

# 琉球大学学術リポジトリ

## プレス成形によるケナフ繊維と生分解性樹脂の複合材料作製と曲げ弾性率の検討

メタデータ	言語: 出版者: 日本機械学会 公開日: 2007-04-10 キーワード (Ja): キーワード (En): Kenaf, Biodegradable Resin, Short-fiber, Reinforced Plastic, Law of Mixture, Flexural Modulus 作成者: 柴田, 信一, 曹, 勇, 福本, 功 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/20.500.12000/371">http://hdl.handle.net/20.500.12000/371</a>

## プレス成形によるケナフ繊維と生分解性樹脂の複合材料作製と 曲げ弾性率の検討\*

柴田信一<sup>\*1</sup>, 曹 勇<sup>\*2</sup>, 福本 功<sup>\*1</sup>

### Fabrication of Composites Made from Kenaf Fiber and Biodegradable Resin by a Hot Press and the Flexural Properties

Shin-ichi SHIBATA<sup>\*3</sup>, Yong CAO and Isao FUKUMOTO

<sup>\*1</sup> Department of Mechanical Engineering Systems, University of the Ryukyus,  
1 Senbaru, Nishihara-cho, Nakagami-gun, Okinawa, 903-0213 Japan

The composite made from kenaf fiber and biodegradable resin was fabricated by a hot-press forming. The effects of fiber volume fraction and fiber length on flexural properties were investigated. The experimental results were compared to the numerical calculation based on Cox's model. The flexural modulus increased with increase of volume fraction of fiber and showed the maximum value of 3 991 MPa at 62%. In the high volume fraction, the flexural modulus made a good agreement with the predicted value. On the contrary, in the low volume fraction, the value of flexural modulus was higher than the predicted. This higher flexural modulus was due to the fiber segregation which was observed in the vicinity of the surface. Similar results were found on flexural strength. Furthermore, the decrease of flexural modulus was shown below the fiber length 2.5 mm. This trend was clearly predicted by the model.

**Key Words:** Kenaf, Biodegradable Resin, Short fiber Reinforced Plastic, Law of Mixture, Flexural Modulus

#### 1. 結 論

近年の環境問題への関心からグリーンコンポジットと呼ばれる天然繊維と生分解性樹脂を組み合わせた複合材料が注目されている。生分解性樹脂だけでは、コストが汎用プラスチックに比較して4-5倍と非常に高いこと、弾性率が極めて低いからである。すなわち、生分解性樹脂と比較し高弾性で安価な天然繊維を組み合わせて、より付加価値の高い材料を作製するという試みである。実際、一部自動車メーカーでは、このようなグリーンコンポジットを既に自動車部品として採用している。この生分解性樹脂の需要は現在の数万トンから2020年には2000万トン、全プラスチックの2%を占める見通しがなされている。このグリーンコンポジットに採用される天然繊維は、著者らが継続的に研究<sup>1)2)</sup>を行っているバガス以外にも、ジュート<sup>3)</sup>、ケナフ<sup>4)</sup>、綿糸<sup>5)</sup>、竹<sup>6)</sup>、ヘンプ<sup>7)</sup>、ヘネッケン<sup>8)</sup>などが、研究上報告されている。

以上のような、グリーンコンポジットを構造部品として考えた場合、曲げ弾性率および、その予測は機械設計上極めて重要である。そこで著者らはさとうきびの搾りかすであるバガスを用いて、曲げ弾性率の予測を行った。バガス繊維は空洞構造であり、曲げ弾性率予測には繊維径比率を導入することで、単繊維弾性

率から精度良く予測できることを示した。

一方、バガス繊維以外に、将来有望視されているケナフ繊維があるが、これらバガスと違い繊維断面は空洞が少ない構造である。そこで、本研究では、ケナフ繊維を用い生分解性樹脂との複合材料をプレス成形により作製し、繊維含有量および繊維長の曲げ弾性率に及ぼす影響を検討し、バガス繊維との比較を行った。同時に単繊維引張実験を行い、繊維の引張弾性率を実験的に求めた。その実験結果をCoxモデルと組み合わせ、曲げ弾性率の推定を行い、計算値と実験値を比較したので、ここに報告する。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 ケナフ繊維および生分解性樹脂

