

論文内容要旨（和文）

平成21年度入学 博士後期課程

専攻名 物質生産工学専攻

氏 名 松本 浩司



論文題目 ポリプロピレン／ポリカーボネートブレンドの高性能化に関する研究

近年、プラスチック材料ニーズは高機能化と低コスト化の二極化が進んでおり、両面での開発が求められている。ポリプロピレン（PP）とポリカーボネート（PC）とのアロイは安価であり、かつ低比重、高耐薬品性、高流動性、高耐熱性など高機能材料としても有望であるが、これまで開発が進んでいない。その理由として、PPとPCの溶融粘度や極性が大きく異なることから、微分散化できず、物性が大きく低下することが挙げられる。そこで本研究では、PP/PCブレンドの相構造を制御し、高性能化させることを目的とした。ここでは、PP/PCブレンドの構造を制御して高性能化させるため、混練条件の最適化によるPC粒子の微分散化、相容化剤によるコアシェル構造の形成、反応性可塑剤を用いた微分散化とコアシェル構造の形成による高性能化を目指した。本論文は全5章から構成され、各章の概要は以下のとおりである。

第1章では、本研究の背景として、PP/PCブレンドのこれまでの取り組みおよび開発動向を述べ、本研究の目的に言及している。

第2章では、二軸押出機における混練条件を検討しており、スクリュー回転数、スクリュー構成、押出量、バレル温度など、変更できるものすべてを変えて実施した。その結果、サブミクロン～数ミクロンレベルの分散を達成した。これは従来の分散レベルと比較して分散性は良好であったが、引張や衝撃特性を大きく向上させることはできず高性能化には至らなかった。

第3章では、コアシェル構造の形成を目指し、(1)界面修飾剤4種、(2)反応性相容化剤3種、(3)PP、PC双方に親和性のよいスチレンーエチレン・ブチレンースチレンブロック共重合体（SEBS）を検討した。その結果、(1)、(2)によって高性能化は達成できなかつたが、(3)により、高延性・高耐衝撃性PP/PCアロイの開発に成功した。また、(3)の手法はPC含量を40wt%まで増やしても、延性・耐衝撃性を損なうことなく、更なる耐熱性の向上に成功した。このブレンド系では、SEBSがPPマトリックス中に細かい粒子（直径約100nm）として分散するのとともに、PPマトリックスとPC粒子の間で界面層となってコアシェル構造を形成していることがわかった。また、有限要素法（FEM）解析から、PC粒子の周りをSEBSのようなシェルが覆うことによって、PC粒子の中心部に応力が集中することがわかった。これらのことから、PP/PCブレンドにSEBSを添加することによってコアシェル構造が形成されたため、PC内部へ強い応力が伝わり、PP中でも硬い粒子（PC）が容易に塑性変形し、高い延性と耐衝撃性を示したと推察された。

第4章では、PC粒子の微分散化とコアシェル構造の形成を目指し、反応性可塑剤を用いて検討した。反応性可塑剤とは選択的にPC相に溶解し、その後高分子量化するような可塑剤であり、PCの溶融粘度を下げることによってPPとPCの粘度のミスマッチを解消してPC粒子を微分散させるとともに、PC中で高分子量化することでミクロ相分離構造の形成およびPP/PC界面でグラフト共重合体を形成させることを狙っている。結果は、意図した通り、反応性可塑剤としてジアリルフタレートを用いると、PCの微分散化とPP/PC界面でのグラフト共重合体の形成により、高延性と高耐熱性を兼ね備えたアロイの開発に成功した。また反応性可塑剤として3官能性のトリアリルシアヌレートを用いることで、反応速度

が速くなり、未反応成分が更に減少した結果、更なる高耐熱化にも成功した。

第5章では、第2章から第4章の結果を本論文の総括として纏めた。相構造を制御し、高性能PP/PCアロイを創製すべく、混練条件、相容化剤および反応性可塑剤を検討した結果、PPとPCの界面を効果的に強化することによって高性能化できることを明らかとした。また、本研究の内容はこれまで相容化させることが難しいと考えられてきた他のブレンド系の高性能化においても、有用な指針となることが期待できると結論付けている。

(注) ① タイプ、ワープロ等を用いてください。10pt 2,000字程度（2頁以内）とします。

② 論文題目が英文の場合は、題目の下に和訳を（ ）をして併記してください。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成25年 8月 5日

