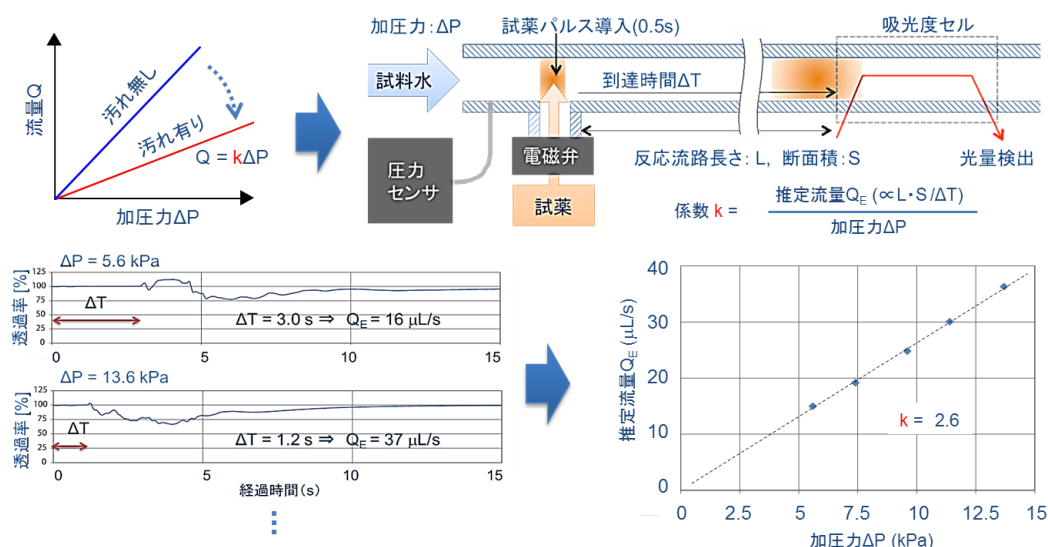


図30. 試薬パルス導入による流量パラメータその場検定方式



フィールド設置時の他の課題として、水道水を長時間、モニタ内に通水した場合、水道水中に溶存するガスが吸光度セル等に残留して、吸光度信号のベースラインを大きく変動させるという課題が顕在化した。そのため、図31に示すように、白色 LED を用いた時間分解多波長測光・リアルタイム光量補正法を新たに考案した。同図左上に示すように通常、多波長測光には複雑な光学系を備え付ける必要がある。そこで、白色 LED の3色を別々に制御して、高速に切り替え、間欠発光を利用することで、疑似的に多波長測光を行うこととした。同図(b)に示すように、ベースラインが変動しても間隔をほぼ維持した光信号が得られていることが確認された。また本方法により、試薬を交換することで多種の水質項目に対応可能となるため、追加項目であるリン酸、硬度についても本方法を適用し、吸光度計測が可能であることを確認した。

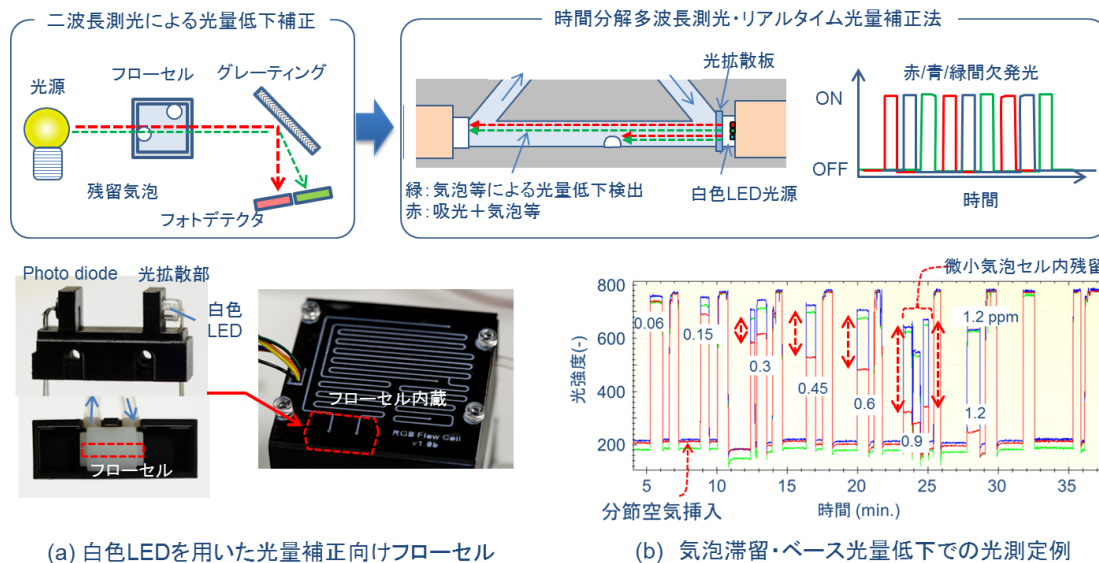


図31. 時間分解多波長測光・リアルタイム光量補正法

これらの対策を盛り込んだ通信系、水質モニタを3か所(内2か所水道供給箇所)の離れた位置に配置し、無線での水質測定と測定結果のホッピング情報伝達動作の評価を実施した(図32参照)。その結果、図32(b)に示すように、データを混在させることなく伝達可能であることを確認した。またリアルタイム光量補正方式などの対応策が有効性であることを確認した。

