

機能材料工学専攻		学籍番号	069205	指導 教員	竹市 力
申請者 氏名	Hosta Ardhyananta				松本明彦

論文要旨 (博士)

論文題目	Studies on Performance Improvement of Polybenzoxazine by Hybridization with Polysiloxanes (ポリシロキサンとのハイブリッド化によるポリベンゾオキサジンの高機能化に関する研究)
------	--

(要旨 1,200字程度)

ポリベンゾオキサジン-ポリジメチルシロキサン (PBa-PDMS) ハイブリッドを、ベンゾオキサジン (Ba) とジエトキシジメチルシラン (DEDMS) のゾルーゲルプロセスを同時に行うことで合成した。反応条件を最適化し、p-トルエンスルホン酸をゾルーゲルプロセスの触媒として加えることで、PDMS含量13wt%以下で、均一で不透明なハイブリッドフィルムを得た。PBaマトリックス中のPDMSのドメインサイズを走査型電子顕微鏡 (SEM) で計測した。PBa-PDMSフィルムの引張強度および破断伸びは、PDMSの補強効果によってPBa単体フィルムよりも向上した。動的粘弾性測定 (DMA) の結果、ハイブリッドではガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) もPBa単体より向上した。更に、分解温度および850 °Cにおける残炭率はPDMS含量が増加するとともに向上することが熱重量測定 (TGA) から明らかになった。

ポリベンゾオキサジン (PBa) とポリシロキサンのハイブリッドは、2つの反応を同調させることで、マクロ的な相分離がなく合成できたと考えられる。Baの開環重合と、DEDMS、ジエトキシメチルフェニルシラン、ジエトキシジフェニルシラン (DEDPS) のゾルーゲルプロセスで、これらのジエトキシシランからはそれぞれ、PDMS、ポリメチルフェニルシロキサン (PMPS)、ポリジフェニルシロキサン (PDPS) が得られる。ポリシロキサンの添加によるPBaへの光学的、機械的、熱的特性の影響を調査した。ゾルーゲルプロセスの進行は、IR、<sup>1</sup>H NMRおよびサイズ排除クロマトグラフィーによって確認した。不透明なPBa-PDMSハイブリッドフィルムがPDMS含量15wt%以下で得られた。SEMにてこれらのフィルムを観察したところ、相分離が起こっており、PDMSのドメインサイズは1~2 μmであった。また、PMPS含量29wt%以下と、PDPS含量36wt%以下では透明なハイブリッドフィルムを得ることができ、これはPMPSとPDPSのドメインが観測されないことも、ポリシロキサンとPBaの高い相溶性を示唆した。ハイブリッドフィルムのDMA結果は、PBa-PDMSハイブリッドでは2つのT<sub>g</sub>を示し、PMPSおよびPDPSとのハイブリッドではただ1つのT<sub>g</sub>を示した。ハイブリッドフィルムの引張強度および破断伸びは、ポリシロキサン含量が増加するほど向上した。

PBaとポリシロキサンのハイブリッドは、Baの開環重合と、ジエトキシシランのゾルーゲルプロセスという2つの反応を同調させることで上手く合成されたと考えられる。そこで、ジエトキシシランとしてDEDMSとDEDPSを任意の割合で混合して用いることでポリシロキサン共重合体P(DMS/DPS)を合成した。PDPS含量がハイブリッドの光学的、機械的、熱的特性に及ぼす影響を調査した。ゾルーゲルプロセスの進行は、IR、<sup>1</sup>H NMRおよびサイズ排除クロマトグラフィーによって確認した。DMS含量が高いと、相分離のために不透明なPBa-P(DMS/DPS)フィルムとなる。ポリシロキサンのドメインサイズはSEMから見積もった。一方、DPS含量が高いとフィルムは透明になり、SEMでも相分離は見られなかった。ハイブリッドフィルムはDPS導入によってPBaより高い引張強度および破断伸びを示した。DMAの結果から、DMS含量の高いフィルムはPBaおよびポリシロキサンに帰属される2つのT<sub>g</sub>を示した一方で、DPS含量の高いものはただ1つのT<sub>g</sub>を示した。ハイブリッドのTGA結果より、PBa-シロキサンはPBa単体よりも高い熱的安定性を示し、その値はDPS含量に依存することが分かった。