フロー処理型マイクロ波化学反応装置の開発に関する基礎検討*

松澤光宏^{*1}, 富樫盛典^{*1}, 長谷部伸治^{*2}Fundamental Study on Development of a Continuous Flow
Microwave-Assisted Chemical ReactorMitsuhiro MATSUZAWA^{*3}, Shigenori TOGASHI and Shinji HASEBE^{*3} Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.,
832-2 Horiguchi, Hitachinaka-shi, Ibaraki, 312-0034 Japan

Chemical reaction processes using microwaves have attracted attention and a lot of effects caused by microwaves in organic synthesis have been reported. However, most chemical reactors using microwaves that have already been developed are batch-type reactors, and controlling the reaction temperature precisely in batch-type reactors is difficult. We have developed a continuous flow microwave-assisted chemical reactor using electromagnetic simulation, and examined its energy absorption efficiency. It was found that the results of energy absorption efficiency obtained by the simulation corresponded with the measurements within $\pm 9\%$ in water-heating tests and the efficiency by water was 90%. Moreover, we analyzed the temperature rise curve by using an electromagnetic simulation and considered the temperature dependence of dielectric properties. It was found that the simulation results corresponded with the measurements within 3°C in water-heating tests and within 4°C in DMF (*N,N*-dimethylformamide) heating tests.

Key Words: Microwave Heating, Chemical Reaction, Chemical Engineering, Continuous Flow, Electromagnetic Simulation

1. 緒 言

近年、マイクロ波を利用した化学反応プロセスが着目されている。マイクロ波を利用した化学反応プロセスでは、従来の加熱方式に比べ著しい反応時間の短縮、収率の向上、選択性の向上、副生成物の低減などの様々な効果が報告されており^{(1)~(6)}、大幅な省エネルギー化、環境負荷の低減、反応工程の簡略化などに対し、大きな期待がなされている。

これまでに開発されているマイクロ波を利用したマイクロ波化学反応装置は、そのほとんどが試験管やビーカーに反応液を溜めたままマイクロ波を照射して反応させるバッチ方式である。しかし、バッチ方式の大きな課題は処理量であり、実験室レベルから実生産レベルまで処理量を拡大することが非常に困難であった。なぜならば、マイクロ波の誘電体への浸透深さには限界があり、例えば一般的に使用される周波数 2.45 GHz のマイクロ波の場合、物質の誘電特性にもよる

が、浸透深さは数 cm 程度である。したがって、バッチ方式でスケールアップを図った場合、表面のみがマイクロ波を吸収し、内部までマイクロ波が浸透しにくいという課題があった。そこで、反応容器を小さくし、フロー方式にすることで、マイクロ波の浸透深さの問題を解決でき、処理量も増大できるものと期待されている⁽⁷⁾。

また、バッチ方式のマイクロ波化学反応装置に流路を設置して実施した、マイクロ波を利用したフロー方式の化学反応プロセスに関する研究がいくつか報告されている^{(7)~(11)}。このバッチ方式の装置を利用したフローの方法では、装置がバッチ方式用に設計されているために、マイクロ波エネルギーを効率的に反応液に吸収させることが困難であり、エネルギー吸収効率は 40% にも満たなかった。さらに、化学反応を制御するためには、温度を精密に管理する必要があり、正確に温度を予測できる状態で反応を行うことが望ましいが、これまでのバッチ方式の装置を利用した方法では、マイクロ波の吸収量の制御が難しく、正確に温度を制御、予測することが困難であった。

そこで本研究では、フロー処理による化学反応への適用を想定して、薬液を連続的に流しながら、薬液の種類に応じてエネルギー吸収効率を最適化することが

* 原稿受付 2008 年 5 月 20 日。

^{*1} 正員、(株)日立製作所機械研究所(〒312-0034 ひたちなか市堀口 832-2)。^{*2} 京都大学工学研究科化学工学専攻(〒615-8510 京都市西京区京都大学桂)。

