

氏名	ニシノ 西野	ゴウ 剛
学位の種類	博士（工学）	
学位記番号	博第811号	
学位授与の日付	平成24年3月23日	
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当 課程博士	
学位論文題目	透明複合材料の創製と物性	
論文審査委員	主査	教授 中西英二
		教授 鈴木将人
		教授 猪股克弘
		准教授 杉本英樹

論文内容の要旨

本研究では、相溶性、共重合性が異なる各種材料について、透明性を維持したまま複合化するアプローチと機能性の発現について調査し、高機能性を有する透明複合材料の調製を目的とした。本論文で着目した材料であるアクリル樹脂とシリコーン樹脂は、互いに溶解度パラメータや共重合した際のモノマーの転化率の差が大きいため、異なる成分間の偏析力が大きくなり、各成分鎖が凝集した大きなドメインとなった白濁した外観となってしまう。しかし、重合基濃度、架橋密度、共重合性を考慮し、アクリルモノマーとシリコーンマクロモノマーの選定を行うことで、シリコーンドメインの凝集を抑制することができ、透明性を保持した機能性複合材料を創製することが出来た。

第1章序論では本論文の背景および透明複合材料の創製に関する知見を述べた。

第2章ではカルビノール変性PDMSの側鎖にメタクリロイル基を導入した反応性シリコーンマクロモノマーを合成し、MMAと共重合させることによって、撥水性に優れる透明バルク体が調製出来た。シリコーンマクロモノマーの官能基数を増加させることによって転化率が向上し、MMAに近い転化率となった。それに伴い試料中のシリコーンドメインサイズが低下し透明性が向上する結果が得られ、PMMA同等の透明性を維持したまま、撥水性を付与させることに成功した。

第 3 章では疎水性の PDMS と親水性モノマーであるヒドロキシエチルメタクリレート (HEMA) およびジメチルアクリルアミド (DMAA) との複合化を行った。PDMS と親水性モノマーはモノマー段階でも相分離してしまい単純に複合化させることは困難であったが、極性基であるウレタン結合を介してメタクリロイル基を導入させることでモノマー同士の相溶性が得られ、さらに官能基数調整により共重合性を制御することでシリコーンの凝集が抑えられ透明なバルク体を得ることが出来た。特に DMAA を用いた系では架橋剤を用いなくても透明性が得られたため、高い酸素透過度を示した。

第 4 章ではメチロール化メラミンをヒドロキシエチルアクリレート (HEA) とウレタン変性 PDMS を共存させて縮合反応を行うことで撥水性を有する透明複合材料の調製を行った。前章までとは異なり、ウレタン結合を介してアクリロイル基を導入したウレタン変性 PDMS を用いても、モノマー段階から相溶せず複合化が大変困難であった。しかし、メチロール化メラミンを HEA とウレタン変性 PDMS 共存下で同時に縮合させることで、シリコーンの凝集を抑制した透明なオリゴマーを合成することができ、さらに、重合後も透明性を維持していた。物性についても、シリコーンを導入していないアクリルメラミンの高硬度かつ低収縮、高屈折率といった特長は維持したまま、撥水・撥油性を付与することが出来た。

第 5 章では、本論文で得られた結果および知見について総括している。

以上、本論文での実験・検討結果より、モノマー成分の相溶性と共重合性を思慮した設計を行うことでシリコーンドメインの凝集を抑え、透明性を維持したまま複合化させることが可能であることを、速度論およびモルフォロジー解析により明らかにしている。

これらの知見はポリマーコンポジット分野の発展に寄与し、高機能性材料の開発に関して重要な指針を与えるものである。

以上

論文審査結果の要旨

本研究では、相溶性、共重合性が異なる各種材料について、透明性を維持したまま複合化するアプローチと機能性の発現について調査し、高機能性を有する透明複合材料の調製を目的とした。本論文で着目した材料であるアクリル樹脂とシリコン樹脂は、互いに溶解度パラメータや共重合した際のモノマーの転化率の差が大きいため、異なる成分間の偏析力が大きくなり、各成分鎖が凝集した大きなドメインとなった白濁した外観となってしまう。しかし、重合基濃度、架橋密度、共重合性を考慮し、アクリルモノマーとシリコンマクロモノマーの選定を行うことで、シリコンドメインの凝集を抑制することができ、透明性を保持した機能性複合材料を創製することが出来た。

第1章序論では本論文の背景および透明複合材料の創製に関する知見を述べた。

第2章ではカルピノール変性PDMSの側鎖にメタクリロイル基を導入した反応性シリコンマクロモノマーを合成し、MMAと共重合させることによって、撥水性に優れる透明バルク体が調製出来た。シリコンマクロモノマーの官能基数を増加させることによって転化率が向上し、MMAに近い転化率となった。それに伴い試料中のシリコンドメインサイズが低下し透明性が向上する結果が得られ、PMMA同等の透明性を維持したまま、撥水性を付与させることに成功した。

第3章では疎水性のPDMSと親水性モノマーであるヒドロキシエチルメタクリレート (HEMA) およびジメチルアクリルアミド (DMAA) との複合化を行った。PDMSと親水性モノマーはモノマー段階でも相分離してしまい単純に複合化させることは困難であったが、極性基であるウレタン結合を介してメタクリロイル基を導入させることでモノマー同士の相溶性が得られ、さらに官能基数調整により共重合性を制御することでシリコンの凝集が抑えられ透明なバルク体を得ることが出来た。特にDMAAを用いた系では架橋剤を用いなくても透明性が得られたため、高い酸素透過度を示した。

第4章ではメチロール化メラミンをヒドロキシエチルアクリレート (HEA) とウレタン変性PDMSを共存させて縮合反応を行うことで撥水性を有する透明複合材料の調製を行った。前章までとは異なり、ウレタン結合を介してアクリロイル基を導入したウレタン変性PDMSを用いても、モノマー段階から相溶せず複合化が大変困難であった。しかし、メチロール化メラミンをHEAとウレタン変性PDMS共存下で同時に縮合させることで、シリコンの凝集を抑制した透明なオリゴマーを合成することができ、さらに、重合後も透明性を維持していた。物性についても、シリコンを導入していないアクリルメラミンの高硬度かつ低収縮、高屈折率といった特長は維持したまま、撥水・撥油性を付与することが出来た。

第5章では、本論文で得られた結果および知見について総括している。

以上、本論文での実験・検討結果より、モノマー成分の相溶性と共重合性を思慮した設計を行うことでシリコンドメインの凝集を抑え、透明性を維持したまま複合化させることが可能であることを、速度論およびモルフォロジー解析により明らかにしている。

これらの知見はポリマーコンポジット分野の発展に寄与し、高機能性材料の開発に関して重要な指針を与えるものである。

以上より、本論文は博士 (工学) の学位論文として受理するに値する。