

## バガス繊維と生分解性樹脂による複合材料の作製と強度の検討\*

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

## The Tensile Strength of the Composites Made from Bagasse Fiber and Biodegradable Resin

Shin-ichi SHIBATA<sup>\*3</sup>, Yong CAO and Isao FUKUMOTO<sup>\*3</sup> Department of Mechanical Engineering Systems, University of the Ryukyus,  
1 Senbaru, Nishihara, Okinawa, 903 0213 Japan

The tensile strength of the composite material from bagasse fiber (remains after sugar cane squeezed) and biodegradable resin was investigated in view of the content of bagasse fiber, and validated by short fiber strengthen theory with Monte Carlo method. The result is as follows. The tensile strength increased with increasing the content of bagasse fiber. Micrograph observation showed the bagasse fiber, which has a honeycomb structure in the cross section, was compressed in press forming. The compressed bagasse fiber contributed to increase the tensile strength. This expectation was validated through the simulation with Monte Carlo method based on short fiber strengthen theory which takes the compression ratio of bagasse fiber into consideration. The simulation result showed that the tensile strength of the composite material and its variation make a good correlation with the experimental result.

**Key Words:** Bagasse, Biodegradable Resin, Reinforced Plastic, Law of Mixture, Tensile Strength, Monte Carlo Method, Composite Material

## 1. 緒 論

著者らはバガス繊維を用いたプラスチック複合材料の射出成形および成形品の特性を調べている<sup>1,2</sup>。バガスとは“サトウキビの絞りかす”である。沖縄県では年間約 80 万トン生産されているサトウキビの 23%が、温水による拡散や圧搾による脱糖過程を経てバガスとなる。バガス繊維の一部は琉球漆器や肥料として利用されているもの、ほとんどはボイラーの燃料として使用されている。

一方、近年、従来のプラスチック材料に代わり循環社会の一環として、リサイクル可能あるいは土中分解する環境負担の少ない生分解性樹脂が注目されている。ただし、この生分解性樹脂は従来の FRP やポリプロピレンなどの汎用樹脂と比較して機械的強度が低い。そのため、強度向上を目的に、生分解性樹脂と竹繊維・麻繊維・ジュート繊維などの天然繊維を組み合わせた複合材料の作製が試みられている<sup>3,4</sup>。

しかしながら、生分解性樹脂とバガス繊維による複合材料の作製および機械的性質の検討はなく、繊維断面に空洞状のハニカム構造を有するバガス繊維が成形時に圧縮されることを考慮した強度予測計算の例も見当たらないようである。そこで、本研究では、バガ

ス繊維と生分解性樹脂との複合材料の作製を試み、その引張強度を調べた。さらに、実用上重要な成形体の強度およびバラツキの予測を行う目的で、作製した複合材料に単繊維強化理論を適用しモンテカルロ法<sup>5</sup>による引張強度予測計算を行った。

## 2. 実験方法

## 2.1 バガス繊維および生分解性樹脂

使用したバガス繊維を図 1 に示す。バガスは製糖工場から排出された後に、温風で十分乾燥させ(含水率は 0.01%)、粉碎した。粉碎後、ふるいにより、繊維長を揃えた。今回は繊維長平均が 9.13mm のバガス繊維を使用した。

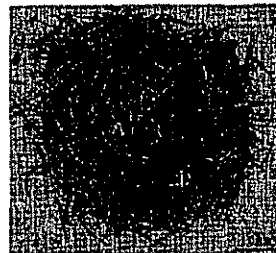


Fig. 1 Bagasse.

生分解性樹脂は澱粉系生分解性樹脂 CP-300(ミヨシ油脂株式会社製)を用いた。CP-300 はエマルジョンタ

\* 原稿受付 2004 年 4 月 30 日。

<sup>\*1</sup> 正員、琉球大学工学部機械システム工学科(〒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

イブであるが、これを 100℃にて水分を蒸発させ、乾燥し、冷却後、ペレット状(直径 22.5mm)に切断し、実験に供した。実験にあたり、後述する引張試験方法により、樹脂のみの試験片を作製し各種物性を測定したところ、引張強度 11.1MPa、密度 1.16Mg/m<sup>3</sup>、ヤング率 237MPa、伸び 128.5%であった。

