

審査の結果の要旨

氏名 佐々木 直樹

本論文は、近年著しい発展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において、電極を利用して様々な操作を実現し高機能化を図る研究の成果をまとめたものである。半導体微細加工技術を用いて基板上に作製した微小空間を化学実験に利用する研究が近年盛んに取り組まれている。従来の研究は微小空間のサイズに由来する特徴を利用してきたが、ここに種々の機能を付与し利用することでさらに高度な操作、プロセスの実現が期待される。本研究では電極を利用した機能化を着想し、電極のマイクロ集積化、及びこれを利用した微小空間中での物質合成、溶液混合に取り組んだ。

第1章では、 μ -TASやLab-on-a-Chipと呼ばれる先行研究の歴史的背景とその意義、及び当研究室で開発されてきた連続流化学プロセスの有用性を示した。さらに連続流化学プロセスの機能化を図る手法として微小空間中への電極集積化、およびこれを利用した物質移動・化学反応の積極的制御を挙げ、本研究の意義と目的を明らかにした。

第2章では、電極のマイクロ集積化法を開発した。連続流化学プロセスではガラス基板上に作製した微小流路を用い汎用的な化学プロセスが実現されているが、ここに電極を集積化した例はない。作製法および作製条件について検討を行い、微小流路内に電極を集積化した。作製した電極を光学像及び電気化学応答から評価し、溶液漏れなく作製した電極が正常に応答していることを確認した。本章で開発した電極集積化法は、連続流化学プロセスに種々の電気化学法を組み込む上で重要な役割を果たすと考えられる。

第3章では、電解合成に取り組んだ。ニトロ酢酸エチルを出発物質とするモデル反応系において、溶存酸素の電解を利用し、アルキル化及び合成化学的に有用なMichael付加が実現できることを示した。この結果は連続流化学プロセスにおける物質合成法として電解合成を利用可能であることを示している。

第4章では、交流電気浸透流を用いた溶液混合法を開発した。混合は連続流化学プロセスを制御する上で最も基本的かつ重要な操作であり、これを自在に制御することで高度・高機能なプロセスが期待できる。これまでに様々な混合手法が提案されているものの、連続流化学プロセスに適した手法はなかった。そこでマイクロ電極間に低周波(\sim kHz)の交流電圧を印加することで誘起される交流電気浸透流を利用した手法を開発した。電極形状を検討し、蛇行電極を用いて高速混合・反応を実証した。混合性能を定量的に評価し、拡散混合および既存の混合法と比べ、本手法がもっとも混合長が短く、連続流化学プロセスに適した流速範囲で高速混合が可能であることを示した。さらに印加電圧や溶液物性に対する依存性を検討し、本手法の適用範囲を明らかにするとともに、混合性能を交流電気浸透流の理論に基づく予測式から評価できることを示した。本章で開発した溶液混合法は連続流化学プロセスにおける操作時間の短縮を実現し、化学システムの高度集積化に重要な役割を果たすと考えられる。また混合性能の理論に基づく評価は、本手法を実際のプロセスに適用する際の設計指針を与えるものである。

第5章では、交流熱動電流を用いた溶液混合法を開発した。前章で開発した溶液混合法は、電気分解等の影響から溶液の塩濃度によって適用範囲が制限される。そこでマイクロ電極間に高周波(\sim MHz)の交流電圧を印加することで生じる交流熱動電流を利用した手法を開発した。高速混合・反応を実証し、高塩濃度条件ほど本手法に有利であることを示した。また塩濃度に応じて混合時に温度上昇が生じることを示し、本混合の特徴を明らかにした。本手法は温度上昇を伴うものの、第4章で開発した溶液混合法の適用できない塩濃度範囲に適用可能であり、電極を利用する溶液混合法の適用範囲を拡張したという点で意義深い。

第6章では、第2章から第5章までで開発した、電極をマイクロ集積化した化学システムの意義についてまとめ、展望を示した。

以上のように、本研究では電極を利用した連続流化学プロセスの機能化を目的とし、電極集積化法の開発、電解合成への応用、交流電気浸透流・交流熱動電流を用いた溶液混合法の開発について研究した。これらの手法は微小空間を利用する化学プロセスの新たな可能性を切り開き、今後の発展に大きく寄与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。