

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2007-51405

(P2007-51405A)

(43) 公開日 平成19年3月1日(2007.3.1)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
DO6M 11/40 (2006.01)	DO6M 11/40	4F072
DO6M 15/507 (2006.01)	DO6M 15/507	4J200
CO8J 5/06 (2006.01)	CO8J 5/06 CER	4L031
CO8L 101/16 (2006.01)	CO8J 5/06 CEZ	4L033
DO6M 101/04 (2006.01)	CO8L 101/16	
審査請求 未請求 請求項の数 22 O L (全 23 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2006-172185 (P2006-172185)	(71) 出願人	304020177 国立大学法人山口大学
(22) 出願日	平成18年6月22日 (2006.6.22)		山口県山口市吉田1677-1
(31) 優先権主張番号	特願2005-212475 (P2005-212475)	(72) 発明者	合田 公一
(32) 優先日	平成17年7月22日 (2005.7.22)		山口県宇部市常盤台2丁目16-1 国立 大学法人山口大学工学部内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	Fターム(参考)	4F072 AA05 AA08 AB03 AB22 AB24 AC04 AD04 AD05 AD06 AD07 AD08 AD09 AD37 AD41 AD42 AD43 AD44 AH21 AK14 AL02 4J200 AA04 AA06 BA07 BA13 BA14 EA07 EA21 4L031 AA02 BA11 CA01 CA09 4L033 AA02 AB01 AB03 AC15 CA45

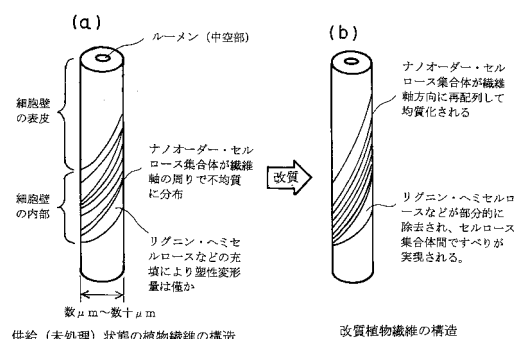
(54) 【発明の名称】 改質植物繊維及びその改質方法、及び改質植物繊維を用いた複合材料

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、植物繊維のより一層の高強度化技術の確立を目指し、植物繊維の撚糸、および撚糸と樹脂からなる中間素材ワイヤーにそれぞれ連続的に繰返し引張荷重を負荷し、ナノオーダー・セルロース集合体（マイクロフィブリルセルロース）の配向制御を行うことにより、未処理状態の1.5倍程度の強度を得ることが出来る植物繊維、及びそのような植物繊維の機械的性質の改質方法を提供する。

【解決手段】 ラミー繊維により生分解性樹脂を強化したグリーンコンポジットに応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰返し負荷することにより強度・剛性改善を図り、植物繊維の機械的性質を改善した。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

植物繊維に前記植物繊維の応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質植物繊維。

【請求項 2】

化学処理を施した植物繊維に前記植物繊維の応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質植物繊維。

【請求項 3】

前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の改質植物繊維。

10

【請求項 4】

前記植物繊維はクラワ、サイザル麻等の葉脈繊維であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の改質植物繊維。

【請求項 5】

改善される機械的性質が、引張強度であることを特徴とする請求項 1 に記載の改質植物繊維。

【請求項 6】

改善される機械的性質が、引張強度及び剛性であることを特徴とする請求項 2 に記載の改質植物繊維。

【請求項 7】

植物繊維を強化材としてマトリックス材を強化した複合材料に応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質複合材料。

20

【請求項 8】

化学処理を施した植物繊維を強化材としてマトリックス材を強化した複合材料に応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質複合材料。

【請求項 9】

前記マトリックス材は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項 7 または 8 に記載の改質複合材料。

【請求項 10】

前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項 9 に記載の改質複合材料。

30

【請求項 11】

前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項 8 から請求項 10 のいずれかに記載の改質複合材料。

【請求項 12】

植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法。

【請求項 13】

植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に樹脂を含浸させる樹脂含浸工程、前記樹脂が含浸された植物繊維を乾燥する乾燥工程、前記乾燥工程を経た前記樹脂が含浸された植物繊維に応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法。

40

【請求項 14】

前記樹脂含浸工程で使用される樹脂は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項 13 に記載の植物繊維の改質方法。

【請求項 15】

前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項 14 に記載の植物繊維の

50

改質方法。

【請求項 16】

植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に化学処理を行う工程、前記化学処理を終えた植物繊維に応力 - ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法。

【請求項 17】

前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項 12 から請求項 16 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法。

【請求項 18】

前記植物繊維はクラワ、サイザル麻等の葉脈繊維であることを特徴とする請求項 12 から請求項 16 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法。

【請求項 19】

前記繰り返し荷重負荷工程を室温 ~ 150 の温度条件下で行うこと特徴とする請求項 12 から請求項 18 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法。

【請求項 20】

請求項 12 から請求項 19 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法により製造され改質した植物繊維を強化材として用い、マトリックス材を強化したことを特徴とする複合材料。

【請求項 21】

前記マトリックス材は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項 20 に記載の複合材料。

【請求項 22】

前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項 21 に記載の複合材料。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、植物繊維、特にラミー繊維等の靱皮繊維、クラワ繊維等の葉脈繊維の機械的性質を改善した改質植物繊維及びその改質方法、及び改質植物繊維を用いた複合材料に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、ガラス繊維のリサイクルの困難さから、複合材料（FRP）業界はガラス繊維を代替しうる新しい繊維について模索している。また、社会システムの流れにおいても、従来の大量生産・大量消費・大量廃棄型社会から資源循環型社会への変革が強く要請されている。

【0003】

そのため、複合材料の構成素材を焼却しても二酸化炭素を新たに増大させない、いわゆるカーボンニュートラル（炭素中立）なバイオマス資源によって置き換えることに関心がよせられている。

【0004】

例えば、亜麻、サイザル麻、ケナフなどの高強度植物繊維を用いた複合材料開発はその典型的な例である。

【0005】

欧州で走るメルセデスベンツ車（Eクラス）の内装材の90%が亜麻を含む複合材料からなる。一方、トヨタ自動車は数年前からインドネシアの広大な土地においてケナフ生産に従事し、すでにケナフ繊維生分解性樹脂（ポリ乳酸）からなる複合材料をトヨタ車の一部に搭載している。また、NEC社のコンピュータ用の電子基盤にケナフ繊維複合材料を使用している。その他、植物繊維を含む射出成形用ペレット（中間原料）の生産・販売に乗り出すメーカーも現れている。このように、植物繊維を使ったバイオマス製品は、化石資

10

20

30

40

50

源由来の合成樹脂用品で賄われてきた産業分野へ新規参入している。

【0006】

また、クラワというパイナップルの仲間のアナナ科植物の繊維は、「史上最高の植物繊維」とも言われており、その繊維はその丈夫さのためにインディオはハンモックや丸木船のロープなどに利用し、現在では、ベトナムココナツの繊維と同様にトラックの車体を使用している。

