

# プレス成形による植物繊維強化ポリ乳酸の最適成形条件に及ぼす植物繊維と樹脂の濡れ特性の解明

琉球大学工学部機械システム工学科

教授 柴田 信一

(平成 21 年度一般研究開発助成 AF-2009022)

キーワード：射出成型，プレス加工，コンポジット，植物繊維

## 1. 緒 論

これまで著者らはサトウキビの絞りかすであるバガスと、一年植物で成長の早いとされる、ケナフを中心に、生分解性樹脂との複合材料を作製し、その曲げ弾性率を始めとする機械的性質について継続的に詳しく検討を行ってきた<sup>1-3)</sup>。しかしながら、これまで検討してきた成形体は繊維の方向を定めず、繊維が厚み方向に層状となる 2 次元ランダムな薄板材料であった。

短繊維強化材の繊維配向分布と弾性率に関しては Fukuda<sup>4)</sup>らにより詳しく検討されている。その結果によれば、短繊維強化材料において、二次元繊維配向を考えた場合、複合則に組み込まれる繊維配向係数は一方向材を 1 とすると、ランダム配向で 0.27 となる。つまり、短繊維強化材の繊維配向分布は弾性率に非常に大きな影響を与える。また、繊維強化材料の物性は繊維間の濡れが大きく影響する。また、理論においては繊維と樹脂の互いに十分に濡れ合い、界面が密着していることを仮定している。

そこで、本研究では、ケナフおよび竹による繊維強化複合材料の繊維配向分布の及ぼす曲げ弾性率への影響を詳しく調べ、濡れ性との関係を調べることにした。作製した成形体はケナフ繊維と生分解性樹脂による複合材料であり、成形方法はプレス成形とした。成形にあたっては、繊維配向治具を使用し、スリットの間隔を変化させた。このスリット間隔により、繊維配向分布を変化させた。繊維配向分布を測定することで、Cox モデルにおける繊維配向係数を決定し、曲げ弾性率の予測を行った。この数値予測値と実験値の相対的比較から成形条件、濡れ、植物繊維構造との関係を調べたので、ここに報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 竹およびケナフおよび生分解性樹脂

竹およびケナフ繊維の外観は図 1 (a)および(b)に示す通りである。竹は爆砕処理により抽出し、ケナフはレッティング処理により抽出した。その過程は①収穫したケナフの茎より皮(韌皮+外皮)とコアを剥ぎ取る。この際、すなわち、茎の上下 100mm 程度カットする。②剥ぎ取った皮は、水中にて嫌気性バクテリアとともに、2 週間浸漬させ、繊維を柔らかくし、乾燥させる。この嫌気性バクテリアにより韌皮と外皮解繊および韌皮内のヘミセルロースは分解され、韌皮と外

