อาภาภรณ์ เทียมสินสังวร : พอลิเมอร์คอมพอสิทชีวภาพของพอลิแลคติกแอซิดกับออกไซด์ของไทเทเนียม ซิลิคอนและไหมไฟโบรอิน (BIO-BASED POLYMER COMPOSITE OF POLY(LACTIC ACID)/TITANIUM SILICON OXIDE/SILK FIBROIN) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร.ยุพาพร รักสกุลพิวัฒน์, 236 หน้า

คำสำคัญ : พอลิแลคติกแอซิด/ออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอน/ไหมไฟโบรอิน/สมบัติการออกฤทธิ์ยังยั้งแบคทีเรีย

งานวิจัยนี้ได้ศึกษาผลของค่าความเป็นกรดเบส และอัตราส่วนโดยอะตอมของไทเทเนียมและซิลิคอนในออกไซด์ผสมที่มีต่อการสังเคราะห์ออกไซด์ผสมของไทเทเนียม-ซิลิคอน (Ti_xSi_y) ด้วยวิธีโซลเจลเพื่อใช้เป็นสารเติมเติมสำหรับพอลิแลคติกแอซิดโดยมีไทเทเนียมไอโซโพรพอกไซด์ และเตตระเอทิลออโทซิลิเกตเป็นสารตั้งต้น โครงสร้างทางเคมีของออกไซด์ผสม Ti_xSi_y และถูกยืนยันด้วยเทคนิคซิลิคอน-29 นิวเคลียร์แมกเนติกเรโซแนนสเปกโตรสโกปีและฟูเรียทรานส ฟอร์มอินฟาเรดสเปกโตรสโกปี จากการวิเคราะห์สมบัติทางโครงสร้างและทางกายภาพ พบว่าออกไซด์ผสมที่มีอัตราส่วนของอะตอมไทเทเนียมกับซิลิคอน 70/30 ($Ti_{70}Si_{30}$) มีขนาดเส้นผ่าศูนย์กลางของอนุภาคเฉลี่ยระหว่าง 131-150 นาโนเมตร พื้นที่ผิวจำเพาะเท่ากับ 569.70 ตารางเมตรต่อกรัม และมีปริมาตรรูพรุน 1.42 ลูกบาศก์เซนติเมตรต่อกรัม

ฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอน (PLA/Ti_xSi_y) พอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอิน (PLA/SF) และพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอนกับผงไหมไฟโบรอิน (PLA/Ti_xSi_y/SF) ถูกเตรียมเป็นฟิล์มจากสารละลาย ปริมาณของออกไซด์ผสมคือ 1 3 และ 5 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักสำหรับ PLA/Ti_xSi_y ปริมาณของผงไหมไฟโบรอินคือ 1 3 และ 5 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักสำหรับ PLA/SF และ PLA/Ti_xSi_y/SF ตรวจสอบสมบัติทางกล สมบัติทางสัณฐานวิทยา สมบัติทางความร้อน สมบัติในการย่อยสลาย และสมบัติการออกฤทธิ์ยังยั้งแบคทีเรียของ PLA/Ti_xSi_y PLA/SF และ PLA/Ti_xSi_y/SF

การเติมออกไซด์ผสม $Ti_{70}Si_{30}$ ปริมาณ 3 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักในพอลิแลคติกแอซิดช่วยเพิ่มค่าการทนต่อแรงดึงและค่ามอดุลัสของยังก์ของฟิล์มพอลิแลคติกแอซิด การเติมออกไซด์ผสม $Ti_{70}Si_{30}$ที่ปริมาณ 5 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักจะลดอุณหภูมิการตกผลึกขณะให้ความร้อนและเพิ่มปริมาณผลึกของพอลิแลคติกแอซิด นอกจากนี้ฟิล์ม $Ti_{70}Si_{30}$ที่ปริมาณ 5 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก (97PLA/5$Ti_{70}Si_{30}$) เพิ่มประสิทธิภาพในการย่อยสลายภายใต้แสงยูวีของฟิล์มพอลิแลคติกแอซิด อนุภาคออกไซด์ผสมมีความสามารถในการป้องกันแสงยูวี(UV)ได้โดยเฉพาะอย่างยิ่งออกไซด์ผสมชนิด $Ti_{70}Si_{30}$ นอกจากนี้ฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทที่เติมออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอนชนิด

$Ti_{70}Si_{30}$ มีสมบัติการออกฤทธิ์ยังยั้งแบคทีเรียที่ดีเยี่ยมต่อแบคทีเรียชนิดเอสเชอริเชีย โคไล(*E.coli*) และแบคทีเรียชนิดสแตฟิโลค็อกคัส ออเรียส(*S. aureus*)

การศึกษาฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอิน (PLA/SF) และ พอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอนกับผงไหมไฟโบรอิน (PLA/Ti_xSi_y/SF) ได้สกัดผงไหมด้วยสารละลายแคลเซียมคลอไรด์ที่อุณหภูมิ 100 องศาเซลเซียส ฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิท PLA/SF แสดงค่าการยืดตัวสูงสุด ณ จุดขาด ที่ปริมาณผงไหม 3 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก ในขณะที่ค่าการทนต่อแรงดึงและค่ามอดุลัสของยังก์ของต่ำกว่าพอลิแลคติกแอซิด อัตราการซึมผ่านของไอน้ำของฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอินและฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอินและออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอนเพิ่มขึ้นอย่างมีนัยสำคัญ เมื่อเพิ่มปริมาณผงไหมไฟโบรอิน ค่าความทึบแสงของฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอินและฟิล์มพอลิเมอร์คอมพอสิทระหว่างพอลิแลคติกแอซิดกับผงไหมไฟโบรอินและออกไซด์ผสมของไทเทเนียมและซิลิคอนเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มปริมาณผงไหมและยังเพิ่มประสิทธิภาพในการป้องกันแสงยูวีและแสงอัลตร้าไวโอเล็ตอีกด้วย นอกจากนี้การผสมผงไหมไฟโบรอินยังเพิ่มประสิทธิภาพในการย่อยสลายให้กับพอลิแลคติกแอซิด

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชา วิศวกรรมพอลิเมอร์ ลายมือชื่อนักศึกษา_____

ปีการศึกษา 2563 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา_____

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม_____

ARPAPORN TEAMSINSUNGVON : BIO-BASED POLYMER COMPOSITE OF POLY(LACTIC ACID)/TITANIUM SILICON OXIDE/SILK FIBROIN. THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. YUPAPORN RUKSAKULPIWAT, Ph.D., 236 PP.

Keyword : Poly(Lactic Acid)/Titanium Silicon Oxide/Silk Fibroin/Antimicrobial Properties

In this research, the effects of pH and Ti/Si atomic ratio of titanium-silicon binary mixed oxide (Ti_xSi_y) on structural and physical properties of Ti_xSi_y mixed oxide were studied using sol-gel method. The Ti_xSi_y mixed oxide was used as filler for PLA. Titanium (IV)isopropoxide (TTIP) and tetraethylorthosilicate (TEOS) were used as Ti and Si precursor, respectively. The structural and physical properties were studied. The chemical structure of Ti_xSi_y mixed oxide was confirmed by ^{29}Si-NMR and FTIR. The averaged diameter of $T_{70}Si_{30}$ mixed oxide was in range of 131-150 nm. $Ti_{70}Si_{30}$ mixed oxide showed specific surface area, S_{BET} of 569.70 m^2g^{-1} and pore volume of 1.42 cm^3g^{-1} have been obtained.

PLA/Ti_xSi_y, PLA/silk fibroin (SF), and PLA/Ti_xSi_y/SF composite films were prepared by solution film casting method at 1, 3, and 5 wt.% of Ti_xSi_y mixed oxide for PLA/Ti_xSi_y composites and 1,3, 5 wt.% of SF For PLA/SF and PLA/Ti_xSi_y/SF composites. Mechanical, morphological, thermal, and degradation properties were investigated. And antimicrobial activity of all PLA/Ti_xSi_y composites were evaluated as well.

The addition of 3 wt.% of $Ti_{70}Si_{30}$ mixed oxide into PLA film improved the tensile strength and Young's modulus of PLA. The incorporation of 5wt.% of $Ti_{70}Si_{30}$ decreased the cold crystallization temperature and increased degree of crystallinity of PLA. In addition, 97PLA/5$Ti_{70}Si_{30}$ improved efficiency of photocatalytic activity of PLA. Ti_xSi_y nanoparticles were able to remove UV light, particularly $Ti_{70}Si_{30}$ enhanced a stronger higher UV-shielding potential. Furthermore, PLA with the addition of TiO_2 and $Ti_{70}Si_{30}$ exhibited excellent antibacterial effect on gram-negative bacteria (*E. coli*) and gram-positive bacteria (*S. aureus*) indicating the improved antimicrobial effectiveness of PLA nanocomposites.

To prepare PLA/SF and PLA/Ti_xSi_y/SF composite, silk fibroin (SF) powder can be prepared in-house by re-dissolving in $CaCl_2$ solution at 100°C. All of PLA/SF and

composite showed the higher elongation at break than neat PLA, especially at 3wt.% of SF while the tensile strength and Young's modulus were lower than PLA. By adding SF and $Ti_{70}Si_{30}$, tensile strength and Young's modulus of PLA were increased. Water vapor transmission rate (wvtr) of PLA was significantly increased by incorporation of SF due to the hydrophilicity of SF. Moreover, opacity of PLA/SF, and PLA/Ti_xSi_y composites increased with increasing SF content and exhibited good preventing against UV-Visible light. All of PLA composites incorporating with SF and $Ti_{70}Si_{30}$ exhibited much higher weight loss as a function of time than neat PLA. The weight loss of PLA/SF nanocomposite was also found to increase with increasing SF content.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Polymer Engineering

Academic Year 2020

Student's Signature Arpaporn T.

Advisor's Signature

Co-advisor's Signature