

## 審査の結果の要旨

氏名 中井 隆志

本論文は、「マイクロピラーアレイを有するガスクロマトグラフィカラムの設計」と題し、分離性能を高めるのに適したマイクロガスクロマトグラフィカラム（マイクロ GC カラム）の設計指針を明確にするとともに、そのような微細構造に成膜可能な新規な固定相材料を提案している。論文は全六章から成っている。

第一章は序論であり、マイクロ GC カラムの分離性能向上に向けた課題を整理し、具体的な研究目標を明らかにしている。分離性能の向上のためには、カラムの代表長さ（矩形断面の開管カラムでは幅）と固定相膜厚を減少することが重要であるが、従来のマイクロ GC カラムでは、圧力損失の増大や固定相量の減少による保持力の低下、均一な成膜の困難化という課題が生じる。また、そのような課題を解決するため、マイクロピラーアレイを持つ半充填カラムや新たな固定相材料が提案されているが、それぞれ、設計指針が未知、カラム角部での不均一性やカラム接合の工程が煩雑という課題が残っている。以上の議論から、本論文では、シミュレーションによって半充填カラムの設計指針を明確にすることと、新たな固定相材料を提案することが、具体的な研究目標であることを明らかにしている。

第二章では、シミュレーションによって半充填カラムの設計指針を明らかにしている。まず、マイクロ GC カラムの分離性能を評価できるシミュレーションモデルを初めて作成し、その妥当性を確認している。次に、シミュレーションによって、分離性能の向上にとって、ピラー間距離の短縮がピラーの配置による流れ場の均一化よりも支配的であることを示している。これより、まず装置の圧力限界などからピラー間距離を決定し、次いで流れ場が均一になるようなピラー配列を決定するという設計指針を明らかにしている。また、半充填カラムの曲部での分離性能劣化を定量的に評価し、曲部が分離性能劣化に大きく影響しないことを示している。

第三章では、新しく固定相材料として提案した官能基を持つポリパラキシリ

レン（パリレン）の分離性能評価について述べている。パリレンは、従来の固定相材料とは異なり、気相成長によってコンフォーマルな成膜ができ、接合材料としても利用できるなど、固定相材料としての利点を有している。しかしながら、パリレンは、従来の固定相材料と異なり、結晶性が高いという欠点を有するため、パリレンのフェニル環に官能基が存在することによって結晶性が低くなる性質に着目し、アミノメチル基を持つパリレンやエチル基を持つパリレンを固定相材料として提案している。官能基を持つパリレンと持たないパリレンを一般的な開管カラムに成膜し、分離性能の比較を行った結果、官能基を持つパリレンが 10 倍以上高い分離性能を持つことを明らかにしている。特にエチル基を持つパリレンは、極性無極性に関わらず、良好なピークの対称性と高い分離性能を持ち、一定膜厚以下では、高性能な固定相とみなせることを示している。

第四章では、パリレンを固定相材料として用いた半充填カラムの分離性能を実験によって評価している。エチル基を持つパリレンを固定相として利用し、ピラー間距離  $20\ \mu\text{m}$  の半充填カラムとピラー間距離  $30\ \mu\text{m}$  の半充填カラムの分離性能を比較した結果、ピラー間距離が短い半充填カラムの方が 1.5 倍高い分離性能を示しており、第二章で行ったシミュレーション結果と良い整合性を示している。このことから、半充填カラムのような微細構造を持つマイクロ GC カラムの固定相材料として、官能基を持つパリレンが有用であることを主張している。

第五章では、単層カーボンナノチューブの固定相材料への応用可能性について述べている。低沸点化合物の分離を目的にしたマイクロ GC の固定相材料には、高いガス吸着量を持つ固定相材料が望まれており、本論文では、優れた化学的・熱的安定性と高い体積比表面積を有する単層カーボンナノチューブに注目している。これまで先行研究では、単層カーボンナノチューブの純度の低さが問題と考えられるため、高い純度を持つ単層カーボンナノチューブのガス吸着量の評価とマイクロ GC カラムへの直接生成を行っている。その結果、高い純度を持つ単層カーボンナノチューブのヘキサンに対する吸着量が市販の吸着剤よりも優れていることを示すとともに、ガス分離特性を評価するには生成量が不十分ではあるが、高い純度を持つ単層カーボンナノチューブを流路の一面に直接生成することに成功している。

第六章は結論であり、本論文で得られた知見と成果についてまとめている。

以上、本論文では、マイクロ GC カラムの分離性能の向上を目的として、マイクロピラーを持つ半充填カラムの分離性能を、曲部を含めてシミュレーションによって初めて評価し、半充填カラムの設計指針を明らかにしている。また、

半充填カラムのような微細構造に適した新しい高性能な固定相として官能基を持つパリレンを提案し、実際に成膜した半充填カラムを製作してその有用性を示している。さらに、単層カーボンナノチューブのガス吸着量を評価し、固定相材料としての可能性を明らかにしている。

本論文の成果である、半充填カラムの設計指針や新しい固定相材料に関する知見は、高感度・高選択的な小型ガス分析装置の実現に大きく貢献するのみならず、学術的にも分離科学や分析化学の発展に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。