皮および繊維束が分離させられる。その後、ケナフを乾燥させ、機械的に粉碎処理を行い、繊維を抽出し、

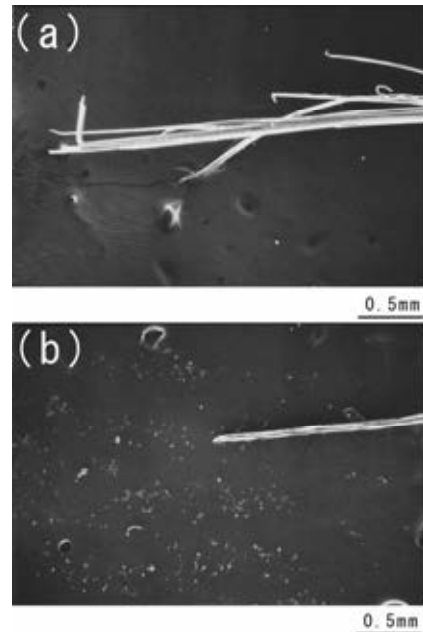


Fig. 1 (a) Bamboo and (b) Kenaf fibers

繊維を 5 種類の長さにカットする (1.7, 2.8, 5.0, 10.5 および 16.9mm)。竹も同様に長さを調節した。竹の平均繊維直径は  $270 \mu\text{m}$  であり、ケナフは  $94 \mu\text{m}$  であった。本研究では 4 種類に分けたケナフ繊維のうち 5.0mm と 10.5mm の繊維を実験に供した。以後、図中を含めて、5mm, 10mm と表示することにする。生分解性樹脂は、これまでの研究で用いている澱粉生分解性樹脂 CP-300 (ガラス転移温度  $T_g$   $-60^\circ\text{C}$ , 軟化温度  $55-62^\circ\text{C}$ , ミヨシ油脂株) を用いた。CP-300 はエマルジョンタイプであるが、これを  $100^\circ\text{C}$  にて水分を蒸発させ、乾燥し、冷却後、ペレット状 (直径 2-2.5mm) に切断し、実験に供した。

ケナフ繊維と生分解性樹脂の弾性率・引張強度は繊維をランダムに 200 本抽出し、引張試験を行い決定した。その結果を表 1 に示す。

Table 1 Mechanical properties of kenaf fiber and biodegradable resin.

	Elastic modulus (MPa)	Tensile strength (MPa)	Specific gravity ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
Kenaf	22070	335	0.956
Bamboo	18500	450	1.31
CP-300	525	10	1.13

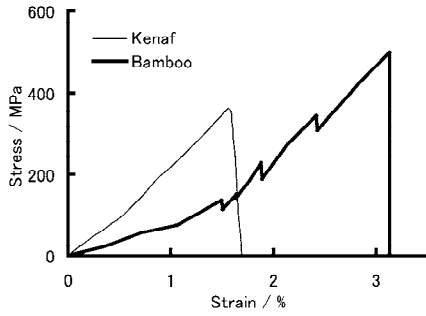


Fig. 2 Stress-strain curves of bamboo and kenaf.

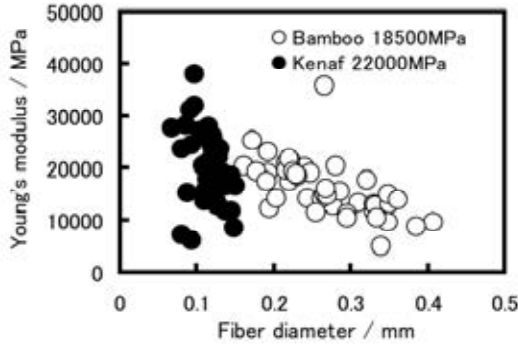


Fig. 3 Young's modulus and fiber diameter.

図 2 は繊維引張試験時の応力-ひずみ線図であり、図 3 は繊維と繊維弾性率との関係である。竹において繊維直径が大きいほど強度が低下するので表面欠陥の欠陥の確率が増加することが推定される。

## 2.2 熱間プレス成形

熱間プレス成形方法の概略図を図 4 に示す。また、繊維配向材の作製は図 5 に示す治具を用いて行った。治具の寸法は直径 30mm、高さ 15mm の円柱形である。この治具は三種類作成し、スリットの間隔は、それぞれ 2, 5, 7mm とした。狭いスリット間隔であれば、より繊維配向分布の範囲が狭くなると期待して治具を作成した。繊維配向材の作成時には使用するケナフ繊維半分をスリットの隙間から均等に厚みになるように金型上に投入した。そして、一旦、スリット治具を抜き、樹脂をケナフ繊維上に均等になるように置いた。その後、再びスリット治具を金型上に置き、残りのケナフ繊維をスリットの隙間から投入し、金型を閉じた。閉じた後に 1MPa 程度の圧力をかけ、金型が 160°C に達するまで加熱した。160°C に安定した時点で、圧力 (10 MPa) を加え 10 分間保持した。保持後、金型周囲のウォータージャケットと扇風機による冷却を 10 分間行い、金型が 40°C 以下になった時点で、成形体を取り出した。出来上がった成形品は重量が 1.6-1.7g、平

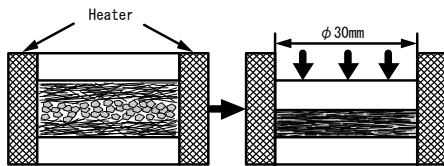


Fig. 4 Schematic illustration of hot-press forming.

