

論文内容要旨（和文）

平成26年度入学 大学院博士後期課程

有機材料工学 専攻 機能高分子 分野

氏 名 立石 純一郎



論文題目

ワンショット法化学発泡成形プロセスにおける気泡構造形成メカニズムに関する研究

ワンショット法によるポリエチレンの化学発泡成形は、化学発泡剤（以下発泡剤）の熱分解ガスによりコンパウンドを発泡させる成形法である。本成形プロセスにおいては、コンパウンドの粘弾性や成形条件が気泡構造形成に影響を及ぼすものと推測されるが、未だそのメカニズムは明らかになっていない。そこで本研究では、成形プロセスで生じる現象を直接的に評価、観察することにより、その気泡構造形成のメカニズム解明を試みた。具体的には、本成形プロセスの特徴的な材料である発泡剤に着目し、成形プロセス中の型内圧力計測を介してその熱分解挙動を評価した。次に、成形プロセスにおける型内の可視化を試み、型内状態と発泡剤の熱分解挙動との対応を検討した。得られた結果から、さらには、本成形法における気泡構造形成の支配因子のひとつとして発泡剤の粒子径と粒子数に着目し、それらが気泡構造におよぼす影響を検討した。最後に、本検討で得られた発泡体を用い、気泡構造の差異が材料の機械的性質に及ぼす影響を検討した。本論文は全6章で構成され、各章で得られた知見は以下に示すものである。

第1章では、ワンショット法化学発泡成形に関わる既往の研究について概説した後、本研究の目的を明確にした。

第2章では、型内圧力を介して発泡剤の熱分解挙動をin-situ測定し得るシステムを構築し、発泡剤やその分解助剤の添加量が型内圧力に及ぼす影響を評価し、気泡構造との対応を検討した。その結果、発泡剤の添加量や発泡剤分解助剤の添加量が型内圧力の時間変化に及ぼす影響を明らかにした。型内圧力と発泡体の気泡構造との関係に関しては、発泡試料の発泡倍率は発泡時点での型内圧力と一定の関係を有すること、および、発泡試料の気泡径は発泡剤や分解助剤の添加量に影響されないことを明らかにした。さらには、発泡試料から推算される未発泡試料に形成される気泡核数密度は、発泡剤添加量に強く依存し、発泡剤粒子自体が発泡核となり得ることが示唆された。発泡剤の分解助剤である酸化亜鉛は発泡核剤としての効果が小さいことも明らかになった。

第3章では、気泡構造形成の過程を実験的に明らかにすべく、X線透過観察法を利用した可視化装置の構築を試みた。検討の結果、発泡剤の熱分解によって発生したガスにより、成形プロセスにおける型内に既に気泡構造が形成されることを確認した。発泡剤熱分解反応の進行とともに気泡は成長したことから、ADCAの熱分解ガスは気泡構造内に保持されることが示唆された。構築したシステムの空間分解能では、気泡の合一、消滅は確認されなかった。これらのことから、先行研究の結果をも考慮すれば、ワンショット法化学発泡成形においては発泡剤粒子自体が気泡核となることが示唆された。

第4章では、気泡構造を決定する支配因子のひとつとして発泡剤の特性に着目した検討を行なった。具体的には、発泡剤の粒子径、および、粒子数を変化させて発泡体を成形し、成形プロセスにおける型内圧力と気泡構造に及ぼす影響を検討した。その結果、発泡剤の粒子径が小さくなるに従い、熱分解開始時間、および、熱分解速度は大きくなることがわかった。これは、発泡剤の比表面積が増大することで分解助剤との接触確率が増大したことに起因する。発泡成形終了時点の型内圧力は、発泡剤の粒子径には影響されず、添加量に対し直線的に増大した。これは、型内圧力は発泡剤熱分解ガスの総量により決定され、粒子径には影響されないことを意味している。発泡試料の気泡構造は、発泡剤粒子が小さくなるに従い発泡試料の気泡径は小さくなった。発泡試料から推算した未発泡試料中に形成される

気泡核数密度は、未発泡試料にて実測した発泡剤粒子数密度と直線関係を示したことから、発泡剤粒子自体が気泡核となることを示唆した。また、発泡剤粒子数密度と気泡核数密度との比例係数は、発泡剤の粒子径が小さくなるに従い小さくなった。この一因として、粒子径が小さい発泡剤の熱分解時には、発泡剤周囲に存在する基材の架橋反応進行が不十分であり、型内での気泡形成時において気泡合一が進行した可能性が示された。

