

氏 名	あらき かつひこ 荒 木 克 彦
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 乙 第 105 号
学位授与の日付	平成 13 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	繊維充填液晶ポリマーの粘弾性に関する研究 (主査)
審 査 委 員	教 授 前川善一郎 教 授 高橋雅興 教 授 北野 武

論文内容の要旨

本研究では近年、高性能を発揮しうる材料として注目され、多用途開発が行われているサーモトロピック液晶ポリマー（LCP）及びその複合系の粘弾性特性を中心に述べ、最適成形加工条件の確立と併せてその成形品の熱的特性、機械的特性などへの影響を論じた。

本論文は 5 章および緒論と結論から成り、その概要は次の通りである。

第 1 章では、繊維ポリマーの成形法と物性及び流動性に関する従来の研究の概要と問題点について述べ、さらに本研究の目的および論文の構成を示した。

第 2 章では、ナイロン 6、ポリカーボネートなど 6 種類の代表的な汎用ポリマー熔融中に繊維長分布のあるガラス繊維、炭素繊維、ウスカを分散した熔融液の定常せん断流動実験を行い、定常せん断粘度に与える繊維充填量、アスペクト比、繊維長分布、マトリックスの分子量及び粘度、繊維の界面状態などの影響を調べた。

第 3 章では、全芳香族系および半芳香族系のサーモトロピック液晶ポリマー（LCP）にガラス繊維、炭素繊維またはカーボンブラックを充填した複合系について、定常せん断流動性及び動的粘弾性に及ぼす充填量、形状、せん断速度およびひずみ振幅依存性等を定量的に把握した。液晶ポリマー融液は温度に依存する特異なせん断流動を示すこと、充填材を充填することによりこれらの挙動が現れないこと等、LCP 特有の流動挙動を明らかにした。

第 4 章では、半芳香族系の LCP および炭素繊維、ガラス繊維を充填した半芳香族系 LCP 融液で観察される非線形粘弾性挙動の解析を行った。動的粘弾性挙動の非線形性解析のために、実験で得られた貯蔵弾性率、損失弾性率をフーリエ級数展開して各項の傾向を調べ、繊維の存在が非線形性に及ぼす影響を明らかにした。

第 5 章では、全芳香族系と半芳香族系の 2 種類の LCP を用いたガラス繊維及び炭素繊維充填 LCP を用いて、押出成形法と射出成形法により 4 種類のストランド状試験片を作製し、これらの固体粘弾性を引張モードと曲げモードと曲げモードに分けて測定し、貯蔵弾性率及び損失弾性率に及ぼす成形条件等の影響を調べた。複合系の固体粘弾性は LCP の配向および繊維配向に大きく依存することが判明した。

第 6 章では、全芳香族系と半芳香族系の 2 種類の LCP を用いたガラス繊維及び炭素繊維充填 LCP を用いて、射出成形法により成形した試料の繊維配向性に及ぼす各種因子を定量的に調べた。成形条件の中で射出速度および金型ゲート形状が機械的性質に大きく影響を与えることを見

出した。

第7章では各章において得られた研究結果を総括し、結論を述べた。

論文審査の結果の要旨

近年、サーモトロピック液晶ポリマーが高性能を発揮しうるエンブレの一つとして注目され、一部実用化の試みもなされている。このポリマーは成形加工の観点からは熔融粘度が低い、緩和時間が長い、成形収縮が小さい等の長所を持つが、剛直分子の存在に起因して配向性が高く異方性が生じ易いという欠点がある。この異方性を抑制する方法として幾つかの方法が検討されているが、その一つが繊維、粒子等充填材を混合する方法である。しかしながら、液晶ポリマー複合系についてはそのレオロジー的性質や成形加工に関する研究はまだ緒についたばかりであり、各種因子のレオロジー的性質に及ぼす影響はほとんど明らかでない。

本研究は繊維を中心とした充填材を充填した液晶ポリマーの成形加工技術の体系化の前進の一環となるべく、そのレオロジー的性質に及ぼす種々の影響因子を実験的に把握するとともに成形加工条件と各種物性の相関を明らかにすることを目的として行われたもので、これまでほとんど取り扱われていない系の流動性、成形条件と物性の相関について系統的に研究を行ったという点で、新規性があると考えられる。

