

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ロタキサン架橋による架橋高分子の強靱化に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	澤田隼
Author(English)	Jun Sawada
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11153号, 授与年月日:2019年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:高田 十志和,大塚 英幸,手塚 育志,中嶋 健,浅井 茂雄
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11153号, Conferred date:2019/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	応用化学 応用化学	系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	()
学生氏名： Student's Name	澤田 隼		指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	高田 十志和	
			指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)		

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、ビニル基を有するロタキサン架橋剤から得られたロタキサン架橋高分子（RCP）の強靱化とそのメカニズムについて研究した結果をまとめたものである。

第 1 章では、強靱な架橋高分子、中でも架橋点にロタキサン構造を有する RCP の合成戦略やその特性について従来の研究を概観し、本研究の意義、目的について述べた。

第 2 章では、軸成分の長さにより輪成分の可動領域を制御した構造明確な高分子[2]ロタキサン架橋剤（MRC）を用い、得られた RCP の物性の評価・比較について述べた。RCP の比較として同程度の軸長を有する高分子共有結合型架橋剤（MCC）を用い、共有結合架橋高分子（CCP）も合成した。RCP は可動な架橋点による不均一性解消効果により、対応する CCP よりも膨潤性が高い一方、破断ひずみ・強度・エネルギーが大きく強靱であった。また、ロタキサン架橋点における輪成分の可動領域が大きい RCP は、不均一性解消効果が大きく、膨潤度、破断エネルギーがより大きかった。一方で、MRC の重量分率が大きくなりすぎるとマトリックスポリマー中で MRC の軸成分の高分子鎖の結晶化が起きるため、ロタキサン架橋の効果が十分に発揮されなかった。これらの結果より、ロタキサン架橋点における輪成分の可動領域は、架橋体の強靱化に寄与することを明らかにした。

第 3 章では、輪成分の可動性を制御した MRC を用い、得られた RCP の物性の評価・比較について述べた。MRC と同じ高分子鎖を主鎖とする MCC から CCP を比較のため合成した。輪成分の可動性は、軸成分の高分子鎖の太さにより制御可能であり、実際に MRC と同じ高分子鎖を有する高分子擬[2]ロタキサンを用いてこれを確かめた。得られた架橋体の引張試験を行なったところ、CCP は主鎖の太さによらず、類似の応力ひずみ曲線を描いた一方で、RCP は主鎖の太さすなわち輪成分の可動性により異なる応力ひずみ曲線を描いた。これは、ロタキサン架橋点における輪成分の可動性により、不均一性解消効果や輪成分の移動の際にはたらく摩擦力が変わったためと考えられる。これらの結果より、ロタキサン架橋点における輪成分の可動性は、架橋体の強靱化に寄与することを明らかにした。

第 4 章では、2 章及び 3 章の結果を検証することを目的として、軸末端構造が異なる低分子[2]ロタキサン架橋剤や、空間結合を 1 つ増やしたより大きな自由度を有すると考えられる[3]ロタキサン型架橋剤を用い合成した RCP の物性について述べた。ロタキサン架橋剤から RCP、また低分子共有結合架橋剤から CCP をそれぞれ合成し、その物性を比較した結果、可動領域の非常に小さなロタキサン架橋点を有する RCP であっても、CCP よりも強靱であることが分かった。また、[3]ロタキサン型架橋剤より得られた RCP は、[2]ロタキサン架橋剤より得られた RCP よりも強靱であった。これらの結果より、ロタキサン架橋点における構成成分の回転運動やフリッピングが、架橋体の強靱化をもたらすことを見出した。

以上から、「ロタキサン架橋による架橋体の強靱化メカニズムの解明」という本論文の掲げる目標に対して明確な知見が得られた。本研究で得られたロタキサン架橋剤を用いることで、安価なビニルポリマーに強靱性を賦与し、高機能性ポリマーへと変貌させることが可能である。また、本研究は新たなロタキサン架橋剤を設計する際の重要な指針をもたらしたものである。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(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。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース : Department of, Graduate major in	応用化学 応用化学	系 コース	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名 : Student's Name	澤田 隼		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	高田 十志和	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis summaries the study of toughening rotaxane cross-linked polymers (RCP) obtained by rotaxane cross-linker having vinyl groups and its toughening mechanism.

In Chapter 1, the general synthetic strategies and properties of toughened cross-linked polymers, especially RCPs, are described to clarify the purpose of this thesis.

In Chapter 2, synthesis and physical properties of RCPs with different movable area at rotaxane cross-link points obtained by rotaxane cross-linkers (MRC) having different axle length are described. Covalently cross-linked polymers (CCP) are also synthesized by macromolecular covalent cross-linkers (MCC) having same backbone and its length with MRC as for references. Resulting RCPs show better swellability, extensibility and toughness than corresponding CCP probably due to the “canceling of non-uniform cross-link structure effect” caused by movable cross-link points. It is also described that RCP with larger movable area shows more toughness than corresponding RCP with smaller movable area. According to these results, it is clarified that movable area of rotaxane cross-link points can endow cross-linked polymer with toughness.

In Chapter 3, synthesis and physical properties of RCPs with different mobility at rotaxane cross-link points obtained by MRC having different axle thickness are described. CCPs are also synthesized by using MCC having same backbone thickness with MRC. Resulting CCPs show similar mechanical property, although RCPs show completely different mechanical property depended on their wheel component mobility at rotaxane cross-link points. This suggests that proper mobility is needed for rotaxane cross-link points to enhance the toughness effectively and mobility at rotaxane cross-link points control molecular friction. According to these results, it is clarified that mobility of rotaxane cross-link points can endow cross-linked polymer with toughness.

In Chapter 4, synthesis and physical properties of RCPs with different end-cap structures and the number of topological cross-link at cross-link points are described to verify the results of Chapters 2 and 3. Rotaxane cross-linker with much smaller movable area than MRCs gives more toughness to cross-linked polymers. In addition, [3]rotaxane-type cross-linker which is expected to possess more freedom enhances the toughness of cross-linked polymer more effectively than [2]rotaxane-type cross-linker. According to these results, it is found that rotating and flipping of wheel component at rotaxane cross-link points can endow cross-linked polymer with toughness.

In Chapter 5, the results of Chapters 2–4 are summarized and future perspective is described.

These results give important and intriguing knowledge about the toughening mechanism of RCPs. Well-designed rotaxane cross-linkers can change common vinyl polymers to high-performance polymers with toughness. This thesis also gives us the designing guide of novel rotaxane cross-linkers.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(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。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).