

解説**塗膜のアピランスとその評価**

吉田 豊彦

(財)日本塗料検査協会東支部 〒251 藤沢市宮前 428

(1991年11月1日受理)

Appearance of Paint Films and Their Evaluation

Toyohiko YOSHIDA

Tokyo Branch of Japan Paint Inspecting Association,
428, Miyamae, Fujisawa 251**1. はじめに**

塗膜に期待される機能のうち最も大きなものは、被塗物の保護と被塗物のアピランスの変化である。現在の塗料は機械的、電気的、生物学的などの、多様な機能を果すようになってきて、それらは機能性塗料と呼ばれて注目されているが、前記の保護とアピランスという二大機能が最も大切なものであることは変りがない。アピランスも、かつては光沢と色の2項目を、それぞれ一つずつのパラメーターで評価するだけで足りたが、要求される性能が高度化するにつれて複雑になり、従来のような唯一のパラメーターによる評価ではすまなくなっている。そのうえ、最終的な評価はユーザーの官能評価によるのが大部分であるから、設計、管理、検査の各段階で行われる計測と心理量との関係が問題になる。

2. 塗膜の構造

塗膜の主体をなすものはアモルファスポリマーフィルムである。多くの場合、顔料を添加して、色、隠蔽力、光沢などを与え、あるいは調節する。顔料は塗料の流動特性のほか、塗膜に対しては強度や残留応力等の機械的性質、拡散など物質輸送特性、素地のさびの抑制、などに対しても大きな効果を示す。

塗膜は多くの場合、1層がたかだか厚さ10~30 μm (最近では1回塗りの膜厚が1mm程度に達する厚膜のものもあるが)の薄膜であるが、その内部の物質の分布は均一ではない。最外部の表層と、底部の素地に接する層

は顔料をほとんど含まないクリアー層である¹⁾。そして、このクリアー層もその層に接する相が空気であるか、素地であるかによって、その層中での分子の配向状態は異なる。クリアー層は塗膜の色に対する寄与は(多くの場合)ほとんど無視してよいくらい小さいが、光沢に対する寄与は非常に大きい。塗膜の主要構成要素であるポリマーは数種のブレンドであるのが普通である。ポリマー同士は混合のエントロピーが非常に小さいから、まざりあわない(相溶しない)のが原則であるけれども、塗料用のポリマーは一般に分子量があまり大きくなく、また、塗料技術はブレンドの技術だと言われるくらいで、大部分の塗膜ではポリマー同士がよく相溶し、透明である。しかし、時として相溶性がないと屈折率の異なる部分の海-島構造ができて膜は白濁する。また、膜中に入射した光がポリマーの界面で反射、屈折して散乱するので、光沢は減少する。

顔料の塗膜内部での分布も必ずしも均一ではなく、疎密のうねりがある(図1)。

3. テクスチャ

塗膜の表面はマクロに見れば平であるが、完全な平面ではなく、大小さまざまな凹凸がある。この凹凸は塗膜形成の過程で一部は流動によって平坦化(leveling)するが、逆に凹凸が発生することもある。これは塗液の表面張力の揺らぎによって塗液層内部に渦流動が発生し、その結果生じた濃度差が粘度の上昇による流動の停止によって固定されたためである。

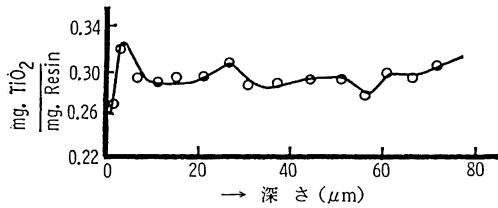


図 1 白・上塗膜の中での2酸化チタニウムの分布

中道ら²⁾は塗膜表面の不規則性を次の三つの波長スケールに分類している。

- 1) ゆず肌 (orange peel) 成分: 波長が $10^3 \mu\text{m}$ 以上のもの
- 2) 微小肌成分: 波長が数百 μm 程度のもの
- 3) つやびけ成分: 波長が数十 μm 程度のもの

1)はスプレー塗装や塗膜形成時の渦流動によって起こり、2)は焼きつけ後の塗膜の熱収縮などが原因であると考えられている。3)は塗膜成分の相溶性や顔料粒子の凝集が主原因となる。図2は漆塗膜の表面の3次元表面粗さの例である。