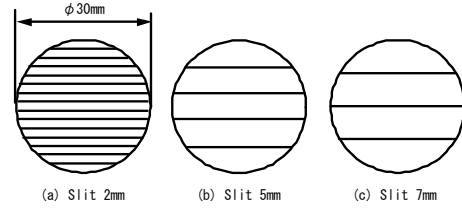


Fig. 5 Alignment slits for aligned kenaf fiber composites.

均繊維体積率が 62% になるように繊維と樹脂量を調整した。各条件につき 5 個以上の試験片を作製した。なお、試験片の直径は 30mm、厚さ 1.65-1.85mm であった。

## 3. 曲げ弾性率の予測

短繊維強化複合材料の縦弾性係数  $E_{comp}$  は複合則から以下の式で与えられる<sup>4)</sup>。

$$E_{comp} = \eta V_f \cdot E_f + (1 - V_f) \cdot E_m \quad (1)$$

$E_f$ ,  $E_m$ ,  $V_f$ ,  $V_m$  は繊維の縦弾性係数、マトリックスの縦弾性係数、繊維の体積率およびマトリックスの体積率である。 $\eta$  は長さ修正係数であり、Cox により以下のように導かれている<sup>6)</sup>。

$$\eta = 1 - (\tanh \frac{1}{2} \beta L) / \frac{1}{2} \beta L \quad (2)$$

$\beta$  は以下で表され、繊維長  $L$  が短くなるときの剛性低下の意味をもつ。

$$\beta = \left( \frac{2 G_m}{E_f r_f^2 \ln(R / r_f)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

$G_m$  は横弾性係数であり、マトリックスの等方性を仮定すると、

$$G_m = \frac{E_m}{2(1 + \nu_m)} \quad (4)$$

であり、 $2R$  は繊維間隔を表し、

$$R = \frac{r_f}{2} \sqrt{\frac{\pi}{V_f}} \quad (5)$$

となる。 $r_f$ ,  $\nu_m$  は、繊維半径、ポアソン比 (本研究では  $\nu_m = 0.3$ ) である。

ただし、式 (1) は繊維配向係数  $C_a$  およびケナフ繊維の圧縮成形後の圧縮率  $K$  が組み込まれていない。短繊維強化材料の配向係数は Fukuda<sup>4)</sup> らが繊維配向分布関数から解析的に求めている。このうち、本研究における、成形体の繊維配向分布関数は図 4 中にある三角形関数とした。これは後掲の図 5 と図 6 に示すように、成形体中の繊維が曲げ中立軸に平行である角度に繊維が多いためである。三角形配向分布関数は、

$$g(\theta) = \begin{cases} -2\theta/\alpha^2 + 2/\alpha & (0 \leq \theta \leq \alpha) \\ 0 & (\alpha < \theta) \end{cases} \quad (6)$$

であり、 $\alpha$ は臨界角度である。臨界角度の物理的意味は荷重方向に平行な繊維を $0^\circ$ とした場合、臨界角度以上の繊維が材料中に存在しないということである。したがって、本研究では、臨界角度を算出するため、まず成形体の繊維配向分布を求めた。繊維配向については、通常材料では外観からは見えないので決定するのが難しい<sup>7)</sup>。しかし、本研究での材料は、前報で報告しているように、半透明の樹脂であり、繊維は明瞭に観察できる。また、厚み方向について繊維配向は同じであると仮定し、成形体表面の繊維方向から繊維配向分布図を作成した。

すなわち、成形体表面の任意に選んだ繊維と曲げ試験片の中立軸方向となす角度を測定した。測定においては4個の試験片から50本ずつ任意に繊維を選び、合計200箇所を測定した。測定後、 $10^\circ$ 毎の繊維頻度を算出し、繊維配向分布図を作成した。その分布を直線で近似し、頻度0%における臨界角度を求めた。臨界角度が求めれば、配向関数係数 $C_a$  (Coefficient of alignment) は式(7)により求まる。図6は式(7)の $C_a$ と臨界角度 $\alpha$ との関係である。図からわかるように、臨界角度 $0^\circ$ では、一方向材となり、繊維配向係数は1になり、臨界角度 $90^\circ$ では0.47となる。

$$C_a = 4 \cdot \frac{1 - \cos \alpha}{\alpha^2} \left( \frac{3 - \nu}{4} \cdot \frac{1 - \cos \alpha}{\alpha^2} + \frac{1 + \nu}{4} \cdot \frac{1 - \cos 3\alpha}{9\alpha^2} \right) \quad (7)$$

