

| | |
|---------|---|
| 氏名 | 安川 政宏 |
| 授与した学位 | 博士 |
| 専攻分野の名称 | 環境学 |
| 学位授与番号 | 博甲第4653号 |
| 学位授与の日付 | 平成24年 9月27日 |
| 学位授与の要件 | 環境学研究科 資源循環学専攻 (学位規則第5条第1項該当) |
| 学位論文の題目 | Microfluidics と水性二相界面を利用した機能性材料調製に関する研究 |
| 論文審査委員 | 教授 木村 幸敬 教授 小野 努 教授 加藤 嘉英 |

学位論文内容の要旨

本論文ではサイズ、形状、構造を高度に制御した機能性材料の創製を目的とし、Microfluidics（マイクロ流体工学）を利用した環境低負荷型高付加価値材料調製プロセスを提案した。マイクロ空間の特徴を活かした流体操作は、バルク系と比較してエネルギー効率や流体の制御性が圧倒的に有利になる利点を持つ。本研究では主に用いられている水-油間の異相界面に加え、水-水間の異相界面をマイクロ空間内で制御し、更に機能性材料調製プロセス開発に関する検討を行った。

水溶性界面と従来の水-油界面を組み合わせることによって新規な複合エマルジョン（water-in-water-in-oil, W/W/O 型）を提案した。W/W/O 液滴の内部構造は、W/W の体積比によらずにある決まった相が常に外側を占める傾向が見られ、油相に対して親和性の高い高分子濃厚相が外側を位置することが実験結果および拡張係数理論より明らかとなった。

Microfluidics を利用して得られた様々な微小液体形状は「液滴」「スラグ」「ジェット」に大別され、界面張力や流体速度を制御することで水-油界面および水-水間の界面を制御し、様々な微小液体形状が得られることを示した。更に、光重合を組み合わせた検討より、off-chip 光重合よりも on-chip 光重合の方が優位であることを示した。Microfluidics によって得られる様々な形状の微小液体をテンプレートとし、ゲル粒子、ロッドゲル、マイクロゲルファイバー調製プロセスを開発した。

Microfluidics を利用し W/W/O エマルジョンの単分散化を達成した。界面自由エネルギーを考慮しつつ、内部体積比を変更することで、コアシェル構造を維持したまま体積比の制御が可能であることを示した。W/W/O 系を経由した新規ヒドロゲルカプセル調製法を提案し検討を行った所、光重合時に生じる内部構造の変化は、高分子の分子量増大に伴う水-水間の界面張力の増大がドライビングフォースであると理論式より導くことができ、理論を基に調製条件を考慮することでヒドロゲルカプセルの形状を制御できることを明らかとした。

マイクロサイズのゲル粒子の高分子ネットワークのデザインは、従来のマクロな系と比較すると界面の影響を非常に受けやすく、適切に調製条件を選択する必要があることを明らかとした。結果として、調製条件を適切に選択し、ゲル粒子内部におけるネットワーク構造を設計することにより、新規機能性コロイド材料として、単分散 DN ゲル粒子を創製することに成功した。

以上の検討から、環境低負荷プロセスである Microfluidics に関する基礎的な研究を基に、コロイド材料調製に関する検討を行い、水-油界面および水-水界面を利用した新規コロイド材料調製プロセスを開発した。またサイズ、形状、構造の制御に優位性を有している Microfluidics を用いて、更にネットワーク構造制御の概念を加え、新規コロイド材料の開発に成功した。本研究により得られた様々な知見は Microfluidics に関連する研究だけに留まらず、様々なコロイド材料調製プロセスに関する十分な知見になると考えられる。

論文審査結果の要旨

マイクロ流体工学とも呼ばれる Microfluidics を利用したプロセスは、マイクロ空間での流体の高度な制御が可能でエネルギー効率としても有利な特徴を有する。近年では特に、水と油の二相によるエマルションあるいは複数の相を含む複合エマルションの制御に用いられ、それらをコアとした新規機能性材料の調製が注目されている。本論文では、水-油異相界面に加え、水性二相界面をマイクロ空間内で制御し、それを基礎にして機能性材料調製プロセスの開発および理論構築を行っている。特に、サイズ・形状・構造を高度に制御した機能性材料の創製を環境低負荷型プロセスで調製することを目的としている。具体的には、第1章の緒言に続き、W/W/O型複合エマルションの創製とその液滴平衡配置理論の構築と題した第2章では、通常、水性二相では高分子濃厚相の体積比によって連続相と分散相が決まるが、二相を油相に分配させたW/W/O型複合エマルションでは、二つの水相の界面活性の差により拡張係数理論に従った内水相と中間相の配置になることを明らかにしている。また、高分子の種類、界面活性剤の種類、油相の種類を変更することで、二重円構造、ヤヌス構造、ドングリ型構造などに形状を制御できることも明らかにしている。第3章ではMicrofluidicsを用いたゲル材料の形態制御として、サイズおよび形状の揃った球状・ロッド状・ファイバー状のゲルを、Microfluidicsを用いたそれぞれ「液滴」・「スラグ」・「ジェット」形成技術より連続的に調製するプロセスを構築提案している。第4章では、第2章での理論と第3章での液滴制御の技術を組み合わせ、Microfluidicsを利用した新規ヒドロゲルカプセルの調製法の開発として、W/W/O型エマルションの内水相と中間相の体積の高度な制御と単分散化を成功させ、中間相のみのゲル化も実現することで膜厚を制御したヒドロゲルカプセルの調製プロセスを提示している。本プロセスは内水相およびゲル相がそれぞれ水相であるので、水-油異相で調製させるカプセルとは異なり、水溶性の物質を内包させるカプセルとして非常に有利なカプセルとなる。本章では、内包できる物質のサイズについても検証している。第5章では、ヒドロゲルカプセルの実用化に必要なカプセル強度の向上をめざして、ダブルネットワークゲルについて検討し、強度向上に成功している。以上、本論文は、Microfluidicsであまり用いられなかった水性二相を利用し、その特長を活かした高度に制御された機能性素材を調製できる新規なプロセスを提案し、理論的考察も行っている。よって、本論文は十分に博士（環境学）の学位論文に値するものと認める。