

平成 21年 8月 19日

豊橋技術科学大学長 殿

審査委員長 木曾 祥秋



論文審査及び最終試験の結果報告書

このことについて、下記の結果を得ましたので報告いたします。

学位申請者	Leevameng Bouapao	学籍番号	第023846号
申請学位	博士(工学)	専攻名	環境・生命工学専攻
論文題目	Crystallization and Spherulite Growth Behavior of Poly(lactide)-Based Biodegradable Polymer Blends [ポリ(乳酸)をベースとする生分解性ポリマーブレンドの結晶化および球晶成長挙動]		
公開審査会の日	平成21年 8月 6日		
論文審査の期間	平成21年 1月 29日～平成21年 8月 6日	論文審査の結果	合格
最終試験の日	平成21年 8月 6日	最終試験の結果	合格
論文内容の要旨	本論文は、医用材料および環境保全材料として用いられるポリ(L-ラクチド)(PLLA)をベースとする生分解性ポリマーブレンドの基本的性質を明らかにすることを目的として、種々の生分解性ポリエステルが PLLA の結晶化および球晶成長挙動に与える影響を検討したものである。第1章では、生分解性高分子の分類と応用、生分解性ポリエステルの合成、ポリ乳酸(PLA)の結晶化、結晶性高分子の球晶成長挙動、PLLA をベースとするポリマーブレンド(結晶性および非晶性 PLA のブレンド、PLA の鏡像異性体ブレンド、PLLA と生分解性ポリエステルとのブレンド)について概説するとともに本論文の目的と概要を記述している。第2章では、非晶性ポリ(DL-ラクチド)(PDLLA)の存在下における結晶性 PLLA の結晶化および球晶成長挙動を検討した。結晶化過程において、PLLA と PDLLA が相分離していること、PDLLA が PLLA ラメラの間の非晶領域から排除されること、および PDLLA 含率の増加に伴いブレンドフィルムの球晶成長速度(G)が低下することを明らかにした。第3章では、低分子量 PLLA に対し、低分子量ポリ(D-ラクチド)(PDLA)を幅広いブレンド比で添加し、ステレオコンプレックス結晶化および球晶成長挙動を検討した。等温結晶化において、130°C 以上の結晶化温度(T_c)において、全てのブレンド比で、ステレオコンプレックスのみを含むブレンド材料を作製することが可能であった。また、ホモ結晶の G 値と比較して、ステレオコンプレックス結晶の G 値が高く、PDLA 含率(50wt%)において、最も高い G 値と結晶化度を示した。第4章では、PLLA の結晶促進剤として、生分解性ポリエステルであるポリ(ε-カプロラクトン)(PCL)、ポリ[(R)-3-ヒドロキシブチレート](PHB)、ポリグリコリド(PGA)の有効性について検討した結果、PCL と PGA は PLLA の核形成促進剤として、PHB は PLLA の球晶成長促進剤として有効であることが示めされた。第5章では、本研究の成果を総括している。		
審査結果の要旨	本論文は、PLLA をベースとする生分解性ポリマーブレンドを医用材料および環境保全材料として使用する際の加水分解挙動や耐熱性を左右する結晶化現象について、ポリ乳酸の立体異性体や種々の生分解性ポリエステルを用いて、異なる添加比で添加し、その結晶化および球晶成長挙動に与える影響を検討したものである。PLLA と PDLLA とのブレンドについて、結晶化過程において PDLLA が PLLA ラメラの間の非晶領域から排除されるという結果は、本研究で初めて見出された現象であり、ブレンドポリマーの微細構造を制御し、加水分解挙動を制御するための有用な知見である。また、PLLA と PDLA との鏡像異性体ブレンドに関しては、130°C 以上の T_c において結晶化を行えば、低い PDLA 含率でもステレオコンプレックス結晶のみを含む材料を作製できることが示された。このことは、高コストの PDLA の使用量を減らした耐熱性材料製造の可能性を示唆するものであり、本材料を環境保全材料として使用する際に有用な情報である。さらに、PLLA と生分解性ポリエステルである PCL、PHB、および PGA とのブレンドでは、PCL と PGA は PLLA の核形成促進剤として、PHB は PLLA の球晶成長促進剤として働くという結果が得られた。これらの結果は新規かつ重要な知見であり、本材料を完全生分解性の環境保全材料として使う際に有用な情報である。本論文は、PLLA をベースとする生分解性ポリマーブレンドの結晶化および球晶成長挙動に関する基礎的かつ独創的な研究であり、得られた成果は、PLLA 材料の加水分解速度の制御や耐熱性の向上に多くの重要かつ有用な知見を含んでおり、工学的に高く評価できる。また、得られた研究成果は、国際的な学術雑誌に5件の原著論文として報告している。		
審査委員	木曾 祥秋 印	大門 裕之 印	辻 秀人 印

(注) 論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。