京都工芸繊維大学

	ながい さとし
氏　　名	**長井　聡**
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博甲第　６０８　号
学位授与の日付	平成 23 年 3 月 25 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　先端ファイブロ科学専攻
学位論文題目	**ポリオキシメチレン複合材料の研究**
審査委員	(主査)教授　濱田泰以 教授　西村寛之 教授　喜多泰夫 山形大学教授　伊藤浩志 菱江化学株式会社代表取締役社長　梅村俊和

論文内容の要旨

プラスチック複合材料・複合構造体の開発・研究目的は、非強化一般グレードでは達成し得ない樹脂特性を、比較的安価なコストで高度に洗練した樹脂機能、部品機能を獲得することであり、それらを達成するために、ポリマーブレンド、ポリマーアロイ、フィラーおよび繊維強化、さらに複合構造体形成としてフィルムインサート成形、2 色成形などの様々な手法が検討されてきた。また最近では二酸化炭素排出による地球温暖化などの環境問題がクローズアップされてきており、ポリ乳酸(PLA)などの植物由来の原料の利用が進んできている。しかしながら、PLA とエンジニアリングプラスチックとのブレンドなどに関する研究はほとんど行われておらず、特にポリオキシメチレン(POM)と PLA のポリマーブレンドや複合材料の基礎的研究はほとんどされていなかった。それゆえ、エンジニアリングプラスチックと生分解性プラスチックの相溶化およびブレンド成形品に関する知見を得ることは、今後のグリーンコンポジット成形技術の向上や環境問題にとっても非常に重要なことであると言える。

本研究では、POM と PLA を用いたポリマーブレンドによる機械物性や熱物性の改質、およびフィルムインサート成形と同時複合射出成形法を用いた成形品の表面改質技術手法を検討し、さらにマイクロブレイデッドヤーン法による POM－炭素繊維(CF)連続繊維強化複合材料について検討している。

第 1 章では、論文の背景および位置づけ、POM、PLA の一般的な物性について述べている。第 2 章では、POM コポリマーと PLA のポリマーブレンドの機械物性と結晶、非晶のモルフォロジーを含めた相溶性について検討している。その結果、非晶部分では非相溶でありながら、結晶部分においては親和性の高い交互侵入結晶構造をとるという興味深いモルフォロジーを示すことを明らかにしている。第 3 章では、成形品表面改質を目的として、POM および PLA の高い親和性を利用し、フィルムインサート成形について検討している。その結果、POM フィルム－PLA 樹脂の系においては十分なフィルム接着強度は得られないが、PLA フィルム－POM コポリマー樹脂の系においては、強固な接着強度を示す成形品が得られることを示している。また SEM、FT-IR および顕微ラマン分光観察の結果から、これら接着界面には約 10-15 μm の POM/PLA 混合層が形成されていることを示している。第 4 章では、同時複合射出成形法により、POM コポリマー/PLA ブ

レンド成形品のウエルド界面の接合強度および接合面の構造について検討している。その結果、POM コポリマー/PLA ブレンド材料のウエルド強度は、POM の含有量増加に伴いウエルド強度は増加する傾向を示すことを明らかにしている。この傾向はブレンド材料固有の強度と同様の傾向であり、また、POM コポリマー/PLA ブレンド材料と PLA の異種材料間では、POM コポリマー/PLA ブレンド材料中の POM 含有量が高いものが PLA との高いウエルド強度を示し、ウエルド部において PLA が POM もしくは POM/PLA ブレンド材側の POM 球晶に侵入するようなモルフォロジーを形成することを明らかにしている。第 5 章では、炭素繊維/POM マイクロブレイデッドヤーンによる、炭素繊維連続繊維強化複合材料について検討している。その結果、サイジング剤の種類を適切に選択することにより、機械強度及び界面強度を向上することが可能であることを示している。また、低分子量 POM と比較して高分子量 POM の方が含浸率は低いものの高い強度を示すことを示している。第 6 章では、この研究の実証成果をまとめ、さらにそれらの結論の意味するところを吟味している。