E-mail: mitsuhiro.matsuzawa.ok@hitachi.com

でき、正確に温度を制御することができるフロー処理型のマイクロ波化学反応装置を開発することを目的とした。

上記の目的に対し、以下のプロセスで研究を進めた。(1)電磁波解析を用いて、フロー処理型のマイクロ波化学反応装置の設計を行った。(2)設計した装置を実際に製作し、実験によりエネルギー吸収効率を検証した。(3)解析により昇温曲線を計算し、実験により測定した昇温曲線との比較を行った。

2. 装置構造の検討

2.1 装置基本構造 マイクロ波を照射する方式は、大別してマルチモードタイプとシングルモードタイプの二通りに分けられる。マルチモードタイプは電子レンジに代表されるように、マイクロ波を乱反射により被加熱物質に照射する方式である。この方式では、マイクロ波の照射空間を大きく確保できるメリットがあるが、さまざまなモードが存在するために、マイクロ波の照射分布を制御、把握することが難しく、被加熱物質へ効率的にマイクロ波を照射することが難しい。一方、シングルモードタイプは、導波管内に一つの電磁波モードだけが存在する方式である。この方式はマルチモードタイプに比べマイクロ波の照射空間は限定されるが、一つのモードしか存在しないために、電界分布や磁界分布を調節することが可能で、被加熱物質に対するエネルギー吸収効率を制御しやすいのが特徴である。これらの点を踏まえ、本研究ではエネルギー吸収効率を制御しやすいシングルモードタイプを採用した。

図1に装置の基本構造を示す。本装置は周波数2.45 GHzのマイクロ波を発振するマイクロ波発振機(日立製 HPP 121 A-INV-02)、マイクロ波を伝送する WRJ-2 型の矩形導波管(特性インピーダンス: 456 Ω)、導波管内のインピーダンスを調整するための調整素子(スタブチューナー)、反応液を内部に流通させながら反応液にマイクロ波を照射するための流通管から構成される。マイクロ波はマイクロ波発振機から発振され、導波管を伝送し、短絡面で反射する。この内の一部のエネルギーが流通管内の反応液に吸収され、残りはマイクロ波発振機に戻り吸収される。

ここで導波管の幅方向を X 方向、高さ方向を Y 方向、マイクロ波の進行方向を Z 方向と定める。

被加熱物質中の電界強度を E [V/m]、被加熱物質の導電率を σ [S/m]、被加熱物質の密度を ρ [kg/m³]、被加熱物質 1 kg 当りに吸収されるエネルギーを SAR (Specific Absorption Rate) [W/kg] とすると、SAR

Fig. 1 Basic structure (Size of tube: Inner diameter, 3 mm; Outer diameter, 5 mm; Diameter of coil, 20 mm; Pitch, 7.0 mm; Number of turns, 5.5)

は式(1)で表される⁽¹²⁾。

$$SAR = \frac{\sigma |E|^2}{2\rho} \quad \dots\dots\dots (1)$$

式(1)から、被加熱物質に対するマイクロ波エネルギーの吸収量は、電界強度 E の二乗に比例することがわかる。したがって、本導波管で電界強度の強い部分に流通管を設置することで、被加熱物質に対するエネルギー吸収効率を高めることができると考えられる。本導波管の Z 方向では、マイクロ波発振機から短絡面の方向へ進む入射波と、短絡面で反射した反射波とが干渉することにより導波管内には定在波が生成し、短絡面で 0、短絡面から $\lambda/4$ (λ : 管内波長 148 mm) 離れた場所で電界強度は最大となり、また、X 方向では導波管の端面で電界強度はゼロ、導波管中央部で最大となる。したがって本装置では、流通管の中心が Z 方向では短絡面から 37 mm 離れた位置、X 方向では導波管の中心を通るように配置した。

