

論文内容要旨 (和文)

平成29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 黒田 真一



論文題目

自動車用ポリプロピレンの射出成形における表面微細転写性に関する基礎研究

近年の自動車向け樹脂材料において、代表的なプラスチック部品であるバンパーやインストルメントパネルの多くはポリプロピレン(PP)を用いた射出成形が中心で、タルクやゴムが10~20wt.%程度ブレンドされたPPを用いることが多く、重合技術やブレンド技術の発展に伴い、高流動、高弾性、高強度を低コストで実現している。

一方、自動車向けプラスチック部品の多くは、加飾性、機能性向上を狙って射出成形金型にシボ加工を施し、成形品表面に様々なパターンの微細構造を有することが多い。特に質感向上のためにプラスチック表面の光沢値を低く抑え、マット感を求めるニーズが高まっている。光沢値の低いプラスチック製品表面を得るためには金型表面の凹凸が数 μm の微細構造を正確に転写させる必要がある。結晶性高分子材料のPPにブレンドされた数 μm のタルクやゴム成分が、この微細転写に影響を及ぼすことは容易に予測される。従って、表面転写に及ぼす影響を把握することは質感向上のみならず、量産で発生する転写不良の低減や、より高度な加飾・機能性付与に 응용が期待できる。しかし、PPの射出成形による微細転写性に関する報告はあるものの、PPにタルクやゴムをブレンドした材料が微細転写に及ぼす影響を調査した報告例は世界的に殆ど無い。

そこで本研究では、自動車向けに広く用いられるタルク含有PP樹脂における射出成形の微細転写に注目し、微細金型構造及びタルクの粒径が微細転写に及ぼす影響と最終的に製品の光沢値・濡れ性及び傷付性へ与える影響を調査した。調査の結果、金型の微細構造を変化させた独自の金型を用いてPP収縮とタルクの密度差に起因する微細なタイガーストライプ構造が自己形成されることが観察された。この自己形成された微細な凹凸は様々な機能を発現することが示され、光の乱反射による光沢値の制御や、樹脂表面と水滴の境界に空気層を作り撥水性が向上することが示唆された。また微細タイガーストライプ構造の傷付性は他の形状と比較して同等以上の傷付性を有していることが確認された。本調査では、タルクの平均粒径及び金型の構造によって微細構造を制御できる新たな可能性について研究をまとめ以下のことが明らかになった。

本論文は全5章で構成し各章の内容を以下に示す。

第1章『序論』では、タルクやゴムが複合されたPPの表面微細転写性に関する研究の現状と、それに対する問題点・課題を述べ、本研究の着想と目的を記述した。

第2章『タルク・ゴム成分が転写性に及ぼす影響』では、タルクやゴム等が添加されていない無添加のニートPPをベースとして、タルクおよびゴムをそれぞれ個別に含有させて、その含有量を変化させながら、各成分が微細転写に及ぼす影響を、干渉膜顕微鏡やレーザー顕微鏡等を用いて表面形状分析を行った。また、転写領域と未転写領域を明確に区別できるようにするため、一般的に自動車向けで広く用いられる皮シボ模様の代表形状の抽

出を行い、超精密切削加工を用いて形状の再現を行った。実験の結果、タルクの影響により、数 μm の微細な凹凸が自己形成する様子を初めて観察した。さらに、ゴム含有 PP は低ひずみ領域での粘弾性の低下から転写性が向上することが明らかになった。

第3章『金型微細構造が光沢値に及ぼす影響』では、前章で明らかになったタルク含有の影響による微細な凹凸の自己形成に関して、タルクの粒子径や微細金型構造によって自己形成する凹凸の制御に着目して検討を行い、タルク粒子径の拡大によって、微細凹凸形状も拡大することが明らかになった。さらに、凹凸形状を評価するパラメータであるスキューネス R_{sk} を変化させた金型構造を用いて、微細構造の変化が最終的な製品の光沢値へ及ぼす影響を明らかにした。

第4章『表面構造が撥水性・傷付性に及ぼす影響』では、未転写領域に自己形成する微細表面形状を微細金型構造により変化させることによって、従来構造との撥水性の比較評価を行った。また、微細構造が色味に及ぼす影響を調査し、引っ掻き傷による色味の変化を観察することにより、微細構造の傷付性についても評価を行った。

第5章『総括』では、各章で得られた実験結果をまとめ、自動車向けプラスチック材料における表面制御に関する基礎研究について総括を行った。本論文では、自動車用ポリプロピレンの射出成形において、タルク含有に伴う樹脂の収縮プロセスによって表層付近に微細な凹凸形状を自己形成する表面転写性について述べた。ポリプロピレンの収縮に伴う自己形成メカニズム及び独自の微細金型構造を用いて、タルクが自己形成する微細な表面形状を様々な機能性について発展調査を行った。それにより本研究成果は製品光沢値の制御や撥水性の付与ができる新規の微細転写技術であることを提唱した。従来研究あるいは実験的・経験的に知られている微細転写技術は金型の微細構造を正確に転写させることを主眼に研究がなされてきた。本調査によって微細構造の成形を金型への直接的な転写技術を用いることなく、ベースとなる材料よりも収縮の少ない材料が添加されることによって、また微細な金型構造の工夫によって材料収縮の過程で自己形成的に微細構造が形成させる新しい技術となり得る可能性を示した。この技術の最大のポイントは、生産性を犠牲にすることの無い成形手法であると言える。既存の成形条件において成形が可能で、成形品の大きさに関わらず効果が期待できる本技術は自動車部品のみならず広い範囲に適用できる可能性を持っている。

