

学位論文の審査結果の要旨

本論は、水液滴の乾燥現象を活用したヒドロゲル微粒子分散液の自己組織化に関する内容である。最初に、コロイド界面科学の観点から、合成した単分散ゲル微粒子の濃度、化学種、電荷等の各パラメーターが与える影響を精査し、一連のゲル微粒子薄膜の形成過程に与える影響を実験的に検討している。そして、明らかとなった薄膜形成過程を活用し、ゲル微粒子独自の高い分散安定性に注目し、カチオン性並びにアニオン性ゲル微粒子の混合による集積化を検討している。

第一章第一節では、poly(*N*-isopropylacrylamide)(pNIPAm)ゲル微粒子をモデルとし、そのゲル微粒子薄膜形成過程の精査を行っている。特に、分散液内の微粒子の挙動を、液滴の気水界面、液中、基板上の3か所に注目し、顕微鏡法により直接追跡している。その結果、ほとんどのpNIPAmゲル微粒子が数分で気水界面に吸着しており、間隔を空けた構造を形成した上で、固体基板上に転写されていくことが明らかとなった。第一章第二節では、各種アクリルアミド誘導体から構成されたゲル微粒子に拡張し、気水界面へのゲル微粒子の吸着には、pNIPAm側鎖に位置する両親媒構造のみならず、ゲル微粒子の水和状態の違いに起因する高分子鎖の広がり的重要性の結果を実験的に明らかとしている。

第二章第一節では、微細な微粒子集積構造の多様化に向け、ゲル微粒子特有の高い分散安定性に注目し、カチオン性、アニオン性のヒドロゲル微粒子を混合した際のコロイド安定性について検討している。一般的に、電解質の添加はコロイド安定性の低下につながるが、カチオン性・アニオン性のヒドロゲル微粒子を混合した場合、添加塩の効果により異なる電荷を有したゲル微粒子が共存しうることが見出された。

第二章第二節では、第一章で検討した薄膜形成過程の知見と結び付け、実際に気水界面においてゲル微粒子の集積化とその集積体の多様化について検討した。気水界面にて直鎖や分岐鎖といった特徴的な集積体を得られることが示されている。また鎖状構造の形成には、カチオン性、アニオン性のゲル微粒子分散液を混合する際のゲル微粒子の濃度比と塩濃度が重要な因子であることが見出されている。

第三章では、上記した知見より得られた微粒子集積体の活用を意図し、ゲル微粒子内へのイオン液体の導入が試みられている。この検討から、これまでは特殊な装置が必要であったゲル微粒子の膨潤状態の観察が、汎用的な走査型電子顕微鏡にて可能であることを示している。この知見は、ゲル微粒子観察法の発展だけでなく、イオン液体で膨潤したゲル微粒子としての発展にも期待できる。

上述してきた検討結果は、筆頭著者として2報、計4報の学術論文にまとめられている。また、国際的な学術雑誌に掲載されていることから、本論の学術的意義は高いことが分かる。そして、上記事項より、スマート材料工学講座の規定も満たしている。以上より、審査委員全員一致で本論文は博士学位論文に値すると判断した。

公 表 主 要 論 文 名

Daisuke Suzuki, ●**Koji Horigome**:

“Binary Mixtures of Cationic and Anionic Microgels”

Langmuir, 27(20), pp12368-12374 (2011)

●**Koji Horigome**, Daisuke Suzuki:

“Drying Mechanism of Poly(*N*-isopropylacrylamide) Microgel Dispersions”

Langmuir, 28 (36), pp12962-12970 (2012)

Daisuke Suzuki, ●**Koji Horigome**:

“Assembly of Oppositely Charged Microgels at the Air/Water Interface”

The Journal of Physical Chemistry B, 117, pp9073-9082 (2013)

●**Koji Horigome**, Takeshi Ueki, Daisuke Suzuki:

“Direct Visualization of Swollen Microgels by Scanning Electron Microscopy Using Ionic Liquids”

Polymer Journal, doi:10.1038/pj.2015.103, (2015) in press