また本装置において、周波数 2.45 GHz のマイクロ波を入射した場合の導波管内の電界分布を電磁波解析手法の一つである、TLM (Transmission Line Matrix) 法⁽¹³⁾を用いた電磁波シミュレータ Microstripes (独, CST 社)を用いて計算した。TLM 法とは空間を離散化し、離散点間を 1 次元線路と仮定して、各格子点でホイヘンスの原理に基づく波動伝播を逐次的に解く手法であり、有限要素法などのように構造全体の連立方程式を解く必要がなくメモリを節約でき、解析時間を短縮できる特徴がある。

図2に短絡面との距離が 148 mm の位置に長さが 22 mm の調整素子を設置した場合の解析結果を示す。電界強度が強い部分に流通管が配置されていることが確認できる。

2.2 誘電特性の温度依存性の測定 マイクロ波エネルギーの吸収は、物質の誘電特性に大きく関係する。物質の誘電特性は、真空の誘電率を ϵ_0 [F/m]、比

Fig. 2 Electric field intensity distribution

誘電率 ϵ' , 比誘電損率を ϵ'' とすると式(2)の様に複素誘電率 ϵ^* として表される⁽¹⁴⁾.

$$\epsilon^* = \epsilon_0(\epsilon' - j\epsilon'') \quad (2)$$

また, マイクロ波の照射下における誘電体の単位体積あたりの発熱量 $P[\text{W}/\text{m}^3]$ は, 角周波数を $\omega[\text{s}^{-1}]$, 電界強度を $E[\text{V}/\text{m}]$ とすると式(3)で表される⁽¹⁵⁾.

$$P = \omega \epsilon_0 \epsilon'' E^2 \quad (3)$$

式(3)から, マイクロ波を照射した場合の物質の発熱量は比誘電損率 ϵ'' に依存していることがわかる. また比誘電損率 ϵ'' は周波数および温度によって変化することが知られている⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾. しかしながら, 現在のところ各化学物質の周波数 2.45 GHz における比誘電損率 ϵ'' のデータは少なく, また温度に対する挙動も未整理の状態である. マイクロ波を利用した装置設計で物質の誘電特性を把握することは非常に重要である. そこで, 2.45 GHz における各物質の比誘電損率 ϵ'' の温度依存性を測定した.

図3に誘電特性測定装置の概観を示す. 測定試料をオイルバスで所望の温度に加熱しながら測定した. 測定プローブ(Agilent, 85070 E)を液体状の測定試料の中へ浸けて, 装置の高周波特性を測定することのできるネットワークアナライザ(Agilent, E 5062 A)から周波数 2.45 GHz のマイクロ波を発振し, 材料からの反射信号を測定することで物質の比誘電損率を測定した.

測定物質は有機合成で頻繁に使用される物質である, 水, DMF(*N,N*-dimethylformamide), 1メチル2ピロリドン(*N*-methylpyrrolidinone), メタノール, エチレングリコールを選定して, 25°Cから最高150°Cの範囲で測定を行った. 図4に比誘電損率 ϵ'' の測定結果を示す. 測定した物質では, 温度の上昇に伴い比誘電損率の値は減少することがわかった. 言い換えると, 温度の上昇に伴いマイクロ波の吸収による発熱量が減少することがわかった. DMFよりも水の方がその減少する割合は大きく, 水の場合, 約90°Cになると25°Cの値の約1/4に減少し, DMFの場合は約90°Cになると25°Cの値の約1/2に減少することがわかった.

Fig. 3 Dielectric property measurement system

Fig. 4 Temperature dependence of dielectric loss factor ϵ''

2・3 エネルギー吸収効率に関する検討

2・2節により電磁波解析に必要な各化学物質の, 周波数 2.45 GHz における誘電特性を測定することができた. これらの値を用いて, 2・1節で設計した導波管および流通管構造において, 流通管に被加熱物質を流した場合のエネルギー吸収効率について電磁波解析を用いて検討した. ここでエネルギー吸収効率とは, マイクロ波発振機で発振したマイクロ波エネルギーに対する, 被加熱物質に吸収されるエネルギーの割合と定義した.