本研究においては、POM コポリマー/PLA のブレンド成形品における相溶性および界面構造について SEM 観察および顕微分光測定法を用いて詳細に検討し、その結果、POM コポリマーと PLA との界面において POM のラメラ結晶間に PLA が侵入した交互侵入構造が形成されることを見出している。さらに、顕微 FT-IR 法および顕微ラマン分光測定法を用いることにより、POM コポリマーおよび PLA の樹脂またはフィルムとの界面接着層の厚みを定量的に評価できることを示している。

論文審査の結果の要旨

本論文では、POM/PLA ブレンド射出成形品および POM 樹脂/PLA フィルムインサート成形を行い、これら成形品のウェルド接合部またはフィルム接合部における界面構造が力学特性に与える影響について、エッチング処理後の表面観察を行い評価しており、特にその接合部分の断面を顕微 FT-IR 法および顕微ラマン分光測定法を用いて界面混合層厚みを検討している点に特長がある。

これらの研究成果により、非相溶化ブレンド成形品のウェルド接合部およびフィルム/樹脂接合境界部のモルフォロジーと力学物性とを定性的に評価したことは、工業的に大変意義があり、さらに PLA とのブレンド成形品の作製を可能にしたことは、環境負荷軽減という観点からも評価できる。

本論文の内容は次の 7 報に報告されており，7 報すべて申請者を筆頭著者とするものである。

1. Satoshi Nagai, Akira Okamura, Wongsriraksa Patcharat, Kazushi Yamada, Yew Wei Leong, and Hiroyuki Hamada, "FILM INSERT MOLDING BASED ON POLYOXYMETHYLENE AND POLY(LACTIC ACID): MORPHOLOGICAL CHARACTERISTICS AND INTERFACIAL ADHESION PROPERTIES", *SPE-ANTEC Technical Papers*, 55, pp.808-811 (2009).

2. Satoshi NAGAI, Yoshitaka TANAKA, Hajime NAKAMURA, Patcharat WONGSRIRAKSA, Akio OHTANI, Asami NAKAI, Tohru MORII, and Hiroyuki HAMADA, "FABRICATION AND MECHANICAL PROPERTIES OF CARBON/POM COMPOSITES ", Proceeding of 11th Japan International SAMPE Symposium & Exhibition (JISSE-11) 2009, *POLYMER MATRIX COMPOSITES*-7-2, pp.1-4 (2009)

3. Satoshi Nagai1, Akira Itou, Patcharat Wongsriraksa, Supaporn Thumsorn, Yew Wei Leong, Kazushi Yamada, and Hiroyuki Hamada, "On the Interfacial Bonding Characteristics between Polyoxymethylene and Poly(lactic acid)", *SPE-ANTEC Technical Papers*, 56, pp.37-41 (2010).

4. 長井聡, 伊東顕, Wongsriraksa Patcharat, Supaporn Thumsorn, Yew Wei Leong, 山田和志, 濱田泰以, "同時複合射出成形法を用いた POM/PLA 二層成形品の界面接着強度", 成形加工, (印刷中).

5. Satoshi Nagai, Akira Itou, Wongsriraksa Patcharat, Kazushi Yamada, Yew Wei Leong, and Hiroyuki Hamada, "MISCIBILITY OF POLYOXYMETHY- LENE AND POLY(LACTIC ACID)", *SPE-ANTEC Technical Papers*, (Accepted).

6. Satoshi Nagai, Akira Itou, Wongsriraksa Patcharat, Kazushi Yamada, Yew Wei Leong, and Hiroyuki Hamada, "ON THE MISCIBILITY AND CRYSTALLIZATION BEHAVIOR OF POLYOXYMETHYLENE AND POLY(LACTIC ACID) BLENDS", *eXPRESS Polymer Letters*, (投稿中).

7. Satoshi Naga, Akira Itou, Patcharat Wongsriraksa, Kazushi Yamada, Yew Wei Leong and Hiroyuki Hamada, "INTERFACIAL ADHESION PROPERTIES BETWEEN POLYOXYMETHYLENE AND POLY(LACTIC ACID)", *Polymer Journal*, (投稿中).

以上の結果より、本論文の内容は十分な新規性と独創性、さらに工業的な意義があり、博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。