【0007】

しかし、過去の研究においては構造材料に欠かせない強度的機能、すなわち植物繊維複合材料の強度・靱性の向上とその信頼性の確保に問題があった。

【0008】

例えば、特許文献1では、植物セルロース繊維から成る植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法を提供することを目的に、植物繊維に10MPa～200MPaの軸方向張力を負荷する工程と、前記張力を負荷した状態で前記植物繊維にアルカリ溶液を用いてアルカリ処理を施す工程と、前記アルカリ処理を施した植物繊維を洗浄し残余のアルカリを除去する工程とを有する植物繊維の改質方法が、開示されているが、引っ張り強度の改善はケナフ繊維で約4～5%、ラミー繊維で約8～18%程度であった。

【0009】

また、特許文献2では、強度及び耐候性に優れた改質植物繊維、特にジュート繊維などの靱皮繊維及びその製造方法を提供することを目的に、植物繊維を羽毛ケラチン等の繊維状蛋白質の分解物で処理することが開示されている。この方法によると、例えばジュート繊維の場合、引張強度が402MPaから429MPaへと、6.7%改善されることが開示されている。

【特許文献1】特開2004-256947号公報

【特許文献2】特開2003-301377号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

そこで、本発明の目的は、植物繊維のより一層の高強度化技術の確立を目指し、植物繊維の撚糸を、および撚糸と樹脂からなる中間素材ワイヤーをそれぞれ連続的に繰返し引張荷重を負荷し、ナノオーダー・セルロース集合体（マイクロフィブリルセルロース）の配向制御を行うことにより、未処理状態の1.5倍程度の強度を得ることが出来る植物繊維、及びそのような植物繊維の機械的性質の改質方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0011】

上記の目的を達成するため、本発明者は鋭意研究を重ねた結果、植物繊維の機械的性質、特に引張強度、剛性を好適に改質し得る改質方法を見出したものである。

【0012】

即ち、請求項1の発明は、植物繊維に前記植物繊維の応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰返し負荷したことを特徴とする改質複合材料である。

【0013】

請求項2の発明は、化学処理を施した植物繊維に前記植物繊維の応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰返し負荷したことを特徴とする改質植物繊維である。

【0014】

請求項3の発明は、前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項1または2に記載の改質植物繊維である。

【0015】

請求項4の発明は、前記植物繊維はクラワ、サイザル麻等の葉脈繊維であることを特徴とする請求項1または2に記載の改質植物繊維である。

【0016】

10

20

30

40

50

請求項5の発明は、改善される機械的性質が、引張強度であることを特徴とする請求項1記載の改質植物繊維である。

【0017】

請求項6の発明は、改善される機械的性質が、引張強度及び剛性であることを特徴とする請求項2記載の改質植物繊維である。

【0018】

また、請求項7の発明は、植物繊維を強化材としてマトリックス材を強化した複合材料に応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質複合材料である。

【0019】

請求項8の発明は、化学処理を施した植物繊維を強化材としてマトリックス材を強化した複合材料に応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷したことを特徴とする改質複合材料である。

【0020】

請求項9の発明は、前記マトリックス材は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項7または8に記載の改質複合材料である。

【0021】

請求項10の発明は、前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項9に記載の改質複合材料である。

【0022】

請求項11の発明は、前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項8から請求項10のいずれかに記載の改質複合材料である。

【0023】

さらに、請求項12の発明は、植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法である。

【0024】

請求項13の発明は、植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に樹脂を含浸させる樹脂含浸工程、前記樹脂が含浸された植物繊維を乾燥する乾燥工程、前記乾燥工程を経た前記樹脂が含浸された植物繊維に応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法である。

【0025】

請求項14の発明は、前記樹脂含浸工程で使用される樹脂は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項13に記載の植物繊維の改質方法である。

【0026】

請求項15の発明は、前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項14に記載の植物繊維の改質方法である。

【0027】

また、請求項16の発明は、植物繊維の機械的性質を改善する植物繊維の改質方法であって、植物繊維を準備する工程、前記植物繊維に化学処理を行う工程、前記化学処理を終えた植物繊維に応力-ひずみ関係の非線形領域に相当する荷重を繊維軸方向に繰り返し負荷する繰り返し荷重負荷工程を含むことを特徴とする植物繊維の改質方法である。

【0028】

請求項17の発明は、前記植物繊維はラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻等の靱皮繊維であることを特徴とする請求項12から請求項16のいずれか1項に記載の植物繊維の改質方法である。

【0029】

10

20

30

40

50

請求項 18 の発明は、前記植物繊維はクラワ、サイザル麻等の葉脈繊維であることを特徴とする請求項 12 から請求項 16 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法である。

【0030】

請求項 19 の発明は、前記繰り返し荷重負荷工程を室温 ~ 150 の温度条件下で行うこと特徴とする請求項 12 から請求項 18 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法である。

【0031】

さらに、請求項 20 の発明は、請求項 12 から請求項 19 のいずれか 1 項に記載の植物繊維の改質方法により製造され改質した植物繊維を強化材として用い、マトリックス材を強化したことを特徴とする複合材料。

【0032】

請求項 21 の発明は、前記マトリックス材は熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項 20 に記載の複合材料。

【0033】

請求項 22 の発明は、前記熱可塑性樹脂は生分解性樹脂であることを特徴とする請求項 21 に記載の複合材料である。

【発明の効果】

【0034】

本発明により提供される機械的強度が改善された植物繊維を混入した中間原料の生産・販売により、植物繊維を用いた材料の工業製品化技術の向上、及び付随的に繊維業界において天然繊維の処理技術の向上が期待される。

【0035】

特に、自動車の内装材、ヘルメットなど FRP が使用されている分野、さらに梱包材、建材など木材が使用されている分野での利用が期待される。

【0036】

同時に、地球環境問題の解決に向けて大きく貢献できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0037】

天然繊維には、木綿、麻などの植物繊維と、羊毛、絹などの動物繊維があるが、本発明では、天然繊維のうち植物繊維を改質することにより、その機械的性質を改善することを

目的とする。

【0038】

未処理状態の植物繊維は図 1 に示すように、中空で束状にナノオーダー・セルロース集合体が繊維軸の周りで不均質に分布している。そして、リグニン、ヘミセルロースなどの充填により塑性変形量は僅かである。このような未処理状態の植物繊維の内部構造制御をもってこれを人為的に改質することにより、図 2 に示すように、ナノオーダー・セルロース集合体が繊維軸の方向に再配列して均質化し高強度を達成し、アルカリ処理を併用した場合には、リグニン、ヘミセルロースなどが部分的に除去され、セルロース集合体間ですべりが実現され、塑性変形が可能となり靱性が向上する。