図5に本装置の等価回路を示す. ここで電源電圧を V_0 , 電源の内部インピーダンスを Z_0 , 被加熱物質の負荷インピーダンスを Z_L , 線路の特性インピーダンスを Z_0 , 入射波電圧を V_{inc} , 反射波電圧を V_{ref} , 反射係数を Γ とする. この時の, 反射波電圧 V_{ref} は式(4)で表される⁽¹⁸⁾.

$$V_{\text{ref}} = \Gamma V_{\text{in}} = \frac{Z_L - Z_0}{Z_L + Z_0} V_{\text{in}} \quad (4)$$

式(4)より, 負荷インピーダンス Z_L と線路の特性インピーダンス Z_0 が同じになったとき, 反射波は0となることがわかる. この時, マイクロ波エネルギーは全て負荷へ吸収される. 一方, 被加熱物質の誘電特性が異なると, 負荷インピーダンス Z_L は変動するため, それに合わせて線路の特性インピーダンス Z_0 を

Fig. 5 Equivalent circuit

調節する必要がある。本研究では、図1に示すように、導波管内上面中央部分に $\phi 15$ の円柱状の整合素子を設置し、その設置位置 (Z 方向) および長さを調節することにより、線路の特性インピーダンス Z_0 を調整し、負荷インピーダンス Z_L にあわせてエネルギー吸収効率を調節できる機構とした。

本装置では流通管内を流れる液体は、流通管の入口から出口に向かう間に加熱され、出口で最高温度となる。したがって入口から出口に向かうにつれ温度は上昇するため、その温度上昇にともない誘電特性は変化し、エネルギー吸収効率も変化すると考えられる。そこで、調整素子を固定して被加熱物質を加熱した場合の被加熱物質の温度上昇に伴ったエネルギー吸収効率の変化量を電磁波解析により見積もった。

被加熱物質として、誘電率の大きい物質である水、また、マイクロ波を利用した化学合成プロセスで頻繁に使用される有機溶媒 DMF を用いて、入口の温度が 25°C の状態から加熱した場合のエネルギー吸収効率を2・2節により得られた誘電特性データを利用して電磁波解析により計算を行った。

図6に短絡面との距離が 148 mm の位置に、長さが $22, 20\text{ mm}$ の調整素子を設置した時の、水を加熱した場合のエネルギー吸収効率の計算結果を示す。流通管入口の温度を 25°C とし、横軸が出口の温度、縦軸がその時のエネルギー吸収効率を示す。調整素子の長さが 20 mm の場合は、約 60°C 以上になると吸収効率が低下するのに対し、 22 mm の場合は 95°C 付近まで加熱しても、吸収効率は 90% 以上となることがわかった。

一方、短絡面から 148 mm の位置に、長さが $26, 28\text{ mm}$ の調整素子を設置した時の、DMF を加熱した場合のエネルギー吸収効率の計算結果を図7に示す。調整素子の長さが 26 mm のとき、入口から出口までの温度が 25°C 一定で温度勾配のない状態ではエネルギー吸収効率は約 98% であるが、温度上昇に伴いその値は徐々に減少し、出口温度が約 95°C に加熱される状態でのエネルギー吸収効率は約 70% まで減少する結果となった。一方、長さが 28 mm の調整素子を設置した場合は、入口から出口までの温度が 25°C で一定のと

