

氏名	あおき のぶ あき 青木 宣 明
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	工博第2687号
学位授与の日付	平成18年5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	マイクロ流体セグメント混合に基づいた反応設計・操作論に関する研究

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、微小に分割された流体塊（マイクロ流体セグメント）を利用した混合・反応操作の反応選択性向上に対する有効性を示すとともに、均相反応系を対象に新しい設計パラメータを導入し、この操作に基づいたマイクロ反応器の設計・操作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、緒論、四つの章からなる第Ⅰ編、二つの章からなる第Ⅱ編と総括より成っている。

本論文の第Ⅰ編ではCFDシミュレーションを活用して、層流の精緻な流れのもとで流体セグメントを用いた原料供給による混合・反応操作の設計論について検討している。

第1章では、マイクロ流路での混合・反応操作を考える上での基礎となるマイクロ流体セグメントによる操作法を提案し、それに基づいたCFDシミュレーションによって、薄層の幅、混合効率、反応速度定数、複合反応目的生成物の収率の関係、および反応器内の各化学種の濃度分布を考察することで流体セグメントによる原料供給の有効性を検証している。ここでは流体セグメントを薄層に限定して2次元のシミュレーションでこれらの検討を行った。この結果から、流体セグメントを微小化して迅速混合を行うこと、混合制御が有効な反応系についてはその速度論に応じて最適な混合性能を実現できる流体セグメントの薄層幅を決定できることを明らかにしている。

第2章では、精緻な流れを形成できるマイクロ流路では、反応器入口形状を任意に変えることで、薄層幅だけでなく流体セグメントの配列や形状も反応制御因子として利用することに着目し、これら幾何設計因子の生成物収率・選択率への影響を表現する二つの無次元数を導入するとともに、その無次元数の決定法を提案している。無次元数には、拡散速度に対する反応速度の比をベースとして、その中に代表長さとして反応器断面の2次元方向の平均拡散距離を導入した。次に、提案した無次元数をもとにしたCFDシミュレーションを利用して、流体セグメント設計法としての有効性を検証した。この無次元数を用いて、反応律速となる混合を実現できる各幾何設計因子の流体セグメントを設計できることを明らかにしている。

第3章では、精緻な流れのもとで流体セグメントごとに異なる機能を与えることも可能になることに着目し、流体セグメントによって薄層幅や原料濃度が異なる場合の反応器内における生成物収率・選択率を検討している。その結果、均一な流体セグメントを供給するよりも、サイズ・幅が異なる流体セグメントを適切に組み合わせることで混合性能・目的生成物収率を向上できる場合があることを明らかにしている。また、この組み合わせによって、流体セグメントの平均サイズが大きくなることも可能となり、操作性の向上にもつながることを示している。

第4章では、第1章から第3章までの等温系の仮定を外し、非等温系で流体セグメントを用いた原料供給による温度変化、混合性能、目的生成物収率への影響を検討している。この章の結果は、非等温系では、流体セグメントサイズの縮小によって中間生成物の選択率が単調に増加するとはかぎらないことを明らかにしており、温度制御の観点からも、混合制御が必要な反応系があることを示している。

本論文の第Ⅱ編では、産業生産での利用を視野に入れ、より高処理量に対応するために、流体セグメントを衝突させる混

合原理を導入したマイクロミキサーの操作・設計論を検討した。

第5章では、流体セグメント衝突に基づいたマイクロミキサーについて、その設計因子と混合性能の定量的な関係を求めている。この関係を決定する際、出口流路形状、流体分割数といった流路形状、流体衝突操作によって決まる流体衝突後の有効流体セグメントサイズを導入している。この有効セグメントサイズを導入した相関を求めることで、目的とする混合性能を得るための流体セグメントサイズ、さらにはそのサイズの流体セグメントを生成するための流路形状・流体操作を設計することが可能となる。

第6章では、流体セグメント衝突に基づいたマイクロミキサーを用いてビスフェノールF合成を行い、マイクロミキサーを用いることで目的生成物であるビスフェノールの選択率と空時収量を大きく向上でき、実生産の高効率化の手段となりうることを示している。

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、微小に分割された流体塊（マイクロ流体セグメント）を利用した混合・反応操作の反応選択性向上に対する有効性を示すとともに、均相反応系を対象に新しい設計パラメータを導入し、この操作に基づいたマイクロ反応器の設計・操作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る。以下にその概要を記す。

- 1) 薄層状の流体セグメントという概念を提唱し、反応器に関する数値流体力学シミュレーションから、複合反応において流体セグメントを適切に設計し迅速あるいは精緻に混合させることで、マクロ反応器では実現できなかったレベルまで目的生成物の収率を増加できることを明らかにした。
- 2) マイクロ流体セグメントの形状や配列といった従来の反応工学では扱えなかった幾何設計因子の影響を表す無次元数を提案し、これを導入した設計方程式を提出した。この式を用いることで、任意の収率を得るための反応器入口形状及びサイズの決定が可能となり、反応を精密に制御して実行するための指針を明らかにした。
- 3) 上述の設計方程式に基づき、異なるサイズ・原料濃度の流体セグメントを組み合わせる新操作法を提案し、目的生成物選択率を最大限にするための条件を明らかにした。
- 4) 流体セグメントによる混合操作を非等温系に拡張し、マイクロ反応器では流体セグメントサイズを適切に決めて混合制御を行うことで、発熱の激しい反応系での温度制御、反応選択性の向上が可能であることを明らかにした。
- 5) マイクロ流体セグメントの概念に基づく工業生産用マイクロミキサーを対象に、流路数、流路幅などの設計因子及び流速などの操作因子と混合性能の定量的な関係を明らかにした。次に、このミキサーを用い上述の設計操作理論に従ってビスフェノールF合成を行った。そして、マイクロミキサーを用いることで目的生成物であるビスフェノールの選択率と空時収量を大きく向上でき、実生産の高効率化の手段となりうることを示した。

以上要するに、本論文は、反応器の設計・操作論に対して、これまでのマクロ反応工学では取り扱えなかった設計・操作手法を提示し、複合反応の制御に利用できることを数値計算、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18年3月22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。