

平成 30 年 6 月 5 日現在

機関番号：16101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K14148

研究課題名(和文)動的直接観察による繊維組織制御法の確立とナノセルロース繊維強化複合材料の高強度化

研究課題名(英文)Microstructural control and strengthening in cellulose nanofiber-reinforced composites via direct-observation method

研究代表者

高木 均 (Takagi, Hitoshi)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授

研究者番号：20171423

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)：セルロースナノ繊維(CNF)強化複合材料の高強度化を達成するために、延伸処理によるCNFの配向制御を行うと共に、複合材料の力学特性に及ぼすCNF配向の影響について検討した。その結果、延伸処理によって樹脂母相(PVA)中のCNFの配向を延伸方向へ変化させた複合材料では、その強度と弾性率は未延伸材と比較して向上することを明らかにした。試験を行った延伸ひずみ40%までの範囲では、これらの力学的特性は付与した延伸ひずみの増加に伴って向上することを示した。解繊CNFで強化した複合材料では、延伸によるCNFの配向変化も大きくなり、この増加に対応して機械的特性の向上率も大きくなることを確認した。

研究成果の概要(英文)：The fiber alignment control was conducted by applying extension treatment in order to get higher mechanical performance for cellulose nanofiber (CNF)-reinforced composites. The results showed that the tensile strength and Young's modulus of the composites after mechanical extension treatment increased, and that these properties were increased with increasing applied extension strain up to 40%. The increased ratio in mechanical properties of the composites reinforced with grinder-treated CNF were higher than that of untreated ones, because of higher fiber alignment control ability.

研究分野：複合材料工学

キーワード：セルロース グリーンコンポジット

1. 研究開始当初の背景

新しい構造材料として注目されている炭素繊維強化プラスチック (Carbon Fiber Reinforced Plastics, 以下 CFRP) とガラス繊維強化プラスチック (Glass Fiber Reinforced Plastics, 以下 GFRP) は、軽量かつ強度・弾性において優れた性質を有することから、自動車や航空機などの輸送機器分野のみならず幅広い分野で応用されている。しかしこの GFRP と CFRP には、廃棄する際、環境への負荷が大きいという欠点を有する。このため、近年では環境負荷を低減させた代替複合材料として、強化繊維と母材が共に生分解性を有する、あるいはバイオマス由来であるグリーンコンポジットに注目が集まっている。

従来、このグリーンコンポジットには、竹繊維、麻繊維などの比較的太い天然繊維が用いられてきた。しかし近年、新しい強化繊維の 1 つとしてセルロースナノファイバー (Cellulose Nanofiber, 以下 CNF) が注目されるようになった。CNF は木材パルプなどの植物繊維に対して化学的・機械的処理を施してナノサイズまで解繊したバイオマス由来ナノファイバーであり、密度は 1.6g/cm^3 (鉄鋼の約 $1/5$ 倍) と軽量で、引張強度は推定 3GPa (鉄鋼の約 5 倍) と優れた強度特性を有することが報告されている。このように魅力的な物性を有するため、この CNF を強化材として用いた各種樹脂系複合材料の試作とその特性評価に関する研究開発が世界的に進められている。

しかし、これまでに得られた CNF 強化樹脂系複合材料の強度特性はその予測値よりも大幅に低く、この CNF 強化樹脂系複合材料の力学特性改善が重要な研究トピックの一つになっている。

2. 研究の目的

しかし上述したように、これまでに得られた CNF 強化樹脂系複合材料の低強度に関する先行研究結果から、予想した高強度が発現しない要因として、(1)マトリックス樹脂中における CNF の配向性、(2)マトリックス樹脂と CNF との界面接着不足、(3)CNF へ解繊するプロセス中に生じるダメージによる CNF の劣化の 3 つが挙げられている。本研究ではこれまで系統的な研究が行われていない要因(1)の影響を中心に明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 原材料

本研究では、強化セルロースナノファイバーとしてセリッシュ (KY-100G, 株式会社ダイセル) を用いた。母材として CNF の分散性を考慮して代表的な水溶性生分解性樹脂であるポリビニルアルコール (polyvinyl alcohol, 以下 PVA) (162-16325, 和光純薬工業株式会社) を使用した。

(2) CNF の解繊方法

濃度 $1\text{wt.}\%$ の CNF を含む懸濁液を回転数 1500rpm のグラインダー (MKCA6-2, 増幸産業株式会社) に 3 回通すことで CNF の解繊処理を行った。