Fig. 6 Energy absorption efficiency of water

Fig. 7 Energy absorption efficiency of DMF

きのエネルギー吸収効率は約 39% であるのに対し、温度上昇に伴いその値は増加し、出口温度が約 108°C に加熱される状態でのエネルギー吸収効率は約 72% となることが分かり、調整素子の長さが 26 mm のときよりも効率がよくなることがわかった。したがって、温度上昇に伴い調整素子の長さを調節することでエネルギー吸収効率を高いまま維持することが可能であると考えられる。さらに化学反応が起こる場合には物質の組成変化が生じるため、さらに誘電特性の変化が大きくなると考えられ、それに合わせたインピーダンスの調整方法が必要と考えられる。

3. 実験によるエネルギー吸収効率の検証

本実験の目的は、上記で設計した装置について、実験によりエネルギー吸収効率を検証することである。マイクロ波の出力を $23, 30, 100\text{ W}$ でそれぞれ一定にし、流通管に流す液体の種類および流量を変化させたときの上昇温度 ΔT を測定し、その上昇温度 ΔT から液体に吸収されたエネルギー量を算出し、解析結果と比較した。上昇温度 ΔT は流通管の入口と出口に

Fig. 8 Heating test results of water

Fig. 9 Heating test results of DMF

熱電対を挿入して出口温度と入口温度の差として測定した。水を加熱する場合は調整素子の長さを 22 mm、短絡面との距離を 148 mm とし、DMF を加熱する場合は調整素子の長さを 26 mm、短絡面との距離を 148 mm とし、加熱実験を行った。また解析条件は 2・2 節で計測した誘電特性データを用いて、誘電特性の温度依存性を考慮して解析を行った。

図 8 に水を流した場合の測定結果および解析結果を示す。測定値から計算されるエネルギー吸収効率は 90% 以上となり、また測定値と解析値のエネルギー吸収効率の差が 9% 以内で一致することがわかった。なお実際には、流通管から周囲への放熱により液体の温度低下が考えられるが、電磁波解析により得られたエネルギー吸収分布データを用いて、流通管から周囲への放熱量を熱流体シミュレータである STAR-CD (CD-adapco) により見積もったところ、マイクロ波出力 100 W、流量 20 mL/min の条件で、放熱量は約 1.5 W となった。上昇温度は放熱を考慮しない場合と比較して約 1°C 低い温度となり、放熱の影響は小さいと考え本研究では放熱は考慮せずに解析を行った。

また、図 9 に DMF を流した場合の測定結果および解析結果を示す。DMF の場合は測定値から計算されるエネルギー吸収効率は約 60% となり、計測値と解析

Fig. 10 Temperature measurement method

値のエネルギー吸収効率の差が 25% 以内で一致することがわかった。

4. 昇温曲線の解析および測定

化学反応を制御するためには、温度を精密に管理する必要がある。詳細な温度測定および、正確に温度を予測できる状態で反応を行う必要がある。本研究では、昇温過程の温度を詳細に測定し、また電磁波解析により昇温過程の予測を行った。

図 10 に温度の測定方法を表した図を示す。石英製の螺旋型チューブの各部にファイバーセンサーを挿入し、水および DMF を 5 mL/min の流量で流しながらマイクロ波の出力を調節し、出口⑦の温度が 95°C となる条件(吸収エネルギー：水、約 24.4 W、DMF、約 11.3 W)で測定を行った。なおファイバーセンサーは、石英製のためマイクロ波照射下の電磁界環境に影響を与えずに温度を測定することができるのが特徴である。

実用化を想定すると、図 10 のように多数のファイバーセンサーを導波管内に挿入することは装置が複雑化しコストもかかるため、なるべく温度の計測点数は少ない方が好ましい。そこで、入口と出口のみの温度を計測することを想定し、解析により、入口と出口の温度が既知の場合の内部温度の予測を行った。

解析の方法を以下に説明する。流通管内の液体を図 11 のように流れ方向に分割し、曲線部分は 90° で一ブロックとして、合計で 23 分割した。液体に吸収されるエネルギーは水の場合は 24.4 W、DMF の場合は 11.3 W とし、分割した各ブロックに吸収されるエネルギーの割合を電磁波解析により計算し、入口温度①および出口温度⑦を測定値と同じ温度に設定したときの昇温曲線を計算した。また計算条件は、分割した 23 ブロックにすべて同じ誘電特性の値を入力した場合

