

## 論文の内容の要旨

### 論文題目 マイクロ流動現象と化学プロセスに関する研究

氏名 松岡 晋弥

本論文はマイクロ空間内の流体においてのみ発現する、あるいは顕在化する特異的な現象をマイクロ流動現象と名付けてその特性を明らかにするとともに、マイクロ流動現象を利用した新規マイクロ化学プロセスの開発についてまとめたものである。本論文ではマイクロ流動現象として、界面張力による流体挙動支配、および安定な過冷却状態という2つの現象に着目し、これらの現象を利用した新規マイクロ化学プロセスを開発した。それによりこれまでのマイクロ化学システムを大きく拡張し、またマイクロ化学システムでのみ実現可能なプロセスを実現したことで、これまで実現不可能であった新しい化学プロセスを実現する手段を提供したものであり、当該研究分野の発展に大きく貢献した。

第1章では、はじめに本研究分野の歴史的背景と世界的な動向、および当研究室が独自に開発してきたマイクロ化学システムについて述べる。マイクロ化学システムを実現するための重要な概念である連続流化学プロセス (CFCP) とマイクロ単位操作 (MUO) について述べ、これまでに開発してきたマイクロ化学プロセスについて概説する。

次にマイクロ空間内の流体に特異的な現象であるマイクロ流動現象と、それらを用いた新規マイクロ化学プロセスの着想について述べる。具体的には毛管力などの表面現象を利用した流体制御法と、マイクロ空間で安定化する過冷却状態を利用した反応などの化学プロセスについて開発する。これらによりこれまで不可能であった実験を可能にするなど、マイクロ化学システムのさらなる発展に貢献するという本研究の意義を明確にし、本研究の目的を明らかにした。

第2章では、毛管力・表面エネルギーを利用した新規原理によるマイクロチャンネル内流体制御法を開発した。通常の実験装置などの空間では重力が流体挙動に支配的な力となるのに対し、マイクロチャンネル内では毛管力や表面エネルギーなど界面に起因する力が支配的となる。これはマイクロ空間特有の現象であり、この現象を利用した流体制御法が実現可能であると考えた。

流体制御法の現状として、これまで連続流化学プロセスではシリンジポンプを用いた流量制御のみで動圧のバランスをとっていた。そのため流量許容範囲が小さく、また気体を取り扱うことができなかった。気液混在系は汎用的な化学プロセスを実現する上で必要不可欠なプロセスであり、これを新規流体制御法を開発することで実現する。さらにここで開発する流体制御法を熔融金属に応用したマイクロチャンネル内へのバルク電極作製とその応用について述べる。

はじめに毛管力・表面エネルギーを用いた新規流体制御の原理について述べる。溶液にはたらく毛管力の大きさはマイクロチャンネルのサイズと溶液のチャンネル表面に対する接触角で決まる。そこでマイクロチャンネルの構造や表面の性質を適切に設計することで、毛管力・表面エネルギーを制御し、これによって流体制御が可能になると考えた。

この原理を用いた部分的溶液導入・化学修飾法を実現した。部分的溶液導入用のマイクロチャンネルとして、浅いチャンネルと深いチャンネルが接する構造のマイクロチップを設計・作製した。このマイクロチップの浅いチャンネルに疎水就職剤であるオクタデシルトリクロロシラン (ODS) 溶液を毛管導入すると、表面エネルギーのバランスにより浅いチャンネルのみに溶液を保つことができ、部分的疎水処理に成功した。ここで作製した部分的疎水化チャンネルを用いて、気泡の除去、気液二相流の形成、油水二相流からの有機相の分離に成功した。これにより、これまで不可能であった気液混在系をマイクロチャンネル内で取り扱うことができるようになり、本研究の成果を基にホルムアルデヒド分析など大気分析システムへと展開された。

また本研究で実現した新規流体制御原理を熔融金属に適用することで、マイクロチャンネル内に対向型バルク電極の作製にはじめて成功した。これまでマイクロ化学システムで用いられてきた薄膜電極では高電圧に対する耐久性や対向型電極が作製できないという問題があり、本研究で開発した手法はこれを解決するものといえる。ここで作製した対向型バルク電極を持つマイクロチップをフリーフロー電気泳動に応用し、これまでの分子の自発的な挙動のみの利用から、電場を用いた積極的な分子輸送を実現した。今後、電場を利用した反応の制御などへの展開が期待される。

以上のように第2章では、マイクロ空間で特異的な流体挙動の毛管力支配に着目し、この現象を利用した新規流体制御原理を確立した。これによりこれまで不可能であった気液プロセスを実現しマイクロ化学システムの適用範囲を拡張した。また対向型バルク電極の作製にはじめて成功し電場を用いたマイクロ化学システムの実現に貢献した。

第3章では全く新しいマイクロ化学プロセスである「過冷却マイクロ流体」の実現とその基礎的検討、さらにそれを利用した高不斉収率な不斉反応について述べた。これまでのマイクロ化学システムでは主に比界面積に着目した、プロセスの高速化・高効率化がはかられてきた。これに対し、絶対微量がもたらす本質的な特徴を用いた研究例はこれまでにあまりなされてこなかった。本研究ではマイクロ空間での過冷却状態の安定化という現象に着目した。この現象は寒冷地での動植物の生存に関する研究などから知られているが、微量の液体を取り扱うことは困難であり、これまでにこの現象を応用した研究例はほとんどない。マイクロチャンネルは微量の溶液を自由に取り扱い可能であること、低熱容量であり温度不均一を抑制でき、また潜熱を速やかに除去できることなどの性質があり、過冷却・凝固現象を取り扱うのに極めて有効である。そのためマイクロチャンネルを用いて、過冷却状態の溶液を安定に取り扱う「過冷却マイクロ流体」が実現可能であると考えた。過冷却マイクロ流体は低温ほど有利なプロセスや低温での測定が必要な化学実験に対して極めて有効な実験手段を与える。ここでは過冷却マイクロ流体の基礎的性質について検討し、これを用いた融点下の反応温度での不斉反応を実現した。

第4章では、本研究の結果とその意義についてまとめ、本研究の成果を基にした今後のマイクロ化学システムへの展望について述べた。

以上のように本論文は、これまでにない観点からマイクロ化学システムを発展させたものであり、本研究分野に対して多大な貢献をしたものといえる。