



Title	Reinforcement Mechanisms and Hierarchical Molecular Dynamics in Polymer Nanocomposites
Author(s)	信岡, 宏明
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/105670
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (信 岡 宏 明)

論文題名

Reinforcement Mechanisms and Hierarchical Molecular Dynamics in Polymer Nanocomposites
(高分子複合材料における補強機構と階層的分子運動)

論文内容の要旨

高分子複合材料は、連続相としての高分子母材とその内部に分散した各種フィラーから構成される多階層構造体である。軽量性と高強度を両立できるという優れた力学特性に加え、熱的特性や電気的特性等の多彩な機能特性を設計に応じて付与できることから、幅広い産業分野において精力的に研究が進められている。一方で、実用環境を想定した幅広い時間スケールにおける材料特性、すなわちガラス領域から流動領域に至るまでの応答やフィラーが引き起こす材料への補強機構に関しては、依然として未解明な点が多い。

本学位論文では、材料特性に関する知見が詳細に蓄積されているポリスチレン(PS)を高分子母材として選択し、その中に形状の異なるフィラーを組み込んだ複合材料を対象とした。これらの系に対して、動的粘弾性測定によるマクロな力学応答の解析、広帯域誘電緩和測定による局所的な分子ダイナミクスの解析、動的複屈折測定による応力下における高分子セグメントの配向応答に関する解析を行った。そして、これらを組み合わせることによりガラス領域から流動領域までの階層的分子運動を一貫した枠組みで捉えることを試みた。これらの結果に基づき、フィラーが引き起こす補強機構と分子運動の変調との対応関係を体系的に明らかにすることを本研究の目的とした。

第一章では、高分子複合材料の研究背景および動向を概観するとともに、種々のフィラー形状に対する補強機構を記述する理論式を整理した。また、本学位論文で用いた動的粘弾性測定・広帯域誘電緩和測定・動的複屈折測定に関して、その役割と評価指標をまとめ、本研究で用いる解析の枠組みを示した。これらを踏まえ、本研究の内容を体系化し、その目的と意義を明確化した。

第二章では、中空樹脂粒子および中実樹脂粒子をPSに複合化した材料について検討した。ゴム状平坦領域では補強効果に差が見られ、中空粒子系の方が補強効果は顕著であった。これは、中空粒子が硬い樹脂殻を有し、殻同士の接触によりネットワークが形成され、効率的な応力伝達経路が構築されることに起因することを示した。流動領域では高充填でジャミングに起因する固体的応答を示すこと、さらにガラス領域では中空粒子系のみ粒子内部の空隙の影響で弾性率が低下することを見出し、中空粒子特有の補強機構と空隙に起因した剛性低下が併存することを示した。

第三章では、セルロースナノクリスタル(CNC)をPSに複合化した材料について検討した。動的粘弾性測定から、CNC添加によりゴム状平坦弾性率が増大し、CNC同士の構造形成に起因する補強効果が発現することを解明した。また、ガラス-ゴム転移領域における緩和挙動の解析から、PSとは異なるCNC由来の特有の緩和成分が存在することを明らかにした。さらに、動的複屈折測定により応力下でのCNCおよびPSの配向挙動を評価し、流動領域ではCNC由来の緩和も影響していることを明らかにした。

第四章では、単層カーボンナノチューブ(SWCNT)をPSに複合化した材料について検討した。SWCNT同士によるフィラーネットワークの形成を粘弾性および誘電特性から複合的に同定した。さらに、動的複屈折測定により補強効果の発現メカニズムがSWCNT自身の高弾性率に由来することを示し、特に高濃度ではSWCNTがパーコレーションを通じて連結ネットワークを形成し、そのネットワークが複合材料中の主たる応力伝達経路として機能することにより弾性率が増大することを明らかにした。

第五章では、本研究全体の結果を総括し、フィラー形状や内部構造、ネットワーク形成様式の違いを踏まえ、ガラス領域から流動領域に至る階層的分子運動との対応関係という観点から補強機構を統一的に整理した。本学位論文から得られた知見は、形状の異なるフィラーを用いた高分子複合材料の設計に対し、力学特性と機能特性の両立に向けた包括的な設計指針を与えるものである。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (信岡 宏明)		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教授 井上 正志
	副 査	教授 高島 義徳
	副 査	教授 松宮 由実
	副 査	准教授 浦川 理
	副 査	

論文審査の結果の要旨

本論文は、ポリスチレン(PS)を母材とするナノ複合材料を対象に、補強材の形状・構造(中空粒子、セルロースナノクリスタル(CNC)、単層カーボンナノチューブ(SWCNT))の違いが、ガラス域—ゴム状域—流動域にわたる粘弾性応答と階層的分子運動に及ぼす影響を、粘弾性測定・誘電緩和・動的複屈折を組み合わせて体系的に検討したもので、全 5 章からなる。第 1 章では、研究の背景について記述している。既存の補強理論が主として弾性率・形状・濃度など物理的因子を扱うのに対し、本研究は界面での高分子拘束(vitrified polymer:VP)形成やネットワーク化など、時間スケールを伴う要因を実験的に切り分け、補強機構を粘弾性緩和の観点から再整理した点に独自性がある。第 2 章では中空粒子/PS 系において、誘電・粘弾性の結果からマトリクス PS の α 緩和が粒子添加で本質的に変化しないことを示し、強い界面相互作用が支配的でない条件を確認したうえで、高充填域で粒子接触が顕在化し、ジャミング転移により流動性が凍結される過程を明確にした。またゴム状域での弾性率増大を剛体球モデルで説明し、ガラス域での弾性率低下を粒子内空隙の寄与として整理した点は、中空粒子特有の「軽量化と補強」の両立設計に有用な指針を与える。第 3 章では CNC/PS 系について、PS 成分の見かけ減少から VP 形成を示唆し、低充填から第二平坦部を観測してネットワーク形成を提案した。さらに弾性率が増大する一方で複屈折が変化しない結果を用い、補強が PS 鎖配向の増大ではなく CNC 自身の応力担持に由来することを説得的に示した点が評価できる。第 4 章では SWCNT/PS 系で、同様に VP 形成の可能性を示しつつ、極低充填での第二平坦部と長時間緩和の起源を、SWCNT の導電性に基づく誘電測定(直流伝導成分の発現)によってネットワーク形成として裏付けた。CNC 系との比較を通じて、フィラーの屈曲性や拘束条件が転移域の挙動に反映されるという考察も妥当である。第 5 章では、研究の総括について述べている。

以上より、本論文は界面(VP)・ネットワーク・フィラー固有応答を統合して補強機構を階層的に整理し、材料設計の高度化に資する基盤的知見を提供している。研究の独創性、結果の信頼性、議論の妥当性はいずれも十分であり、博士(理学)の学位論文として所定の水準に達していると判定する。