Fig. 11 Reaction tube divided into 23 blocks

Fig. 12 Temperature rise curve of water

と、誘電特性の温度依存性を考慮した値をそれぞれの分割ブロックに入力して計算した場合の2通りの計算条件で解析を行った。

図12に水を流した場合の測定結果と解析結果を示す。図12中のシンボルは測定値、破線は各ブロックにすべて同じ誘電特性の値を入力して計算した結果、実線は誘電特性の温度依存性を考慮して計算した結果を示している。また図12中の①～⑦の数字は図10における各測定点を示している。誘電特性を一定にした計算結果では、加熱時間にはほぼ比例して一定の傾きで温度が上昇するのに対し、実線で示した誘電特性の温度依存性を考慮した計算結果は、加熱直後の温度の低い上流側では傾きが大きく、温度が高くなる下流側では傾きが小さくなる傾向が得られた。測定値と解析値を比較すると、誘電率を一定にして計算した場合には測定値との温度差は最大16°Cであるのに対し、誘電率の温度依存性を考慮すると3°C以内で一致する結果となり、予測精度を向上することができた。

また同様に図13にDMFを流した場合の測定結果と解析結果を示す。図13中のシンボルは測定値、破線は各ブロックにすべて同じ誘電特性を入力して計算した計算結果、実線は誘電特性の温度依存性を考慮し

Fig. 13 Temperature rise curve of DMF

て計算した計算結果を示している。測定値と解析値を比較すると、誘電特性を一定にして計算した場合には測定値との差が最大4°Cであるのに対し、誘電特性の温度依存性を考慮した場合も測定値との差は4°C以内となり差はなかった。水のように比誘電損失率の温度依存性が大きいものは、それを考慮した電磁波解析でさらに昇温曲線を精度よく予測可能であることがわかった。

5. 結 論

これまでに開発されていたマイクロ波を利用した化学反応装置はバッチ方式であり、フロー処理方式のものは開発されていなかった。また、バッチ方式の装置を利用してフロー反応を行った研究が報告されているが、エネルギー吸収効率が低く、また正確に温度を管理、予測することが難しかった。そこで、本研究では、電磁波解析を用いて、薬液の種類に応じてエネルギー吸収効率を最適化可能なフロー処理型のマイクロ波化学反応装置を設計し、実験的にエネルギー吸収効率および昇温曲線を検証して、以下の結論を得た。

(1) 電磁波解析を利用して薬液を流しながらマイクロ波を照射することのできる、フロー型のマイクロ波照射装置を設計した。本装置において、水を流しながら95°Cに加熱する場合の水に対するエネルギー吸収効率は90%、DMFを流し95°Cに加熱する場合のDMFに対するエネルギー吸収効率は70%となることが解析により求められ、調整素子の位置および長さを調節することで、薬液の種類に応じてエネルギー吸収効率を調節可能であることがわかった。

(2) 水およびDMFを流しながらマイクロ波を照射し、その時の上昇温度を測定することで実験的にエネルギー吸収効率を検証した。水の場合は解析値と実測値の吸収効率の差が9%以内で一致し、約90%のエ

エネルギー吸収効率であることを確認した。一方、DMF の場合は解析値と実測値の吸収効率の差が 25% 以内で一致することがわかった。

(3) マイクロ波装置の設計に重要なデータである、各化学物質の誘電特性の温度依存性を測定した。測定した物質においては、昇温とともに比誘電損率は減少することがわかった。水の場合は 25°C から 90°C に昇温すると、比誘電損率は約 1/4 になり、DMF の場合は 25°C から 90°C に昇温すると約 1/2 になることがわかった。

