

論文の内容の要旨

論文題目 ガラス粒子分散エポキシ
 オプティカル複合材料の開発

氏名 長 沼 環

第1章 序論

異なる素材を組み合わせ、素材単体では持ち得ない複数の特性を兼ね備えた複合材料の中で、光透過特性を有するものは「オプティカル複合材料」と呼ばれている。従来得られている複合材料の特性に加え、光透過性を付加させることによって、これまでは光透過性をもつ素材単体で用いてきた光学分野への応用も可能になると期待されている。この中でも、ガラス粒子分散ポリマー複合材料は、低熱膨張性と光透過性を兼ね備えた材料としてエレクトロニクス用材料への利用が期待されている。

これまでの研究において、複合材料に光透過性自体を持たせるための条件は既に明らかになっているが、第2相の存在により光透過が妨げられ白色化し、マトリックスに近いほどの十分な光透過性は得られないことが問題となっている。そこで、本研究では光透過率を最大にするための最適条件として、素材選択の指針と第2相である粒子の形態の指針を明らかにし、得られた指針を元に粒子分散オプティカル複合材料を作製することを目的とした。

第1章では複合材料の光透過性に及ぼす散乱要因を明らかにし、従来のオプティカル複合材料を得るための条件を整理することによって、本論文の位置付けを明確にした。

第2章 複合化プロセスの決定

本論文を通して用いるガラス粒子分散エポキシ複合材料の複合化プロセスを決定することが必要であるため、ガラス粒子分散エポキシ複合材料を種々のプロセス条件で作製し、最適プロセス条件を決定することを目的とした。

素材自体の屈折率差が 10^2 以下と屈折率が近く、可視光領域で透光性を有する素材としてガラス粒子とエポキシ樹脂マトリックスを用いた。エポキシモノマーに硬化剤と硬化促進剤を混合したエポキシマトリックスに平均粒子直径 $d_p = 26, 42, 59$ および $85 \mu\text{m}$ のガラス粒子を添加し、ガラス粒子分散エポキシ複合材料を作製した。ここで、粒子体積率は $f_p = 0.0001 \sim 0.4$ の範囲とした。

得られた粒子分散複合材料は、複合材料を通して裏面の文字を読み取れる程度に、光を透過することがわかった。さらに、複合材料中のガラス粒子は凝集せずに分散できていることを確認した。したがって、最適なプロセス条件を決定することができた。以下、本章で決定した最適プロセスで複合材料を作製することとした。

第3章 幾何光学領域における透過光の空間的広がり及び散乱要因の影響

従来のオプティカル複合材料の研究により、複合材料の直線透過率は素材間の屈折率差等の散乱要因に依存していることが知られており、同様に透過光の空間的広がりも光散乱要因により異なることが予想された。そこで、透過光の空間的広がり及び散乱要因として、粒子体積率、粒子寸法、素材間の屈折率差、熱・残留応力による等価屈折率変化の影響を実証し、定量的に調べることを目的とした。

第2章で得られた複合材料にレーザー光を入射し、複合材料を透過した光の広がりを入射方向に対し垂直方向と平行方向から観察した。このとき、素材の屈折率分散を利用して素材間の屈折率差を変化させるために、入射光の波長を $200 \sim 1100 \text{ nm}$ の範囲で変化させた。さらに、熱・残留応力による等価屈折率変化の影響を調べるために温度範囲 $298 \sim 373 \text{ K}$ において透過光強度を測定した。

その結果、粒子寸法の増加と素材間の屈折率差 Δn^0 の減少により、複合材料による透過光の空間的広がりを抑えられることを明らかにした。さらに、温度を変えて素材間の屈折率差を変化させたとき、透過光の広がりが最小になった温度 T は、素材間の屈折率差が一致する温度 T^0 と一致していないことが明らかになった。この原因は、複合材料内に生じた熱・残留応力による影響と考えられた。

第4章 熱・残留応力の等価屈折率変化の影響

第3章で得られた温度差 $(|T^0 - T|)$ は、熱・残留応力による等価屈折率変化の影響であると考えられた。本章では、複合材料の加熱により素材間の屈折率差を変化させ、実際に複合材料内に生じる熱・残留応力による等価屈折率変化 $\overline{\Delta n^{RT}}$ を求めることにより、熱・残留応力の影響を考慮した素材選択の指針を得ることを目的とした。ここでは、熱・残留応力の生じない粒子分散溶液と比較することにより、