ケナフ繊維の抽出方法は以下の通りである。すなわち、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、茎の上下100mm程度をカットした。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、乾燥させた。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、繊維を5種類の長さにかットした。それぞれの平均繊維長は1.9、2.5、5.6、10.9および15.1mmとした。

\* 原稿受付 2005年1月20日。

<sup>\*1</sup> 正員、琉球大学工学部(〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原1)。

<sup>\*2</sup> 正員、琉球大学大学院理工学研究科。  
E-mail: shibata@tec.u-ryukyuu.ac.jp

生分解性樹脂は、澱粉系生分解性樹脂 CP-300 (ガラス転移温度  $T_g$  -60°C, 軟化温度 55-62°C, ミヨシ油脂㈱) を用いた。CP-300 はエマルジョンタイプであるが、これを 100°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。引張強度  $\sigma$ , ヤング率  $E$  は表 1 に示す通りである (添え字  $m$  は CP-300,  $f$  はケナフ繊維を表しており、後述するように本研究で著者らが測定した値である。)

また、図 1 に SEM によるケナフ繊維の断面を示す。繊維断面にはバガス繊維<sup>2)</sup>のように空洞が観察されるが、その密度は低く、どちらかと言えば、中実の繊維に近い。

Table 1 Properties of kenaf fiber and biodegradable resin.

$\sigma_f$	299.0 MPa
$E_f$	19297 MPa
$\sigma_m$	9.8 MPa
$E_m$	496.4 MPa



50  $\mu$  m

Fig. 1. Crosssection of kenaf fiber after tensile test by SEM.

## 2.2 熱間プレス成形

熱間プレス成形の方法は以下の手順で行った。まず、使用するケナフ繊維半分を金型上に均等な厚みになるように注意しながら、金型に投入した。次に、樹脂をケナフ繊維上に均等になるように置き、最後に残りの半分のケナフ繊維を投入し金型を閉じた。その後、金型を加熱し 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全ての条件において重量が 1.6-1.7g になるように、投入するケナフ繊維と樹脂の量を 2-2.2g 間で調整した。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 1.8-2.0mm の円板形状である。得られた成形体の一

例を図 2 に示す。図からわかるように、成形体の表面は半透明の生分解性樹脂で覆われ、ケナフ繊維と生分解性樹脂が均一に混合した複合材料を作製することが出来た。

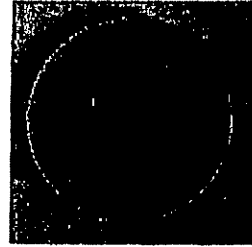


Fig. 2. The hot press forming specimen.

## 2.3 成形体の曲げ試験と単繊維引張試験

試験機は島津オートグラフ (GCS-R-100) を使用した。成形体の評価は 3 点曲げ試験 (JIS K7171) により行い、支点間距離は 18mm とした。成形体中央部から幅 15mm の平板を一個切り出し、曲げ試験片とした。試験後は荷重-変位線図の直線部分から曲げ弾性率を推定し、最大荷重を曲げ強さとした。単繊維引張試験については高木らの方法<sup>9)</sup>と同じく、図 3 のように台紙にケナフ繊維を瞬間接着剤で接着し、引張試験直前に台紙部分を切断し、引張試験を行った。

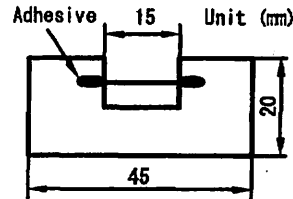


Fig. 3. Shape and dimension for the tensile specimen.

