

論文審査の結果の要旨

氏名 岡部 哲士

本論文は3部（9章）からなり、第1部は小角中性子散乱法の整備、第2部はブロック共重合体水溶液系の構造とダイナミクス、第3部はオイルゲル化剤系の構造とダイナミクスについて、それぞれ述べられている。以下では各部についての概要と評価について述べる。

第1部では実験手法としての小角中性子散乱の信頼性向上のため、(1) 実験装置 SANS-U のアップグレード（第1章）、および(2) 中性子非干渉性散乱強度の理論的導出（第2章）について述べられている。(1) は、物性研究所の装置として全国共同利用に供する SANS-U の老朽化対策と性能向上を主な目的として、論文提出者が中心となりアップグレード作業および性能評価が行われたものである。これにより、装置の性能や保守性はもとより、SANS の実験効率も飛躍的に向上し、ユーザーに求められる労力が大幅に減少した。一方、(2) では特にソフトマターの中性子散乱において構造情報を埋もれさせてしまう水素原子からの非干渉性散乱の寄与を、理論的に見積もって差し引く方法を記述しており、特にソフトマターの中性子散乱において精密な構造解析を支持する方法として有用である。

第2部では、工業的にも広く利用され、学問的にも興味深い高分子であるブロック共重合体の環境応答性に着目し、溶液中で物理ゲル化するメカニズムについて述べられている。第3章では温度誘起型と称される、ブロック共重合体水溶液において、物理ゲルが形成される過程およびその構造が調べられており、ブロック共重合体同士が会合して高分子ミセルを形成し、これが格子状に配置することにより物理ゲル化が起こることが明らかにされた。さらに第4章では、特にダイナミクスの観点からこの構造の特徴、すなわち非エルゴード性をもった凍結構造であることが明らかにされている。これらは、ブロック共重合体水溶液における物理ゲル化現象の解明の基礎となるものであり、続く第5、6、7章での溶媒誘起型およびグラジエント型の構造転移過程と比較される。温度誘起型に比べて、溶媒誘起型では構造転移は連続的に起こることが示されており、これは高分子と溶媒との相互作用の強さが連続的に変化すると考えにより説明された。また6、7章では、グラジエント型では高分子ミセルの形成機構がブロック共重合体とは異なり連続的に成長する過程が観測され、これは新奇な構造形成モデルであるリールイン現象により説明された。すなわち、分子内における溶媒との相互作用の強さが環境に応じて連続的に変化することで引き起こされることが明らかにされた。結論として、高分子と溶媒の組成を選択することにより、形成されるマイクロ構造と構造転移の連続性を精密に制御できることが実験的に示されたのであり、今後の高分子科学に対して有用な知見を与えると考えられる。

第3部では、オイルゲル化剤と呼ばれる、油や有機溶媒をゲル化させることができる

低分子化合物がどのようなメカニズムによってゲルを形成するのか、ミクロ構造とダイナミクスの観点から行われた研究について述べられている。第8章では新奇なシロキサン骨格を有するオイルゲル化剤が有機溶媒中で形成する構造の基本単位が円柱状であることが明らかにされている。さらに第9章では、様々な化学構造のオイルゲル化剤がどのような構造のゲルを形成するのかについて系統的な実験を行い、ゲルの構造を決定するだけでなく、分子間相互作用の指向性が重要であること、すなわち、水素結合を介した一次元的な高次構造を形成しうる分子がオイルゲル化剤として適していることを見出した。これは、従来知られていたオイルゲル化剤としての必要条件に加えて、合成化学者にとっての有用な情報となりうるであろう。

なお、各章で述べられた研究は下記の方々との共同研究であるが、すべて論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。(敬称、所属略)

第1章：長尾道弘、狩野武志、渡邊聡、安達智宏、清水裕彦、柴山充弘

第2章：柴山充弘、長尾道弘、狩野武志

第3、4章：杉原伸治、青島貞人、柴山充弘

第5章：布施千絵子、杉原伸治、青島貞人、柴山充弘

第6、7章：瀬野賢一、金岡鍾局、青島貞人、柴山充弘

第8章：柴山充弘、安藤圭一、英謙二

第9章：英謙二、柴山充弘

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。