

審査の結果の要旨

氏名 松岡 晋弥

本論文は「マイクロ流動現象と化学プロセスに関する研究」と題し、マイクロ空間内の流体に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研究した結果をまとめたものである。

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、これまでの成果や課題について概説する。次に本研究の主題である「マイクロ流動現象」について、「マイクロ空間内の流体に特異的な現象」と定義し、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。具体的には界面張力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化学プロセスについて研究した。これにより気液混在系など新たな相に対する操作や過冷却液相の利用などこれまで不可能であった実験を可能にし、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、界面張力を利用した新規流体制御法を開発した。これまでのマイクロ多相流制御法では気液混在系などを取り扱うことができず、新しい流体制御法が必要であった。これを流体挙動の界面張力支配というマイクロ流動現象を利用して実現する。本章でははじめに構造・接触角・界面での圧力の3要素による流体制御の原理を示した。この原理に基づき非対称構造と部分的疎水修飾による気液マイクロ流制御構造を設計・作製した。ここで作製した非対称・部分的疎水修飾構造により気泡除去、気液二相流形成、液相分離に成功した。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、マイクロチャンネル内での電場利用プロセスを実現可能とした。

以上のように第2章では、これまで実現されていなかったマイクロ単位操作のうち気液混在系に関する操作を実現した。さらに液相分離、熔融金属選択的導入による電極作製を実現した。本研究の成果は気液二相流を利用したホルムアルデヒド測定システムや大気中アンモニアガス検出システム (NEDO プロジェクトにより開発中) など実用化に向けた研究開発の基盤技術として用いられている。

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」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。本研究ではマイクロチャネルの絶対微小体積がもたらす特異的現象として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きたが、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」が実現し、低温ほど有利な化学プロセスに応用する。

はじめに過冷却マイクロ流の基礎検討として、凝固の体積効果・CFCPへの組み込み可能性・凝固と表面との関係について検討した。その検討をもとに次に過冷却マイクロ流を不斉反応に応用した。ここではDMSO溶媒均一系反応と水溶液の過冷却マイクロ流を用いる油水二相系反応を取り上げた。どちらの結果も溶液のバルクでの凝固温度と比べて10℃以上低い過冷却域での反応が実現でき、温度低下に従ったエナンチオ選択性向上が得られた。この結果から過冷却マイクロ流を用いることによるエナンチオ選択性向上の原理を示すことができ、本手法を用いることで光学分割不要な低コスト不斉合成反応実現の可能性を示した。過冷却マイクロ流は有機化学のほか、生化学や物理化学など多くの化学の分野に対し新しい研究方法を与える物として極めて重要な成果であると評価される。

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、本研究では新しい観点からマイクロ化学システムの基盤技術を拡張し、その実用化に向けた研究に大きく貢献した。さらに過冷却マイクロ流は溶媒の融点下の温度での実験という新たな実験方法をもたらすものとして、これまでのマイクロ化学研究の枠にとどまらない幅広い興味を得て、さまざまな分野の発展に貢献することが期待される。本論文の成果は当該研究分野にとって革新的な成果であり、極めて重要であると評価される。

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。