

氏 名	きたの かつひさ 北野 勝久
学位(専攻分野)	博 士 (学 術)
学 位 記 番 号	博 甲 第 6 1 1 号
学位授与の日付	平成 23 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	工芸科学研究科 先端ファイブ科学専攻
学 位 論 文 題 目	メタロセン系ポリエチレン／ポリプロピレン多層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 教授 木村照夫 教授 西村寛之 准教授 小滝雅也 住友化学株式会社上席研究員 北山威夫

論文内容の要旨

単体の高分子材料で発現できる特性には限界があるため、高性能化を目指して異種高分子材料を組み合わせた複合化の研究開発が盛んに行われてきた。高性能化を実現するための最も重要な技術課題は、複合化における界面制御である。異種高分子の界面構造形成は、高分子鎖の拡散・貫入挙動に、さらに結晶性高分子の場合には、冷却／固化時の結晶化挙動にも依存する。

本研究では、ポリエチレン (PE) およびポリプロピレン (PP) を用い、異種高分子材料の界面構造形成機構を明らかにすることを目的とした。具体的には、チーグラ・ナッタ 系 PE (zPE)、密度の異なるメタロセン系 PE (mPE) を用い、成形法および成形条件を変化させることにより、PE/PP 界面構造形成挙動に及ぼす相溶性および分子運動性の影響について検討を行った。

第 1 章では、緒論としてポリオレフィン系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、ヒートシール法において、界面構造形成に及ぼすヒートシール温度の影響について検討を行った。PP の融点以下の温度領域において、mPE の界面強度は zPE よりも高くなること、mPE の密度の低下、すなわち相溶性の向上により界面強度が増加することを示した。また、ヒートシール温度の増加にともない、mPE の界面強度が増加することがわかった。これらの挙動は、PP (固相) の非晶相の分子運動性と関連があることを明らかにした。

第 3 章では、サンドイッチ成形法において、熔融／熔融状態における界面構造形成挙動を検討した。PE/PP の相溶性および分子運動性の増加により、界面におけるラメラ貫入深さが増加することを明らかにした。ラメラ貫入深さと界面強度には相関があり、ラメラ貫入深さの増加にともない界面強度が高くなることが示された。

第 4 章および第 5 章では、フィルムインサート成形法において、固体／熔融状態における界面構造形成挙動を検討した。サンドイッチ成形法の場合と同様、相溶性および運動性の増加により、ラメラ貫入深さが増加することを示した。また、ラメラ貫入深さと界面強度には相関があることがわかった。第 3 章 (サンドイッチ成形法) との比較により、ラメラ貫入深さおよび界面強度は、成形法の影響を受けないことが明らかとなった。すなわち、熔融/熔融界面および固体/熔融界面のいずれにおいても、ラメラ貫入深さは数十 nm と等しくなり、同等の界面強度が発現することを

示した。

第6章では、PE/PP 多層成形体の実用性能評価として、フィルムインサート成形品のスクラッチ特性について検討を行った。その結果、スクラッチ特性と界面強度の関係を明らかにし、多層成形体のスクラッチ特性向上のための指針を示した。

第7章では、本論文で得られた結果を総括し、以下の通り結論としてまとめた。

本研究で得られた成果は、高性能 PE/PP 複合成形体の開発に貢献するだけでなく、その他の異種高分子複合成形体の材料設計および新規材料開発にも貢献することが期待される。

論文審査の結果の要旨

異種高分子材料の界面構造形成に及ぼす相溶性および分子運動性の影響について、異なる成形法を用いて系統的に検討を行ったことが本論文の特長である。具体的には、チーグラ・ナッタ 系 PE (zPE)、密度の異なるメタロセン系 PE (mPE) をモデル試料として用い、ヒートシール法、サンドイッチ成形法（溶融/溶融界面）およびフィルムインサート成形法（固体/溶融界面）により検討を行った。その結果、相溶性および分子運動性の増加により、界面におけるラメラ貫入深さが増加することを明らかにした。界面強度とラメラ貫入深さには相関があり、ラメラの貫入深さの増加により界面強度が増加することを示した。さらに、溶融/溶融界面および固体/溶融界面のいずれにおいても、ラメラ貫入深さは数十 nm と等しくなり、同等の界面強度が発現することを示した。

本研究で得られた成果は、異種高分子材料の界面構造形成に関わる知見として学術的に意義があると考えられる。また、異種高分子材料界面の構造および強度の制御法を示したことは、工業的にも重要であり、高く評価できる。本研究は、高性能 PE/PP 複合成形体の開発に貢献するだけでなく、その他の異種高分子複合成形体の材料設計および新規材料開発にも貢献することが期待できる。

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掲載および投稿中である。4 篇全てにおいて申請者が筆頭著者である。

- (1) K. Kitano, T. Kitayama, M. Kotaki, H. Hamada. Interfacial Strength of Metallocene-PE/PP heat sealed films, Society of Plastics Engineers, Proceeding of Annual Technical Conference 2008, pp. 1360-1363 (2008).
- (2) K. Kitano, T. Kitayama, M. Kotaki, H. Hamada. Interfacial Strength and Scratch Resistance of Metallocene PE Film Inserted PP Injection Molded Parts, Society of Plastics Engineers, Proceeding of Annual Technical Conference 2009, pp. 2069-2072 (2009).
- (3) K. Kitano, T. Kitayama, M. Kotaki. Adhesion Behavior of Metallocene-PE/PP Heat Sealed Films, Journal of Applied Polymer Science (Submitted).
- (4) 北野勝久, 古賀将太, 北山威夫, 小滝雅也、メタロセン系 PE フィルムインサート PP 射出成形品の界面特性とスクラッチ挙動、成形加工 (投稿中)

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。