

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	分子動力学シミュレーションと原子間力顕微鏡によるプラスチック材料のナノ物性解析
Title(English)	
著者(和文)	細谷亮平
Author(English)	Ryohei Hosoya
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11616号, 授与年月日:2020年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:中嶋 健,原 正彦,穴戸 厚,古屋 秀峰,戸木田 雅利,森田 裕史
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11616号, Conferred date:2020/9/25, 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 コース	系 コース	申請学位 (専攻分野)： 博士 Academic Degree Requested Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	細谷 亮平		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	中嶋 健
			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「分子動力学シミュレーションと原子間力顕微鏡によるプラスチック材料のナノ物性解析」と題し、全7章で構成されている。

第1章「緒論」では、ナノメートルスケールにおける力学物性(ナノ物性)の評価手法としての分子動力学シミュレーション(MD)と原子間力顕微鏡(AFM)の特徴と、両手法を併用した手法について概観している。高密度ポリエチレン(HDPE)とポリスチレン(PS)を評価対象に、物性を決定づける高次構造と荷重負荷に起因する物理的現象を明らかにするという目的のもと、両手法を相補的に応用することの意義について述べている。

第2章「AFMによるナノ物性測定とその解析方法」では、AFMの探針を試料に対して垂直に押し込み、引き離す挙動をもとに、荷重と試料変形量を測定する原理と実際のフォース-試料変形量測定例、ナノ物性を解析するための代表的な理論モデルについて述べている。また、弾性率などのナノ物性を解析するための手段として採用したDMT接触理論モデルとJKR接触理論モデル、その理論選択のための手段として使用したTaborパラメータ及び凝着地図について述べている。

第3章「MDのモデル構造とナノ物性シミュレーション方法」では、MDで使用する分子モデル(ユナイテッドアトムモデル)やポテンシャル、外場、温度制御方法などの基本的なシミュレーション条件のほか、AFMによるナノ物性測定方法を再現するための基本モデルの構成について記述している。ここで決定した探針押し込み深さとユニットセルのサイズをもとにフォース-試料変形量曲線を描いたところ、その曲線はAFMで得られる曲線の特徴を良く捉えたものであった。

第4章「非晶性材料(PS)のナノ物性解析」では、MDとAFMともに23°Cにおけるフォース-試料変形量曲線とナノ物性を解析している。MDで予測したフォース-試料変形量曲線は探針を押し込む場所が異なっても、その形状は類似することを示している。しかしその一方で解析した弾性率は測定場所ごとに定量的差異が見られたことから、その差異は局所的な密度の違いに起因する可能性が示唆された。さらに平均値と標準偏差、最頻値はAFMの各測定結果に対して同等のスケールで予測されていることから、モデルの再現性は高いといえる。

第5章「結晶性材料(PE)のナノ物性解析」では、MDとAFMともに23°Cにおけるフォース-試料変形量曲線とナノ物性を解析している。MDモデルは折り畳み鎖とアモルファス鎖からなる半結晶性構造を再現でき、探針の接触位置がフォース-試料変形量曲線の形状に影響を与えることを述べている。各測定点において解析した弾性率にもまた有意差が見られ、探針接触下における高次構造の違いと荷重負荷による分子挙動の違いに起因することを明らかにしている。また、弾性率の平均値はAFMと同等の値が得られ、モデルとしての有効性を示している。AFMで2 μ m四方においてナノ物性を評価した結果、フォース-試料変形量曲線はMDと同様の特徴が見られること、測定面の弾性率像に不均一性が見られることなどもまたそれを裏付けている。ここではさらにフォース-試料変形量曲線に見られる特徴を簡便に解析する手段として、判別パラメータを定義している。

第6章「温度依存性解析」では、PSとHDPEについて、ナノ物性の温度依存性を評価している。PSに関して、AFMで測定したフォース-試料変形量曲線は高温になるにつれて劇的に変化し、ガラス転移温度(Tg)を超える温度帯では塑性変形が生じる。一方MDのフォース-試料変形量曲線はTgを超える温度帯で劇的に形状が崩れ、押し込み曲線と引き離し曲線がほとんど一致しない。弾性率はTgに近接した温度帯において弾性率の平均値と標準偏差に特異な変化が生じる。これらガラス-ゴム転移領域における高次構造の変化をAFMとMDの両側面から見た知見を述べている。HDPEについては、第5章でMDの結果をもとに定義した判別パラメータをAFM測定結果に対して適用する解析手法を提案している。判別パラメータはフォース-試料変形量曲線の形状及びMDで予測した分子ダイナミクスを数値化する考えに基づいていることから、このパラメータを指標にしてナノ物性値を解析することにより、実際には観測することのできない探針直下のダイナミクスと実際に測定した物性データを結びつけることができる。その結果、低温域では荷重負荷により結晶粒界の滑りが顕著に表れる一方で結晶構造は保たれていること、今回の場合64°Cを超えると結晶構造が緩和することを明らかにしている。

第7章「結論」では、本論文の内容について総括し、今後の展望について記述している。これを要するに、本論文は高分子の高次構造がナノ物性に与える影響について、MDとAFMを併用した手法により明らかにしている。視覚的かつ定量的な観点から解析することのできる本手法は、他材料に対する有用性も十分に望め、広範な材料について物性と構造の関係解明につながることを期待されることから、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。

(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 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	細谷 亮平	指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	中嶋 健	
		指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

The aim of this doctoral thesis is to clarify the relationship between higher-order structures and mechanical properties of polyethylene (PE) and polystyrene (PS) at the nanometer scale (nanomechanical properties) by using a combination of molecular dynamics simulation (MD) and atomic force microscopy (AFM). The doctoral thesis consists of seven chapters, and the outline of each chapter is as follows.

In chapter 1, significance of the complementary application of MD and AFM and the reasons for selecting PE and PS as samples were described.

In chapter 2, detailed measurement principle for obtaining nanomechanical properties using the AFM technique was provided.

In chapter 3, settings for MD were described. To obtain the nanomechanical properties using MD, the contacting movement between an AFM probe tip and the sample surface was imitated, and the load generated on the tip was simulated.

In chapter 4, correlation curves between the force and sample deformation (force-deformation curve) of PS at 23 °C were analyzed. As a result, the high reproducibility of the MD model was assured because the similarities in curve shapes and moduli obtained from the curves were confirmed between MD and AFM.

In chapter 5, force-deformation curves of PE obtained at 23 °C were analyzed. The plane zigzag structure and amorphous structure of PE could be reproduced in the MD model. It was cleared that the nanomechanical properties depended on the contact position of the probe.

In chapter 6, the temperature dependence of nanomechanical properties for PS and PE was evaluated. It was confirmed that the nanomechanical properties of PS changed significantly at glass transition temperature and that of PE at crystalline dispersion.

In chapter 7, knowledge obtained in chapter 3 to 6 were briefly summarized, and future prospects were described. The method, which combines MD and AFM, can evaluate the nanomechanical properties visually and quantitatively, and it is expected to be effective for various materials.

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 1 copy 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).