

Title	異種物質の添加と構造制御による透明プラスチック材料の物性向上
Author(s)	佐光, 巧
Citation	
Issue Date	2019-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/15797
Rights	
Description	Supervisor: 山口 政之, 先端科学技術研究科, 博士

氏 名	佐 光 巧
学 位 の 種 類	博士(マテリアルサイエンス)
学 位 記 番 号	博材第 463 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 31 年 3 月 22 日
論 文 題 目	異種物質の添加と構造制御による透明プラスチック材料の物性向上
論 文 審 査 委 員	主査 山口 政之 北陸先端科学技術大学院大学 教授
	松見 紀佳 同 教授
	HO Anh-Van 同 准教授
	松村 和明 同 准教授
	村上 裕人 長崎大学大学院工学研究科 准教授

論文の内容の要旨

Glassy amorphous polymer materials such as polycarbonate (PC), poly(methyl methacrylate) (PMMA) and polystyrene (PS) are widely employed in industrial fields due to their good transparency and mechanical properties. In particular, PC is expected as a substitution of inorganic glasses because of its excellent mechanical toughness and heat resistance property. However, its modulus and surface hardness in the solid state and flowability in the molten state, i.e., processability, are not good enough to widen its application.

In this study, the disadvantages of PC are improved by the addition of different materials without losing its transparency. The thesis is composed of the following chapters.

Chapter 1 General introduction

Chapter 2 Miscibility and segregation behavior under temperature gradient of PC/PMMA blends

A new method to produce concentration gradient in the miscible PC blend was demonstrated. The blend of PC and low-molecular-weight PMMA, which are found to be miscible, was used in this study. After annealing the PC/PMMA blend in a temperature gradient, PMMA localized on the high temperature side. This phenomenon is notable because it is applicable to enhance the anti-scratch properties of PC.

Chapter 3 Surface segregation of PMMA during injection-molding of PC/PMMA blends

The distribution of the constituent polymers in an injection-molded product comprising a miscible blend of PC and low-molecular-weight PMMA was studied. It was found that PMMA is localized at the surface without affecting the transparency of the product. As a result, the surface hardness was effectively enhanced by a small amount of PMMA. This technique can be used to produce an ideal

plastic glass that has high transparency, mechanical toughness, and high surface hardness.

Chapter 4 Modulus enhancement of PC by addition of lithium perchlorate

The mechanical properties of PC containing lithium perchlorate (LiClO_4), which is found to ionize in PC, were examined. The modulus of PC was greatly enhanced by the addition of LiClO_4 because of the electrostatic interaction between the lithium cation and the carbonyl group in PC molecules. The addition of LiClO_4 does not sacrifice the advantages of PC, such as heat resistance, transparency, and mechanical toughness.

Chapter 5 Flowability enhancement of PC by addition of PS

The shear viscosity of binary blends comprising PC and low-molecular-weight PS (L-PS) was examined. It was found that the viscosity of PC significantly decreases by the addition of L-PS. Although the dynamic mechanical properties indicated that L-PS is immiscible with PC, the morphology observation of the extruded strand clarified that shear-induced phase-mixing occurs. Furthermore, the viscosity decrease was found to be pronounced in the high shear stress condition. The addition of L-PS can improve the flowability at injection-molding of PC greatly.

Chapter 6 General conclusion

Key words

Polycarbonate, Polymer blend, Miscibility, Segregation, Flowability

論文審査の結果の要旨

代表的なガラス状高分子であるポリカーボネート樹脂（PC）に着目し、その力学特性や成形加工性を異種物質によって制御する新しい手法を提案した論文である。

PCは透明性、耐熱性に優れると共に、破壊に要するエネルギーが極めて高い高靱性のエンジニアリング・プラスチックとして知られ、無機ガラス代替を中心に近年急速に需要が高まっている。その最大の欠点は、表面傷を受けやすいことであり、多くの用途分野で改良が強く求められている。本研究では、透明性高分子の中でも最も耐傷性に優れているポリメタクリル酸メチル（PMMA）をPCの表層に局在化させる方法を二つ提案している。そのひとつは、温度勾配を与える手法である。低分子量のPMMAとPCは分子レベルで相溶するが、このブレンドを温度勾配中に放置するとPMMAが高温側に偏析することを見出した。これまで低分子液体のブレンドでは同様の現象が報告されていたが、相溶系高分子ブレンドでは初めての報告である。学位論文ではそのメカニズムに関しても考察を進めている。また、これとは別に速度勾配を与える手法も見出している。速度勾配中において低分子量PMMAは高せん断速度側に偏析する。これまで液体の添加剤が表面に析出する現象は知られていたが、高分子ブレンドで一方の成分濃度を高

めた成形体の報告例はない。プラスチックの代表的な成形方法である射出成形へ適用できることから、工業的なインパクトが大きな研究成果である。

また、PC は成形時の流動性に劣ること、固体状態での剛性に劣ることも問題となることがある。これらについてもその改善策を提案している。

PC は流動場において低分子量ポリスチレン (PS) と分子レベルで相溶し、その結果、熔融粘度が大幅に低下する。これは過去に報告のない現象であり、粘度低下の程度は可塑剤よりも顕著である。粘度低下をもたらす原因を構造解析などによって調べている。その結果、PC-PS 分子鎖間の摩擦係数に変化が生じている可能性が高いことが判明した。相溶系高分子ブレンドでは、これまでにそのような考察が行われたことがほとんどなく、工業的な重要性のみならず学術的なインパクトも高い研究内容である。

その他、特殊な塩を添加することで静電相互作用を付与し、PC の高い破壊靱性を損なうことなく固体状態の剛性を高める手法も提案している。

以上、本論文は、ポリマーブレンドの構造制御に対する新しい手法を複数提案すると共に、その応用方法を示している。学術的な貢献が大きいばかりでなく、産業界にもインパクトを与える内容である。よって博士(マテリアルサイエンス)の学位論文として十分価値あるものと認めた。