引張試験前には万能投影機 (ニコン V16D) により、ケナフ繊維の幅を 3 箇所測定し、平均値を繊維径とした。繊維断面は円とみなし、面積で引張荷重を除外し引張応力とした。

## 3 曲げ弾性率の予測

短繊維強化複合材料の弾性率  $E_{comp}$  は複合則から以下の式で与えられる<sup>10)</sup>。

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

$E_f$ ,  $E_m$ ,  $V_f$  は繊維の弾性率, マトリックスの弾性率および繊維の体積率,  $\eta$  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>11)</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。

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

$G_m$  は横弾性率であり、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(2)は繊維の配向係数  $C$  および繊維の圧縮成形後の圧縮率が組み込まれていない。配向係数については、Fukuda<sup>13)</sup>らが短繊維強化材料の配向係数を解析的に求めており、成形体中に繊維が2次元でランダムに配向している場合の配向係数  $C$  は 0.27 となることを明らかにしている。そこで、本研究での成形体中の繊維分布も2次元でランダムとみなし、配向係数  $C$  は 0.27 とした。

さらに、前報<sup>2)</sup>で述べたように、繊維の圧縮率  $K$  (繊維初期体積に対する成形後の体積の逆数) 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。

$$E_{comp} = KC \eta V_f \cdot E_f + (1 - V_f) \cdot E_m \quad (6)$$

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、曲げ弾性率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 単繊維引張試験結果

式(6)を用いて曲げ弾性率を予測するために、ケナフ単繊維の引張試験を69本行った。単繊維の弾性率は荷重-変位線図の直線の傾きと予め測定した繊維径から算出した。結果を図4に示す。繊維径と弾性率の間には弱い負の相関 (-0.33) が認められた。平均弾性率 19297MPa、標準偏差 11913MPa、尖度が 7.08 であ

った。つまり、ケナフ繊維の弾性率の分布は正規分布ではなく、裾広がり分布をしていた。この原因を調べるために、引張強度と弾性率との関係を調べた。図5に結果を示す。図からわかるように、弾性率と引張強度の間には、強い正の相関 (+0.96) が認められた。この理由については、ケナフ繊維の解繊過程の繊維損傷、あるいは、みかけ繊維径と実際の繊維径が異なる可能性がある。つまり、実際の繊維径が、みかけの繊維径より太い場合は、引張強度・弾性率ともに高くなり、細い場合は、低くなる、と推定される。この推定は尖度が 7.08 と高いこととも符合する。また、引張強度と弾性率の相関が高いことから、繊維自体の強度のバラツキは、繊維径の実質的な値に影響されていると考えられる。いずれにしても、繊維径が細いものに高弾性率・高強度の繊維が存在していた。以上の結果はケナフ繊維を複合材料として利用する場合、繊維径に影響を与える繊維の抽出過程の重要性を示唆している。

単繊維引張実験で得られた結果をまとめた実験値を表1に示す。次節でのケナフ繊維複合材料の曲げ弾性率の予測は、これらの値を用いた。前報<sup>2)</sup>におけるバガス繊維の弾性率は 2952MPa であり、これに比較するとケナフの 19297MPa は 6.6 倍程度高い弾性率である。これは繊維断面構造がバガスの場合、中空に近いのに比べケナフ繊維は中実であるためであると考えられる。

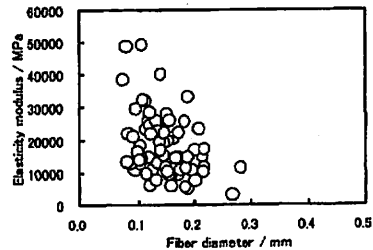


Fig. 4. Relationship between elasticity modulus of kenaf fibers and diameters.

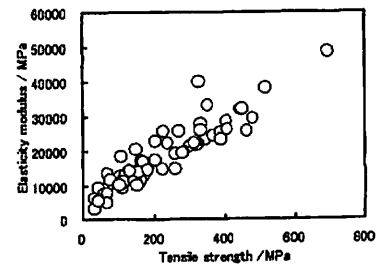


Fig. 5. Relationship between elasticity modulus and tensile strength of kenaf fibers.

