

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 20 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24656473

研究課題名(和文)層界面に無機フィラーを制御配置した高機能高分子多層フィルムの開発

研究課題名(英文)Processing of multilayer polymer films

研究代表者

梶原 稔尚(Kajiwara, Toshihisa)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10194747

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：平行円盤レオメータを用いて、多層フィルムのレオロジー特性を測定した。まず、2種類の高分子A、Bを溶融後プレスしてフィルムを作成した。得られた多層フィルムを平行円盤レオメータの円盤間に装着し所定の温度に加熱後、これまで2層フィルムで研究を行ってきた線形領域での動的粘弾性測定を行った。同様にAおよびB単独のフィルムと、AとBの高分子フィルムのみを貼り合わせたサンプル(界面の無機材料なし)について動的粘弾性測定を行った。A層のみ、B層のみ、(A+B)層、(A+B)層の動的粘弾性データから、界面状態についての考察を行った。以上の検討を、各種の高分子の組合せに対して行った。

研究成果の概要(英文)：Viscoelastic property of multilayer of different polymers was characterized by using a parallel-plate rheometer. Plate samples of polymers for rheological measurement were prepared by melt-compression molding. Two plates of different polymers are pressed under their melt state to form bilayer sample. Shear deformation parallel to the interface was applied to obtain shear modulus of the bilayer sample. Combining the moduli of bilayer and component polymers, we extracted the rheological contribution of the interfacial layer.

研究分野：化学工学・高分子工学・生物工学

キーワード：高分子多層フィルム 多層界面 粘弾性

1. 研究開始当初の背景

高分子多層フィルムは、多層化により単一材料のフィルムでは達成できない複数の機能を持たせることにより高機能化を図ったものである。高分子多層フィルムの製造には、ダイ(金型流路)内で複数の溶融高分子を合流・積層した後、ダイ流出後に引取る共押出成形が用いられる。この合流後のプロセスにおいて、高分子の組合せや成形条件によっては界面不安定が生じ、多層化できない。申請者らは、回転型レオメータを用いた界面層のレオロジー特性の測定や多層粘弾性流動解析を行ってきたが、相溶性の他に分子構造や材料の粘弾性特性が複雑に影響していることが示唆されている。一方、申請者らは、ガラス製品の製造において、シリカナノ粒子とポリビニルアルコールによって作られるナノコンポジットを前駆体として、それを成形したり金属をドーブしたりした後に焼結を行う高機能付与ガラス成形体の製造プロセスを開発してきた。これは、高分子がシリカナノ粒子の空間構造を制御すると同時に、高分子の伸縮性によって成形を容易にすることを利用したものである。これとは逆の発想で、高分子の界面挙動を無機材料を用いて制御することで、高分子材料の組合せや接着層の利用では得られない新規の高分子多層フィルムの製造が可能になる。

2. 研究の目的

層界面に無機材料を制御配置することによって、これまで多層化が困難であった材料の組み合わせを可能にする高分子多層フィルムの共押出成形技術を開発するとともに、界面不安定現象の解明に対する学術的知見を与えることを目的としている。さらに、層間の無機材料の種類(化学種、形状、濃度など)を制御することで、高付加価値なフィルムの光学特性を引き出すことを実現する製造プロセス開発のための基礎研究を行おうとするものである。

3. 研究の方法

本研究では、各種の異種高分子の多層フィルムを作成し、レオメータによる界面層のレオロジー特性評価を行う。平行円盤レオメータを用いて、多層フィルムのレオロジー特性を測定し、種々の高分子の組合せに対する、各種の無機材料の効果について基礎検討を行った。レオメータによる多層フィルムのレオロジー評価については、具体的に以下のことを行った。まず、2種類の高分子A、Bを溶融後プレスしてフィルムを作成した。得られた多層フィルムを平行円盤レオメータの円盤間に装着し所定の温度に加熱後、これまで2層フィルムで研究を行ってきた線形領域での動的粘弾性測定を行った。同様にAおよびB単独のフィルムと、AとBの高分子フィルムのみを貼り合わせたサンプルについて動的粘弾性測定を行った。A層のみ、B層の

み、(A+B)層、(A+B)層の動的粘弾性データから、界面状態についての考察を行った。以上の検討を、各種の高分子の組合せに対して行った。

4. 研究成果

異種材料界面の線形応答を評価する非粘着長さを定義した。多層材料の粘弾性から界面層の周波数依存応答を評価することができるようになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計5件)