2.2 熱間プレス成形

バガス繊維と生分解性樹脂との複合材料は熱間プレス成形により作製した。成形は熱間埋込プレス成形機(丸本工業製、型式 2423)で行った。熱サイクルを一定にするために、金型温度が加熱開始後、約 35 分後に 160℃±2℃安定することを赤外線放射温度計で予め確認した。実験時には金型温度が 160℃で安定したところで、金型内に所定量の半分のバガス繊維を投入し、次に、生分解性樹脂を投入し、さらに残りのバガス繊維を投入した。金型を閉じ 5 分間無圧で保持した後に 10 分間 10MPa の保圧を行い、成形を完了した。完了後、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、樹脂の軟化温度(58℃)以下になったところで成形体を取り出した。作製した成形品は直径 30mm、厚さ 1.8-2.0mm の寸法であった。なお、金型は樹脂が漏洩しないように作製したので、毎回約 0.2g の樹脂は流れるものの、実験条件によって変化することは無く安定していた。

なお、1 回の実験でバガス繊維と生分解性樹脂合わせて 2g になるように重量を調節した。試験片は各条件 7 個作製した。得られた成形品の一例を図 2 に示す。表面は半透明の生分解性樹脂で隈なく覆われ、バガス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。

2.3 成形品の引張試験とバガス単繊維引張試験

作製した成形体の強度を評価するために引張試験を行った。試験機は島津オートグラフ(DCSR-100)を使用し、図 3 に示す形状の試験片を平板用引張試験治具に取り付け、引張試験を実施した。引張試験片は成形品の中央部分からカッターにより 30×10×1.8~2.0mm の形状を切り出し、1 成形体から 1 個の試験片を作成した。その後、図 3 に示すように試験片とアルミタブ版を瞬間接着材で密着させ、試験に供した。試験後は荷重-変位曲線の直線部分からヤング率を推定し、最大荷重を試験前の試験片断面積で除し、引張強度とした。単繊維引張試験については高木らの方法<sup>8</sup>と同じく、図 4 のように台紙にバガス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。

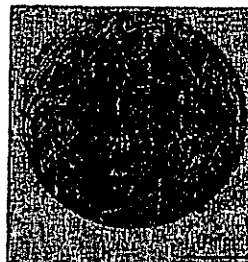


Fig.2 The hot press forming specimen.

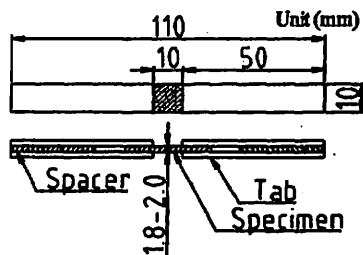


Fig.3 Shape and dimension for tensile specimen.

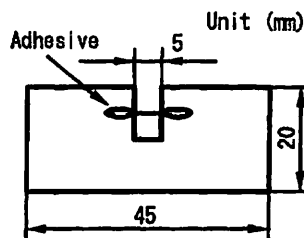


Fig.4 Shape and dimension for the tensile specimen.

なお、引張試験前に、万能投影機(ニコン V16D)により、バガス繊維の幅を測定した。そして、バガス繊維断面を円とみなし、面積で引張荷重を除し引張応力とした。

3. 単繊維強化理論とモンテカルロ法

単繊維強化複合材料の引張強度  $\sigma_{comp}$  は複合則から以下の式で与えられる<sup>9</sup>。

$$\sigma_{comp} = V_f \cdot \sigma_f + (1 - V_f) \cdot \sigma_m \quad (1)$$

ただし

$$\sigma_f = \int_0^{L_c} \frac{r \cdot m y}{d f} L_f \cdot F(L_f) dL_f + \int_{L_c}^{\infty} \sigma_f^* \cdot \left(1 - \frac{L_c}{2L_f}\right) \cdot F(L_f) dL_f \quad (2)$$

繊維の強度に対する寄与分  $\sigma_f$  は臨界長さ  $L_c$  以下と以上の項に分割される。さらに、バガス繊維の場合、その断面はハニカム構造であり、成形時に圧縮され

ると予想される。このため、繊維の強度寄与分 $\sigma_f$ は繊維の圧縮率 $\beta$ と個々の繊維の引張方向に対する傾き $\theta$ を使って、

$$\sigma_f = \frac{\tau_{ny}}{d_f} \cdot \sum_{L_f=0}^{L_c} G(L_f) \cdot L_f \cdot F(L_f) + \sigma_f^* \cdot \beta \cdot \sum_{L_f=L_c}^{\infty} G(L_f) \cdot \left(1 - \frac{L_c}{2L_f}\right) \cdot F(L_f) \quad (3)$$

