

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 杉浦 慎治

本論文は、微細加工技術により作製したマイクロチャネル（MC）を用いて単分散エマルションを調製する事のできる MC 乳化法について、その乳化機構と応用に関する研究を纏めたものである。乳化機構については、液滴生成機構の解析、生成する液滴径の予測および最適乳化速度の予測に関する研究が含まれている。応用については単分散脂質微粒子、高分子微粒子調製への応用、油中水滴型エマルションおよび複合型エマルションの調製に関する研究が含まれている。特に、本論文では、MC 乳化法が界面張力による自発的な形状変化に基づき液滴を生成するという新しい原理の乳化方法である点を見出すとともに、その液滴生成機構に基づいて生成する液滴径を予測するモデルおよび乳化速度を予測するモデルを提案している点に特徴がある。さらに、微粒子の調製、油中水滴型エマルション、複合エマルションの調製に応用する際に重要な因子に関して、乳化機構に基づいて界面化学的な視点と流体力学的な視点から検討している点に特徴がある。本論文は、全 9 章から構成されている。

第 1 章では、本論文の意義を明確にするために、研究の背景について述べており、微細加工技術の特徴、従来の乳化法の特徴、単分散エマルションの特徴およびその応用の可能性について述べている。

第 2 章では、MC 乳化法の液滴生成機構を解析している。MC 乳化法における液滴生成は非常に短い時間で起こるため観察が難しく、その乳化機構についてはほとんど検討されていなかった。そこでハイスピードカメラを組み込んだ顕微観察システムを構築し、MC 乳化法における乳化機構を高精度の時間分解能で解析し、界面張力による自発的な形状変化に起因する液滴生成モデルを提案した。この液滴生成機構は他の乳化法に比べて非常にユニークであり、自発的な形状変化に基づいているため、機械的乳化法に比べて 2 桁以上少ないエネルギーで乳化できる方法であることを示した。MC 乳化法の液滴生成機構は本研究において初めて明らかにされたものである。

第 3 章では生成する液滴径を定量的に予測するモデルを、液滴生成機構に基づいて提案している。提案されたモデルは実験値と比べて 5 % の誤差で液滴径を予測できることを示した。第 4 章では、MC 乳化系における流れの状態を解析している。流れの状態が劇的に変化する臨界流速が存在することを示し、均一な液滴

を安定に生産するためには臨界流速以下の速度で操作する必要があること、臨界流速をもとに乳化速度が決定されることを示した。また、無次元数を用いて解析することにより、臨界流速が界面張力と粘性力の比であるキャピラリー数から予測できることも示した。液滴径や臨界流速の予測モデルは本研究において初めて提案されたものであり、MC 乳化法をスケールアップする場合や、操作条件を決定する上で、非常に重要であり、実用化に向けた大きな貢献となると考えられる。

第5章および第6章では MC 乳化法を、単分散脂質微粒子および単分散高分子微粒子の調製に応用し、MC 乳化法を用いることにより、シード乳化重合法で得られる微粒子と同程度の単分散性を示す微粒子が得られることを示した。MC 乳化法を微粒子の調製に応用したのは本研究が初めてである。第7章では MC 乳化法の油中水滴型エマルジョンの調製への応用を検討し、第8章では、複合型エマルジョンの調製への応用を検討した。

これら第5章から第8章において、様々な系における乳化挙動の解析を通して、乳化の際に影響を及ぼす因子について液滴生成機構に基づき検討している。分散相および連続相の物性、界面活性剤の性質は、界面化学的因子として、MC 基板の濡れ性に影響を及ぼすことを示した。また、液滴径の均一なエマルジョンを安定に生成するためには MC 基板が連続相で濡れやすい条件が必要であることを明らかにした。さらに、界面張力、粘度、分散相の流速、MC のサイズおよび形状は、流体力学的因子として、流れの状態や生成する液滴径を決定する因子であることを明らかにした。油中水滴型エマルジョンや複合型エマルジョンを調製する条件について、液滴生成機構に基づいて検討したのは本研究が初めてである。

第9章においては、本研究を総括し、今後の展望を述べている。

以上述べてきたように、本論文は、MC 乳化法を研究の対象として、これが新しい原理の乳化方法であることを明らかにするとともに、その原理に基づいて操作上の指針を示し、応用の可能性を提示したものである。これらの結果は、エマルジョンやコロイドに関する基礎的研究を行うための研究ツールとして界面化学の発展に貢献するとともに、MC 乳化法を実用化する際に重要な知見となるものである。また、スケールの小さい場合に特徴的な流体力学的現象をとらえており、マイクロ流体力学の発展に貢献するものであり、微細加工技術を化学工学に応用する学際的な研究としても、重要な意味を持つものである。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。