

機能材料工学専攻	学籍番号	045506	指導 教員	竹市 力  松本明彦
申請者 氏名	SHAIKH MD. MOMINUL ALAM			

## 論文要旨 (博士)

論文題目	Studies on Synthesis and Characterization of various Polyimide Hybrids (種々のポリイミドハイブリッドの作成と特性化)
------	---

ポリイミド (PI) は、スーパーエンジニアリング・プラスチックの代表であり、優れた熱安定性、機械特性、耐化学薬品性をもつため、産業分野で幅広く用いられている。様々な種類の PI の中で、ピロメリット酸二無水物 (PMDA) とオキシジアニリン (ODA) から得られる PI(PMDA/ODA) と、3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) と *p*-フェニレンジアミン (PDA) から得られる PI(BPDA/PDA) は特によく知られている。PI フィルムに要求される特性の中でも、熱分解温度、ガラス転移温度、残炭率などの熱特性や、弾性率、破断強度、破断伸びなどの機械特性は重要な特性である。本論文では、様々な PI ハイブリッドを合成し、熱特性と機械特性等を評価した。

第1章では、本研究に関わるこれまでの研究について述べた。特に、PI、PI とクレイとのナノコンポジット、PI とポリシロキサンとのハイブリッドについて述べた。

第2章では、PI とポリジメチルシロキサン (PDMS)、ポリメチルフェニルシロキサン (PMPS) そしてポリジフェニルシロキサン (PDPS) とのハイブリッドを合成し、PI-PSX の性質に及ぼす官能基の種類と添加量の影響を調べた。PI(BPDA/PDA) のような剛直な構造をもつ PI の弾性率や強度が、PI(BPDA/ODA) や PI(PMDA/ODA) のような柔軟な PI に比べてより高いことはよく知られている。剛直な PI フィルムについては、ポリアミド酸の段階での低温延伸によっても、より高い弾性率が得られる。剛直な PI に少量の有機化クレイを導入すると、弾性率と破断強度は向上するが、破断伸びは減少することが知られている。しかし、剛直な PI の引張特性の全面的な向上については、これまで報告がない。

ポリマー-クレイ ナノコンポジットは、通常は無機充填コンポジットや無充填ポリマーに比べて優れた物理特性、機械特性、熱特性を示す。PI-クレイ ナノコンポジットの多くの研究を通して、層状クレイが PI 中でナノ分散していることにより熱安定性、気体遮断性、難燃性、腐食防止性が向上するが、破断伸びは減少し脆くなるということがわかっている。このような事情から、PI-クレイ ナノコンポジット中に柔軟な PDMS を添加することにより脆さを解決できることを第3章、第4章、第5章で述べる。

ゾルゲル法によってテトラエトキシシラン (TEOS) から合成したシリカを、*in-situ* 法によって PI に導入した PI-シリカハイブリッドは、熱特性、弾性率は向上するが、破断伸びは減少するということを、第6章で議論している。一方、PI-PDMS ハイブリッドフィルムは透明性が減少した。そこで、PI-シリカ-PDMS ハイブリッドを合成することで、PI-シリカハイブリッドの脆さ、そして PI-PDMS ハイブリッドの不透明さを克服できたということ、第7章で述べた。

第8章では、別のジアミン、4,4'-ジアミノ-3,3'ジヒドロキシビフェニル (HAB) を PI(BPDA/PDA) 主鎖中に導入することで、主鎖にオキサゾール環を導入すると破断強度が向上することを述べた。破断伸び向上のために、PI 中にゾルゲル法により *in-situ* でジエトキシジメチルシランから柔軟なポリジメチルシロキサンを導入した。PDMS はおそらく一番重要かつ有用な高性能エラストマーであるが、シリカなどの微粒子充填剤により固有の欠点を補うことでさらに高性能になる。シリカをゾルゲル法でテトラエトキシシラン (TEOS) の *in-situ* 法によって導入することで、ハイブリッドの剛性が向上する。

第9章では、*in-situ* 法で PDMS を導入することにより、PI-シリカ-PDMS、PI-クレイ-PDMS、PI-ポリシルセスキオキサン-PDMS ハイブリッドの熱特性と機械特性が向上することを述べる。その結果、PI-シリカ-PDMS が一番優れた機械特性を示し、また PI-クレイ-PDMS ハイブリッドが一番優れた熱安定性を示した。