【0039】

セルロース植物繊維の高強度・延性化のためのナノ構造制御を、表 1 に示す。

【0040】

このうち、本発明では、繰り返し荷重負荷の制御により、植物繊維を改質し、その機械的性質を改善することを目的とする。さらには、繰返し荷重負荷 + アルカリ処理による植物繊維のナノ構造制御技術を提供することを目的とする。

【0041】

本発明による、繰返し荷重負荷処理によるナノ構造制御技術により、機械的性質、特に引張強度が改質され、対象とする植物繊維の種類や形状、或いはプロセス条件にもよるが、改質前の植物繊維と比較し概ね 30 ~ 40 % 程度向上させることができる。

【0042】

10

20

30

40

50

また、本発明による、繰返し荷重負荷+アルカリ処理によるナノ構造制御によると、改質前の植物繊維と比較し50%程度の強度改善だけではなく、35%程度の剛性の改善を伴う繊維に改質させることができる。

【0043】

なお、単なる荷重負荷+アルカリ処理によるナノ構造制御については、前述した特許文献1に開示されている。

【0044】

【表1】

セルロース植物繊維の高強度化・延性化のためのナノ構造制御

処理	ナノ構造制御	強度	延性
繰返し荷重負荷	マイクロフィブリルの配向角	○	△
繰返し荷重負荷+アルカリ処理	・マイクロフィブリルの配向角 ・ヘミセルロース減少 ・セルロース非結晶部増加	○	○
アルカリ処理	・ヘミセルロース減少 ・セルロース非結晶部増加	×	○
荷重負荷+アルカリ処理	・マイクロフィブリルの配向角 ・ヘミセルロース減少 ・セルロース非結晶部増加	△	○

○：増加する △：変化なし ×：低下する

本発明の改質の対象とする植物繊維としては、ラミー、ケナフ、ヘンプ、ジュート、亜麻、ほう麻等の韌皮繊維、サイザル麻、マニラ麻、ヘニケン麻、ニュージーランド麻、クラワ繊維等の葉脈繊維があげられる。

【0045】

植物繊維に繰返し力学的負荷を施すことにより、内部のセルロース集合体の配向が繊維軸に沿って均質化される。これによって強度の増加のみならずセルロース集合体の配向が均質化されることで強度のばらつきが低減される。

【0046】

図2において、1はボビン等に準備された植物繊維、2は樹脂槽、3は乾燥部、4は繰返し荷重負荷部、5は巻き取りドラムである。

【0047】

植物繊維からなる撚糸1を植物由来の生分解性樹脂(ポリ乳酸)等の樹脂槽2を通過させ、乾燥させた状態で、繰返し荷重負荷を与える。繰返し荷重負荷工程では、例えば図3に示すように常温~150℃に保たれた炉内で、複数のロールを介してこれを上下動させて負荷を繰返して与えつつ植物繊維を走行させる。その後、ドラム5に巻き取ることで、改質された植物繊維からなる撚糸(これを、スーパーバイオフィバー(Super-bio-fiber)以下、「Subif」と呼ぶ。)を得ることができる。

【0048】

樹脂槽2で使用される樹脂は、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂等、特に限定されるものではないが、焼却等廃棄を考慮すると熱可塑性樹脂が好ましい。

【0049】

熱可塑性樹脂としては、限定されるものではないが、例えば、塩化ビニル樹脂、酢酸ビニル樹脂、ポリスチレン、ABS樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、フッ素樹脂、ポリアミド樹脂、アセタール樹脂、ポリカーボネート、繊維素プラスチック、ポリ乳酸、ポリグリコール酸、ポリ-3-ヒドロキシブチレート、ポリ-4-ヒドロキシブチレート、ポリヒドロキシバリレート、ポリエチレンアジペート、ポリカプロラクトン、ポリプロピオラクトン等のポリエステル、ポリエチレン

10

20

30

40

50

グリコール等のポリエーテル、ポリグルタミン酸、ポリリジン等のポリアミド、ポリビニルアルコール、ポリウレタン等を用いることができる。

【0050】

地球環境を考慮してポリ乳酸、ポリグリコール酸等の生分解性の樹脂の利用が好ましい。

【0051】

尚、改質される植物繊維は単糸、撚糸のいずれも用いることができる。

【0052】

ここで、単繊維とは、細胞壁からなる繊維であり、細胞壁はマイクロフィブリル（セルロースが40～70集まった集合体）のほか、ヘミセルロースやリグニンからなる。また、単糸とは、単繊維が多数集まった束のことである。また、撚糸とは、単糸が複数本撚られた紐のようなものである。

10

【0053】

この繰り返し荷重負荷工程では、後述のクラフ繊維の繰り返し荷重負荷実験でも示すように、繊維の破断強さに対しておよそ2/3の応力レベル（ $600 \div 913 = 0.66$ ）を繰り返し掛けるものである。すなわち、繊維がマイクロフィブリル間のすべり（または非線形変形）を起こす応力レベルを掛けることが最低限必要である。

【0054】

尚、マイクロフィブリルとは、植物細胞壁の基本構成要素であり、マイクロフィブリルはかなりしっかりと結晶体となっていて、水や薬剤を中に入れないが、マイクロフィブリルとマイクロフィブリルの間には非結晶で、水や薬剤はこの非結晶部分に浸透する。マイクロフィブリルの外側には多くのOH基があるので、水や染料、薬剤はそこでしっかりと結合する。

20

【0055】

また、多数の単繊維からなる単糸（繊維束）では、単繊維に対するテンションの掛かり方がそれぞれ異なることになる。これを均一に掛けるためには樹脂を含浸させることが望ましく、樹脂の含浸された複合材料が単糸より強くなるのはこのためである。なお、単糸を撚り、撚糸化することによって、単糸間で摩擦を働かせてテンションのばらつきを防ぐことができる。

【0056】

図2においては植物繊維を樹脂含浸させたが、繊維に全て同じテンションを加えることが可能であれば、樹脂を含浸させる必要はない。

30

【0057】

ここで、樹脂含浸させた植物繊維の張力付与の利点について、次に説明する。

【0058】

供給状態の撚糸に引張負荷を掛ける場合、図4（1）に示すように、隣接繊維との接触部近傍では応力が伝達されやすいので、セルロース集合体が繊維軸方向にそろう。一方、接触部から離れた箇所では応力伝達の程度が小さく、セルロース集合体は供給状態のままである。全体的にみると、セルロース集合体の配向にむらができる。

40

【0059】

これに対して、樹脂に埋まった撚糸に引張負荷を掛ける場合、図4（2）に示すように、繊維の周囲に樹脂層があり、このせん断応力伝達により、繊維に均等に引張応力が伝わる。このため、繊維内の多くのセルロース集合体が繊維軸方向に向かって再配列する。