#### 4.2 繊維含有率と曲げ弾性率との関係

複合材料中のケナフ繊維含有率（体積率）を変化させた場合の曲げ弾性率および曲げ強度と含有率との関係を図6と図7に示す。ケナフ繊維長は平均5.6mmであり、平均繊維径は0.14mmである。なお、ケナフ繊維の体積率は以下の式から求めた。

$$V_f = \left[ V - \left( \frac{W - W_f}{\rho_m} \right) \right] / V \quad (7)$$

ここで、 $V$ ：成形体体積、 $W$ ：成形体重量、 $W_f$ ：繊維重量、 $\rho_m$ ：樹脂密度、 $V_f$ ：繊維体積率である。

図からわかるように曲げ弾性率と曲げ強度はケナフ繊維体積率とともに増加する。図中の実線は、式(6)による曲げ弾性率の計算値である。計算値は実験全体の結果と相似関係にあるが、一部では一致していない部分も確認された。確認されていない部分は、再実験を行い、実験結果の確認を行ったが、結果は同じであった。計算時の圧縮率 $K$ は全て1.2とした。平均曲げ弾性率は、繊維含有量62%時に最大を示し、3911MPaであった。曲げ強度も、それに準じ49.1MPaを示した。

バガス繊維による同様の成形体の弾性率は2525MPa<sup>2</sup>であったので、ケナフ複合材料はバガスのそれよりも、1.5倍程度、高弾性である。前節での単繊維引張試験の結果からは、ケナフ繊維弾性率もバガス繊維よりも6.6倍程度高かったが、後述するように、ケナフ繊維の圧縮率もバガス繊維（4.5-5）の1/4程度である。このため、両者の複合材料に弾性率の差ほど、差異が無かったと考えられる。

さて、繊維含有量72%では、曲げ弾性率および曲げ強度は低下し、計算値と実験値が乖離している。この含有量が高い領域での、成形体の観察を行ったところ、表面は繊維毎に凹凸があり平滑ではなく、明らかに繊維の表面全体を覆うための樹脂不足が生じていた。これが、曲げ弾性率の低下の原因であると考えられる。Nishino<sup>9</sup>らも、ケナフ繊維を用いて、引張実験を行っているが、おおよそ70%程度で弾性率、引張強度が最大になると報告しており、ほぼ今回の実験結果と同様の結果となっている。

図8はケナフ繊維含有量とケナフ繊維圧縮率の関係である。ケナフ繊維の圧縮率は次式を用いて算出した。すなわち、成形体の体積から投入した樹脂を引き、残りをケナフ繊維体積とし、その体積と投入したケナフ繊維の体積から圧縮率 $K$ を算出した。

$$K = (f_n V_f^*) / \left[ V - \left( \frac{W - W_f}{\rho_m} \right) \right] \quad (8)$$

ここで、 $f_n$ ：体積中の繊維数、 $V_f^*$ ：ケナフ繊維1本あたりの平均体積である。ケナフ繊維16%では圧縮率は1.41程度であったが、それ以外の条件では1.24-1.13程度であった。バガス繊維の圧縮率が4.5-5程度であるので、中実構造のケナフ繊維は圧縮されにくいと言える。ケナフ繊維16%において圧縮率が高くなる理由は不明である。樹脂に対してケナフ繊維が少なく、圧縮成形時に繊維間の潤滑が滑らかだったことが予測されるが、詳細は、これからの検討課題としたい。図9は成形体の引張および圧縮試験における、応力-ひずみ線図である。これは、曲げ試験片と同寸法の試験片の表面にひずみゲージを貼り付けて、引張・圧縮試験を行った結果である。繊維長は5.6mm、繊維含有率は62%である。図からわかるように、引張と圧縮における、応力-ひずみの関係に明瞭な差は観察されなかった。この場合、引張側の弾性率は4308MPa、圧縮側は4642MPaであった。他にも、繊維径の異なるケナフ繊維（平均繊維径0.094mm）で行ったが、結果は同様であつ