と表すことができる。ここで、 $G(L_f)$ : 配向係数関数、 $V_f$ : 繊維含有率、 $\sigma_m$ : マトリックスの複合材料破断ひずみに対応する降伏強度、 $\sigma_f$ : 繊維強度寄与分、 $\tau_{ny}$ : マトリックスせん断降伏応力、 $d_f$ : 繊維平均直径、 $L_c$ : 繊維長、 $F(L_f)$ : 繊維長分布の確率密度関数、 $\sigma_f^*$ : 単繊維平均引張強度、 $L_c$ : 臨界長さ、 $\beta$ : 成形体中のバガス繊維圧縮率。(3)式での繊維臨界長さ $L_c$ は、

$$L_c = \frac{d_f}{4\tau_{ny}} \cdot \sigma_f \quad (4)$$

で与えられる。また、配向係数関数 $G(L_f)$ は、

$$G(L_f) = \cos^4 \theta L_f \quad (5)$$

となる。 $\theta_{L_f}$ は繊維 $L_f$ の引張軸に対する繊維の傾きである。

つまり、試験片内の個々のバガス繊維長さ引張軸に対する繊維の傾きが決まれば、結局、式(3)により、複合材料強度へのバガス繊維寄与分は計算できる。しかしながら、 $\sigma_f^*$ 、 $d_f$ 、 $F(L_f)$ は実験により求める必要がある。そこで、これらの係数を決定するために単繊維引張試験、樹脂単体引張試験および繊維直径測定を行った。繊維平均直径は万能投影機により520本を測定し、その平均とした。同時に、後に述べる繊維長分布を決定するために、繊維長も測定した。結果を表1に示す。臨界長さ $L_c$ は5.25mmであった。

さて、上述の理論を用いて引張強度および、その“ばらつき”を調べるためのモンテカルロ法による強度予測過程は以下のステップである。

- ① バガス繊維長確率分布に従いランダムにバガス繊維長を選択する。
- ② 成形体中のバガス繊維本数に等しいバガス繊維数を30mm×30mmの正方形上の任意の点に、任意角度回転させ、配置する。
- ③ 試験片は計算機上で幅10mmの大きさに切断する。
- ④ 繊維長分布に従って式(3)を用い、バガス繊維およびマトリックスの強度分を計算する。

なお、計算時には式(3)で個々の繊維寄与分の強度 $\sigma_f$ は繊維引張データから引張強度をランダムにを選択した。

Table 1. Properties of bagasse fiber.

$\sigma_f$	117.8 MPa
$\sigma_m$	9.4 MPa
$\tau_{ny}$	4.8 MPa
$L_c$	5.25 mm
$d_f$	0.465 mm

#### 4. 実験および計算結果の考察

##### 4.1 バガス繊維含有率と引張強度との関係

図5と図6にバガス繊維含有率と引張強度との関係、およびバガス繊維含有率とヤング率との関係を示す。

バガス繊維と生分解性樹脂の強度は含有率60%にて27.5MPaを示した。60%の含有率では引張強度がさらに高くなると予測したが、50%(平均引張強度26.1MPa)と同程度であった。これは、後述するバガス繊維圧縮率と樹脂がバガス繊維全体を密着するのに必要量が不足していた、あるいはバガス繊維の圧縮率の低下が原因の可能性がある。なお本研究で使用したCP300と竹粉との複合材料の引張強度は最大25MPaであるので、ほぼ同様の結果を得られたことになる。

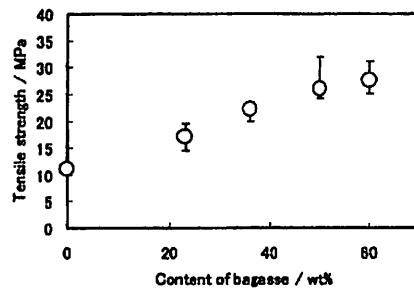


Fig.5 The relation between content of bagasse fiber and tensile strength.

