

論文審査の結果の要旨

氏名 廣井 卓思

本論文は 10 章からなる。第 1 章は序論であり、最初に本論文の中心となる高分子ゲルの概要と、物性に関する既報研究について述べている。続いて、論文提出者が行った研究の概要を簡潔に述べている。

第 2 章は、本論文で用いられる散乱理論の基礎について、詳細な式の導出過程を記している。第 3 章では、本論文で用いられる高分子物性の理論について、詳細な式の導出過程を示している。第 4 章は、本論文で用いられる散乱理論が、光と中性子との違いを踏まえてより具体的に記述されている。

第 5 章は、まず高強度ゲルに関する既報研究をまとめている。また、その中でも論文提出者が着目したゲルである Tetra-PEG ゲルに関して、詳細なレビューを記した後、提出者自身が行った光・中性子の準弾性散乱を用いた測定についての記述をしている。中性子スピンエコー法を用いた実験によって、通常の不均一なゲルと比較して大きい空間領域で Zimm モードが観測され、マイクロなスケールで網目構造が均一であることが示された。さらに、動的光散乱と組み合わせた実験により、網目のゆらぎから得られる相関長と空間での網目サイズが対応することが、初めて定量的に示された。不均一性を排除したゲル試料での動的な測定は前例がなく、通常の不均一性を持つゲルの測定の解釈の開始点となり得る貴重な研究成果である。

第 6 章は、Tetra-PEG ゲルでも不均一性が表れると言われている、マイクロメートルを超えるスケールでの不均一性を測定するために論文提出者が製作した、顕微動的散乱装置に関して述べている。そして、この装置を用いることで、通常では測定が不可能であった濃厚溶液を希釈せずに測定できることが示されている。この研究は、動的散乱が長年抱えていた問題点を解決し、濃厚溶液の評価方法として広く用いられる可能性を秘めている。

第 7 章は、第 6 章で説明された顕微動的散乱をカーボンナノチューブに適用した実験結果が示されている。希釈することなく試料の粒径分布を測定できるという特徴を生かし、カーボンナノチューブの分散液の粒径分布の濃度依存性が初めて動的散乱で測定された。さらに、偏光顕微動的散乱を通して、0.1 wt%程度の濃度でカーボンナノチューブの回転運動が抑制されるということが示唆された。これらの結果は、カーボンナノチューブの工業製品への応用に

あたって重要な知見である。

第8章は、第7章で用いた疎水性のカーボンナノチューブとは対照的に非常に親水的な、卵白中のタンパク質であるオボアルブミン (OVA) の加熱によるゲル化に関する実験結果が示されている。OVAに関する実験研究は古くから報告されているが、本研究で特徴的な点は、OVAのN末端を処理したpOVAとの比較を通してゲル化の機構を考察している点にある。特に小角中性子散乱を用いた構造解析を通し、OVAは繊維状の凝集体のパーコレーションモデルで、pOVAは大きさが不揃いの塊状の凝集体がランダムに繋がることで形成されるという知見が得られた。OVAとpOVAという、一次構造がわずかに異なるタンパク質において、なぜゲル化機構が大きく異なるのかを、分子レベルで考察することで、タンパク質研究を推進する一助になるものと期待される。

第9章は、第5章のTetra-PEGゲルの研究と、第6章～第8章の親水性・疎水性物質の研究を合わせた総合的な研究として、均一な両親媒性ゲルの構造解析について述べられている。溶媒・疎水部の割合・分子量それぞれのパラメータを系統的に変えた試料に関して、小角中性子散乱を用いて詳細な解析がなされている。また、X線と中性子それぞれで得られた散乱プロファイルを絶対強度まで再現するモデルを構築した。さらに、分子量を変えることで、ハイドロゲルにおいてマイクロ相分離構造を操作することにも成功している。これらの実験結果は、両親媒性ゲルのマイクロな構造の制御を系統的に行えることを示した貴重な研究成果である。

第10章では、これらの研究結果をまとめている。その上で、本研究の将来的な方向性として、工業製品への応用という側面と、ソフトマターのダイナミクスの基礎研究という側面を挙げている。

以上のように、本研究では、ゲルの不均一性及び親水性・疎水性相互作用に関連した高分子の凝集構造に関して、数多くの重要な知見が得られており、ソフトマターの物理化学の基礎研究としても、工業製品への応用に向けた研究としても本研究の成果は十分に意義のあるものである。

なお、本論文第5章、第9章は東京大学酒井崇匡准教授・鄭雄一教授との共同研究、第7章は産業技術総合研究所のナノチューブ実用化研究センターとの共同研究、第8章は京都工芸繊維大学の田中直毅教授との共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。以上の理由より、博士（理学）の学位を授与できると認める。