

論文審査の結果の要旨

氏名 西田 理彦

本論文は「高性能ナノコンポジットゲルの構造解析と力学物性」と題し5章より成る。

第一章では、序論として高分子ゲルとはいかなるものか、また、高分子ゲルの研究の流れについて述べている。特に近年、研究が盛んに行われている力学物性に優れたゲルについて説明している。

第二章では、小角中性子散乱法 (SANS) の原理について説明している。本論文で採用しているコントラスト変調法、および同手法を用いた研究について説明している。また、変形下でのゲルの構造解析の過去の研究について概説している。

第三章では、コントラスト変調法を用い、一軸延伸下の NC ゲルの構造を詳細に調べている。本研究は変形下(一軸延伸下)における多成分ゲルに対し、コントラスト変調法をはじめて適用した研究であり、クレイ、ポリマーそれぞれの成分の構造変化を詳細に解析している。そして、変形下の NC ゲルでは (1) 延伸方向に平行な方向へのクレイ粒子が配向すること、(2) クレイ近傍にまとわりついていたポリマー吸着層がひきはがれること、(3) 延伸方向に垂直な方向でのクレイ粒子間距離が減少する(排除体積の減少)ことなど、微視的な構造の変化が起こっていることを明らかにしている。

第四章では、ナノコンポジットゲル中の高分子鎖(ポリイソプロピルアクリルアミド)の下限臨界共溶温度(LCST)以上での NC ゲルの変形下での構造変下をコントラスト変調法により詳細に調べている。クレイ粒子は、(LCST)以上、以下のいずれでも延伸に対しては類似の構造変化が起こることを観察している。つまり、ミクロ相分離した NC ゲルの中でもクレイ粒子は第三章と同様に延伸方向に平行な方向に配向することを明らかにした。一方で、ミクロ相分離ドメイン中の高分子鎖は延伸により引き伸ばされていくことを明らかにした。さらに、LCST 以上のゲルでは延伸倍率 2 倍以上の変形領域において応力一定の領域があることを観察し、この応力一定の起源は延伸倍率 2 倍までにゲル中でのクレイの配向などが終了したあと、クレイ表面で凝集していた高分子鎖が解きほぐれていくためであると推論している。

第五章では、NC ゲルを一軸変形下における力学緩和減少および変形を戻した際のヒステリシスについて、応力-歪み試験および SAXS、SANS 測定により調べ、応力緩和現象の微視的な起因を明らかにしている。また、時分割 SAXS 測定により力学緩和過程ではクレイ粒子の配向などは変化しないものの、クレイ表面に吸着した高分子鎖の解きほぐれにより、力学緩和が起こると結論している。さらに、NC ゲルに対し一軸延伸試験をした

際、その延伸を終了するのに必要な時間(数十秒)よりも遅い時間スケール(数百秒)で高分子吸着層の解きほぐれ、再吸着が生じていることを明らかにしている。これらより、高分子のクレイ粒子への脱吸着の時間スケールが延伸試験に比べ遅いため、NCゲルは一軸延伸試験をおこなうと一定歪み下では応力緩和挙動を示し、また変形をもどした際にヒステリシスを示すというメカニズムを発見している。

ナノコンポジットゲルは力学特性に優れ、様々な機能を持っていることから機能性材料としても様々な応用展開が期待されている。本論文では、ナノコンポジットゲルの変形下での構造を詳細に調べ、それらの知見をもとにゲルの力学物性のデータを微視的構造の観点から説明している。このような、高分子ナノコンポジット系の変形下での構造をミクロな構造の観点から詳細に調べ関係性を明らかにした例は本研究の他にはほとんどなく、今後ナノコンポジット材料を研究していく上での一つの指針になりうる研究である。本研究で得られた知見は、今後、さらに優れた力学物性をもつゲルの開発に役立てられると考えられる。

なお、本論文第 3~5 章は、下記の方々との共同研究であるが、すべて論文提出者が主体となって実験および解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

(敬称、所属略)

第 3 章：大坂昇、遠藤仁、李歆軍、原口和敏、柴山充弘

第 4 章：遠藤仁、王林明、原口和敏、柴山充弘

第 5 章：王林明、原口和敏、柴山充弘

したがって、博士（科学）の学位を授与できるものと認める。