JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	分子配向によるポリ乳酸の寸法変化を制御する新技術
Author(s)	VO DAI HOANG GIANG
Citation	
Issue Date	2025-12
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	https://hdl.handle.net/10119/20319
Rights	
Description	Supervisor: 山口 政之, 先端科学技術研究科, 博士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

氏　　名	Vo Dai Hoang Giang		
学位の種類	博士（マテリアルサイエンス）		
学位記番号	博材第 625 号		
学位授与年月日	令和 7 年 12 月 24 日		
論文題目	Novel technology to control dimensional change of poly(lactic acid) through molecular orientation		
論文審査委員	山口 政之	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	松村　和明	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	村田　英幸	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	桶葭　興資	北陸先端科学技術大学院大学	准教授
	齊藤　卓志	東京科学大学	教授

論文の内容の要旨

Structural modification through crystallization improved the thermal and mechanical properties of semi-crystalline polymer. In actual processing, the applied flow-played a key role in the structural modification, which commonly promoted the crystallization, i.e., flow-induced crystallization. In this study, the post-process annealing was employed to improve the crystallization for a semi-crystalline polymer, e.g., poly(lactic acid) (PLA), having a low crystallization rate. Generally, the entropic elasticity is decreased by the orientation to the shear flow direction, leading to the increase entropic elasticity during post-process annealing. This phenomenon contributed to the orientation relaxation and isotropic crystallization, leading to shrinkage. This study provided a new phenomenon, that is, entropy reduction (orientation enhancement) during annealing. From this achievement, a fibrous nucleating agent was introduced to increase the orientation of PLA during annealing. As a result, the shrinkage was limited, compared to pure PLA sample. Moreover, a low-molecular-weight poly(vinyl alcohol) (PVA) was blended with PLA to fabricate an immiscible blend for injection-molding. During post-process annealing, the anomalous expansion to flow direction of the PLA/PVA injection-molded bar has been first investigated. The mechanism of an anomalous expansion was elucidated in the blend of PLA with a flexible poly(tetrafluoroethylene) (PTFE). This study opens the possibility to control the shrinkage of injection-molded products during annealing.

Keywords: Poly(lactic acid), Poly(vinyl alcohol), Poly(tetrafluoroethylene), Crystallization, Molecular orientation, Expansion, Shrinkage.

論文審査の結果の要旨

本論文はポリ乳酸の成形加工に関する研究内容を対象としている。環境問題への意識の高まりから注目が集まっているポリ乳酸であるが、その結晶化速度は遅く、実成形加工では十分に結晶化しないことが問題となっている。十分に結晶化しない場合、耐熱性がガラス転移温度で決まってしまうため、使用可能温度域が 50℃以下となり利用分野が限定される。一方、十分に結晶化が進むと融点近傍まで使用することが可能となり、耐熱性は 100℃を超える。そのため、工業的には成形体をアニール処理して結晶化度を高めるという工程がしばしば行われる。アニール処理を経た成形体は結晶化度が高く、優れた耐熱性を示すためである。このアニール処理における最大の課題が寸法変化である。一般的に成形体は、ガラス転移温度以上で配向が緩和し、かつ、結晶化による体積収縮が生じる。その結果、特に流れ方向の収縮が大きくなる。多くの成形体では、流れ方向の寸法が最も長いため、熱収縮が激しく工業利用の大きな妨げとなっていた。

本研究では、特定の条件下で熱処理を行うと、配向度の低い非晶鎖が流れ方向に配向しながら結晶化を生じ、結果として流れ方向の寸法収縮が生じにくくなることを見い出している。すなわち、熱処理により配向度が高くなる。その条件に関しても、①流動誘起結晶化によって生じたポリ乳酸の伸長鎖結晶を存在させる、②ポリ乳酸に対して結晶核剤能を示し流動方向に大きく変形した異種高分子をブレンドする、③ポリ乳酸に対して結晶核剤能を示す繊維形状の異種物質を添加する、など複数のアイデアを提示し、いずれの場合も、流れ方向の寸法収縮が抑制可能となることを示した。特に、②や③の方法では、熱処理によって流れ方向の寸法が大きくなるという（収縮ではなく膨張)、これまでには観測されていなかった現象も発見している。これらの現象に関して詳細に検討を進めたところ、非晶状態のポリ乳酸分子鎖が、アニール処理中に流れ方向に伸びている物質表面全体から並進晶として結晶化することが原因であることを明らかにした。本知見は一般化が可能であり、他の結晶性樹脂にも適用できると考えられている。学術的に新規であるだけでなく、工業的に寄与するところが大きい。

以上、本論文は、ポリ乳酸成形体について熱処理過程における構造変化と寸法変化を調べた内容であり、学術的に貢献するところが大きい。よって博士（マテリアルサイエンス）の学位論文として十分価値あるものと認めた。