

京都大学	博士 (工学)	氏名	松澤 光宏
論文題目	フロー処理型マイクロ波化学反応装置の開発とマイクロ波効果の検証		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、フロー処理型マイクロ波化学反応装置の開発とマイクロ波が反応に与える効果についてまとめたもので、5章で構成される。</p> <p>第1章は序論であり、マイクロ波を化学反応に応用した既往の研究例をまとめている。ここでは、これまでマイクロ波を化学反応に利用することで、反応時間の著しい短縮、収率の向上、選択性の向上などの様々な有用な効果が報告されているものの、なぜマイクロ波によりこのような効果が生じるのか、はっきりとしたメカニズムが明確にされていないことを指摘し、その点をふまえ本研究の目的を述べている。</p> <p>第2章ではフロー処理型マイクロ波化学反応装置の設計法について論じている。ここでは、電磁界シミュレーションと熱流体シミュレーションを連成させたシミュレーションに基づく形状設計法を示すと共に、開発した手法を用いて装置を設計、試作し、水の加熱実験により昇温特性を検証し、90%のエネルギー吸収効率を達成可能であることを実証している。また、9種類の化学物質の誘電特性の温度依存性を測定すると共に、水を対象に誘電特性の温度依存性を考慮した場合と考慮しない場合のシミュレーション結果を実験結果と比較し、設計に物質の誘電特性の温度依存性を考慮することの重要性を指摘している。そして、誘電特性の温度依存性を考慮することで、高効率のフロー処理型マイクロ波化学反応装置を精度よく設計する手法を提案している。</p> <p>第3章では温度制御機能を有するフロー処理型マイクロ波化学反応装置構造を提案している。マイクロ波の化学反応に対する効果を検討する際、これまでの装置では一定出力のマイクロ波を照射しながら、反応液の温度を一定に制御することは不可能であった。本研究では、マイクロ流路の高い熱交換性能に着目し、反応管の外側に比誘電損率が小さく、マイクロ波を吸収しにくい熱媒体を循環させ、反応液と熱媒体との間で熱交換することで、反応液の温度を一定に制御する構造を新たに考案している。そして、提案した構造を有する反応装置を実際に試作し、水を用いた実験により26 Wのマイクロ波出力を与えても、水の温度を<math>36.3 \pm 1.5</math> °Cの範囲で制御できることを確認している。さらに、温度制御性能を向上させるための条件を理論的に検討した後、内部流体の流速、反応管の熱伝導率、外部流体の流速の3つのパラメータが温度制御性能に与える影響を実験により検討している。</p> <p>第4章ではマイクロ波の化学反応に対する効果を実験により検証している。第3章で開発した温度制御機能を有するフロー処理型マイクロ波化学反応装置を用いて、鈴木-宮浦カップリング反応、ベンジルアルコールの酸化反応、アゾビスイソブチロニ</p>			

京都大学	博士 (工学)	氏名	松澤 光宏
------	---------	----	-------

トリル (AIBN) の分解反応, 菌頭カップリング反応の 4 つの反応をモデル反応として, マイクロ波加熱と従来加熱法 (オイルバス加熱) との差異を検討している. そして, マイクロ波加熱とオイルバス加熱を同じ温度条件にし触媒や反応物質を溶媒に均一に溶解させた均一反応系では, いずれの反応においても加熱法の違いによる収率の差は顕著でないという実験結果を示している. また, 触媒とならない金属を分散させマイクロ波を照射した場合においても, 局所加熱による反応促進効果は認められないという結果を示している. 一方, 反応管内面にパラジウム触媒を固定化した不均一反応系での実験では, マイクロ波加熱とオイルバス加熱で, 反応液温度は 100 °C と同じであるにもかかわらず, マイクロ波加熱の方が約 2.4 倍の収率が得られた実験結果を示している. そして, これらの一連の実験結果より温度一定の均一系では, マイクロ波に反応促進効果は見られないこと, およびマイクロ波による反応促進効果を得るためには, 不均一系で触媒表面が局所的に加熱されるような条件が必要であることを主張している.

第 5 章ではマイクロ波を利用した化学反応装置の実用化を目指し, 複数の並列反応場で同時にマイクロ波を照射できるパイロットプラントについて検討した結果をまとめている. まず, 単一のマイクロ波発振機から 4 つの反応場に高効率かつ均等にマイクロ波を分岐, 伝送できる分岐伝送構造を, 電磁界シミュレーションを用いて設計している. そして, 実験により伝送効率 96%, 流路のばらつき  $\pm 3.3\%$  以内を達成し, 高効率かつ均等にマイクロ波を分岐, 伝送可能であることを実証している. さらに, 菌頭カップリング反応をモデル反応として性能や処理量を検討し, 4 つの並列反応場における収率のばらつきを  $\pm 4.5\%$  とでき並列化した装置であってもほぼ均等に反応を進行させることができること, および年間稼働時間が 5000 時間と想定した場合, 5.8 t/year に相当する量を処理できることを実証している. そして, これらの結果により, 複数の反応場を並列化して同時処理を行う方式で, 製品品質を落とすことなく, 処理量を増やせることを示している.

最後に総括として, 本論文で得られた成果を要約すると共に, 残された課題についてまとめている.

## (論文審査の結果の要旨)

本論文は、フロー処理型マイクロ波利用化学反応装置の設計手法の開発とマイクロ波が反応に与える効果について、シミュレーションと実験により検討した結果をまとめたものである。主要な成果を以下に記す。

- 1) 熱流体および電磁界シミュレーションを併用したフロー処理型マイクロ波利用化学反応装置の設計法を開発した。そして、開発した手法に基づき、エネルギー吸収効率の高い形状を有するマイクロ波利用化学反応装置を実際に試作し、様々な条件での実験結果とシミュレーション結果を比較することで、提案した手法でエネルギー吸収効率の高い装置が設計できることを示した。
- 2) マイクロ波の化学反応に対する効果を検証するための装置として、これまで実現不可能であった、一定出力のマイクロ波を照射しながら、反応液の温度を一定に制御できる機能を有するフロー処理型マイクロ波化学反応装置を新たに開発した。そして、提案装置の温度制御性能を向上させるための条件を理論的に検討した後、内部流体の流速、反応管の熱伝導率、外部流体の流速の3つのパラメータが温度制御性能に与える影響を実験により検討した。
- 3) 開発した温度制御機能付きフロー処理型マイクロ波化学反応装置を用いて、鈴木-宮浦カップリング、ベンジルアルコールの酸化、アゾビスイソブチロニトリル(AIBN)の分解、菌頭カップリングの4つの反応をモデル反応として、従来加熱と同じ温度条件にして実験を行い、収率および転化率を比較した。そして、得られた結果より温度一定条件下では、マイクロ波に反応促進効果は見られず、マイクロ波による触媒表面の局所加熱が反応促進の大きな要因であることを明らかにした。
- 4) 単一のマイクロ波発振機から4つの反応場に均等にマイクロ波を分岐、伝送できる分岐伝送構造を、電磁界シミュレーションを用いて設計し、高効率かつ均等にマイクロ波を分岐、伝送可能であることを実験により確認した。そして、菌頭カップリング反応をモデル反応として処理量を検証し、年間5000時間の稼働で、5.8 t/yearに相当する処理量を実現できることを示した。

このように本論文は、これまでに存在しなかった温度制御機能を有するフロー処理型マイクロ波化学反応装置を提案し、またマイクロ波が化学反応に与える影響を精密に検証するなど、新規で有用な知見を多く含んでおり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成23年10月5日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。