

論文内容要旨（和文）

2019年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏名 劉承穎

印

論文題目 Study on creation of UHMWPE-based composites obtained by using novel octa-screw extruder system.

(新規8軸押出機によって得られたUHMWPE系複合材料の創製に関する研究)

8軸スクリュー溶融混練押出機 (OSE)とは、8本のスクリューを有する共軸回転型かつ完全インターメッシュ型の多軸押出機である。従来の2軸スクリュー溶融混練押出機 (TSE)より、せん断力が高く滞留時間が長いため、せん断ひずみ量を大幅に付与することが可能である。さらにスクリューの高速回転による溶融混練では、せん断発熱を抑えることができるため材料の熱劣化を抑制しながらフィラーを高分散させることができるとされる。一方、超高分子量ポリエチレン (UHMWPE)のナノコンポジットの混練は、マトリクスが高分子量であるため溶融粘度が非常に高く、流動性が悪いことが課題となっている。ナノフィラーによる高機能化を達成するためには、ナノフィラーの凝集を抑制しマトリクス内で高分散させることが不可欠である。ポリエチレンマトリクス中にナノフィラーを効果的に分散させるためには、その材料の組成および調整方法の最適化が重要な役割を果たす。これまで UHMWPE マトリクス中にフィラーを高分散させる方法として超音波処理法およびボールミル法、押出法が採用されてきたが、UHMWPE 単体と比較して構造特性の向上が見られない。さらに市販の UHMWPE の殆どは粉末状態で提供されているため、ペレット用に設計されている通常の押出機では複合材料の調整が困難である。

本論文では、UHMWPE ベースのナノコンポジットの創製に関して、OSE を用いた多軸溶融混練プロセスおよび樹脂の溶融混練メカニズム、ブレンド割合やフィラーが最終物性に及ぼす影響を調査した。これらの内容を含めて第一章から第六章で論文を構成した。その内容について以下に述べる。

第一章 諸言

第一章では、近年のプラスチック材料の高機能化や多機能化に伴う技術的な課題やプラスチック工業の拡大に伴う社会的な課題について述べ、新規なプラスチック材料の開発の重要性を説明した。またプラスチック材料の加工法の一つである押出機を用いた押出プロセスに関する研究事例についてまとめ、既存の押出機の技術的課題と新規プロセスである「8軸スクリュー溶融押出機」のメカニズムについて説明し、本研究を実施するまでの背景とした。

第二章 8軸スクリュー溶融混練押出機の実験的検討および数値的シミュレーション

第二章では、OSE と TSE の違いについて、異なる配合比での熱安定性と滞留時間分布を実験的データと数値的シミュレーションの両面から詳細に調べた。さらに加工中の押出機内の流動挙動の違いについても調査した。本章では、OSEの方がTSEよりもせん断発熱が約10°C低く、滞留時間が約2倍長いことが分かった。またTSEの方がOSEよりも押出機内の充満率が約1.5倍

高いことが明らかになった。

第三章 8軸スクリュー溶融混練押出機および2軸スクリュー溶融混練押出機による高密度ポリエチレン/グラフェンナノコンポジットの作製および特性評価

第三章では、OSEとTSEを用いて、高密度ポリエチレン(HDPE)/ナノグラフェン複合材料を作製し、機械的特性および高次構造解析を実施した。ナノフィラーの分散性は、熱分析および内部形態、破壊韌性の観点から調査した。OSEの方がTSEよりも凝集体の割合が大幅に少なくフィラーのアスペクト比が保たれた。またグラファイトの充填量が増加するとHDPEマトリクスの結晶化度および複合材料の熱分解温度が増加した。OSEを用いることでナノコンポジットの機能性を最適化できることが明らかになった。

第四章 8軸スクリュー溶融混練押出機による超高分子量ポリエチレン/グラファイト複合材料の作製および特性評価

第四章では、OSEを用いてUHMWPEと3種類のグラファイトフィラー複合材料を創製し機械的特性および高次構造評価を実施した。グラファイトを充填すると耐摩耗性は低下するが、表面硬度および引張特性が向上することが明らかになった。

第五章 8軸スクリュー溶融混練押出機による超高分子量ポリエチレン/グラフェンナノコンポジットの作製と特性評価

第五章では、OSEを用いてUHMWPEと2種類のグラフェンナノフィラー複合材料を創製し機械的特性および高次構造評価を実施した。形態観察よりナノフィラーの著しい凝集体は見られず均一に分散している様子が確認できた。OSEによる優れた混練能力が示された。グラフェンを充填するとUHMWPEの結晶化度および表面硬度、親水性は増加し、熱分解温度が向上することが分かった。またサイズが小さいグラフェンを充填すると大きいサイズを充填した場合よりも耐摩耗性が優れていた。よりサイズが小さいグラフェンを用いることで高機能材料を創製できることが明らかになった。

第六章 総括

第六章では、以上の章をまとめ、本研究の総括を述べた。

論文內容要旨（英文）

2019年度入学 大学院博士後期課程

有機材料システム専攻

氏名 劉承穎 印 

論文題目 Study on creation of UHMWPE-based composites obtained by using novel octa-screw extruder system.

