

Title	相互侵入高分子網目の構造と物性
Author(s)	足達, 廣士
Citation	大阪大学, 1982, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/33343">https://hdl.handle.net/11094/33343</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

氏名・(本籍)	定 達 廣 士
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	第 5 8 4 6 号
学位授与の日付	昭 和 57 年 12 月 13 日
学位授与の要件	理学研究科 高分子学専攻 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	相互侵入高分子網目の構造と物性
論文審査委員	(主査) 教 授 小高 忠男 (副査) 教 授 野桜 俊一 教 授 藤田 博

### 論 文 内 容 の 要 旨

相互侵入高分子網目（以下 IPN と略す）は成分高分子間の相容性に関係なく均一な混合物を得る方法として注目され、多くの研究が行なわれている。IPN は通常二つの網目かあるいは一つの網目と一つの線状高分子とからなる。前者を full- IPN、後者を semi- IPN と呼ぶ。IPN は、高分子成分 1 の網目を、架橋剤、開始剤を含む成分 2 のモノマー溶液で規定の組成まで膨潤させ、その状態で、モノマー 2 を重合・架橋することによって作られる。したがって IPN の構造と物性に影響する合成上の因子として、①成分間の相容性の程度、②各々の成分網目の架橋密度、③成分網目の合成順序、④組成などが考えられる。しかしその中でどの因子が IPN の構造と物性とを制御する本質的な因子なのか明らかでない。そこでこの本質的な因子が何にであるかを明らかにする為に、非相容性、半相容性、及び水素結合によるコンプレックス形成系 IPN を用い、semi- IPN、full- IPN をそれぞれ合成して本研究を行なった。

半相容性 IPN (PEA/PMMA 系) を用いた系で第二成分 (PMMA) は、反応の初期に多量の第二成分モノマー中でマイクロゲルを形成し、それ等は反応の進行にともないお互いに結合し、マイクロ不均一な構造を残しながら第一成分との間で相互に侵入した網目を形成する。したがって第一網目の架橋密度・その均一性などが第二網目のモルフォロジーを決める重要な因子となる。また PMMA 含量が 75 重量% の semi- IPN と full- IPN との力学的性質は、小変形粘弾性は両者とも線型であったが、大変形、高速変形域では両者の性質は異なり、クリープテストでは semi- IPN は full- IPN より短時間、低荷重域で非線型性を示した。また引張り試験では full- IPN は semi- IPN よりも硬く強かった。これらの結果は full- IPN の方が semi- IPN よりも成分間の相互侵入の程度が高い事を示してい

る。

非相容性(NBR/PMMA) semi- IPNの電顕写真は NBR マトリックス中に PMMA 相が分散した不均一構造を示し、一方 full- IPN のそれはかなり均一な構造を示した。これらの構造はその粘弾性に反映し、full- IPN の方が成分間の混合の程度が高い事を示す結果が得られた。また semi- IPN の第一網目の架橋密度の増加は、成分間の混合の程度を高めた。

コンプレックス形成 IPN( POE : PAA ) は、溶媒抽出によれば、1 : 1 コンプレックスを形成した。またその動的力学性質は PAA 含量が30から60モル%では一つの鋭い吸収ピークを示し、単一相からなる事を示した。上記以外の組成域では POE あるいは PAA 成分がコンプレックス相から相分離した。しかし full- IPN の方がその程度はかなり低かった。これは POE 成分の架橋が相分離を抑制する事を示している。

以上三種類の IPN についての結果は、IPN の構造と物性とに影響する最も重要な因子は第一網目の架橋密度であり、ついで第二網目の架橋密度であることを示している。二つの成分間の相容性は、コンプレックス形成系を除いてあまり重要ではない。

## 論文の審査結果の要旨

高分子多成分系では成分高分子間に働らく相互作用によってマイクロ相組織構造が形成され、それが系の基本的な物理的性質を支配する。足達君は成分高分子間の相溶性には関係なく巨視的に均質な物質を与える Inter-penetrating Polymer Networks( IPN : 相互侵入高分子網目 ) をとり上げ、そのマイクロ相構造形成と物性制御に関与する要因を明らかにするとともに、成分高分子間相互作用の差異によってもたらされるマイクロ構造と物性の差異を解明した。足達君は第一、第二成分を逐次重合・架橋して IPN とする、いわゆる、逐次 IPN について、成分間に半相溶的相互作用の働く polyethylacrylate( PEA ) / polymethyl methacrylate( PMMA ) 系、及び、非相溶的な poly( acrylonitrile - co- butadiene ) ( NBR ) / PMMA 系、1 : 1 complex が形成される polyoxyethylene( POE ) : polyacrylic acid( PAA ) 系の三つの代表的な系を選び、第一の系については PMMA の重合・架橋の反応度を制御することによってマイクロ相構造の形成・発達過程を明らかにした。また、第二の系については架橋密度の差にあるマイクロ相構造と力学的性質の差を明らかにした。第三の系については IPN 中でも complex が形成されていることを示し、この特異的な相互作用のために均質性の高いマイクロ相構造を与えることを示した。以上の結果、IPN の構造と物性を支配する最も重要な因子は第一網目の架橋密度であり、次に第二網目のそれであり、成分間の相溶性は、complex 形成系を除いて、あまり重要でないことを明らかにした。

以上のように、本研究は IPN 系のマイクロ構造と物性の関係の理解に貢献する許りでなく、応用面に於いても高分子多成分系の分子設計・構造と物性の制御の手法に関する重要な示唆を与えるもので、理学博士の学位論文として十分価値あるものと認める。