

# 論文審査結果の要旨

平成 27 年 2 月 3 日

氏名	越智 正宣
学位の種類	博士 (工学)
学位記番号	甲第 124 号
学位記の授与日	平成 27 年 3 月 18 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 創価大学大学院学則第 31 条第 2 項該当 創価大学学位規則第 3 条の 3 第 1 項該当
論文題目	温度応答性複合ゲル粒子の調製と特性評価
論文審査機関	工学研究科委員会
論文審査委員	主査委員 工学博士 山本 英夫 委員 工学博士 松山 達 委員 工学博士 清水 昭夫

## <論文の内容の要旨>

本論文の研究は、感温性ゲルである *N*-イソプロピルアクリルアミドポリマー (PNIPAM) と天然高分子であるアルギン酸ゲルを複合して、両者の特性が組み合わさって発現される相互侵入網目構造 (Interpenetrating polymer network) を有するゲル (IPN ゲル) 粒子を作製し、環境温度に応答して反応や基質放出を制御できる温度応答性機能ゲル粒子の設計指針を得ることを目的として行われた。

PNIPAM ゲルは、環境温度に応答して親・疎水バランスが変化し、体積変化を起こすユニークな特徴を持つので、様々な分野への応用研究が行われている。近年では、PNIPAM ゲル単体の研究ばかりでなく、様々な高分子や無機材料と組み合わせて協奏的に機能を発現する複合ゲルの研究が盛んに行われている。本論文では、この PNIPAM ゲルにアルギン酸を構造材として複合した IPN ゲル粒子の機能性に着目し、はじめに、既往の研究のサーベイを行った。その結果、両ゲルの混合比や PNIPAM ゲルの重合開始剤・促進剤の配合比などの影響はよく検討されているが、ゲルの合成、複合化の過程における温度が IPN ゲルの特性に与える影響を検討した報告は全くなかった。そこで、本研究では、複合ゲル作製時における PNIPAM ゲル重合温度が、得られる IPN ゲルの特性に与える影響を検討することにした。一方、材料を複合する場合、これまでの作成法では工程が煩雑なため、実用化の面から、よりシンプルな作製方法を検討することにした。

まず、PNIPAM ゲルの重合温度が IPN ゲルの特性に与える影響を検討するために、逆エマルション重合を応用した作製法を用いて、下限臨界共溶温度 (LCST: 32°C) を中心とした種々の温度条件で IPN ゲル粒子を作製し、得られた粒子の温度応答特性と基質拡散特性を検討した。比較的低い温度で合成した場合、均一な PNIPAM ゲルとアルギン酸による IPN が形成されるので、粒子は溶液温度の上昇とともに鋭く体積変化し、大きな縮小率を示した。これにより、基質のゲル内拡散を環境温度で制御する IPN ゲル粒子が得られたとしている。それに対し、比較的高い温度で合成した場合、不均一な PNIPAM ゲルとアルギン酸による IPN が形成され、粒子は溶液温度を上昇させても体積変化は小さく、しかも、なだらかな変化を示した。これにより、基質のゲル内拡散を温度上昇による効果以上に促進させる IPN ゲル粒子が得られた。

次に、よりシンプルな方法で IPN ゲル粒子の作製を試みた。採用した方法は、これまで山本研究室で研究されてきた二重管ノズルを用いた気中滴下法である。この方法は逆エマルジョン重合法と異なり、ワンステップで IPN ゲルをシェル物質とするカプセルの作製ができる。これによって作製される IPN カプセルに導入される PNIPAM 量は重合初速度で調節できた。また、得られたゲルカプセルの温度応答特性と基質拡散特性は、逆エマルジョン重合を応用して比較的高い温度で作製された IPN ゲル粒子と同じ傾向を示した。すなわち、作製されたカプセルのシェルの構成する IPN ゲルの構造は、不均一な PNIPAM とアルギン酸によって構成され、基質のゲル内拡散を温度上昇による効果以上に促進させる IPN ゲルカプセルが得られた。

最後に本論文を総括し、環境温度に応答して反応や基質放出を制御できる機能性 IPN ゲル粒子の設計・作製指針を示している。

なお、本論文の内容の一部は、下記の査読制度を有する権威ある学術雑誌に掲載されている

Masanori OCHI, Junichi IDA, Tatsushi MATSUYAMA and Hideo YAMAMOTO. Preparation of hydrogel capsules with thermoresponsive interpenetrating polymer network using concentric two-fluid nozzles. *Advanced Powder Technology*, Volume 25, Issue 2, pp.604-608 (2014).

Masanori OCHI, Junichi IDA, Tatsushi MATSUYAMA and Hideo YAMAMOTO. Effect of Synthesis Temperature on Characteristics of PNIPAM/Alginate IPN Hydrogel Beads. *Journal of Applied Polymer Science*, Volume 132, Issue 15, 41814 (2015).

#### < 論文審査結果の要旨 >

本論文の研究は、感温性ゲルである PNIPAM に構造材料としてアルギン酸ゲルを複合した IPN ゲル粒子を作製し、環境温度に応答して反応速度や成分放出を制御する温度応答性機能ゲル粒子の設計指針と作製方法を検討したものである。

この分野におけるこれまでの研究では、PNIPAM ゲルの合成温度が IPN ゲルの構造や特性に与える影響はほとんど検討がなされていなかった。申請者はこの点に着目し、PNIPAM の LCST を中心とした種々の温度条件で合成して得られる IPN ゲル粒子の特性を検討した。その結果、LCST より比較的低い温度で合成された IPN ゲル粒子と、比較的高い温度で合成される IPN ゲル粒子の間に、温度応答特性と基質拡散特性などに顕著な違いがあることを見だし、機能性粒子の設計上極めて有用な知見を得た。さらに、二重管ノズルを用いた気中滴下法で IPN ゲルカプセルを作る方法を検討し、実用的にシンプルな機能性粒子の作製方法を提案している。

以上のことから、本論文は、温度応答性複合ゲル粒子の設計方針を明らかにし、IPNゲルの応用展開への道を開いたものであり、博士(工学)の学位論文として十分価値のあるものと認定する。