塗膜表面の不規則性と反射率の関係については Ben- nett-Porteus の式³⁾がある。

$$R_t/R_o = \exp\left[-\frac{(4\pi\sigma)}{\lambda^2}\right] + \frac{2^5\pi^4}{m^2}\left(\frac{\sigma}{\lambda}\right)^4 (\Delta\theta)^2 \quad (1)$$

ここで、 R_t は粗面での反射率、 R_o は完全鏡面での反射率、 σ は二乗平均のルート粗さ(基準面からの偏りを二乗平均ルートと定義する)、 λ は光の波長、 m は面の傾きの二乗根、 $\Delta\theta$ は反射光を集める光学系の受光角で

ある。

図2のような表面の評価は、従来は、塗膜面に映った物体の像の歪を官能検査によって比較することが多かったが、触針式の表面粗さ計で表面をトレースし、それをフーリエ解析して素地や塗装条件の効果を検討した例⁴⁾もある。

このような表面のテクスチャについては、松田⁵⁾、中島ら⁶⁾がそれぞれ別個に新しい計測法を開発した。図3はその原理図である。これは、塗膜面に投影した矩形波またはナイフエッジパターンが表面の凹凸によって歪むを検出し、フーリエ解析して像の鮮映性光沢や塗膜表面の凹凸を測定するというものである。

図4は松田の開発したオレンジピールテスターによる測定値とゆず肌の関係を、表1はそれに用いた試料の物理特性を示す。Orange peel interval α_1 は間隔尺度化されたゆず肌のよしあしの度合いである。

このような考え方はゆず肌よりも波長の短い「微小肌」とよばれるような凹凸の評価にも用いられる。

4. 光 沢

光沢とは反射光の空間分布によって生じる、物体表面に属する視知覚の属性である (JIS Z 8105 色に関する用語)。

光沢の分類はいろいろな書物に書かれているが、ここでは深く立入らないで、Billmeyer Jr. ら⁷⁾の分類を挙げておく。

1. 鮮映性光沢 (distinctness of image, DOI): 高光

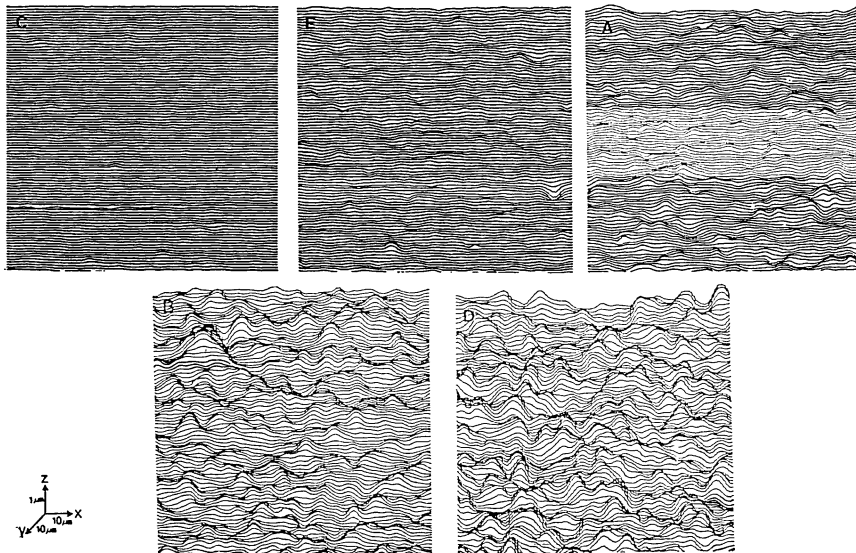


図 2 漆塗膜の3次元表面粗さ (60°鏡面光沢度の順にしてある)

表1 標準試料のゆず肌間隔 α_i と物理的性質

Sample No.	Orange peel effect interval α_i	Roughness R_a (μm)	Waviness			Color	Paint
			λ_w (mm)	h_w (μm)	r_w (m)		
O1	1.28	0.03	$\sim\infty$	~ 0	$\sim\infty$	Maroon	Solid
G1	0.963	0.055	3.8	0.45	2.0	Silver	Metallic
O4	0.407	0.032	4.8	0.7	1.7	Maroon	Solid
P45	-0.148	0.089	4.4	0.85	1.3	Blue	Metallic
O7	-0.963	0.092	3.2	1.8	0.44	Maroon	Solid
T4	-1.54	0.106	3.3	1.9	0.39	Green	Metallic

