

審査の結果の要旨

氏名 吉尾 正史

近年、自己組織化プロセスを利用して、ナノからマイクロメートルスケールまでの階層的な秩序構造を有する電子・イオン伝導性有機材料の構築が大きな関心を集めている。これらは、次世代のエネルギー・情報伝達材料としての展開が期待されている。本論文は、高イオン伝導性、不揮発性を示すイオン性液体に着目し、イオン性液体を組織化した新しい液晶性分子集合体の構築と配向制御による異方的イオン伝導機能の発現に関する研究について述べている。本論文は、以下の5章から構成されている。

第1章は序論であり、イオン性液体、液晶材料、および関連する分子集合体の物性と機能について紹介している。さらに、イオン伝導性を示す液晶材料開発の経緯について述べ、これらの研究背景をもとに、本研究の目的と意義について述べている。

第2章では、汎用のイオン性液体と水素結合性の低分子液晶との複合化および自己組織化による液晶性分子集合体の構築について述べている。単独では秩序構造を形成しないイオン性液体を層状・カラム状に組織化するために、水酸基を有する棒状あるいは扇状の液晶性分子を設計合成している。これらの分子とイオン性液体が水素結合を介して自己組織化し、ナノスケールで相分離させることにより、イオン性液体がスメクチック層状構造の層間およびヘキサゴナルカラムナー構造のカラムの中心に組織化できることを示している。さらに、これらの分子集合体を均一に配向制御することにより、異方的なイオン伝導機能が発現することを明らかにしている。高異方性・高イオン伝導性を示す液晶材料を開発するためには、ナノスケールのイオン伝導パスをマクロスコピックに配向させることが重要であると結論づけている。

第3章では、イオン性液体の性質を示す分子の化学修飾によるイオン性液晶の開発とイオン伝導特性について述べている。イオン性液体の中でも高イオン伝導性を示すイミダゾリウム塩に着目し、自己集合してカラムナー構造を形成するように、扇状のフェニルアルキル部位を導入した誘導体を設計している。アルキル鎖がエチル基からオクタデシル基まで変化したテトラフルオロボレート塩、およびアルキル鎖をドデシル基に固定してアニオンを変化させた塩を合成し、液晶性とイオン伝導性を比較している。イオン絶縁性部位として機能するアルキル鎖がより短い塩ほど高イオン伝導性を示すが、異方性が小さくなることが示され

ている。また、アニオンが大きいほど高イオン伝導性を示すが、液晶性が低下することが述べられている。これらの結果は、カチオンであるイミダゾリウム環の共鳴構造とアニオンとの相互作用と関連させて考察することで、ある程度説明できると結論づけている。

第4章では、異方的なイオン伝導性を示す高分子フィルム材料の作製について述べている。第3章で示した分子設計に基づいて、メタクリレート基やアクリレート基などの重合基を導入したイオン性液晶を合成している。棒状および扇状のイミダゾリウム塩が、それぞれスメクチック液晶相およびカラムナー液晶相を形成することが示されている。これらのモノマーに光ラジカル開始剤を混合し、液晶相において均一配向させた状態で光重合することにより、モノマー状態の配向構造を維持した機械的に安定な高分子フィルムを得ることに成功している。これらのフィルムに対して異方的なイオン伝導度を測定しており、高分子化することにより異方性が向上することが示されている。この結果は、液晶性ナノ構造が重合により安定化されることで、イオン伝導パスの揺らぎが低下し、伝導パスに垂直な方向へのイオンの拡散が効率よく抑制されるためと結論づけている。

第5章は、本論文の結論であり、本研究を通して得られた知見および新しいイオン伝導性液晶材料の開発指針について述べている。

以上のように、本論文はイオン性液体の組織化による液晶化と配向制御による異方的イオン伝導機能の発現に関する研究について述べたものであり、今後の自己組織性機能材料の開発に大きく貢献するものである。

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。