

氏名	莊所 大策
授与した学位	博士
専攻分野の名称	環境学
学位授与番号	博甲第5232号
学位授与の日付	平成27年 9月30日
学位授与の要件	環境生命科学研究科 環境科学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	Study on Morphology Control of Aromatic Polyimide Particles by Using Environmentally Benign Solvent (環境低負荷型溶媒を利用した芳香族ポリアイミド微粒子の高次構造制御に関する研究)
論文審査委員	教授 木村 邦生 教授 木村 幸敬 准教授 高口 豊 准教授 山崎 慎一

学位論文内容の要旨

芳香族ポリアイミドは、高い力学的特性、耐熱性、耐薬品性などから高性能高分子材料として利用されてきた。最近では、有機フィラーやカーボンの前駆体として高次構造が制御された微粒子調製に関する研究が盛んに行われている。しかし、多くの芳香族ポリアイミドは成型性に乏しいために、高次構造の合目的制御が困難である。近年、環境問題の観点から、環境低負荷型溶媒である水やアルコール中での高分子調製技術の開発が求められている。そこで本論文では、環境低負荷型溶媒を用いた新しい芳香族ポリアイミド微粒子の高次構造制御法の開発を目的とした。

第一章では、芳香族ポリアイミド微粒子調製に関する研究動向の調査を行った。その結果、極性溶媒を利用した沈殿重合法などでは高次構造制御が困難であることが分かった。塩モノマー結晶の水熱重合による芳香族ポリアイミド微粒子の調製などの報告例もあるが、合目的な高次構造制御には至っていない。そこで、塩モノマーの固相重合法、ならびに水中での重合結晶化法に着目し、芳香族ポリアイミド微粒子の高次構造制御について検討した。

第二章では、水やアルコール中でテトラカルボン酸とジアミンから塩モノマーを調製する際の条件によって、菱形状、板状ならびに繊維状など多様な高次構造を有する塩モノマー結晶が調製でき、その高次構造を保持したまま固相重合することでポリアイミド結晶の高次構造が制御できることを見出した。得られたポリ (*p*-フェニレンピロメリットイミド) (PPPI) 菱形状結晶の固体構造を解析し、分子鎖が結晶の厚み方向に配向していることも明らかにした。

第三章では、水溶性のピロメリット酸ジエステルとジアミンを用いることで、水中での重合結晶化により PPPI 板状結晶が調製できることを明らかにした。重合条件の最適化により、280℃で10分という短時間の重合で PPPI 微粒子が調製できることも見出した。

以上より、環境低負荷型溶媒中での塩モノマー結晶の調製と固相重合、ならびに水中での重合結晶化といった新しい芳香族ポリアイミド微粒子の高次構造制御法を開発することができた。

論文審査結果の要旨

芳香族ポリイミドは、高い力学的特性、耐熱性、耐薬品性などから高性能高分子材料として利用されてきた。最近では、有機フィラーやカーボンの前駆体として高次構造が制御された微粒子調製に関する研究が盛んに行われている。しかし、多くの芳香族ポリイミドは成型性に乏しいために、高次構造の合目的制御が困難である。近年、環境問題の観点から、環境低負荷型溶媒である水やアルコール中での高分子調製技術の開発が求められている。そこで本論文では、環境低負荷型溶媒を用いた新しい芳香族ポリイミド微粒子の高次構造制御法の開発を検討している。

本論文は3章からなり、第1章では、芳香族ポリイミド微粒子調製に関する研究動向を調査している。その結果、極性溶媒を利用した沈殿重合法や塩モノマー結晶の水熱重合による芳香族ポリイミド微粒子の調製では合目的な高次構造制御が困難であるとの結論に至っている。そこで、塩モノマーの固相重合法、ならびに水中での重合結晶化法に着目し、第2章と第3章で芳香族ポリイミド微粒子の高次構造制御について検討している。その結果、第2章では、水やアルコール中でテトラカルボン酸とジアミンから塩モノマーを調製する際の条件によって、菱形状、板状ならびに繊維状など多様な高次構造を有する塩モノマー結晶が調製でき、その高次構造を保持したまま固相重合することでポリイミド結晶の高次構造が制御できることを見出している。得られたポリ(*p*-フェニレンピロメリットイミド)菱形状結晶の固体構造を解析し、分子鎖が結晶の厚み方向に配向していることも明らかにした。第3章では、水溶性のピロメリット酸ジエステルとジアミンを用いることで、水中での重合結晶化によりポリ(*p*-フェニレンピロメリットイミド)の板状結晶が調製できることを明らかにしている。重合条件の最適化により、280℃で10分という短時間の重合でPPPI微粒子が調製できることも見出している。

以上より、環境低負荷型溶媒中での塩モノマー結晶の調製と固相重合、ならびに水中での重合結晶化といった新しい芳香族ポリイミド微粒子の高次構造制御法を開発しており、これらの研究成果は、高分子化学の発展に寄与するとともに、環境化学分野への貢献も評価でき、学位に十分に値すると判断できる。