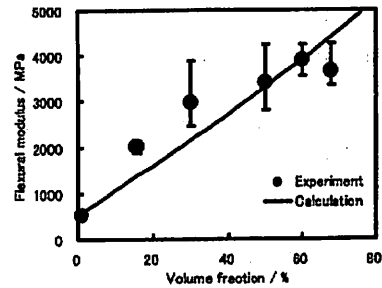


Fig. 6. Relationship between flexural modulus of the composites and the volume fraction of kenaf fiber.

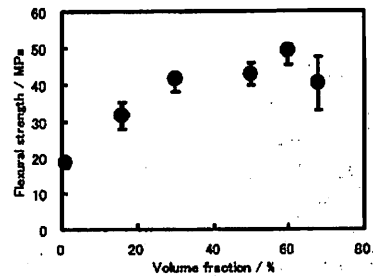


Fig. 7. Relationship between flexural strength of the composites and the volume fraction of kenaf fiber.

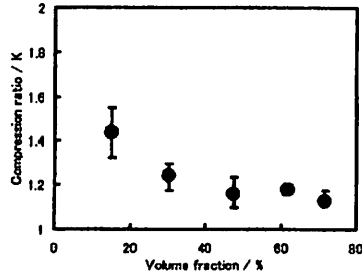


Fig. 8. Relationship between compression ratio and the volume fraction of kenaf fiber.

た。したがって、引張および圧縮時の弾性率に差は無く、式(6)を適用して、曲げ弾性率を予測することは妥当であると思われる。長井ら<sup>13</sup>もガラス繊維プラスチックで実験および数値計算による弾性率の検討を行っているが同様の結果を得ている。しかしながら、繊維配向がある場合は、必ずしも、引張と圧縮の弾性率は同じではなく、特に、繊維配向材では、著しい差が生じることがある。本研究でも、繊維配向材を作製し、引張と圧縮の弾性率を求めたところ、圧縮の弾性率は25-30%程度、引張よりも低い値であった。さらに、考察を続ける。図6を良く見ると、繊維低含有量領域では、曲げ弾性の実験値は予測値よりも高い。通常繊維複合材料では繊維含有量が低い場合は、弾性率の向上が鈍いことが知られている<sup>3</sup>。本研究の結果は、過去の他の研究報告とは、全く異なる結果が得られている。

そこで、成形体断面の光学顕微鏡による観察を行った。図10(a), (b), (c)と(d)は繊維含有量が16%, 30%, 50%と62%のものである。写真の上端・下端が表面である。繊維含有量が低い場合、樹脂部分は中央に多く、繊維が表面近くに偏折していることがわかる。実際に試験片表面を観察しても、表面近くに繊維が多い傾向であった。一方、繊維含有量が高い場合には、成形体は繊維で均一に満たされている。成形体を作成する際には、サンドイッチ式で行うために、繊維含有量が低いと、繊維が表面近くに偏折しやすいと思われる。しかしながら、写真からもわかるように繊維含有量が50%以上では、このような繊維の偏りは認められなかった。

以上の考察をまとめると、繊維低含有量では表面近くの繊維の偏りにより、実験値が計算値を上回り、高含有量では繊維を覆うための樹脂不足が生じ、計算値が実験値を上回る。

#### 4.3 繊維長と曲げ弾性率との関係

前節よりケナフ繊維含有率が62%で曲げ弾性率およ

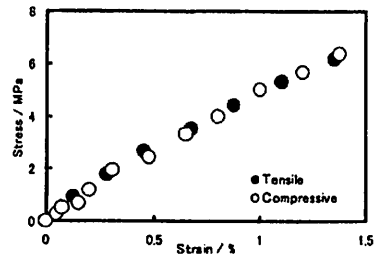


Fig. 9. Stress-strain curves of the kenaf composite.

