

学位論文の審査結果の要旨

本学位論文は、高分子微粒子を用いることでハロゲン化合物の選択的な吸脱着を目指した内容である。研究内容は新規微粒子の合成および評価からはじまり、ハロゲン化合物の吸脱着挙動の物理化学的考察、ならびにハロゲン化合物の選択的吸着という材料化学的な展開がなされている。特に、非共有結合相互作用であるハロゲン結合に注目し、ハロゲン結合アクセプターとなる官能基を有する高分子である poly(2-methoxyethyl acrylate) (pMEA) およびその類似体を微粒子の骨格に選択し、ハロゲン化合物の選択的な吸着と放出量の制御を試みている。

第一章では、高分子微粒子の合成および物性評価を実施している。ハロゲン化合物を吸着する微粒子は乳化重合法または沈殿重合法によりサイズ・サイズ分布を制御できることを明確化し、水溶媒中で微粒子を得る事に成功している。また、pMEA 微粒子は血漿タンパク質の非特異吸着を抑制する効果を有することが確かめられ、更に、微粒子の固体基板に対するコーティングや自立する薄膜の形成を確認している。

第二章では、第一章で合成した高分子微粒子のハロゲン化合物の吸着および脱着挙動を評価している。異なるハロゲン種を持つ有機染料をモデル分子とし、粒子表面の化学種が異なる一連の高分子微粒子に対する吸着等温線解析によってハロゲン化合物が微粒子表面に強固に吸着することを実証している。一方、その強い結合により、pMEA 微粒子表面に吸着したハロゲン化合物の洗浄による脱着が困難であることも確かめられた。そこで、温度応答性を有するハイドロゲル成分に対し、固体状の高分子をナノコンポジット化したところ、ゲル微粒子の温度変化に伴う脱水和により、吸着したハロゲン化合物の脱着が可能となることを発見している。また、このナノコンポジットゲル微粒子を凍結乾燥させて得た粉体をカラム充填剤として使用し、迅速かつ高精度でハロゲン化合物を分離可能であり、水分散体以外の応用展開を見据える事ができている。

第二章の結果を受け、第三章では、側鎖の酸素－炭素結合の数が異なる pMEA 類似体に注目し、側鎖の極性が異なる場合のハロゲン結合能について調査している。一連の検討の中で、ハロゲン結合力が最も高いヨウ素を持つ化合物は吸着を示すが、臭素化合物に対しては親和力が大きく低下する高分子化学種を見出している。その特徴を利用し、ヨウ素化合物と臭素化合物およびハロゲン種を有さない化合物の混合水溶液からヨウ素化合物のみを高選択的に回収することを達成し、ヨウ素化合物を高選択的に回収する材料として

本研究で合成した高分子微粒子が有用であることを示している。

上述してきた検討結果は、筆頭著者として査読付きの 3 報の国際的な学術論文にまとめられており、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

1. Takuma Kureha, Seina Hiroshige, Shusuke Matsui, and Daisuke Suzuki*:

“Water-immiscible bioinert coatings and film formation from aqueous dispersions of poly(2-methoxyethyl acrylate) microspheres”

Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, Elsevier, 155, pp166-172 (2017)

2. Takuma Kureha, Yuichiro Nishizawa and Daisuke Suzuki*:

“Controlled Separation and Release of Organoiodine Compounds using Poly(2-methoxyethyl acrylate)-analogue Microspheres”

ACS Omega, American Chemical Society, 2, pp7686-7694 (2017)

3. Takuma Kureha and Daisuke Suzuki*:

“Nanocomposite Microgels for the Selective Separation of Halogen Compounds from Aqueous Solution”

Langmuir, American Chemical Society, 34, pp837-846 (2018)