

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289243

研究課題名(和文) 植物繊維の特異な内部構造を生かしたマルチ機能性グリーンコンポジットの開発

研究課題名(英文) Development of multi-functional green composites with unique internal microstructure

研究代表者

高木 均 (Takagi, Hitoshi)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：20171423

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：アバカ繊維中のルーメンは10 - 15wt%NaOH水溶液で処理すると縮小することを示した。アルカリ処理したアバカ繊維の引張強度は変化しなし。一方、5wt%NaOH水溶液で処理した場合、ヤング率は41%増加するのに対して、15wt%NaOH水溶液では29%低下することを見いだした。繊維長さの異なるアバカ繊維で強化したPLA系複合材料の断熱性について調査した。ランダム配向複合材料でも一方向強化材と同様にルーメンの大きさによって熱伝導性が変化することを確認した。ランダム配向複合材料では、繊維が短くなるにつれてルーメン中に入る樹脂量が多くなるため、熱伝導率は高くなることが分かった。

研究成果の概要(英文)： We examined changes in microstructure and tensile properties of abaca fibers. The lumen size became smaller after 10 and 15wt% NaOH treatment. Nonlinear stress-strain behavior was observed in the alkali-treated abaca fibers. Young's modulus was found to decrease after alkali treatment with 10-15wt%NaOH.

We also made polylactic acid-base green composites reinforced with short abaca fiber, and evaluated their thermal property. It was found that the thermal conductivity of randomly-oriented short fiber composites also showed a similar dependence on the lumen size in the fiber as that of unidirectional composites.

研究分野：複合材料工学

キーワード：天然繊維 複合材料 ルーメン

1. 研究開始当初の背景

今日の社会は多くの枯渇資源に依存して成り立っていると言っても過言ではない。しかしこれらの枯渇資源の可採年数は、思いの外短くあと約1世紀で使い果たす状況にあると言われている。このため材料開発の分野においても持続可能な先進材料の開発が注目されている。中でも複合材料の分野では、従来材であるGFRP, CFRPの場合、使用後のリサイクルが難しい材料として認識されている。このような社会背景から、2000年以降、国内外で環境負荷を低減させた複合材料(グリーンコンポジット)に関する研究開発が活発に行われるようになった。

しかしこれまでのグリーンコンポジットに関する研究の多くでは、Mohantyらの研究[1]に代表されるように生分解性樹脂と天然繊維を組み合わせた複合材料の成形とその強度特性評価が主として行われてきた。一方、グリーンコンポジットの機能に関する研究例は少なく、また、熱伝導率に関してはMangalら[2]が単に植物繊維強化複合材料の熱伝導率が繊維添加量の増加とともに低下する内容の報告があるのみで、繊維の内部構造に注目して、その内部構造の制御を行い、この結果を基にグリーンコンポジットの断熱性ならびに生分解性などの機能性の発現メカニズムについて議論している研究は皆無である。

2. 研究の目的

天然植物繊維の内部にはルーメンと呼ばれる空洞が存在する。本研究では、この特異な内部構造を積極的に活用して、強度のみならず断熱性などの多機能性を付与させた新規な天然繊維強化複合材料(グリーンコンポジット)の開発を目指した。そして天然繊維の内部構造の組織制御を行い、この制御によって新規グリーンコンポジットにおける機能性コントロールの可能性に関する検証を目的として取り組んだ。

3. 研究の方法

(1)アルカリ処理 繊維長 150 mm のアバカ(マニラ麻)繊維を濃度 5 ~ 15 wt.%の水酸化ナトリウム水溶液に室温で浸した後、水洗・乾燥させた。

(2)グリーンコンポジットの試作 はさみを使用してアバカ繊維を長さ 3, 5, 8mm の短繊維に切断した。マニラ麻短繊維に適量の水分散型ポリ乳酸樹脂(PL-2000, ミヨシ油脂)を加えた後乾燥させて予備成形体を作製した。この予備成形体を 180 °C × 1 MPa の条件で 2 min ホットプレス成形してグリーンコンポジットを試作した。

(3)強度試験 種々の条件でアルカリ処理したアバカ繊維に対する引張試験をインストロン材料試験機(5567)において試験速度 1.0 mm/min の条件で行った。また、試験片中央にノッチングマシンを用いてノッチ加工を

行い、アイゾッド衝撃試験を試験規格 JIS-K7110 に従って実施した。

(4)熱伝導率試験 試作したアバカ/PLA グリーンコンポジットの熱伝導率を熱伝導率測定装置(LFA 467 HyperFlash, NETZSCH)を用いて測定した。

4. 研究成果

アバカ繊維に対して様々な条件で化学処理を行った。その結果、この化学処理を施すことによって繊維内部のルーメンの大きさが変化することが分かった。そしてこの構造変化は処理液の濃度に強く依存し、ある臨界の濃度が必要であり、加えて処理時間と処理温度にも関係していることも分かった。