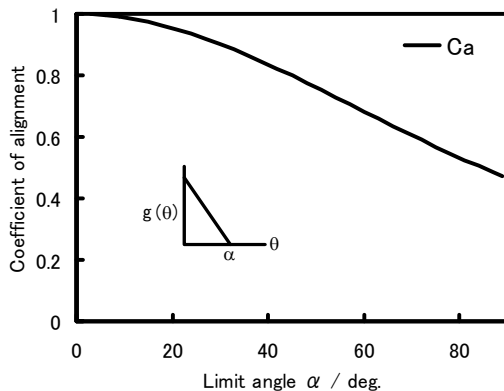


Fig. 6 Relation between  $C_a$  and limit angle  $\alpha$ .

さらに、繊維圧縮率 $K$  (初期体積に対する成形後の体積の比の逆数)を導入することで、圧縮による強化の影響も計算式に組み入れた。以下がその式である。

$$E_{comp} = KC \eta V_f \cdot E_f + (1 - V_f) \cdot E_m \quad (8)$$

圧縮率 $K$ については<sup>3)</sup>詳しく検討した結果、本研究でのケナフ繊維は成形体中に1.2程度圧縮されることが判明したので、 $K=1.2$ とした。さらに、曲げ強度についても短繊維強化理論から計算することは可能であるが、塑性から破壊に至るプロセスは複雑であるの

で、本研究では、曲げ弾性係数のみ予測計算を行った。

## 4. 実験および計算結果の考察

### 4.1 繊維圧縮率と繊維体積率の関係

図7は繊維圧縮率と繊維体積率の関係である。この図からわかるように繊維体積率が高くなると圧縮率の低下が認められた。この原因は明らかではないが、繊維間の隙間が少なくなるほど樹脂の濡れにくくなることが推測される。

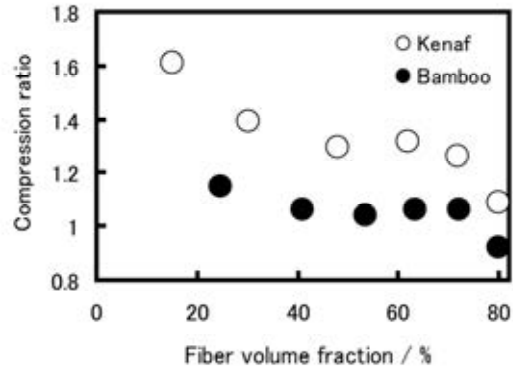


Fig. 7 Relation between compression ratio and fiber volume fraction.

図8と図9は、それぞれケナフ繊維長5mmと10mmの成形体中の繊維角度分布測定結果である。図中のプロット点は、横軸角度範囲内に存在する繊維の確率である。

さて、図8からわかるように、スリット幅が2mmから7mmへと広がるにつれて、繊維角度分布の範囲が広がり、治具作成時に期待した通りの結果となった。また、繊維角度分布が $0^\circ$ に近いほど繊維頻度は高く、 $90^\circ$ に近くでは、頻度は0%に近づく。このことから、本研究での繊維配向材の繊維配向分布関数は三角形関数に近いと判断できる。興味深いのは、繊維長よりも長いスリット幅7mmにおいても、三角形の配向関数が成立している点である。配向材の作製過程では幅が狭いスリットよりも広いスリットが繊維をスリット間に挿入しやすく、作業効率が容易であった。繊維配向分布はスリット幅と繊維長により決定されると考えられるが、この点については、今後の検討課題としたい。

