

氏名	きたむらたけと 北村武人
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	工博第1979号
学位授与の日付	平成12年5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	延伸法を用いたPTFE多孔質膜製造プロセスにおける多孔構造形成機構に関する研究

論文調査委員 (主査) 教授 谷垣昌敬 教授 升田利史郎 教授 田門 肇

論文内容の要旨

本論文は、延伸法を用いたポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 多孔質膜製造プロセスにおける多孔構造形成機構に関して現象論的知見を得ること、及び多孔構造の微細化が可能な製造法を確立することを目的としたもので、8章よりなっている。

第1章は序論であり、本研究の背景として、現在の多孔質膜製造の概要と製造業が抱えている問題点を示している。

第2章では、一軸延伸による多孔構造発現機構を検討している。PTFE 多孔質膜の多孔構造は空間的周期性を有しており、周期は原料の分子量、延伸条件によって可変であることを示している。一軸延伸によって形成される繊維状構造 (fibril) は孔の幾何学的特性を決定づけるものであり、fibril の前駆的構造は微視的な観察により、圧延工程において著しく形成される PTFE 粒子間の糸状構造 (Connection) であることが明らかになっている。また fibril の起源は、fibril 形成時に膜になされる仕事を検討した結果、原料の PTFE 粒子を構成するリボン状結晶であることが示唆されている。

第3章では、圧延工程での connection 形成と多孔構造との関連性を検討している。connection 形成は圧延過程で生じる粒子間のずりによってもたらされることが示されている。そして形成される connection の数密度には上限値が存在し、1個の PTFE 粒子はせいぜい2個の粒子に対してのみ connection 形成が可能であることから、connection 形成は各々の粒子表面に露出しているリボン状結晶の両端を介してなされることが示唆されている。また connection の数密度と多孔構造の周期との間には相関が存在することが明らかになっている。

第4章では、一軸延伸過程での膜の動的挙動のモデル化が試みられている。一軸延伸の動的挙動及び延伸後の応力緩和挙動は粘度の速度依存性を考慮した場合にのみ Maxwell model による記述が可能であることが示されている。延伸過程において粘性挙動が支配的になる領域では fibril の定常的生成が生じており、その領域での引張応力は速度に殆ど依存しないという結果は、第2章において得られた fibril 形成の描像と一致することが示されている。

第5章では、二軸目延伸による構造形成様式が検討されている。二軸目延伸では一軸目延伸時に形成された fibril の二軸目延伸方向への傾斜と、fibril の傾斜によって二軸目延伸方向への負荷がかかったことによる node の分断が生じており、fibril が node を支点としてパンタグラフのようにその空間的配置を変えることが PTFE での二軸延伸を可能にしていることを明らかにしている。二軸目延伸では一軸目延伸と比べると低い延伸率で膜に亀裂が生じるが、これは二軸目の延伸率の増加によって fibril が形成するパンタグラフ構造が拡大することに起因することが示され、亀裂が生じる直前での二軸目延伸での延伸率は一軸目延伸で形成される fibril が長くなるに伴い増加することが明らかになっている。

第6章では、延伸後の熱処理による多孔構造の固定化に伴う構造変化が検討されている。PTFE が溶融する温度以上での熱処理によって膜の非収縮性と機械的強度に格段の向上がもたらされ、これは溶融によって fibril と粒子を構成するリボン状結晶が消失することに起因することが示されている。また熱処理によって多孔構造は粗大化するため、多孔構造の制御には延伸条件と共に熱処理条件を考慮する必要があることを示している。

第7章では、多孔構造の微細化が試みられ、これを実現する手段として従来の膜製造プロセスにはない、PTFEが熔融する温度である325°Cでの熱処理を延伸工程前に導入している。この結果、従来法の場合とは異なる多孔構造形成機構が確認され、多孔構造の微細化及び高空隙化が共に可能である操作条件を見いだしている。

第8章は総括であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、延伸法を用いたポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 多孔質膜製造プロセスにおける種々の工程を通して発現する多孔構造の形成機構に関する体系的な知見の確立及び多孔構造の微細化を試みたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. PTFE 多孔質膜は周期的な多孔構造を有し、周期は原料の分子量、延伸条件などの操作条件によって可変であることを示した。一軸目延伸によって形成される繊維状構造 (fibril) は孔の幾何学的特性を決定づけるものであり、fibrilの起源は原料の PTFE 粒子を構成するリボン状結晶であることが示唆された。多孔構造の前駆的構造は圧延工程において形成され、圧延がもたらす粒子間のずりによって多くの粒子がリボン状結晶を介して結ばれることが fibril 形成において不可欠であることが明らかになった。

2. 二軸目延伸では粒子凝集ドメイン (node) の分断と一軸目延伸時に形成された fibril の二軸目延伸方向への傾斜が生じ、fibril が node を支点としてパンタグラフのようにその空間的配置を変えることが PTFE での二軸延伸を可能にしていることが明らかになった。

3. 延伸工程後の熱処理工程では PTFE が熔融する温度以上での熱処理によって膜の非収縮性と機械的強度に格段の向上がもたらされ、これは熔融によって fibril と粒子を構成するリボン状結晶が消失することに起因することが示唆された。また熱処理によって多孔構造は粗大化するため、多孔構造の制御には延伸条件と共に熱処理条件を考慮する必要があることを示した。

4. 多孔構造の微細化を実現する手段として従来の膜製造プロセスにはない、PTFE が熔融する温度以上での熱処理を延伸工程前に導入し、前駆的構造を変えることで多孔構造の微細化を試み、その結果、多孔構造の微細化及び高空隙化が共に可能である操作条件を見いだした。

以上要するに本論文は、延伸法を用いたポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 多孔質膜製造プロセスにおける種々の工程を通して発現する多孔構造形成機構を現象論的に解明し、さらに多孔構造の微細化方法を確立したものであり、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12年4月21日、論文内容とそれに関連した試問を行った結果、合格と認めた。