Kunihiro Hirata, Hiroshi Ishida, Motohito Hiragohri, Yasuya Nakayama and Toshihisa Kajiwara, Effectiveness of a backward mixing screw element for glass fiber dispersion in a twin-screw extruder, Polymer Engineering & Science, 査読有, Vol. 54, No. 9, 2014, pp.2005-2012

DOI: 10.1002/pen.23752

鷲崎俊朗, 梶原稔尚, 名嘉山祥也, カップの圧縮成形解析と厚み分布を持つ幅広い円盤状シートによる成形荷重の低減, 高分子論文集, 査読有, Vol. 71, No. 3, 2014, pp.89-97

DOI: 10.1295/koron.71.89

K. Hirata, H. Ishida, M. Hiragohri, Y. Nakayama, and T. Kajiwara, Experimental Assessment of Dispersion Failure of Glass Fiber Reinforced Plastics in a Twin Screw Extruder, International Polymer Processing, 査読有, Vol. 28, No. 4, 2013, pp.368-375

DOI: 10.3139/217.2704

Yasuya Nakayama and Toshihisa Kajiwara, Quantifying hierarchical mixture quality in polymer composite materials: structure and inhomogeneity in multiple scales, Polymer, 査読有, Vol. 54, No. 3, 2013, pp.1227-1233

DOI: 0.1016/j.polymer.2012.12.056

Yasuya Nakayama, Kiyoyasu Kataoka, and Toshihisa Kajiwara, Dynamic shear responses of polymer-polymer interfaces, Nihon Reoroji Gakkaishi (Journal of the Society of Rheology, Japan), 査読有, Vol. 40, No. 5, 2012, pp.245-252

DOI: 10.1678/rheology.40.245

[学会発表](計41件)

名嘉山 祥也, 正木辰典, 梶原 稔尚,

混練過程の流動様式・局所的な定量化と大域的な混合への洞察, 化学工学会第80年会, 2015/3/19-21, 芝浦工業大学 豊洲キャンパス

Kunihiro Hirata, Hiroshi Ishida, Motohiro Hiragori, Yasuya Namayama, Toshihisa Kajiwara, Prediction of Glass Fiber Dispersion in a Twin-Screw Extruder Using a Three-Dimensional Flow Simulation, Asian Workshop on Polymer Processing (AWPP)2014, 2014/11/17-20, 台湾 Kenting

野口雄太, 中明弘, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 木村公一, 竹内貴季, 富山秀樹, 二軸スクリュ押出機の混練エレメントの実験的評価法の開発, プラスチック成形加工学会第22回秋季大会 成形加工シンポジウム'14, 2014/11/14-15, 朱鷺メッセ 名嘉山 祥也, 正木辰典, 梶原 稔尚, 流動様式の可視化: 定量化と混練への寄与, プラスチック成形加工学会第22回秋季大会 成形加工シンポジウム'14, 2014/11/14-15, 朱鷺メッセ

Y. Nakayama, A. Naka, Y. Noguchi, T. Kajiwara, K. Kimura, T. Takeuchi, H. Tomiyama, 二軸スクリュ押出の混練エレメントによって異なる ABS の粘弾性, 第62回レオロジー討論会, 2014/10/15-17, 福井市地域交流プラザ (AOSSA)

名嘉山 祥也, 梶原 稔尚, 木村公一, 竹内貴季, 富山秀樹, 二軸スクリュ押出機における流れのシミュレーションと溶融混練メカニズム, 第63回理論応用力学講演会, 2014/9/26-28, 東京工業大学大岡山キャンパス

Toshihisa Kajiwara, Hirata Kunihiro, Ishida Hiroshi, Hiragohri Motohito, Yasuya Nakayama, Numerical Study on Mixing Performance of Glass Fiber Dispersion in a Twin-Screw Extruder with Backward-Mixing Elements, 30th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-30), 2014/6/8-12, Cleveland, Ohio, USA

野口雄太, 中明弘, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 木村公一, 竹内貴季, 富山秀樹, 新規混練エレメント: 傾斜チップニーディングディスクの混練性能評価, プラスチック成形加工学会第25回年次大会, 2014/6/3-4, タワーホール船堀

