

Title	粒子サイズ制御を基盤とした超高分子量ポリエチレンの材料設計
Author(s)	天田, 晃平
Citation	
Issue Date	2026-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	<a href="https://hdl.handle.net/10119/20605">https://hdl.handle.net/10119/20605</a>
Rights	
Description	Supervisor: 谷池 俊明, 先端科学技術研究科, 博士

氏名	天田 晃平		
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 635 号		
学位授与年月日	令和 8 年 3 月 25 日		
論文題目	Materials Design of Ultra-High-Molecular-Weight Polyethylene Based on Particle Size Control		
論文審査委員	谷池 俊明	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	松見 紀佳	同	教授
	山口 政之	同	教授
	桶葭 興資	同	准教授
	田中 亮	広島大学	准教授

### 論文の内容の要旨

Ultra-high-molecular-weight polyethylene (UHMWPE) exhibits outstanding toughness, impact strength, wear resistance, and self-lubricating properties due to its ultra-high molecular weight above  $10^6$ . However, such an ultra-high molecular weight also results in high melt viscosity and poor melt flowability, limiting its processability in conventional techniques such as injection molding and extrusion molding. As a result, UHMWPE is commonly processed directly from reactor powder using compression molding or ram extrusion. In these methods, particle size has a significant effect on the mechanical properties. Commercial UHMWPE typically consists of macroparticles with average diameters of 80–300  $\mu\text{m}$ , and larger particles tend to result in incomplete particle fusion and interparticle voids during molding, which can deteriorate mechanical properties. Polymer composites with functional fillers can improve properties such as mechanical performance and conductivity. Since melt mixing is not viable for UHMWPE nanocomposites due to the high melt viscosity of the polymer, powder-state mixing is the only practical approach for preparing UHMWPE/filler mixtures. This method relies on simple physical mixing of the polymer particles and fillers, which often results in poor filler dispersion and incomplete coalescence of the polymer particles. These structural deficiencies have hindered the development of multifunctional UHMWPE-based composites. To address the aforementioned limitations, this thesis employs particle size control by introducing microfine UHMWPE synthesized using a nano-sized Ziegler-Natta catalyst. The microfine particles fill interparticle voids and promote particle fusion. The proposed approach establishes a strategy to control filler distribution, which in turn enhances the mechanical properties as well as electrical and thermal conductivities of UHMWPE nanocomposites.

**In Chapter 2**, UHMWPE composites with graphene nanoplatelets (GNP) were prepared using microfine particles with 1–2  $\mu\text{m}$  and the macroparticles. It was revealed that UHMWPE particle size governed the filler distribution and consequently the mechanical–electrical performance. The macroparticles induced segregated filler networks, achieving conductivity at low filler loadings but with poor mechanical properties, whereas the microfine particles enabled uniform filler dispersion and retained high strength even at higher loadings. A mixed matrix system with the microfine particles and the macroparticles achieved a favorable balance between mechanical performance and electrical conductivity, highlighting the role of UHMWPE particle size as a simple yet powerful design parameter.

**In Chapter 3**, the influence of sintering and drawing conditions was examined to further improve the mechanical properties of UHMWPE/GNP composites. Increasing sintering temperature effectively enhanced toughness without compromising conductivity, and high-temperature uniaxial drawing achieved an extension ratio of 38.2, demonstrating the superior interfacial fusion of the microfine particles and its potential for high-performance tapes and fibers.

**In Chapter 4**, the functionality of the microfine particles as a reinforcing and nucleating agent in polypropylene (PP) blends was investigated. The microfine particles enhanced PP crystallinity and stiffness through heterogeneous nucleation, establishing its versatility beyond UHMWPE-based systems.

In conclusion, this thesis establishes a materials-design strategy for UHMWPE and its composites based on particle size control, enabling control over filler distribution. This approach allows the fabrication of composites with well-balanced electrical, thermal, and mechanical properties. The findings provide fundamental insights into structure–property relationships in UHMWPE-based materials and propose a new design strategy for multifunctional polyolefin systems through particle size control.

**Keywords:** Ziegler-Natta catalyst, Ultra-high-molecular-weight polyethylene, Polymer nanocomposite, Particle size control, Conductivity

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、粒子サイズ制御を通じた超高分子量ポリエチレン (UHMWPE) の材料設計に関する研究成果をまとめたものである。

UHMWPE は直鎖状ポリエチレンであり、分子量が 100 万以上と極めて高いことから、優れた靱性、耐摩耗性、自己潤滑性および摺動性を示す。一方で、超高分子量に起因する熔融流動性の低さが大きな課題であり、成形加工は主として重合時に得られるポリマー粉末の圧縮成形に依存している。この際、粒子界面の融着不良が物性低下の主要因となる。近年では、UHMWPE とグラフェンやカーボンナノチューブ等の伝導性ナノフィラーとのナノコンポジット化が注目されているが、伝導性の向上と靱性低下との間に顕著なトレードオフが存在する。本研究は、触媒技術により粒径の異なる UHMWPE 粉末を創製し、その粒径および粒径分布を設計することで、UHMWPE 材料設計に新たな指針を与えることを目的としている。

第 2 章では、粒径約 70  $\mu\text{m}$  および 0.5  $\mu\text{m}$  という大きく異なる UHMWPE 粉末とグラフェンナノプレートとのナノコンポジット化について検討している。70  $\mu\text{m}$  粉末を用いた場合、フィラーが同スケールで偏析し、非常に高い電気伝導性を示す一方、粒子間の融着不良により靱性が著しく低下する。これに対し、0.5  $\mu\text{m}$  粉末を用いると、フィラー偏析のスケールが微細化し靱性は向上するが、十分な電気伝導性は得られない。そこで著者は、70  $\mu\text{m}$  および 0.5  $\mu\text{m}$  粉末を最適な比率で混合する「半偏析法」を提唱し、偏析挙動と粒子融着を同時に制御することで、伝導性と靱性を両立させる新たな設計手法を確立した。

第 3 章では、圧縮成形時の温度および時間がナノコンポジットの靱性に及ぼす影響を検討している。その結果、低温かつ長時間の成形条件が有効であることを明らかにした。さらに、半偏析法を

適用することで、従来のナノコンポジットと比較して約 2 倍の溶融延伸性を実現し、熱伝導テープや繊維材料への応用可能性を示している。

第 4 章では、UHMWPE 粉末を主ポリマーに対するフィラーとして用い、UHMWPE 由来の特性を他ポリマー材料に付与する研究を展開している。ポリプロピレンを主材とした系において、添加する UHMWPE 粉末の粒径が小さいほど、剛性および耐引っ掻き性が向上することを明らかにした。

以上のように、本論文は、UHMWPE 粉末の粒径および形態制御を通じて、これを用いた材料の物性改良が可能であることを実証したものである。本研究は、触媒技術による粉末設計を基盤とする点に独創性を有し、UHMWPE の材料設計に工業的応用可能な新たな指針を提示している。その学術的および工業的貢献は極めて大きく、よって本論文は博士（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られる。