

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |  |
|-------------------|--|
| 題目(和文)            | コア径分布が広い高分子グラフトナノ粒子の構造と動力学   |
| Title(English)    | Structure and dynamics of polymer-grafted nanoparticles with broad size distribution   |
| 著者(和文)            | 岩田直人   |
| Author(English)   | Naoto Iwata  |
| 出典(和文)            | 学位:博士(工学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第10767号,<br>授与年月日:2018年3月26日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:戸木田 雅利,安藤 慎治,大塚 英幸,中嶋 健,松本 英俊  |
| Citation(English) | Degree:Doctor (Engineering),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第10767号,<br>Conferred date:2018/3/26,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner:,,,, |
| 学位種別(和文)          | 博士論文   |
| Category(English) | Doctoral Thesis  |
| 種別(和文)            | 審査の要旨  |
| Type(English)     | Exam Summary   |

## 論文審査の要旨及び審査員

| 報告番号        | 甲第  | 号     | 学位申請者氏名 | 岩田 直人 |     |
|-------------|-----|-------|---------|-------|-----|
| 論文審査<br>審査員 |     | 氏名    | 職名      |       |     |
|             | 主査  | 戸木田雅利 | 准教授     | 松本 英俊 | 准教授 |
|             | 審査員 | 安藤 慎治 | 教授      |       |     |
|             |     | 大塚 英幸 | 教授      |       |     |
| 中嶋 健        |     | 教授    |         |       |     |

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Structure and dynamics of polymer-grafted nanoparticles with broad size distribution (コア径分布が広い高分子グラフトナノ粒子の構造と動力学)」と題し、全5章から構成されており、英文で書かれている。

第1章「Introduction (序論)」では、本研究の背景を述べ、本研究の目的と意義を明確にしている。高分子ナノコンポジット材料の課題、高分子グラフト粒子(PGNP)の調製法、粒子表面にグラフトされた高分子鎖の構造、PGNPを利用した材料など、PGNPに関するこれまでの研究を紹介している。

第2章「Transparent and high permittivity films of poly(methyl methacrylate)-grafted 7 nm barium titanate particles prepared by surface-initiated atom transfer radical polymerization (表面開始 ATRP 法で合成したポリメチルメタクリレート・グラフト・チタン酸バリウムナノ粒子による透明高誘電率フィルム)」では、PGNPを利用した透明かつ高誘電率性のコンポジットフィルムの調製と構造、物性について述べている。コア径  $7 \pm 3$  nm のチタン酸バリウム ( $\text{BaTiO}_3$ , BT) 粒子に  $0.2\text{--}0.7$  本/ $\text{nm}^2$  の密度で数平均分子量 ( $M_n$ ) が 3 万~4 万のポリメタクリル酸メチル (PMMA) 鎖をグラフト、これをメルトプレスすることで、可視光透過率 80% 以上のコンポジット自立フィルムが調製できること、BT コアの体積分率が 10% のコンポジットフィルムの比誘電率  $\epsilon_r$  (25°C, 1 kHz) が 4.1 となることを見出している。BT コアが PMMA グラフト鎖からなるマトリックス中にランダムに分散することで、フィルムの透明性を損なうことなく、 $\epsilon_r$  を増加させたと結論するとともに、コンポジットフィルムの  $\epsilon_r$  の BT 体積分率依存性を対数混合則で説明し、BT コアの  $\epsilon_r$  を 47 と見積っている。

第3章「Linear rheology of self-suspended polymer-grafted nanoparticles with broad core size distribution (コア径分布の広い高分子グラフトナノ粒子の線形粘弾性)」では、直径  $8 \pm 4$  nm のシリカ・コア表面に  $0.4\text{--}0.9$  本/ $\text{nm}^2$  の密度で  $M_n$  が 1 万~13 万のポリスチレン (PS) をグラフトした PGNP の線形粘弾性特性について述べている。PGNP の貯蔵弾性率 ( $G'$ )、損失弾性率 ( $G''$ ) の合成曲線は、グラフト鎖の  $M_n$  の減少に伴い、からみあった PS メルトに類似したものから、ゲルに特徴的なものへと変化すること、PGNP に特徴的な緩和モードを含んでいることを見出している。その緩和周波数  $\omega_d$  は粘度  $G''(\omega_d)/\omega_d$  の媒体中の直径 10 nm の球の運動の時間スケールに対応することから、この緩和はコアの運動によるものと考察している。 $M_n$  の減少に伴い  $\omega_d$  は増加する一方、その強度は増加の後、コアの分率が増加するにもかかわらず減少したことから、 $M_n$  の減少に伴う PGNP のレオロジー挙動の変化は、伸びきったグラフト鎖を有する PGNP の間の反発相互作用によってコアの運動が制限されるために生じると結論している。

第4章「Controlling the location of PGNPs in polymeric matrices by channel patterning (凹凸パターンニングによる高分子マトリックス中での PGNP の位置の制御)」では、ナノ粒子が規則的に偏析したドメイン構造を有するコンポジットフィルムの創製を行っている。 $M_n$  が 4 万の PS マトリックスに PS グラフトシリカ粒子 (グラフト PS の  $M_n = 1$  万~4 万、コア径  $8 \pm 4$  nm) を添加し、コアがランダムに分散したコンポジットフィルムを調製、フィルム表面に凹凸パターンの型を押し付けながら、160°C で熱処理を行った。これによりコンポジットフィルムにモールドの凹凸が転写されるとともに、凹部に存在するコアの数が熱処理時間の増加に伴い減少すること、残存するコア数は、グラフト鎖の  $M_n$  の増加あるいは凹部のフィルム厚の減少に伴い減少することを見出している。パターンニングによる PGNP の移動は、PGNP が狭い空間に閉じ込められることによるグラフト鎖のエントロピー的な束縛によるものであると結論している。

第5章「Conclusion (結論)」では、各章の結果を総括し、結論を述べている。

これを要するに、本論文は、高分子グラフトナノ粒子についてその構造とレオロジー特性を明らかにし、そのフィルム中での規則的偏析や透明高誘電率コンポジットフィルムへの応用を図っており、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。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(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。