

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲	第 11025号
------	-----	----------

氏 名 林 幹大

論 文 題 目

Studies on Molecular Design and Mechanical Properties of Supramolecular Soft Materials with Polymer Network via Non-covalent Bonding Interactions

(非共有結合性高分子網目を有する超分子ソフト材料の設計とその力学特性に関する研究)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	副総長	松下 裕秀
委員	名古屋大学	教授	上垣外 正己
委員	名古屋大学	教授	浅沼 浩之
委員	名古屋大学	准教授	高野 敦志

論文審査の結果の要旨

林幹大君提出の論文「Studies on Molecular Design and Mechanical Properties of Supramolecular Soft Materials with Polymer Network via Non-covalent Bonding Interactions (非共有結合性高分子網目を有する超分子ソフト材料の設計とその力学特性に関する研究)」は、メソスケールで相分離した構造中に周期的に分布する孤立ドメイン内及びマトリックスに非共有結合を導入した新規超分子ソフト材料を創製し、そのバルク状態の熔融試料が示す力学特性を明らかにしたものであり、以下の全6章から成り立っている。

第1章では、従来用いられてきた共有結合性網目を有する高分子ソフト材料開発の歴史的背景や優れた点及び問題点について説明し、その問題点を克服するために提案した新規な分子設計およびその意義について述べている。続く第2章では、本研究の試料調製に用いた高分子の合成法および精密な評価によって得られた分子特性についてまとめている。また、構造評価法や物性評価法などの実験的手法や基礎的な解析方法についても説明している。

第3章では、両末端にカルボン酸基を有するテレケリック型高分子 (poly(ethyl acrylate)) と多点アミノ基を有する分岐高分子 (polyethyleneimine) とをブレンドすることによる超分子ソフト材料の調製とその性質について述べている。ここでは、ブレンド比や分子量を変化させた様々な試料に対して動的粘弾性測定を行い、カルボン酸とアミノ基の化学量論比と超分子網目の性質との関連について示している。さらに、弾性率と架橋点間分子量に関する高分子網目の基礎理論を参照した解析により、テレケリック型高分子の分子量に依存して系統的に弾性率が変化することを明らかにしている。

第4章では、ABA型のトリブロック共重合体 (poly(4-vinylpyridine)-b-[(poly(butyl acrylate)-co-polyacrylamide)-b-poly(4-vinylpyridine)]) の凝集構造から発現する粘弾性特性について述べている。この試料では、室温でガラス状態の両末端鎖と水素結合性ユニットをランダムに含む熔融中央鎖から成るため、新規複合熱可塑性エラストマーとなる。引っ張り試験により得られた伸長特性を、対照試料である水素結合性官能基を含まないトリブロック共重合体と比較し、水素結合の解離・再会合挙動に起因して伸長特性が大幅に向上することを示している。また、動的粘弾性測定により分子鎖の緩和挙動を詳細に調査し、中央鎖の水素結合がトリブロック共重合体のダイナミクスに与える影響を sticky Rouse model に基づいて解析している。

第5章では、第4章で用いたABA型トリブロック共重合体に対し金属塩を添加することで、末端の poly(4-vinylpyridine) 鎖により形成される架橋ドメイン内で配位結合を形成させ、水素結合と配位結合の複合架橋型超分子ソフト材料を調製している。また、動的粘弾性測定や引っ張り試験により金属塩添加後の力学特性のさらなる向上を示し、その原因を小角 X 線散乱 (SAXS) 測定や透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察によりモルフォロジーの変化の観点から考察している。

第6章では本研究で得られた成果を総括としてまとめている。

以上のように本論文は、メソスケールで相分離した構造中の孤立ドメイン内及び橋かけ鎖が作るマトリックスに非共有結合を複合的に多数導入した新規超分子ソフト材料を創製し、架橋点として働く結合の動的な性質を活かした試料の力学特性の向上について、凝集系を構築している分子の立場から明らかにしたものである。ここで得られた成果は、超分子化学の進展という学術上の貢献だけではなく、複合ソフト材料の新しい設計指針を示したものとして工業上も寄与するところが大きい。よって本論文提出者、林幹大君は博士 (工学) の学位を受けるのに十分な資格があると判定した。