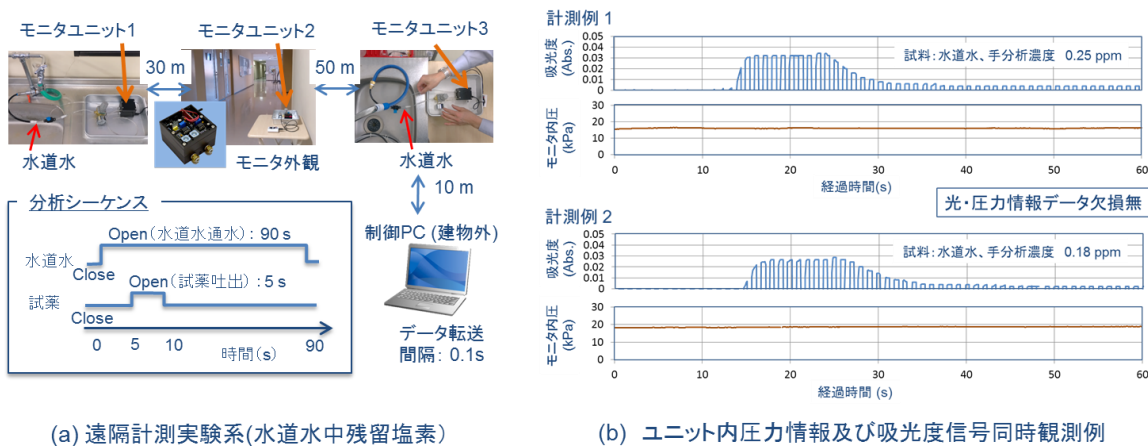


図32. マルチホップ無線・ポスト・ログ化通信方式による遠隔監視例

このほか水質計を遠隔に設置し、無人で稼働させた場合の諸課題の抽出と対応策の提案・実装を進めた。具体的には、気温の変化が激しい設置環境において、水質計ユニットのフローセル部に気泡が発生して、信号値が大きくばらつく現象が確認された。そこで図33に示すように、気泡除去動作条件(流動シーケンス及び添加試薬による濡れ性制御)を見出し、遠隔にて自動初期化操作が可能なプログラムを開発、水質計システムに組込んだ。

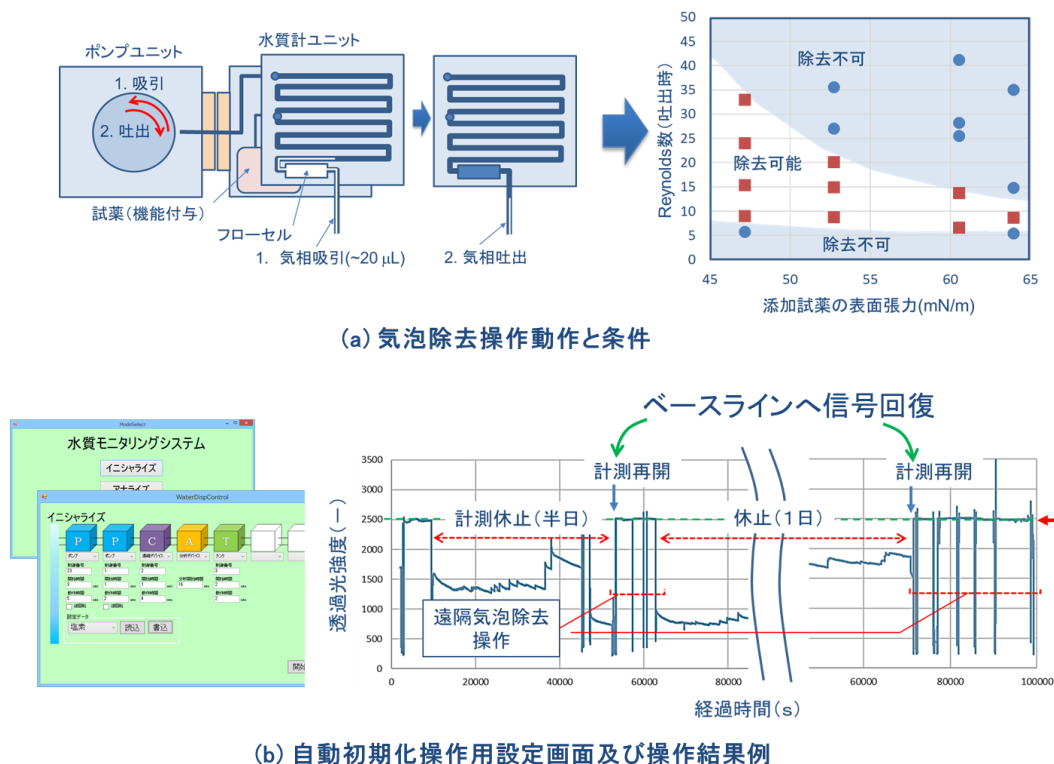


図33. 気泡除去操作条件と自動初期化操作例

## § 4. 成果発表等

### 1. 原著論文発表 (国内(和文)誌 2 件、国際(欧文)誌 37 件)

#### 1. 著者、論文タイトル、掲載誌 巻、号、発行年

1. R. Miyake, S. Okabe, H. Tsudome, Y. Endo., K. Mawatari, and T. Kitamori, Integration and installation of on-site water quality monitoring network, Proc. of Transducers 2011, Beijing, June 6, 2011(査読有)
2. Y. Takahata, K. Aritome, R. Miyake and Y. Murakami, Enhanced passive mixing in microfluidic droplet for the efficiency of a microbe counter, Proc. of ISMM 2011, Seoul, June 2, 2011(査読有)
3. K. Aritome, W. P. Bula, N. G. Dimov, P. Kurek, S. Schlautmann, Y. Takahata, Y. Murakami and R. Miyake, Mixing quantification in microfluidic droplets for the development of microbe counter, Proc. of ISMM 2011, Seoul, June 2, 2011(査読有)
4. T. Ishikawa, J. -S. Lee, and R. Miyake, Manipulation of dispersed magnetic beads for on-chip immunoassay, Proc. of SSDM 2011, Nagoya, September 15, 2011(査読有)
5. T. Ishikawa, J.-S. Lee, and R. Miyake, On-chip beads manipulation for immunoassay, Proc. of micro-TAS 2011, Seattle, October 2, 2011(査読有)