また、バラツキについて各条件の平均値から最大値・最小値の差を平均値で除した値を乖離率とすると、全条件の平均乖離率は12.0%であった。図7はバガス単繊維引張強度と繊維直径との関係である。引張強度は複合材料よりも強く、20-380MPaの広い範囲にわたる。繊維直径と引張強度の相関係数は-0.36で弱い負の相関が認められた。

均繊維強度は117.8MPaであった。これらの実験事実が軟らかい生分解性樹脂と硬いバガス繊維が良く密着することで複合則が働き図5と図6で示した結果になったことを示唆している。

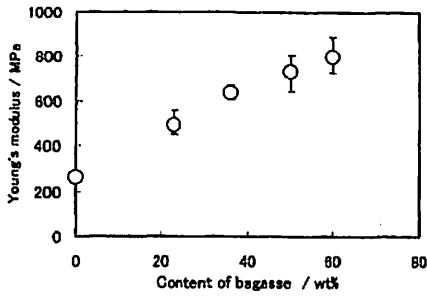


Fig.6 The relation between content of bagasse fiber and Young's modulus.

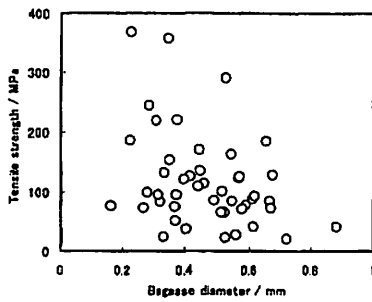


Fig.7 The result of tensile strength of single fibers and bagasse diameters.

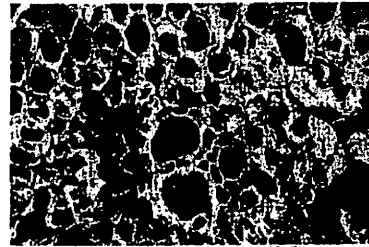
次に、図 8(a)に成形前のバガス繊維の断面、図 8(b)に引張試験後の破断面におけるバガス繊維断面を示す。成形前のバガス繊維の断面はハニカム構造になっているのが観察される。一方、引張試験後には、バガス繊維自身が破断され、かつ、バガス繊維は圧縮され緻密な状態となっていることが確認された。このように、試験後の破面には、圧縮されたバガス繊維の破断面が多く観察された。つまり、バガス繊維は圧縮され、緻密になることで、単位面積あたりの強度が増し、結果的に引張強度の向上に寄与していると考えられる。そこで、圧縮程度を確認するために、以下の式を用いて、バガス繊維の圧縮率 C を算出した。

$$C = (f_n \cdot V_f) / \left[ V - \left( \frac{W - W_f}{\rho_m} \right) \right] \quad (6)$$

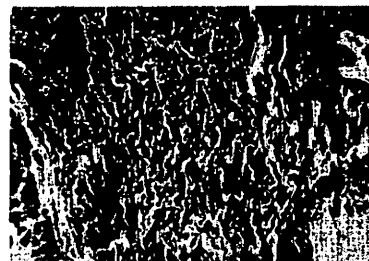
V: 成形体体積, W: 成形体重量,  $W_f$ : バガス繊維重量,  $\rho_m$ : 樹脂密度,  $f_n$ : バガス繊維本数,  $V_f$ : バガス繊維 1 本あたりの体積。

バガス繊維 1 本あたりの体積は平均繊維直径 0.465mm と繊維平均長さ 9.13mm からバガス繊維を円筒とみなし、繊維あたりの平均体積を求めたところ、 $1.265\text{mm}^3$  となった。また、バガス繊維投入数は任意

の 0.1g あたりのバガス繊維数を 10 回数えたところ、その平均が 2532 本であったので、グラムあたり 2532 本とした。



(a) 50  $\mu\text{m}$



(b) 50  $\mu\text{m}$

Fig. 8 Micrographs of the cross-sectional view of bagasse fibers: (a) Before forming and (b) After tensile strength test.

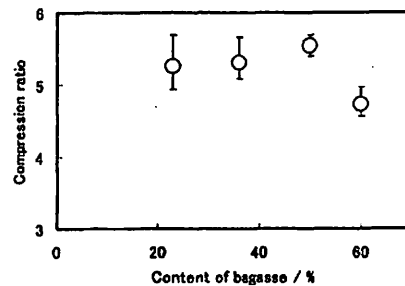


Fig.9 The relation between content of bagasse fiber and the compression ratio in the specimen.

