

## 論文審査の結果の要旨

報告番号	博(生)甲 第121号	氏名	増渕 徹夫
学位審査委員	主査 古川 瞳久 副査 羽坂 雅之 副査 内山 休男 副査 小椎尾 謙		

### 論文審査の結果の要旨

増渕 徹夫君は早稲田大学大学院理工学研究科を昭和57年3月修士課程応用化学専攻修了後、ただちに旭化成工業（株）に入社し合成ゴム技術開発部に配属され新しい高分子材料に関する研究をスタートさせた。その間、「メタロセン触媒によるスチレン／ブタジエンブロック共重合体の新規水素添加方法」に関する研究により（社）日本化学会化学技術賞を受賞している。平成10年から本論文の基礎となるポリカーボネートジオールの合成及びその応用に関する研究をスタートさせた。平成15年10月に旭化成工業（株）の分社化により、旭化成ケミカルズ（株）の所属となったが、継続してポリカーボネートジオールに関する研究に従事してきた。平成16年4月に大学院生産科学研究科物質科学専攻物性科学講座に、現職のまま、入学し現在に至っている。

同君は長崎大学に入学以降も「ポリカーボネートジオールの合成及びその応用に関する研究」に従事し、その成果を平成18年12月に主論文『Study on Structure and Properties of Aliphatic Poly(carbonate) glycols and their Polyurethane Elastomers』（脂肪族ポリカーボネートグリコールとそれらを基材とするポリウレタンエラストマーの構造と物性に関する研究）として完成させ、参考論文7編（うち審査付き公表論文3編；審査付き投稿中論文1編）を添えて長崎大学大学院生産科学研究科教授会に博士（工学）の学位を申請した。

長崎大学大学院生産科学研究科教授会は、平成18年12月20日の定例教授会において論文内容を検討し、本論文を受理して差し支えないものと認め、上記の通り審査委員を選定した。委員会は主査を中心に論文の内容について新規性・科学的意義を慎重に審議し、公開論文発表会での発表を行わせるとともに口頭による最終試験を行い、論文の審査及び最終試験の結果を、平成19年2月21日の研究科教授会に報告した。

熱可塑性ポリウレタンエラストマー(TPU)は、ジイソシアネートと短鎖グリコールからなるハードセグメントと、ポリマーグリコールからなるソフトセグメントから構成されるマルチブロックポリマーである。他の熱可塑性エラストマー(TPE)と比較して、機械的特性、低温特性、耐磨耗特性、および耐油性が優れたTPUは、自動車の内装材などの新規用途で使用されている。TPUにおいてソフ

トセグメントを与えるポリマージオールとして、ポリエーテル系、ポリエステル系、ポリオレフィン系、ポリカーボネート(PC)系グリコール等が広く用いられている。その中でもポリカーボネート系ポリオールはバランスのとれたポリウレタン物性を与えるが、汎用の脂肪族ポリ(ヘキサメチレンカーカボネート)ジオールの高い結晶性のため、得られるポリウレタンは柔軟性に劣り使用が制限されるという課題を有する。本研究では柔軟性に優れる PC 系ポリウレタンを創製するための基礎的な知見を見いだすことを目的に、構成成分であるメチレン連鎖数を 3 から 10 まで変化させた PC グリコールを合成し、それらを基材としたポリウレタンの構造と物性の関係に詳細に調べている。すなわち、PC グリコールの結晶構造、熱特性とメチレン連鎖数の関係を、ポリウレタンの凝集構造および力学物性とメチレン連鎖数の関係を明らかにするとともに、異なるメチレン連鎖数からなる共重合 PC グリコールにより、柔軟性を付与することに成功している。

本論文は 6 章からなる。第 1 章では、本研究の目的を述べた。最近の特許および既報の研究を含めて、研究課題について述べている。第 2 章では、メチレン連鎖数が 3 から 10 と変化させた PC グリコールを相当するグリコールとエチレンカーボネートとのエステル交換触媒の存在下での交換反応により合成し、その性状はメチレン連鎖長が 3 では常温で粘ちよう液体であるが、他の連鎖長ではいずれも常温で白色固体状であることを明らかにしている。第 3 章では得られた PC グリコールの物理的性質と結晶構造を明らかにした。X 線プロファイルデータを用いたコンピュータシミュレーションにより、各メチレン連鎖数のことなる PC グリコールの結晶構造を明らかにし、カーボネート結合部の相互作用がメチレン連鎖数により異なること、メチレン連鎖数 9, 10 ではエチレンのトランスジグザグの結晶構造を取ることを見いだしている。第 4 章では合成した PC グリコールを基材とするポリウレタンにおいて、メチレン練鎖数が偶数では、奇数のそれと比較して引張り強さ、破談強度とともに大きな値を示すこと、伸長配向結晶化が顕著に表れることから、メチレン連鎖数がポリウレタンの物性を制御する上で重要な因子であることを指摘している。第 5 章では、PC 系ポリウレタンに柔軟性を付与する方法として、メチレン連鎖数の異なるモノマージオール(1,4-ブタンジオール(BD)/1,6-ヘキサンジオール (HD) の共重合法を採用している BD/HD の組成比を変化させると、BD 成分が多くなるほど室温での性状は固体から液状となるが、カーボネート基の増加によるミクロブラウン運動性の低下のため、ガラス転移温度は上昇することから、柔軟性の付与のためには BD/HD の組成比の最適値があることを見いだしている。

平成18年2月14日開催の研究科教授会は、本論文が新規な内容を含みポリウレタン科学の発展に学術的かつ工業的に寄与するものであることを認め、博士（工学）の学位に値すると判定した。