

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ポリ乳酸をベースとしたポリマーブレンド及びフィラー充填高分子複合材料の構造と物性
Title(English)	
著者(和文)	井口友莉
Author(English)	Yuri Iguchi
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11278号, 授与年月日:2019年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:浅井 茂雄,鞠谷 雄士,扇澤 敏明,森川 淳子,塩谷 正俊
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11278号, Conferred date:2019/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文の要約

物質理工学院 材料コース 井口友莉

本論文は「ポリ乳酸をベースとしたポリマーブレンド及びフィラー充填高分子複合材料の構造と物性」と題し、6章より構成されている。

第1章「緒言」では、ポリ乳酸(ポリ-L-乳酸(PLLA)およびポリ-D-乳酸(PDLA))の結晶多形や、ポリ乳酸をベースとしたポリマーブレンドやフィラー充填高分子複合材料に関する既往の研究を紹介した。また、PLLA/PDLA組成が非対称のポリマーブレンドや導電性フィラー充填ブレンドについて、熔融混練中のステレオコンプレックス(SC)結晶の形成が、これらの結晶化挙動や熱的性質、電気的性質などの物性、相構造、フィラー分散性に与える影響を明らかにする本研究の目的と意義を述べた。

第2章「PLLA/PDLAブレンドの熔融混練によるステレオコンプレックス結晶の形成」では、PDLA組成10wt%、20wt%のPLLA/PDLAブレンドをホモ結晶の融点以上かつSC結晶の融点以下の温度である190℃で、熔融混練と圧縮成型、または冷結晶化し、せん断場と静置場におけるSC結晶の結晶化挙動を比較した。SC結晶の結晶化度は、10分～45分のいずれの190℃の処理時間でも、せん断場の方が静置場よりも高い値を示すこと、また、PDLA組成が多いほど高くなることを明らかにした。

第3章「カーボンブラック充填 PLLA/PDLA ブレンドのフィラーの分散性と電気的性質」では、PDLA組成10wt%、20wt%のPLLA/PDLAブレンドの熔融混練中にカーボンブラック(CB)を添加し、CB充填PLLA/PDLAブレンドを作製した。直流体積抵抗率測定より、SC結晶の結晶化度が高い試料ほどパーコレーション閾値が高いことがわかった。試料断面をSEMで観察し、森下指数を用いてフィラーの分散状態を評価した結果、CB充填PLLAでは集中分布を示した一方、CB充填PLLA/PDLAブレンドではSC結晶の結晶化度が高くなるにつれてランダム分布から一様分布を示し、フィラーの分散性が向上することがわかった。また、交流インピーダンス測定を行い、等価回路に基づいてフィラーの分散状態を考察した。同じCB充填量の試料を比較すると、SC結晶の結晶化度の高い試料ほど、フィラー凝集体間のマトリックスポリマーに由来する抵抗が大きく、静電容量が小さいことが明らかになった。また、導電ネットワークに由来する自己インダクタンスはSC結晶の結晶化度の高い試料で小さくなった。これらの結果は、SC結晶の形成により、フィラー凝集体間に存在するマトリックスポリマーが多く、導電性ネットワークが形成されにくくなることを示しており、フィラーの分散性が向上したことが分かった。以上の森下指数による解析、パーコレーション閾

値、交流インピーダンス測定の解析結果から、SC 結晶の形成によってフィラーの分散性が向上することが明らかにした。

第4章「PLLA/PDLA/PMMA ブレンドの溶融混練によるステレオコンプレックス結晶の形成」では、PLA と相溶である PMMA を用いた PLLA/PDLA/PMMA ブレンドの溶融混練における SC 結晶の形成について検討した。PLLA/PDLA/PMMA ブレンドの 190℃での溶融混練（せん断場）によって形成された SC 結晶の結晶化度は、PDLA 組成に比例して増加し、PMMA 組成に依存しないことがわかった。一方、190℃での等温冷結晶化（静置場）で形成された SC 結晶の結晶化度は、せん断場で SC 結晶を形成した場合よりも低く、PMMA 組成の増加に伴い減少することがわかった。DMA 測定と DSC 測定から、SC 結晶の結晶化度が高く PMMA 組成が多い PLLA/PDLA/PMMA ブレンドでは、SC 結晶の形成により PLA リッチ相と PMMA リッチ相へ相分離することを明らかにした。また、等温冷結晶化によるホモ結晶の形成では、PMMA 組成の増加と SC 結晶化度の増加に伴い、ホモ結晶の結晶化度と結晶化速度が低下することがわかった。DMA 測定より、SC 結晶の結晶化度が大きいほど、ガラス転移温度以上かつホモ結晶の融点以下の温度域での貯蔵弾性率が増加することがわかった。

第5章「カーボンブラック充填 PLLA/PDLA/PMMA ブレンドのフィラー分散性と電気的性質」では、PLLA/PDLA/PMMA ブレンドの 190℃での溶融混練中に CB を添加し、CB 充填 PLLA/PDLA/PMMA ブレンドを作製し、その電気的性質とフィラー分散状態の関係を評価した。CB 充填 PLLA/PDLA/PMMA ブレンドの SC 結晶の結晶化度は、CB 充填量によって大きく変化せず、マトリックスポリマーのブレンド組成に依存することが分かった。CB 充填 PLLA/PDLA ブレンドと同様に、CB 充填 PLLA/PDLA/PMMA ブレンドにおいても、SC 結晶の結晶化度が高いほど高いパーコレーション閾値を示したが、PMMA 組成の増加に伴い、その変化は小さくなった。SEM 観察と森下指数の解析より、CB 充填 PLLA/PDLA ブレンドと同様に、CB 充填 PLLA/PDLA/PMMA ブレンドにおいても、SC 結晶の結晶化度の増加に伴いフィラーの分散状態が向上するが、PMMA 組成の増加に伴い、その変化は小さくなった。すなわち、PMMA 組成が少ないほど、SC 結晶の結晶化度の増加によるパーコレーション閾値の増加やフィラー分散性の向上がより顕著に見られることを明らかにした。

第6章「結言」では、本研究で得られた結果を総括した。