

氏名	門脇 信傑
授与した学位	博士
専攻分野の名称	工学
学位授与番号	博甲第4955号
学位授与の日付	平成26年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科 産業創成工学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	マイクロ化学プロセス用三方電磁弁の開発と応用
論文審査委員	教授 鈴木康一 教授 五福明夫 教授 渡辺桂吾 准教授 神田岳文

### 学位論文内容の要旨

2000年頃から化学工学や $\mu$ TAS (Micro Total Analysis Systems)と呼ばれる分析化学で用いられるマイクロ流体デバイスの研究が活発に行われてきた。微細加工技術やMEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 技術を用いて、大規模な化学プラントや化学分析システムを小型化したマイクロリアクタシステムの実現が望まれている。効率よく混合や反応を行わせ、また、混合や反応を制御することを目的としたアクティブ型マイクロリアクタ用として三方電磁弁の開発を行った。

開発した三方電磁弁に二液を流し、高速に切り替えることで各流体の小さな相を交互に連続して生成することを目指した。生成した一つ一つの小さな相をマイクロビカと呼び、このマイクロビカを用いた連続式反応をマイクロビカプロセスと呼ぶことにした。このマイクロビカプロセスに混ざり合わない二液を適用すると、従来からマイクロリアクタの分野で注目されているスラグ流と呼ばれる流れを生成することができる。スラグ流とは、混ざり合わない二液が交互に流れる間欠流のことである。スラグ流を抽出操作に用いることにより、二液の界面を通した高速熱移動や物質移動が高効率で高精度に制御できる。スラグ流はこれまでもY字流路やT字流路などを用いてパッシブに生成されていたが、パッシブ型ではスラグ流の液相容積を容易に制御することができなかった。開発した三方電磁弁を用いて、スラグ流を生成することで流体の特性に影響されることなく、各相の容積の制御が出来れば、実用性に優れたマイクロリアクタが実現できる。本研究では、まずマイクロビカプロセスに適した三方電磁弁を開発し、シリコーンオイルと水道水の混ざり合わない二液を送液し、スラグ流の一相の容積の制御が可能であることを示した。実験により、動粘度 $1\text{mm}^2/\text{s}$ のシリコーンオイルと水道水を用いてスラグ流を生成した場合、一相の容積を $0.1\mu\text{L}\sim 7\mu\text{L}$ の範囲で生成することが可能であることを示した。

実際の化学反応プロセスでは、混合・合成・反応だけではなく反応後に分離・分液操作を必要とする。反応・抽出にスラグ流を適用するために、スラグ流の二液を選択的に分離する装置すなわちアクティブ分離装置を開発した。アクティブ分離装置と従来から用いられているセトラの分離性能を使用した流体の特性ごとに比較し、評価した。その結果、スライド式三方電磁弁分離装置では、使用した全ての流体に対して90%以上の分離成功率を実現できた。それに対し、セトラは使用する液体により使用範囲が限られていた。アクティブ分離装置は適用可能な流体特性の範囲が広く、アクティブ分離装置の優位性を示した。

次に開発した三方電磁弁を用いたマイクロビカプロセスを化学プロセスに適用し、有効性の評価を行った。まず、水相中の銅イオンを油相中に抽出する溶媒抽出反応に、三方電磁弁を用いて生成したスラグ流を適用し、パッシブ型の三次元マイクロリアクタで発生しスラグ流を適用した結果と比較した。三方電磁弁を用いて生成したスラグ流を適用すると短時間の11.3秒で抽出平衡に至った。この抽出時間は、パッシブ型で発生したスラグ流では実現できない。また、油相中のリチウムイオンを水相中に抽出する反応では、三方電磁弁の駆動周波数を大きくし、スラグ流の液相長さを短くするほどリチウムの高速抽出が行えることを示した。さらに、リン成分を均一に含有するスズ酸化物(PTO)でナノレベルの均一粒子径をもつ透明なコロイド粒子の合成反応では、 $0.5\sim 1.6\mu\text{L}$ の微量容積混合により $4\sim 8\text{nm}$ の酸化スズコロイド粒子が生成できることを実証し、マイクロビカプロセスの迅速な無機合成化学プロセスへの適用の有効性を実証した。

## 論文審査結果の要旨

マイクロリアクタを用いた化学プロセスでは、高速、高品位の化学反応の実現が期待できる。従来のマイクロリアクタでは、流体の受動的な挙動を利用していたが、本研究は、能動的に流体に働きかけて効率よく混合や反応を制御するアクティブ型マイクロリアクタに関するものである。その鍵の一つとなる三方電磁弁を開発し、その有用性を化学プロセスに適用して実証した。

本研究では、まず、高速動作、内部容積ゼロ、耐薬品性を特徴とする三方電磁弁を設計開発した。この三方電磁弁を高速に切り替えることで生成される各流体の小さな相をマイクロビーカと呼び、このマイクロビーカを用いた連続式操作をマイクロビーカプロセスと名づけた。マイクロビーカプロセスに混ざり合わない二液を適用すると、従来から知られるスラグ流となる。従来のスラグ流は Y 字や T 字流路を用いて受動的に生成されたが、スラグ流の液相長さを容易に制御することができなかった。これに対し、本研究の手法では、流体の種類や流速に影響されることなく各相の容積の制御が容易に出来る。また、開発した三方電磁弁にセンサを内蔵して駆動することで、スラグ流をもとの二液に分離する操作も実現できる。

本研究では、まずシリコンオイルと水の二液の系に適用し、 $0.1\ \mu\text{L}$ ~ $7\ \mu\text{L}$  の範囲で自由にスラグ長を制御できことを示した。また、比重が同じ二液に対しても 90%以上の分離率を実現した。

次に本手法を化学プロセスに適用し、有効性の評価を行った。油相中のリチウムイオンを水相中に抽出する反応では、スラグ流の液相長さを短くすることでリチウムの高速抽出が行えることを示した。スズ酸化物(PTO)ナノ粒子の合成反応では、 $0.5\sim 1.6\ \mu\text{L}$  の微量容積混合により  $4\sim 8\text{nm}$  の酸化スズコロイド粒子が生成できることを実証した。

このように、本研究は、マイクロ化学プロセス用に新たな三方電磁弁を開発してマイクロビーカプロセスを構築するとともに、その有用性を具体的な化学反応プロセスに応用して示した。この成果は、マイクロリアクタの新たな可能性を示すものである。本学位審査委員会は、学位論文の内容ならびに参考論文等を総合的に判断し、博士(工学)の学位に値するものと判断する。