

氏 名	たき 瀧 けん た ろう 健 太 郎
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2481 号
学位授与の日付	平 成 17 年 3 月 23 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 学 研 究 科 化 学 工 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	高分子材料の微細発泡成形挙動の可視化実験と計算機シミュレーション

論文調査委員 (主 査) 教 授 大 嶋 正 裕 教 授 瀧 川 敏 算 教 授 谷 垣 昌 敬

論 文 内 容 の 要 旨

二酸化炭素 (CO₂) を高圧下で可塑性高分子材料に溶解させ、平衡にした後、減圧し、高分子材料中で相変化を誘起させることにより、微細な気泡のセル構造を高分子材料中に形成することができる。これは物理発泡成形と呼ばれる。物理発泡により形成されるセル構造は、高分子の粘弾性特性、高分子材料中での二酸化炭素の物質移動特性ならびに減圧速度や温度などの操作条件・装置条件に依存して、さまざまに変化する。本論文では、超臨界から亜臨界状態までの二酸化炭素を利用して高分子材料にセル構造を形成させる際の、レオロジー特性・二酸化炭素の高分子材料中での物質移動特性と物理発泡挙動および形成されるセル構造との因果関係を、可視化実験と計算機シミュレーションにより解明し、よりマイクロさらにはナノサイズの微細な気泡セル構造を高分子材料中に形成するための知見をまとめたものである。本論文の具体的な内容は以下のとおりである。

第1章では、高分子材料の物理発泡成形に関するこれまでの研究についてまとめ、発泡過程にて起こる気泡核生成・成長の動的挙動に関する実験的検討とその現象を表現するモデルが欠如していることを指摘するとともに、本論文の工学的な位置付けを明確にしている。第2章では、気泡が生成・成長する様子を光学顕微鏡により可視化観察し、画像解析手法を取り入れることにより、気泡数密度や気泡の成長速度を定量的に評価し、減圧速度等の装置操作条件や材料物性が気泡核生成および気泡成長速度にどのような影響を及ぼすのかについて明らかにしている。第3章では、高分子材料中の気泡生成と成長を表現するため、核生成と成長の同時進行モデルを構築し、計算機シミュレーションを行うことにより、第2章でまとめた実験結果を解析し、発泡挙動を支配する複雑な因果関係を整理している。その結果、高分子材料が熔融状態にあるとき、発泡挙動は、二酸化炭素の高分子材料から気泡への物質移動律速となり、そのため、溶解する二酸化炭素の初期総量が拘束条件となり、形成される気泡数密度と気泡径は相反関係(数密度を増加させると気泡径は小さくなり、数密度を減少させると気泡径が大きくなる)が顕著となること、およびガラス転移温度近傍での発泡挙動は、材料の粘弾性に支配されることが明らかになった。さらに、第4章では、気泡同士が合一する過程を可視化観察することで、気泡の合一において高分子材料の粘弾性特性、特に二軸伸長変形が支配因子となることを明らかにしている。第5および6章は、応用研究的な位置付けのものであり、第5章では、ナノコンボジットの発泡実験を行い、発泡挙動へのナノサイズのクレイの核剤効果・ガス透過抑制効果を明らかにしている。また、第6章では、ポリスチレン/ポリエチレングリコールブレンドの発泡体が特異的なセル構造を形成するメカニズムについて、第2章から第4章の成果を踏まえて明らかにしている。最後に第7章で、本研究を総括している。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

超臨界から亜臨界状態までの二酸化炭素を発泡剤として利用して高分子材料中にセル構造を形成させる物理発泡プロセスにおいて、レオロジー特性・二酸化炭素の高分子材料中での物質移動特性と、物理発泡挙動および形成されるセル構造との

因果関係を、可視化実験と計算機シミュレーションにより解明し、より微細な気泡セル構造を高分子材料中に形成するための知見をまとめたものである。その主な成果は次のようにまとめられる。

1. 二酸化炭素 (CO_2) を高圧下でポリマーに溶解させ、その後、減圧し、高分子材料中で相変化を誘起させ微細な気泡のセル構造を高分子材料中に形成させる高分子物理発泡プロセスにおいて、高分子溶融体の中で気泡が生成し成長する様子を、光学顕微鏡により可視化観察し気泡数密度や気泡成長速度の定量的評価を行うことにより、減圧速度等の装置操作条件や材料物性が気泡核生成および気泡成長速度にどのような影響を及ぼすのかについて明らかにしている。また、古典的核生成式と気泡成長の力学的バランスや物質移動式を連立させた核生成・成長の同時進行モデルを利用して計算機シミュレーションを実施し、可視化実験により得られた装置操作条件や材料物性と気泡核生成および気泡成長速度との因果関係を確証付けている。その結果、高分子物理発泡過程は、押出成形や射出成形などが行われるガラス転移温度 (T_g) より高い温度領域では、ポリマーから気泡への物質移動が律速となること、 T_g 近傍では粘性支配となることを明らかにした。
2. 気泡の合一過程の In situ 観察を実施し、合一のメカニズムは二軸伸長過程と平面伸長過程の組み合わせであること明らかにして、高分子の微細発泡体を創製する上では合一を抑制することが肝要となり、そのためには、材料である高分子の二軸伸長粘度および一軸伸長粘度の制御が有効であることを明確にしている。
3. ナノコンポジットの可視化発泡実験を行い、クレイが気泡生成の核剤として作用することを示し、クレイの存在が発泡剤である二酸化炭素の溶解度には影響を与えず、二酸化炭素の高分子から気泡への拡散速度を低下させる効果が微細気泡形成の鍵因子であることを明確にするなど、発泡挙動へのクレイの核剤効果・ガス透過抑制効果を明らかにしている。
4. ポリマーブレンドの物理発泡実験を実施し、ポリマーブレンドのモルフォロジーと各相への二酸化炭素の溶解度・拡散係数の違いにより気泡セル構造が変化することを呈示し、ブレンド種を変化させることにより特殊な構造をもつブレンドポリマーの発泡体が創製できる可能性を示した。

以上の内容により、本論文は、従来、製造者の勘に頼っていたプラスチックの物理発泡成形プロセスを科学的・工学的に解析し、高分子物性・プロセス条件・セル構造の間にある因果関係を明らかにすることによって、セル構造の制御性に関する明確な指針を与えるのであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成16年1月24日論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。