

|           |                                                                  |
|-----------|------------------------------------------------------------------|
| 氏 名       | アハメッド エレサルマウイ<br><b>Ahmed Sabbah EL-Din EL-SALMAWY</b>           |
| 学位(専攻分野)  | 博 士 (工 学)                                                        |
| 学 位 記 番 号 | 博 甲 206 号                                                        |
| 学位授与の日付   | 平成12年3月24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 機能科学専攻                                                   |
| 学位論文題目    | <b>Development of New Fibers Based on Biodegradable Polymers</b> |
|           | (主査)                                                             |
| 審 査 委 員   | 教 授 木 村 良 晴                                                      |
|           | 教 授 高 橋 雅 興    教 授 切 刀    滋    助 教 授 宮 本 真 敏                     |

## 論 文 内 容 の 要 旨

ポリエステル繊維のアルカリ減量糸はアパレル素材として広く使用されているが、加水分解により生成する分解残渣が大量に蓄積し、その処理負荷は大きくなる一方であり、酵素によるバイオ加工法等、クリーンな環境適合技術の開発が必要となる。本研究ではこのような目的のために、生分解性の脂肪族ポリエステルを用いた新しい繊維加工の可能性を検討した。特に、従来の芳香族含有ポリエステルを芯に、脂肪族ポリエステルを鞘に有する芯鞘型複合繊維の開発と、その酵素・アルカリ処理による鞘層の減量加工法の開拓について検討を行なった。論文は、研究の位置づけを述べた序文と4章からなる。

第1章では、生分解性の脂肪族ポリエステルとして、ポリコハク酸ブチレン(PBS)とコハク酸ブチレン/L-乳酸共重合体(PBSL)を選び、その繊維構造と物性を評価した。まず、熔融紡糸と冷延伸をオンラインで行うことにより、高強力のPBS、PBSL繊維を得た。両繊維の引張強度、引張弾性率は、延伸倍率の増加とともに上昇したが、ポリマーのガラス転移点が高いため伸度はかなり高い値となった。これらの繊維の特性ならびに分子配向は、汎用の合成繊維であるナイロン6繊維に対応するものであった。PBS、PBSL繊維は、リン酸緩衝溶液中ではほとんど分解されないが、Pseudomonas由来のリパーゼを作用させることにより速やかに酵素分解されることを確認した。これらの結果より、PBS連鎖中に少量のL-乳酸単位を導入しても、繊維の力学的性質や、分解性に大きな影響は生じないことが明らかとなった。

第2章では、芳香族含有ポリエステルであるポリブチレンテレフタレート(PBT)を芯に、脂肪族ポリエステルであるPBSLを鞘に有するポリエステル複合繊維を二層押し紡糸により作製した。複合繊維の強度は熔融延伸倍率及びPBT組成の増加とともに上昇した。また、PBSLの鞘部をアルカリ加水分解して得られるPBT芯繊維は、PBT単独繊維よりも高い結晶配向性を有しているのに対して、鞘部のPBSLは非晶であることが示された。この結果から、複合繊維の芯鞘間の界面接着力により、PBTの分子配向に伴う強い応力が界面を通じて鞘部に伝えられ、PBSLの結晶化が低下したと推定した。さらに、複合繊維はアルカリ処理だけでなくリパーゼを用いた酵素処理によっても、鞘部の加水分解が可能であることを認め、編組した繊維を用いて減量加工を試み、その効果を確認した。

第3章では、PBTを芯に、脂肪族ポリエステルであるポリ-L-乳酸(PLLA)を鞘に有するPBT-PLLA複合繊維を作製した。そして、紡糸条件並びに繊維物性について、PBT-PBSL複合繊維との比較を行った。PBT-PLLA複合繊維では、PBT-PBSL系ほど芯鞘間の界面接着力は強くないが、芯部のPBTが結晶配向するのに対して、鞘部のPLLAは非晶性のままであった。PLLA鞘部はアルカリ処理、酵素処理によって容易に除去され、減量繊維を与えることを確認している。

第4章では、ポリエチレンテレフタレート(PET)を芯に、PBSL、PLLAを鞘に有する複合繊維を作

製した。PETの融点は、PBSL、PLLAの分解点をこえており、紡糸中に界面でエステル交換反応が誘起されて、芯鞘のポリマーが相溶した界面層を形成することが見いだされた。この芯鞘間の界面接着性の上昇によって、複合繊維の降伏強度だけでなく破断強度も大きく上昇することが見いだされた。また、アルカリ加水分解によっても鞘部は完全に除去されず、表面に斑点状に残留していた。

これら新しく開発された複合繊維素材は、アパレル新素材となるだけでなく、表面組織の異なるポリエステル繊維として人工血管等の新医用材料や藻や貝の付着を抑制するマリーンファイバーなどの用途に応用できるものと考えられる。また、アルカリ・酵素処理により、環境に優しいポリエステル繊維の減量加工も可能となる。

#### 論文審査の結果の要旨

本論文は、生分解性ポリマーを利用した新しい繊維の開発について、精力的に検討した結果をまとめたものである。生分解性の脂肪族ポリエステルとして、近い将来大量生産されるであろうポリコハク酸ブチレン (PBS)、コハク酸ブチレン/L-乳酸共重合体 (PBSL)、およびポリ-L-乳酸 (PLLA) を選び、その繊維物性を検討すると共に、PETやPBTのような芳香族系ポリエステルとの複合化について検討を加えた。特に、PETとPBTを芯に、PBSLとPLLAを鞘に有する芯鞘型複合繊維の開発は、注目を集めたものであり、高く評価される。また、PETとの組み合わせにおいて芯鞘間にエステル交換反応による接着界面層が形成され、極めて興味深い繊維特性が実現された点は繊維科学上の興味を集めるものと思われる。また、複合繊維の酵素・アルカリ処理によって脂肪族ポリエステル層の分解を行い、環境低負荷型の繊維減量加工が可能なことを示した。得られた複合繊維は実用材料として種々の応用を図るレベルにまで到達している。

本論文の内容は、申請者を筆頭著者とする次の4報にまとめられており、1999年10月に開催された International Conference on Advanced Fiber Materials (Ueda)において、第4報の内容でPoster Awardを受賞している。以上の審査結果より、本論文は博士論文として十分な内容を備えていると判定される。

#### 公表論文：

- (1) A. EL-Salmawy, H. Yamane, M. Miyamoto, and Y. Kimura: Properties and Degradability of Melt-Spun Fibers of Poly(butylene succinate) and its Copolymer with L-Lactic Acid. Sen-i Gakkaishi, 55 (3), 120-126 (1999).
- (2) A. EL-Salmawy, M. Miyamoto, and Y. Kimura: Preparation of a Core-Sheath Bicomponent Fiber of Poly(butylene terephthalate) / Poly(butylene succinate-co-L-lactate). Textile Res. J. (in print.)
- (3) A. EL-Salmawy and Y. Kimura: Properties of a Core-Sheath Conjugate Fiber Composed of Poly(butylene terephthalate) and Poly(L-lactic acid). Sen-i Gakkaishi, 56(5), 241-248 (2000)
- (4) A. EL-Salmawy and Y. Kimura: Structure and Properties of Bicomponent Core-Sheath Fibers of Poly(ethylene terephthalate) and Biodegradable Aliphatic Polyesters. Textile Res. J. (in print)