【0060】

この改質された植物繊維からなる撚糸であるSubifを、ワイヤー、ペレット、薄板等の中間素材とすることが出来る（図5）。

【0061】

Subifをワイヤーとする場合には、図5（1）に示すように、樹脂槽、絞り工程、固化工程を経て、コンジットワイヤーとすることができる。

【0062】

50

また、Subifをペレットとする場合には、図5(2)に示すように、裁断工程、樹脂混入、二軸押し出し工程、切断工程を経て、ペレット化される。

【0063】

また、Subifを薄板にする場合には、図5(3)に示すように、編織工程、樹脂浸漬または樹脂フィルム積層工程、熱間圧延または熱プレス工程を経て、薄板化される。

【0064】

次に、本発明の複合材料について説明する。本発明の複合材料は、一つには、本発明の方法により改質した植物繊維、即ち、高い強度を有する改質した植物繊維を強化材とした複合材料であり、かかる複合材料としては、例えば、ガラス繊維強化プラスチックや炭素繊維強化プラスチックのガラス繊維や炭素繊維の代替としてこの植物繊維を用いた、植物繊維強化プラスチックの形態として実施できる。また、本発明の改質した植物繊維を強化材とし、植物由来の生分解性樹脂や石油由来の生分解性樹脂などを結合材とした複合材料、即ち、生分解性を有する繊維強化複合材料の形態として実施することもできる。

10

【0065】

かかる本発明の複合材料は、周知の従来技術により作製することができ、何ら本発明を限定するものではないが、特に、ホットプレス成形法により作製するのが好ましい。ホットプレス成形法により、例えば、エンジニアリングプラスチックを凌ぐ強度を有し実用性にも優れた、本発明の方法により改質した植物繊維を強化材とした生分解性複合材料を作製することができる。本発明の複合材料は、高強度かつ実用性にも優れ、植物繊維を用いた複合材料の用途・範囲を飛躍的に拡大させることができ、地球環境問題にも大きく貢献できるものである。

20

【0066】

また、一つには、植物繊維を強化材とし従来のような植物繊維強化プラスチックとして作製した複合材料、もしくは化学処理を施した植物繊維を強化材とし従来のような植物繊維強化プラスチックとして作製した複合材料に繊維軸方向に所定の軸方向荷重を繰り返し負荷することで、機械的性質を改善した改質複合材料の形態として実施することができる。

【0067】

以上のような実施の形態により、本発明は、植物セルロース繊維から成る植物繊維の機械的性質、特に引張強度、剛性を好適に改質し得る植物繊維の改質方法を提供することができ、その改質した植物繊維とそれを用いた複合材料及び植物繊維強化プラスチックを改質した改質複合材料を提供することができる。

30

【実施例】

【0068】

以下、実施例により、本発明を更に具体的に説明する。

1. ラミー麻

ラミー麻の長さは靱皮繊維中最大で1.5~2.4mもあり、繊維の外観は白く、絹のような光沢がある。単繊維一細胞の長さは50~250mm(平均150mm)、直径は10~90 μm (平均40 μm)あり、他の麻類と比較して著しく長く太い。また、ラミー麻繊維はリグニンが少なくセルロース分の存在割合が最も高いため、強度が高く、耐薬剤性、耐久性は植物繊維中で最大である。

40

【0069】

単繊維、繊維束からなるラミー麻に施す化学処理として、無負荷状態、および緊張状態でマーセル化処理(シルケット加工)を施した。マーセル化処理とは、主に繊維工業の分野において天然繊維に光沢を付与し、染料や薬剤の浸透性を改善するものである。高濃度アルカリ溶液中で、しかもしばしば繊維を緊張下で処理する方法である。なお、用いた繊維束はラミー麻諸撚糸(16番手5本撚り、トスコ株式会社製)である。

【0070】

処理液のアルカリ水溶液として濃度15wt%水酸化ナトリウム水溶液を使用した。マーセル化単繊維には10g、繊維束には4kgの重錘を負荷し、ともに処理溶液中を浸漬させて2

50

時間処理した。アルカリ処理後、アルカリ反応を止めるために単繊維、繊維束を酢酸水溶液中で洗浄し乾燥させた。

【0071】

以下、未処理の単繊維、および繊維束をそれぞれUT単繊維、およびUT繊維束と、無負荷状態、および緊張状態でマーセル化処理を施した単繊維をそれぞれT0単繊維、およびT4単繊維と、同様に繊維束をそれぞれT0繊維束、およびT4繊維束と称す。

【0072】

次に、ラミー麻繊維の強度特性について、単繊維及び繊維束ごとに説明する。

(a) 単繊維

ラミー麻繊維を単繊維引張試験用台紙(ゲージ部の長さ10mm)に接着剤で貼り付け、単繊維の静的引張破断試験及び繰り返し引張破断試験を微小荷重検出用引張試験機を用いて実施した。ここでは、光学顕微鏡とマイクロスケールを用いて単繊維の直径を逐一求め、円形断面と仮定して断面積を算出した。JIS R 7601(炭素繊維試験方法)に準じ、引張速度を0.8mm/min、試験片長さを10mmとした。そして、UT単繊維、およびT4単繊維の引張破断試験における変位の測定はレーザー変位計を使用した。

10

【0073】

応力-ひずみ線図の一例を図6、図7に示す。図6、図7から、UT単繊維の応力-ひずみ線図では負荷過程に現れる挙動がほぼ線形的であり、除荷により現れる塑性ひずみが僅かである。それに対し、T4単繊維では除荷によって明らかな塑性ひずみが見出された。また、除荷過程では低応力域でひずみが回復し始め、いわゆる粘性挙動を示す。この単繊維の変形・破断挙動もマーセル化による内部構造変化によるものと考えられる。まず、繊維中のマイクロフィブリルを構成するセルロースの結晶化分子鎖がアルカリ処理によって局所的に非結晶化し、延性もったためと考えられる。さらに、マーセル化によって繊維中のマイクロフィブリル間を結合するヘミセルロースなどの物質が取り除かれ、変形中にマイクロフィブリル間ですべりが生じたためと考えられる。

20

【0074】

また、繰り返し負荷による力学的性質の変化を検討するために、UT単繊維、およびT4単繊維の繰り返し引張破断試験を実施した。繰り返し引張試験は、まず、単繊維のひずみが1%になるまで単繊維を引張り、その後除荷する。続いて、単繊維のひずみが2%になるまで単繊維を引張り、再び除荷する。同様の操作をひずみ1%ごとに繰り返し、単繊維が破断するまで引張試験を実施した。

30

【0075】

繰り返し引張試験から得られた強度特性を静的引張破断試験から得られた強度特性と比較して表2に示す。表2から、繰り返し引張破断試験では静的引張破断試験に比べ、UT単繊維の引張強度は、610MPaから814MPaへと33.4%改善されていることがわかる。強度向上の原因として、単繊維に繰り返して繊維軸方向の負荷を与えることにより、単繊維中のヘミセルロースが変形し、マイクロフィブリルが軸方向に再配列したことが推測される。この技術も、後述する高靱化を実現するマーセル化技術と同様に、単繊維の内部構造の変化を利用した強度制御を実現するナノ構造制御技術となる。