理 工 学 研 究 科 長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 伊藤 浩志

副査 小山 清人

副査 滝本 淳一

副査 川口 正剛

副査

副査



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

1. 論文申請者

専攻名 物質生産工学
氏名 松本 浩司

2. 論文題目（外国語の場合は、その和訳を併記する。）

ポリプロピレン／ポリカーボネートブレンドの高性能化に関する研究

3. 審査年月日

論文審査 平成25年 7月24日～平成25年 8月 2日
論文公聴会 平成25年 8月 2日
場所 工学部 中示範C教室
最終試験 平成24年 8月 2日

4. 学位論文の審査及び最終試験の結果（「合格」・「不合格」で記入する。）

(1) 学位論文審査 合格
(2) 最終試験 合格

5. 学位論文の審査結果の要旨（1,200字程度）

別紙のとおり

6. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

別 紙

専攻名	物質生産工学	氏名	松本 浩司
学位論文の審査結果の要旨			
本論文は、ポリプロピレン (PP) / ポリカーボネート (PC) ブレンドの問題であった物性低下を克服することで、近年の高度な要求に耐えうる高機能な材料を創出することを目的とした内容である。全 5 章から構成され、各章の概要は以下の通りである。			
第1章では、本研究の背景として、PP/PCブレンドのこれまでの取り組みおよび開発動向を述べ、本研究の目的に言及している。			
第2章では、二軸押出機における混練条件を検討しており、スクリュー回転数、スクリュー構成、押出量、バレル温度など、変更できるものすべてを変えて溶融混練実験を実施している。その結果、分散性を改良できる混練条件を見出しているが、引張や衝撃特性を大きく向上させることはできず、単なる混練条件の選定によっては高性能化を実現できないとの結論に至っている。			
第3章では、コアシェル構造を形成させることを目指して、(1)4種類の界面修飾剤、(2)3種類の反応性相容化剤、(3)PP、PC双方に親和性のよいスチレンーエチレン・ブチレンースチレンブロック共重合体 (SEBS) の添加を検討している。その結果、(3)の手法により、高韌性PP/PCアロイの開発に成功している。このブレンド系では、期待通り、SEBSがPPマトリックスとPC粒子の間で界面層となってコアシェル構造を形成していることを明らかにしている。また、有限要素法解析から、PC粒子の周りをSEBSのような軟質シェルが覆うことによって、PC粒子の中心部に応力が集中することを明らかにしている。すなわち、コアシェル構造の形成により、PC粒子への効果的な応力伝達が可能となり、これによってPC粒子の塑性変形が容易となり、高韌性化を達成できたことを明らかにしている。			
第4章では、反応性可塑剤を用いてPC粒子の微分散化と界面でのグラフト共重合体の生成を図ることによる高性能化を目指している。ここでの反応性可塑剤とは、選択的にPC相に溶解し、PCの溶融粘度を下げることによってPPとPCの粘度のミスマッチを解消してPC粒子を微分散させるとともに、PC中での高分子量化と界面でのグラフト共重合体の形成を期待したものである。微分散化については顕著な効果は見られなかったが、後者のグラフト共重合体の生成により高延性に成功している。反応性可塑剤として2官能性のものよりも3官能性のトリアリルシアヌレートを用いると、高延性化とともに高耐熱化もできることを明らかにしている。高延性化のメカニズムとして、界面グラフト共重合体の生成により、伸長方向での界面接着力が向上するために、PC粒子の赤道位での圧縮応力に加えて極位での伸長応力が有効に伝達されてPC粒子の塑性変形が可能になったと推論している。			
第5章では、本研究を総括している。相構造を制御し、高性能 PP/PC アロイを創製すべく、混練条件、相容化剤および反応性可塑剤を検討した結果、PC 粒子に効果的に応力を伝達する仕掛けを作ることによって高性能化可能と纏めている。また、本研究の内容は、これまで相容化させることが難しいと考えられてきた他のブレンド系についても応用展開でき、有用な指針となるはずであると結論付けている。			
本研究の成果は、2報の学術論文（英文1報）と1報の技術報告としてまとめられており、2報が掲載済み、1報は掲載が決定している。国際学会では1件の発表を行っている。成果公表についても十分満足できるものである。			
以上を総合的に判断し、本論文に関する研究およびその成果は、博士（工学）学位論文の研究としての水準を満足しているため、合格と認定する。			
最終試験の結果の要旨			
本学の規定に従い、本論文および関連分野に関して口頭により最終試験を行った。最終試験は、学位論文を中心とした 60 分の口頭発表、ならびに 30 分の質疑応答により実施した。その結果、学位論文の内容ならびに関連分野に関する理解度は十分にあり、博士として必要とされる専門知識および研究能力を十分に備えているものと判断し、合格と判定した。			