以上から、バガス繊維含有量と圧縮率との関係を求めた。結果を図 9 に示す。図からわかるようにバガス繊維はおおよそ、4.5:5.5 分の 1 に圧縮されていることがわかる。ただし、含有量が 60% になると、圧縮率が低下する。この原因については明らかではないが、樹脂の割合が減少することで、バガス繊維に対する潤滑作用が弱くなり、成形時に圧縮が促進されなかったと推測される。なお、バガス繊維は空洞部の多いハニカム構造であるため、著者らの経験上、不飽和ポリエステルのような粘度の低い樹脂にて圧力を付加する混

練(2時間以上),あるいは水に長時間浸す(1日以上)場合には,繊維中に液体が含浸し,バガス繊維の色が小変色から茶褐色になることが確認されている。しかしながら,今回の成形条件では,バガス繊維の色は成形前後で変化は認められなかった。また,前述のSEMによる破面の観察においても,ハニカム構造中への樹脂の含浸は認められなかった。したがって,実験で得られた圧縮率の程度にバガス繊維は成形時に圧縮されたと考えられる。

ちなみに,バガス繊維100%の成形体を作製したところ,圧縮率は3.3となった。このことから樹脂の存在が成形時にバガス繊維の圧縮を促進したと推測される。

#### 4.2 モンテカルロシミュレーションによる強度予測

繊維強化による複合材料の引張強度は一般的に配向性を示す。しかしながら,本研究での成形体は図2で示したように,成形体は円形であり繊維配向はランダムに近い。これを確認するために,任意の繊維170本を選び,万能投影機で角度を測定した。配向角度は成形体表面近傍のバガス繊維の軸方向と引張方向との角度差とし,厚み方向への変化は無いものとした。実際に,目視で観察したところ,成形体の表と裏での違いは認められず,断面の組織観察においても厚み方向への変化は認められなかった。図10はその結果である。繊維はほぼランダムに配向していることがわかる。しかしながら,ここでは,引張強度の予測だけではなく,“バラツキ”も検討したいので,シミュレーション時には式(3)の繊維の引張軸に関する角度 $\theta$ を考慮した。

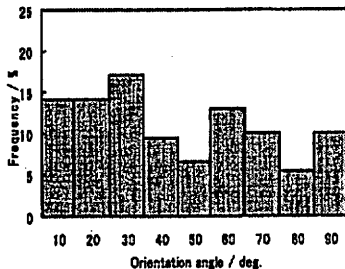


Fig.10 Distribution in orientation angle of bagasse fiber in specimens.

図11はバガス繊維長分布である。ヒストグラムを作成するにあたり,522本のバガス繊維を測定した。繊維長平均は9.13mmとなった。予めふるい分けされているため,4mm以下のバガス繊維は少ない。25mm以上の繊維も少なく,ほぼ,7mmから15mmにバガス繊維の繊維長は分布している。一方,シミュ

レーションにより,成形体を試験片幅10mmにした場合のバガス繊維分布の予想は図12のようになった。

バガス繊維の臨界長さ $L_c$ は5.25mmであり,臨界長さ $L_c$ 以上のバガス繊維は成形体では91.6%,引張試験片では56.7%であった。短繊維強化材料で引張強度向上に寄与するのは主に臨界長さ $L_c$ 以上の繊維であるから,引張試験片作成時に繊維長分布の変化による強度劣化が生じると考えられる。以上の条件をシミュレーションに組み入れ,引張強度と含有率の関係を計算した結果を図13に示す。ただし,圧縮率は図9の各バガス含有量の平均値を用いた。図中にはMatrix,臨界長さ $L_c$ 以下をShort fiber, $L_c$ 以上をLong fiberとし,それぞれの強度に対する寄与分がわかるようにしてある。

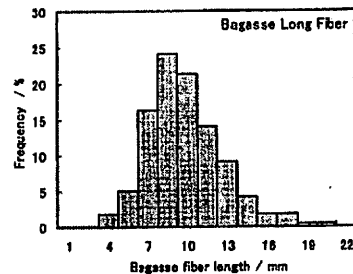


Fig.11 Relation between the frequency and the length of bagasse fibers.

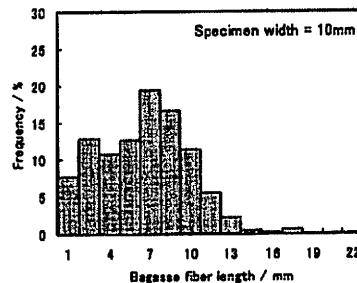


Fig.12 Relationship between the frequency and the length of bagasse fibers.

