

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	連鎖構造制御による脂肪族共重合ポリエステルの材料設計に関する研究
Title(English)	Study on material design of aliphatic copolyesters by regulation of sequential structure
著者(和文)	田端雄太
Author(English)	Yuta Tabata
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9825号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:阿部 英喜,彌田 智一,原 亨和,柘植 丈治,福居 俊昭
Citation(English)	Degree; Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9825号, Conferred date:2015/3/26, 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

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	田端 雄太
論文審査 審査員		氏 名	職 名	
	主査	阿部 英喜	連携教授	福居 俊昭
	審査員	彌田 智一	教授	
		原 亨和	教授	
		柘植 丈治	准教授	

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Study on material design of aliphatic copolyesters by regulation of sequential structure」(連鎖構造制御による脂肪族共重合ポリエステルの材料設計に関する研究)と題して英文で書かれ全5章から構成されている。

第1章「General introduction」では、生物有機資源を原料とした環境低負荷型脂肪族ポリエステル共重合体の材料開発に関する研究背景についてまとめ、さらには、連鎖構造の精密制御による高性能な次世代型高分子材料の創製の重要性を述べ、本研究の背景と意義を述べ目的を明らかにしている。

第2章「Effects of composition and sequential structure on thermal properties for copolymer of 3-hydroxybutyrate and lactate units」では、生物有機酸である (*R*)-3-ヒドロキシブタン酸 (*R*)-3HB) と乳酸 (2HP) から加熱重縮合反応を駆使して、共重合組成と連鎖分布を変化させたランダムおよびブロック性共重合体を合成し、得られた共重合体の連鎖構造と熱物性を調べている。共重合ポリマー分子鎖中における 3HB ユニットの平均連鎖長をパラメーターとして熱物性との相関を評価し、ガラス転移点が共重合組成に、融点が平均連鎖長に、融解熱が共重合組成と平均連鎖長の双方にそれぞれ制御されていることを明らかにしている。これらの知見より、組成と平均連鎖長を選択することによって、目的とする熱物性を有するポリマーを狙って調製する分子設計指針を提案することに成功している。

第3章「Synthesis and properties of alternating copolymers of 3-hydroxybutyrate and lactate units with different stereocompositions」では、(*R*)-3HB と 2HP ユニットが規則的に交互に連結した交互共重合体を合成し、その物性を調べている。原料であるヒドロキシカルボン酸の、保護、脱保護操作を駆使して二量体モノマーを調製し、その二量体モノマーから縮合剤を用いた重縮合反応により、連鎖構造を交互に精密制御した新規共重合体の合成に成功している。同組成のランダム共重合体が非晶性ポリマーであるのに対し、得られた交互共重合体は結晶性ポリマーとなること、またその結晶融解温度が 2HP ユニットの立体異性体の選択によって大きく変化することを見出している。*R* 体同士の 3HB および 2HP ユニットからなる交互共重合体 (P[(*R*)-3HB-*alt*-(*R*)-2HP]) は、脂肪族ポリエステルの中で最も高い 233 °C という融点を示すことを明らかにし、精密に連鎖を制御した交互共重合体とすることで、新たな結晶構造の形成とそれに伴う熱物性の改変が可能であることを示している。

第4章「Crystal structure of alternating copolymer of 3-hydroxybutyrate and lactate units」では、脂肪族ポリエステルの中でも最も高融点を示す P[(*R*)-3HB-*alt*-(*R*)-2HP] 交互共重合体の結晶構造解析に取組み、連鎖構造と結晶構造との相関について述べている。交互共重合体の単結晶を調製し、その電子線回折ならびに X 線回折測定結果より、P[(*R*)-3HB-*alt*-(*R*)-2HP] の結晶は、単位格子中に 4 本の分子鎖が充填され、繊維軸に対して、(*R*)-3HB-(*R*)-2HP 二量体ユニットが 3 ユニットで一回らせんを描く構造を取ることを明らかにしている。結晶中の分子密度計算より、交互共重合体の結晶は、脂肪族ポリエステルの中でも、単位格子内に極めて密に分子が充填されており、その結果、結晶融解が高温領域に現れるものと結論づけている。

第5章「Summary」では、本研究で得られた成果を総括している。

以上を要するに、本論文は、脂肪族ポリエステル共重合体の熱物性の最適化に向け連鎖構造制御による材料設計方法を提案したものであり、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) 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。