

(様式論文博士3)

学位論文の要旨

ふりがな 氏名	とみたか しおり 富高 詩織	印 
学位論文題目	高分子の液晶形成における構造と非共有結合相互作用の効果	

液晶研究の中で高分子液晶に関する研究は、先端的研究と基礎的研究が複合的に行われてきた。その根本的な問題は、高分子についての学問的および工業的な知見がいまだに散逸しており体系化されていない点にある。例えば、同じ高分子材料であっても加工方法によって透明にも白濁の状態にもすることができ、その硬さも制御できる。これらの性質の制御は直接的には高分子鎖の配向構造を制御することであり、その手法はいまだに確立しているとは言い難い。この高分子に液晶の多様性が有機的に複合化された材料が高分子液晶である。高分子液晶の基本的特性は、今までにさまざまなタイプが合成されており、直鎖状構造をもつ主鎖型高分子液晶と、低分子液晶に類似の原子団がポリエチレンなどの高分子の側鎖基(メソゲン側鎖)として導入された側鎖型高分子液晶に大別される。これらの高分子液晶に関する研究から、構造と液晶性の関係についてある一定の成果が得られている。

側鎖型高分子では、高分子骨格主鎖の種類、分子量、メソゲン側鎖部分の構造、メソゲン側鎖の導入率などが液晶秩序構造および性質を決定する。これらの組み合わせパターンは多様であり、複雑である。1つの構造単位を変えることにより、他の要素の効果が変わるため新たな機能性や構造の発現が起こり得る。現在も側鎖型高分子液晶に関して盛んに研究が行われているが、まだ解明されていない部分も多い。高分子液晶の研究黎明期では、高分子液晶は低分子液晶のような再配向可能な秩序構造を形成しないという認識があった。これは、液晶相を形成する低分子化合物の構造単位にビニル基を導入し、バルクでの重合を行う研究手法がとられていたことと、高分子の運動性の本質を考慮しない分子設計が問題であった。しかし、高分子研究者が液晶研究に積極的に携わるようになると、高分子合成と合成化学の手法を用いた構造と液晶性に関する研究から、高分子における液晶形成に必要な条件が次第に明らかにされた。これとは異なり、ポリエチレンテレフタラートの耐熱性および機械的性質の改質を目指した研究において、開発された改質高分子が液晶相を形成することが、企業の副次的な成果から明らかにされ、主鎖型高分子液晶に関する研究が多くの研究グループによって実用材料開発という観点から研究が行われるようになった。側鎖型高分子液晶に関する研究では、スペーサーの概念がその研究を加速させた。しかし、高分子の液晶形成についての化学的手法による制御はまだ十分とは言えず、多様な相互作用を巧みに利用した液晶形成についての検討が不可欠である。

本研究では、高分子の秩序形成の観点でさまざまな置換基を共有結合およびイオン結合や水素結合などの非共有結合によって導入し、それらの秩序形成について検討し、非液晶性高分子の秩序形成の方法について明らかにした。本論文は7章で構成される。第1章は緒言であり、第2章は実験についてまとめた。第3章は非晶性高分子へ棒状構造をもつメソゲン基を導入し、側鎖基の屈曲鎖長(スペーサー長および末端鎖長)と液晶形成についてまとめた。第4章は第3章で述べた新規高分子液晶の高分子骨格主査の液晶形成への影響についてまとめた。第5章は第3章で述べた新規高分子液晶の秩序構造と熱や応力などに対する基礎物性についてまとめた。側鎖基のスペーサー長とメソゲン基の長さの関係が秩序構造や基礎物性に影響を与えることを示した。第6章はイオン相互作用を利用した液晶形成についてまとめた。液晶形成に通常は必要とされるメソゲン基をもたなくても液晶相を形成することを示した。第7章は結論である。本論文の成果は今後の高分子系液晶の研究について有用な知見を与えるものと期待される。(1536文字)

(様式論文博士8)

学位論文審査結果の要旨

氏名	富高 詩織
論文題目	高分子の液晶形成における分子構造と非共有結合相互作用の効果
主査	氏家誠司
論文審査委員	津村朋樹
論文審査委員	守山雅也
論文審査委員	西口宏泰
論文審査委員	

審査結果の要旨（1000字以内）

高分子液晶では、通常の高分子では達成できない高度な秩序構造や高い耐熱性、高強度・弾性率が実現でき、それを利用した実用上の展開が行われている。しかし、より優れた材料の開発の観点からは、高分子液晶の分子構造と液晶性の関係などについてさらに詳細に解明する必要がある。本学位論文は、側鎖に液晶形成原子団を有する高分子液晶について、分子構造と液晶形成能の関係、非共有結合相互作用の液晶形成への役割についてまとめた。本論文は7章で構成される。第1章は緒言であり、第2章は実験方法をまとめている。第3章～第6章は、高分子液晶に関して下記の3つの内容についてまとめている。

- (1) 高分子液晶のスペーサー長および末端鎖長との関係が分子設計上重要であり、全体的な構造上のバランスを分子設計に反映させることで必要とされる物性の実現が可能になることを明確にした。また、高分子液晶の配向構造が二層構造の場合より単層構造の場合の方が、外部刺激応答性が高いことを初めて明らかにした。
- (2) イオン液晶高分子では、温度によってイオン相互作用が大きく変化することを利用すれば、アルキル鎖とイオン部位のみの極めて単純な構造の原子団の組み合わせでも、スマートチック層構造、カラムナー構造あるいは三次元ネットワーク構造などさまざまな液晶秩序構造を実現できることを見いたした。
- (3) 高分子鎖の性質を利用して、単純な化学修飾によって液晶秩序構造を制御できることを明らかにした。例えば、剛直高分子鎖には屈曲性の側鎖を導入することで液晶形成が可能になり、屈曲性高分子鎖の場合では、高分子鎖の構造単位にイオン構造を導入することで液晶形成能および配向の熱安定性の向上を可能にすることを明らかにした。

第7章は論文全体のまとめである。第3章～第6章に示した研究成果によって、高分子の構造単位の集合形成に対する効果および非共有結合相互作用を巧みに利用することによる集合体構造の制御など、いずれも今までにない新しい発見が多く含まれており、体系的にまとめられた成果は、高機能材料として期待される高分子液晶の分子設計指針に重要な影響を与えるだけではなく、今後の高分子液晶の開発および実用化に有用な知見となるものと結論した。

以上のように本論文では、今までにない新しい知見および重要な基礎的成果を得ております、博士学位論文として価値あるものと認められる。