図9はケナフ繊維長10mmの場合の測定結果である。繊維長5mmと比較して、繊維の配向角度分布の範囲は狭く、 $0^\circ$ から $40^\circ$ までの範囲に繊維が存在している。スリット幅が広がるにつれて繊維配向角度分布が広がるのは繊維長5mmと同様である。繊維配向分布図から求めた臨界角度を式(7)に代入して繊維配向係数 $C_a$ を求めたところ、表2に示す通りの結果となった。繊維長5mmのスリット2mmは繊維長10mmのスリット7mmと同程度の繊維配向係数であった。成形体作製作業は後者の方が効率良かったので、同程度の繊維配向成形体を作製する場合、スリット幅と繊維長を考慮する必要があることが判った。

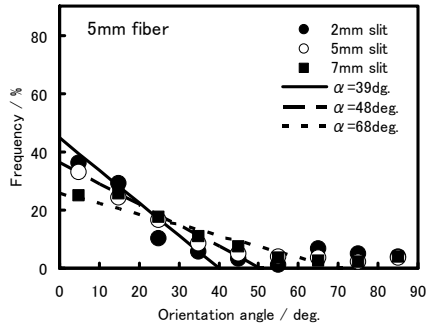


Fig. 8 Distribution of orientation angle of fibers in the composites.

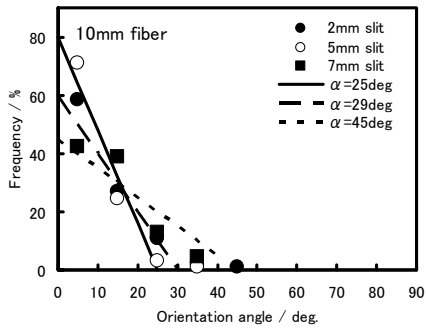


Fig. 9 Distribution of orientation angle of fibers in the composites.

Table 2 Coefficients of alignment of the composites.

Fiber	Random	7mm slit	5mm slit	2mm slit
5 mm	0.27	0.60	0.75	0.80
10mm	0.27	0.80	0.90	0.93

さて、曲げ弾性率の測定時には、試験片内には中立軸を境に引張・圧縮の応力が同時に負荷される。この時、引張と圧縮の弾性率が異なる場合、式(8)により予測することの妥当性が失われる可能性がある。そこで、ケナフ繊維複合材料の引張圧縮弾性率を測定した。

図10と図11は繊維長5mm、10mmにおける、引張・圧縮弾性率とスリット幅の関係である。弾性率の測定においては、試験片の両面にひずみゲージ(Gauge length 5mm)を貼り付け、 $\pm 7\text{MPa}$ の引張圧縮応力を負荷し、ひずみを測定した。弾性率算出にあたっては、両面のひずみゲージの値を平均化した。

測定の結果、図からわかるように、繊維長5mmと10mmにおいて、スリット幅に関係なく、引張と圧縮の差は非常に僅かであった。ランダムを除く全ての成形体の圧縮弾性率は引張弾性率の97%と、ほぼ同程度であった。長井らも2方向繊維配向材で同様の結果を得ている<sup>6)</sup>。これより、式(8)を用いて、曲げ試験片の弾性率を測定することは問題ないことがわかった。

#### 4.2 ケナフ繊維複合材料の繊維配向と曲げ弾性率および濡れの関係

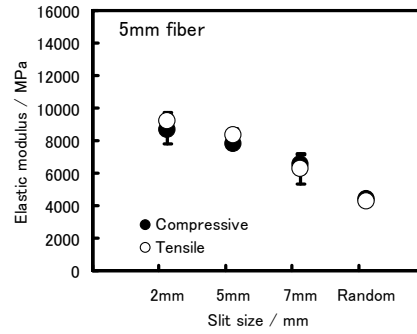


Fig. 10 Relationship between elastic modulus and slit size.

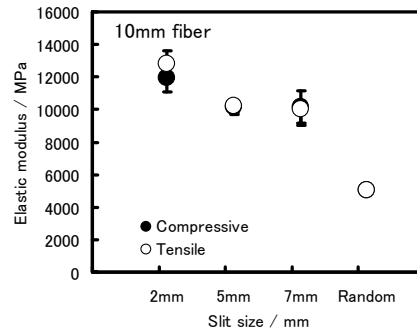


Fig. 11 Relationship between elastic modulus and slit size.