【0076】

40

【表 2】

繰り返し引張破断試験から得た単繊維の強度特性

試験タイプ	繊維種別	試験本数	繊維直径 (μm)	破断荷重 (N)	引張強度 (MPa)	破断ひずみ (%)
静的	UT	20	30.9	0.441	610	3.59
	T4	20	32.4	0.472	617	6.00
繰り返し	UT	5	26.4	0.450	814	3.75
	T4	5	32.8	0.372	450	5.24

10

次に、上述のように、繰り返し負荷処理は強度改善効果を付与できると考えられることから、ラミー麻繊維の引張り破断試験に先立って、力学処理として、繰り返し負荷処理を施した。尚、ここで述べる繰り返し負荷処理とは、無負荷状態の単繊維に所定の荷重を負荷し、荷重が所定の値に達すると無負荷状態になるまで除荷する。以上の操作を数回から数十回繰り返す処理である。

【0077】

ラミー麻繊維を単繊維引張試験用台紙（ゲージ部の長さ10mm）に接着剤で貼り付けた引張試験片を微小荷重検出用引張試験機に取り付け、単繊維に所定の荷重（単繊維の引張強度の50%、および70%に相当する荷重）を負荷するまで引っ張り、荷重が所定の値に達すると無負荷状態になるまで除荷した。以上の操作を5回、もしくは20回繰り返して単繊維に力学処理を施した。なお、単繊維に力学処理を施す際、負荷過程、および除荷過程の引張速度は0.8mm/minに設定した。

20

【0078】

以下、引張強度の50%の応力に相当する荷重を5回、および20回負荷したUT単繊維を、それぞれUT-50-5単繊維、およびUT-50-20単繊維、70%の応力に相当する荷重を5回、および20回負荷したUT単繊維を、それぞれUT-70-5単繊維、およびUT-70-20単繊維と称す。また、T0単繊維もUT単繊維と同様に、T0-50-5単繊維、T0-50-20単繊維、T0-70-5単繊維、およびT0-70-20単繊維と称し、それぞれを静的引張破断試験用に準備した。

30

【0079】

次に、未処理単繊維、化学処理を施した単繊維、および力学処理を施した単繊維の強度特性を調査するために、ラミー麻繊維を単繊維引張試験用台紙（ゲージ部の長さ10mm）に接着剤で貼り付け、単繊維の静的引張破断試験を微小荷重検出用引張試験機を用いて実施した。ここでは、光学顕微鏡とマイクロスケールを用いて単繊維の直径を逐一求め、円形断面と仮定して断面積を算出した。試験条件は、JIS R 7601（炭素繊維試験方法）に準じ、引張速度を0.8mm/min、試験片長さを10mmとした。同時に、UT単繊維、およびT4単繊維の静的引張破断試験における変位の測定はレーザー変位計を、T0単繊維の変位の測定にはデジタル寸法測定器を使用した。

【0080】

結果を表3に示す。

40

【0081】

【表 3】

繊維種別	試験本数	繊維直径 (μm)	破断荷重 (N)	引張強度 (MPa)	ヤング率 (GPa)	破断ひずみ (%)
UT	20	30.9	0.441	610	23.1	3.59
UT-50-5	10	29.6	0.442	646		—
UT-50-20	10	28.2	0.464	727		—
UT-70-5	10	29.6	0.464	677		—
UT-70-20	10	28.0	0.547	902		—
T0	20	29.1	0.279	420	16.5	8.11
T0-50-5	10	27.8	0.269	439	17.7	7.14
T0-50-20	10	27.8	0.303	502	19.7	6.15
T0-70-5	10	27.7	0.300	486	19.3	5.35
T0-70-20	10	27.9	0.318	517	22.2	4.82
T4	20	32.4	0.472	617		6.00

表 3 から明らかなように、UT単繊維、およびT0単繊維ともにいずれの条件においても、力学処理を施すことによって強度が向上することが判明した。

【0082】

また、T0単繊維において、力学処理により破断ひずみは減少するものの、ヤング率は向上することも判明した。

【0083】

また、処理応力条件の違いで考えると、UT単繊維、およびT0単繊維ともに70%の応力レベルの方が、50%の応力レベルより高い強度改善効果を得られることが判明した。即ち、負荷応力の大きい方が効果は大きい。またT0単繊維において、70%の応力レベルの方が破断ひずみは減少するが、ヤング率についてはより向上していることが判明した。

【0084】

さらに、処理回数条件については、両繊維とも50%、および70%の応力レベルにおいて、力学処理回数20回の方が5回よりも高い強度改善効果を得られることが判明した。特に、70%の応力レベルで処理したUT単繊維において、5回の力学処理では、引張強度が約10% (11.0%) 程度の強度向上であったが、20回では約50% (47.9%) の著しい強度改善効果が得られた。

【0085】

同様に、T0単繊維のヤング率についても、力学処理回数20回の方がより向上効果を得られることが判明した。70%の応力レベルで処理したT0単繊維のヤング率についても、5回の力学処理は約17.0%の強度向上であったが、20回では約34.5%の高い向上効果が得られた。

【0086】

ここで、ラミー麻の単繊維について、UT単繊維、T0単繊維、およびT4単繊維の静的引張破断試験から得た強度特性を、T0-70-20単繊維のそれと同時に図 8 に示す。

【0087】

図 8 の応力 - ひずみ線図に示す如く、T0-70-20単繊維では、力学処理を施す際の負荷応力より若干高い応力レベルまで線形的な挙動で変形したのち、大きな変形を伴い、T0単繊維より高い応力で最終破断に至った。力学処理によってT0-70-20単繊維の立ち上がりはT4繊維より大きく、UT単繊維とほぼ同じであることがわかる。繰り返しによって剛性の大きな繊維に改質されることが判明した。このことは、表 2 から、T0-70-20単繊維のヤング率が22.2GPaであり、UT単繊維の23.1GPaとほぼ同等であることにも示されている。

【0088】

また、図9には、静的引張破断試験から得たT0、T0-50-5、T0-70-5、およびT0-70-20単繊維の応力-ひずみ線図の一例を示す。力学処理を施すといずれの条件においても、立ち上がりの傾きが大きく、線形的に変形していく。さらにその傾きはT0-70-20、T0-70-5、およびT0-50-5単繊維の順に大きい。

【0089】

以上の力学処理による強度改善効果、ヤング率の向上効果、および変形、破壊挙動の変化は、単繊維の内部構造から説明できる。上述したと同様に、繊維軸方向の繰り返し負荷によるマイクロフィブリルの再配列による効果と同様であると考えられる。UT-70-20単繊維、およびT0-70-20単繊維の結果でみられるように処理回数が多いほど引張強度が高くなったのは、高い応力で処理したことで繊維軸方向に対するマイクロフィブリル配向角がより小さくなり、さらに処理回数を多くすることでマイクロフィブリルの配列の乱れも解消されたためと考えられる。一方、破断ひずみの減少は力学処理中にマイクロフィブリル間のすべりが発生し、塑性ひずみが生じたことが原因と考えられる。

