

( 続紙 1 )

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                                      |    |                    |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|--------------------|
| 京都大学                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | 博士（農学）                                                                                                                                               | 氏名 | Lisman Suryanegara |
| 論文題目                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | ACCELERATION OF THE MOLDING CYCLE OF SEMI-CRYSTALLINE POLYLACTIC ACID BY CELLULOSE NANOFIBERS REINFORCEMENT<br>(セルロースナノファイバー補強による結晶性ポリ乳酸樹脂の成形サイクル促進) |    |                    |
| <p>(論文内容の要旨)</p> <p>化石資源に依存しない社会、地球温暖化ガスの排出が少ない社会の構築に向けて、持続型バイオマス資源の先進的利用への関心が高まっている。その中で、プラスチック原料を石油資源からバイオマス資源に置き換えるための、バイオ系ポリマーの研究が活発に行われている。なかでもポリ乳酸樹脂は、デンプン等から製造される高弾性のプラスチックとして期待が高い。しかしながら、主として構造用途に用いられる結晶性ポリ乳酸樹脂は、高分子鎖の剛直性に起因して結晶化速度が遅く、射出成形サイクルが長いことから生産性に劣り、本格的な実用化には至っていない。本研究は、木材パルプを機械的に解繊して得られる高弾性のマイクロフィブリル化セルロース（MF C）により結晶性ポリ乳酸樹脂を補強することで、化石資源由来成分への依存度を減らしながら、射出成形サイクルの大幅低減および力学的特性の向上を目指したものである。本論文の内容は以下のように要約される。</p> <p>第一章では、結晶性ポリ乳酸樹脂について、化学構造や力学的特性等から、構造用途に使用する際の課題を製造プロセスを含めて整理するとともに、MF C等の植物由来繊維材料との複合化および結晶化促進技術に関する既往の研究を概説した。</p> <p>第二章では、ポリ乳酸樹脂を溶解する有機溶媒を用い結晶性ポリ乳酸樹脂中にMF Cを均一分散させる手法（溶媒法）を確立した後、溶媒法により作製したMF C補強ポリ乳酸樹脂成形試料について、非晶状態と結晶化状態（結晶化度：40%）においてMF C添加率と力学的特性の関係を中心に検討した。その結果、非晶状態、結晶化状態の両方において、MF Cの添加によりポリ乳酸樹脂の弾性率のみならず引張強度も向上すること、結晶化させたMF C補強ポリ乳酸樹脂は、ガラス転移温度以上でも高い弾性率を保つことを明らかにした。</p> <p>第三章では、溶媒法により作製したポリ乳酸樹脂および10wt%MF C添加ポリ乳酸樹脂について、結晶化の程度と強度特性、動的粘弾性、熱変形特性との関係を検討した。その結果、MF Cにはポリ乳酸樹脂の結晶化を促進する効果があること、MF C補強ポリ乳酸樹脂は結晶化度が17%であっても結晶化ポリ乳酸樹脂（結晶化度：41%）より高い弾性率ならびに引張強度を示すとともに同等の高温弾性率、クリープ変形特性を示し、110℃、1時間の片持ちばりテストにおいても変形しないこと、したがって、MF Cで補強する場合は、ポリ乳酸樹脂を完全に結晶化させなくても実用的に十分な力学的特性や耐熱性が得られることを明らかにした。</p> <p>第四章では、第二章、第三章の結果を踏まえ、MF C補強ポリ乳酸樹脂における結晶化促進剤の効果について検討した。その結果、フェニルホスホン酸亜鉛を核剤として用いることにより、MF C補強ポリ乳酸樹脂の結晶化が大幅に促進されること、MF C補強による高温側での弾性率増大との相乗効果により、金型温度95℃でポリプロピレン樹脂成形に匹敵する20秒の射出成形サイクルで結晶化度15%、厚さ1mmの試片を変形することなく取り出せること、この射出成形試片は、結晶化ポリ乳酸樹脂（結晶化度：40%）より優れた強度特性、同等の高温弾性率および片持ちばりの熱変形特性を示すことを明らかにした。</p> |                                                                                                                                                      |    |                    |

以上の様に、本研究では、マイクロフィブリル化セルロースによる補強が、結晶性ポリ乳酸樹脂の力学的特性ならびに射出成形品の生産性向上に有効であることを見出した。

注) 論文内容の要旨と論文審査の結果の要旨は1頁を38字×36行で作成し、合わせて、3,000字を標準とすること。

論文内容の要旨を英語で記入する場合は、400～1,100 wordsで作成し  
審査結果の要旨は日本語500～2,000字程度で作成すること。

(論文審査の結果の要旨)

ポリ乳酸樹脂は、デンプン等のバイオマス資源から製造されるバイオプラスチックである。脱石油社会におけるプラスチックとして、長年その製造と利用に関する研究が行われている。ポリ乳酸樹脂には、その構造組成によって主として包装用途に用いられる非晶性樹脂と主として構造用途に用いられる結晶性樹脂があるが、結晶性樹脂は結晶化に時間を要することから生産性に劣り、ポリ乳酸樹脂の構造用途への応用展開が遅れている。本論文は、木材パルプを機械的に解繊して得られる高弾性のマイクロフィブリル化セルロース (MFC) により結晶性ポリ乳酸樹脂を補強することで、化石資源由来成分への依存度を減らしながら、射出成形サイクルの大幅低減および力学的特性の向上を目指したものである。評価すべき主要な点は以下の通りである。

1. MFCが結晶性ポリ乳酸樹脂中に均一分散すると、結晶化後のポリ乳酸樹脂において、弾性率のみならず強度も向上することを明らかにした。また、MFC補強により、ポリ乳酸樹脂はガラス転移温度以上でも高い弾性率を保つことを明らかにした。

2. MFC補強ポリ乳酸樹脂について、結晶化の程度と力学的特性との関係を検討し、MFCにはポリ乳酸樹脂の結晶化を促進する効果があることを明らかにした。さらに、MFCで補強すると、ポリ乳酸樹脂を完全に結晶化させなくても、実用的に十分な力学的特性や耐熱性が得られることを示し、射出成形サイクルを短縮出来る可能性があることを明らかにした。

3. フェニルホスホン酸亜鉛を核剤として用いると、MFC補強ポリ乳酸樹脂の結晶化が大幅に促進されることを射出成形品において明らかにした。また、MFC補強による高温弾性率の増大により、通常、ポリ乳酸樹脂単体では完全に結晶化させないと取り出せない金型温度であっても、MFC補強ポリ乳酸樹脂は、結晶化度15%でも変形せずに取り出せることを明らかにした。さらに、核剤添加との相乗効果により、結晶化ポリ乳酸樹脂単体より優れた力学的特性を有する射出成形体が、ポリプロピレン樹脂に匹敵する短い成形サイクルで得られることを示した。

以上の様に、本研究では、セルロースナノファイバーによる補強が、結晶性ポリ乳酸樹脂の力学的特性の向上のみならず射出成形品の生産性向上にも有効であることを見出したものであり、生物機能材料学、複合材料学、セルロース科学に寄与するところが大きい。

よって、本論文は博士（農学）の学位論文として価値あるものと認める。

なお、平成23年2月14日、論文並びにそれに関連した分野にわたり  
試問した結果、博士（農学）の学位を授与される学力が十分あるものと認めた。

注) Webでの即日公開を希望しない場合は、以下に公開可能とする日付を記入すること。  
要旨公開可能日： 年 月 日以降