図12と図13は曲げ試験におけるケナフ複合材料の曲げ応力-変位曲線図である。図からわかるように、スリット間隔が狭くなるにつれ、応力-変位の傾斜が高くなり、曲げ弾性率が高くなることわかる。同様に最大荷重が高くなることから、曲げ弾性率だけでなく、曲げ強度も高くなることわかる(表3に曲げ強度の平均値を示す)。曲げ弾性率を算出する際は、最初の立ち上がりを除いた、応力-変位曲線図の直線部分の傾きを使用した。

次に図14と図15に、繊維長5mmと10mmにおける曲げ弾性率とスリット幅との関係を示す。図中での黒丸は実験値で、白丸は式(8)を用いた計算値である。図からわかる通り、ランダム配向材では、実験値と計算値が良く一致するものの、配向材では計算値は実験値よりも高い傾向にある。特に、10mmでは、その差は明瞭であった。繊維長5mmでは実験値による曲げ弾性率はランダムを除くと、計算値の87%であったが、繊維長10mmのそれは76%であった。このように、実験値は計算値よりも低いですが、それでも平均曲げ弾性率は繊維長5mmで10485MPa、繊維長10mmで12100MPaに達し、それぞれランダム材の2.5、2.7倍に達した。

また、繊維配向試験片の目視による観察を行ったところ、樹脂に濡れていない繊維が一部観察された。図16に、その典型例を示す。図中の矢印先端の白い部分は繊維と樹脂が互いに濡れていない箇所を指しており、紙面水平方向がスリットと平行方向である。

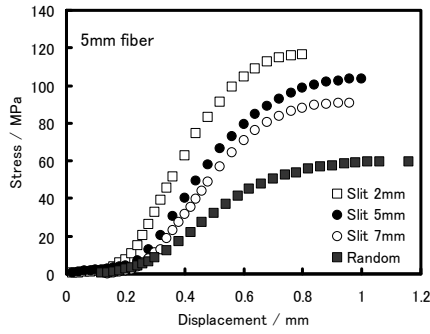


Fig. 12 Stress-displacement curve for various fiber alignment composites.

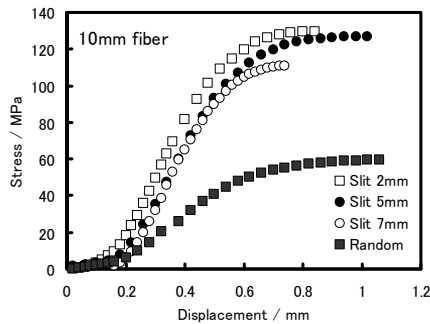


Fig. 13 Stress-displacement curve for various fiber alignment composites.

Table 3 Flexural strength of the aligned composites.

Fiber	Random	7mm slit	5mm slit	2mm slit
5mm	62	89	99	116
10mm	64	118	119	130

この白い箇所はスリットと平行であり、試験片とスリット治具を突き合わせて確認すると、スリットとスリットの間が繊維と樹脂が濡れていない部分であった。以上の実験結果から、実験値が数値計算値よりも低かった原因について著者らは以下のように考える。①実験方法で述べたように、試験片作製時に、スリット間に繊維を挿入すると、スリットを抜いた後においても、スリットとスリットの間において、試験片厚み方向への繊維密度が高くなり、繊維間に樹脂が浸透しない箇所が生じた。②繊維長 10mm は繊維長 5mm よりも、繊維の方向が揃っており、繊維と繊維間の隙間が少なく樹脂が浸透しにくかった。

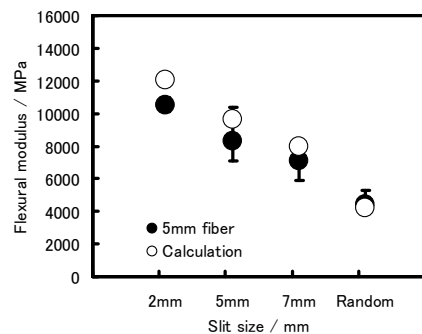


Fig. 14 Relationship between flexural modulus and slit size

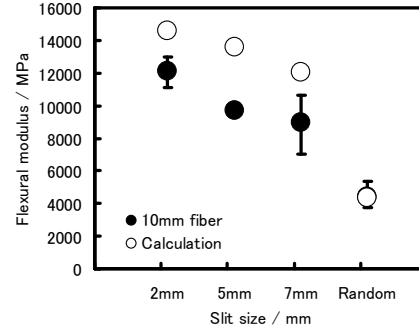


Fig. 15 Relationship between flexural modulus and slit size.