(b) 繊維束

ラミー麻単繊維と同様に、繊維束にも力学処理として、電気油圧サーボ式材料試験機を用いて繰り返し負荷処理を施した。試験機に取り付けた繊維束に98.1Nの荷重（引張強度の52.9%に相当する荷重）を負荷するまで引っ張り、荷重が98.1Nに達すると9.81N（引張強度の5.29%に相当する荷重）になるまで除荷する。以上の操作を100回、もしくは1000回繰り返して繊維束に力学処理を施した。なお、繊維束に力学処理を施す際の引張速度は、1秒間に1回繰り返し負荷を与えるように1Hzの正弦波に設定した。

【0090】

以上の処理をUT繊維束に施し、繊維束静的引張破断試験用に準備した。以下、98.1Nの荷重を100回、および1000回負荷したUT繊維束を、それぞれUT-T-100繊維束、およびUT-T-1000繊維束と称す。次に、ラミー麻繊維束に及ぼす化学処理、および力学処理の影響を調査するために、ラミー麻繊維束の静的引張破断試験をJIS L 1095（一般紡績糸試験方法）に準じて、インストロン型引張圧縮試験機を用いて実施した。

【0091】

また、ゲージ長さは200mmとし、引張速度は15mm/minとした。

【0092】

試料として、中国産繊維束を用いた場合の結果を表4に示す。

【0093】

【表4】

中国産繊維束引張破断試験における強度特性

繊維種別	試験本数	破断荷重 (N)	引張強度 (MPa)	破断ひずみ (%)
UT	10	185	325	4.46
UT-T-100	10	203	356	3.92
UT-T-1000	10	214	375	3.92
T0	16	146	235	15.0
T4	10	188	293	6.63

表4より判るように、UT繊維束の強度特性に比して、UT-T-100繊維束で9.54%、UT-T-1000繊維束では15.4%の強度改善効果が確認された。一方、破断ひずみにおいてはUT-T-100繊維束、UT-T-1000繊維束ともに12.1%の減少が確認された。両繊維束の破断ひずみが同等の値となった原因は、処理回数は異なるが、処理応力は同レベルであり、処理過程で生じる塑性ひずみも同レベルになるためと考えられる。そして、繊維束を引っ張る際には、強度向上効果の低い単繊維から破断して繊維束全体の破断を誘発してしまう。したがって、

繊維束では単繊維ほどの強度改善効果を得られなかったと考えられる。

【0094】

また、繰り返し引張破断試験でUT単繊維では強度向上効果が得られたが、表5からわかるように繊維束では得られなかった。原因として、繊維束中に存在する低強度の単繊維のために、ヘミセルロースの変形を可能とする荷重が単繊維に十分に負荷されることなく、繊維束の破断に至ってしまったことが考えられる。そのために、マイクロフィブリルの再配列が実現不可能となり、繊維束の強度向上は実現されなかったと考えられる。一方、T4繊維束では10.6%の強度向上が認められた。これは、ヘミセルロースがアルカリ処理により部分的に除去されているため、マイクロフィブリルにかかる応力が増加し、マイクロフィブリルの再配列が可能となったためと考えられる。しかし、緊張下マーセル化を施す過程で、すでにT4繊維束ではマイクロフィブリルの再配列が起きているために、UT単繊維のような33.4%の大幅な強度上昇までは至らなかったと考えられる。

10

【0095】

【表5】

繰り返し引張破断試験から得た繊維束の強度特性

試験タイプ	繊維種別	試験本数	束中の繊維の数	破断荷重(N)	引張強度(MPa)	破断ひずみ(%)
静的	UT	10	850	167	261	3.83
	T4	10	850	188	293	6.63
繰り返し	UT	5	850	164	256	4.08
	T4	5	850	208	324	6.88

20

2. クラワ

繰返し負荷による力学的性質の変化を検討するために、クラワ繊維の繰返し引張試験を実施した。繰返し引張試験は、応力が600MPaになるまで単繊維を引張り、その後除荷する。その後すぐさま引張試験を実施した。これを1回および5回繰返した。また、処理後の時間経過に伴う強度変化を調べるために、繰返し処理後、24時間放置した後に引張試験を実施した。一方、応力が200MPaになるまで単繊維を引張り、その後除荷する。続いて、応力が400MPaになるまで単繊維を引張り、再び除荷する。同様の操作を600MPa、800MPaと繰返し、最終的に単繊維が破断するまで引張試験を実施した。その結果を表6に示す。

30

【0096】

表6から、応力が600MPaで5回繰返し負荷を与え、24時間放置した場合、引張強度は、913MPaから1285MPaへと40.7%改善されていることがわかる。

【0097】

【表6】

クラワ繊維の繰返し引張試験結果

	繰返し無し	繰返し1回	繰返し5回	繰返し5回 (24時間後に試験)	繰返し4回 (200, 400, 600, 800MPa)
試験本数	20	10	10	10	10
引張強度(Mpa)	913	1047	1208	1285	1115

40

3. 複合材料

50

生分解性を有する複合材料を作製するために、複合材料のマトリックス材には生分解性樹脂である水分散型生分解性樹脂ランディ（登録商標）[ミヨシ油脂（株）製、ランディ CP-300]（以下、ランディと称す）を使用した。ランディは、成形前には液状エマルジョンタイプを呈しており、熱処理によって液体内の微粒子が融着・固化する熱可塑性樹脂である。一方、複合材料の強化材には、上述したラミー麻繊維束を使用した。以下、マトリックス材のランディをラミー麻繊維束で強化した複合材料をグリーンコンポジットと称す。

【0098】

まず、マトリックス材であるランディを繊維束（UT繊維束、T0繊維束、およびT4繊維束）で強化した複合材料試験片を静的引張破断試験用に作製した。以下、UT繊維束、T0繊維束、およびT4繊維束を強化材に用いた複合材料を、それぞれUT複合材料、T0複合材料、およびT4複合材料と称す。

10

【0099】

複合材料試験片の作製にあたり、まず成形前の仮の成形物となる仮成形体を作製した。まず、繊維束を金属板に14回巻き付け、その幅が試験片幅の15mmになるように調整した。そして、繊維束にランディを塗付して乾燥させ、金属板から取り外し仮成形体として用意した。続いて、離型剤を塗付した金型の中に仮成形体を2枚入れ、仮成形体中のランディに含まれる水分を蒸発させるために、耐圧熱板付プレス機を用いて試験片の形状を保つ程度の微小圧力を加えながら、金型に150℃の熱を30分間与えた。その後、繊維束中にランディを充てんさせるために6.5MPaの成形圧力を加え、150℃から常温まで冷却した。以上

