

研 究 主 論 文 抄 録

論文題目 Hierarchical Structural Control of Organic/Inorganic Composite Materials
Based on Soft Interaction between Monodisperse Inorganic Particles and
Monomer Dispersed Solutions
(単分散無機微粒子とモノマー分散溶媒間のソフトな相互作用に基づいた有
機/無機複合材料の階層的な構造制御)

熊本大学大学院自然科学研究科 複合新領域科学 専攻 複合ナノ創成科学 講座
(主任指導 國武 雅司 教授)

論文提出者 川野 真太郎
(by Shintaro Kawano)

主論文要旨

互いの性質を組み合わせることによる新しい物性を持った有機(特にポリマー)/無機ハイブリッド材料の創成が注目を集めている。本研究では、単分散シリカ粒子分散水溶液またはシリカオパール膜を、有機/無機ハイブリッド材料を生み出すための異なる重合反応場として捉えた。まず、単分散シリカ粒子分散水溶液を反応場として分散重合によるシリカ・高分子複合粒子形成に関して検討した。シリカ粒子の存在によって、シリカ・高分子が複合した粒子から、シリカと高分子粒子が相互作用を示しながら個別に生成した混合粒子系まで、多様なハイブリッド粒子系を系統的に検討した。またシリカオパール膜の空隙を反応場としてマイクロエマルジョンモノマー溶液の重合を行い、階層的な複合構造を生み出すことに成功した。どちらの系においても、多様な構造は無機粒子、モノマー(ポリマー)、分散溶媒間の相互作用バランスによって制御されていた。この相互作用バランスと生み出される多様な有機/無機ハイブリッド構造を体系的にまとめ明らかにした。

本論文は 6 章からなっており、第 1 章では緒論として研究の背景と意義についてまとめた。

第 2 章は、サブミクロンサイズの未修飾シリカ粒子分散水溶液系におけるスチレンの分散/静地重合について述べている。この系では、シリカ粒子と複合することなく、単分散ポリスチレン(PS)粒子が生成した。融合していないにも関わらず、シリカ・PS 混合粒子分散溶液はシリカ単独系に比べ著しい分散安定性が確認された。これは、シリカ粒子と PS 粒子の会合によるチキソトロピー性の発現によるものであり、シリカ・PS 粒子間には弱い凝集力が働いていることを、動的散乱および電位の時間依存性変化から明らかにした。

第 3 章では、未修飾シリカ粒子分散水溶液中でのメタクリル酸メチル(MMA)の分散/静地

重合について述べている。第2章で述べたPSの場合と異なり、PMMA粒子表面にシリカ粒子がまばらに吸着・分布したマッサージボール状のPMMA/シリカコンポジット粒子が生成した。シリカ粒子サイズ、濃度および溶液中のpHなどの溶液条件と、複合粒子の構造の相関性を明らかにすることで、マッサージボール状コンポジット粒子の生成メカニズムを明らかにした。

第4章では、無機粒子をコアとするポリマー(シェル)複合粒子を気・液及び液・液界面において集積化・融合することで階層的に構築した有機/無機ハイブリッド超薄膜の作製について述べている。良溶媒のトルエン溶液中で膨潤・分散した複合粒子から気液界面膜、液・液界面膜を作成し、溶媒を除去することで粒子1個の厚みを持ち、コアが均一に配列した自己支持性の超薄膜として簡単に集積化できることを見出した。

第5章では、シリカオパール膜をテンプレートとすることで作成したナノ芝状構造体について述べている。シリカオパール膜中で両連続相マイクロエマルジョンの重合・ゲル化を行うと、オパール膜表面からミクロンスケールのリボンまたはシート状構造物が芝生状に生成することを見出した。重合に伴う溶液相の相変化(メソスケールの相分離)によって親油的なポリマー(ゲル)が親水的な空間から逃げ出そうとする力を駆動力として、芝状の構造体を生じることが明らかになった。

第6章では、総括としてこれらの結果をまとめるとともに、単分散無機微粒子とモノマー分散溶媒間のソフトな相互作用に基づいた有機/無機複合材料の階層的な構造制御法の展望について述べた。