

氏 名	は せ が わ な お き 長 谷 川 直 樹
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3859 号
学位授与の日付	平 成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	ポリマークレイナノコンポジットの作製と特性に関する研究

論文調査委員	(主 査) 教 授 中 條 善 樹	教 授 糴 谷 信 三	教 授 澤 本 光 男
--------	----------------------	-------------	-------------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、ポリマークレイナノコンポジットに関して新しい作製手法を考案し、得られた新しいナノコンポジットの特性を論じた結果をまとめたものであって、5部14章からなっている。

第1章は序論であり、本研究対象であるポリマークレイナノコンポジットの概要、および本研究の二つの主要目的、①オレフィン系ポリマーを中心とした新規なクレイナノコンポジットの創製、②ナノ分散したクレイシリケートとマトリックス界面での相互作用に基づくクレイナノコンポジットの新たな可能性の提示について述べている。

第1部では、シリケートがナノ分散したポリプロピレンクレイナノコンポジット(PPCN)の創製と特性評価について論じている。第2章では、種々の有機化合物が有機処理したクレイ層間への侵入する挙動を調べ、侵入のドライビングフォースが、高極性なシリケート表面と有機化合物の官能基間の静電的な相互作用であることを明らかにしている。第3章では、第2章の結果を基に、少量の極性基を導入した変性ポリプロピレン(変性PP)が有機化クレイ層間へ侵入しシリケートの層剝離を促進することを見出し、この現象を利用してPPCNの創製に成功している。第4章では、PPCN中のシリケートおよびPPの構造を解析し、PPCNのナノメートルからミクロンレベルに至る階層構造を明らかにしている。第5章では、PPCNの力学特性、粘弾性特性、ガスバリア特性を調べ、シリケートのナノ分散の効果を実証している。第6章では、PPCN中でのシリケートの分散状態を解析し、自発的、連続的な層剝離を経たシリケートのナノ分散過程を解明している。

第2部第7、8章では、実用材料の開発を目指し、変性PPをPPと有機化クレイ間の相溶化剤に用いたPPCNの創製と特性評価について論じている。変性PPの相溶化剤としての効果を実証し、特に変性PPとPPの相溶性がシリケートの分散性に大きな影響を与えること明らかにしている。また用いた変性PPの融点、分子量などの物性が、PPCNの力学特性、熱的特性に与える影響を明らかにしている。

第3部では、極性基導入によるシリケートのナノ分散の概念を他のポリオレフィンに適用した結果について論じている。第9章では、これまでの成果をポリオレフィン系エラストマーにあるエチレンプロピレンラバーに適用し、シリケートによるクリープ変形抑制効果、膨潤抑制効果などの高性能化を実証している。第10章では、共重合により極性基を導入したポリスチレン系共重合体に適用し、ポリスチレンクレイナノコンポジットの創製に成功している。

第4部第11章では、シリケートが層剝離に至る要因について考察している。ポリマー中でのシリケートの分散状態が、シリケートと溶融ポリマーの接触時間や剪断力等の速度論的な因子に寄らず、ポリマーと有機化クレイ間の熱力学的安定性に主に依存することを明らかにしている。また共重合体を用いた解析を考案し、熱力学的安定性がポリマーマトリックスと有機化クレイの極性のマッチングにより得られることを解明している。

第5部では、シリケートと自己組織的な性質を有するマトリックス間の相互作用に基づくクレイナノコンポジットの新たな可能性として、二つの例を示している。第12章では、ブロック共重合体をマトリックスとしたクレイナノコンポジットを創製し、この中でシリケートにより高次に制御されたミクロドメイン構造が誘起されることを新たに見出している。第13章では、クレイナノコンポジット技術の機能材料への応用として、液晶クレイナノコンポジットを創製している。微細分散し

たシリケートにより液晶中にマルチドメイン構造が誘起され、強い光散乱効果を生み出すこと、また強いメモリー効果を発現することを見出している。またこの材料の光デバイスへの応用として、二周波駆動液晶を用いた電場印加によるメモリー性光スイッチングを考案している。

第14章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、オレフィン系ポリマーを中心に、層状粘土鉱物（クレイ）がポリマー中にナノメートルレベルで分散したクレイナノコンポジットの創製とその特性の評価、及びクレイナノコンポジット技術の新たな可能性探索を目的として研究した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は次の通りである。

1. 少量の極性基を導入した変性ポリプロピレンが、有機化処理したクレイシリケート層間へ侵入し層剝離を促進することを見出し、この現象を利用して、ポリオレフィンでのクレイナノコンポジットの創製に成功している。得られたナノコンポジットが、ミクロンレベルで補強材が分散した従来のコンポジットに比べ、高い補強効果や高ガスバリア性等の優れた材料特性を有することを実証するとともに、分散したシリケートがポリマーの結晶や球晶構造等のナノメートルからミクロンレベルに至る構造に影響を与えることを明らかにし、材料特性との関連を解明している。またシリケートの分散状態を詳細に解析し、自発的、連続的な層剝離を経たシリケートのナノ分散過程を解明している。

2. 極性基導入によるクレイのナノ分散技術を、ポリスチレン、エチレンプロピレンラバー等の他のポリオレフィンに適用しその一般性を実証すると共に、材料特性の向上を明らかにしている。

3. ナノメートルレベルで分散したシリケートとマトリックス間の強い相互作用に着目し、クレイナノコンポジットの新たな可能性を探索している。マトリックスに自己組織的な性質を有するブロック共重合体やネマチック液晶を用いることで、新たなナノ構造が誘起され、新たな機能が発現することを見出している。

複数の新たなポリマー・クレイナノコンポジットを創製し、その特性を評価・解明しており、本論文は、ポリマー系ナノコンポジットの発展において、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成17年2月21日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。