野口雄太, 中明弘, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 木村公一, 竹内貴季, 富山秀樹, 新規混練エレメント: 傾斜チップニーディングディスクの混練性能評価, プラスチック成形加工学会第25回年次大会, 2014/6/3-4, タワーホール船堀

梶原 稔尚, 高分子材料の溶融混練の基礎と評価, 日本レオロジー学会 レオロジーイブニングセミナー 2013,

2013/11/1, 姉ヶ崎 出光研修センター 梶原 稔尚, 高分子ブレンド・コンポジットの溶融混練, 九州工業大学工学部応用化学科 21世紀シンポジウム, 2013/11/30, 九州工業大学戸畑キャンパス

梶原 稔尚, 名嘉山 祥也, 平田 邦紘, 石田 大, 平郡 元一, ガラス繊維強化プラスチック製造における溶融混練によるガラス繊維分散プロセスに関する研究, 粉体工学会 2013年度 第2回 西日本談話会, 2013/12/25, 九州工業大学戸畑キャンパス

名嘉山 祥也, 糸原 俊佑, 梶原 稔尚, 高分子間界面の動的応答, 第91期 日本機械学会流体工学部門講演会, 2013/11/9-10, 九州大学 伊都キャンパス

糸原俊佑 名嘉山祥也 梶原稔久, 高分子間界面の粘弾性評価, 成形加工シンポジウム'13 第21回プラスチック成形加工学会秋季大会, 2013/11/7-8, 倉敷市芸文館

木村 公一, 板持雄介, 富山 秀樹, 名嘉山 祥也, 梶原 稔尚, 単軸押出機の混練特性の評価, 成形加工シンポジウム'13 第21回プラスチック成形加工学会秋季大会, 2013/11/7-8, 倉敷市芸文館

名嘉山 祥也, 糸原俊佑, 梶原 稔尚, 高分子間界面の応力緩和, 日本物理学会 2013年秋季大会, 2013/9/25-28, 徳島大学

中明弘 名嘉山祥也 梶原稔尚 富山秀樹 木村公一 竹内貴季, 二軸スクリュ押出機の新規混練エレメント: 傾斜チップニーディングディスクの混練性能評価, 第61回レオロジー討論会, 2013/9/25-27, 山形大学 (山形県米沢市)

中明弘 梶原稔尚 名嘉山祥也 富山秀樹 木村公一 竹内貴季, 二軸スクリュ押出機の新規混練エレメント: 傾斜チップニーディングディスクの混練性能評価, 化学工学会第45回秋季大会, 2013/9/16-18, 岡山大学 津島(東)キャンパス

糸原俊佑 名嘉山 祥也 梶原稔尚, 高分子間海面の緩和挙動の解明を目的とした高分子積層系の粘弾性評価, 化学工学会第45回秋季大会, 2013/9/16-18, 岡山大学 津島(東)キャンパス

名嘉山 祥也, 梶原 稔尚, Dynamic shear response of a polymer-polymer interface, 第62回高分子討論会, 2013/9/11-13, 金沢大学 角間キャンパス

21 梶原稔尚, 高分子材料の溶融混練, 平成25年度化学工学会 粒子・流体プロセス部門ミキシング技術分科会夏季セミナー, 2013/8/27, 東京理科大学森戸記念館

