

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：21401

研究種目：基盤研究(C)（特設分野研究）

研究期間：2019～2022

課題番号：19KT0036

研究課題名（和文）グリーンコンポジットのマイクロプラスチック化における植物由来充填材の影響

研究課題名（英文）Influence of natural fillers on the microplasticization of green composites

研究代表者

伊藤 一志 (Ito, Kazushi)

秋田県立大学・システム科学技術学部・准教授

研究者番号：30507116

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、表面加工装置を構築した後、ポリ乳酸ならびにポリブチレンサクシネート、セルロース系グリーンコンポジットのマイクロプラスチック(MP)モデルを作製した。さらに、作製したMPモデルを用いた評価法により紫外線を照射したMP表面の形状および分子レベルの変化を合わせて検討できることが分かった。また、本研究において対象とした充填材はグリーンコンポジットおよび高分子複合材料の微細化を促すことが分かった。さらに、それらの微細化の過程は充填材毎に異なることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究における成果はマイクロプラスチックの発生リスクを考慮したグリーンコンポジットの開発に繋がると考えられる。さらにグリーンコンポジットの開発および普及は農業廃棄物および林業廃棄物を資源化するため、一次産業の活性化および多様化に寄与することが期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, microplastic (MP) models of polylactic acid, polybutylene succinate, and cellulosic green composites were fabricated after the construction of a surface processing system. The experimental system using the MP model allows us to study both the morphological and molecular changes of the UV-irradiated MP surface. It was also found that the fillers targeted in this study promote the miniaturization of green composites and polymer composites. Furthermore, the process of miniaturization in these composites was suggested to be different for each filler.

研究分野：材料力学，生体力学

キーワード：グリーンコンポジット マイクロプラスチック

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

農業廃棄物および林業廃棄物から回収される繊維および微粒子を生分解性プラスチックに充填した複合材料はグリーンコンポジット (GC) と呼ばれる。GC の開発および普及は、農業廃棄物および林業廃棄物を資源化するため、一次産業の活性化および多様化に繋がると考えられる。さらに、現在、石油由来プラスチックのマイクロプラスチック (MP) 化が課題となっているため、GC の需要はさらに加速すると考えられる。一方で GC の MP 化における理解は限定的な範囲に留まっている。

2. 研究の目的

本研究では、GC の MP 化における充填材の影響を明らかにすることを目的とする。そのため、加工装置を用いて GC の MP モデルを作製するとともに、GC の劣化過程における表面形状および充填材と母材界面の変化を評価する。

3. 研究の方法

(1) 試験片の作製

本研究では、複合材料の母材としてポリ乳酸 (PLA)、ポリブチレンサクシネート (BioPBS)、ポリプロピレン (PP) の各ペレットを用意した。また、充填材はセルロース、セルロースナノファイバー (CNT)、リグノセルロースナノファイバー (LCNT)、シリカを用いた。各高分子ペレットと充填材の複合化には 2 軸混練機を用いた。その後、複合材料ペレットから平板試験片ならびにダンベル形試験片、短冊形試験片を作製した。

(2) 引張試験

引張試験により GC および高分子複合材料の力学特性を評価した。その結果をもとに紫外線を照射する GC および高分子複合材料を選定した。

(3) 表面加工装置の構成および実験モデルの作製方法

MP モデルの作製に用いた表面加工装置は、スライダック、リニアアクチュエータ、マイクロヒーター、熱電対、紙やすりから構成した。MP モデルとなる微細繊維の形成方法は、短冊状試験片に紙やすりを接触後、試験片表面を溶融する。その後、紙やすりを引き上げて試験片表面に伸長した微細繊維を形成した。形成条件は紙やすりを引き上げる距離および速さとした。また、予め表面をエンボス加工した短冊状試験片においても微細繊維の形成を検討した。

(4) グリーンコンポジットへの紫外線の照射

紫外線ランプの直下に切り出した各試料を配置して紫外線を照射した。

(5) 試料表面の観察および濡れ性の評価

紫外線を照射した各試験片の表面はデジタルマクロスコープおよび電子顕微鏡を用いて観察した。また、各試料表面における濡れ性は $\theta/2$ 法により評価した。

4. 研究成果

(1) グリーンコンポジットおよび高分子複合材料の力学特性

PLA を母材とし、CNT および LCNT を充填した GC、ポリプロピレンにシリカを充填した高分子複合材料は母材に比べて降伏応力および弾性率が同等もしくは高くなった。

(2) MP モデルの作製

図 1 に BioPBS の MP モデルを示す。MP モデルとなる微細繊維は先端に向かって、繊維径が徐々に細くなる形状であった。また、微細繊維はエンボス加工により形成した凸部において形成されていた。したがって、凸部の配列によって、微細繊維の形成位置を調整できることが分かった。

図 2 に PLA の MP モデル (エンボス加工無) における加工条件と繊維径の関係を示す。結果として、加工条件によって微細繊維の平均繊維径を調整できること、図 3 に示すように先端径 $5\mu\text{m}$ までの微細繊維を形成できることが分かった。また、GC における MP モデルの作製も可能であった。さらに、充填材の充填率が高い GC の MP モデルでは、充填材の濡れ性が MP モデル表面の濡れ性に影響することが分かった。

