

氏 名	きたやま たけお
学位(専攻分野)	北 山 威 夫
学 位 記 番 号	博 士 ( 工 学 )
学位授与の日付	博 甲 第 3 0 9 号
学位授与の要件	平成 15 年 3 月 25 日
研究科・専攻	学位規程第3条第3項該当
学 位 論 文 題 目	工芸科学研究科 先端ファイブロ科学専攻
	Interfacial Properties and Mechanical Behaviors of all-PP composites
審 査 委 員	主 査 濱田 泰以
	委 員 石原 英昭
	委 員 高橋 雅興
	委 員 鞠谷 雄二
	委 員 L.T.D r z a l

### 論文内容の要旨

近年、各種材料の高性能化への要求に対応するために、優れた特性を有する複合材料の研究が数多く行われている。複合材料が優れた特性を有するのは、単純な材料の集合体ではなく、異相間に存在する界面により応力伝達され、強化材の特性が発揮されるためである。そのため、複合材料の研究においては、強化材とマトリックス樹脂間の界面接着性を向上させることを議論したものが数多く見受けられる。例えば、繊維強化複合材料におけるガラス繊維のカップリング剤処理や炭素繊維の酸化処理などは、それらの良い例である。また、近年の化学分析技術の進歩により、複合材料界面の研究は大いに進歩しており、動的粘弾性測定や、界面のモロフォロジーなどが検討されてきている。

一方、無機繊維を用いた複合材料に取って代わって、有機繊維を強化材とする複合材料が注目を浴びており、高強度、高弾性率有機繊維の開発が盛んに行われている。例えば、アラミド繊維、ポリエーテル繊維および超高分子量ポリエチレン (UHMWPE) 等が有機繊維として上市されている。ポリプロピレン (PP) を用いた繊維に関しては、材料自身の結晶弾性率が低いことから、これまであまり高弾性率の繊維は報告されていなかった。しかしながら、PP は PE よりも優れた耐熱性を有していることから、幅広い分野で用いられており、PP を用いた高強度、高弾性率繊維の出現は待ち望まれていた。最近、PP 繊維に特殊な延伸を行なうことにより、比較的高強度かつ高弾性率の繊維が開発された。このことにより、今後 PP 繊維を用いた複合材料は興味深い研究対象となると考えられる。

これまで同種の材料を用いた複合材料の研究はポリエチレン (PE) を材料として選択したものがほとんどであった。一般に、PE 繊維を PE マトリックス樹脂に充填した PE/PE 複合材料の場合、その界面にトランスクリスタル層が形成される。このトランスクリスタル相が PE/PE 複合材料の機械物性に及ぼす影響に関しては数多くの報告がある。例えば、トランスクリスタルは界面接着強度を低下させるとの報告がある。しかしながら、一方ではトランスクリスタルは繊維垂直方向の引張物性を向上させ、界面における接着強度も向上させると報告されている。このように、界面に形成されたトランスクリスタル層が複合材料の物性に及ぼす影響に関しては意見を二分している。

そこで、本論文では、ポリプロピレン(PP)同種異形態複合材料のポリプロピレン繊維表面に形

成されるトランスクリスタル層の構造を明確にし、その結晶層が複合材料の力学物性に及ぼす影響について検討した。さらに、複合材料の力学的物性を向上させる手法として、複合材料の熱処理と繊維への造核剤添加を提案し、その効果について評価した。

まず始めに、マトリックスにエチレンプロピレンランダムコポリマーを、繊維にホモ PP を用い、その融点差を利用して PP 繊維強化 PP 同種異形態複合材料を成形した。その繊維表面に形成されるトランスクリスタル層の成長過程を種々の条件下で観察した結果、トランスクリスタル層を等温結晶化条件下ではなく、一般の成形方法に適応可能な条件で、十分に成長させることが可能な条件を見出した。さらに、その結晶構造を観察することにより、繊維表面に形成されたトランスクリスタル層はそのラメラの C 軸がすべて繊維方向に並んだ Edge-on 型であり、繊維から 300nm 離れた部分からクロスハッチ構造になっていることを明らかとした。次に、Off-axis での複合材料の機械的物性を測定し、その挙動を理論値と比較すると共に、先に明らかとしたトランスクリスタルの結晶構造から説明した。これらの検討により、本同種異形態複合材料の界面に形成されたトランスクリスタル層の材料定数を求めることが可能となった。

以上の結果を踏まえ、トランスクリスタル層のラメラを厚くし、タイモレキュールを張る効果のある熱処理と、繊維表面からの結晶成長を早める効果があると考えられる PP の造核剤を繊維中に分散させる方法を、本複合材料の機械的物性向上をさせるものとして提案し、いずれの方法も効果があることを明らかとした。

#### 論文審査の結果の要旨

本論文は、強化繊維とマトリックス樹脂に同種の材料かつ形態の異なる材料を用いて作製した All-PP 複合材料の研究を行い、その成果をまとめたものである。

リサイクルが容易であり、かつ通常必要とされる繊維の表面処理等が不要である繊維強化複合材料を対象として、その基盤技術の構築ならびにその特性評価を行っている。ポリプロピレン (PP) 繊維および PP マトリックス間に一般的な成形条件でトランスクリスタル層 (TCL) を形成させることに成功し、その成長過程およびその構造を明確にしている。さらに、この All-PP 複合材料の機械的物性についての詳細な検討を行うことによって、本複合材料の破壊挙動について、TCL の構造を用いてその挙動を解明している。これらの検討により、All-PP 複合材料の機械的物性を向上させる手法として、1) 熱処理、2) 繊維へ PP の造核剤の導入を提案し、その対策が有効であることを指摘している。また、本複合材料の界面層である TCL の材料定数を求めることに成功し、これにより、本複合材料の機械的物性値の予測を可能としている。

本論文で得られた成果は、繊維強化複合材料分野での新たな材料開発の指針を示すものであり、同分野での応用が大いに期待できるなど、博士論文としての価値が十分に認められる。

本論文の内容は次の 3 報に報告されており、すべて申請者が筆頭著者である。

- (1) Takeo Kitayama, Kentaro Ishikura, Hiroyuki Hamada, Takeshi Kikutani and Hiroshi Ito, Interfacial Properties of PP/PP composites, Science and Engineering Composite Materials, 9, 67(2000)
- (2) Takeo Kitayama, Kentaro Ishikura, Hiroyuki Hamada, Takeshi Kikutani, Hiroshi Ito,

Mechanical Properties of PP/PP composites, Journal of Japan Society of Polymer Processing, 14, 10, 663(2002)

- (3) Takeo Kitayama, Shinya Utsumi, Hiroyuki Hamada, Takashi Nishino, Takeshi Kikutani and Hiroshi, Interfacial Properties of PP/PP composites, Journal of Applied Polymer Science (in press)

以上の結果より、本論文の内容は十分な新規性と独創性が有り、博士論文として高い学術的価値があることを審査員全員が認めた。