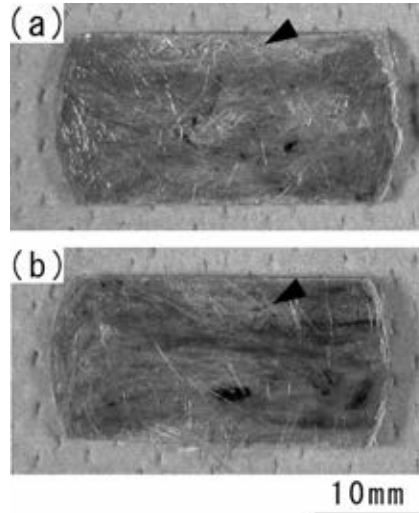


Fig. 16 Appearance of flexural specimens (a) fiber length 5mm, slit size 5mm, (b) fiber length 10mm, slit size 5mm

ちなみに、今回の試験片は最高曲げ弾性率を示す繊維体積率 62%で試験片を作成した。さらに、前報の結果では 62%以上の繊維体積率では樹脂が繊維に対して不足するため、成形体中に繊維と樹脂が互いに濡れない部分が生じ、曲げ弾性率が顕著に低下することを示した。

以上の考察と前報での実験事実とから推定すると、本研究での、繊維配向材ではスリットとスリットの間で局所的に繊維密度が 62%以上の高い領域が生じ、結果的に繊維と樹脂が濡れない領域が生じたと考えら

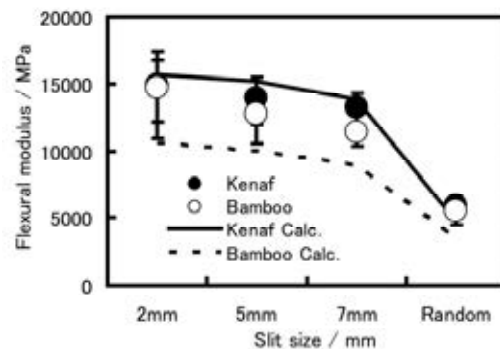


Fig. 17 Relationship between flexural modulus and slit size both in bamboo and kenaf.

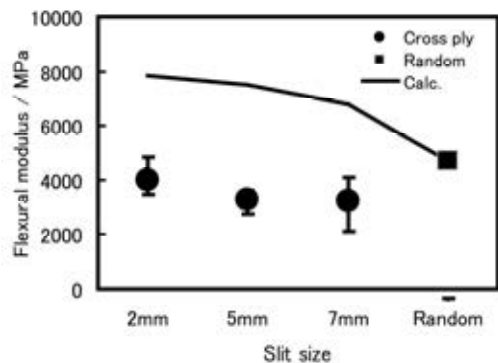


Fig. 18 Relationship between flexural modulus and slit size in the cross-ply specimen.

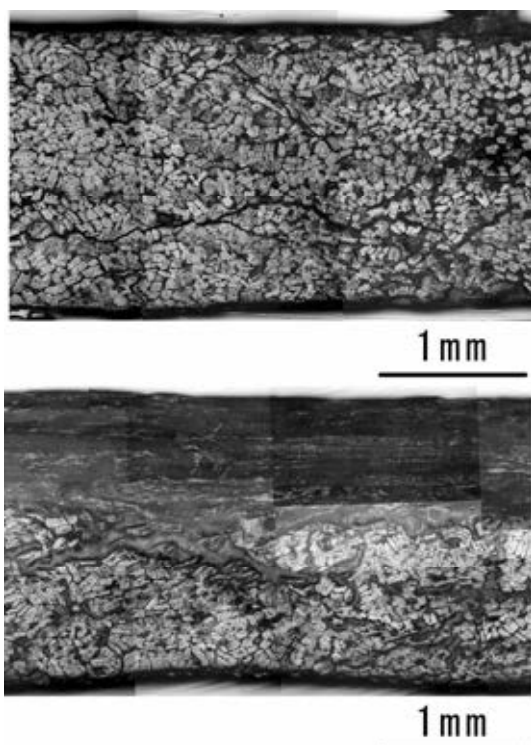


Fig. 19 Microstructure of the bamboo composites in the cross section, above unidirectional and below cross-ply specimens.