20

【0100】

また、複合材料の静的引張破断試験は、インストロン型引張圧縮試験機を用いて実施した。

【0101】

ラミー麻単繊維の場合と同様に、引張り破断試験に先立って、仮成形体を用いて作製した複合材料に力学処理として繰り返し負荷処理を施した。

【0102】

試験機に取り付けた複合材料に所定の荷重（複合材料の引張強度の70%に相当する荷重）を負荷するまで引っ張り、荷重が所定の値に達すると複合材料に所定の荷重（複合材料の引張強度の5%に相当する荷重）が負荷されている状態まで除荷する。以上の操作を20回、もしくは100回繰り返して複合材料に力学処理を施した。なお、複合材料に力学処理を施す際、負荷過程、および除荷過程の引張速度は、1秒間に1回繰り返し負荷を与えるように1Hzの正弦波に設定した。

30

【0103】

以上の処理をUT複合材料、およびT0複合材料に施し、複合材料静的引張破断試験用に準備した。以下、UT引張強度の70%の応力に相当する荷重を20回、および100回負荷したUT複合材料を、それぞれUT-70-20複合材料、およびUT-70-100複合材料と称す。また、UT複合材料と同様に、それぞれT0-70-20複合材料、およびT0-70-100複合材料と称す。

40

【0104】

グリーンコンポジットに及ぼす化学処理、および力学処理の影響を調査するために、グリーンコンポジットの静的引張破断試験を、インストロン型引張圧縮試験機を用いて実施した。この試験におけるゲージ長さは50mm、引張速度は5mm/min（ひずみ速度0.1/min）とした。

【0105】

結果を表7に示す。また、応力 - ひずみ線図を図10に示す。

【0106】

【表 7】

グリーンコンポジット強度特性

繊維種別	試験本数	繊維体積率 (%)	破断荷重 (kN)	引張強度 (MPa)	ヤング率 (GPa)	破断ひずみ (%)
UT	6	58.2	5.34	309	21.7	2.45
UT-70-20	3	59.8	5.51	333	33.8	1.49
UT-70-100	3	61.7	5.14	321	36.2	1.14
T0	5	66.1	5.98	284	16.3	5.69
T0-70-20	3	66.8	6.15	307	21.5	2.99
T0-70-100	4	65.2	6.18	286	22.7	2.01
T4	5	67.2	5.85	303	20.7	4.06

10

表 7 及び図 10 から明らかなように、UT-70-20 複合材料、T0-70-20 複合材料においても、引張強度がそれぞれ 309MPa から 333MPa、284MPa から 307MPa へと改善されており、複合材料においても強度の向上が認められた。

【0107】

さらに、図 10 より、力学処理を施した UT-70-20 複合材料では、UT 複合材料より立ち上がりの傾きが大きい。また、T0-70-20 複合材料においても、T0 複合材料及び T4 複合材料より立ち上がりの傾きが大きく、破断時の応力レベルも UT 複合材料よりも高い。以上より、強度改善だけでなく、繰返し負荷による繊維改質によって、剛性も向上することが明らかとなった。

20

【0108】

また、繰返し引張過程におけるグリーンコンポジットの変形挙動を調査するために、グリーンコンポジットの繰返し引張破断試験を実施した。なお、グリーンコンポジットの繰返し引張破断試験には複合材料静的引張破断試験で用いた試験片と同様の形状、および寸法の複合材料試験片を準備して、インストロン型引張圧縮試験機を使用して試験を実施した。試験片の断面積、および繊維体積率も複合材料静的引張破断試験と同様の方法で算出した。試験方法は、インストロン型引張圧縮試験機に複合材料試験片を取り付けて、単繊維繰返し引張破断試験の試験方法と同様、ひずみが 1% ごとに負荷、除荷を繰返し、複合材料が破断するまで引張試験を行った。また、ゲージ長さを 50mm、引張速度を 5mm/min とした。

30

【0109】

表 8 に、UT 複合材料、および T0 複合材料の静的引張破断試験から得た強度特性と繰返し引張破断試験から得た強度特性を比較した値を示す。

【0110】

【表 8】

繰り返し引張破断試験から得たグリーンコンポジットの強度特性

試験タイプ	繊維種別	試験本数	繊維体積率 (%)	破断荷重 (kN)	引張強度 (MPa)	破断ひずみ (%)
静的	UT	6	58.2	5.34	309	2.45
	T0	5	66.1	5.98	284	5.69
繰り返し	UT	5	61.9	5.27	321	2.05
	T0	4	72.0	5.66	298	4.04

10

図 1 1 に、繰り返し引張破断試験から得た UT 複合材料の応力 - ひずみ線図を示す。また、図 1 2 には、繰り返し引張試験から得た T0 複合材料の応力 - ひずみ線図を示す。

【0111】

図 1 1 及び図 1 2 から、複合材料の繰り返し引張破断試験においても、マーセル化を施すことにより、大きな変形が可能になることが判明した。また、UT、および T0 複合材料ともに繊維束と同様に、単繊維に比べて除荷時に大きな塑性ひずみを生じ、除荷過程で粘性挙動も示した。

【0112】

そして、マーセル化を施した繊維束を強化材とする T0 複合材料の方が、所定量の変形を与える際には、低荷重で変形することが読み取れる。例として、0.8% 程度の変形を与える際に、UT 複合材料は 300MPa 以上の応力が必要となるが、T0 複合材料では 150MPa 程度の応力でよい。さらに、両複合材料の引張強度はほぼ同等の 300MPa であるが、300MPa の応力を加えた際に生じる塑性ひずみは、UT 複合材料は 0.8% 程度であるが T0 複合材料では 2.0% 以上の塑性ひずみを生じる。すなわち、T0 複合材料は UT 複合材料に比べ大きく変形できるために、グリーンコンポジットの実用化における課題の 1 つとされる塑性加工性を、マーセル化によって改善できる可能性が期待できる。

20

【0113】

尚、マトリックス材として使用される樹脂は、前記樹脂槽 2 で使用される樹脂と同様の樹脂が使用可能であり、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂等、特に限定されるものではないが、焼却等廃棄を考慮すると熱可塑性樹脂が好ましい。そして、地球環境を考慮して、前述したランディを始め、ポリ乳酸、ポリグリコール酸等の生分解性の樹脂の利用が好ましい。

30

4. コンポジットワイヤー

グリーンコンポジットの加工性を改善し、グリーンコンポジットを構造材料として適用できる可能性を拡張するために、中間素材としてコンポジットワイヤーを作製した。マトリックス材にランディを、強化材にはラミー麻繊維束 (UT 繊維束、T0 繊維束) を使用したコンポジットワイヤー (以下、UT 繊維束、および T0 繊維束を強化材に用いたコンポジットワイヤーを、それぞれ UT コンポジットワイヤー、および T0 コンポジットワイヤーと称す) を作製した。

