

21年08月19日

環境・生命 工学専攻	学籍番号	023846	指導 教員	辻 秀人 教授
申請者 氏名	Leevameng Bouapao			木曾 祥秋 教授
				金 熙濬 准教授

論文要旨 (博士)

論文題目	Crystallization and Spherulite Growth Behavior of Poly(lactide)-Based Biodegradable Polymer Blends [ポリ(乳酸)をベースとする生分解性ポリマーブレンドの結晶化および球晶成長挙動]
------	---

(要旨 1,200字程度)

汎用用途で使用した場合、ポリ(L-ラクチド)(PLLA)には、易加水分解性および低耐熱性などといった問題点がある。これまで、これら問題点を改善するため、PLLA以外の他の生分解性高分子とのブレンドに関する研究が多数報告されている。しかし、ポリ乳酸をベースとする生分解性ポリマーブレンドの結晶化および球晶成長挙動に関する報告はない。そこで、本研究では、ポリ乳酸をベースとする生分解性ポリマーブレンドの結晶化および球晶成長挙動について検討した。示差走査熱量測定(DSC)により、結晶化度(X_c)および結晶サイズを、広角X線回折(WAXS)および小角X線回折(SAXS)測定により、結晶種、 λ_c およびラメラ長周期(L)を、偏光顕微鏡(POM)により、球晶成長挙動を観察した。

非晶性であるポリ(DL-ラクチド)(PDLLA)の存在下における結晶性 PLLA の結晶化および球晶成長挙動を検討した。DSC 測定の結果より、結晶化過程において PLLA と PDLLA が互いに混合せず、相分離をしていることが示唆された。SAXS 測定の結果より、結晶化温度 (T_c) 130°Cにおいて、PLLA および PLLA/PDLLA ブレンドフィルムの L 値および結晶化領域の厚さがブレンド比に依存しないことが示唆された。これらの結果から、PDLLA が PLLA ラメラおよびラメラの内部から排除されていると考えられる。さらに、 $[X_{PLLA} = W_{PLLA} / (W_{PLLA} + W_{PDLLA}) = 0-1$ 、ここで、 W_{PLLA} および W_{PDLLA} は、それぞれ、PLLA および PDLLA の重量である。]の低下に伴い、ブレンドフィルムの球晶成長速度(G)値が低下し、球晶形態は乱れたものとなった。PDLLA の存在下における G の低下および乱れた球晶の増加は、PLLA-リッチな相内に含まれている微量の PDLLA 分子鎖が PLLA 球晶の成長点への拡散およびラメラ配向を阻害したためと考えられる。次に、低分子量 PLLA と低分子量ポリ(D-ラクチド)(PDLA)とを幅広いブレンド比でブレンドし、ステレオコンプレックス結晶化および球晶成長挙動を検討した。等温結晶化過程において、WAXS 測定の結果より、130°C以上の T_c では、全てのブレンドフィルムでは、ステレオコンプレックス球晶のみが形成された。また、同じ T_c で比較すると、PLLA および PDLA のホモ結晶の G に比べ、ステレオコンプレックス結晶の G が高く、 $[X_{PLLA} = W_{PLLA} / (W_{PLLA} + W_{PDLA}) = 0-1$ 、ここで、 W_{PLLA} および W_{PDLA} は、それぞれ、PLLA および PDLA の重量である。] = 0.5 において、最も高い G および X_c を示した。さらに、PLLA の結晶化促進剤としての代表的な生分解性ポリエステルであるポリ(ϵ -カプロラクトン)(PCL)、ポリ[(R)-3-ヒドロキシブチレート](PHB)、ポリグリコライド(PGA)の有効性について検討した。DSC および POM 測定の結果より、PCL と PGA が PLLA の核形成促進剤として有効であることがわかった。これに対して、PGA が PLLA の球晶成長促進剤として働いたことが示唆された。しかし、PHB の添加により、面積当たりの PLLA の球晶の数が低下したことが明らかとなった。これは PLLA と PHB と相溶性が高いことおよび PLLA よりも PHB のガラス転移温度(T_g)が低いことと考えられる。