

| | |
|-------------|--|
| 氏 名 | ふじた ゆうじ 藤 田 祐 二 |
| 学位(専攻分野) | 博 士 (学 術) |
| 学 位 記 番 号 | 博 甲 第 5 3 1 号 |
| 学位授与の日付 | 平成 21 年 3 月 25 日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第 3 条第 3 項該当 |
| 研究科・専攻 | 工芸科学研究科 先端ファイibro科学専攻 |
| 学 位 論 文 題 目 | ポリプロピレン/植物由来樹脂サンドイッチ成形体の界面構造形成と物性に関する研究 |
| 審 査 委 員 | (主査)教授 濱田泰以 客員教授 喜多泰夫 教授 高橋雅興 山形大学教授 井上 隆 准教授 小滝雅也 |

論文内容の要旨

本研究では、サンドイッチ射出成形法を用い、ポリプロピレン (PP) と植物化が可能なポリブチレンサクシネート (PBS) 樹脂の複合化に関する研究を行った。目標とするサンドイッチ成形体は、スキン材の PP が PBS をコア材として包含する構造体であり、PP が有する優れた特性を保持したまま、成形体の植物化度が向上できると期待される。サンドイッチ射出成形では通常、親和性の高いプラスチック同士の組み合わせでの検討が主であり、本研究対象の様に親和性が低い系での研究例は極めて少ない。このため、本研究のアプローチは、「優れた界面構造のコンセプト確立」、それを達成するための「構造制御指針の確立」、それによる「理想構造の達成」、さらには、「達成構造によるコンセプトの検証」とした。その上で、「構造に由来した各種機能発現の確認」を行った。以下に本論文の構成と得られた主な結果をまとめた。

第 1 章では、緒論として PP、および植物由来プラスチックの開発現状と課題、各種射出成形技術の研究動向をまとめ、本研究の目的と意義を述べた。第 2 章では、「優れた界面構造のコンセプトの確立」として、コア材の PBS に相溶化剤とともに PP 成分をアロイ化させ、少量の PP 成分で連続相を形成させたコア層モルフォロジーを提案した。これを達成する「構造制御指針の確立」のために、ポリマーアロイを構成するポリマー相の連続性を予測する下式で表される経験的なパラメータ () の利用を考えた。
$$\phi_c = \frac{1}{\phi_c^*} \frac{\eta_c}{\eta_p} \left(\frac{\eta_c}{\eta_p} \right)^{1/\phi_c^*}$$
 (η_i 、 ϕ_i は i 成分の熔融粘度と容積分率) この経験則の適用の妥当性は、剪断下での界面形成に関わる理論的な検討、および分子レベルでの相形成シミュレーション結果から証明した。

第 3 章では、「理想構造の達成」を目的として、を考慮した材料設計、成形加工条件による検討を行い、コア層中に添加された PP が理想的な連続相を形成するための以下の指針を導いた。(i) アロイ中の PP 含有量の増加、(ii) アロイ中 PP の MFR の増加、(iii) PBS の MFR の低下、(iv) コア層射出時の樹脂温度の低下、(v) コア層射出時の射出速度の高速化。以上の効果によるコア層内モルフォロジーの変化は、により定量的に予測し得ることも確認した。第 4 章では、「達成構造によるコンセプトの検証」を目的として、180 ° はく離試験によりスキン / コア界面強度の評価を行い、はく離強度が定量化されたコア層モルフォロジーの値、およびそれを制御するためのパラメータ と良く相関することを確認した。

