

氏 名	ちょう りんめい <b>ZHANG LINMEI</b>
学位(専攻分野)	博 士 ( 学 術 )
学 位 記 番 号	博 甲 第 1 0 6 7 号
学位授与の日付	令和 4 年 9 月 26 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 先端ファイブ科学専攻
学 位 論 文 題 目	<b>Study on the development of highly functional materials by controlling the structure of polylactic acid</b> (ポリ乳酸の構造制御による高機能化に関する研究)
審 査 委 員	(主査)准教授 山田和志 教授 横山敦士 教授 佐久間淳

## 論文内容の要旨

本論文は、環境にやさしいポリマーの 1 つであるポリ乳酸 (PLA) の構造を制御することにより、高機能性 PLA を開発することを目的としている。一般的に PLA をはじめとする生体適合性プラスチックの多くは耐熱性や耐薬品性が低く、脆い材料が多い。それゆえ、これらバイオベース材料の高機能化に関する基礎的な研究は今後の製品材料として用いるために重要である。本論文では、ナノ多孔質 PLA ファイバーの創製ならびに PLA/天然繊維複合材料の設計を行い、これらの新たな機能性について詳細に検討している。本論文は 5 章から構成されており、以下に各章の概要を示す。

第 1 章では本論文の背景として、一般的なバイオベース材料の物性や研究動向、ナノファイバー作製法、複合材料の最適化などについてまとめ、本論文の目的および構成について述べている。

第 2 章では、PLA/クロロホルム溶液を用いたワンステップ回転遠心紡糸法により、均一なナノ多孔質 PLA マイクロファイバーを作製し、溶媒蒸気アニーリング前後のナノ多孔質 PLA ファイバーの構造変化とオイル吸着能力を系統的に評価している。本章では PLA マイクロファイバーの表面および内部にナノ孔が形成されることにより従来のオイル吸着フィルターと比較して 1.2 倍以上の高給油性能を有するファイバー創製に成功している。

第 3 章では、PLA の耐久性ならびに機械的性質向上を目的として、PLA マトリックスに対して 40wt% の高い割合で綿繊維を含む PLA/綿繊維複合材料試験片を設計している。これらの試験片に対して 60℃、2000 時間までの加速劣化試験を行い、フーリエ変換赤外分光法(FT-IR)、接触角測定、蛍光分光測定、示差走査熱量計(DSC)、引張試験で加熱による PLA および綿繊維の劣化への影響を評価している。本章では綿繊維を特定の反応性表面処理剤で処理することにより界面接着性を維持できることを提案している。

第 4 章では、第 3 章と同じ材料および加速劣化試験条件を用いて、加速劣化前後における PLA の等温結晶化速度およびその後の熔融挙動に及ぼす反応性表面処理剤および非反応性表面処理剤の影響を評価している。さらに DSC 熱解析結果と機械的特性の変化の相関性を明らかにしてい

る。

第 5 章では本論文で得られた知見をまとめ、結論として本論文の成果と今後の展望とを総括している。

## 論文審査の結果の要旨

石油化学由来の合成プラスチックに代わる材料としてバイオベース材料が大きな関心を集めている。特にポリ乳酸 (PLA) や天然繊維に関する研究が盛んに行われている。しかしながら、PLA をはじめとするバイオベースプラスチックの多くは耐熱性や耐薬品性が低く、脆い材料が多いため、製品への応用は限定的である。また、生分解性のみならず、高耐熱性、高強度、耐衝撃性、長期安定性など、従来の石油合成プラスチックに求められる性能、あるいはそれ以上の性能が期待されている。それゆえ、これらバイオベース材料の高機能化に関する基礎的な研究は今後の製品材料として用いるために重要である。本論文ではまず、独自に設計した回転遠心紡糸装置を用いることによりナノ多孔質 PLA ファイバーの創製に成功している。さらに、作製したナノ多孔質 PLA ファイバーはアセトン蒸気雰囲気下でナノ多孔質構造を維持したまま結晶化することを明らかにし、それらファイバーシートは食用オイルやポンプ用オイルを約 30g/g と自重の約 30 倍吸着できることを示した。これは論文発表時において世界で最も高い数値であり、排水中に含まれるオイルなどの分離フィルターへの応用が期待できる。また、PLA/綿繊維複合材料の加速劣化試験において、綿繊維の表面処理剤としてエポキシ処理剤を用いることにより、PLA ならびに繊維界面の劣化を抑制することに成功しており、研究成果のオリジナリティは高い。さらに、本章では加速劣化させた試験片の評価法として 3 次元蛍光分光法を取り入れることによる表面酸化劣化評価、DSC の等温結晶化測定・熱解析手法を取り入れることによる劣化評価は短時間で簡便に測定できることから、その他の高分子材料の劣化評価できる可能性がある。以上のように、本論文には十分な新規性を有用性が認められる。

本論文の内容は、申請者を筆頭著者としてレフェリー制度の確立した国際的に著名な雑誌に掲載された基礎論文 2 報、参考論文 1 報からなる。また、いずれの論文においても、二重投稿等の研究者倫理に反することがないことを確認した。

(学術論文)

1. "Development of highly oil-absorbent polylactic-acid microfibers with a nanoporous structure via simple one-step centrifugal spinning", Linmei Zhang, Chieko Narita, Yuki Himeda, Hidekazu Honma, Kazushi Yamada, Separation and Purification Technology 282 (2022) 120156.
2. "Effect of surface treatment of cotton fibers on the durability of polylactic acid/cotton-fiber biocomposites", Linmei Zhang, Jiaru Zhou, Hiroki Sakamoto and Kazushi Yamada, Advanced Composite Materials, 2022, pp.1-17. (DOI=10.1080/09243046.2022.2055515)

(参考論文)

1. "Nucleation and crystallization analysis of poly (lactic acid)/cotton-fibers composites during thermal degradation", Linmei Zhang, Jiaru Zhou, Hiroki Sakamoto, Kazushi Yamada, Journal of Polymers and the Environment, Submitted.

以上の結果より、本論文の内容には新規性と独創性、さらに学術的な意義があると審査員全員が認めた。