

Title	Development of New Bio-based Polymers from Biomass
Author(s)	大北, 勉
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/46030">https://hdl.handle.net/11094/46030</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	おおきた つとむ 大 北 勉
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 19658 号
学位授与年月日	平成17年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学位論文名	Development of New Bio-based Polymers from Biomass (バイオマスを利用した新規バイオベース高分子材料の開発)
論文審査委員	(主査) 教授 宇山 浩
	(副査) 教授 平尾 俊一 教授 青島 貞人 教授 小松 満男 教授 桑畑 進 教授 甲斐 泰 教授 大島 巧 教授 今中 信人 教授 新原 皓一 教授 田川 精一 教授 町田 憲一

#### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、バイオマスを利用した新規なバイオベース高分子材料の研究開発を、液化技術と生分解性樹脂との複合技術という二つの手法で実施した成果についてまとめたもので、緒言、本論9章および総括より構成されている。

緒言では、本研究の背景と目的、およびその意義について記述している。

第1章では、簡易な手法で環状エステル類を液化物に開環重合させることにより、液化物の分子量、水酸基価などを改質し、ポリエステルタイプポリオールを調製できることを見出した。

第2章では、バイオマス液化物からのポリウレタンフォーム (PUF) は、グリコリシスによる化学的リサイクルが可能であることを明らかにした。さらに、再生 PUF も調製できることを示した。

第3章では、おそらく世界で最初であると思われる、超臨界フェノールによる木材の液化に成功し、2分という非常に短時間で既存の液化法と同等のものを調製できることを示した。

第4章では、安価でかつ安定生産されている澱粉 (CS) を用い、ポリ乳酸 (PLA) あるいはポリブチレンサクシネート (PBS) との複合材料の調製の際にカップリング剤として環境適合型イソシアネートをわずかに1重量%添加することで、界面接着性の大幅な向上を実現した。

第5章では、PBS/CS 複合材料の熱流動性と結晶化挙動を調べ、CS を複合することにより、擬塑性流動性が減少し、結晶化が早まることを示した。

第6章では、PLA/CS 複合材料の生分解試験を実施し、酵素分解試験、土壌埋設試験とも、純粋な PLA に比べ、PLA/CS 複合材料の方が分解が早まることを明らかにした。

第7章では、竹繊維 (BF) を用い、相溶化剤として無水マレイン酸エステル化竹繊維 (BF-e-MA) を創製することにより、PLA/BF 複合材料の界面接着性の大幅な向上を実現した。

第8章では、PBS/BF 複合材料も、BF-e-MA により、大幅な界面接着性の向上を実現できることを示した。また、Avrami 指数より、BF-e-MA が不均一核形成剤として働いている可能性を示した。

第9章では、木材と生分解樹脂の界面接着性の向上を、相溶化剤として、無水マレイン酸グラフトポリカプロラク톤を用いて実現できることを見出した。

総括では、本研究によって得られた成果を要約し、その意義について述べている。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、バイオマスの液化技術および生分解樹脂とバイオマスの複合材料の界面接着性の向上技術の二つの手法により、バイオマスを利用した新規なバイオベース高分子材料を開発することを目的としたものである。主な成果を要約すると以下のとおりである。

- (1) 環状エステル類を既存液化物に開環重合させることにより、液化物の分子量、水酸基価などを改質し、ポリエステルタイプポリオールを調製することに成功している。さらに、開環重合の際に、液化に使用した酸触媒をそのまま使用できるという知見を得たことは、実用化に際しては非常に有効である。
- (2) バイオマス液化物からのポリウレタンフォーム (PUF) のグリコリシスによる化学的リサイクルに成功し、かつ再生ポリオールから再生 PUF を調製できることを示している。この成果は、将来のリサイクルシステム構築の際に、非常に貢献するものである。
- (3) おそらく世界で最初であると思われる、超臨界フェノールによる木材の液化に成功している。液化に要する時間は、2分以内でよく、既存液化法の30分に比べて大幅に短縮できることを示している。
- (4) バイオマスとして安価で工業的に安定して生産されている澱粉 (CS) を用い、ポリ乳酸 (PLA) およびポリブチレンサクシネート (PBS) との複合混練中に、カップリング剤として環境適合型イソシアネート (LDI、HDI) を、わずか1重量%添加することにより、大幅に界面接着性が向上することを明らかにしている。
- (5) PBS/CS 複合材料の熱流動性と結晶化挙動を調べた結果、CS を複合することにより、擬塑性流動性が減少し、結晶化が早まることを明らかにしている。
- (6) PLA/CS 複合材料の生分解試験を実施し、酵素分解試験、土壌埋設試験とも、純粋な PLA に比べ、PLA/CS 複合材料の分解の方が早いことを明らかにしている。また、複合材料では、LDI を添加した方が若干遅くなることから、CS 量および LDI の添加の有無により生分解速度を制御できるという知見を得ており、複合材料の生分解速度の設計に、非常に役立つ成果である。
- (7) バイオマスとしてアジアに多く自生し、成長速度の速い竹繊維 (BF) を用い、相溶化剤として無水マレイン酸エステル化竹繊維 (BF-e-MA) を創製することにより、PLA/BF 複合材料の界面接着性の大幅な向上を実現している。その結果、強度特性が大幅に上がり、耐水性も向上することを明らかにしている。
- (8) PBS/BF の複合材料の調製の際に、相溶化剤として BF-e-MA を用い、大幅な界面接着性の向上を実現している。さらに、等温結晶化より求めた Avrami 指数より、BF-e-MA が不均一核形成剤として働いている可能性を示している。
- (9) 木材と生分解樹脂の界面接着性の向上を、相溶化剤として無水マレイン酸グラフト PCL (PCL-g-MA) を用いて実現している。その結果、大幅に強度特性および耐水性が向上することを明らかにしている。

以上のように、本論文は、バイオマスの液化と生分解性樹脂とバイオマス複合材料の界面接着性の向上について、多くの重要な知見を得ており、循環型社会の実現に向け、今後益々重要性が増してくるバイオベース高分子材料分野の発展に寄与するところが大きい。よって本論文、博士論文として価値あるものと認める。