R_a : 中心線平均高さ, λ_w , h_w , r_w : それぞれうねりの波長, 高さおよび曲率半径

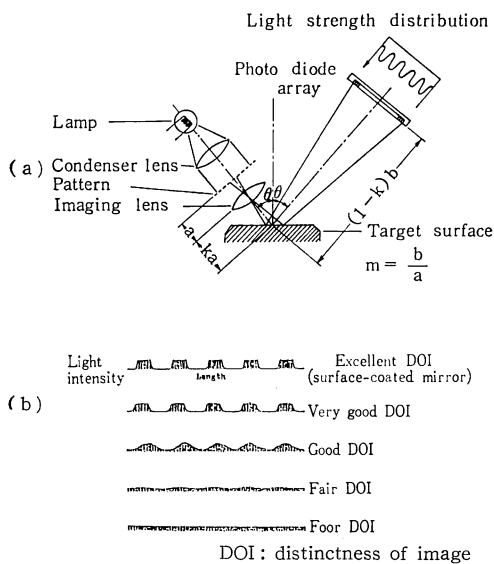


図3 光学系(a)とイメージ形成面の光強度分布の例(b)

沢面によって反射像が鏡に映したような鮮明な像を示す性質。

2. 鏡面光沢 (specular gloss): 参照面と試料面の正反射光量の比. 鏡面光沢と鮮映性光沢とは別の属性で, 独立に共存できる.
3. 対比光沢 (contrast gloss): 試料面に映った光源の像が識別できないような低光沢面を対象とすることが多い. 鏡面反射光と僅か離れた角度で受光した光束の比で表される.
4. シーン (sheen): 光沢のない表面を 90 度に近い入射, 受光角度で観察すると光沢があるように見える現象.

Billmeyer Jr. らはこのほかにヘーズを挙げているがヘーズはしばしば対比光沢と同義語として使われている.

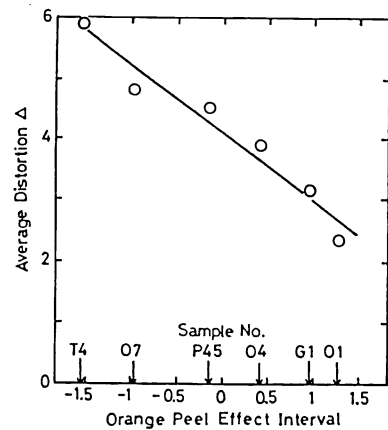


図4 ゆず肌感との相関性

塗膜の光沢は塗膜構成要素であるポリマーの屈折率, 塗膜表面の凹凸, 塗膜中の顔料の分布などに支配される. 光沢感は反射光の強度を問題にするものと, 相対的な強度分布を問題にするものとに分けられ, 鏡面光沢度は前者, 対比光沢は後者である.

塗膜の光沢は一般的には 60 度鏡面光沢度で評価する. 光沢度の測定方法, 測定装置の条件などは規格化されているからそれを参照していただきたい (JIS Z 8741-1983). 一般的にはと書いたのは, 光沢面から無光沢面までの広い範囲にわたって官能評価と比較的よく対応するからである. しかし, その程度が十分なものであるかどうかは十分に検討されているとはいえない. Billmeyer Jr. らは 20 枚のグレーの試験片について注意深く官能検査して, 60 度鏡面光沢度 (x) と官能評価値 (y) の間に

$$y = -0.7359 + 0.01285x \quad (2)$$

では平均二乗残差が 0.00379 であったが,

$$y = 0.2182 - 0.05473x + 0.001397x^2 - 8.802 \times 10^{-6}x^3 \quad (3)$$

では 0.00147 と 3 乗式の方がよくフィットすることを

報告している。ただし、この場合でも彼らは上記の式は彼らの用いた試料を、彼らの行った条件で測定した場合のことであり、さらに今後の研究課題としている。

ここ数年、とくに自動車の塗装については、高光沢面の要求が厳しく、60度鏡面光沢度では官能検査では差があるのに、測定値がそれに対応していないという場合が経験されるようになった。JIS Z 8741 では60度鏡面光沢度が70を越えるときは20度鏡面光沢度を適用するようになっているが、それは反射光量の検出精度を上げることで、測定の内容の質的な変更ではない。反射光の観測角分布依存性は変角測定によって調べることができるが、測定器の普及状態からみて、まだ現場で日常的に利用できる状態ではない。

