

審査の結果の要旨

氏名 姜志亨

1980年代に Lehn/Meijer らによって提案・実証された超分子ポリマーは、モノマーが非共有結合という、結合・解離が可逆な相互作用によって結び付けられた新しいタイプのポリマーである。従来のポリマーでは実現が難しい刺激応答性・自己修復能を容易に実現できるなど、超分子ポリマーは新しい材料として近年注目を集めている。しかしながら、最初の超分子ポリマーが報告されてから 30 年以上経つ最近まで、超分子ポリマーの長さや分散度の制御を実現することが出来ていなかった。それは、超分子重合が逐次重合と呼ばれる、重合度や分散度を制御することが出来ない重合機構で進行するからである。しかしながら、ポリマーの物理的性質はモノマーの分子構造だけでなく、長さや分散度によっても大きく影響される。そのため、超分子ポリマーの材料への応用のためにも、超分子ポリマーの精密重合法の開発は長い間待ち望まれていた。本論文では、この困難と考えられてきた精密超分子重合を実現するための合理的な戦略と、超分子ポリマーを利用した自己修復能に優れた高靱性エラストマー開発に関して述べている。

序論では超分子重合開発の歴史を代表的な研究例を挙げながら述べている。Isodesmic Model ならびに Nucleation Elongation Model と呼ばれる従来の超分子重合の機構について述べ、それらでは原理的に重合を制御することができないことを詳述している。また後半では、第二章で述べる精密超分子重合を実現するためには、連鎖重合機構で進行する超分子重合の開発が必要であることを概説している。

第一章ではコランニュレンというお椀状 π 共役分子に導入したアミド基が形成する分子内水素結合とそれを利用したコランニュレンの光学分割に関して議論している。通常 π 共役分子に対称にアミド基を導入すると、分子間で水素結合を形成し、超分子ポリマーが形成される。コランニュレンのお椀構造を利用することで、適切な条件下では分子内水素結合を速度論的に優先できることを

実証し、非極性溶媒中でも単量体として単離できることを述べている。また側鎖に不斉点を導入することで、コランニュレンのキラリティーを偏らせられることを述べている。

第二章では、コランニュレンを利用した精密超分子重合を詳述している。第一章で述べたコランニュレンをモノマーとして、新たに開発した開始剤を組み合わせることで連鎖重合型超分子重合が実現できたことを述べている。また不斉炭素を導入した開始剤を用いることで、得られるポリマー内でコランニュレンのキラリティーを100%選択できることを示し、立体選択的超分子重合が実現したことについても言及している。本章を通し、超分子連鎖重合を実現する分子設計戦略をまとめている。

第三章では水素結合型超分子ポリマーを利用し、高靱性と自己修復能を両立したエラストマーの開発に述べている。強度の異なる二種類の水素結合を共存させることで、弱い方の水素結合が犠牲結合として働き、高靱性を実現できることを述べている。絶縁性の高いポリジメチルシロキサンをベースに設計することで、フレキシブルエレクトロニクスへ応用できるとことを述べている。

結びの章では研究成果を総括し、分子設計戦略を工夫することで超分子重合・超分子ポリマーの可能性を拡張できたことを強調し、本研究の重要性ならびに材料化学研究に対する波及性について述べている。

以上、本論文では超分子ポリマーの精密重合ならびに、高靱性・自己修復能を有したエラストマー開発を、分子設計戦略の観点からまとめている。本論文は偶発的に発見した結果をまとめたものでなく、いかに合理的にデザインするかにか主眼が置かれ、得られた分子設計指針は他の材料設計にも貢献が期待され、今後の材料科学の発展に大きく寄与することが見込まれる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。