

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	セルロースとリグニン由来2-ピロン-4,6-ジカルボン酸の非共有結合により形成される導電性有機ゲルおよびハイドロゲル
Title(English)	Conductive Organogels and Hydrogels Formed by the Non-covalent Interactions of Cellulose and Lignin-Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid
著者(和文)	賈瀚
Author(English)	Han Jia
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12509号, 授与年月日:2023年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:道信 剛志,扇澤 敏明,早川 晃鏡,浅井 茂雄,相良 剛光
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12509号, Conferred date:2023/9/22, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	JIA Han	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	道信 剛志	教授	相良 剛光	准教授
	審査員	扇澤 敏明	教授		
		早川 晃鏡	教授		
	浅井 茂雄	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Conductive Organogels and Hydrogels Formed by the Non-covalent Interactions of Cellulose and Lignin-Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid (セルロースとリグニン由来 2-ピロン-4,6-ジカルボン酸の非共有結合により形成される導電性有機ゲルおよび水ゲル)」と題し、英文で5章から構成されている。

第1章「General Introduction (序論)」では、ゲルを構成する溶媒によって有機ゲルと水ゲルを分類した後、化学架橋ゲルと物理架橋ゲルの違いおよび導電性ゲルの用途について記述している。その後、従来研究で用いられてきた化石資源由来の材料をバイオマス由来に置換する重要性を述べ、本研究で用いる木質バイオマスのセルロースとリグニン由来 2-ピロン-4,6-ジカルボン酸 (PDC) の特徴について整理している。

第2章「Ionic Conductive Organogels based on Cellulose and Lignin-Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid (セルロースおよびリグニン由来 2-ピロン-4,6-ジカルボン酸から成るイオン伝導性有機ゲル)」では、セルロースを溶解した塩化リチウム含有 *N,N*-ジメチルアセトアミド溶液に PDC を添加するとゲル化が起こることを見出している。PDC の量によってゲル化時間が異なり、10wt% の PDC を用いると3分以内でゲル化が完了する。一方、PDC と化学構造が類似したイソフタル酸 (IA) を 10wt% 添加すると、ゲル化まで約 8 時間かかる。また、セルロースの代わりに酢酸セルロースやメチルセルロースを用いるとゲル化は起こらない。核磁気共鳴や赤外吸収などから PDC とセルロースの間に強力な水素結合が形成していることを明らかにしている。また、中性子小角散乱測定から有機ゲルの相関長を見積もったところ、PDC ゲルは IA ゲルよりも小さな相関長をもつことを確認している。このことは、PDC ゲルの方が IA ゲルよりも大きなイオン伝導性を示すことと関連している。

第3章「PEDOT:PSS-based Conductive Organogels Regulated by the Interactions of Lignin-Derived 2-Pyrone-4,6-Dicarboxylic Acid (リグニン由来 2-ピロン-4,6-ジカルボン酸との相互作用によって制御された PEDOT:PSS 導電性有機ゲル)」では、導電性高分子である PEDOT:PSS とポリビニルアルコール (PVA) の水溶液に PDC を添加した後、エチレングリコールと溶媒置換すると導電性の有機ゲルが生成することを明らかにしている。PEDOT:PSS/PVA/PDC 水溶液をシリンジ針からエチレングリコール溶液中へ押し出すと、針の直径に対応したファイバー状有機ゲルが得られ、伸縮性や自己修復性を示すことを見出している。これらの機械特性を実現する要因として、PDC のカルボン酸が PVA と水素結合を形成していることを赤外吸収および機械強度測定より確かめている。また、強い電子吸引性を有する PDC が PEDOT の p 型ドーパントとして作用していることを ESR 測定と歪センサー機能より証明している。

第4章「PVA/TEMPO-Cellulose/Carbonized C₆₀-based Nanospheres Hydrogel for Supercapacitor Electrolyte (PVA/TEMPO 酸化セルロース/焼成 C₆₀ ナノ粒子から成る水ゲルの創製とスーパーキャパシター電解質への応用)」では、C₆₀ をエチレンジアミンと焼成して作製した平均粒径約 200nm の多孔性ナノ粒子を、TEMPO 酸化セルロースおよび PVA と -20℃ の水中で混合して水ゲルを作製することに成功している。C₆₀ 由来のナノ粒子は表面に正電荷を有するため、TEMPO 酸化セルロースの負電荷と相互作用することによって均一分散していることを明らかにしている。さらに、得られた水ゲルを用いてスーパーキャパシターを作製し、イオン輸送特性を調査している。C₆₀ 由来のナノ粒子が存在することによって、水ゲルの機械強度とイオン輸送効率が向上することを証明している。

第5章「Summary and Outlook (結言および展望)」では、本論文を総括すると共に、今後の展望を述べている。

これを要するに、本論文はバイオマス由来成分を用いて有機ゲルおよび水ゲルの高機能化を実現するための新たな設計指針を示すものであり、学術上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (理学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。