

(続紙 1)

京都大学	博士 (工学)	氏名	松山 一雄
論文題目	マイクロ空間における異相系液液混合・反応場のモデリングとデバイス開発に関する研究		
(論文内容の要旨)			
本論文は、マイクロ空間を利用した異相系液液混合デバイスの設計論、操作論を明らかに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、5章、緒論、総括より成っている。 緒論では、液々混合における混合時間について論点を抽出したのち、マイクロ混合操作の既往の研究の整理から、マイクロによる液液混合操作の概念を3つの領域に分類し、それぞれの領域での設計、操作のポイントを明らかにしている。この考察に基づき、マイクロ空間の異相系液液混合場における流体セグメントサイズの設計論を対流混合に着目して展開し、それを具現化するための操作論とあわせて系統的にまとめあげるとともに、実用化レベルのデバイス開発も行い、応用開発への展開を示すことを本研究の目的として明確にしている。 第1章では、界面張力支配のマイクロ空間を移動する液滴 (スラグ) 中に生じる循環流を利用したスラグ内混合に着目し、CFD) 計算を利用して操作因子の影響を定性的、定量的に検討した。その結果、スラグ合一時の液配置によって混合特性が異なることを示している。また、半径方向の拡散時間と循環流による対流時間の比で定義された新規な無次元数である修正Peclet数を新規に提案し、迅速混合の精密制御を目的とした新規な液滴設計法が提示している。 第2章では、1章で提示されたスラグ内混合の設計手法の妥当性を実験的に検証し、修正ヘクレ数を用いることでスラグの速度と長さに依らずスラグ内の混合性能を評価可能であることを明らかにしている。また、流路構造と流体操作によるスラグ合一制御を検討し、2種の液配置それぞれの形成に適した流路構造と流体操作を見出すとともに、無次元数を用いて安定操作可能な条件領域を提示している。これらの結果からマクロ操作には不可能である安定した液滴操作の可能性が示している。 第3章では、まず、乳化操作に適した汎用的なマイクロミキサーの開発のために、モデル組成の乳化実験を通じて対流混合に寄与するデバイス流路構造の評価とデバイス設計因子の抽出を行っている。混合時の対流に消費される圧力損失と乳化平均液滴径の相関から、衝突部や縮流・急拡大部における対流渦生が乳化に			

に寄与すること、マイクロサイズの噴流におけるミリ秒オーダーの圧力消費に起因することを見出している。この考察に基づいて、剪断場の空間体積の定義とオリフィスの形状パラメータの導入によりエネルギー散逸率 ε_{jet} を表現する式を提案し、平均液滴径は孔径や形状によらず ε_{jet} で予測できることを明らかにしている。次に、異相間の物資移動が大きく関与する系を対象に、対流混合支配となる条件での混合操作と反応場のモデリングについて検討し、対流混合場のエネルギー散逸率をそれぞれのデバイスで定義することでデバイスのサイズや構造に依らず混合性能を整理することに成功している。更に、対流混合支配場での混合時定数の評価手法も提示し、マイクロリアクターの設計手法を確立している。

第4章では、第3章で提案した設計論に基づいて、1pass、1elementで高処理量の乳化に対応可能な実用的なオリフィス型マイクロミキサー（K-JETミキサー）の開発とその混合性能評価を行っている。開発したマイクロミキサーは、マイクロサイズの噴流による高いエネルギー効率を示し、既存の乳化装置に比べ優れた乳化性能を有すること、ミリ秒オーダーの混合性能を有していることを明らかにしている。

第5章では、異相間の物資移動による相転移を伴う界面活性剤／水／脂質系の混合操作にマイクロリアクターを適用して、3つの応用検討を行っている。セラミドの乳化ではマクロ操作では達成困難な微細化と均一化が可能であることを示し、パール結晶の乳化晶析では世界で始めてナノサイズの安定な分散液の製造に成功している。一方、紫外線防御化粧料の乳化ではマクロ操作で不可能だった乳化組成での乳化を実現するとともに、上記マイクロミキサーを用いた商業規模の実機連続運転での生産、商品化に成功している。

最後に、異相系液液混合操作に対し、精緻な液滴内から噴流の局所的な高剪断場に至るまでマイクロ空間における対流混合に着目した系統的な設計論と操作論に関して本論文で得られた成果を纏めるとともに、今後の展望、さらには実プロセスへの適用性へのシナリオ等について総括している。

(論文審査の結果の要旨)

異相系液液混合操作は混合の過程で反応、相間物質移動、相転移などが複雑に進行して制御が難しく従来技術では限界がある。本論文は、この課題を解決する手段として、マイクロ空間の異相系液液混合場における対流混合に着目し、異相系液液混合デバイスの設計論、操作論を明らかに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. マイクロ空間を移動する液滴（スラグ）中に生じる循環流を利用した混合に着目し、CFD計算を利用して操作因子の影響を定量的に検討した結果、新規な無次元数である修正ペクレ数を提案して新規な液滴設計法を提示した。
2. 1で提示されたスラグ内混合の設計手法を実験的に検証し修正ペクレ数の妥当性を検証した。その結果、このパラメータによって、マクロ操作には不可能である精度の高い液滴操作が可能であることを明らかにした。
3. 乳化操作に適したマイクロミキサーの開発を目的に、流路構造と混合性能の関係を詳細に検討し、縮流・急拡大部のマイクロ噴流場での挙動をエネルギー散逸率で記述した設計式を初めて提示した。
4. 上述の設計論に基づいて、1パス、1エレメントで高処理量乳化できる実用的なオリフィス型マイクロミキサーを開発し、既存の乳化装置に対する優位性を確認した。
5. 異相間の物資移動による相転移を伴う3種類の系の混合操作に上記ミキサーを適用した。特に、パール結晶の乳化晶析では世界で始めてナノサイズの安定分散液の製造に成功した。また、紫外線防御化粧料の乳化ではマクロ操作で不可能だった乳化組成を実現し、新規製品として連続生産、商品化することに成功した。

以上、本論文は、液液二相系の混合操作、物質移動操作に対して、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・操作手法を定量的に提示し、実生産に応用できるマイクロミキサーの設計論を数値計算、実験及び実機運転検証から明らかにするなど、学術上、實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22年1月25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。