6. Y. Maekawa and R. Miyake, High-speed data acquisition system for micro-fluidic HILS, Proc. of ISMM 2012, Hsinchu, Taiwan, June 11, 2012(査読有)
7. K. Aritome, Y. Takahata, R. Miyake and Y. Murakami, Fin plate structure at the bottom of PDMS microchannel to enhance pressure durability without surface treatment, Proc. of ISMM 2012, Hsinchu, Taiwan, June 11, 2012(査読有)
8. W. P. Bula, Y. Murakami, H. J.G.E. Gardeniers and R. Miyake, Micromachined Evaporative Concentrator for Water Quality Monitoring Systems, Proc. of ISMM 2012, Hsinchu, Taiwan, June 11, 2012(査読有)
9. T. Sato and R. Miyake, Sheath-flow Forming by using Twisted Micro-channel, Proc. of MEMS 2013, Taipei, January 21, 2013(査読有)
10. N. Hanamori, K. Aritome, Y. Takahata and R. Miyake, Research for Bacteria Culture in Droplet, Proc. of ISMM 2013, Xiamen, China, May 19, 2013(査読有)
11. K. Aritome, W. P. Bula, K. Sakamoto, Y. Murakami and R. Miyake, Autonomous Compact Water Quality Monitor, Proc. of ISMM 2013, Xiamen, China, May 20, 2013(査読有)
12. W.P. Bula, Y. Takahata, K. Aritome, Y. Murakami, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid Technology (3D Additive Printing-Silico-Glass) Multiline Evaporative Concentrator for Water Quality Monitoring System, Proc. of ISMM 2013, Xiamen, China, May 18, 2013(査読有)
13. Y. Murakami, K. Araki, R. Ohashi, H. Honma, K. Takahashi, K. Sawada, and M. Ishida, MEMS MIXER AS AN EXAMPLE OF A NOVEL CONSTRUCTION METHOD OF MICROFLUIDICS BY DISCRETE MICROPARTS, Proc. of Transducers 2013, Barcelona, Spain, June 16, 2013(査読有)
14. W.P. Bula, Y. Takahata, K. Aritome, Y. Murakami, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid technology (3D additive printing-silicon-glass) multiline evaporative concentrator for water quality monitoring system, Proc. of Transducers 2013, Barcelona, Spain, June 16, 2013(査読有)
15. T. Taniguchi, Y. Amemiya, T. Ikeda, A. Kuroda, and S. Yokoyama, Fabrication and Evaluation of Differential Si Ring Optical Resonator for Biosensors, Extend. Abst. Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM2013), Tsukuba, September 8-11, 2013, 826-827. (査読有)
16. Katsuhiro Aritome, Wojciech Piotr Bula, Kenji Sakamoto, Yuji Murakami and Ryo Miyake, 3D printed microfluidic devices and reconfigurable analysis system, proc. of Micro TAS 2013, Freiburg, October 30, 2013, 1622-1624. (査読有)
17. K. Araki, R. Ohashi, H. Honma, N. Misawa, K. Takahashi, K. Sawada, M. Ishida, Y. Murakami, Slurry packing placement of MEMS microparts assisted with gel microcapsule, proc. of Micro TAS 2013, Freiburg, October 29, 2013, 793-795. (査読有)
18. Mitsuyoshi Tomida, Yuji Murakami, Nobuo Misawa, "FROG EGG-ARRAY DEVICE INTEGRATED WITH FLUIDIC CHANNEL AND MICROELECTRODES FOR CHEMICAL SENSING, proc. of MEMS 2014, San Francisco, January 26-30, 2014, 318-321. (査読有)
19. Mitsuyoshi Tomida, Yuji Murakami, Nobuo Misawa, "FROG EGG-ARRAY DEVICE INTEGRATED WITH FLUIDIC CHANNEL AND MICROELECTRODES FOR CHEMICAL SENSING, proc. of MEMS 2014, San Francisco, January 26-30, 2014, 318-321.(査読有)
20. 佐藤友美、三宅亮(2014) 振りマイクロ流路を用いたシースフロー形成、日本機械学会論文集、Vol. 80、No. 813. (DOI:10.1299/transjsme.2014mn0132)
21. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R. (2014) Hybrid technology continuous-flow concentrator for low temperature biological and chemical sample treatment, Proc. of the 24th Anniversary World Congress on Biosensors (Biosensors 2014), May 27-30, 2014, Melbourne, Australia, (査読有)
22. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R. (2014) Towards microfluidic sample processor: From evaporative concentrator to 3D printed microfluidic circuit board, Proc. of the 13th Int. Conf.

- on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014, pp. 114-115 (査読有)
23. Aritome, K., Bula, W. P., Miyake, R. (2014) 3D fabricated micro-reaction channel for miniaturized chemical analysis systems, Proc. of the 13th Int. Conf. on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014, pp. 164-165 (査読有)
  24. Miyake, R., Aritome, K., Bula, W.P., Asano, Y., Togashi, S. (2014) New measurement method by micro-fluidic circuit mirror model, Proc. of the 13<sup>th</sup> Int. Conf. on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014, pp. 200-201 (査読有)
  25. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R. (2014) Sample processor based on 3D printed microfluidic circuit board, Proc. of the 6th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2014), Jul 30 - Aug 1, 2014, Singapore, pp. 122-123 (査読有)
  26. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R. (2014) 3D printed microfluidic circuit board, Proc. of the 18th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2014), San Antonio, USA, Oct 26-30, 2014, pp.1524-1526 (査読有)
  27. Murakami, Y., Takesako, Y., Moriyama, K., araki, K., aritome, K., Miyake, R. (2014) Electrochemical titration device with pyramidal microfluidic network, Proc. of the Irago Conference 2014, Tsukuba, Nov. 6-7th, 2014, 7P-21, (査読有)
  28. Y. Murakami, K. Araki, R. Ohashi, H. Honma, N. Misawa, K. Takahashi, K. Sawada, M. Ishida (2014) MemS mixer as an example of a novel construction method of microfluidics by discrete microparts, Sensors and Actuators B, 194, 528-533 (DOI: 10.1016 / j.snb.2013.12.100)
  29. Aritome, K., Bula, W. P., and Miyake, R. (2015), Remote monitoring of water quality with multi-hop communication, Proc. of the the 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2015), June 8-10, 2015, Kyoto (査読有)
  30. Hanamori, N., Aritome, K. and Miyake, R. (2015), Impedance measurement of microdroplets with including yeast cells, Proc. of the the 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2015), June 8-10, 2015, Kyoto (査読有)
  31. Bula, W.P., Aritome, K. and Miyake, R. (2015), Low-cost modular microfluidic platform based on 3D printing technology, Proc. of the the 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2015), June 8-10, 2015, Kyoto (査読有)
  32. Asano, Y., Aritome, K., Sugano, O., Togashi, S., Ito, Y., and Miyake, R. (2015) Development of a Microdevice for Reduction of Nitrate ion, J. Chem. Eng. Jpn. (accepted)
  33. Higuchi, S., Kakimoto, H., Takesako, Y., Miyake, R., Murakami, Y., (2015) The flow channel width modification for balanced flow rate in a pyramidal microfluidic network chip, Proc. of the Irago Conference 2015, Tahara, Oct. 22-23rd, 2015, P19, (査読有)
  34. Sato, T., Miyake, R. (2015) Three dimensional hydrodynamic focusing by using flow cytometry cell with twisted micro-channel, Proc. of the 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, Oct 25-29, 2015 (査読有)
  35. Bula, W. P., Aritome, K. and Miyake, R. (2015) Low-cost microfluidic platform based on 3D printing technology, Proc. of the 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, Oct 25-29, 2015 (査読有)
  36. Bula, W. P., Aritome, K. and Miyake, R. (2015) 3D printing chemical analysis system for environmental monitoring, Proc. of the 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, Oct 25-29, 2015 (査読有)
  37. T. Taniguchi, A. Hirowatari, T. Ikeda, M. Fukuyama, Y. Amemiya, A. Kuroda, and S. Yokoyama, Detection of antibody-antigen reaction by silicon nitride slot-ring biosensors using protein G, Optics Communications 365 (2016) pp. 16-23 (査読有)
  38. T. Taniguchi, S. Yokoyama, Y. Amemiya, T. Ikeda, A. Kuroda, and S. Yokoyama, Differential Si Ring Resonators for Label Free Biosensing, Jpn. J. App. Phys. **55**, No. 4, (2016) pp. 04EM04-1-7 (査読有)
  39. 村上裕二、竹迫良紀、荒木慶太、PDMSマイクロ流路内壁へのディスクリート素子埋め込