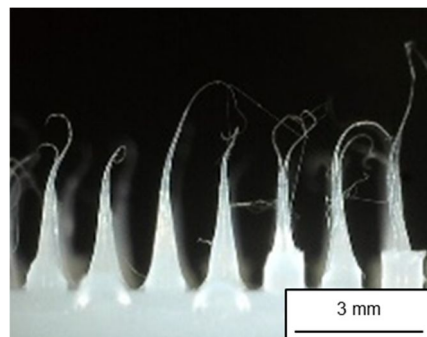


図 1 BioPBS の MP モデル

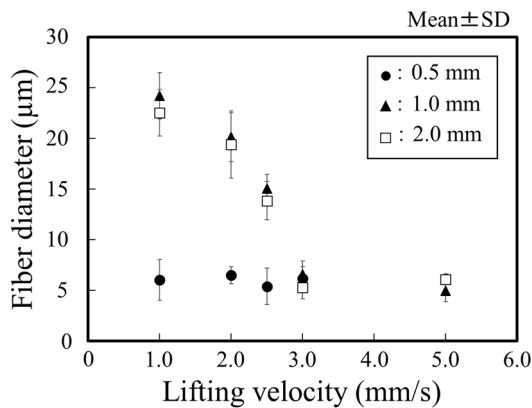


図2 PLAのMPモデル(エンボス加工無)における加工条件と繊維径の関係

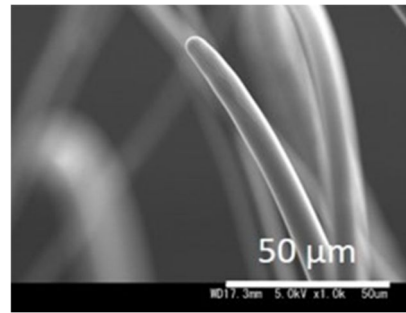
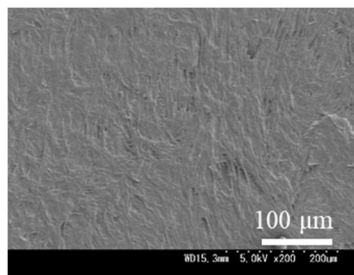


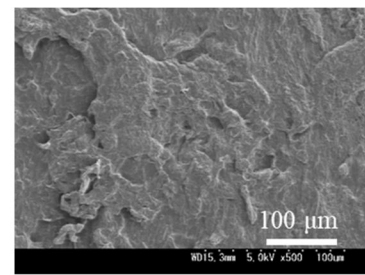
図3 PLAのMPモデルにおける先端形状

(3) 試料表面の形状変化

図4にCNTを充填したGC表面の電子顕微鏡画像を示す。CNTを充填したGCの表面は紫外線の照射時間とともに凹凸が顕著となった。さらにCNTの充填量が増加するにともなって、試料表面の凹凸が増加した。また、LCNTを充填したGCにおいても紫外線の照射時間とともに凹凸が増加した。LCNTとCNTによる相違は見られなかった。したがって、紫外線劣化にともなうCNT系GCの微細化は充填材によって促進されることが分かった。



(a) 紫外線照射前



(b) 紫外線照射後

図4 CNTを充填したGC表面の電子顕微鏡画像

一方、デジタルマイクロスコプを用いた巨視的な表面観察では、CNTおよびLCNTを充填した各GCにおいて紫外線の照射時間とともに変化した変化はほとんど見られなかった。このことから、スケールの異なる観察がGCの劣化過程の評価に重要であることが分かった。また、シリカを充填したPP複合材料では紫外線劣化にともなってシリカ周囲にき裂が発生していた。さらに、シリカの充填量が増加するにともないき裂が増加した。したがって、CNTと同様にシリカの充填は複合材料の劣化に伴う微細化を促進すると考えられる。一方、劣化した表面における形状の特徴からCNTとシリカでは微細化を促進する過程は異なることが示唆された。また、本研究では、各試料の表面において形状変化が顕著となる紫外線の照射時間を明らかにした。

(4) MPモデルの変形

MPモデルに紫外線を長時間照射した結果、一定のサイズ以下のMPモデルにおいて変形が見られた。その変化はFT-IRによる分子構造の評価を踏まえると、分子レベルの変化に起因することが分かった。このことから、紫外線の照射によるGCの微細化を検討する際、サイズの異なるMPモデルを用いることが重要であることが示された。また、MPモデルを用いることで表面形状の変形と分子構造を合わせて検討できることが明らかとなった。

(5) 表面劣化にともなう濡れ性の変化

PLA試験片表面は紫外線劣化にともなって親水性が顕著となった。一方、CNTを充填したGCでは、紫外線劣化にともなって材料表面の濡れ性に充填材の濡れ性が反映されることが分かった。また、LCNTを充填したGCの濡れ性においても同様であった。したがって、セルロース系GCでは微細化にともなって、母材とは異なった濡れ性の変化を示すことが分かった。

以上から、本研究では表面加工装置を用いてMPモデルを作製するとともにGCの微細化にともなう表面形状および諸特性の変化を評価した。結果として、充填材がGCの微細化に促進すること、さらに充填材毎にその促進機構が異なる可能性が示唆された。本研究では、紫外線の劣化にともなうGCの微細化に着目したが、紫外線以外の外部刺激についても今後検討する予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 伊藤一志、竹内千尋、常盤野哲生	4. 巻 32
2. 論文標題 ポリ乳酸表面における微小繊維の加工条件とその濡れ性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本素材物性学会誌	6. 最初と最後の頁 7-14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 竹内千尋、常盤野哲生、伊藤一志
2. 発表標題 ポリ乳酸表面における微小繊維の密度と油水分離能の関係
3. 学会等名 日本機械学会東北支部第57期秋季講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丹澤慧斗、伊藤一志
2. 発表標題 BioPBS表面における配列型MFの形成とその濡れ性
3. 学会等名 日本機械学会東北支部第58期秋季講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 盛満大生、伊藤一志
2. 発表標題 BioPBS複合材料におけるセルロース添加量と油水分離能の関係
3. 学会等名 日本機械学会東北支部第58期秋季講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	常盤野 哲生 (Tokiwano Tetsuo) (50312343)	秋田県立大学・生物資源科学部・准教授 (21401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------