

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 玉木 栄一郎

本論文は「ナノ流体化学プロセスの基盤技術に関する研究」と題し、近年著しい進歩を遂げているマイクロスケールの空間を利用した化学実験をさらに集積化して、ナノ空間における化学プロセスを実現するための基盤技術に関して研究した結果をまとめたものである。

第1章では、近年の $\mu$ -TASやLab-on-a-chipといわれる類似的研究の歴史的背景とその意義をまとめ、本研究の基礎となる「集積化化学実験室」という概念の有用性を示した。また、サイズ効果が液相に与える影響について概説し、ナノ空間において化学プロセスを実現することの重要性を明らかにした。さらにナノ流体化学プロセスを実現するための課題として、ナノ流体を制御するためのマイクロ・ナノ複合構造の作製と利用・ナノ空間オンライン検出のための検出法・ナノ流体制御とナノ流体化学プロセスの検証を上げ研究に対する意義を明確にし、本研究の目的を明らかにした。

第2章では、ナノ空間の流体を自在に操るためには人間のアクセスできるcmのスケールから $\mu$ mスケールの構造を経てnmスケールに至る逐次階層構造が必要であるとし、この逐次階層構造にとって最も重要なマイクロ・ナノ複合構造を作製する手法を開発した。具体的には、ナノ構造の作製及びナノ構造を破壊や変形をさせないマイクロ構造の作製が出来るようにした。この手法により実際に石英ガラス基板に溶液導入のためのマイクロチャンネルと化学プロセスのためのナノチャンネルを組み合わせたマイクロ・ナノ複合構造を作製できることを示した。マイクロ・ナノ複合構造はナノ空間で連続流プロセスを実現するのに必要不可欠であるが、ガラス基板にこのような複雑な構造を作製している研究例はない。また、マイクロ・ナノ複合構造に実際に溶液を導入すると微量な気体在中に残ってしまい、さらにラプラス圧によりナノチャンネル内の液体が動かないため、溶液操作に重大な支障が生じる。そこで、気体の混入を防ぐために手法として水に溶けやすい二酸化炭素を利用する溶液導入法を開発した。この手法はマイクロ・ナノ複合構造中で溶液を取り扱うのに重要な手法である。以上のように本章では、ナノ流体化学プロセスを実現するのに必要不可欠な、マイクロ・ナノ複合構造の作製と溶液導入法を開発した。

第3章では、ナノ空間オンライン検出のための検出法を新たに開発した。ナノ空間内にある分子を検出するには、検出絶対量が少ないために高い感度が必要になる。また、様々な化学プロセスに適用する上で汎用性が求められる。当研究室で開発してきた熱レンズ法は、適用範囲が広く検出感度が高いことで知られている。まず、実際にナノ構造を含む試料として神経細胞を直接測定し、細胞内のミトコンドリアからアポトーシスに伴って放出されるチトクロームcの細胞内分子分布を定量した。しかし、ナノチャンネルのような試料が完全にナノ空間内に限定される場合は、これまでのような溶液内にレーザーを絞り込む方

法が適用できない。そこでチャンネル全体に励起光を照射して測定する手法を新たに開発し、原理を検証した。本章で開発した検出法はナノスケールの空間で多様な分子を測定する上で不可欠な検出法であり、ナノ流体化学プロセスを実現する上で大きな役割を果たすといえる。

第4章では、ナノ空間で連続的な化学プロセスを実現するための流体制御法を開発し、ナノ空間における化学プロセスを実現した。ナノスケールのチャンネルに溶液を流す場合、極めて大きな圧力が必要である一方、体積流量は毎分ピコリットルオーダーと非常に小さく、安定に溶液を流し続けることはポンプの性能上困難である。そこで、本章ではナノチャンネルに接続したマイクロチャンネルに溶液を流し続け、背圧を制御することでナノチャンネルに安定した圧力をかける手法を考案した。この手法を用いて実際にナノチャンネルに溶液を流し、背圧に応じて流量が変化することを確認した。これまでの研究例ではナノチャンネルで溶液を流す駆動力は電気浸透流のみであり、本章のように圧力駆動で実現した例はなかった。本章で開発した流体制御法は、ナノ空間における圧力駆動による溶液操作が可能にし、水溶液系に限らない様々な溶液を用いることができるようにした点で意義がある。さらに、この流体制御法を利用して Y 字のナノチャンネルに溶液を流しプロトン脱離反応を行うことに成功し、ナノ空間における反応がバルクの反応とは異なることを示唆する結果が得られた。これまでの研究例では、ナノスケールの空間において物性を測定する例はあったが、実際に化学プロセスを実現している例はなかった。本章でナノ空間における化学プロセスを実現したことは、近年高効率化・高機能化が進んでいる  $\mu$ -TAS 分野において先駆的な意味を持つ。

第5章では、第2章から第4章までで開発したナノ流体化学プロセスの基盤技術の意義についてまとめ、展望を示した。

以上のように、本研究ではナノ流体化学プロセスの基盤技術として、マイクロ・ナノ複合構造の作製と利用・ナノ空間オンライン検出のための検出法の開発・ナノ流体制御法の開発について研究した。これらの、加工・検出・流体制御の技術は化学プロセスをナノ空間にまで集積化する上で必要不可欠な技術であり、ナノ空間における化学プロセスという新たな研究分野の確立に大きく貢献するものと期待される。

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。