

## ポリエチレンテレフタレート／ ポリブチレンテレフタレート ブレンドのエステル交換と 分子構造の関係

矢野 雅也

Masaya YANO

物質化学専攻修士課程 2年

### 1. はじめに

今回、2016年12月14日に福岡の国際会議場で開催された高分子学会の国際学会に参加した。「ポリエチレンテレフタレート／ポリブチレンテレフタレートブレンドのエステル交換と分子構造の関係」という題目でポスター発表した。

### 2. 緒言

Poly (ethylene terephthalate) (PET) は、耐熱性や耐摩耗性に優れており、繊維やフィルム、射出成型品などに用いられているが、成形性が悪く、耐衝撃性が低いなどの欠点がある。Poly (butylene terephthalate) (PBT) は寸法安定性や成形加工性に優れているが成形時に配向して熱反りが発生するという欠点がある。そこで PET と PBT をブレンドさせることで成形加工性及び、寸法安定性に優れたエンジニアリングプラスチックが得られる。しかし、PET/PBT ブレンドフィルムは溶融するとエステル交換が起こり、共重合体になることにより融解温度が低下することが報告されている。本研究では、XRD 測定および DSC 測定によって、PET/PBT フィルムのエステル交換により形成する分子構造の解析を行った。

### 3. 実験

東洋紡 (株) より提供された PET と PBT を用いて、PET/PBT の重量比がそれぞれ、100 : 0, 90 : 10, 80 : 20, 60 : 40, 50 : 50, 20 : 80, 10 : 90, 0 : 100 のものを調整し、 $\alpha$ -クロロフェノール : クロロホルム = 3 :

1 の混合溶媒に溶解させ、メタノール中で再沈させることにより、均一なブレンド試料を得た。これを 60℃ で 1 日真空乾燥した後、300℃ に設定したホットプレスで熱処理した後に氷水中で急冷したフィルムを作製した。DSC 測定 (昇温速度 10℃/min Rigaku DSC 8231) および、XRD 測定 (Rigaku RINT 2500) を行った。

Fig. 1 にブレンド比を変えた PET/PBT フィルムの融解挙動を示す。PET の割合が 10% 以外のブレンド試料において一本の発熱ピークが観測された。

PET/PBT (50/50) の DSC チャートでは、160-230℃ にかけて 2 つの吸熱ピークが観測され、それぞれ低温側のピークが PBT、高温側のピークが PET のピークに帰属される。また、PET/PBT (50/50) 以外のブレンド試料の DSC チャートでは二つの吸熱ピークが見かけ上一本のピークとして観測された。

Fig. 2 に Fig. 1 の DSC 測定の結果から得られた PET/PBT ブレンドの融解温度と結晶化温度を PBT の分率に対してプロットした結果を示す。PBT の割合が多くなるにつれて、融解温度及び結晶化温度が低下した。PBT が 10% の時は融解温度が 251℃、PBT が 90% の時は 203℃ と、約 48℃ 温度が下がった。これは PBT の割合が多くなることで PET 鎖