処理材の構造を解析するために化学処理後の繊維に対してX線回折試験およびFT-IR分析を行った。一部、ヘミセルロースの溶出が確認されたが、別の結晶構造への変化は確認できなかった。高濃度のアルカリ処理(マニラセルロース処理)によってセルロースへの変化が報告されているが[3]、本研究ではこの変化は確認できなかった。

アルカリ処理による天然繊維の内部組織変化と力学的特性変化の測定を行うと共に、アルカリ処理を行った天然繊維で強化したグリーンコンポジットを試作し、その熱伝導率測定を行った。その結果、アバカ繊維の内部構造と引張特性に及ぼすアルカリ処理の影響に関しては、アバカ繊維中のルーメンの大きさは 10wt%, 15wt%NaOH 水溶液で処理すると縮小することを見いだした。アルカリ処理したアバカ繊維の引張強度にはほとんど変化がない。しかし、5wt%NaOH 水溶液で処理した場合、ヤング率は 41%増加するのに対して、10wt%, 15wt%NaOH 水溶液で処理するとそれぞれ 24%, 29%低下し、濃度によって変化することを見いだした(図1)。

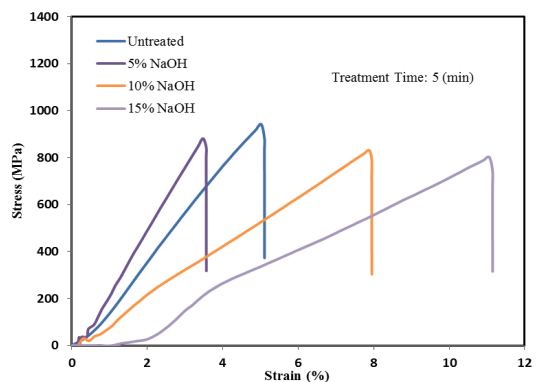


図1 アルカリ処理したアバカ繊維の応力-ひずみ線図

一方向強化材[4]と同様に繊維内のルーメンの大きさによって熱伝導性が変化することがランダム配向複合材料でも確認された(表1)。繊維長による熱伝導率の変化に関しては、繊維長が短くなるにつれて相対的にPLA樹脂がルーメン中に侵入する割合は高く

なり, その結果, 熱伝導率は高くなることが分かった.

表1 種々の試料の熱伝導率と密度

Samples	Thermal conductivity [W/(m·K)]	Sample density [g/cm ³]
3 mm 15wt%NaOH	0.279	1.156
3 mm non-alkali	0.244	1.196
5 mm non-alkali	0.236	0.990
Neat PLA	0.231	1.151
5 mm 15wt%NaOH	0.225	1.076
8 mm 15wt%NaOH	0.224	1.116
8 mm non-alkali	0.220	1.180

アルカリ処理を行ったアバカ短繊維(3-8mm)とポリ乳酸を組み合わせたグリーンコンポジットをホットプレス成形した. アバカ長繊維で調査した結果から予測されるように, アルカリ処理を行ってルーメンを縮小させた繊維を用いて作製したグリーンコンポジットの熱伝導率は, 未処理材の熱伝導率よりも大きくなることを示した.

アルカリ処理を行って内部のルーメンを縮小させたアバカ長繊維により補強した PLA系グリーンコンポジットの曲げ特性(曲げ強度, 曲げ弾性率)は, 未処理材と比べて向上することが分かった. 一方, アルカリ処理したアバカ長繊維で補強したグリーンコンポジットのアイゾット衝撃値は未処理材と比べて約25%低下することが分かった.

<引用文献>

- [1] G. Hinrichsen, M. Misra, A. K. Mohanty, *Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview*, *Macromolecular Materials and Engineering*, 276-277, p.1, 2000.
- [2] R. Mangal, N.S. Saxena, M.S. Sreekala, S. Thomas, K. Singh, *Thermal properties of pineapple leaf fiber reinforced composites*, *Materials Science and Engineering A*, 339, p.281, 2003.
- [3] 磯貝明, *セルロースの材料科学*, 東京大学出版, 2001.
- [4] K. Liu, H. Takagi, R. Osugi, Z. Yang, *Effect of lumen size on the effective transverse thermal conductivity of unidirectional natural fiber composites*, *Composites Science and Technology*, 72, p.633, 2012.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計6件)

高木均, *グリーンコンポジットの開発とその特性評価*, *機械の研究*, Vol.67, No.9,

pp.731-737, 2015, 査読無

Ming Cai, Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Kazuya Kusaka, Masahiro Katoh and Yan Li, *Influence of alkali concentration on morphology and tensile properties of abaca fibers*, *Advanced Materials Research*, Vol.1110, pp.302-305, 2015, 査読有
DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.1110.302

Ming Cai, Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Masahiro Katoh, Tomoyuki Ueki, Geoffrey I.N. Waterhouse and Yan Li, *Influence of alkali treatment on internal microstructure and tensile properties of abaca fibers*, *Industrial Crops and Products*, Vol.65, pp.27-35, 2015, 査読有
DOI:10.1016/j.indcrop.2014.11.048

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Ke Liu, *Heat transfer analyses of natural fibre composites*, *WIT Transactions on the Built Environment*, Vol.137, pp.237-243, 2014, 査読有
DOI:10.2495/HPSM140211

