

氏 名	たなか ひで穂 田 中 秀 穂
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 乙 第 78 号
学位授与の日付	平成11年7月26日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学 位 論 文 題 目	フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性に関する研究 (主査)
審 査 委 員	教 授 高 橋 雅 興 教 授 前 川 善 一 郎 教 授 柴 山 充 弘 教 授 秋 山 隆 一

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性を包括的かつ系統的に研究したものである。フィラーの幾何学的形状とサイズに従って系統的に分類して溶融レオロジー特性を論じ、最後にこの特性の理論的解釈を与えている。本論文は7章から構成されており、以下に各章の概要を示す。

第Ⅰ章の緒論では、研究の背景、目的とその達成方法について述べ、本研究で解明すべき内容を明らかにしている。

第Ⅱ章では、粒状フィラー充填樹脂の定常せん断および一軸伸長流動さらに動的粘弾性挙動について、その特徴を述べている。これらのレオロジー特性に与えるフィラー充填量、サイズおよび表面処理、マトリクス樹脂の粘度の影響を明らかにしている。

第Ⅲ章では、板状フィラーを充填した樹脂の定常せん断流動と動的粘弾性挙動を調べ、フィラー充填量とサイズの影響について論じている。

第Ⅳ章では、繊維状フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性を調べ、マトリクス樹脂の性状の影響についても述べている。

第Ⅴ章では、針状フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性を詳細に研究し、フィラー充填量、サイズ、表面処理およびマトリクス樹脂の性状の影響を明らかにしている。ゾノトライト充填ナイロン6を用いて、定常せん断粘度測定中のレオメーター内部でのフィラーの配向やサイズを観察、評価している。また、二軸押出機による混練押出ペレットのミクロ構造を分析し、成形によって創出される複合材料の構造的特徴を明らかにしている。

第Ⅵ章では、以上の実験結果に対して、理論的な解析を、現象論および物性論の観点から行っている。まず現象論的立場からは、フィラー充填樹脂を、フィラー・フィラー間相互作用に起因する降伏値とフィラーの方向性に基づく流動配向とを二つのキー・ファクターとして、四つのタイプに分類できることを提案している。そして、実験データを塑粘弾性流体や異方性流体理論と比較した結果について述べている。また物性論の観点からは、フィラー充填量、フィラー性状(形状、サイズ、表面処理)およびマトリクス樹脂性状(溶融粘度)の各因子が与える影響について整理している。粒状および繊維状フィラー充填系について、実験データをサスペンション理論と比較している。これら両方の立場から得られた知見を統合し、フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性を把握する場合のフレームワークを作成すると共に、その流動挙動について論じている。

第Ⅶ章では、本研究で得られた成果の学術的および工業的価値と、今後の研究課題について述べている。

論文審査の結果の要旨

従来、当分野の研究は限られた材料系を取り扱ったものが殆どであり、その全体像を包括的に捉える試みが不十分であった。このような背景から、本研究は広範囲な材料系とレオロジー特性とを取り扱うことによって、フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性について、1. その特徴を明らかにすること、2. 構造的、物性的因子の影響を解明すること、そして3. 包括的、統一的な解釈を行うことを試みている。

まず、広範囲の実験から得られた結果を比較、整理することによって、材料が四つのタイプに分類できることを提案している。フィラー、樹脂、組成などの構造因子が与える影響についても、実験結果を系統的にまとめることによって明らかにしている。このような包括的な研究はこれまでに例がない。そして、このようにして得られた結果を現象論および物性論の両面から考察し、その理論的な解釈を行っている。

また、本論文では、レオメーター中でのフィラーの配向・分散を評価したり、レオロジー特性を反映していると考えられる成形品のマイクロ構造を詳細に分析しており、溶融レオロジー特性を材料の構造と関係づけて把握しようとしていることも評価できる。

以上のような実験結果の体系的な整理とそれらの理論的な解釈から、フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性に関する基本的なフレームワークが結論として提案されており、その全体像を把握する上で非常に有益である。すなわち、フィラー充填樹脂の溶融レオロジー特性に関する統一的解釈への初の試みとして本研究は学術的・工業的な価値がある。

本論文の基礎となっている学術論文は、レフェリー制度のある学術雑誌に6篇が掲載、そして2篇が掲載予定である。この内、4篇は申請者が筆頭著者となっている。

1. H. Tanaka & J. L. White, "Experimental Investigations of Shear and Elongational Flow Properties of Polystyrene Melts Reinforced with Calcium Carbonate, Titanium Dioxide and Carbon Black", *Polymer Eng. & Sci.*, 20, No. 14, 949-956 (1980).
2. J. L. White, L. Czarnecki & H. Tanaka, "Experimental Studies of the Influence of Particle and Fiber Reinforcement on the Rheological Properties of Polymer Melts", *Rubber Chem. Tech.*, 53, 823-835 (1980).
3. J. L. White & H. Tanaka, "Elongational Flow and Melt-Spinning Instability of Concentrated Suspensions of Small Particles in Polymer Melts", *J. Appl. Polymer Sci.*, 26, 579-589 (1981).
4. S. Hoshino, H. Tanaka & T. Kimura, "A New Reinforcement for Polypropylene", *Polymer Eng.*, 39, No. 10, 37-39 (1983).
5. H. Tanaka & K. Watanabe, "Shear Viscosity of Nylon 6 Melts Reinforced with Microfibrous Calcium Silicate Hydrate", *Polymer Eng. & Sci.*, 39, No. 5, in press.
6. 田中秀穂、渡辺邦夫、"針状ケイ酸カルシウム水和物で強化されたナイロン6複合材料の構造キャラクターゼーション"、*成形加工*, 11, 637-644 (1999).
7. H. Tanaka and J. L. White, "A Cell Model Theory of the Shear Viscosity of a Concentrated Suspension of Interacting Spheres in a Non-Newtonian Fluid", *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 7, 333-343 (1980).
8. J. L. White & H. Tanaka, "Comparison of a Plastic-Viscoelastic Constitutive Equation with Rheological Measurements on a Polystyrene Melt Reinforced with Small Particles", *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 8, 1-10 (1981).