今後、本研究で報告した結果がポリプロピレンとタルクの添加材料に留まらず、他のポリマー材料・無機材料・繊維材料などについても調査され、新たな転写技術として広く利用されることを期待する。

論文内容要旨 (英文)

平成29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 _____ 黒田 真一



論文 題 目

自動車用ポリプロピレンの射出成形における表面微細転写性に関する基礎研究

Talc-containing polypropylene (PP) resin is extensively employed in automobiles. Considering microstructure transfer process in injection molding, the effect of the talc's dispersibility and particle size on this process and its impact on the gloss level of the product were investigated. The results show that a fine unevenness of about several μm was self-formed by the shrinkage of PP in non-transferred areas due to the blending of talc. Additionally, the amount of self-formed unevenness tended to increase as the average particle size of talc increased. Furthermore, it was observed that a fine tiger-stripe pattern was self-formed using special molds with modified microstructure due to PP shrinkage and density differences of talc. This self-formed fine unevenness changes the gloss level because of the effect of diffused light reflection. This study proposes a new perspective that this change can be controlled by the average particle size of talc and the structure of the mold.

Furthermore, the effect of fine mold structure and talc particle size on the microstructure transfer and impact on the wettability and scratchability of products was investigated considering the microstructure transfer in injection molding of talc-containing polypropylene (PP) resin. Consequently, it was observed that a fine tiger-stripe structure caused by PP shrinkage and differences in talc density was self-formed when using a unique mold with a varying microstructure. It was suggested that the self-formed fine irregularities formed an air layer at the boundary between the resin surface and water droplets to enhance water repellency. Furthermore, it was confirmed that the fine tiger-stripe structure had the same or higher scratchability than other shapes. Herein, we revised new methods of controlling the microstructure via the average talc particle size and mold structure.

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

令和 2 年 2 月 5 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 高橋 辰宏

副査 西岡 昭博

副査 杉本 昌隆

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

論文申請者	有機材料システム専攻	氏名	黒田 真一
論文題目	自動車用ポリプロピレンの射出成形における表面微細転写性に関する基礎研究		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	令和 2 年 1 月 23 日～ 令和 2 年 2 月 5 日
論文公聴会	令和 2 年 2 月 5 日	場 所	工学部 グリーンマテリアル成形加工 研究センター4階 406 室
最終試験結果	合格	最終試験年月日	令和 2 年 2 月 5 日

学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)

本論文では、自動車用プラスチックに広く用いられているポリプロピレン (PP) に含有するタルクやゴム成分がシボの微細転写に及ぼす影響を多角的に分析し、特に材料収縮によって表層付近のタルク含有部分に微細構造が自己形成する現象を詳細に評価している。本論文は全 5 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、タルクやゴム等が添加された PP と無添加のニート PP を比較しながら、タルクおよびゴムの含有量を変化させ、各成分が微細転写に及ぼす影響を詳細に調べている。この結果、タルクの影響によって数 μm の微細な凹凸が自己形成する様子を初めて観察し、さらにゴム含有 PP は低ひずみ領域での粘弾性の低下から転写性が向上することが明らかになった。

第 3 章では、これらの材料と金型微細構造が光沢値に及ぼす影響を調べた。従来では判別が困難であった転写領域と、未転写領域を分離することで未転写領域の転写メカニズムを調査した。この結果、タルク粒子径の拡大によって微細凹凸形状も拡大することが明らかになり、微細構造の変化と最終製品の光沢値との相関を明らかにした。

第 4 章では、微細金型構造と粒径分布の異なるタルクをブレンドさせたポリプロピレンを用いて微細構造の撥水性に及ぼす影響を評価しており、微細構造が発色に及ぼす影響から傷付性についてもまとめた。

本学位論文は、自動車用ポリプロピレンの材料開発および成形加工において、各種充填材の影響と内部モルフォロジーの評価、表面微細転写構造に起因する機能発現についてまとめている。また、タルク充填材と材料収縮によって表面微細構造の自己形成の新しい着眼点で適切に結論が述べられており、本論文の成果は新たな樹脂表面制御手法として期待される。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、査読付きの英文学術誌に 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 2 件、国内学会で 4 件の口頭発表を行っている。

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。以上を考慮した結果、申請者の論文は、博士論文としての新規性や独自性を有しており、また、論文構成も適切であり、理論と実証を基に有意な結論が述べられている。よって、審査の結果を合格とする。尚、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にあり、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。