22 Yasuya Nakayama and Toshihisa Kajiwara,

- Dynamic shear response of a polymer-polymer interface, Polymer Processing Society 29th Annual Meeting, 2013/7/15-19, Nuremberg, Germany
- 23 Yasuya Nakayama and Toshihisa Kajiwara, Quantifying hierarchical mixture quality in polymer composite materials: structure and inhomogeneity in multiple scales, Polymer Processing Society 29th Annual Meeting, 2013/7/15-19, Nuremberg, Germany
- 24 平田邦紘, 石田大, 平郡元一, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 樹脂コンパウンドプロセスにおけるフィラー分散性評価, 第 24 回 プラスチック成形加工学会 年次大会, 2013/5/21-22, タワーホール船堀
- 25 名嘉山 祥也, 梶原 稔尚, Dynamic shear responses of polymer-polymer interfaces, 第 36 回日本バイオレオロジー学会年会, 2013/6/6-8, 九州大学西新プラザ
- 26 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 高分子間界面の動的粘弾性, 化学工学会 第 78 年会, 2013/3/17-3/19, 大阪大学豊中キャンパス
- 27 梶原稔尚, 西平成義, 名嘉山祥也, 重石高志, 富山秀樹, 傾斜チップニーディングディスクによる熔融混練, 2012 年度第 2 回西日本談話会, 2012/12/21, 九州工業大学
- 28 Nariyoshi Nishihira, Yasuya Nakayama, Toshihisa Kajiwara, Takeshi Shigeishi, Hideki Tomiyama, Effect of pitched tips of novel kneading disks on melt mixing in twin-screw extrusion, 第 25 回化学工学に関する 国際シンポジウム, 2012/12/14-12/15, 沖縄コンベンションセンター
- 29 中 明弘, 西平 成義, 名嘉山 祥也, 梶原稔尚, 重石 高志, 富山 秀樹, 二軸スクリュウ押出機の新規混練エレメント: 傾斜チップニーディングディスクの混練性能評価, 第 20 回プラスチック成形加工学会秋季大会 (成形加工シンポジウム'12(東海)), 2012/11/30-12/1, ウィンクあいち
- 30 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 2 相高分子界面のレオロジー, プラスチック成形加工学会 平成 24 年度第 2 回押出成形専門委員会, 2012/11/21,
- 31 梶原稔尚, 熔融混練の基礎と評価, 第 18 回成形加工秋季セミナー「押出機内の混練による分散を考える」, 2012/11/16-17, メルパルク松山
- 32 梶原稔尚, 西平成義, 名嘉山祥也, 重石高志, 富山秀樹, 傾斜チップニーディングディスクによる二軸スクリュウ混練: 傾斜チップと混練性能の関係, 第 60 回レオロジー討論会, 2012/9/26-28, 名古屋大学 東山キャンパス
- 33 平田邦紘, 石田大, 平郡元一, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 樹脂コンパウンドプロセスにおけるガラス繊維束分散制御技術, 化学工学会 第 44 回秋季大会, 2012/9/19-21, 東北大学 川内北キャンパス
- 34 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 高分子間界面の動的応答, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012/9/18-21, 横浜国立大学
- 35 Yasuya Nakayama, Nariyoshi Nishihira, Toshihisa Kajiwara, Takashi Shigeishi and Hideki Tomiyama, Effect of pitched tips of novel kneading disks on melt mixing in twin-screw extrusion, Asian Workshop on Polymer Processing 2012, 2012/8/28-31, Kyoto Institute of Technology
- 36 Yasuya NAKAYAMA, Toshihisa KAJIWARA, Quantifying mixing: a measure of inhomogeneity in multiple scales, Asian Workshop on Polymer Processing 2012, 2012/8/28-31, Kyoto Institute of Technology
- 37 Yasuya Nakayama, Nariyoshi Nishihira, Toshihisa Kajiwara, Takashi Shigeishi and Hideki Tomiyama, Melt-mixing by pitched-tip kneading disks in a twin-screw extruder, The XVIth International Congress on Rheology, 2012/8/5-10, Lisbon, Portugal
- 38 Yasuya Nakayama, Kiyoyasu Kataoka, and Toshihisa Kajiwara, Dynamic Shear Modulus of a Polymer-Polymer Interface, The XVIth International Congress on Rheology, 2012/8/5-10, Lisbon, Portugal
- 39 梶原稔尚, 押出機・混練機中の材料挙動および混練の基礎理論と計算機シミュレーション技術の利用, R&D 支援センター講演会, 2012/7/13, 大阪市中央会館
- 40 西平成義, 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 重石高志, 富山秀樹, 傾斜チップニーディングディスクによる二軸スクリュウ混練: 傾斜チップと混練性能の関係, 第 23 回プラスチック成形加工学会 年次大会, 2012/6/12-13, 東京都江戸川区船堀 4-1-1
- 41 名嘉山祥也, 梶原稔尚, 重石高志, 富山秀樹, 二軸スクリュウ押出機における特殊混練スクリュウと熔融混練メカニズム, 第 23 回 プラスチック成形加工学会 年次大会, 2012/6/12-13, 東京都江戸川区船堀 4-1-1

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

梶原 稔尚 (Kajiwara, Toshihisa)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：10194747