

カワムラ アキ

氏 名 川村 安希

学 位 の 種 類 博士 (工学)

学 位 記 番 号 博第1106号

学 位 授 与 の 日 付 平成29年9月6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 Synthesis of dispersible and aggregatable nanoparticle by controlling of modification on silica surface  
(シリカ表面の改質制御による分散性・凝集性粒子の合成)

論文審査委員 主査 教授 藤 正督  
教授 羽田 政明  
准教授 白井 孝

## 論文内容の要旨

近年、高い機能をもつ粉体、微粒子材料が広い工業分野において素材としてますます重要なとなり、素材関連産業はより高度な粉体、微粒子を入手し、利用する傾向がある。機能性微粒子のサイズはナノ化することで更なる機能の向上が期待される。しかし、ナノ化することにより分散性・凝集性制御が難しくなり材料の機能が十分に発揮できない問題も存在する。

本博士論文では、ナノ粒子の表面を分子レベルで設計し、分散性・凝集性を制御可能な表面処理法を提案する。

第一章では研究に利用するフュームドシリカの特徴や、これまでに報告されている表面処理方法、またその表面のメカニズムを記述し、ナノ粒子の表面処理を行う上で、これまでの研究で明らかにされていない点を問題定義している。

第二章では分散性・凝集性粒子の合成において、ナノ粒子の表面改質方法について重要なパラメーターを決定した。これまでに報告されている研究では改質条件について報告されている例は少ない。目的の改質粒子を合成するためには使用する溶媒とナノ粒子表面に存在する水分子の関係を考慮する必要があることが示唆される。ここでは、使用する溶媒の極性とナノ粒子表面に吸着した水分子が改質粒子表面の改質基密度に与える影響を明らかにした。

第三章では、質量が同じで構造が異なるブチルアルコールをナノ粒子表面に導入した改質粒子を合成し、改質基の構造と運動性が改質粒子表面の濡れ性に影響を与えることを明らかにした。水蒸気吸着を FT-IR で観察することで改質基の構造と運動性が表面濡れ性に与える影響を分子レベルで観察し、その結果を巨視的な観察方法の結果と比較した。分子レベルで改質表面を評価し、改質基の構造と運動性の表面改質への影響を明らかにすることでナノ粒子の表面改質の分子レベルでのデザインに大きく役立つことが示唆された。

第四章では第二章、三章で得た知見を基盤に、光二量化反応で知られるシンナモイルアルコールと塩化シンナモイルをナノ粒子表面に導入し、外部刺激によって固体のまま凝集する高機能微粒子の合成を試みた。得られた改質ナノ粒子は表面改質基密度をコントロールし UV を照射により粒子間で二量化を形成する分散性・凝集性制御の可能なナノ粒子が合成されたことを確認した。

以上の結果から、ナノ粒子表面の水分子と溶媒が改質率に与える影響、改質基の構造と運動性がナノ粒子の表面改質に与える影響を分子レベルで明らかにし、分散性・凝集性制御の可能なナノ粒子の改質を分子レベルで表面設計する方法を提案した。実際に分散性・凝集性の制御可能なナノ粒子を合成することで、方法が有効であることを確認した。

## 論文審査結果の要旨

近年、機能性微粒子のサイズはナノ化が進み更なる機能の向上が期待される一方で、分散性や凝集性を制御することが難しくなり材料の機能が十分に発揮できないことが近年の素材関連産業における問題となっている。

本博士論文では、ナノ粒子の表面を分子レベルで設計し、分散性・凝集性制御可能な表面処理法を提案することで、ナノ粒子の分散性・凝集性の制御できる粒子の合成方法を論じられていた。

第一章では研究に利用するフュームドシリカの特徴や、これまでに報告されている表面処理方法、またその表面のメカニズムを記述した上で、ナノ粒子の表面処理を行う過程における、これまでの報告で明らかにされていない点を問題定義し、分散性・凝集性制御の重要性が強調されていた。

第二章では分散性・凝集性粒子の合成において、ナノ粒子の表面改質方法における重要なパラメータを決定し、目的の改質粒子を合成するために、改質に使用する溶媒とナノ粒子表面水分子との関係が改質度合に影響することを証明し、使用する溶媒の極性とナノ粒子表面に吸着した水分子が改質粒子表面の改質基密度に与える影響が明らかにされていた。

第三章では、質量が同じで構造が異なるブチルアルコールをナノ粒子表面に導入することによって改質粒子を合成し、改質基の構造と運動性が改質粒子表面の濡れ性に影響を与えることが証明されていた。水蒸気吸着挙動をFT-IRを用いて観察することで改質基の構造と運動性が表面濡れ性に与える影響が分子レベルで明らかにされており、その結果が巨視的な観察方法の結果と比較されていた。分子レベルで改質表面を評価し、改質基の構造と運動性の表面改質への影響を明らかにしたことによってナノ粒子の表面改質の分子レベルでのデザインを可能にする方法が提案されていた。

第四章では第二章、三章で得た知見を基盤に、光二量化反応で知られるシンナモイルアルコールと塩化シンナモイルをナノ粒子表面に導入し、外部刺激によって固体のまま凝集する高機能微粒子の合成が行われていた。得られた改質ナノ粒子は表面改質基密度をコントロールしUVを照射することにより粒子間で二量化を形成する分散性・凝集性制御可能なナノ粒子が合成されたことを証明しており、実際に外部刺激による凝集性制御可能な機能性粒子の合成に成功していた。

以上の結果から、ナノ粒子表面の水分子と溶媒が改質率に与える影響、改質基の構造と運動性がナノ粒子の表面改質に与える影響を分子レベルで明らかにし、分散性・凝集性制御の可能なナノ粒子の表面改質を分子レベルで表面設計する方法が提案されており、実際に分散性・凝集性制御可能なナノ粒子を合成することに成功していた。そのことからこの研究により提案された方法が有効であることが証明されていた。本研究は、素材関連産業のナノ化における問題を解決することに大きく貢献すると考えられ、工学的意義は大きい。以上より、本論文は、博士(工学)の学位授与に相当する内容であると認められる。