現場的には塗膜表面に映った像の鮮明さ、すなわち写像鮮明性で判定することが多かった。塗膜面に映った像の鮮明さで比較することは1930年代から行われていたが、その方法は細かさの異なるパターンを映してどこまで解像力があるかを目視によって判定するもので、物理的なパラメーターとの関係が明確にされておらず、精度と再現性の点では問題があった。

前節に記した松田⁹⁾、中島・森田⁶⁾の方法はより定量的で再現性も優れている。中島らの方法は酸化アルミニウム被膜の評価にJIS化され(JIS H 8686)、ISOでも検討されている。

5. 色、変色の評価

被塗物表面の色とつやを変えて外観を新しくし、あるいはそれによって情報を伝達する(トラフィックペイント、標識などはその例である)ことは塗装の効果の中で保護機能とともに最大のものである。色の測定、表色は

CIEにしたがってJISに規定されているので、それによっている。

現在、塗料関係者の間で課題とされているのは、色差に関することである。要求された色と製品の色の間の色差は多くの場合大きなものではないので、CIELAB ($L^*a^*b^*$)によって問題なく管理することができる。問題は暴露試験などによって劣化、変色した塗膜のものと色との色差で、この場合は劣化の進行に伴って相当大的な変色になる。CIELAB, CIELUB ($L^*u^*v^*$)などの色度図はHunterのLab方式に比べればかなり改善されているとはいっても完全な等色差空間とはいえない。彩度が高い色になると、同じクロマの差でも色相によって ΔE の値はかなり違ってくる(表2, 図5)。表2はマンセル表色系のバリュー5におけるクロマ差2の隣接色票対の色差を標準の光C, 2度視野の測色条件を用いて計算したものである。したがって、色相の大きく異なる

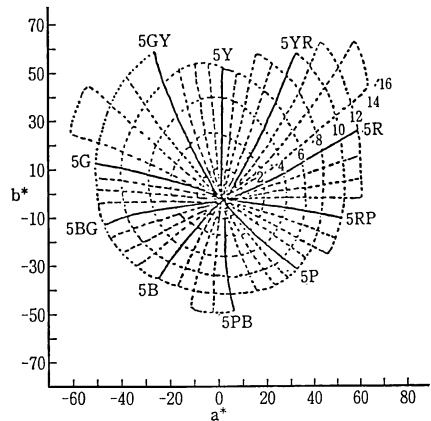


図5 バリュー5のマンセル色票の座標 (a^* , b^*)

表2 $L^*a^*b^*$ 素色系による色差式で算出した色差値, その平均およびばらつき

ヒュー	ク ロ マ 対									$\overline{\Delta E}$	$R(\Delta E)$
	0:2	2:4	4:6	6:8	8:10	10:12	12:14	14:16			
5R	8.77	10.12	9.59	9.53	9.63	9.67	8.27		9.37	1.85	
5YR	11.44	11.60	12.35	12.29	11.60	11.81			11.85	0.91	
5Y	14.48	14.65	14.97	13.26					14.34	1.71	
5GY	13.79	13.84	14.52	14.38	14.20				14.15	0.73	
5G	11.21	11.07	10.74	11.46	11.66				11.03	0.80	
5BG	9.92	9.66	9.13	10.52	10.67				9.98	1.54	
5B	8.52	8.75	8.59	8.60	8.38				8.57	0.37	
5PB	7.80	8.02	8.49	8.02	8.13	8.19			8.11	0.68	
5P	8.33	8.83	9.00	8.96	8.18				8.66	0.82	
5RP	7.88	8.78	8.94	9.17	7.95	8.82			8.59	1.29	

$$\overline{\Delta E} = \sum \Delta E_i / N, R(\Delta E) = \Delta E_{\max} - \Delta E_{\min}$$

