

## 審査の結果の要旨

氏名 青田 新

本論文は「Fluid Analysis and Applications to Chemical Processes of Micro Counter-Current Flows (マイクロ向流の流動解析と化学プロセスへの応用)」と題し、近年注目されているマイクロスケールの空間中に形成した油水平行流の基礎物理特性の解明と新規化学プロセスの開発に関する研究結果をまとめたものである。基板上に作製したマイクロスケールの流路(マイクロチャネル)を利用して化学システムを集積化する技術が急速に発展している。この分野の研究は、1990年代以降急速に発展し、micro total analysis systems ( $\mu$ -TAS) や Lab-on-a-chip と呼ばれる。これまで、油が同方向に平行に流れる順流のマイクロ多相流を利用し、複数の化学プロセスを1枚のマイクロチップに集積化する連続流化学プロセスが実現された。しかし、困難な流体制御や、順流マイクロ多相流に限定される化学プロセスなどの問題がある。さらに高効率なマイクロ化学システムを実現するためには、マイクロ多相流の基礎物理特性を理解することが必須である。本研究では、マイクロ多相流の基礎物理特性を利用することで、油が平行に反対方向に流れるマイクロ向流を実現し、物理的・形成メカニズムを解明した。次にマイクロ向流中の流動解析から特異現象を見出した。さらに、マイクロ向流が化学プロセスに有効であることを示した。

第1章では、近年の $\mu$ -TASやLab-on-a-Chipの歴史的背景と意義をまとめ、本研究のマイクロ多相流を用いたマイクロ化学システムの有用性を示した。さらに高効率なマイクロ化学プロセスを実現する課題として、マイクロ空間の物理特性を利用した流体制御法の開発とメカニズムの解明、マイクロ空間における流動特性の解明、新規マイクロ化学プロセスの開発を挙げ、研究に対する重要性を明確にし、本研究の目的を明らかにした。

第2章では、マイクロ空間の物理特性を利用した流体制御法により連続流安定平行マイクロ向流を実現し、マイクロ向流形成の物理的メカニズムを解明した。まずマイクロ空間中の支配的な力が界面張力と粘性力であることを理論的に考察し、それらを利用することでマクロスケールでは非常に困難な連続流安定平行向流形成を着想した。化学修飾によりマイクロチャネル壁面を親水/疎水部分にパターンニングすることでマイクロ向流を実現した。この技術は、従来のマイクロチップよりもマイクロ順流・向流を広流量条件で形成可能にすることを示し、マイクロ化学システムの有効な基盤技術であることを示した。さらに、マイクロ向流形成を支配する力が、粘性流由来の油水の動圧差と界面張力由来のラプラス圧の釣り合いであることを見出した。従来のマイクロ多相流形成条件は経験的に決定していたのに対し、圧力の釣り合いを考慮することでマイクロ二相流形成を設計できることを示した。本章で開発した基盤技術と得られた基礎科学的知見は、新規マイクロ化学システムの設計指針となる点で大きな役割を果たすといえる。

第3章では、初めて実現したマイクロ向流の流線解析と液液界面形状解析をした。まず流速分布を、定常層流と通常の境界条件を基にして理論的に考察した。流線解析により、理論的流速分布と異なる三次元流れや、断続的に形成する渦流発生などの特異流れを見出した。次に三次元流れと液液界面形状が関係している

と着目し、形状を測定した。通常の境界条件では説明できない液液界面形状を見出し、三次元流れと関係がある可能性を示した。さらに液液形状から通常の境界条件と異なる二流体のすべりを示唆した。これらは新規科学的知見である。本章の研究で得られた基礎科学的知見は、液液界面の物理研究の新分野への展開が期待できる。また、パターンニング修飾マイクロチップは液液界面研究の基礎科学研究ツールとしても有効であるといえる。

第4章では、マイクロ向流を利用した高回収率マイクロ向流抽出を実現した。従来の順流マイクロ多相流を利用した溶媒抽出は、マクロスケールの溶媒抽出よりも10倍高速である。しかし、原理的に理論段数が1段である。そこで、マイクロ向流を溶媒抽出に適用することで、多段的な高回収率マイクロ溶媒抽出を着想した。原理検証のため、金属錯体抽出効率の流量依存を検討した。従来のマイクロ順流抽出では原理的に60.6%の回収率、1段の理論段数が限界であるのに対し、マイクロ向流抽出では98.6%の回収率、4.6段の理論段数を実現し、マイクロ化学プロセスとしての有用性を示した。本章で開発したマイクロ向流抽出は新規単位操作に適用でき、他の単位操作と組み合わせた連続流化学プロセスにより、多段合成システムなどの高効率マイクロ化学システムが期待できる点で重要である。

第5章では、第2章から第4章までで開発したマイクロ化学プロセスの基盤技術と基礎科学的知見、液液界面特性の発見、新規化学プロセスの意義についてまとめ、展望を示した。

以上要約したように、本研究ではマイクロ多相流の基礎物理特性の解明と新規化学プロセスへの応用として、マイクロ向流の実現、マイクロ向流形成の物理的メカニズムの解明、マイクロ向流中流動解析、高回収率マイクロ向流抽出の実現について研究した。本研究の成果は、化学工学的観点からマイクロ化学システムの設計指針となる点で有用であるだけでなく、基礎科学的観点から液液界面特性の物理・化学的研究に重要な知見とツールを与え、今後幅広く貢献すると期待できる。

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。