

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	氷マイクロフルイディクス．氷を用いたサイズチューナブルな分離場の創出と凍結濃縮溶液の物理化学的性質の解明
Title(English)	Ice Microfluidics. Ice as Size-tunable Separation Field and Physicochemical Nature of Freeze Concentrated Solutions
著者(和文)	稲川有徳
Author(English)	Arinori Inagawa
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10723号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:岡田 哲男,石谷 治,小松 隆之,西野 智昭,福原 学
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10723号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	稲川 有徳		
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名
	主査	岡田 哲男	教授		福原 学	准教授
	審査員	石谷 治	教授	審査員		
		小松 隆之	教授			
		西野 智昭	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、"Ice Microfluidics. Ice as Size-Tunable Separation Field and Physicochemical Nature of Freeze Concentrated Solutions"と題し、6 章からなっている。

第 1 章"General Introduction"では、本論文の主題である氷、凍結溶液の一般的な性質について述べると共に、本論文と関連するナノ・マイクロフルイディクス研究の現状を俯瞰し、さらにナノ空間の化学について言及している。それらに基づき、水溶液凍結系において氷と共存する凍結濃縮液相(FCS)の性質を利用した新たな分離法を提案することと、これまでほとんど知られていない FCS および氷/FCS 界面の物性の解明を本論文の目的とする旨が述べられている。

第 2 章"Ice Grain Boundary Electrophoresis"では、凍結水溶液の表面に生じる FCS に満たされた氷粒界を、サイズ可変性を有する分離場として提案している。凍結スクロース水溶液表面にはデンドライトの成長に伴い、長さ数百 μm の FCS チャンネルが生成することを見出している。これをサイズ可変な分離チャンネルとして用いて、そこでの粒子の移動特性を明らかにしている。すなわち、直径 210 nm から 3.8 μm の粒子の移動を氷の温度を変えるだけで自在に抑制できることを示している。氷を用いることで従来のナノ・マイクロフルイディクスデバイスで用いられているガラスや高分子材料では達成不可能であった分離特性を引き出せると述べている。

第 3 章"Migration Behavior of Biomaterials in Ice Grain Boundary Channel"では第 2 章で確立した方法の生体物質への展開について述べている。酵母細胞や巨大 DNA については第 2 章の概念がそのまま適用できること、pH 調整により生じる粒子状態の DNA とランダムコイル状態 DNA では移動特性が異なることを明らかにし、これらが氷の壁からの物理的な干渉によるものであると述べている。また、この方法を不凍タンパク質(AFP)と氷表面間の化学的な相互作用の評価に展開している。すなわち、マイクロ粒子表面に AFP を修飾し、粒子の氷粒界チャンネルにおける移動特性から相互作用の程度を評価している。氷粒界チャンネルの壁は氷結晶のプリズム面であることから、この結晶面に特異的な AFP の相互作用が評価できたとしている。

第 4 章"Ice Zeta Potential Measurement" ではバルク氷中に作成したマイクロチャンネルを利用し、氷/液相界面を安定に維持することに成功したと述べている。このチャンネル内を泳動するマイクロ粒子の見かけ速度から電気浸透流速を求め、さらに氷のゼータ電位を決定している。その pH、塩濃度依存性から、氷表面の OH ダングリングボンドの解離定数、イオンの吸着平衡定数などの算出を行っている。これらの結果から OH ダングリングボンドのうち解離に関与するものは 1%以下であること、イオンの吸着と水和の間には相関があることを指摘し、このことからイオンは水和類似の機構により氷表面に吸着していると推論している。

第 5 章"Viscosity Measurement of Freeze Concentrated Solutions Confined in the Space Surrounded by Ice Crystals"では $\text{Rb}(\text{bpy})_3^{2+}$ の消光反応とローダミン 6 G の自己相間分光によって水/グリセロール系の FCS の粘性率を決定し、その結果を議論している。二つの分光測定結果には良い相関が見られ、グリセロール濃度が低いほど、また凍結温度や測定温度が低いほどバルク状態に比べて粘性率が高くなることを見出している。氷/FCS 界面は剛直ではなくゆらぎを持っており、界面の影響が通常の固液界面に比べて液相内部に及んでいると述べている。

第 6 章"Conclusions and Outlook"では論文を総括すると共に、本論文に基づいて展開可能な研究について述べている。

以上要するに、本論文は、水溶液を凍結した際に生じる FCS に着目し、FCS 体積の温度、溶質濃度変化を巧みに利用することで、新しい分離概念を提案し、それを化学的相互作用の評価に発展させると共に、氷/FCS 界面の静電的特性、FCS の粘性およびその空間サイズ依存性を明らかにしている点で理学上貢献するところが大きい。これにより、博士(理学)の学位論文として十分価値があるものと認める。