

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ポリグリコール酸繊維の構造と物性及び加水分解特性
Title(English)	Structure-Property Relations and Hydrolysis Characteristics of Poly(glycolic acid) Fibers
著者(和文)	三枝孝拓
Author(English)	Kotaku Saigusa
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11446号, 授与年月日:2020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,松本 英俊,浅井 茂雄,塩谷 正俊
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11446号, Conferred date:2020/3/26, 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	三枝 孝 拓	
論文審査 審査員		氏 名	職 名	氏 名	職 名
	主査	鞠谷 雄士	教授	塩谷 正俊	准教授
	審査員	扇澤 敏明	教授		
		松本 英俊	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「ポリグリコール酸繊維の構造と物性及び加水分解特性」と題し、以下の7章から構成される。

第1章「緒論」では、機械特性やガスバリア性に優れた性質を示す生分解性高分子材料であるポリグリコール酸(PGA)の特徴と用途事例について述べ、開発が進むPGA繊維においてさらなる高強度化及び加水分解性制御技術が求められている背景についてまとめるとともに、これら課題に対し、直接紡糸延伸法及び高速紡糸法により作製したPGA繊維の構造と物性の検討を通じた高強度繊維の開発及び加水分解機構の解析を通じた加水分解速度制御技術の開発を目指そうとする本研究の目的と意義を記している。

第2章「直接紡糸延伸法によるポリグリコール酸繊維の構造と物性」では、直接紡糸延伸法により異なる紡糸速度で調製した未延伸繊維をインライン延伸して得たPGA繊維の構造と物性について検討し、低速で紡糸した未延伸繊維を高度に延伸することで高強度繊維が得られることを示している。さらに、複屈折と広角X線回折測定に基づく結晶配向度、結晶構造と結合分極率から見積もったPGAの固有複屈折を併せて算出した非晶配向係数の延伸に伴う変化から、高配向の非晶相の存在がPGA繊維の高い機械物性に反映されることを結論している。

第3章「ポリグリコール酸繊維の加水分解機構解析」ではPGA繊維の加水分解が、PGA分子鎖のカルボン酸(COOH)末端基と、熔融紡糸工程で生成するグリコリド(GL)の分解により生成するグリコール酸のCOOH末端基の存在により加速することを示すと同時に、分子鎖末端封止剤によるPGA分子鎖のCOOH末端基の封止と、重合触媒失活剤の添加によるGL生成の抑制を通じて延伸繊維の加水分解を抑制できることを示している。また、加水分解速度を決定する繊維中のCOOH末端基濃度にはGL量が支配的に関わっていることを明らかにし、PGAの加水分解速度定数とGLの分解速度定数に支配される加水分解機構に基づくモデルを提案するとともに、分子量保持率に基づく加水分解挙動の測定結果と併せ、GLの分解速度定数は重合触媒の条件に依存すると結論している。

第4章「絡み合い構造制御によるポリグリコール酸繊維の力学特性の改善」では、熔融紡糸工程におけるポリマー-熔融物伸長時のデボラ数の減少により絡み合い点密度の低下が抑制されるとともに分子鎖の絡み合い状態が均質化され、この手法で得た未延伸繊維の延伸により高靱性・高強度繊維の繊維が得られるとする「熔融構造制御」の概念に基づいてPGA繊維の力学特性の改善を試みている。その結果、紡糸口金直下に加熱筒を設置するとともに熔融紡糸を低紡糸速度で行うことで紡糸線のデボラ数を減少させると高靱性の未延伸繊維が得られることを示すと同時に、続くインライン延伸工程を経て製造した繊維は高強度・高靱性を示すことを明らかにし、強度7.7cN/dtexの高強度繊維の開発に成功している。さらに、絡み合い点密度とネットワーク延伸比の評価を通じて分子鎖の絡み合い状態制御の概念の適用性を検証し、デボラ数の低い紡糸条件を採用することで熔融紡糸工程における絡み合い点密度の低下が抑制されることを示している。

第5章「高速紡糸法によるポリグリコール酸繊維の構造と物性」では、高速紡糸法により調製したPGA繊維の構造と物性を直接紡糸延伸法による繊維と比較検討し、高速紡糸過程の応力誘起結晶化により、紡糸工程のみで高度に発達した高配向の結晶相と低配向の非晶相からなるPGA繊維が形成されることを明らかにしている。さらに、紡糸速度の高速化に伴い密度や微結晶サイズが大きくなり、小角X線散乱測定から得られる長周期が増大し、示差走査熱量計分析において融点が増大するとともに新たな融解ピークが出現することを確認し、これら高速紡糸繊維の特徴的な構造は、繊維の低熱収縮率と高い機械物性に反映されると結論している。

第6章「ポリグリコール酸繊維の加水分解挙動の繊維構造依存性」では、第5章で調製した様々な繊維構造を有するPGA繊維を用いて加水分解挙動の繊維構造依存性について検討している。加水分解挙動は分子量保持率と重量減少率で評価し、PGA繊維はそれぞれの調製方法によって固有の加水分解速度を示し、その加水分解過程が繊維構造依存性を示すことを明らかにするとともに第3章で提案した加水分解機構に基づいて検証している。この解析より、加水分解の初期過程では分子内への水の拡散や分解により生成したCOOHの拡散が結晶化度や分子配向に依存し、その後分子量が著しく低下して重量減少が開始すると結論している。

第7章「総括」では、本研究で得られた結論を総括している。これを要するに本論文は、直接紡糸延伸法と高速紡糸法によるPGA繊維の構造と物性を明らかにし、紡糸線上での分子鎖の絡み合い状態の制御を通じて高強度繊維を得る手法を見出すとともに、加水分解機構に重合触媒が関与する新たな加水分解モデルを提案することを通じてPGA繊維の高強度化及び加水分解制御技術の指針を示したものであり、工学上・工業上貢献するところが大きい。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。