## 2. その他の著作物(総説、書籍など)

1. 三宅亮、有留克洋、モデル化技術と3Dプリンタを活用したオーダーメイド型マイクロ化学システム、化学装置、21-24 頁、2015 年 3 月号
2. 三宅亮、W.P. Bula、富樫盛典、掌の上に化学プラント、クリーンテクノロジー、2015 年 11 月号
3. 三宅亮、3D プリンタを活用したオーダーメイド型マイクロ化学システム、クリーンテクノロジー、2015 年、11 月号
4. 横井浩人、渡辺忠雄、影弘達彦、陶山晃治、浅野由花子、田所秀之、水道の安全な運用に貢献する監視制御・情報処理システム、日立評論、Vol. 97, No. 08, pp442-443, 2015 年 8 月

## 3. 国際学会発表及び主要な国内学会発表

(1)招待講演 (国内会議 9 件、国際会議 4 件)

### 1.発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. T. ISHIKAWA, On-chip Immunoassay and Other Applications, International Workshop on Biomedical Sciences and Technologies, Chennai, March 2, 2011
2. R. Miyake, Integration and installation of micro-fluidic devices, International Symposium of Microchemistry and Microsystems 2011, Seoul, June 3, 2011
3. R. Miyake, Integration and installation of micro-fluidic devices on bio-medical equipment, Pittcon 2012, Orland, March 12, 2012
4. 三宅亮、オンサイト・オンデマンド向けマイクロ分析デバイス、平成 24 年度第 1 回医療福祉機器研究交流会、(公財) ちゅうごく産業創造センター、広島市、2012. 年 9 月 14 日
5. 三宅亮、マイクロ流体デバイス基礎と応用、情報機構技術セミナー、東京、2012 年 12 月
6. 三宅亮、マイクロ流体技術の魅力と実用化、農工大・多摩小金井ベンチャーポートセミナー、小金井市、2014 年 5 月 15 日
7. 三宅亮、チップの上に化学プラント、神奈川科学技術アカデミーGRENE 講座、川崎市、2014 年 12 月 16 日
8. 三宅亮、応用事例に学ぶマイクロ流路の科学とものづくり、川崎市主催ナノ茶論、川崎市、2014 年 12 月 18 日
9. 三宅亮、立体化するマイクロ流路とその応用、新化学技術推進協会電子情報技術部会・マイクロナノシステムと材料・加工分科会講演会、東京、2015 年 2 月 12 日
10. 三宅亮、W. P. Bula、有留克洋、モデルベースによるマイクロ流体回路設計技術と小型水質計への応用、日本生物工学会大会、鹿児島市、2015 年 10 月 28 日
11. Miyake, Low cost monitoring network of water quality using 3D-printing based analyzers, Int. Workshop on Sea-on-a-chip, Peking Univ. and Nanyang Tech. Univ., Beijing, October 29-30, 2015
12. 三宅亮、チップ上に化学プラント、神奈川科学技術アカデミーGRENE 講座、川崎市、2015 年 12 月 1 日
13. 三宅亮、オンサイト水質モニタ～環境化学 IoT に向けた取り組み～川崎市ナノ・マイクロ技術支援講座、川崎市新産業創造センター、2016 年 2 月 25 日

(2)口頭発表 (国内会議 24 件、国際会議 10 件)

### 1.発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. 村上裕二、高畑祐人、有留克洋、笠間敏博、三宅亮マイクロ流路屈曲部における液滴内流動状態、日本化学会 91 春季年会、横浜、2011 年 3 月 26 日
2. 有留克洋、高畑祐人、石川智弘、村上裕二、三宅亮、微生物カウンタ開発に向けた生化学発