(3) PVA/CNF グリーンコンポジットの作製方法

PVA 粉末と蒸留水を混合後、マントルヒーターを用いて PVA 粉末を溶解しながら攪拌し、PVA 含有率 $5\text{wt.}\%$ の PVA 溶液を作製した。次に、CNF と蒸留水を混合後、マグネチックスターラーを用いて 24 時間攪拌し、CNF 含有率 $1\text{wt.}\%$ の懸濁液を作製した。その後、この懸濁液と PVA 溶液を混合し、最終的に CNF 含有率が全体重量に対して $30\text{wt.}\%$ となるように配合し、マグネチックスターラーを用いて 24 時間攪拌した後、続いて真空脱泡スターラーを用いて 3 時間脱泡した。次にこの混合液をプラスチック製容器に流し込み、 30°C の送風定温乾燥炉で 1 週間乾燥させて PVA/CNF グリーンコンポジットシートを作製した。そして最後にこのグリーンコンポジットシートを $50\text{mm} \times 120\text{mm}$ のサイズに切断し、試験片を作製した。

(4) ゲル化 PVA/CNF グリーンコンポジットの作製方法

前節(3)と同様の方法で脱泡まで行った懸濁液をプラスチック製容器に流し込み、冷凍庫で 1 日凍結した。その後、室温で 5 時間解凍した。この凍結・解凍処理を計 5 回繰り返すことで、ゲル化 PVA/CNF 複合材料を作製した。最後にこのグリーンコンポジットシートを $50\text{mm} \times 120\text{mm}$ に切断して試験片とした。

(5) 延伸処理法

(3)節および(4)節で作製した試験片に対して延伸機 (図 1) を使用して一軸延伸処理を施した。この際、試験片に対して最大 40% の延伸ひずみを与えた。

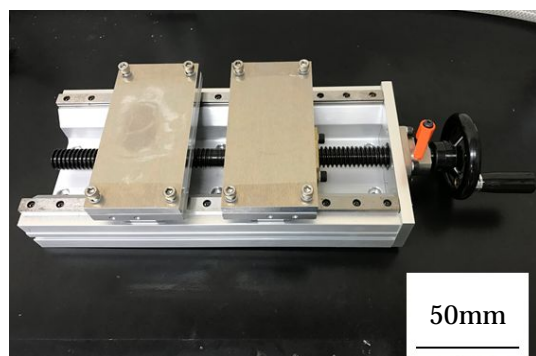


図 1 実験に使用した一軸延伸機

(6) 強度評価

延伸処理したサンプルを延伸方向とこれに直交する方向に切断し、寸法 $10\text{mm} \times 50\text{mm}$ のフィルムを得た。これをホットプレス機により成形温度 180°C 、成形圧力 5MPa 、加圧時間 10 分の条件でホットプレス成形した後、インストロン万能試験機 (5567, Instron) を用いて室温にて引張試験を行った。

4. 研究成果

ゲル化PVA/未解繊CNF 複合材料の未延伸及び20%,40%の延伸ひずみを与えた試験片の引張試験結果を図2に、解繊CNFを用いたゲル化PVA/CNF 複合材料の未延伸及び20%,40%の延伸ひずみを与えた試験片の引張試験結果を図3に示す。両図より、PVAをゲル化することで40%の延伸ひずみを付与させることができたことから、過去の研究で3%以上の延伸が不可能であるという欠点を改善し、延伸ひずみ量を大幅に増加させることが可能となった。次に図2より、20%の延伸ひずみを与えた試験片は未延伸の試験片と比較すると、引張強度は約16%、弾性率は約39%向上した。また、40%の延伸ひずみを与えた試験片は未延伸の試験片と比較すると、引張強度は約34%、弾性率は約48%向上し、90°方向に40%の延伸ひずみを与えた試験片は機械的特性が低下した。このことから、複合材料を延伸することでCNFが延伸方向に配向し、この配向変化に起因して機械的特性が向上したと考えられる。

延伸によるCNF 繊維の配向角度変化を計算した結果、20%と40%の延伸ひずみを与えることによって繊維配向角度変化はそれぞれ約7°と約13°になり、延伸ひずみが増すにつれてCNF 繊維が延伸方向へ変化することが分かった。

