京都大学	博士(工学)	氏名	蔣 暁陽(JIANG XIAOYANG)
論文題目	Length-controlled Gas-liquid Segment Flow in Microchannel and Application to NanoFe ₃ O ₄ Synthesis		
	, (長さ制御されたマイクロ流路内気液セグメント流とナノ Fe ₃ O ₄ 合成への応用)		

(論文内容の要旨)

本論文は、マイクロ流路内の混相流に見られるセグメント流と呼ばれる流動状態に注目し、流量や流路形状といったパラメータを変化させずにセグメントの長さのみを制御できる技術の開発を通じて、セグメント長さが相間物質移動速度に及ぼす影響を調査し、さらにその知見を応用して新しいナノ粒子合成技術を提案するに至った一連の研究をまとめたものである。論文は2部構成となっており、第一部ではセグメント長さの制御技術の開発とそれを用いた相間物質移動速度の測定に関する研究内容が3章に渡って記述されている。第二部ではセグメント流を用いたナノ Fe_3O_4 粒子合成技術の開発に関する研究内容が2章に渡って記述されている。これらのほかに序論と結論を記述した章があり、全体として7章で構成された論文となっている。

序論では、セグメント流は相間物質移動が促進される等の理由から、重要な流動状態であると述べている。セグメント長さは流動状態を表す重要な指標であるが、既存の手法でセグメント長さを変化させるには流量やマイクロ流路の径を変化させねばならない。このため、セグメント長さのみが物質移動速度に及ぼす影響を測定できなかったことを述べたうえで、セグメント長さの制御技術を開発することの重要性を述べている。

第2章は第一部の最初の章であり、高速に開閉できるバルブを用いて間欠的に気体を供給することで、流量等の条件を変更することなくセグメント長さのみを制御できる技術の開発について述べている。本論文全体を通じて使用する装置の構成および操作方法が纏められているほか、セグメント長さを画像から算出する方法を定めている。

第3章では、バルブ動作の周波数がセグメント長さに及ぼす影響に関する研究がまとめられている。バルブ動作の周波数を高くするにつれてセグメント長さが短くなることを確認し、周波数が高くなりすぎるとセグメント長さが変化しなくなること、その境界となる周波数付近ではセグメントの長さが安定しないといった現象を明らかにしている。バルブによってセグメント長さが制御されている条件において、気相および液相の流量がセグメント長さに及ぼす影響も明らかにしている。また、物質収支をもとに両者の関係を定量的に結び付ける式を見出している。

第4章では、セグメント長さが気液流における相間物質移動速度に及ぼす影響を明らかにした研究内容がまとめられている。相間物質移動速度は水への酸素吸収実験を行って測定している。用いた実験装置は主としてフラスコと外部循環流路で構成されている。外部循環流路がマイクロ流路となっており、フラスコ内の水と空気を供給してセグメント流を発生させている。このとき、空気の供給流路に取り付けたバルブを高速に開閉することでセグメント長さを制御している。フラスコ内の溶存酸素量の時間変化を解析することによって物質移動容量係数を算出している。この解析は、マイクロ流路内部が擬定常状態であること、ガス吸収推進力となる酸素濃度差に比べてマイクロ流路前後の酸素濃度差が小さいという仮定に基づいている。流路が長くなるとより多くの酸素が吸収されるため、装置全体の見掛けの物質移動容量係数が大きくなるが、長すぎると後者の仮定が成立せず、長さによる変化が見られなくなることを確認している。そのうえで、解析における仮定が成立する長さの流路を用い、セグメント

長さを変化させて物質移動速度を測定した。実験結果から物質移動速度を算出し、セ グメント長さが及ぼす影響を測定することに成功した。セグメントが長くなるにつれ 物質移動容量係数が直線的に減少する様子が観察された。解析の結果、セグメント流 における物質移動係数はセグメント長さに関係なく一定であること、セグメントが長 くなるとともにみられる物質移動容量係数の低下は、気液の比接触面積の減少に起因 することを明らかにした。この結果をもとにバルブ動作の周波数と物質移動容量係数 との関係を定式化した。

