

# 論文審査の結果の要旨

氏名 浅井 華子

本論文は、4分岐 poly(ethylene glycol) から成る網目とイオン液体を溶媒とする高強度ゲル(tetra-PEG イオンゲル)を合成し、溶媒和構造から網目構造に至る幅広い長さスケールでの構造解析を行った研究についてまとめたものであり、5章より構成される。第1章では研究背景と目的、第2章では得られた tetra-PEG イオンゲルの各種物性測定の結果、第3章から第6章では光・中性子・X線散乱・分子動力学シミュレーションを主体とした構造解析の研究について述べられている。各章の概要は以下のとおりである。

第1章では、序論としてイオン液体や Tetra-PEG ゲルなど本論文で扱う物質についての研究背景、さらに本論文中で使用した実験装置や考察に用いた理論の解説など、本研究に関する基礎的な知見がまとめられている。

第2章では、Tetra-PEG イオンゲルの合成手順および Tetra-PEG イオンゲルの各種物性測定結果について記述されている。Tetra-PEG イオンゲルは骨格である PEG の熱分解温度まで熱に対して安定であり、数wt%程度の低ポリマー濃度であっても4倍程度まで伸長でき、その引張り強度は数 kPa に達した。さらに、導電率は純粋なイオン液体の約 90 %程度を保つことができ、イオン液体由来の物性と、Tetra-PEG 網目由来の高強度性の両方を十分に併せ持つイオンゲルを合成することに成功した。

第3章では、時分割動的散乱測定を用いた Tetra-PEG イオンゲルのゲル化過程のダイナミクス変化について記述されている。重なり濃度付近でのイオン液体中でのゲル化反応過程を水中での結果と比較することによって、イオン液体中では tetra-PEG マクロマーの拡散が遅く、そのためにゲル化反応が進行しづらくなっていることが明らかとなった。

第4章では、小角中性子散乱(SANS)を用いた tetra-PEG イオンゲルの網目構造解析につ

いて記述されている。イオン液体中と水中とでは形成される Tetra-PEG 網目がどのように異なるのかを、Tetra-PEG マクロマーの分子量と濃度を変量させることによって詳細に考察している。Tetra-PEG マクロマー/イオン液体溶液の SANS 測定結果から、Tetra-PEG マクロマーは重なり濃度以上では互いに侵入し合っているような構造をとることがわかった。これは、既報の水溶液系とは異なる結果であり、Tetra-PEG イオンゲル/ハイドロゲルの網目構造の違いに大きく影響していることが示唆された。

第 5 章では、広角 X 線散乱 (LAXS) 測定と、分子動力学シミュレーション (MD) を用いた線形 PEG へのイオン液体の溶媒和構造解析について記述されている。LAXS 測定によって、イオン液体/PEG 溶液の溶媒和構造は PEG の分子量や形状 (tetra-/線形) に依存しないことが明らかとなった。すなわち、LAXS 測定した中で最も小さい分子量である 600 g/mol の線形 PEG への溶媒和構造を MD で解析することによって、その結果を tetra-PEG にも拡張できることがわかった。このことは、本論文の第 2 章から第 4 章までと組み合わせることによって、溶媒和構造だけでなく、ナノメートルオーダーの網目構造に至るまでの非常に大きな長さスケールに及ぶ系統的な結果を得ることができたことを示しており、未だにほとんど研究例のないイオン液体のポリマーへの溶媒和構造に重要な知見を与える。詳細な MD 解析の結果、イオン液体のカチオンが PEG に対して第 1 溶媒和圏として存在し、その溶媒和数はカチオン- アニオン間のクーロン相互作用が弱いほど多くなることがわかった。また、今回使用したイミダゾリウム系イオン液体は 2 位のプロトンの水素結合性が高いことが一般的に知られているが、本研究によってアニオン種が大きくなるほど水素結合による溶媒和への寄与が小さくなることが示唆された。

なお、本論文第 2 章は藤井健太、上木岳士、酒井崇匡、今泉暁、鄭雄一、渡邊正義、柴山充弘との共同研究、第 3 章は西健吾、廣井卓思、藤井健太、酒井崇匡、柴山充弘との共同研究、第 4 章は藤井健太、上木岳士、酒井崇匡、鄭雄一、渡邊正義、Young-Soo Han, Tae-Hwan Kim, 柴山充弘との共同研究、第 5 章は藤井健太、西健吾、酒井崇匡、小原真司、柴山充弘との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって実験および解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士 (科学) の学位を授与できると認める。