

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 高見 和之

本論文は6章より構成されており、有機成分と無機成分の組成比が過去に類を見ない数十 nm ~ 100nm の範囲で連続的に変化し、かつこの構造が自発的に発現する傾斜材料を、二つの視点から検討している。一方は高分子の吸着過程を利用するものであり、他方は高分子の IPN 構造を利用したものである。またこれらの傾斜材料への多機能化や実用化についても検討を行っている。

第1章では傾斜材料の紹介と研究の目標が設定され、それに続く第2章、第3章では、それぞれが異なるアプローチによって検討された、有機成分と無機成分の組成比が数十 nm ~ 100nm の範囲で連続的に変化した自己組織化無機/有機成分傾斜薄膜の具体的な研究成果が示されている。第4章では、第2章で得られた自己組織化無機/有機成分傾斜薄膜の表面無機層内に新たな傾斜構造を付与することによってその光学特性を改善した低反射薄膜の具体的な研究成果が示されている。第5章では、光触媒酸化チタンを塗工した機能表面プラスチックフィルムを例に挙げ、第2章で得られた自己組織化無機/有機成分傾斜薄膜の具体的な実用化例が示されている。最終章では、全体の総括と研究に関する将来展望が述べられている。

第1章は序論である。傾斜材料が日本発の機能材料であり、生物の特殊な構造材料や世界の最先端材料で特に高強度材料として注目を集めている傍ら、近年ではその傾斜構造を利用した光学的特性、電気・磁気的特性など様々な物性も期待され、かつ研究が進められていることをまとめている。一方、その傾斜構造は数 μm 以上の大きさであることが多く、光学的特性を期待するために好適な100nm未満の大きさでの傾斜構造は例が少ないことも指摘している。加えて、傾斜構造を形成させる手法も煩雑になりやすく、簡易な手法で自発的に傾斜構造を発現させる自己組織化プロセスの検討も重要であることに言及している。

第2章では、無機高分子を側鎖に有する高分子化合物が有機基板に吸着したときに形成される吸着形態（高分子の高次構造）に着目している。無機側鎖を有した無機・有機共重合高分子化合物が有機基板に吸着した際、有機主鎖や無機側鎖が基板の垂直方向に傾斜分布する。この薄膜を乾燥・熱処理することで無機側鎖をゲル化させ傾斜分布を固定することによって、数十 nm の大きさの無機/有機傾斜薄膜を完成させている。この傾斜構造は、高分子の分子量、分子構造、溶液の濃度、基板の特性、ゾルゲル反応に伴う無機側鎖の過度な伸長反応によって著しく制限されることも明らかになっており、その無機側鎖の伸長に伴う阻害因子を少なくするための溶媒選定、分子設計も行われている。またこの傾斜構造は高分子の吸着時に形成される高次構造を阻害しない限り、スピコート法、ディッピング法のみならず、バーコーティング法、スプレーコーティング法などの様々な成膜方法に適応可能であり、また基体の意匠性を損なうことなく有機基板と無機コーティングの接合を極めて安定にすることも期待できることから、無限の市場・用途への展開や貢献が大いに期待される。

第3章では、有機高分子化合物の混合技術の一種である Interpenetrating Polymer Network (相互侵入網目構造) に着目し、無機高分子の三次元網目構造に絡み合った有機高分子鎖がゆっくりと解絡する途中で薄膜を乾固させて得るという新しい手法によって、他に類を見ない 100nm スケールでの傾斜薄膜を完成させている。IPN 構造は通常、本質的に混じり合わない2種類の高分子化合物の絡み合い構造を幾何学的障害によって安定させるが、本研究ではその幾何学的障壁が少ない semi-IPN 構造や架橋密度の低い full-IPN 構造を有した無機・有機ハイブリッド分子を作成し、成膜時に高分子の解絡に伴う2成分の相分離挙動が生じるように調整した。次に溶媒を選定することで乾燥速度を調整し、その相分離挙動の途中で薄膜を乾固させることで 100nm スケールでの傾斜薄膜を作成している。また、その傾斜構造を容易に形成されるための分子設計も行われている。この傾斜構造もまた様々な成膜方法に適用可能であり、また基体の意匠性を損なうことなく有機基板と無機コーティングの接合を極めて安定にすることも期待できる。

第4章では、第2章で得られた自己組織化無機/有機成分傾斜薄膜の表面無機層内に新たな傾斜構造を付与することによって機能化を図っている。塗工液中に含まれる2種類の金属アルコキシドの組み合わせを、その反応速度差が最も大きくなるように設計することによって、反応活性なチタニア成分が内部に、反応不活性なシリカ成分が表面に傾斜分布した構造を取ることを明らかにした。得られた薄膜の反射率は、第2章で得られたシリカ/PMM A系成分傾斜薄膜の反射率よりもさらに低い反射率を発現し、加えて低反射を実現した波長範囲も非常に広いことが明らかになった。

第5章では光触媒酸化チタンを塗工した機能表面プラスチックフィルムを例に挙げ、第2章で得られた自己組織化無機/有機成分傾斜薄膜の具体的な実用化例が示されている。有機高分子基板に酸化チタン光触媒をコーティングする場合、基材の光触媒劣化を防ぐために、光触媒劣化を受け難く且つ基材及び光触媒層との接着性に優れた中間層を介在させることが必要となる。有機接着剤を光触媒中間層に用いた場合では薄膜の安定性は十分であるが光触媒に対する耐久性に欠け、無機接着剤を光触媒中間層に用いた場合では光触媒に対する耐久性は十分であるが、薄膜の安定性に欠ける。これに対し傾斜薄膜を中間層に用いた光触媒コーティングは上記の問題は発生せず、加速耐侯試験にて市販品を遙かに凌駕する優れた耐久性を示すことが実証された。実用面において大いに期待されながらも実用化への課題が満載であった有機基体への光触媒コーティング技術において、本技術が大きな技術革新の先駆けになると大いに期待される。

第6章では、全体の総括と研究に関する将来展望が述べている。高分子の高次構造を利用した自己組織化材料は生体内の機能材料では多く認められるが、傾斜材料分野では他に類を見ない新しい手法である。本研究が自己組織化する傾斜薄膜の研究を 100nm 以下というナノスケール傾斜材料という新しい領域へと展開させたことを指摘し、その将来展望について述べている。

以上のように、本論文では新規材料の創製と応用並びに実用化について多くの提案が成されており、材料化学を始めそれに関連する様々な学際領域の発展に寄与しうると認められる。

よって本論文は博士(学術)の学位申請論文として合格と認められる。