表3 グレースケール各号色票の色差 (ΔE^*ab)

色票 (号)	変退色用	汚染用
5	0 +0.2	0 +0.2
4-5	0.8±0.2	2.3±0.3
4	1.7±0.3	4.5±0.3
3-4	2.5±0.35	6.8±0.4
3	3.4±0.4	9.0±0.5
2-3	4.8±0.5	12.8±0.7
2	6.8±0.6	18.1±1.0
1-2	9.6±0.7	25.6±1.5
1	13.6±1.0	36.2±2.0

る(とくに5Yと5PBなど)色の場合、目視による感じと ΔE の間にはかなりのずれが感じられる。大色差の場合にも適用できるような色差表示法⁹⁾の確立が切望される。

織物などで用いられているグレースケール(JIS L 0804, L 0805)も色差の物差の一つとして、簡便な方法ではある。ただし、(1)グレースケールは試料間の色差を無彩色の色差スケールと比較して評価するので、試料間のクロマチックネスの差も明度差に(官能的に)換算して評価しなければならない。多少の訓練が必要である。(2)判定は目視で行うためパネル間のばらつきがでやすい。というような問題がある。なお、グレースケールの変色のランクと ΔE^*ab の間には表3のような関係があり、これを片対数にプロットすると1~4-5の範囲では直線になる。このことはどのような意味をもつのか興味があることである。

6. メタリックペイントとパール

メタリックペイントは微小な薄紙状のアルミニウムの

薄片(aluminium flake pigment)を塗料中に混合してある。アルミニウム顔料はその表面をステアリン酸などで被覆してあるが、塗料の表面に浮くもの(leafing type)と浮かないで塗液中に混合するもの(nonleafing type)とがある。Leafing typeのアルミニウム顔料を用いた場合はシルバーペイントと呼ばれ、タンクや鉄塔などの塗装でなじみが深い。メタリックペイントはnonleafing typeのアルミニウム顔料を用いたものでアルミニウム顔料は塗液中に分散し、塗装後、乾燥に伴う収縮や流動によって大部分が塗膜表面に対して平行に配位する⁹⁾。塗料を比較的隠ぺい力の小さな透明性の高いものにすれば塗膜中のアルミニウム顔料によって反射された光がキラキラと認められ独特の効果を示す。日本ではモーターゼーションによって自動車用に用いられて普及した。