(新規8軸押出機によって得られたUHMWPE系複合材料の創製に関する研究)

Octa screw kneading method is a fully inter-meshed co-rotating process with a greater number of kneading screws than the twin screw extruder, which provides excellent mixing and compounding capability. This thesis has investigated the octa-screw extrusion process, both experimentally and numerically, and assessed the flow behavior in the extruder. First, this thesis investigates the mixing and compounding of graphite filled UHMWPE composites and evaluates their engineering properties and internal morphology. The SEM photos of the prepared nanocomposites demonstrates the excellent capability of the octa-screw extruder in compounding the graphite filled composites. The yield strengths of the composites increase by 10% with the addition of 2% graphite, while the crystallinity of UHMWPE composites increase with the content of graphite fillers. In addition, the pyrolysis temperature of the composites increases with the content of graphite fillers.

Secondly, this thesis investigates the blending of UHMWPE nanocomposites with two types of graphene fillers using octa-screw kneader extrusion process. The results of microscopy studies suggest the crystallinity of UHMWPE/graphene composites increases from 56% to 67% with the addition of graphene. The yield strength increases by 18% with the addition of 1.5% 8 nm graphene, while the elongation at break increases by 20.8% with the addition of 0.5 wt% 60 nm graphene. Incorporation of 0.5 % and 1.0% 8 nm graphene filled composites shows superior wear resistance as compared to pure UHMWPE. Graphene filled UHMWPE nanocomposites show no signs of cytotoxicity.

Thirdly, this thesis explores the octa-screw extrusion process, both experimentally and

氏 名 劉承穎

numerically, and assesses the degree of fill, residence time distribution (RTD), and temperature profile in the extruder. A numerical code, based on a reconstructed flow analysis network (FAN) scheme, the Hele-Shaw flow model, finite element method, and a down-wind pressure updating technique, is developed to simulate the octa-screw screw extrusion process. The empirical outcomes suggest that the simulation results are in good agreement with experimental measurements.

Experimental and numerical investigations of an octa-screw extruder enable the detailed comprehension and visualization of resin distribution in the entire length of the octa-screw extruder, thus providing advantages in terms of process optimization.

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

令和 4 年 2 月 7 日

有機材料システム研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 伊藤 浩志

副査 杉本 昌隆

副査 松葉 豪

副査 落合 文吾

副査



印

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

| | | | |
|----------|---|---------|------------------------------------|
| 論文申請者 | 有機材料システム専攻 氏名 劉 承穎 | | |
| 論文題目 | Study on creation of UHMWPE-based composites obtained by using novel octa-screw extruder system (新規 8 軸押出機によって得られた UHMWPE 系複合材料の創製に関する研究) | | |
| 学位論文審査結果 | 合格 | 論文審査年月日 | 令和 4 年 1 月 31 日～ 令和 4 年 2 月 7 日 |
| 論文公聴会 | 令和 4 年 2 月 7 日 | 場所 | 工学部 GMAP 4-406 教室 |
| 最終試験結果 | 合格 | 最終試験年月日 | 令和 4 年 2 月 7 日 |

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

本論文では、新規 8 軸スクリュ溶融混練押出機 (OSE) を用いた超高分子量ポリエチレン (UHMWPE) ベースのナノコンポジットの創製に関して、多軸溶融混練プロセスの溶融混練メカニズム、ブレンド割合やフィラーが最終物性に及ぼす影響を考察し、材料の機能の発現メカニズムについて新たな知見を得た内容であり、全 6 章で構成されている。

第 1 章では、序論として本研究の背景と目的および本論文の構成が述べられている。

第 2 章では、従来手法である 2 軸スクリュ溶融混練押出機 (TSE) と OSE の違いについて、実験データと数値解析の両面から詳細に述べられている。異なる配合比での熱安定性と滞留時間分布、加工中の流動挙動について調査されており OSE の方が、TSE よりもせん断発熱が低く、滞留時間が長いことを明らかにしている。

第 3 章では、高密度ポリエチレン (HDPE) とグラフェンナノコンポジットの特性に関して加工方法の違いが及ぼす影響について述べられている。OSE を用いると TSE よりもフィラーのアスペクト比を維持すること、フィラーの凝集を抑制し、力学特性が優れることを明らかにしている。

第 4 章では、OSE と 3 種類のグラファイトフィラーを用いて UHMWPE との複合材料を作製し、グラファイトの添加が複合材料の特性に及ぼす影響について述べられている。グラファイトを添加すると耐摩耗性が低下するが、表面硬度および引張特性が向上することを明らかにしている。

第 5 章では、OSE と 2 種類のグラフェンナノフィラーを用いて UHMWPE との複合材料を作製し、グラフェンの添加が複合材料の特性に及ぼす影響について述べている。グラフェンを添加すると結晶化度、表面硬度や親水性が増加し、熱分解温度が向上することが認められた。さらに、サイズがより小さいグラフェンを添加した場合、大きいサイズのグラフェンを添加した場合よりも耐摩耗性が優れていた。

本学位論文は、新規 8 軸押出機を用いた多軸溶融混練プロセスが、高機能複合材料の作製に有用であることを示し、実験データおよび数値解析の両面から機能発現についてまとめている。研究背景および目的が的確に述べられ、論文構成も適切で体裁も整っている。さらに、各章の研究内容について目的やその取り組み方、結果に対する考察やその記述も論理的になされており、設定した研究テーマに沿った明確な結論が述べられている。研究テーマの新規性・独自性については、査読付きの英語学術誌に 2 報が掲載済みとなっており、本研究に対して客観的な評価が得られている。また、これまで国際学会で 7 件、国内学会で 5 件の研究発表を行なっている。本学位論文は学位論文審査基準（大学院有機材料システム研究科博士後期課程）を満たしており、合格と判定した。

本論文は、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ありません。

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であり、博士の学位を授与するのに十分な知識と能力を有していると判断し、合格と判定した。