- 光液滴カウンタ、第 28 回センサマイクロマシンと応用システムシンポジウム、東京、2011 年 9 月 27 日
3. 高畑祐人、Wojciech P. Bula、Stefan Schlautmann、Sreenath Karivent、有留克洋、石川智弘、村上裕二、Han Gardeniers、三宅 亮、微生物検査装置用疎水溝型マイクロ濃縮器、電気学会全国大会、広島、2012 年 3 月 22 日
  4. 有留克洋、高畑祐人、三宅 亮、村上裕二、微生物カウンタ開発のための液滴形成の安定化と液滴内反応の高効率化、電気学会全国大会、広島、2012 年 3 月 22 日
  5. 佐藤友美、三宅亮、振じりマイクロ流路によるシーフロー形成、日本機械学会第 4 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012 年 10 月 24 日
  6. 浅野由花子、中原和貴、有留克洋、富樫盛典、伊東禪、三宅亮、硝酸イオンのマイクロ還元システムの開発、化学工学会第 78 年会、豊中市、2013 年 3 月 19 日
  7. 有留克洋、Wojciech Piotr Bula、坂本憲児、村上裕二、三宅亮、無給電・遠隔制御小型水質モニタの開発、平成 25 年 電気学会全国大会、名古屋、2013 年 3 月 20 日
  8. 前川祐介、三宅亮、マイクロ流体デバイス対応ハイブリッドシミュレーション技術の開発、電気学会全国大会、名古屋、2013 年 3 月 22 日
  9. K. Aritome, W. P. Bula, K. Sakamoto, Y. Murakami and R. Miyake, Autonomous Compact Water Quality Monitor, ISMM 2013, Xiamen, China, May 20, 2013
  10. W.P. Bula, Y. Takahata, K. Aritome, Y. Murakami, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid Technology (3D Additive Printing-Silico-Glass) Multiline Evaporative Concentrator for Water Quality Monitoring System, ISMM 2013, Xiamen, China, May 18, 2013
  11. T. Taniguchi, Y. Amemiya, T. Ikeda, A. Kuroda, and S. Yokoyama, Fabrication and Evaluation of Differential Si Ring Optical Resonator for Biosensors, Extend. Abst. Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM2013), Tsukuba, September 8-11, 2013, 826-827.
  12. 谷口智哉、雨宮嘉照、池田丈、黒田章夫、横山新、差動 Si リング光共振器を用いた流路付加バイオセンサー、2013 年第 74 回応用物理学会秋期学術講演会、16p-C4-12、京都、2013 年 9 月 16 日
  13. 有留克洋、W.P. Bula、村上裕二、坂本憲児、三宅亮、Plug&Flow 型水質モニタによる残留塩素の遠隔連続計測、日本機械学会第 5 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、仙台、2013 年 11 月 7 日
  14. 荒木慶太、大橋亮太、本間浩章、高橋一浩、澤田和明、石田誠、村上裕二、微小ゲルカプセルを用いた MEMS 構造物のスラリー充填配置、第 30 回センサ・マイクロマシンと応用システムシンポジウム、仙台、2013 年 11 月 6 日
  15. 三宅亮、有留克洋、モジュラー型分析システムの開発、電気学会電子回路研究会、川崎、2013 年 11 月 22 日
  16. W.P. Bula, K. Aritome, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid Technology (3D Additive Printing-Silico-Glass) Multiline Evaporative Concentrator for Water Quality Monitoring System, 電気学会電子回路研究会、川崎、2013 年 11 月 22 日
  17. 村上裕二、森山一穂、富田充祥、荒木慶太、有留克洋、三宅亮、トーナメント型流路を用いた連続電気化学滴定用マイクロ化学チップ、日本化学会 第 94 春季年会、2E2-05A、名古屋大学、名古屋、2014 年 3 月 27-30 日
  18. 谷口智哉、雨宮嘉照、池田丈、黒田章夫、横山新、差動 Si リング光共振器を用いた流路付加バイオセンサー、2014 年第 61 回応用物理学会春期学術講演会、19p-E15-11、青山学院大学、相模原市、2014 年 3 月 19 日
  19. 村上裕二、森山一穂、荒木慶太、富田充祥、有留克洋、三宅亮、トーナメント型連続滴定マイクロ化学チップ、電気学会 E 部門総合研究会、東京大学生産技術研究所、2014 年 5 月 27-28 日
  20. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R., Towards microfluidic sample processor: From evaporative concentrator to 3D printed microfluidic circuit board, 13th Int. Conf. on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014
  21. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R., Sample processor based on 3D printed microfluidic

- circuit board, 6th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2014), Singapore, Jul. 30 - Aug 1, 2014
22. 村上裕二、荒木慶太、竹迫良紀、トーナメント型マイクロ流路を用いた電気化学滴定デバイス、日本化学会第8回バイオ関連化学シンポジウム、岡山大学、2014年9月11-12日
  23. 荒木慶太、村上裕二、PDMS マイクロ流路内壁への LSI チップ埋め込み、電気学会第31回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム、松江市くにびきメッセ、2014年10月20-22日
  24. T. Taniguchi, Y. Amemiya, T. Ikeda, A. Kuroda, and S. Yokoyama, Differential Si Ring-Resonator Biosensors Robust to Process Variations, 11th Int. Conf. on Group IV Photonics, Paris, August 28, 2014
  25. Murakami, Y., Takesako, Y., Moriyama, K., araki, K., aritome, K., Miyake, R., Electrochemical titration device with pyramidal microfluidic network, The Irago Conference 2014, Tsukuba, Nov. 6-7, 2014
  26. 浅野由花子、有留克洋、菅野修、富樫盛典、伊東禪、三宅亮、硝酸イオンのマイクロ還元システムの開発、化学工学会第80年会、芝浦工業大学、2015年3月20日
  27. 村上裕二、竹迫良紀、荒木慶太、三澤宣雄、トーナメント型連続電気滴定マイクロ化学チップの開発、平成27年電気学会全国大会、東京都市大学、2015年3月24-26日
  28. Aritome, K., Bula, W. P., and Miyake, R., Remote monitoring of water quality with multi-hop communication, The 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2015), Kyoto, June 8, 2015
  29. T. Taniguchi, Shu. Yokoyama, Y. Amemiya, T. Ikeda, A. Kuroda, and Shin Yokoyama, Biosensing by Differential Si Ring Resonators Robust to Process Variations, Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM2015), Sapporo, September 29, 2015.
  30. Bula, W. P., Aritome, K. and Miyake, R., 3D printing chemical analysis system for enviromental monitoring, The 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, October 29, 2015
  31. 柿本紘希、樋口俊一、竹迫良紀、三宅 亮、村上裕二、流量補正したトーナメント型連続電気滴定マイクロ化学チップ、電気学会第32回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム、朱鷺メッセ、2015年10月28-30日
  32. 浅野由花子、菅野修、遠藤喜重、富樫盛典、三宅亮、オンサイト水質検査装置向け硝酸イオン還元システムの開発、化学工学会第81年会、関西大学、2016年3月15日
  33. 柿本紘希、樋口俊一、竹迫良紀、村上裕二、三宅 亮、8分岐トーナメント型流路を用いた小型電気化学滴定装置の開発、平成28年電気学会全国大会、東北大学、2016年3月16-18日
  34. 村上裕二、樋口峻一、小山恵里、竹迫良紀、柿本紘希、三宅亮、トーナメント型滴定チップの送液圧力変動評価、同志社大学、2016年3月24-27日

