

氏名	びぶさあーと ういーらーぼーん PIVSA-ART WERAPORN
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第806号
学位授与の日付	平成28年3月25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	工芸科学研究科 バイオベースマテリアル学専攻
学位論文題目	Improvement of Mechanical and Thermal Properties of Poly(lactic acid) with Polymer Blends (ポリマーブレンドによるポリ乳酸の機械的熱的特性の向上)
審査委員	(主査)教授 小原仁実 教授 山根秀樹 教授 櫻井伸一 准教授 麻生祐司

論文内容の要旨

非分解性のプラスチックの環境中への蓄積が問題となっている。この問題解決のため環境中で分解する種々の生分解性プラスチックが開発されている。生分解性プラスチックの中でもポリ乳酸(PLA)は最も工業化が進んでいると言える。しかし、PLAにはいくつかの克服すべき点がある。本論文では、同じく生分解性プラスチックであるポリブチレンサクシネート-co-アジペート(PBSA)、およびポリブチレンサクシネート(PBS)をブレンドし、さらにポリエチレングリコール(PEG)、またはタルクを添加することにより機械的物性、熱的物性が改善されることを示すと共に、そのメカニズムについて考察している。本論文は5章より構成され、その内容は以下のとおりである。

第1章

生分解性プラスチックは社会的に必要性が高まっている。この章では、生分解性プラスチックであるPLA、PBSA、およびPBSについての研究を紹介する。さらに従来の研究・開発の不十分な点を整理し、本研究の目的と意義を述べる。

第2章

PLAはバイオマスから製造されるバイオベースポリマーとして、高い機械的特性を有している。しかし、PLAは脆くて耐熱性に劣るという欠点もある。そこで、この章の目的は、生分解性ポリマーとして高い強度を持つPBSAをブレンドすることによって、PLAの物性を改善することである。二軸押出機でPLAとPBSAをブレンドし、レオロジー及び熱的特性の測定を行った。さらに、射出成型によるテストピースの作製と溶融紡糸による繊維化を行い、衝撃強度及び引張強度の測定を行った。その結果、PBSAの割合が低い場合には、PBSAはPLAに良好に分散し、PBSAの割合が高いときには大きな滴状となった。射出成型物の機械的物性はPLAマトリックス中のPBSAの分散状態に依存していた。PBSAが良好にPLAマトリックスに分散するほど、耐衝撃強度も改善された。しかし、繊維の機械的強度はPBSAをブレンドすることによって低下した。

第3章

PEGがポリ乳酸とPBSのブレンドの物性に与える影響を解明した。動的機械分析(DMA)による測定より、PLA単味のガラス転移点(T_g)とPBSブレンド中における T_g は等しかったが、PEG

の添加によりそれらの値は異なった。この現象は PBS では見られなかった。このことから、ブレンド体において PEG は PLA 相から PBS 相に異動していると考えられる。引張強度とヤング率は PEG の添加量が増加するに従い減少した。このことは、PEG がポリマーブレンド中で可塑剤として働いていることを意味している。走査型電子顕微鏡による破断面の観察では、PEG の添加は PLA の物性を脆弱性から延伸性へと変化させていることを示している。

第4章

PLA と PBS は良好な混和性を示した。PLA と PBS のブレンド体の機械的、及び熱的特性はポリマーの結晶性と関連している。PLA と PBS のブレンドにタルクを添加し、溶媒法及びキャスト法によってフィルムを製作した。等温結晶化の動力学および球晶の形態の観察を行い、アブラミモデルによる解析を行った。ブレンド体におけるポリ乳酸と PBS の重量比は 80 : 20 及び 60 : 40 とした。一方タルクの添加量は 0 から 5 phr とした。タルクの分散性は PLA の等温結晶化率および結晶の広がり強く依存し、PBS の場合が大きな球晶に成長するのと対比的であった。PLA 単体と PLA と PBS のブレンド中における PLA を比較すると、ブレンド比率 80:20 ではタルクの添加により明らかに結晶化は促進された。一方、ブレンド比率 60:40 では、低温において PBS の結晶化挙動が観察された。PLA と PBS のブレンドにおいて、アブラミ式の n 値は 2.4 から 4.7 であった。これは、結晶が三次元で成長していることを示している。

第5章

全体の結論および将来の展望について述べた。

論文審査の結果の要旨

非分解性のプラスチックの環境中への拡散が問題となっている。特に海洋中に拡散し食物連鎖中に浸潤するマイクロプラスチックは、今までとは違った観点から生分解性プラスチックの必要性の高まりを象徴している。本研究は、代表的な生分解性プラスチックであるポリ乳酸と、同じく生分解性プラスチックポリブチレンサクシネート-co-アジペート、およびポリブチレンサクシネートをブレンドし、さらにポリエチレングリコール、またはタルクを添加することにより機械的物性、熱的物性が改善されることを示すと共に、そのメカニズムについて考察している。本研究では、産業的に容易に利用可能な材料と方法を用いて物性をコントロールしそのメカニズムを明らかにしている。これらの点から、学術的・産業的に高く評価できる。

本博士論文の内容は申請者を筆頭とする論文 2 報に既に掲載済みであり、さらに申請者を筆頭とする論文 1 報を投稿中である。

1. Compression Molding and Melt-spinning of the Blends of Poly(lactic acid) and Poly(butylene succinate-co-adipate), Weraporn Pivsa-Art, Sommai Pivsa-Art, Kazunori Fujii, Keiichiro Nomura, Kiyooki Ishimoto, Yuji Aso, Hideki Yamane and Hitomi Ohara, *Journal of Applied Polymer Science* 2015, DOI: 10.1002/APP.41856.

2. The Effect of Poly(ethylene glycol) as Plasticizer in Blends of Poly(lactic acid) and Poly(butylene succinate), Weraporn Pivsa-Art, Kazunori Fujii, Keiichiro Nomura, Yuji Aso, Hitomi Ohara and Hideki Yamane, *Journal of Applied Polymer Science* 2016, DOI: 10.1002/APP.43044.
3. Isothermal Crystallization Kinetics of Talc Filled Poly(lactic acid) and Poly(butylene succinate) Blend, Weraporn Pivsa-Art, Kazunori Fujii, Keiichiro Nomura, Yuji Aso, Hitomi Ohara and Hideki Yamane, *Journal of Applied Polymer Science*, be going to submit.