第5章では、気泡径、および、発泡倍率を変化させた発泡試料の一軸伸長変形、および、一軸圧縮変形下における応力-ひずみ特性を取得し、発泡体の気泡構造が機械的性質におよぼす影響を評価した。検討の結果、一軸引張試験における発泡試料の破壊強度、破壊ひずみ、および、破壊ひずみエネルギーは気泡径の肥大化とともに低下することが明らかになった。これは、気泡径の肥大化が引張応力による気泡壁へのき裂の発生、および、進展を促進するものと考えられる。気泡径の差異は圧縮変形下における応力-ひずみ特性には影響を及ぼさなかった。

第6章では、本研究にて得られた知見を総括した。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

2017 年 2 月 13 日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 杉本昌隆 印

副査 スクマラン サティシュ K. 印

副査 川口正剛 印

副査 伊藤浩志 印

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	有機材料工学専攻・機能高分子分野			氏名	立石 純一郎
論文題目	ワンショット法化学発泡成形プロセスにおける気泡構造形成メカニズムに関する研究				
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	2017 年 1 月 25 日～ 2017 年 2 月 6 日		
論文公聴会	2017 年 2 月 6 日	場 所	工学部 GMAP センター406 会議室		
最終試験結果	合格	最終試験年月日	2017 年 2 月 6 日		

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

第 1 章では、研究の背景として、ポリエチレンのワンショット法化学発泡成形プロセスについて概説し、それにより得られた発泡体の適用事例や、将来にわたる産業上の発展の可能性を述べるとともに、気泡形成メカニズムに関する既往研究の課題と本研究の目的を述べている。

第 2 章では、発泡成形プロセスにて生じる化学発泡剤の熱分解挙動を、型内圧力を介して in-situ 測定し得るシステムを構築し、化学発泡剤やその分解助剤の添加量が型内圧力に及ぼす影響を評価している。化学発泡剤粒子自体が気泡核となることを示唆している。

第 3 章では、X 線透過観察法を利用した可視化装置の構築と観察を遂行し、発泡成形プロセスの直接的な評価を行っている。化学発泡剤の熱分解によって発生したガスにより、プロセス中の型内では既に気泡構造が形成されることを確認し、物理発泡法のようなガス溶解と気泡核生成を伴う気泡構造形成メカニズムとは異なることを示している。

第 4 章では、化学発泡剤の粒子特性に着目し、未発泡コンパウンド中に分散する化学発泡剤の粒子径と粒子数とが気泡構造に及ぼす影響を量的に検討している。発泡剤の粒子数密度と気泡核数密度とが比例関係にあることを示し、その比例係数と発泡剤粒子径との関係から、発泡剤が分解する時点でのマトリックスの弾性率が気泡合一に影響をおよぼすことを示唆した。

第 5 章では、気泡径・発泡倍率が材料の引張・圧縮変形下における機械的性質に及ぼす影響を評価している。得られた応力-ひずみ特性について、既往研究のモデルとの対比を行なうとともに、気泡径が破壊靱性に及ぼす影響を評価し、気泡の微細化が機械的性質の向上に及ぼす有用性を示している。

第 6 章では、各章にて得られた知見を総括し、本発泡成形プロセスにおける気泡構造形成メカニズムを示した。

これらのことから、本論文はこれまで明らかにされなかったワンショット法化学発泡成形プロセスにて生じる現象を直接的に評価、観察した上で、それらを踏まえた気泡構造形成メカニズムを提案しており、本発泡成形法によるプロセス設計の指針となりうるものである。これら内容を含んだ研究の成果は、論文 2 報（うち英語論文 1 報）の掲載が決定されていると共に、国際学会においても口頭発表がなされており、審査基準を満たしている。以上の通り、本論文は学術的、工業的に価値ある知見を多く含んでおり、博士論文として十分なものと認め合格と判断した。

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、口頭により本論文とそれに関連する分野に対して最終試験を行なった。本学位申請者は博士に値する基礎学力と英語力を有しており、未解決の課題に対して自らの思考により実験を計画、実行した上で学術的に考察する能力を有すると審査員一同が認めた。よって、博士（工学）の学位授与に関する最終試験に合格と判定した。