複合材料内の等価屈折率変化 $\overline{\Delta n^{KT}}$ を定量的に求めることを試みた。

波長を一定としたとき、複合材料の最大光透過率の温度 T' は、素材間の屈折率差が一致する温度 T^0 よりも低温側に現れた。このときの温度差 ($T^0 - T'$) は熱・残留応力による等価屈折率変化の影響であると考えられるため、複合材料内の熱・残留応力による等価屈折率変化 $\overline{\Delta n^{KT}}$ は 10^{-3} オーダーと見積もることができた。したがって、複合材料の光透過率を最大にするためには、熱・残留応力による屈折率変化 $\overline{\Delta n^{KT}}$ を考慮し、複合化後に屈折率差がゼロとなるような素材の選択が素材選択の指針であることが明らかになった。

第5章 幾何光学領域における光透過性に及ぼす粒子形態の影響

第4章では熱・残留応力を考慮した素材選択の指針を明らかにした。本章では粒子分散オプティカル複合材料の光透過率に及ぼす粒子形態として粒子寸法、粒子体積率の影響を調べ、光透過性を向上させるための粒子形態の指針を得ることを目的とした。このとき、粒子寸法は入射光波長より十分大きな幾何光学領域 ($d_p \gg \lambda$) とした。

粒子寸法 $d_p = 26 \sim 85 \mu\text{m}$ のガラス粒子を粒子体積率 $f_p = 0.0001 \sim 0.4$ の範囲で添加した複合材料を用い、室温において波長範囲 $\lambda = 200 \sim 1100 \text{ nm}$ の直線光透過率を測定した。

複合材料の光透過率は粒子体積率を一定とすると、全測定波長領域で粒子寸法が大きいほど光を透過しやすいことがわかった。さらに、粒子寸法の増大によって、光透過率の減少を抑えることが明らかになった。

さらに、複合材料単位体積中に含まれる全ての粒子の表面積の和を示す相対総表面積 $\langle S \rangle$ を導入することにより、粒子体積率と粒子寸法が光透過率に与える影響を統一的に解釈できることが明らかになった。この結果より、粒子寸法が入射光波長より十分大きな幾何光学領域 ($d_p \gg \lambda$) において、複合材料の光透過率を大きくするためには、 $\langle S \rangle$ を小さくするように、粒子寸法が大きく、球状に近い形状の粒子を選択することが粒子形態の指針であることが明らかになった。

第6章 最適条件による粒子分散オプティカル複合材料の作製

第5章までに得られた素材選択の指針及び粒子形態の指針を元に、大きな光透過率をもつ粒子分散オプティカル複合材料を作製することを目的とした。

素材はエポキシマトリックスとの屈折率差が最小 0.004 となるガラス粒子を選び、粒子形態は粒子寸法が $48 \sim 100 \mu\text{m}$ の球状粒子を用い、球状ガラス分散エポキシオプティカル複合材料を作製した。図1は得られた球状ガラス粒子分散オプティカル複合材料の外観を示したものである。粒子寸法が大きくなるほど、複合材料を透過して下の台紙の文字をはっきりと読み取れることが分かる。粒子体積率 $f_p = 0.1$ において、厚さ 1.5 mm でマトリックスの値の 80% 近い直線透過率を持つ粒子分散オプティカル複合材料を作製することができた。

第7章 総括

ガラス粒子分散エポキシ複合材料の光透過率に及ぼす光散乱要因の影響を調べることにより、大きな光透過率をもつ粒子分散オプティカル複合材料を作製するための指針として、次のような素材選択の指針と粒子形態の指針を得た。

- (1) 素材選択の指針としては、熱・残留応力による等価屈折率変化の影響を考慮し、複合化後の屈折率差がゼロに近い素材を選択すること。
- (2) 粒子形態による複合化指針としては、入射光波長よりも十分大きい、数十ミクロンオーダーの粒子寸法をもち、球形に近い形状の粒子を選択すること。

以上のような指針を元に、粒子体積率 $f_p=0.1$ において、マトリックスの対比で80%近い直線透過率を持つ粒子分散オプティカル複合材料を作製することが可能になった。

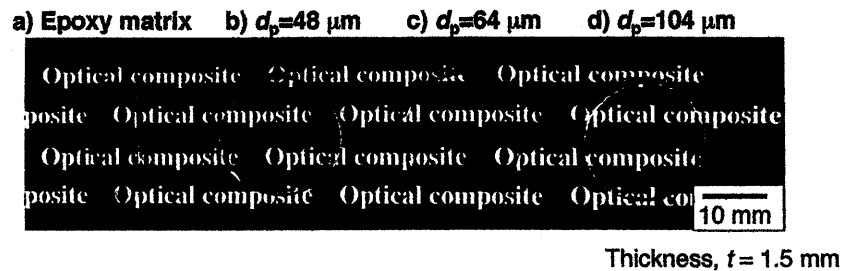


図1 球状ガラス粒子分散オプティカル複合材料の外観 ($f_p = 0.1$)