メタリックペイントのアピアランスには通常の塗膜(ソリッドカラーという)とは違った特異な現象がある。

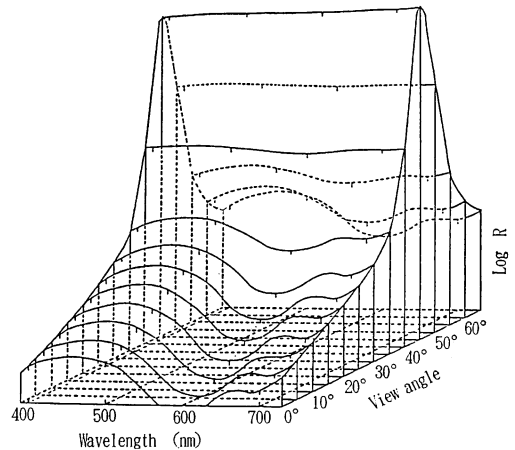


図6 メタリックペイント(青)の変角分光分布

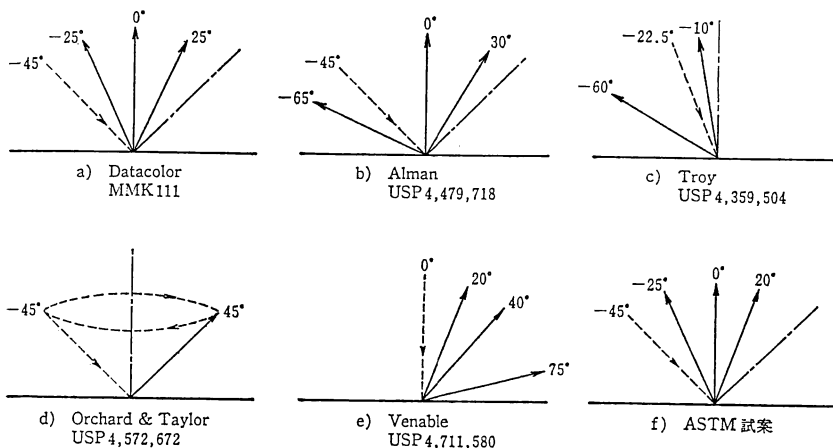


図7 メタリックの多角度測定法

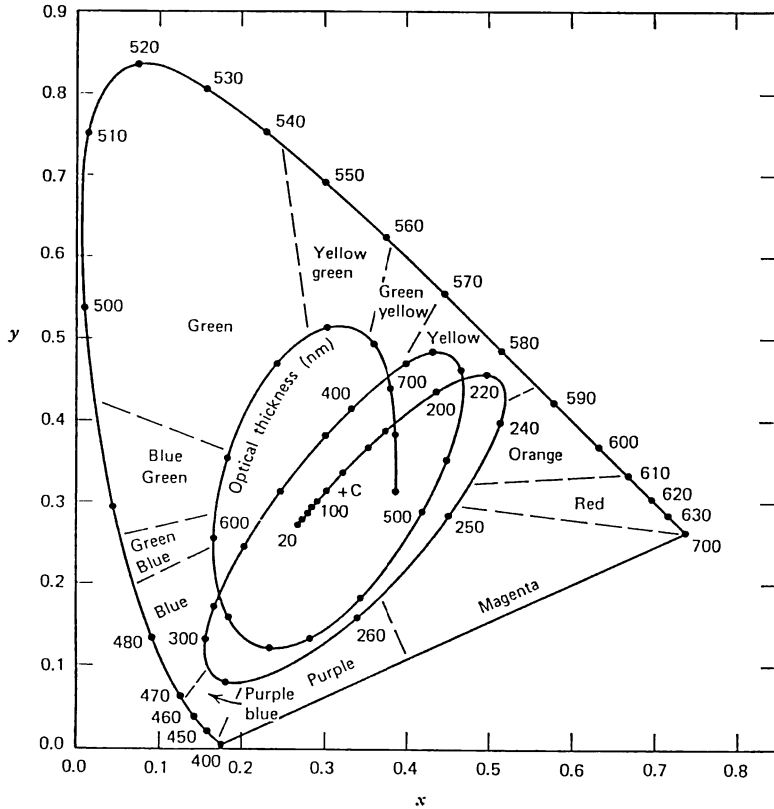


図 8 $n_0-n_1-n_2=1.0-1.5-1.0$ の理論干渉膜系の色度座標

幾何学的メタメリズム (geometric metamerism) と呼ばれ、現場では flip-flop と呼ばれている現象で、入射角か観測角のいずれか一方を固定し、他方を変化させたとき、違った色に見える現象である。このため、メタリックペイントの色の評価にあたっては入射、観測の幾何学条件をセットにした複数の観(計)測を行い、結果の表示も複数のパラメーターによる必要がある。図 6 はメタリックペイント(ブルー)の変角分光分布の例である¹⁰⁾。

メタリックペイントの測色は従来のような単一の条件ではなく、変角測色を行わなければならないことは明らかであるが、どのような条件にするかについてはまだ決定していない。図 7 は現在提唱されている条件である。

雲母の微小な薄片に二酸化チタニウムや酸化鉄をコートしたものを顔料として用いると、塗膜中での粒子の配位も当然起こるが、さらにコート層の上下で反射した光は干渉して真珠様の外観を示す。その効果のために高級乗用車や化粧品に用いられている。コートした層の厚さによって干渉色の波長は変化する (図 8)。