Hitoshi Takagi, Ke Liu, Antonio Norio Nakagaito and Zhimao Yang, *Enhanced functional properties of natural fiber-reinforced composites*, *Advanced Materials Research*, Vol.845, pp.306-310, 2014, 査読有
DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.845.306

Ke Liu, Zhimao Yang and Hitoshi Takagi, *Anisotropic thermal conductivity of unidirectional natural abaca fiber composites as a function of lumen and cell wall structure*, *Composite Structures*, Vol.108, pp.987-991, 2014, 査読有
DOI: 10.1016/j.compstruct.2013.10.036

[学会発表](計17件)

Hitoshi Takagi, *Degradation behavior of starch-based biodegradable composites*, 6th International Conference on Mechanics of Biomaterials and Tissues, 2015年12月8日, ワイカイロ(アメリカ合衆国)

高木均, *植物由来コンポジットの開発と機能性評価*, 第45回木材の化学加工研究会シンポジウム, 2015年10月22日, 福山商工会議所(広島県・福山市)

高木均, 上野 善貴, ナカガイト ノリオ アントニオ, *天然繊維強化複合材料の機能性*, 日本機械学会 2015年年度大会, 2015年9月14日, 北海道大学(北海道・札幌市)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Ke Liu, *Multi-functional properties in natural fiber reinforced composites*, 20th International Conference on Composite Materials, 2015年7月24日, コペンハーゲン(デンマーク)

Hitoshi Takagi, Hiroshi Mori and Masanori Nakaoka, Damping performance of bamboo fibre-reinforced green composites, Materials Characterisation 2015, 2015 年 4 月 23 日, バレンシア(スペイン)

國井博之, 高木均, ナカガイト ノリオ アントニオ, ルーメンの有無による PLA-マニラ麻コンポジットの機械的特性の変化, 第 13 回日本材料学会四国支部学術講演会, 2015 年 4 月 11 日, 香川大学(香川県・高松市)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Ke Liu, Natural fiber composites with low thermal conductivity, 8th Australasian Congress on Applied Mechanics, 2014 年 11 月 26 日, メルボルン(オーストラリア)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Ke Liu, Effect of microstructure on multifunctional properties of natural fiber composites, 13th International Symposium on Multiscale, Multifunctional and Functionally Graded Materials, 2014 年 10 月 21 日, サンパウロ(ブラジル)

Ming Cai, Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Yang Li, Microstructure and tensile properties of alkali-treated abaca fibers, 9th Asian-Australasian Conference on Composite Materials, 2014 年 10 月 16 日, 蘇州(中国)

Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito and Ke Liu, Heat transfer analyses of natural fibre composites, High Performance and Optimum Design of Structures and Materials, 2014 年 6 月 10 日, オステンド(ベルギー)

Hitoshi Takagi, Ke Liu, Antonio Norio Nakagaito and Zhimao Yang, Enhanced functional properties of natural fiber-reinforced composites, 1st International Materials, Industrial, and Manufacturing Engineering Conference, 2013 年 12 月 5 日, ジョホールバル(マレーシア)

Hitoshi Takagi, Ke Liu and Antonio Norio Nakagaito, Innovation of multifunctional biofibre composites, 2nd International Conference on Kenaf and Allied Fibres, 2013 年 12 月 4 日, バンダールバンギ(マレーシア)

Ming Cai, Hitoshi Takagi, Antonio Norio Nakagaito, Kazuya Kusaka, Masahiro Katoh and Yan Li, Effects of alkali treatment on microstructure and tensile properties of abaca fiber, SAMPE CHINA 2013, 2013 年 10 月 29 日, 上海(中国)

Hitoshi Takagi, Ke Liu, Antonio Norio Nakagaito and Zhimao Yang, Thermal and biodegradable issues of multifunctional green composites, SAMPE CHINA 2013, 2013

年 10 月 29 日, 上海(中国)

Hitoshi Takagi, Kazuya Ohkita and Antonio Norio Nakagaito, Effect of anti-hydrolysis agent on mechanical performance of polybutylene succinate/bamboo fiber green composites, 4th International Conference on Innovative Natural Fibre Composites for Industrial Applications, 2013 年 10 月 18 日, ローマ(イタリア)

Hitoshi Takagi, Ke Liu and Antonio Norio Nakagaito, Thermal barrier performance of green composites, 9th Japan-Korea Joint Symposium on Composite Materials, 2013 年 9 月 25 日, 鹿児島大学(鹿児島県・鹿児島市)

Hitoshi Takagi and Toshihiro Fujii, Mechanical characterization of bamboo fiber-reinforced green composites, 12th International Conference on Fracture and Damage Mechanics, 2013 年 9 月 18 日, アルゲーロ(イタリア)

〔その他〕

ホームページ等

徳島大学・理工学部・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・大学院ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：20171423

(2) 研究分担者

ナカガイト アントニオ・ノリオ (Nakagaito, Antonio Norio)

徳島大学・大学院ソシオテクノサイエンス研究部・准教授

研究者番号：50523156