また,図中のエラーバーは主にLong fiber強度のバラツキである(Short fiberのバラツキ分はLong fiberの5%程度)。全条件バラツキは±6.1%であった(なお,本論文では,引張強度の最大値,最小値を平均で除した値をバラツキとして評価している)。これらは,それぞれ,式(1)の第二項,式(3)の第一項,第二項に相当する。図からわかるように,バガス繊維含有率が増加すると,マトリックスの寄与分が減り,バガス繊維の寄与分が増加する。その強度寄与分の多くは臨界長さ

Lc以上のLong fiberによるものである。さて、シミュレーション全体での引張強度は、実験強度より11%高い引張強度となったものの、第1次近似としては極めて良い一致を得た。これについては、臨界長さLcや繊維長分布の測定が精度良く測定できたためであると思われる。

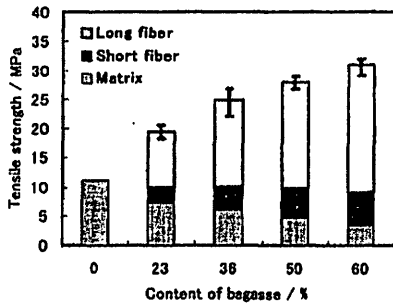


Fig.13 The relation between content of bagasse fiber and tensile strength by Monte Carlo simulation.

おおよそ、引張試験片内(10mm×10mm×2mm)のバガス繊維数は23%バガス繊維含有率で130本、60%で360本である。そのうちの45%程度が引張強度向上に寄与する繊維数であり、シミュレーション毎に±6%程度変動するため、上述のようなバラツキとなったと言える。

さらに前節の議論からバガス繊維圧縮率の変化が強度に直接寄与すると考え、図9で得られた圧縮率の誤差範囲をランダムに選び式(3)に適用して計算を行った。その結果、ほぼ実験と同様の引張強度およびバラツキ±7.2%を確認することができた。しかしながら、依然として実験結果での±12.0%のバラツキと比較して小さいバラツキである。これについては、図13での臨界長さLc以上のLong fiberの引張強度への影響の大きさ、および式(6)から、Long fiberの引張軸に対する角度が引張強度に大きく影響することから、実際の実験では何らかLong fiberの配向が生じ、引張強度のバラツキに影響したと考えられる。

以上から、本研究のような、天然繊維と生分解性樹脂の複合材料の引張強度とバラツキを管理することは繊維長分布と臨界長さLc以上の繊維の引張軸に関する配向状態に注意を払うことが極めて重要になると考えられる。

### 5. 結論

バガス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、その引張強度を調べた。得られた結論は以下の通りである。

(1)バガス繊維含有率の増加とともに、複合材料の引張強度は増加した。これは、圧縮され単位面積あたりの引張強度が増加したバガス繊維含有量が増加し、かつ、生分解性樹脂と良く密着し複合則の効果が現れたためである。しかしながら、バガス繊維含有量60%では、バガス繊維の圧縮率が低下し、強度も50%の場合と同程度であった。

(2)単繊維強化理論に基づき、モンテカルロ法による引張強度の予測を行ったところ、バラツキ、引張強度とも実験結果と良い対応を示し、予測手段として十分に機能することがわかった。また、バラツキ・引張強度ともにバガス繊維のうち、臨界長さLc以上の長さの繊維が大きく影響していることが判明した。

### 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、生分解性樹脂をミヨシ油脂(株)より提供していただいた。住化カラー梱寺岡一則氏には助言を頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

### 文 献

- 1) 福本功, 黒木義郎, 銘苅春栄, 中山清光, "バガスを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編 59巻 561号 pp.1547-1552.
- 2) 福本功, 銘苅春栄, "バガス繊維を用いた複合材料の最適射出成形条件の検討", (1996), プラスチック成形加工学会誌, 第10巻, 第11号, pp.898-905.
- 3) 合田公一, 浅井隆, 山根達也, "プレス成形法によるラミー麻/生分解性樹脂複合材料の創製と化学処理効果", (2003), 材料, 第52巻, 第10号, pp.1245-1252.
- 4) 高木均, 田倉隆輝, "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, 第52巻, 第4号, pp.357-361.
- 5) 高木均, 田倉隆輝, 一原洋平, 越智真治, 三澤弘明, 仁木龍祐, "爆砕法により取り出した竹繊維の引張強度特性", (2003), 材料, 第52巻, 第4号, pp.353-356.
- 6) D. W. ハールマン, "シミュレーション物理学", (1994), pp.76-79, シュプリングー・フェアラー東京.
- 7) H. Fukuda and T. W. Chou, Journal of Materials Science, (1982), 17, pp.1003-1011.