

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Structure and Properties of Biodegradable Fibers of PHBH Produced by High-Speed Melt Spinning Process
著者(和文)	秦青
Author(English)	Qing Qin
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10445号, 授与年月日:2017年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:鞠谷 雄士,扇澤 敏明,塩谷 正俊,浅井 茂雄,松本 英俊
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10445号, Conferred date:2017/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	秦 青	
		氏 名	職 名		
論文審査 審査員	主査	鞠谷 雄士	教授	審査員	松本 英俊
	審査員	扇沢 敏明	教授		
		塩谷 正俊	准教授		
		浅井 茂雄	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、“Structure and Properties of Biodegradable Fibers of PHBH Produced by High-Speed Melt Spinning Process (高速熔融紡糸法により作製した生分解性 PHBH 繊維の構造と物性)”と題し、英文で書かれ、6章からなっている。第1章“General Introduction (緒論)”では、再生可能資源由来で生分解性を有する微生物産生脂肪族ポリエステル Poly(hydroxyalkanoate) の一種として開発が進められている、3-hydroxybutyrate (3HB)と 3-hydroxyhexanoate (3HH)の共重合体である Poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate) (PHBH)の繊維化につき、室温以下の低ガラス転移点と低結晶化速度に由来する繊維間膠着などの熔融成形性の課題を高速熔融紡糸法の適用により克服することを目指す本研究の目的と意義について述べている。

第2章“Effect of Processing Conditions on Structure and Properties of Biodegradable PHBH Fibers Prepared in High-speed Melt Spinning Process (高速熔融紡糸法により作製した生分解性 PHBH 繊維の構造と物性に及ぼす成形条件の効果)”では、3HH 組成の異なる2種類の PHBH の高速熔融紡糸において、熱分解の影響を考慮し、押出温度、総吐出量を変えて繊維を作製している。高 3HH 組成(10.4 mol%)の樹脂(PHBH-H)の高速熔融紡糸を様々な吐出条件で行い、高速域で低配向の α 晶の形成は確認できるが、繊維間の膠着は阻止できないとの結果を得ている。一方、低 3HH 組成(5.4 mol%)の樹脂(PHBH-L)では、純粋な PHB の結晶核が消失すると言われている 180 °C 以上の吐出温度において、低速域では繊維間の膠着が起こるのに対し、高速域では紡糸過程で配向結晶化が起こり、分離した繊維が製造できることを確認している。さらに繊維の構造形成挙動には、熔融吐出過程での熱分解が大きな影響を及ぼすため、低吐出温度、高吐出量の条件で繊維構造形成が促進されることを示している。

第3章“Characterization of β -form Crystals in High-Speed Melt Spun Fibers of Biodegradable PHBH (生分解性 PHBH 高速熔融紡糸繊維中の β 晶解析)”では、広角 X 線回折(WAXD)による解析を通じ、PHBH-L の高速紡糸繊維には高配向の α 晶が形成され、紡糸速度の増加に伴い α 晶の配向度の増加とともに、 β 晶に由来する結晶反射が赤道上に観測され始めることを示している。また、PHBH の α 晶の固有複屈折が負であるため高速紡糸繊維も負の複屈折を示し、紡糸速度の増加に伴いその絶対値は増加するが、高速度域で β 晶が形成されるようになると、 β 晶の固有複屈折が正の値をもつため、逆に複屈折の絶対値が低下することを明らかにしている。一方、高速紡糸繊維の力学特性は紡糸速度の増加に伴い向上し、紡糸速度 6 km/min、押出温度 180 °C、総吐出量 10 g/min (4 filaments)の条件で、最大の強度(156 MPa)、弾性率(2.43 GPa)を得ている。また、WAXD 解析から得た β 晶分率と繊維強度が高い正の相関を示すことを見出している。

第4章“Fiber Structure Development in High-speed Melt Spinning of Biodegradable Fibers of PHBHs with Different Melt Flow Indices (流動特性の異なる PHBH からなる生分解性繊維の高速熔融紡糸における繊維構造形成)”では、PHBH の熱分解の影響について検討するため、流動特性 (Melt Flow Index, MI) が大きく異なる低 3HH 組成の PHBH の高速熔融紡糸を行い、紡糸条件と繊維の構造・物性の関係について検討している。様々な吐出条件で吐出した繊維の分子量測定により、熱分解速度定数の温度依存性は、MI の異なるポリマーが同様の傾向を示すことを確認している。一方、膠着せず分離した繊維が得られる紡糸速度は MI の増加に伴い高速側にシフトするとの結果を得ている。さらに吐出量が繊維構造形成に及ぼす影響は、MI が低いポリマーと高いポリマーでは逆の傾向を示し、吐出量の減少に伴い低 MI ポリマーでは繊維構造形成は抑制されるが、逆に高 MI ポリマーでは促進されることを見出し、これは低 MI ポリマーでは吐出量低下に伴う分子量低下の影響が支配的であるのに対し、高 MI ポリマーでは、吐出量低下に伴う紡糸過程での熔融延伸比増加の影響が支配的になるためと考察している。

第5章“Fiber Structure Development in High-speed Melt Spinning of Sheath-core Bicomponent Fibers of PHBHs with Different 3-hydroxyhexanoate Compositions (3-hydroxyhexanoate 組成の異なる PHBH からなる芯鞘型複合繊維の高速熔融紡糸における繊維構造形成)”では、PHBH-L を鞘成分、PHBH-H を芯成分とする複合繊維の高速熔融紡糸を行い、紡糸速度と芯、鞘各成分の構造の関係について検討している。その結果、特に吐出温度が高い条件で、高い紡糸速度域では鞘成分である PHBH-L の分子配向は高い値を示すが、芯成分である PHBH-H の分子配向は著しく低い値を示すことを明らかにし、その原因として、紡糸線の細化が PHBH-L の配向結晶化に伴って抑制されると PHBH-H の配向緩和が進むためと考察している。さらに、PHBH-H を主体に複合紡糸の結果を考えると、PHBH-L との複合化により可紡性が改善され、また高速度域では繊維間の膠着が抑制され分離した繊維が得られるという利点があると述べている。

第6章“General Conclusions (結論)”では、本研究で得られた結果を総括している。以上これを要するに本論文は、高速熔融紡糸法の適用により成形性の著しく低い PHBH の繊維化が可能であり、異なる紡糸条件での繊維構造の形成挙動や力学特性の変化が、熔融吐出時の分子量低下の影響を含む紡糸線の運動力学的な解釈により予測可能であることを示したものであり、工学上・工業上貢献するところは極めて大きい。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。