(3)ポスター発表 (国内会議 28 件、国際会議 21 件)

1.発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. 高畑祐人、有留克洋、笠間敏博、坂本憲児、石川智弘、三宅亮、村上裕二(2010)流路中のマイクロ流路液滴内流動解析、第22回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、651.
2. 三宅亮、岡部修吾、津留英一、遠藤喜重、馬渡和真、北森武彦、モデルベース解析手法によるマイクロ流体回路内の試料・試薬拡散の予測、日本機械学会第3回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、東京、2011年9月27日
3. 有留克洋、W. P. Bula, N. G. Dimov, P. Kurek, S. Schlautmann, 高畑祐人、村上裕二、J. G. E. Gardeniers, 三宅亮、微生物カウンタ開発に向けたマイクロ液滴内混合解析法、第23回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、千葉、2011年6月10日
4. 高畑祐人、有留克洋、三宅亮、村上裕二、微生物カウンタ高効率に向けたマイクロ液滴内混合促進形状、第23回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、千葉、2011年6月10日有留克洋 高畑祐人 村上裕二 三宅亮(2011)、微生物カウンタ開発に向けたルシフェラー

- ゼ発光液滴の形成、第24回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、大阪、2011年11月17日
5. 浅野由花子、坂本憲児、遠藤喜重、村上裕二、富樫盛典、三宅亮、硝酸・亜硝酸窒素還元マイクロチップの開発、第24回科学とマイクロ・ナノシステム研究会、大阪、2011年11月17日
  6. Y. Murakami, K. Aritome, Y. Takahata, W. P. Bula, N. G. Dimov, P. Kurek, S. Schlautmann, J. G. E. Gardeniers and R. Miyake, Quantification and Passive Enhancement of Mixing in a Microfluidic Droplet, International Workshop on Micro/Nano-Engineering (MNM2011), Kyoto, November 18, 2011
  7. 有留克洋、高畑祐人、村上裕二、三宅亮、微生物カウンタ開発に向けた液滴カウンタ、第25回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、熊本市、2012年5月18日
  8. 有留克洋、Wojciech Piotr Bula、三宅亮、LEGO マインドストームを利用した小型化学分析システムの遠隔制御・監視技術、日本機械学会マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012年10月24日
  9. 有留克洋、坂本憲児、村上裕二、三宅亮、小型化学分析システム用 Plug & Flow プラットフォームの開発、日本機械学会マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012年10月24日
  10. 花森信行、有留克洋、高畑祐人、三宅亮、マイクロ液滴内での大腸菌培養の観測、日本機械学会マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012年10月24日
  11. 中原和貴、有留克洋、浅野由花子、富樫盛典、村上裕二、坂本憲児、三宅亮、硝酸性窒素還元用マイクロカラムの試作、日本機械学会マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012年10月24日
  12. 三宅亮、有留克洋、モデルベース解析とカルマンフィルタによる小型化学分析システムの動作推定、日本機械学会マイクロ・ナノ工学シンポジウム、北九州市、2012年10月24日
  13. Wojciech Piotr Bula、三宅亮、モデルベースによる水循環系スマート水質モニタリング網構築技術の開発、MEMS Engineer Forum 2013、東京、2013年3月13日
  14. K. Aritome, Y. Maekawa, R. Miyake, H. Tsudome, and Y. Endo, Model-based design technique and hybrid simulator for miniaturized water quality monitors, *IWNT 2013*, Higashi Hiroshima, March 5, 2013
  15. K. Aritome, W. P. Bula, K. Sakamoto, Y. Murakami and R. Miyake, Autonomous compact water quality monitor, *IWNT 2013*, Higashi Hiroshima, March 5, 2013
  16. T. Sato and R. Miyake, Sheath-flow forming by using twisted micro-channel, *IWNT 2013*, Higashi Hiroshima, March 5, 2013
  17. 有留克洋、Wojciech Piotr Bula、三宅亮、3D プリントによるマイクロ流路迅速試作法、第27回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、仙台市、2013年5月24日
  18. 荒木慶太、大橋亮太、本間浩章、高橋一浩、澤田和明、石田誠、村上裕二、ディスプレイ型シリコン MEMS ミキサの製作と評価、第27回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、仙台、2013年5月24日
  19. N. Hanamori, K. Aritome, Y. Takahata and R. Miyake, Research for Bacteria Culture in Droplet, ISMM 2013, Xiamen, China, May 19, 2013
  20. W.P. Bula, Y. Takahata, K. Aritome, Y. Murakami, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid Technology (3D Additive Printing-Silico-Glass) Multiline Evaporative Concentrator for Water Quality Monitoring System, ISMM 2013, Xiamen, China, May 18, 2013
  21. Y. Murakami, K. Araki, R. Ohashi, H. Honma, K. Takahashi, K. Sawada, and M. Ishida, MEMS MIXER AS AN EXAMPLE OF A NOVEL CONSTRUCTION METHOD OF MICROFLUIDICS BY DISCRETE MICROPARTS, Transducers 2013, Barcelona, Spain, June 16, 2013
  22. W.P. Bula, Y. Takahata, K. Aritome, Y. Murakami, J.G.E. Gardeniers, and R. Miyake, Hybrid technology (3D additive printing-silicon-glass) multiline evaporative concentrator for water quality monitoring system, Transducers 2013, Barcelona, Spain, June 16, 2013
  23. Katsuhiko Aritome, Wojciech Piotr Bula, Kenji Sakamoto, Yuji Murakami and Ryo Miyake, 3D printed microfluidic devices and reconfigurable analysis system, Micro TAS 2013,