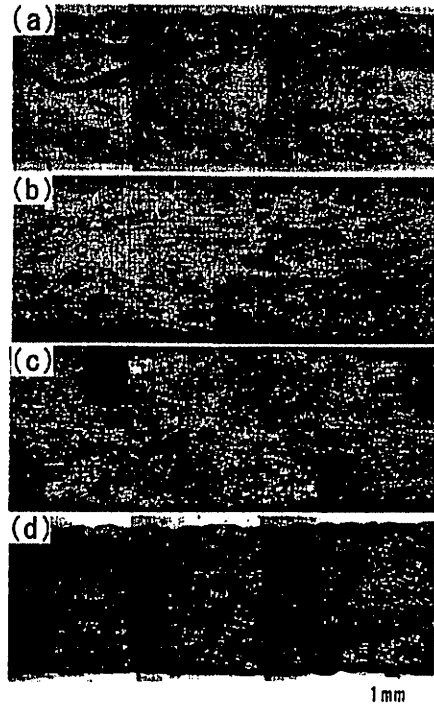


Fig. 10. Cross-sectional view of the kenaf composites.

び曲げ強度が最大値を示したので、繊維含有率62%にて、ケナフ繊維長を変化させ、曲げ試験を行った。結果を図11と図12に示す。プロット点は実験結果であり、実線は圧縮率 $K=1.2$ とした計算値である。実験結果と計算結果は良く一致した。また、ケナフ繊維が2.5mm以下において、繊維長に起因する剛性低下が認められた。この条件での繊維長と繊維径のアスペクト比は約17である。繊維のアスペクト比と弾性率に関してはC. Hsueh<sup>10</sup>が詳細に解析しており、アスペクト比20以下になると著しい、剛性低下が生じるとしている。本実験においても、アスペクト比約20以下で剛性の低下が生じている。この点については、図11および図12での曲げ弾性率および曲げ強度について

も類似した結果が確認された。図 13 はケナフ繊維長とケナフ繊維圧縮率との関係である。圧縮率は繊維が長くなるほど低下する。

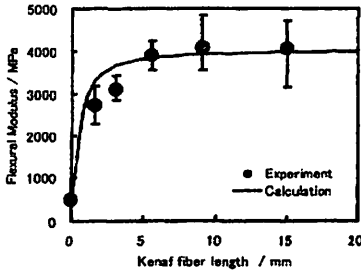


Fig. 11. Relationship between flexural modulus of the composites and the kenaf fiber length.

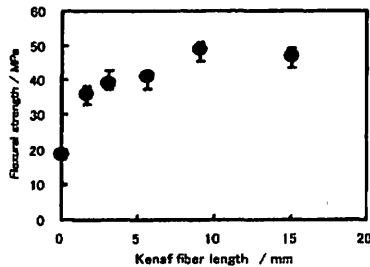


Fig. 12. Relationship between flexural strength of the composites and kenaf fiber length.

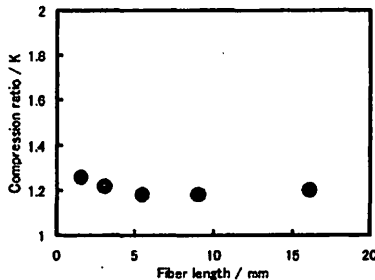


Fig. 13. Relationship between compression ratio and the kenaf fiber length.