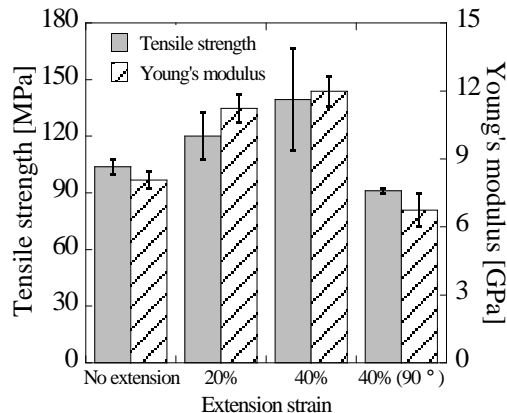


図2 ゲル化PVA/未解繊CNF 複合材料 (CNF=10wt.%) の機械的性質

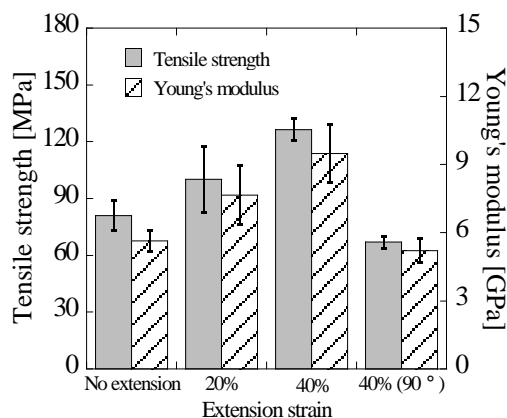


図3 ゲル化PVA/解繊CNF 複合材料 (CNF=10wt.%) の機械的性質

次に図3より、40%の延伸ひずみを与えた解繊材の試験片では、未延伸の試験片と比較して、引張強度とヤング率はそれぞれ約56%、約68%向上し、未解繊材の値よりも大きくなることが分かった。延伸前後の繊維配向の結果からも延伸ひずみの増大に伴って繊維の配向角度変化も大きくなることが分かった。これらの結果から、CNFの配向制御を行うことによってCNF強化複合材料の機械的特性の改善が図れることが分かった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yuya Sakaguchi, Structural modification of cellulose nanocomposites by stretching, WIT Transactions on Engineering Sciences, Vol. 110, pp. 251-256, 2017. 査読有
DOI:10.2495/MC170251

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yuya Sakaguchi, Fiber orientation control by stretching in cellulose nanofiber green composites, Key Engineering Materials, Vol. 754, pp. 135-138, 2017. 査読有
DOI:10.4028/www.scientific.net/KEM.754.135

Noor Hisyam Noor Mohamed, Hitoshi Takagi and Antonio Norio Nakagaito, Mechanical properties of heat-treated cellulose nanofiber-reinforced polyvinyl alcohol nanocomposite, Journal of Composite Materials, Vol. 51, pp. 1971-1977, 2017. 査読有
DOI:10.1177/0021998316665238

〔学会発表〕(計 11 件)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yuya Sakaguchi, Mechanical properties of stretch-treated CNF reinforced polymer composites, The 4th International Forum on Advanced Technologies, 2018.

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Yuya Sakaguchi and Takahiro Matsui, Effects of stretching treatment on mechanical properties of cellulose nanofiber green composites, 9th Australasian Congress on Applied Mechanics, 2017.

高木均, 坂口友哉, ナカガイト・ノリオ・アントニオ, CNF 複合材料の延伸処理による微細構造変化, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス, 2017.

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yuya Sakaguchi, Microstructural control in PVA/CNF green composites by stretching treatment, 11th Japan-Korea Joint Symposium on Composite Materials, 2017.

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Yuya Sakaguchi and Takahiro Matsui, Experimental investigation of effects of mechanical extension on performance of PVA/CNF nanocomposites, Collaborative Conference on Materials Research, 2017.

高木均, 坂口友哉, ナカガイト・ノリオ・アントニオ, PVA/CNF 系グリーンコンポジットの延伸による特性改善, 日本材料学会第 66 期学術講演会, 2017.

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Yuya Sakaguchi, Takahiro Matsui and Kenya Nishimura, Effect of multiple extensions on mechanical performance of cellulose nanofiber/polyvinyl alcohol composites, 9th International Conference on Green Composites, 2016.

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yuya Sakaguchi, Fiber orientation control in cellulose nanofiber-reinforced green nanocomposites, The Fiber Society 2016 Fall Meeting and Technical Conference, 2016.

高木均, ナカガイト・ノリオ・アントニオ, 松井喬寛, 坂口友哉, 延伸処理したセルロースナノコンポジットの評価, 日本機械学会 2016 年年次大会, 2016.

坂口友哉, 高木均, ナカガイト・ノリオ・アントニオ, 松井喬寛, PVA/CNF 複合材料の延伸による高強度化, 第 14 回日本材料学会四国支部学術講演会, 2016.

西村建哉, 高木均, ナカガイト・ノリオ・アントニオ, 松井喬寛, セルロースナノ繊維複合材料の延伸による高強度化に関する研究, 日本機械学会 2015 年年次大会, 2015.

〔その他〕

ホームページ等

徳島大学理工学部理工学科機械科学コース
エコマテリアル研究室

<http://www.me.tokushima-u.ac.jp/takagi/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高木 均 (TAKAGI, Hitoshi)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部
(理工学域)・教授

研究者番号：20171423