本研究の成果として、最初に、レオロジー的性質に関する研究では、液晶ポリマーの特異な流動現象、繊維・粒子充填がこの現象に及ぼす影響、定常剪断流動性と粘弾性挙動の比較による、液晶ポリマーと汎用ポリマーの内部構造（化学構造）の違いがこれらの複合系の流動性に与える影響等を明らかにしている。また複合系が示す非線形粘弾性についてその要因となる因子を定量的に把握するとともにその解析法について新しい試みを行っている。これらの結果はこれまでに見られなかった新しい成果である。

次に、レオロジー特性とも深く関わる成形条件と物性の相関に関する研究においては、特に繊維及び分子の配向性と固体粘弾性、線膨張係数等の関係を成形条件を考慮して詳細に検討し、繊維配向性の各種物性に与える影響を明らかにしている。また成形条件が繊維配向に及ぼす影響を実験的に調べ汎用ポリマーで見られた結果との差異を検討している。これらの結果はこれまでに本格的に検討されることのなかったものであり、研究の新規性・オリジナリティーを十分に含んだものと考えられる。

以上の研究成果は、今後、工業用材料として一層の利用が予想される液晶ポリマーに対してその長所を生かしながら欠点を克服するための技術、すなわち、繊維を中心とした充填材複合化、及びこれらの成形加工技術の発展に大きく貢献できる基礎的知見を与えるものと考えられる。

本学位論文をまとめるにあたり、基礎となったレフリー制度のある論文は以下に示す10報である。

- (1) 荒木克彦, 中村喜代次: 繊維強化ナイロン及びポリカーボネートの熔融流動特性, 繊維機械学会誌, 41, 3, pp. 89-97 (1988)
- (2) 荒木克彦, 中村喜代次: 繊維強化ナイロン, ポリエチレンテレフタレート及びポリブチレン

- テレフタレートの溶融流動特性, 繊維機械学会誌,41,9,pp.99-112(1988)
- (3) 荒木克彦, 中村喜代次: ウィスカー強化ナイロンの溶融流動特性, 繊維機械学会誌,42,9,pp.99-112(1989)
- (4) 荒木克彦, 北野武, 上山明彦, 雲竜常宗: ガラス繊維および炭素繊維充填液晶ポリマーのレオロジー的特性, プラスチック成形加工学会誌,10,5,pp357-364(1998)
- (5) 荒木克彦, 北野武, 上山明彦, 雲竜常宗: 繊維充填液晶ポリマーの熱特性, プラスチック成形加工学会誌,10,7,pp539-547(1998)
- (6) 荒木克彦, 北野武, 上山明彦, 雲竜常宗: ガラス繊維および炭素繊維充填液晶ポリマーの固体粘弾性, プラスチック成形加工学会誌,12,1,pp52-60(2000)
- (7) 荒木克彦, 北野武, 上山明彦, 雲竜常宗: 繊維充填液晶ポリマーの固体粘弾性, プラスチック成形加工学会誌,12,9,pp582-590(2000)
- (8) 荒木克彦, 北野武, 前川善一郎: 繊維充填液晶ポリマー成型品の繊維配向性とその機械的性質, プラスチック成形加工学会誌,13,6,pp374-383(2001)
- (9) 荒木克彦, 北野武, 前川善一郎: 繊維充填液晶ポリマー融液の非線形粘弾性, 繊維機械学会誌, 54,8(2001) (印刷中)
- (10) ARAKI,Katuhiko.KITANO,Takeshi,HAUSNEROVA,Berenika; Rheological Properties of Carbon Fiber and Carbon Black Filled Liquid Crystalline Polymer Melts, Applied Rheology (印刷中)

上記の 10 編のすべては申請者が筆頭著者である。以上の結果より、本論文の内容には十分な新規性と独創性ならびに高い学術的な価値があることを全審査員が認めた。