これについての理由は、繊維長が長いほど、成形時に繊維同士の絡みによる拘束が増加し、加圧時に最適な圧縮がなされなかった、ためであると考えられる。

### 5. 結論

ケナフ繊維と生分解性樹脂による複合材料を熱間プレス成形によって作製し、単繊維引張試験および曲げ試験を行い、曲げ弾性率および曲げ強度を調べた。得られた結論は以下の通りである。

- (1) ケナフ単繊維引張試験の結果、引張弾性率と繊維直径には負の相関が確認され、繊維径が細いものに高弾性・高強度の繊維が存在していた。また、

ケナフ繊維は空洞上構造のバガス繊維と異なり中実構造で、弾性率も 6.6 倍高いことが判明した。

- (2) ケナフ繊維の含有率が増加すると曲げ弾性率および曲げ強度は増加し、繊維体積率 62%にて最大 3991MPa と 49.1MPa に達した。実験結果はケナフ繊維圧縮率を導入した予測式による計算結果とは一致しない領域も観察された。低含有量では繊維の表面偏析の影響を受け、高含有量では繊維盤に対する樹脂不足が生じるためである。また、ケナフ繊維の圧縮率は 1.2 程度であり、バガス繊維の 4.5-5 程度に比べ低かった。これは前述の繊維構造に起因している。
- (3) ケナフ繊維長が短くなると曲げ弾性率および曲げ強度は低下した。すなわち、繊維長が 2.5mm 以下 (アスペクト比 17) では、繊維長による曲げ弾性率と曲げ強度の低下が認められた。これも、予測式による計算結果と良く一致した。

### 文献

- 1) 橋本功, 黒木義郎, 銘苅春栄, 中山清光, バガス充てん材として用いた BMC の射出成形技術の開発, (1995), 日本機械学会論文集 C, 39-661, pp.1547-1552.
- 2) 柴田信一, 曾勇, 橋本功, 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, (2005), 日本機械学会論文集 C, 71-707, pp.2414-2419.
- 3) D. Ray, B. K. Sarkar, A. K. Rana, N. R. Bose, The mechanical properties of vinyl ester resin matrix composites reinforced with alkali-treated jute fibres, (2001), Composites A, 32, pp.119-127.
- 4) T. Nishino, K. Hirao, M. Kotera, K. Nakase and H. Inagaki, Kenaf reinforced biodegradable composite, (2003), Composites science and technology, 63, pp.1281-1283.
- 5) 伊藤隆彦, 荒木政造, 木村照夫, 綿糸を強化材とする生分解性プラスチックの生分解による強度特性の変化, (2000), 日本機械学会論文集 A, 66-648, pp.1555-1560.
- 6) 高木均, 田舎隆輝, 生分解性プラスチック-竹粉複合ボードの試作とその強度評価, (2003), 材料, 52-4, pp.357-361.
- 7) B. Wielage, T. Lampke, H. Utschick and F. Soergel, Processing of natural-fiber reinforced polymers and the resulting dynamic-mechanical properties, (2000), Journal of materials processing technology, 139, pp.140-146.
- 8) P. J. Herrera-Franco and A. Valadez-Gonzalez, Mechanical properties of continuous natural fibre-reinforced polymer composites, (2004), Composites A, 35, pp.339-345.
- 9) 高木均, 田舎隆輝, 一原裕平, 越智真治, 三澤明明, 仁木将樹, 爆竹法により取り出した竹繊維の引張強度特性, (2003), 材料, 52-4, pp.353-356.
- 10) Hill D, (宮入裕夫, 池上啓三, 金原勲訳): 複合材料入門, (1983), 培風館.
- 11) H. L. Cox, The elasticity and strength of paper and other fibrous materials, (1952), British Journal of applied physics 53, pp.72-79.
- 12) H. Fukuda and T. W. Chu, A probabilistic theory of the strength of short-fiber composites with variable fiber strength and orientation, (1982), Journal of Materials Science, 17, pp.1003-1011.
- 13) 長井雅宏, 橋山敬士, 前川啓一郎, 濱田泰以, 野口龍治, 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), (1994), 日本機械学会論文集 A, 60-570, pp.514-519.
- 14) C. Hsueh, Yang's modulus of unidirectional discontinuous fiber composites, (2000), composites Science and Technology, 60, pp.2571-2580.