

# 審査の結果の要旨

氏名 港 康佑

本論文は5章からなり、第1章は序論、第2章は共有結合のみで架橋された環動エラストマーの作製と物性、第3章は水素結合架橋を含む環動エラストマーの作製と物性、第4章は Diels-Alder 反応架橋を含む環動エラストマーの作製と物性、第5章は結論について述べられている。

第1章において、架橋の分類、可逆架橋について紹介し、環動エラストマーの現状と課題、環動エラストマーの物性の研究と可逆結合架橋を組み込んだ環動エラストマー作製の目的について述べた。

第2章においては、環動エラストマーの特徴について述べた。物性の比較を詳細に行うために、エラストマーを構成する高分子の構造、結晶構造、弾性率などを揃えた。また、環動エラストマーを構成する環動高分子(SGC)に類似した構造の比較高分子を合成した。比較高分子と SGC の構造推定は、<sup>1</sup>H NMR 測定を用いた。その結果、比較高分子は SGC と類似した構造であることを確認した。それぞれの高分子でエラストマーの作製を行ない、結晶構造を广角 X 線散乱(WAXS)測定から評価した。架橋反応により高分子側鎖の結晶化が阻害されていることがわかった。

力学物性を、応力伸張比曲線から評価した。環動エラストマーは、軸分子量に応じて破断伸張比が増加することが観察された。これは、固定架橋エラストマーと異なり、架橋点のスライドによって伸びきれる網目サイズを変えられるためと考えられる。また、応力伸張比曲線の解析結果から環動エラストマーは理想ゴム弾性に近い振る舞いを示し、その結果、軟らかい状態を維持し大変形できる材料であることがわかった。これらは、滑車効果に由来する物性が現れたためであると解釈できる。

第3章においては、滑車効果に由来する物性と水素結合架橋に由来する物性を両立する環動エラストマーの作製について述べた。合成した水素結合架橋剤を用いて、水素結合架橋を含む環動エラストマーを作製した。結晶構造に関しては、WAXS および示差走査熱量(DSC)測定から評価した。その結果、水素結合架橋剤の割合が大きい場合には、高分子側鎖が結晶化することがわかった。

力学物性を、応力伸張比曲線から評価した。一軸応力伸張曲線より、大変形伸張において水素結合架橋が破壊され、ヒステリシスを発生することがわかった。また、応力伸張曲線の解析結果より、水素結合架橋は初期の伸張領域から破壊されることが明らかになった。以上のように、水素結合架橋の破壊による物性は観察された。これは、環動エラストマー中においては、強固な水素結合架橋が力学的変形に対して容易に壊れたと解釈できる。

第4章においては、滑車効果に由来する物性と Diels-Alder(DA)反応架橋に由来する物性を両立する環動エラストマーの作製について述べた。可逆結合としてフラン-マレイミド間の DA 反応を用いて、エラストマーの作製を行なった。エラストマーの結晶構造を WAXS 測定で評価したところ、高分子側鎖の結晶化が阻害されていることが明らかとなった。これは、DA 反応が化学架橋として働いているためと考えられる。

続いて熱物性について、DSC 測定を用いて評価した。熱のみによる反応は環動・比較エラストマー

の間に大きな違いを示さないことがわかった。

力学物性については、応力伸張比曲線、クリープ試験などを用いて評価した。応力伸張曲線の解析結果から、常温において環動エラストマーは、理想ゴム弾性に近い振る舞いを示すことが確認された。また、高温領域のみでクリープを示し、網目構造が変形していることがわかった。これは、逆 DA 反応による脱架橋に由来する熱可塑性と考えられる。さらに、環動エラストマーは比較エラストマーより大きなクリープ歪みを示した。これは、滑車効果によって網目構造全体に張力が均一に分散したためであると考えられる。これらの結果より、DA 反応架橋を用いることで滑車効果と可逆結合架橋それぞれに起因する物性が明確に現れ、滑車効果と可逆架橋を両立した環動エラストマーの作製に成功した。

第 5 章では、以上の内容を総括した。環動エラストマーの滑車効果に由来する特徴を明らかにし、可逆結合架橋を用いた新たな環動エラストマーの作製と、滑車効果と可逆結合架橋の両立について重要な知見を得た。この研究の当該分野への寄与は非常に大きい。

本論文の内容は、伊藤耕三、横山英明、加藤和明、眞弓皓一、前田利菜との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験を行い解析したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断される。したがって、博士(科学)の学位を授与できると認める。

以上 1841 字