- Freiburg, October 30, 2013
24. K. Araki, R. Ohashi, H. Honma, N. Misawa, K. Takahashi, K. Sawada, M. Ishida, Y. Murakami, Slurry packing placement of MEMS microparts assisted with gel microcapsule, Micro TAS 2013, Freiburg, October 29, 2013
  25. 有留克洋、W.P. Bula、三宅亮、レーザーカッターを使用したマイクロ流路の製作、第 28 回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、姫路、2013 年 12 月 6 日
  26. 荒木慶太、大橋亮太、本間浩章、三澤宣雄、高橋一浩、澤田和明、石田誠、村上裕二、ゲル包埋によるディスクリート型 MEMS 機能構造体の充填法、第 28 回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、姫路、2013 年 12 月 5 日
  27. Mitsuyoshi Tomida, Yuji Murakami, Nobuo Misawa, "FROG EGG-ARRAY DEVICCE INTEGRATED WITH FLUIDIC CHANNEL AND MICROELECTRODES FOR CHEMICAL SENSING, MEMS 2014, San Francisco, January 26-30, 2014
  28. Bula, W.P., Aritome, K., Gardeniers, H. J. G. E., Miyake, R., Towards microfluidic sample processor: from evaporative concentrator to 3D-printed microfluidic circuit board, MEMS Engineer forum, Ryogoku KFC hall, April 24-25, 2014
  29. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R., Hybrid technology continuous-flow concentrator for low temperature biological and chemical sample treatment, 24th Anniversary World Congress on Biosensors (Biosensors 2014), Melbourne, Australia, May 27-30, 2014
  30. Aritome, K., Bula, W. P., Miyake, R., 3D fabricated micro-reaction channel for miniaturized chemical analysis systems, 13th Int. Conf. on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014
  31. Miyake, R., Aritome, K., Bula, W.P., Asano, Y., Togashi, S., New measurement method by micro-fluidic circuit mirror model, 13th Int. Conf. on Microreaction Technology (IMRET-13), Budapest, Hungary, Jun 23-25, 2014
  32. Aritome, K., Miyake, R., Bula, W.P., Asano, Y., Togashi, S., Water quality monitor cooperated with system mirror model, 6th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems (ISMM 2014), Singapore, Jul 30 - Aug 1, 2014
  33. 横山脩平、谷口智哉、雨宮嘉照、池田丈、黒田章夫、横山新、差動 Si リング光共振器センサーによるショ糖濃度の測定、2014 年第 75 回応用物理学会秋期学術講演会、18a-PA2-13, 北海道大学、札幌市、2014 年 9 月 18 日
  34. 荒木慶太、竹迫良紀、村上裕二、トーナメント型流路とディスクリート型 MEMS ミキサを用いた電気化学連続滴定、第 30 回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、北海道大学、2014 年 10 月 2-3 日
  35. 有留克洋、Wojciech Piotr Bula、三宅亮、試薬反応パルス到達時間計測によるマイクロ分析流路の圧力/流量その場検定、第 30 回化学とマイクロ・ナノシステム学会、北海道大学、2014 年 10 月 2-3 日
  36. 花森信行、有留克洋、三宅亮、微生物を含んだマイクロ液滴の電気抵抗測定、第 30 回化学とマイクロ・ナノシステム学会、北海道大学、2014 年 10 月 2-3 日
  37. Bula, W.P., Aritome, K., Miyake, R., 3D printed microfluidic circuit board, 18th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2014), San Antonio, USA, Oct 26-30, 2014
  38. 佐藤友美、三宅亮、振りフローサイトメトリーチップによる細胞検出、日本機械学会第 6 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、松江市くにびきメッセ、2014 年 10 月 20-22 日
  39. 横山脩平、谷口智哉、雨宮嘉照、池田丈、黒田章夫、横山新、差動 Si リング光共振器センサーの温度特性、2015 年第 62 回応用物理学会春期学術講演会、12a-P11-21, 東海大学、相模原市、2015 年 3 月 12 日
  40. Hanamori, N., Aritome, K. and Miyake, R.,(2015), Impedance measurement of microdroplets with including yeast cells, The 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems(ISMM 2015), June 8-10, 2015, Kyoto
  41. Bula, W.P., Aritome, K. and Miyake, R.,(2015), Low-cost modular microfluidic platform based on 3D printing technology, The 7th Int. Symposium on Microchemistry and Microsystems(ISMM 2015), June 8-10, 2015, Kyoto(査読有)

42. 谷口智哉, 横山脩平, 雨宮嘉照, 池田丈, 黒田章夫, 横山新, 感度ばらつきを抑制した集積化差動Siリングバイオセンサー, 2015年第76回応用物理学会秋期学術講演会, 13p-PB5-8, 名古屋国際会議場、名古屋市、2015年9月13日
43. Higuchi, S., Kakimoto, H., Takesako, Y., Miyake, R., Murakami, Y., (2015) The flow channel width modification for balanced flow rate in a pyramidal microfluidic network chip, Irigo Conference 2015, Tahara, Oct. 22-23rd, 2015
44. Sato, T., Miyake, R. (2015) Three dimensional hydrodynamic focusing by using flow cytometry cell with twisted micro-channel, The 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, Oct 25-29, 2015
45. Bula, W. P., Aritome, K. and Miyake, R., Low-cost microfluidic platform based on 3D printing technology, The 19th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS 2015), Gyeongju, KOREA, Oct 25-29, 2015
46. 佐藤友美、三宅亮、折りフローサイトメトリーチップを搭載した小型分析システムの開発、日本機械学会第7回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、新潟市朱鷺メッセ、2015年10月28-30日
47. 渡辺彬、遠藤喜重、三宅亮、折り紙構造を持つ微量試薬供給デバイスの開発、第32回化学とマイクロ・ナノシステム学会、北九州国際会議場、2015年11月26-27日
48. 竹迫良紀、樋口竣一、小山恵里、柿本紘希、三宅亮、村上裕二、定圧送液によるトーナメント型連続電気化学滴定、第32回化学とマイクロ・ナノシステム研究会、北九州国際会議場、2015年11月26-27日
49. 横山脩平, 谷口智哉, 雨宮嘉照, 池田丈, 黒田章夫, 横山新, 差動Siリング光共振器センサー温度特性のばらつき評価, 2016年第63回応用物理学会春期学術講演会, 20p-P12-8, 東京工業大学、東京都、2016年3月20日

#### 4. 知財出願

##### (1) 国内出願 (5 件)

- ① 微生物検出装置、村上裕二、三宅亮他1名、2011、特願 2011-249302
- ② モデル化方法、解析方法及びプログラム、三宅亮、2012、特願 2012-007515
- ③ 遠隔計測システム、三宅亮他2名、2012、特願 2012-008263
- ④ 分析用チップ、分析装置及び分析方法、三宅亮他1名、2012、特願 2012-226213
- ⑤ 遠隔計測システム、三宅亮、2012、特願 2012-226422

