

Title	空気-液晶界面で蒸発により形成した配向性多糖材料に関する研究
Author(s)	Joshi, Gargi
Citation	
Issue Date	2019-06
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/16069
Rights	
Description	Supervisor:金子 達雄, 先端科学技術研究科, 博士 (マテリアルサイエンス)

氏名	Gargi Joshi		
学位の種類	博士(マテリアルサイエンス)		
学位記番号	博材第 469 号		
学位授与年月日	令和元年 6 月 24 日		
論文題目	Studies on Oriented Polysaccharide Materials Prepared from Evaporative Air-LC Interface		
論文審査委員	主査	金子達雄	北陸先端科学技術大学院大学 教授
		大島義文	同 教授
		松見紀佳	同 教授
		筒井秀和	同 准教授
		三俣哲	新潟大学 准教授

論文の内容の要旨

Introduction

Nature has bestowed organisms with different structural designs to adapt them to survive, even under some of the extreme living environments. The human mind and creative intelligence have led us to synthetically mimic these structural designs and improve the living standards. Liquid crystal (LC) state of polymers is the most preferred for such applications due to their intrinsic combination of mobility and ordering. However, the use of naturally available polymers has rarely been the focus of research and thus we are still unaware of many of the key processes of survival strategies. In this work, I have studied the self-assembly of LC polysaccharide (sacran and xanthan gum) aqueous solutions under a drying environment. The self-assembled deposited structures were found to be highly oriented and upon crosslinking, anisotropically swelling hydrogels were prepared.

Results & Discussion

Sacran solution dried in a limited space, deposited as a thin membrane by bridging the narrow gap between the substrates, by splitting the evaporative air-LC interface. This partitioning phenomenon was analyzed theoretically using the standard equation of a meniscus. The derived equation proved that the splitting of the original meniscus into two menisci actually doubled the available area for evaporation in the limited space. In order to control the deposition of LC domains, xanthan gum was used due to its intrinsic property of thermotropic isotropization with increase in temperature. Stepwise deposition of a transverse lid-like membrane preceding the growth of a vertically deposited membrane bridging the two substrates was recorded. A temperature-concentration-morphology phase diagram could be formulated for the variety of deposited structures and anisotropically swelling hydrogel was prepared upon crosslinking the membranous structure. The size of the LC domains in the drying solution was also found to be major factor governing bridging of the gap between the substrates. Self-assembled platelet-sized domains in the

sacran solution could deposit, bridging an eight times wider gap.

Conclusion

The theoretical and experimental results presented here provide an understanding of the behavior of polysaccharides under natural environment. The condensation and deposition approach explored in this work promises a versatile methodology of directional control to design novel biomimetic materials with highly ordered structures.

Keywords: Self-assembly, liquid crystals, polysaccharides, drying interface, orientation

論文審査の結果の要旨

自然環境下では生物が気液界面の特殊性に基づく多様な構造を形成する。生体模倣の研究分野でも気液界面で自己集合を制御することで材料の構造・機能デザインが行われている。自然界では液晶性物質の自己集合が種々見出されているにも関わらず、液晶性天然高分子の構造・機能に関わる重要なプロセスの多くは明らかにされていない。そこで本研究では、乾燥環境下での液晶性多糖水溶液の架橋を視野に入れた自己組織化と析出挙動に注目し、乾燥フィルムの配向構造制御および異方膨潤性ゲルの設計を行うことを目的とした。

第一章では、自己組織化、多糖の構造物性、界面構造学に関する研究背景を述べ、従来報告されてきた論文をレビューすることで、本論文の位置づけを行い、目的、意義を述べた。

第二章では、蒸発面からの液晶性多糖サクランが面状に配向し、気液界面に沿って層状構造を形成することを明らかにした。この乾燥フィルムに架橋構造を導入することで、面と垂直方向に異方的に膨潤するゲルの作製に成功した。

第三章では、1 mm幅の狭い空間で形成される疑似線状蒸発界面で、多糖が基板間を架橋するように析出し垂直方向に伸長する現象についてメニスカスの理論曲線から議論した。1つの界面曲線が2つに分割されることで約2倍大きい蒸発界面を与えることが有利に働き、スムーズな乾燥が促され特異的な析出が持続したと考えられる。

第四章では、本現象の一般化を行うために、サクランと同様に超高分子量の液晶性多糖であるキサントガムを用いた。特に、その温度依存性に留意し、液晶状態の変化と特異析出の関連について明らかにした。重要因子である乾燥温度と高分子濃度に対して相図を作成し、特異析出の必要条件を明らかにした。さらに、この乾燥膜に架橋構造を導入することで異方性膨潤性ゲルを調製した。

第五章では、本現象の毛管力の寄与について実験的検証を進めた。ここでは、液晶ドメインのサイズとしてマイクロスケールの棒状ユニットと板状ユニットが共存する際、基板間隔が8 mmで橋掛けして特異的析出することを実証した。

第六章では、全ての章を総括し、液晶性多糖が示す本現象を纏めて説明した。

以上、本論文はゲル/液晶などの特異高次構造ソフトマテリアルの新設計指針を示すなど学術的に貢献するところが大きい。よって博士(マテリアルサイエンス)の学位論文として十分価値あるものと認めた。