

審査の結果の要旨

氏名 竹井 豪

本論文は、「酸化チタンを用いたマイクロ化学システムの機能化」と題し、マイクロメートルサイズの流路(マイクロチャネル)を反応場、分析場とするマイクロ化学システムの機能化に関する研究をまとめている。マイクロ化学システムの機能化には、マイクロチャネルへの機能付与、さらに、機能を任意の場所に配置するパターンニング法が重要である。そこで、本論文では、酸化チタンの持つ光触媒能、光触媒反応を介して光活性のない有機分子や金属をパターンニングできる特長に着目した。具体的には、光触媒能合成反応への応用とマイクロチャネル内壁濡れ性の *in situ* パターンニング法の開発、応用に関して研究を行った

第 1 章では、マイクロ化学システム、半導体触媒の背景と意義をまとめ、マイクロ化学システムの機能化とパターンニング法の重要性を述べた。さらに、酸化チタンを用いたパターンニングの特徴を述べ、本論文の意義、目的を述べた。

第 2 章では、光触媒反応プロセスへの応用を検討した。薄膜触媒は微粒子触媒を用いた反応系と比較して比表面積が小さく反応効率が低い問題があった。そこで、大きな比表面積を持つ酸化チタン薄膜修飾マイクロチャネルを用い、薄膜触媒を用いて高効率な光触媒合成反応を示した。これにより、電位制御が可能な光触媒反応プロセスが集積化できた。電位による反応制御を行い、収率の向上を示した。

第 3 章では、濡れ性のパターンニング法を開発した。濡れ性パターンを利用した流体制御はデッドボリュームのない有効な流体制御法であり、濡れ性のパターンニング法は重要である。そこで、酸化チタンナノ微粒子修飾チャネルを用い、ナノメートルスケールの表面粗さと光触媒反応を利用したチャネル内壁濡れ性の *in situ* パターンニング・チューニング法(PCPT 法)を提案、実証した。これにより、超撥水から超親水の任意の濡れ性を自在なパターンニングすることが初めて可能となった。この特徴を利用し、マイクロチャネル内に異なる複数のラプラス圧を誘起し、これをストップバルブとして流体制御に応用した多段ラプラスバルブを示した。

第 4 章では、第 3 章で開発した多段ラプラスバルブを利用し、マイクロバッチシステムを構築した。連続流を用いる既存の連続式のマイクロ化学システムでは、微小体積を規定した滴定などの定容量分析を取り扱うことが困難であった。そこで、サブナノリットルの溶液を簡単に扱うことができ、バッチ操作を取り扱えるシステムを光パターンニングにより構築した。サブナノリットルの溶液混合、反応を行い、定量性の評価を示した。マイクロバッチシステムにより、微小サンプルを用いた定容量分析システムの構築が可能となった。

第 5 章では、PCPT 法を利用したセグメント流を用いたマイクロ化学システムの構築を示した。セグメント流は相分離する手法が無かったため、化学プロセスを連続流により接続したシステムの構築に用いることは難しかった。そこで、PCPT 法により作製した超親水・超撥水のパターンニング表面を用いて、セグメント流の

相分離を実現した。また、セグメント流の相分離メカニズムを明らかにし、相分離可能な圧力範囲がラプラス圧によって決まることを示した。最も大きなラプラス圧を誘起できる超親水、超撥水のパターンニング表面は、安定な油水系マイクロ化学システムの構築に大きく寄与すると考えられる。次に、セグメント流の特徴を活かした反応プロセスとして、セグメント流と濡れ性制御を用いた反応空間制御による反応制御を提案、実証した。さらに、セグメント流を用いた反応プロセスと相分離を組み合わせたシステムを、有機分子、金属を連続的にパターンニングにすることで構築し、セグメント流を用いたプロセスを連続流により接続したシステムを実証した。

以上のように、酸化チタンのマイクロ化学システムへの集積化により、光触媒反応だけでなく、有機分子や金属のパターンニング、チューニングが可能となった。それにより、チャンネル作製後に任意の場所に必要な機能を付与できる自由度の高いシステム構築が可能になり、マイクロバッチシステムやセグメント流を用いたマイクロ化学システムの構築が可能となった。これらの成果はマイクロ化学システムの発展に大きく寄与するものである。

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。