

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ケイ素酸化物とのナノ複合材料におけるアクリル系高分子の分子運動性に与える界面の影響
Title(English)	Interfacial Effect on Molecular Motion of Acrylic Polymers in Nanocomposites with Silicon Oxide
著者(和文)	松浦一喜
Author(English)	Kazuki Matsuura
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11952号, 授与年月日:2021年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:扇澤 敏明,森川 淳子,松本 英俊,浅井 茂雄,古屋 秀峰
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11952号, Conferred date:2021/3/26, Degree Type:Course doctor, 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	松浦 一喜	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	扇澤 敏明	教授	古屋 秀峰	准教授
	審査員	森川 淳子	教授		
		松本 英俊	教授		
		浅井 茂雄	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Interfacial Effect on Molecular Motion of Acrylic Polymers in Nanocomposites with Silicon Oxide (ケイ素酸化物とのナノ複合材料におけるアクリル系高分子の分子運動性に与える界面の影響)」と題し、以下の6章から構成されている。

第1章「General introduction (序論)」では、高分子系複合材料における高分子とフィラー間界面に関する研究の重要性について概説した上で、アクリル系高分子とシリカナノ粒子を混合した複合材料を用いてその界面領域における高分子の分子運動性について検討するという本研究の目的と意義を述べている。

第2章「Interfacial effect of silica nanoparticles on molecular motion of polyacrylates (ポリアクリレートの分子運動性に関するシリカナノ粒子の界面効果)」では、アクリル系高分子であるポリアクリレートとシリカナノ粒子との混合系において、ポリアクリレート単体のガラス転移温度(T_g)に加え、それよりも高温側にも T_g が生じることを見出している。この高温 T_g を示す領域はシリカナノ粒子との界面近傍で形成されており、高分子の側鎖と粒子表面との相互作用によって高分子鎖の運動が束縛され分子鎖のパッキングが高い領域であることを明らかにしている。

第3章「Interfacial effect of silica nanoparticles on molecular motion of poly(methyl methacrylate) (ポリメチルメタクリレートの分子運動性に関するシリカナノ粒子の界面効果)」では、ポリメチルメタクリレート (PMMA) とシリカナノ粒子との混合系において、2章で示したポリアクリレート系とは異なり、PMMA 単体よりも高い温度で1つの T_g のみを示すことを示している。これは、側鎖のカルボニル基とシリカナノ粒子表面のシラノール基の物理的相互作用により、PMMA 鎖の分子運動性が制限されていることに起因し、相互作用に関係する官能基はポリアクリレートと同じであるものの α 位のメチル基の有無によって分子鎖の束縛領域の構造が異なることに起因するとしている。

第4章「Tacticity effect on molecular motion of poly(methyl methacrylate)/silica nanoparticle composite (ポリメチルメタクリレート/シリカナノ粒子複合材料の分子運動性に関するタクチシチーの効果)」では、シンジオタクチック成分を多く含む PMMA(*st*-PMMA)はシリカナノ粒子添加により T_g が上昇したが、アイソタクチック成分を多く含む PMMA(*it*-PMMA)は T_g があまり変化しないことを見出し、タクチシチーの違いによる界面構造の違いを記述している。*st*-PMMA はシリカナノ粒子表面への分子鎖あたりのカルボニル基の吸着率が低く、一部のカルボニル基のみが吸着するが、界面から離れた距離にある分子鎖にまで影響がおよび、運動性の低下がみられる領域が広がることにより T_g の上昇に寄与するとしている。一方、*it*-PMMA は、シリカナノ粒子表面への吸着率が高く強く相互作用するが、界面近傍の鎖のみにそれがみられ、界面から離れた距離にある分子鎖にまで運動性の低下の影響を及ぼさないことから、 T_g があまり変化しないと結論づけている。

第5章「Solvent effect on interfacial region of poly(methyl methacrylate) with silica nanoparticle (シリカナノ粒子とポリメチルメタクリレートの界面領域における溶媒効果)」では、PMMA とシリカナノ粒子との混合系試料において分子運動性に対する溶媒の影響について検討している。PMMA 単体を THF 溶液から室温でキャストした場合、溶媒を完全に除去しても T_g が低くなり、高温で熱処理した場合と異なる構造となることを見出している。PMMA とシリカナノ粒子を THF 溶液から作製した場合において、高温で熱処理した場合と比べて T_g の上昇が抑えられることを示している。これは、溶媒存在下では溶媒と PMMA との相互作用が強く、シリカ表面と PMMA との相互作用が弱められるため、PMMA 分子鎖の運動性が高い状態を維持したまま構造が形成されるためであると結論づけている。

第6章「General conclusions (総括)」では、本研究で得られた結果を総括している。

これを要するに、本論文はアクリル系高分子とシリカナノ粒子間の界面近傍における高分子鎖の運動性について詳細に検討するとともに、高分子系複合材料における界面の構造と物性との関係を明らかにし、この材料を幅広く展開するための知見を与えたものであり、学術上のみならず工学上、工業上貢献するところが大きい。よって博士 (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。