図 9¹⁰⁾ は赤いベースカラーの上に干渉型のパールマイカ顔料を含む塗料を塗装したものの変角分光分布であ

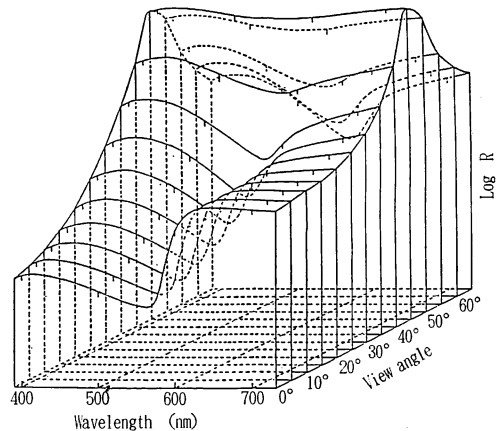


図 9 パールマイカペイント(赤)の変角分光分布

る。光学条件は入射角度 -45° である。

7. 感覚と物性、計測との対応

塗膜の質感については深み感、肉持ち感、というような表現がしばしば用いられてきたが、その意味するものや物性との関係についてはあまり研究されていなかっ

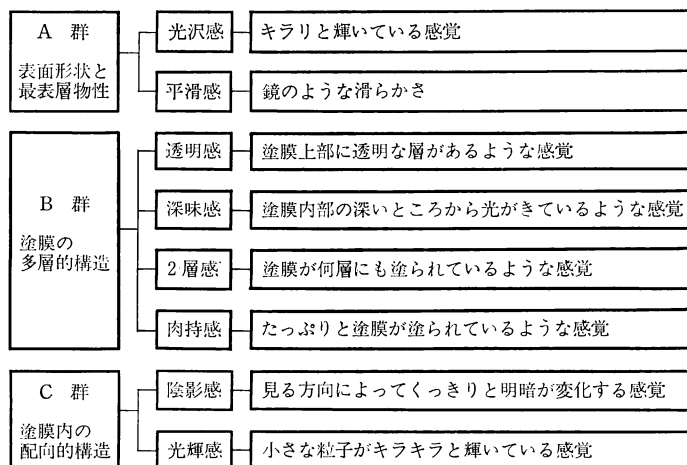


図 10 塗装外観分類

た。最近、高級指向と感性の重視から、質感についての研究が見られるようになった。漆の質感については阿佐見¹¹⁾のSD法による京塗りのイメージに関する研究がある。

阿佐見は京塗りのイメージは次の3因子によって構成されているとした¹²⁾。

- 1) 評価の因子: 重々しい, 好きな, 上品な, 深みのある
- 2) 目立ちの因子: 鋭い, 派手な, つやのある
- 3) 肌合いの因子: あたたかい, やわらかい, しっとりとした

その中から深み感(深みのある-深みのない), つや感(つやのある-つやのない), あたたかみ感(あたたかい-つめたい)を選んで, 官能検査による質感の計量化と, 物性の関係について研究した。

工業用塗料については, メタリックペイントのメタリック感の評価について, メタリック感の主成分分析を行い¹³⁾, アルミニウム顔料の種類, メタリックベースの種類などの効果を検討し, メタリック感と塗膜中での顔料の挙動, カラーベースの透明感, コントラストなどの関係を調べ, また官能尺度構成をして, 変角分光測定による物理量とよい相関をもつ重回帰式を得ている。

森田ら¹⁴⁾はメタリック塗膜の外観を表す言葉を3群に分けている(図10)。その結果, 陰影感, 透明度/深味感の発現のモデルを明らかにしている。

また, 田畑ら¹⁵⁾は塗膜質感用語を階層構造をもつものとして, 図11のように示した。因子分析や物性値との重回帰分析によって平滑感, 肉持感, 光沢感といった心理の評価と塗膜表面の形状のパワースペクトル分布との

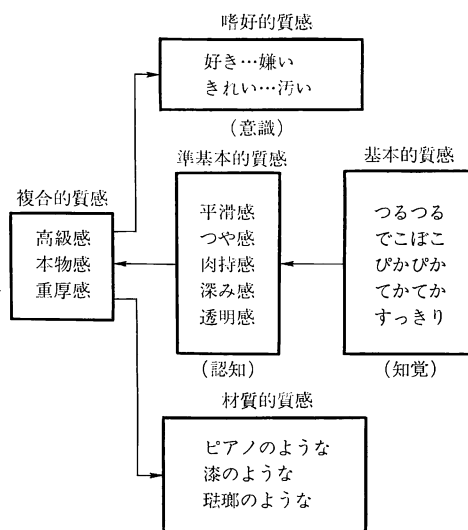


図 11 塗膜質感用語の階層構造概念

関係を求めている。その結果, 平滑感は波長の長いうねり, 肉持感は塗装関係者では中波, 一般ユーザーでは長波, 光沢感では中波が対応することを明らかにしている。

8. おわりに

塗膜にとってそのアピランスはきわめて重要な特性の一つである。ソリッドカラーの色, 通常の塗膜の光沢については測定法が確立されているが, 最近では従来の方法では十分に評価できないような高光沢面や無光沢面, メタリックやパールのような複雑な光学的挙動のものなどが開発され, そのシェアが増えつつある。また, 光沢

