

氏 名	なが さわ ひで はる 長 澤 英 治
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	工 博 第 2829 号
学位授与の日付	平 成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 化 学 工 学 専 攻
学位論文題目	マイクロ空間を利用した微粒子形成反応の精密操作法に関する研究

論文調査委員 (主 査)
教授 前 一 廣 教授 吉 田 潤 一 教授 長 谷 部 伸 治

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、微粒子の厳密設計を行うためのマイクロリアクターの開発とその厳密反応操作の方法論を確立することを目的とした研究の成果をまとめたものであり、4章、緒論、総括より成っている。

緒論では、幅広い応用分野が期待できる微粒子に求められる特性を整理し、その特性を得るための方向性、既往の研究状況と課題を抽出している。一方、マイクロリアクターの特長を既往の研究の整理からまとめ、上記課題を解決するための手段としての可能性を言及している、この考察に基づき、マイクロリアクターにおける2つの混合形態、つまり界面制御接触および強制接触のそれぞれに基づいたマイクロリアクターの開発、それらによる微粒子形成能力に関する有効性の検証と微粒子形成メカニズム解明、さらに有機顔料微粒子製造の工業化可能性検証を本研究の目的として明確にしている。

第1章では、界面制御接触混合型の同心軸2重円管型マイクロリアクターを製作し、チタニア微粒子形成のモデル反応により微粒子形成分布の定量的評価を行っている。本マイクロリアクターにおける各操作条件パラメーター（平均滞留時間、TTIP濃度、H₂O濃度）とチタニア微粒子のサイズおよび分布との関係からチタニア微粒子形成メカニズムを提案し、それに基づくシミュレーションモデルを考案、その妥当性を検証している。次に、このモデルを用いて核形成領域を算出し、形成される粒子数は導入される反応溶液の濃度が一定の場合、その流量によらず単位体積当りで一定であること、核形成は各反応溶液の合流点直後から起こり、マイクロ流路上流で完了すること、核形成領域は反応溶液の平均線速度によらずTTIP濃度の増加に伴い下流まで伸びることを明らかにしている。以上、これまで推定困難であった核形成領域とその領域内での粒子発生頻度分布、そして粒子成長過程の挙動を予測する方法を確立している。

第2章では、精緻混合操作を特徴とする同心軸5層円筒型マイクロリアクターを製作し、モデル反応として反応速度が速く微粒子形状特性の制御が難しいハロゲン化銀微粒子形成と炭酸カルシウム微粒子形成を取り上げ、微粒子形成反応の精密操作法を検討している。同心軸5層円筒構造により形成される年輪状の5層環状セグメント流において、マイクロリアクター壁面に接する最内層および最外層の2つのキャリアセグメントは微粒子の壁付着を防止することを示している。次に、微粒子サイズ制御の反応操作法について検討し、同心軸5層円筒型マイクロリアクターは、従来のバッチ法によるそれと比較して小サイズの微粒子形成ができ、核形成と成長の分離が可能な操作性の良い反応装置であることを明らかにするとともに、本マイクロリアクターにおける微粒子形成メカニズムを、溶解度積、中間層、セグメント幅のパラメーターをもとにした精密操作法を提示している。

第3章では、迅速混合が特徴の強制接触混合形態の中心衝突型マイクロリアクター（KMリアクター）を開発している。均相系の高速度反応と不均相系のポリスチレン微粒子の析出反応の混合実験から、開発したマイクロリアクターが既往のマイクロミキサーと比較して非常に優れた混合性能を有すること、高処理流量、高範囲な非等量混合そして連続安定微粒子製造が可能であることを示している。さらに、これらの結果をもとに、マイクロ混合のコンセプトを明確にしている。

第4章では、第3章で小サイズ・単分散な微粒子形成ができることが示されたKMミキサーの実際の微粒子製造への応

用の可能性として、有機顔料微粒子製造への応用を検討した。KMリアクターを用いて沈殿法（pH変換共沈法）という新しい顔料分散液製造法を開発し、マゼンタ系顔料PR-122およびイエロー系顔料PY-128の微粒子製造を試みている。どちらの顔料微粒子形成においても、従来法のバッチリアクターよりも小サイズの20 nmの単分散な微粒子が得られることがわかり、KMリアクターは従来法に対して優位性があることが示された。これらの知見をもとに、有機顔料微粒子の量産化の検討も実施し、200 mL min⁻¹の流量条件（年間生産量が約60トンに相当）で所望の小サイズ単分散で透明な1wt%の有機顔料微粒子分散液を連続で安定的に製造できることを実証している。

最後に、本論文で得られた成果や今後の展望について総括している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、新規マイクロリアクターの開発と操作法の確立という視点で、2つの混合形態、界面制御接触および強制接触を意図したマイクロリアクターをそれぞれ考案し、開発したマイクロリアクターの混合特性、微粒子形成能力を検証するとともに実生産プロセスへの適用性を検討することにより、マイクロリアクターによる厳密反応操作の方法論を確立することを目的とした研究の成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 界面制御接触混合形態の同心軸2重円管型マイクロリアクターを用いてチタニア微粒子形成を行い、微粒子形成分布の定量的評価を行った。そして、開発したマイクロリアクターにおけるチタニア微粒子形成の反応メカニズムを明らかにするとともに、核形成領域の推定モデルを提案し、微粒子サイズ精密制御の操作論を明らかにした。
2. 1)を発展させて、界面制御接触型の同心軸多層円筒型のマイクロリアクターを開発し、精緻混合操作で微粒子形成反応の精密操作法について検討した。その結果、目詰まり防止および微粒子サイズ制御が可能であること、実生産に適用可能な連続製造安定性と高処理流量を有していることを示した。
3. 強制接触型の対流渦を利用した中心衝突型マイクロリアクターを開発し、均相系及び不均相系の混合実験から、従来のマイクロリアクターと比較して、迅速混合性能が優れていることを示した。
4. 上記マイクロリアクターの実際の製造への応用として、有機顔料微粒子製造するマイクロリアクターシステムを検討し、小サイズ単分散で透明なイエロー系顔料液を連続で安定的に製造できることを示した。これより、開発したマイクロリアクターは実際の工業反応操作に利用できることを明らかにした。

以上、本論文は、厳密な微粒子設計に対して、これまでのマクロな化学工学では取り扱えなかった新しい生産・操作手法を提示し、核生成、粒子成長過程の制御をモデル構築から実生産検証に至るまで数値計算、実験の両面から明らかにするなど、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。また、平成19年2月20日、論文内容とそれに関連した事項についての試問を行った結果、合格と認めた。