第5章では、「構造に由来した各種機能発現の確認」として、実用特性の一つである耐スクラッチ特性の検討を行った。サンドイッチ成形体は、スキン材 PP の存在により PP 単体と同等で PBS や PP / PBS アロイより優れたスクラッチ特性を示した。しかしながら、スキン / コア界面強度が不十分な場合やスキン層が薄い場合、界面はく離が観察された。この結果はスクラッチ過程で発生した塑性ひずみが界面領域にまで影響した結果であることが偏光顕微鏡観察および有限要素法解析から確認された。第6章では、衝撃特性および化学的安定性の検討を行った。ノッチ付きアイゾット衝撃試験では、サンドイッチ成形体のスキン / コア界面強度に対し極大値が存在し、最適領域では PP、PBS、PP/PBS アロイを遥かに凌駕する衝撃強度を示した。スキン / コア層間のはく離がコア層中での複雑な破壊を誘発し、高い衝撃強度に繋がったと解釈された。化学安定性の観点で耐アルカリ性や耐候性の評価を行い、スキン PP がバリア層として機能し PP 単体と同様の優れた性能が得られることを確認した。

第7章では、本論文で得られた結果を総括し、結論とした。本研究では、PP / PBS 系のサンドイッチ射出成形技術を利用し、優れた特性を有する成形体の設計を可能にし、PP の植物化度向上を図ることに成功した。

論文審査の結果の要旨

親和性が低い二種類のプラスチック材料（ポリプロピレン（PP）、ポリブチレンサクシネート（PBS））のサンドイッチ射出成形において、「優れたスキン/コア界面構造のコンセプトおよび制御指針の確立」から「構造に由来した各種機能発現の確認」までを系統的に行ったことが本論文の特長である。具体的には、優れたスキン/コア界面強度を得るために、コア材の PBS に相溶化剤とともに PP 成分をアロイ化させ、少量の PP 成分で連続相を形成させたコア層モルフォロジーを提案し、それを得るための材料組成および成形条件に関する指針を明らかにした。さらに、得られたサンドイッチ成形体のスキン/コア界面強度を定量的に評価し、コンセプトの妥当性を実証した。

サンドイッチ成形体の実用特性として、スクラッチ特性、衝撃特性、耐薬品性および耐候性を評価し、本研究において得られたサンドイッチ成形体が優れた特性を有することを示した。これは、PP が PBS を包含した構造を形成したことに由来するものである。PP が有する特性を保持したまま、成形体の植物化度を向上できる手法を実証したことは、工業的にも重要であると考えられ、高く評価できる。

本研究で得られた成果は、PP の環境特性のさらなる向上や限られた石油資源の有効活用の観点から社会的に意義のある成果と考えられる。また、その設計に際し確立したコア層内のモルフォロジー制御による界面の設計指針は、PP/PBS の組み合わせに限らず、親和性が低いプラスチックを用いるその他のサンドイッチ射出成形にも適応でき、これを必要とする様々な分野での利用が期待できる。

本論文の基礎となっている学術論文は、レフェリー制度の確立した雑誌に4篇が報告されている。全て申請者が筆頭著者である。

- (1) Y. Fujita, T. Yoshida, H. Sano, M. Kotaki and H. Hamada, Sandwich injection molding of polypropylene and biodegradable polymer, Society of Plastics Engineers, Proceeding of Annual

Technical Conference 2007, pp748-751 (2007) .

- (2) Y. Fujita, T. Yoshida, H. Sano, N. Aoki, M. Kotaki and H. Hamada, Structure and interfacial adhesion of PP/PBS sandwich injection moldings, Society of Plastics Engineers, Proceeding of Annual Technical Conference 2008, pp105-108 (2008) .
- (3) Y. Fujita, N. Aoki, T. Yoshida, H. Sano and M. Kotaki, Core morphology of PBS alloys and properties of PP-based sandwich injection moldings, Society of Plastics Engineers, Proceeding of Annual Technical Conference 2009, 印刷中 (2009) .
- (4) Y. Fujita, T. Yoshida, H. Sano, N. Aoki, M. Kotaki and H. Hamada, Sandwich injection moldings of polypropylene and biodegradable polymer, Polymer Engineering and Science (accepted).

以上の結果より，本論文の内容は十分な新規性と独創性，さらに学術的な意義があり，博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。