や色やテクスチャの微妙なパターン(たとえば $1/f$ ゆらぎを形成するような)が登場してくるかも知れない。今後も、高品質、長寿命、感性に訴える商品への傾向は変わらないと予測される。それらは市場化の初期には官能検査によらざるを得ないが、感覚と物性値との関係についての研究、計測の方法の開発も行われている。これは大変喜ばしい。一方、当然、計測の方法は複雑になり、評価項目は多様になる。それらの方法を、今まで簡単な方法で、単一のパラメーターだけで済ませてきた生産現場への普及、浸透にも配慮する必要がある。物理・工学、心理学の学際にあるこの分野のために、関係する各学問領域の方々のご協力をお願いしたい。

文 献

- 1) C. D. Cheever and J. J. Wojtkowiak: "Instrumental studies of the surface and internal composition of paint films," *J. Paint Technol.*, **42**, No. 546 (1970) 409-421.
- 2) 中道利彦, 河村昌剛: "塗膜の表面形状と鮮映性", *表面*, **27**, No. 4 (1989) 302-312.
- 3) H. E. Bennett and J. O. Porteus: "Relation between surface roughness and specular reflectance at normal incidence," *J. Opt. Soc. Am.*, **51**, No. 2 (1961) 123.
- 4) N. Dingerdissen, F. Fister und C. Hartmann: "Quantitative Beurteilung des Verlaufs und seiner Entwicklung im Lackieraufbau mit dem Tastschnittverfahren und der Oberflächenprofil auswertung nach Fourier," XVIIIth FATIPEC Congress (1986).
- 5) 松田守弘, 鬼頭完爾: "塗膜ゆず肌の代用特性の解析", *計測自動制御学会論文集*, **19**, No. 3 (1983) 241.
松田守弘: "自動車塗装品質の計測", *計測と制御*, **23**, No. 3 (1984) 312.
M. Matsuta: "New, portable orange peel meter for paint coatings," *J. Coatings Technol.*, **59**, No. 754 (1987) 61-64.
- 6) 中島孝司, 森田 操: "塗膜の写像鮮明性測定装置の開発", *塗装工学*, **20**, No. 2 (1984) 50.
- 7) F. Billmeyer, Jr. and F. X. D. O'Donnell: "Visual gloss scaling and multidimensional scaling analysis of painted specimens," *Color Res. Appl.*, **12**, No. 6 (1987) 315-326.
- 8) G. Kawakami, T. Hirai and K. Arai: "An evaluation of small color difference in color matching," *J. Light Vision Environ.*, **2**, No. 1 (1978) 33.
- 9) K. Tachi, C. Okuda and S. Suzuki: "Mechanism of aluminium flake orientation in metallic topcoats," *J. Coatings Technol.*, **62**, No. 782 (1990) 43-50.
- 10) 馬場護郎: "メタリックとパールマイカペイントの測色", *色材*, **63** (1990) 541-549.
- 11) 阿佐見徹, 山内 明, 三木竹男: "漆塗膜のイメージに関する研究", *京都市工業試験場研究報告 (その1)* No. 9 (1981) 84-124; (その2) No. 11 (1983) 93-102; (その3) No. 11 (1983) 103-109.
- 12) 阿佐見徹: "漆膜肌の官能検査による評価と各種塗膜表面物性値の関係及びその発現のメカニズム", 第5回漆を科学する会資料 (1991).
- 13) 安部義昭, 松岡弘次, 大藪権昭, 納谷嘉信: "塗膜のメタリック感の評価", *日科技連官能検査シンポジウム* (1981).
- 14) 森田 操, 戸知俊彦, 長島幸則: "メタリック塗装外観の解析", *塗装工学*, **25** (1990) 502-509.
- 15) 田畑 洋, 田中信吾, 吉本照子, 原田宏昭, 橋本光雄: "自動車用塗膜質感の心理物理的解析法", *日産技報*, **26** (1989) 115-121.