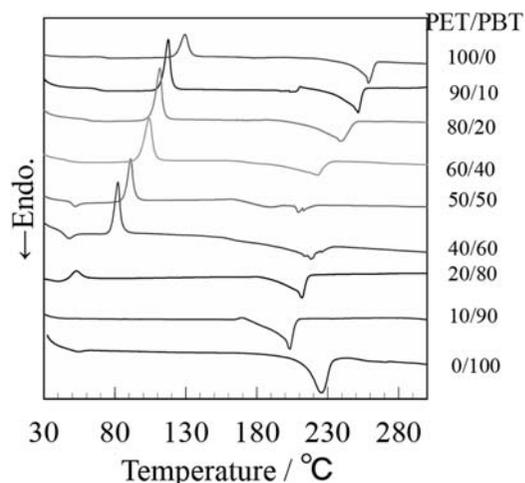


Fig. 1 Melting behavior of PET/PBT films with different blend ratio

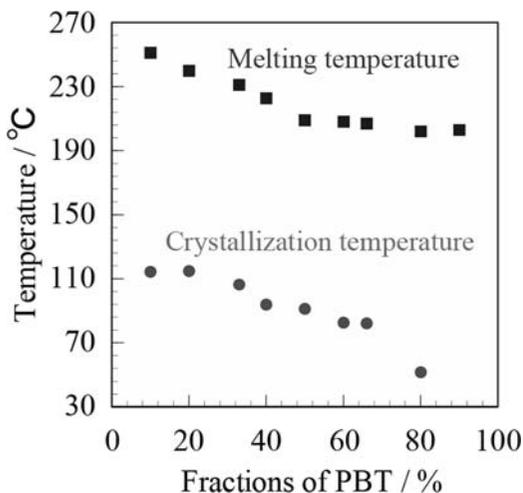


Fig. 2 Relationship between fraction of PBT and the melting temperature.

の連続的な部分がエステル交換によってより PBT 鎖と交換されていき、ラメラ厚が小さくなったためであると考えられる。

PET を溶融急冷した試料では、ブロードなピークが観測されており急冷した時点でほぼ非結晶である。また PBT を溶融急冷した試料ではブロードではあるが少し結晶のピークが観測された。そのため急冷した時点で少し結晶化していると考えられる。Fig. 1 の PET 単体と PBT 単体の DSC チャートと比較すると PET のみに結晶化による発熱ピークが観測されていることから PET は結晶化温度で一気に結晶化し、PBT は結晶化速度が速いため昇温過程でも結晶化していると考えられる。したがって、PET/PBT ブレンドフィルムの発熱ピークは、基本的には PET 由来のものであると考えられる。

Fig. 3 に Fig. 1 の DSC チャートの発熱ピークから結晶化エンタルピーを求め、PET の割合に対してプロットしたものを示す。PET の割合が少なくなっても PET の割合が 33% 以上の試料において結晶化エンタルピーの値があまり変わらなかった。

また、ブレンド比を変えた PET/PBT ブレンドを 300°C で 30 min 溶融したのちに 130°C で 30 min 熱処理して結晶化させたときの X 線回折パターンも

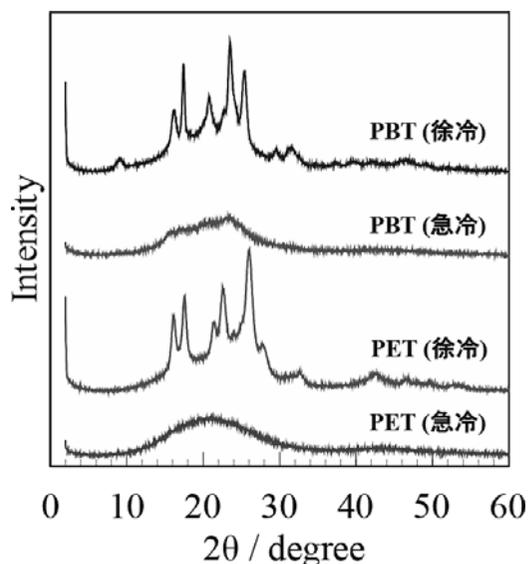


Fig. 3 X-ray diffraction pattern of PET and PBT films. (a), (c) MQ (b), (d) slowly cooled from the melt

調べた。PET/PBT (10/90, 20/80) の試料では PBT の割合が多いため PBT の回折パターンが観測されている。また PBT の割合が 60% を下回ると PET の回折パターンが観測されている。PET の割合が 40% まで少なくなっても PET の回折パターンが観測されていることから PET/PBT フィルム中の PET は割合が少なくなっても PET 鎖が凝集して結晶化している可能性があるのではないかと現在検討中である。

#### 4. 評価

今回は初めての国際学会でした。いつもの日本語で発表する学会とはまた一味違った緊張感を味わえました。私自身、英語はあまり得意なほうではありませんがこの学会を通して、英語で分かりやすくまた柔軟に説明することの難しさを痛感しました。来年も国際学会に挑戦するチャンスもあるので、この経験を活かし、今回の発表よりも質の高い発表ができるように努力したいと強く思いました。