

氏 名	ファウジ フェブリアント Fauzi Febrianto
学位(専攻分野)	博 士 (農 学)
学 位 記 番 号	農 博 第 1043 号
学位授与の日付	平成 11 年 3 月 23 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	農 学 研 究 科 森 林 科 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	PREPARATION AND PROPERTIES ENHANCEMENT OF MOLDABLE WOOD-BIODEGRADABLE POLYMER COMPOSITES (成形可能な木材-生分解性高分子複合材料の調製と物性増強) (主査)
論 文 調 査 委 員	教 授 白 石 信 夫 教 授 中 坪 文 明 教 授 松 本 孝 芳

論 文 内 容 の 要 旨

優れた物性、流動特性、および生分解性を有する複合材料を得る目的で、木材・セルロース/生分解性高分子系複合材料の開発の研究が進められた。5種の生分解性ポリマー、すなわち、ポリ乳酸 (PLA)、ポリカプロラクトン (PCL)、天然ゴム、および、シスおよびトランスイソプレンゴムがマトリックス樹脂として、また、木粉、セルロース粉末がバイオマス充填剤として選ばれた。その上で、上述した新規な物性をもつバイオマス粉末/熱可塑性樹脂複合材料の開発研究が進められたが、主な成果としては、以下の事項が挙げられる。

1. PLAと無水マレイン酸 (MAH) とのジクミルペルオキシド (DCP) 存在下での、MAH付加PLA (MPLA) の調製を、ニーダーを反応機として用いて検討し、望ましい組成のMPLAの合成をなし得た。これを相溶化剤として用いて、それを含有しない対照複合材料に比べ、約2倍の引張強度を持つ、該複合材料を調製しうることを明らかにした。
2. 複合材料中におけるMPLAの役割、効果が詳細に検討された。特に、少量のMPLA存在下でのバイオマスとPLAとの160℃での15分間の混練中に、バイオマス充填剤表面にMPLAがMAHの酸無水物基によるエステル化によりグラフトされることが証明され、これにより、複合材料強度の増大が証明された。また、複合材料中での充填剤の分散性を明確に向上させ得る結果にもなっている。
3. 予めMPLAを調製することなしに、MAHと過酸化剤であるDCPをPLAと共に180℃で約5分間混練し、MPLAを得たのち、引き続きバイオマス充填剤を加えてさらに約15分間混練することによって複合材料化する、連続法と呼ぶ手法を開発し、満足しうる物性の複合材料を調製し得た。
4. バイオマス充填剤をマトリックス樹脂でエンキャプシュレーションした上で、マトリックス樹脂と複合化することにより、強度が1.2倍になるなど複合材料の物性増強を果し得ることを知った。
5. バイオマス充填剤とトランスイソプレンコム (TIR) との複合化に際しても、MAHによる後者の変性が効果的に行いうることを明らかにした。この場合、マトリックス樹脂の低分子化の問題が起こりがちであり、その回避のための条件設定が必要であったが、生成したMAH付加TIR (MTIR) を用いることにより、イソプレンゴムのバイオマス充填剤表面へのグラフト重合が明確に起こった。その結果、例えば90部のTIR、10部のMTIRおよび100部の木粉といった組成を持つ改良された複合材料では、MTIRを欠くコントロールに比べ、引張強度が2.5倍になり、水吸着量が激減することが知られた。MTIRを相溶化剤として含む複合材料では、マトリックス樹脂と充填剤の界面の接着性が高いことが、SEM観察によっても知られた。この研究の中でMAHを高濃度に使うことにより、破壊伸びの大きな複合材料が得られるようになったことは注目に値する。バイオマス充填剤側での可塑性が一要因として挙げられる。
6. バイオマス充填剤とシスイソプレンゴムの複合化が、過酸化剤であるDCPを用いてのマトリックス樹脂の架橋により良好に行いうることが知られた。MAH、酸化防止剤およびDCPそれぞれの添加量、さらに、混練反応時間をそれぞれ最適

化することにより、複合材料の物性を著しく改良し得た。MAH量30%、ZnO量3%、DCP量8%の添加により、25分間の混練で、魅力的な物性を持つ複合材料が得られた。

7. 天然ゴムと高分子量PCLとが混練により、分子オーダーでのブレンドをなしうることを確認した上で、木粉との複合化を行った。種々の組成のもの、種々の調製条件のものについて評価したが、複合材料の特性は原料物質とは大きく変化し、改良された。例えば、PCLの割合が大きくなるほど試料の引張特性が向上し、生分解性が増大した。

8. 以上の様に調製された各種の複合材料について、30℃、80%RHの恒温恒湿室中での土壌埋没テストおよび生ゴミ存在下での発酵コンポストテストを行い、生分解性が有意に進みうることを証明した。

論文審査の結果の要旨

従来、木粉やセルロース粉末とポリプロピレンなど疎水性の合成プラスチックとの複合材料が広く研究されて来た。そこでは問題点として、両者の界面の接着性が悪いといったことが指摘されて来たが、相溶化剤の開発と使用により解決するなど、格段の技術の進展が認められる様になって来ている。その中で、本研究は、生分解性の複合材料を作れないか、また、充填剤の添加により溶融粘度が大きくなり成形加工性が低下するという問題を解決できないかといった観点から、新しいタイプのバイオマス粉末／熱可塑性樹脂複合材料を開発すべく行われたものであり、その主な成果は以下の通りである。

1. 生分解性高分子であるポリ乳酸をマトリックス樹脂とする複合材料が検討され、ポリ乳酸が反応性の官能基を持つポリエステルであるにも拘わらず、無水マレイン酸付加による物性増強を実現し、複合材料の物性強化をなし得た。

2. 本質的に生分解性であり、溶融粘度の低い天然ゴムをマトリックス樹脂とする複合材料が検討され、無水マレイン酸付加により調製した相溶化剤を合目的に使用しうることが知られると共に、過酸化物を併用した部分的架橋によっても複合材料の物性強化をなし得ることが知られた。それらの際、無水マレイン酸は、充填剤である木粉やセルロース粉末の非晶領域でエステル化反応を併起し、これにより充填剤の熱可塑性の改善が進むことが知られた。

3. 天然ゴムと高分子量ポリカプロラクトン混練ブレンド物が、相溶系であることを確かめた上で、木粉やセルロース粉末との混練複合化を検討し、後者が多くなるほど、溶融粘度低減によって成形時の加工性が向上すること、および得られた成形物の引張強度と破壊伸びが増大するという望ましい特徴を見出した。その際、生分解性も大きくなることが認められた。

4. 以上、開発した全ての複合材料が生分解性であることを、30℃、80%RHの一定条件での土壌埋没テストとコンポスト試験により証明した。

以上のように本論文は、木粉ないしセルロース粉末を充填剤とし、熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂とする新しいタイプの複合材料を開発したものであり、複合材料化学、生物材料化学、天然繊維工学の発展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11年2月17日、論文なら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。