(4) 水および DMF を流しながらマイクロ波を照射し、その時の昇温曲線を測定した。入口と出口の温度が既知の場合、誘電特性の温度依存性を考慮した電磁波解析により水の場合は 3°C 以内、DMF の場合は 4°C 以内の精度で昇温曲線を予測可能であった。

この研究は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) による革新的部材産業創出プログラムに係る「革新的マイクロ反応場利用部材技術開発」プロジェクトの支援のもとに行った。

文 献

- (1) Kuang, C. et al., Synthesis of (Z)-1-bromo-1-alkenes and Terminal Alkynes from anti-2,3-dibromoalkanoic Acids by Microwave-Induced Reaction, *Tetrahedron*, Vol. 61 (2005), pp. 4043-4052.
- (2) Kuang, C. et al., Stereoselective Synthesis of (E)- β -arylvinyl Bromides by Microwave-Induced Reaction of anti-3-aryl-2,3-dibromopropanoic Acids Using an AgOAc-AcOH System, *Tetrahedron*, Vol. 61 (2005), pp. 637-642.
- (3) Hoz, A. et al., Microwave in Organic Synthesis, Thermal and Non-Thermal Microwave Effects, *Chemical Society Reviews*, Vol. 34 (2005), pp. 164-178.
- (4) Kappe, C. O., Controlled Microwave Heating in Modern Organic Synthesis, *Angewandte Chemie International Edition*, No. 43 (2004), pp. 6250-6284.
- (5) Leadbeater, N. E. and Marco, M., Ligand-Free Palladium Catalysis of the Suzuki Reaction in Water Using Microwave Heating, *Organic Letters*, Vol. 4, No. 17 (2002), pp. 2973-2976.
- (6) Namboodiri, V. V. and Varma, R. S., Microwave-Accelerated Suzuki Cross-Coupling Reaction in Polyethylene Glycol (PEG), *Green Chemistry*, Vol. 3 (2001), pp. 146-148.
- (7) Glasnov, T. N. and Kappe, C. O., Microwave-Assisted Synthesis under Continuous-Flow Conditions, *Macromolecular Rapid Communications*, Vol. 28 (2007), pp. 395-410.
- (8) Comer, E. and Organ, M. G., A Microcapillary System for Simultaneous, Parallel Microwave-Assisted Synthesis, *Chemistry: A European Journal*, Vol. 11 (2005), pp. 7223-7227.
- (9) He, P. et al., Microwave-Assisted Suzuki Reactions in Continuous Flow Capillary Reactor, *Applied Catalysis A*, Vol. 274 (2004), pp. 111-114.
- (10) Bremner, W. S. and Organ, M. G., Multicomponent Reactions to Form Heterocycles by Microwave-Assisted Continuous Flow Organic Synthesis, *Journal of Combinatorial Chemistry*, Vol. 9 (2007), pp. 14-16.
- (11) Shore, G. et al., Catalysis in Capillaries by Pd Thin Films Using Microwave-Assisted Continuous-Flow Organic Synthesis (MACOS), *Angewandte Chemie*, Vol. 118 (2006), pp. 2827-2832.
- (12) Wada, Y. et al., *Microwave-Assisted Chemical Process Technology*, (2006), p. 40.
- (13) Johns, P. B., A New Mathematical Model to Describe the Physics of Propagation, *Radio and Electronic Engineer*, Vol. 44 (1974), pp. 657-666.
- (14) 文献(12)の 44 ページ.
- (15) 文献(12)の 268-269 ページ.
- (16) 文献(12)の 89 ページ.
- (17) Gabriel, C. et al., Dielectric Parameters Relevant to Microwave Dielectric Heating, *Chemical Society Reviews*, Vol. 27 (1998), pp. 213-223.
- (18) Nakajima, M., *Microwave Engineering* (in Japanese), (1975), pp. 97-99, Morikita Publishing.