れる。さらに、繊維長 10mm においては繊維の方向が揃っているため、さらに、繊維と樹脂とが濡れない箇所が多く生じたと考えられる。このことが、図 11 と図 12 との比較において、繊維長 10mm において、実験値が計算値の 76%程度と低かった主要な原因と考えられる。以上の結果からスリットにて、繊維配向材を作製し、曲げ弾性率は繊維と樹脂との濡れ影響が大きいことが判明した。

図 17 は竹およびケナフの複合材料のスリットサイズと曲げ弾性率の関係である。これからわかるように、計算値と実験結果は同様の傾向を示した。しかしながら、図 18 は竹におけるクロスプライ試験片（試験片断面の中央部を境に繊維方向がクロスしている）の曲げ弾性率である。図 19 はこれらの断面組織であり明らかにクロスプライ(下)の写真では繊維同士の間

間があり、濡れ不足であった。以上の結果からスリットにて、繊維配向材を作製し、曲げ弾性率は繊維と樹脂との濡れ影響が大

## 5. 結論

竹およびケナフ繊維と生分解性樹脂による繊維強化材料を熱間プレス成形によって作製し、引張・圧縮試験および曲げ試験を行い、曲げ弾性係数と濡れの影響を調べた。得られた結論は以下の通りである。

- (1) 植物繊維強化材料の繊維配向材を作製したところ、繊維長 10mm の場合は繊維長 5mm に比較して、配向関係係数が高かった。これは、スリット間隔に対して繊維長が長く、繊維投入時に繊維の方向が揃いやすいからである。また、同程度の配向係数の成形体を作製するならば、繊維長が長く、スリット間隔が広いほど、作業効率良かった。
- (2) 引張圧縮試験の結果、繊維配向の程度に関係なく、圧縮弾性率は引張弾性率の 97%の値を示し、大差ないことが判明した。これにより、式 (8) により、繊維複合材料の曲げ弾性率を予測することの妥当性が示された。
- (3) 繊維複合材料において、繊維配向作製治具のスリットとスリットの間は繊維密度の高い領域が生じ、結果的に繊維と樹脂が濡れない領域が生じた。さらに、繊維方向が揃うほど、樹脂と繊維の隙間が少なくなり、樹脂と繊維が濡れない箇所が多くなることが推測された。これは実験値における曲げ弾性率が計算値よりも低かった理由である。すなわち、ランダム配向材を除く、全てのスリット間隔において、曲げ弾性率の実験値は計算値の 76-87%と低かった。つまり、スリットにて繊維配向材を作製し、曲げ弾性率を評価する際には、繊維と樹脂との濡れに注意を払う必要がある。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり研究助成をいただいた(財)天田金属加工機械技術振興財団に、感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 廣恵章利, 本吉正信 “プラスチック成形加工入門” / 日刊工業新聞社(1990)
- 2) さとうきび製造業の省エネルギー・リサイクル及び新製品開発に関する調査報告書 / (財)沖縄県産業振興公社, 沖縄県産業情報センター編
- 3) (社)西日本プラスチック製品工業協会での公演内容(2006.6.15)
- 4) H. Fukuda and T. W. Chou “A probabilistic theory of the strength of short-fiber composites with variable fiber length and orientation” / Journal of Materials Science (1982) 17 pp.1003-1011
- 5) 柴田信一, 曹勇, 福本功 “バガス繊維と生分解性樹脂による複合材料の曲げ弾性係数について” / 日本機械学会論文集 C 編 71-707 (2005) pp.2414-2419
- 6) 長井兼宏, 横山敦志, 前川善一郎, 濱田泰以, 野口義治 “三次元強化繊維複合材料解析手法の研究(第二報, 引張・圧縮強度の解析)” / 日本機械学会論文集 A 編 60 巻 570 号 pp.514-519