

高輝度放射光X線を用いた産業用高分子の静的・動的構造に関する研究

著者	松井 和也
学位授与年月日	2017-03-23
URL	http://doi.org/10.15083/00076104

論文審査の結果の要旨

氏名 松井 和也

本論文は、高輝度放射光 X 線を用いて、代表的な産業用高分子であるポリプロピレン (PP) やポリエチレン (PE) の構造物性相関に関する新たな知見獲得を試みた研究についてまとめたものである。本論文は、全 6 章で構成される。

第 1 章では、序論として、研究背景や目的について述べた後、論文全体の構成について説明している。

第 2 章では、本論文で用いた X 線散乱測定に関する基礎とそのデータ解析手法について述べられている。

第 3 章では、時分割小角・広角 X 線散乱法を用いて、等間隔に分岐鎖が主鎖に配置された直鎖状低密度ポリエチレン (ADMET-PE) の結晶化挙動を調べた研究について述べられている。21 炭素骨格に 1 つエチル分岐を有する ADMET-PE (EB21) では、ラメラ晶へのエチル分岐の導入度は結晶化温度に依存することを示すとともに、その導入度によって生成する結晶構造が異なることを初めて明らかにした。また、15 もしくは 19 炭素骨格に 1 つ n-ヘンイコシル基 (炭素数: 21) を有する ADMET-PE (HL-PE15C21、HL-PE19C21) では、分岐鎖同士の間鎖結晶化と、分岐鎖と主鎖の共結晶化が起こることを明らかにした。そして、どちらの結晶化モードが優先して起こるのかは、分岐鎖長と分岐鎖間隔長の関係に強く依存することが示唆された。また、共結晶化における分岐鎖のパッキング形式は、エチル分岐の場合とは全く異なることがわかった。このような分岐構造と高次構造に関する知見は、一般的な直鎖状低密度ポリエチレンを用いた研究では得ることができなかったものであり、ADMET-PE に着目し、かつその結晶化挙動を、放射光 X 線散乱法を用いてその場観察したことにより初めて見いだされたものである。

第 4 章では、マイクロビーム X 線散乱法を用いて、PP 射出成形体の変形挙動ならびに融点近傍での熱処理がその挙動に与える影響を調べた研究について述べられている。射出成形法は、プラスチック部品の製造方法として最も一般的に用いられる成形加工法であるが、射出成形体の高次構造は、厚み方向に沿って層状の不均一構造を有しているため、その物性制御は複雑である。ここでは、マイクロビーム X 線散乱法を用いることにより、射出成形体の延伸過程における各層それぞれでの構造変化を、微視的スケールから観察することに初めて成功している。解析結果から、融点近傍で熱処理を施すことにより、延伸過程における各層でのラメラ晶の塑性変形が抑制され、ボイドの発生頻度が向上していることを示した。特に、結晶配向度の高い層では、長周期程度のサイズを持った微視的なボイドが非晶部に生成しており、それによってそのような高配向層では、ひずみ硬化が起こっていることが示唆された。射出成形体を融点近傍で熱処理を施すことにより靱性が向上することが知られているが、その背景には、ひずみ硬化によって高剛性化した高配向層の延伸挙動が密接に関与していることを明らかにした。

第 5 章では、時分割小角・広角 X 線散乱法を用いて、一軸方向に高配向したラメラ構

造を有するハードエラストリック PP (HEPP) フィルムの延伸過程における微視的構造変化を調べた研究について述べられている。HEPP フィルムは、近年 Li イオンバッテリーのセパレーターフィルムや分離膜としての応用が進められている。そのような微多孔フィルムの性能を考える上で、最も重要な指標となる特性は透過度であるが、それは延伸条件に強く依存する。ここでは、時分割小角・広角 X 線散乱法を用いて、延伸過程における各ひずみ量での結晶構造変化およびボイドの発生挙動を、定量的に明らかにするとともに、高透過度な微多孔フィルムを得るための最適延伸条件を示した。

第 6 章では、本論文で得られた結論がまとめられているとともに、それぞれ研究課題に関する今後の展望について述べられている。

本論文を通じて述べられている PE や PP といった代表的な産業用高分子の構造物性相関に関する知見は、いずれも高輝度放射光 X 線を活用することで得られた新規なものであり、それは産業的価値のみならず、高い学術的価値を有している。

なお、本論文の第 3 章は、Kenneth B. Wagener、Hong Li、Giovanni Rojas、Erik Berda、野末佳伸、瀬野修一郎、篠原佑也、雨宮慶幸各氏との共同研究であり、それに加え、第 4 章は、板東晃徳、桜井孝至、丸山俊哉、増永啓康、篠原佑也、雨宮慶幸各氏との、第 5 章は、穂坂直、鈴木健一郎、篠原佑也、雨宮慶幸氏との共同研究成果であるが、論文提出者が主体となって、実験およびその結果の解析、考察を行ったもので、その寄与が十分であると言える。したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上 1 9 7 4 字