

論文審査の結果の要旨

氏名 新海智照

本論文は5章からなり、第1章は序論、第2章は膨潤による秩序-秩序相転移、第3章は膨潤構造とナノ多孔化構造との比較、第4章は二酸化炭素膨潤による秩序-無秩序相転移、第5章は総括である。付録として、反射率膜厚計を用いた膨潤度測定について論じている。

1章にて、ブロックコポリマーのマイクロ相分離構造を紹介し、マイクロ相分離構造の構造転移の理論と実験について論じている。続いて、CO₂ を利用した構造転移とブロックコポリマーを利用したナノ多孔体の作製、さらに、二酸化炭素を利用したナノ多孔化処理の概要の説明と本論分とのつながりについて説明している。

2章にて膨潤による秩序-秩序相転移について論じた。転移挙動は2つの領域に分けることができることが示唆された。1つは低圧領域における構造転移であり、ラメラ→共連続→シリンダーと構造が転移し、体積分率変化と構造転移が定性的に一致したことを示した。一方で高圧における構造転移ではすべてのサンプルで同じ圧力で転移が誘起された。また高圧での構造は低圧での構造に依存しているものの、泡状構造・スポンジ構造といった、一般的には見られない非常に乱れた構造となっていることを見出した。

3章にて膨潤構造とナノ多孔化構造との比較について論じた。低圧においてはラメラ、シリンダー構造については膨潤構造・ナノ多孔化構造が一致していることが観察された。一方で共連続構造に関してはナノ多孔体では等方的な構造ではなく、異方的な構造が形成されていることも観察された。こちらについては減圧過程における変化ではなく、バルクと薄膜の拘束条件の違いによるものと考えられる。一方でバルクでは泡状構造やスポンジ構造が観察された高圧領域においては、スポンジ構造が発現する条件であってもナノ多孔体の構造には明確な距離相関が存在することが示唆された。

4章では、二酸化炭素膨潤による秩序-無秩序相転移(ODT)について論じた。実験を行った各温度において低圧ではマイクロ相分離構造の形成が示唆された一方で、高圧においては無秩序状態が形成され、膨潤によりドメイン間の反発的相互作用が低下したことにより ODT が誘起されていることが示唆された。いずれの場合も一定圧力では低温側に無秩序領域が見られており、一般的な ODT と逆の挙動となった。この ODT 挙動をさらに詳細に調べるため、膨潤度測定により膨潤と構造転移の相関について解析した。その結果、膨潤度が高い領域で無秩序領域が見られることが示された。この系においては、構造転移が相互作用の希釈効果に由来するものであることを示唆しており、溶媒としての性質が温度で激しく変化する超臨界流体を使用したことによる特徴的な温度依存性であることを明らかにした。

5章にて、本研究を総括した。BCPの種類に依存してOOTあるいはODTが観察されが、どちらの場合においても超臨界CO₂を使用したことにより、一般的な溶媒中とは異なる特徴的な転移挙動を示すことが明らかになった。またナノ多孔化構造と膨潤状態を比較することにより、膨潤状態からナノ多孔体への転化する際の試料状態の変化を明らかにし、このうち低圧における状態変化については定量的な説明も可能であることを示した。これらの成果はCO₂中における構造転移挙動の理解に加え、CO₂処理によるナノ多孔体の物性制御にもつながるものであると考えられることが示された。

なお、本論文第2章、第3章、第4章は、伊藤真陽、杉山賢治、伊藤耕三、横山英明、本論文付録は、伊藤耕三、横山英明と共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。