##### (2) 海外出願 (0 件)

##### (3) プログラムの著作物

特になし(モデルベース型開発環境については使い勝手を向上させた後、リリース予定)

##### (4) データベースの著作物

特になし

#### 5. 受賞・報道等

##### (1) 受賞

1. Cheminas ポスター賞、試薬反応パルス到達時間計測によるマイクロ分析流路の圧力/流量その場検定、有留克洋、三宅亮、2014年10月3日
2. ISMM Royal Society of Chemistry Poster Award, Low-Cost Modular Microfluidic Platform Based on 3D Printing Technology, W. P. Bula, K. Aritome, R. Miyake, June 10, 2015

##### (2) マスコミ(新聞・TV等)報道

1. 平成 23 年 9 月 29 日、日本水道新聞第2部特集記事に研究概要について掲載
2. 平成 23 年 9 月 29 日、水道産業新聞第2部特集記事に研究概要について掲載
3. 平成 25 年 1 月 30 日、日本水道新聞社「モデルベースによる水循環系スマート水質モニタリング網構築技術の開発」
4. 平成 26 年 3 月 3 日、水道産業新聞「CREST 三宅チーム モデルベースで水質モニタ構築、シンポジウム開く」
5. 平成 26 年 3 月 3 日、日本水道新聞「CREST 三宅チーム モデルベースで水質モニタ構築、シンポジウム開く」

(3)その他  
特になし

## 6. 成果展開事例

### (1)実用化に向けての展開

・本研究で開発したモデルベース型開発環境について、セミナー（神奈川科学技術アカデミー等）などで、研究者、学生にたいして紹介・指導を行っている。

(2)社会還元的な展開活動  
特になし

### (3)他分野への波及効果

本研究で得られたモデルベース開発環境は、水質モニタあるいは水質モニタリング網のみならず、今後、更なる高速化、小型化が進む医療用検体検査装置やバイオ関連分析装置の設計・開発にも有用である。更に本研究で開発した多点のモニタ機器の制御・情報取得方法（IT ネットワークとマルチホップ無線方式、ポスログ化通信方式）や無給電化の工夫など、今後 IoT が本格化する中で、応用性の高い技術を提供するものとする。

## § 5. 研究期間中の活動

### 1. 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2010 年 12 月 3 日	研究ヒアリング	静岡県立大学環境科学 研 究 所 (国包先生)	2 人	水質測定対象に関する調査
2010 年 12 月 8 日	研究ヒアリング	京都大学工 学 研 究 科 (津野先生)	2 人	水質測定対象に関する調査
2010 年 12 月 10 日	研究ヒアリング	荏原エンジ ニアリング (宮室長)	2 人	水質測定対象に関する調査
2011 年 2 月 14 日	オランダ視察団への 技術紹介	広島大学ナ ノデバイス・ バイオ融合 科学研究所 内	10 人	オランダナノテク関係者への 技術紹介(含 CREST 内容)

2011 年 3 月 7,8 日	MEMSEngineer forum	東京大田区 産業プラザ	約 200 人	マイクロ流体研究 (CREST 内容) のポスター展示
2011 年 8 月 31 日	サイトビジット	広島大学ナ ノデバイス・ バイオ融合 科学研究所	11 人	現 地 視 察 及 び 全 体 進 捗 報告、審議
2011 年 11 月 2 日	見学会	ナノデバイ ス&マイクロ 流体デバイ スラボ	10 人	CREST 研究内容の関連分 野企業幹部への紹介
2011 年 12 月 9 日	第1回放射光・ナノデバ イス科学シンポジウム	広 島 大 学 学 士 会 館 ホール	50 人	広島大学放射光科学研究 センターとの合同シンポジウ ムにおいて CREST 研究に ついて紹介
2011 年 12 月 22 日	研究ヒアリング	北海道大学 工学研究科	2 人	浄化装置におけるモニタリ ングニーズの調査
2012 年 4 月 18 日	モニタリング現場見学及 びニーズ調査研究(1)	東京都水道 局朝霞浄水 場・水 質 センター	12 人	浄水場及び水質管理現場 でのモニタリングニーズの調 査
2012 年 10 月 2 日	モニタリング現場見学及 びニーズ調査研究(2)	岡山市水道 局三野浄水 場水質試験 所	6 人	水質管理現場でのモニタリ ングニーズの調査
2012 年 10 月 3 日	モニタリング現場見学及 びニーズ調査研究(3)	広島市水道 局本局	10 人	水質管理現場でのモニタリ ングニーズの調査
2012 年 12 月 18 日	モニタリング現場見学及 びニーズ調査研究(4)	シンガポー ル PUB/Wate rHUB & NEDO 水 処理実験施 設	8 人	水質管理現場でのモニタリ ングニーズの調査
2013 年 1 月 29 日	三宅チーム第 1 回公開 シンポジウム	東 京 神 田 ア ー バ ン ネッ ト 神 田 カンファレン ス	50 人	水 質 関 連 招 待 講 演 及 び 三宅チームの研究紹介
2013 年 3 月 1 日	(公財)ひろしま産業振 興機構研究室訪問事業	広島大学	40 人	水質モニタ等 CREST 研究 内容の紹介
2013 年 3 月 5 日	研究所国際シンポジウ ム	広 島 大 学 サ タ ケ ホ ー ル	150 人	CREST 研究内容の紹介
2013 年 3 月 13、14 日	MEMS        Engineer forum	東 京 両 国 KFC ホ ー ル	約 300 人	CREST 研究内容の紹介

2014 年 7/ 2、8/1、6、 9/2	World lecture series on Micro/Nanofluidics	新川崎創造 の森(川崎 市)	186 人	学術交流
2015 年 4 月 20～21 日	<b>MEMS          Engineer forum</b>	東 京 両 国 <b>KFC</b> ホール	約 300 人	<b>CREST</b> 研究内容の紹介
2016 年 2 月 17 日	モニタリング現場見学及 びニーズ調査研究	東京都水研 修・開 発 センター	6 人	水質管理現場でのモニタ リングニーズの調査
2016 年 2 月 24 日	三宅チーム第 2 回公開 シンポジウム	東 京 品 川 イ ン タ ー シ テ ィ	40 人	水質関連招待講演及び 三宅チームの研究紹介