氏名

第5章は第二部の最初の章であり、セグメント流を利用した共沈法によるナノFe₃O₄ 粒子の合成に関する研究結果について述べている。本論文では鉄イオンを含む原料溶 液と窒素のセグメント流を形成させ、それに対して塩基を合流させる方法で、ナノ Fe₃O₄粒子の合成を試みている。合成された粒子が磁性を持つことを確認し、X線回折 法によってそれが Fe₃O₄であることを示している。 得られた粒子は、バッチ操作による 共沈法で得られた粒子と比較して、粒子径および結晶子径のいずれもより小さいこと を見出している。鉄イオンの濃度や、温度などによって粒子の性状が変化する様子も まとめている。さらにセグメント長さの影響も調査しており、本検討の範囲では、セグ メント長さは粒子径および結晶子径に影響を及ぼさないことを明らかにしている。他 の合成手法との比較検討により、セグメント流を利用したナノ Fe₃O₄粒子合成はより微 細なナノ粒子を得ることができるだけでなく、生産性が高いことも明らかにした。

第6章はナノFe₃O₄粒子合成におけるセグメント流のより積極的な利用について検討 を行っている。共沈法で用いる溶液には、2 価と3 価の鉄イオンが含まれる必要がある。 本章では、2 価の鉄イオンのみを含む溶液を用い、空気とのセグメント流によって吸収 させた酸素によってその一部を酸化させて、2価と3価の双方の鉄イオンを含む溶液を 調製することに成功している。この溶液に塩基を加えることのできる実験装置を構築 し、ナノ Fe₃O₄粒子合成実験を行っている。2価の鉄イオンの酸化するために必要なセ グメント流の流路長さを明らかにしている。これらの検討を通じて、一種類の鉄イオン を原料とする共沈法によるナノ Fe₃O₄粒子合成技術を提案した。

第7章は結論であり、本研究で得られた知見や開発した手法をまとめるとともに、今 後の展望を述べている。

氏 名

蔣 暁陽 (JIANG XIAOYANG)

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、マイクロ流路中の混相流に見られるセグメント流と呼ばれる流動状態に注目し、その制御技術を提案するとともに、セグメント流における移動現象の解析と粒子合成への応用技術の開発に至る一連の研究成果をまとめたものである。得られた主な成果は以下の通りである。

- 1. 気液セグメント流における各流体のセグメント長さを制御できる技術を提案した。具体的には高速に動作するバルブを利用して気体を間欠的に導入する手法を開発しており、バルブ動作の周波数を変化させることによってセグメント長さが調節できることを実験的に示している。
- 2. バルブ動作の周波数とセグメント長さの関係を明らかにした。この関係式は物質 収支をもとに導出されており実際の現象をよく表している。これはバルブの動作に よって気体が間欠的に導入されていることの証拠となっている。
- 3. 流量や流路径を変更することなくセグメント長さのみを変化させてガス吸収実験 を繰り返し行い、セグメント長さのみがマイクロ流路の物質移動容量係数に及ぼす 影響を解明した。
- 4. 気液セグメント流における物質移動係数はセグメント長さによって変化しないこと、さらに物質移動容量係数が比表面積に応じて変化することを明らかにした。セグメント長さと物質移動容量係数の関係を表す数式を得た。
- 5. 気液セグメント流を利用して共沈法によるナノ Fe_3O_4 粒子の合成手法を提案した。提案法では、他の方法よりも得られる粒子が小さく、また生産性が高いことを明らかにした。
- 6. 共沈法では価数が異なる鉄イオンを含む溶液を原料とするが、気液セグメント流を利用して、2価の鉄イオンのみを含む溶液からこれを調製する手法を提案した。 また、この溶液を原料としてナノ Fe₃O₄粒子の合成に成功している。

本論文は、気液セグメント流の制御技術を開発するとともに、それを利用して物質移動現象を解析し、さらにナノ粒子合成の新しい手法を提案している点で、学術上、実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、令和5年12月19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。

なお、本論文は、京都大学学位規程第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、(令和7年10月27日までの間)当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。