

氏 名	木 村 将 弘
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3813 号
学位授与の日付	平 成 16 年 11 月 24 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	プロセッシング過程における界面制御による機能性高分子材料の構造形成
論文調査委員	(主 査) 教 授 大 嶋 正 裕 教 授 橋 本 竹 治 教 授 東 谷 公

論 文 内 容 の 要 旨

高分子材料の高機能化の手段の一つとして、無機あるいは異なる有機成分、(異素材)を複合化させる技術がある。この異素材複合化技術では、異素材界面を制御することによる構造形成が非常に重要となる。本論文では、材料プロセッシングをとおした界面制御による機能性高分子材料の構造形成の研究を主眼に、熔融界面制御によるポリエチレンテレフタレート(PET)/微粒子(酸化アルミ, 酸化珪素, 酸化チタン, 炭酸カルシウム)の高相互作用構造形成, および塗布界面制御によるブロック共重合体の広範囲微細構造形成について検討している。前者では、微粒子表面の酸・塩基性, 表面処理剤の立体障害効果が重要であることを明らかにし, 表面塩基性微粒子が PET との高相互作用構造を形成できることを見出した。後者では、乾燥過程における系内の溶媒流れの指向性と相分離の制御に成功し, 10 μm を超える広範囲に均一配列したブロック共重合体ドメイン構造形成を達成した。本論文の具体的な内容は以下の通りである。

第1章は、既往の研究についてまとめ、従来の研究では、PET/微粒子の研究に対して、統一的な表面自由エネルギーの解析および、常温から、実際のプロセッシング過程である高温場までの相互作用の考察が欠落していることを指摘している。また、短時間で処理可能なプロセスとして期待できる溶液系において、広範囲で均一な構造形成は現象論的にも理解が浅く、重要であるプロセス因子がなにであるかの明確化も欠如していることを指摘し、本論文の科学的かつ工学的な位置づけを明確にしている。

第2章では、酸化アルミ, 酸化珪素, 酸化チタン, 炭酸カルシウムの各種微粒子と PET のオリゴマーである BHET との相互作用を高温湿潤熱測定で解析し, PET の分子骨格モデルとの湿潤熱測定結果および PET/微粒子の IR 解析などから, PET と強固な反応界面を形成する塩基性粒子において高相互作用構造が形成されることを見出した。

第3章および第4章では、PET/微粒子の相互作用メカニズムを解明するため、PET, 微粒子の表面自由エネルギーを解析することを試みた。その結果、微粒子の表面自由エネルギーの酸・塩基成分が相互作用に強く関連し、微粒子を表面処理した際には、その立体障害性を考慮する必要があることを示唆している。

第5章では、塗布乾燥プロセスにおいて、液滴の端部固定と傾斜による液滴形状の制御により、溶媒流れの端部指向性を発現させるとともに、選択溶媒による相分離制御により、広範囲で水平方向に均一に配列したドメイン構造の形成を達成し、重要なプロセス因子を明らかにした。

第6章では、溶媒蒸発速度を制御することにより、垂直ドメイン配列を形成した後、溶媒アニーリング、その後の溶媒蒸発によるゾーン相分離による再編成により、広範囲垂直均一配向ドメイン構造形成を達成し、その現象論的考察を行った。さらに、ポリエチレンオキサイドドメインへの水吸着により、ドメインサイズのチューニングにも成功している。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、複合材料界面の制御を材料プロセッシングにより行い高機能性高分子材料の構造形成の研究を、ポリエチレンテレフタレートと酸化アルミ, 酸化珪素, 酸化チタン, 炭酸カルシウム等の微粒子系およびブロック共重合高分子と溶媒系

を対象に実施したものであり、その主な成果は次の2つにまとめられる。

1) ポリエチレンテレフタレート (PET) と酸化アルミ、酸化珪素、酸化チタン、炭酸カルシウム等の微粒子との相互作用解析

酸化アルミ、酸化珪素、酸化チタン、炭酸カルシウムの各種微粒子と PET のオリゴマーである BHET との相互作用を高温湿潤熱測定で解析し、PET の分子骨格モデルとの湿潤熱測定結果および PET/微粒子の IR 解析などから、PET と強固な反応界面を形成する塩基性粒子において高相互作用構造が形成されることを見出した。さらに、PET と微粒子との表面自由エネルギーを解析し、微粒子の表面自由エネルギーの酸・塩基成分が相互作用に強く関連し、微粒子を表面処理した際には、その立体障害性を考慮する必要があることを指摘している。

2) 塗布界面制御によるブロック共重合体の広範囲微細構造形成

ポリスチレン・ポリブタジエンブロック共重合体の高分子溶液 (選択溶媒) を基板上に滴下し乾燥させる過程において、液滴の端部固定と傾斜による液滴形状の制御ならびに溶媒乾燥速度の制御を行い、系内の溶媒流れの指向性を持たせるなかで相分離構造を誘起させ、広範囲で水平方向に均一に配列ドメイン構造の形成を達成した。次に、ポリスチレン・ポリエチレンオキサイドブロック共重合体において、良溶媒の蒸発速度を制御することにより、垂直ドメイン配列を形成させた。さらに溶媒キャスト、溶媒アニーリング、その後の溶媒蒸発によるゾーン相分離による再編成を行い、広範囲垂直均一配向ドメイン構造形成を可能とした。また、ポリエチレンオキサイド相への水の吸着による、相のサイズの制御性についても明らかにしている。

以上の内容により、本論文は、高分子材料の高機能化技術であるコンボジット (複合化) および構造化を材料プロセッシングによる界面制御によって行うための基礎的な研究をまとめたものであり、学術上、実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16年10月26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。