40

【0114】

作製方法は以下のようにした。まず、ランディを注いだ容器の中に繊維束を浸漬し、繊維束にランディを含浸させ、続いて、繊維束を容器から取り出して、滴り落ちない程度までランディを手で絞り落として、150 に暖めた恒温乾燥機中の金網に繊維束の上端を取り付け、30分乾燥させた。その後、恒温乾燥機から取り出して大気中で常温まで冷却した。

【0115】

コンポジットワイヤーに力学処理として、インストロン型引張圧縮試験機、および電気油圧サーボ式材料試験機を用いて繰り返し負荷処理を施した。

50

【0116】

試験機に取り付けたコンポジットワイヤーに所定の荷重（各コンポジットワイヤーの破断荷重の60%、もしくは70%に相当する荷重）を負荷するまで引っ張り、荷重が所定の値に達するとコンポジットワイヤーに所定の荷重（各コンポジットワイヤーの破断荷重の5%に相当する荷重）が負荷される状態まで除荷する。以上の操作を5回、20回、100回、もしくは1000回繰り返してコンポジットワイヤーに力学処理を施した。なお、コンポジットワイヤーに力学処理を施す際、負荷過程、および除荷過程の引張速度は、インストロン型引張圧縮試験機使用時は5mm/min、電気油圧サーボ式材料試験機使用時は、1秒間に1回繰り返し負荷を与えるように1Hzの正弦波に設定した。

【0117】

以下、各処理条件で力学処理を施したコンポジットワイヤーを下記のように称す。

【0118】

a) UTコンポジットワイヤーに力学処理を施した試料

- ・ UTCW材：力学処理を施していない試料
- ・ UTCW-60-20材：破断荷重の60%に相当する荷重で20回力学処理を施した試料
- ・ UTCW-60-100材：破断荷重の60%に相当する荷重で100回力学処理を施した試料

b) T0コンポジットワイヤーに力学処理を施した試料

- ・ TOCW材：力学処理を施していない試料

続いて、コンポジットワイヤーを用いた複合材料（以下、CW複合材料と称す）を作製し、静的引張破断試験を実施した。

【0119】

CW複合材料の作製手順は、まず離型剤を塗付した金型の中にコンポジットワイヤーを10本入れた。その上に8本のコンポジットワイヤーを重ねて、さらにその上に10本重ね、計28本のコンポジットワイヤーを金型の中に入れた。加熱成形では、まずコンポジットワイヤー中に残った水分を蒸発させるために、耐圧熱板付プレス機を用いて金型に150℃の熱を10分間与え、その後、試験片の形状を保つ程度の微小圧も30分間加えた。その後6.5MPaの成形圧力を加え、150℃から常温まで冷却した。

【0120】

4種類のコンポジットワイヤー（UTCW材、UTCW-60-20材、UTCW-60-100材、およびTOCW材）からCW複合材料を作製し、静的引張破断試験を行った結果を表9に示す。尚、CW複合材料の静的引張破断試験は、インストロン型引張圧縮試験機を用いて引張速度は5mm/min、ゲージ長さは50mmとした。

【0121】

図13にUTCW複合材料、UTCW-60-20複合材料、およびUTCW-60-100複合材料の静的引張破断試験における応力-ひずみ線図の一例を示す。比較のためにTOCW複合材料の結果も併せて示す。

【0122】

【表9】

コンポジットワイヤーを中間素材に用いた複合材料の静的引張破断試験における強度特性

繊維種別	試験本数	繊維体積率 (%)	破断荷重 (kN)	引張強さ (MPa)	ヤング率 (GPa)	破断ひずみ (%)
UTCW	5	57.1	3.79	186	19.0	1.46
UTCW-60-20	3	59.3	4.23	224	22.3	1.20
UTCW-60-100	3	57.4	4.09	193	24.8	1.30
TOCW	3	58.3	2.73	116	7.17	5.50

表9及び図13からみて、UTCW-60-20複合材料ではヤング率が22.3GPa、UTCW-60-100

10

20

30

40

50

複合材料ではヤング率が24.8GPaであり、UTCW複合材料のヤング率19.0GPaより大きく、力学処理を施した複合材料において、剛性の向上効果を発現している。また、UTCW-60-20複合材料は強度が224MPaであり、UTCW複合材料の186MPaに比べて20%程度の増加割合が確認できる。すなわち、コンポジットワイヤーの力学処理によるグリーンコンポジットの特性は、強度および剛性向上効果が付与されることが判明した。

【図面の簡単な説明】

【0123】

【図1】植物繊維構造の模式図である。

【図2】植物繊維の改質工程を示す図である。

【図3】張力付与工程の概念図である。

【図4】供給状態の燃糸、及び樹脂が含浸された燃糸に引張負荷を掛けた場合の、セルコース集合体の配向を示す図である。

【図5】スーパーバイオフィバーの中間素材化技術の概念図である。

【図6】繰り返し引張試験から得た未処理のラミー麻単繊維の応力 - ひずみ曲線である。

【図7】繰り返し引張試験から得た緊張下マーセル化処理ラミー麻単繊維の応力 - ひずみ曲線である。

【図8】ラミー麻単繊維の応力 - ひずみ曲線である。

【図9】力学処理を施した無負荷マーセル化処理ラミー麻単繊維の応力 - ひずみ曲線である。

【図10】グリーンコンポジットの応力 - ひずみ曲線である。

【図11】繰り返し引張試験から得た未処理の複合材料の応力 - ひずみ曲線である。

【図12】繰り返し引張試験から得た無負荷マーセル化処理複合材料の応力 - ひずみ曲線である。

【図13】コンポジットワイヤーを中間素材に用いた複合材料の応力 - ひずみ曲線である。

【符号の説明】

【0124】

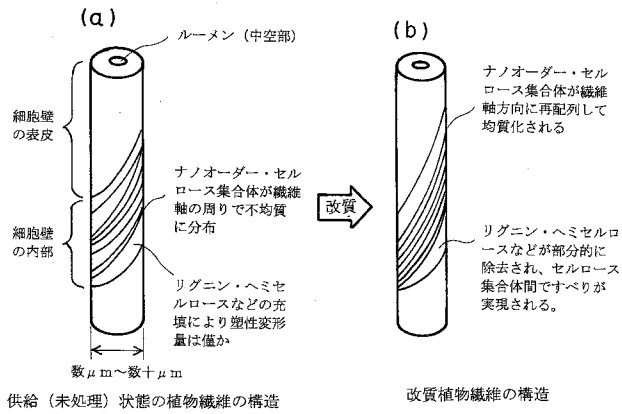
- | | |
|---|------------|
| 1 | 準備された植物繊維 |
| 2 | 樹脂槽 |
| 3 | 乾燥炉 |
| 4 | 繰り返し荷重負荷工程 |
| 5 | 巻取りドラム |

10

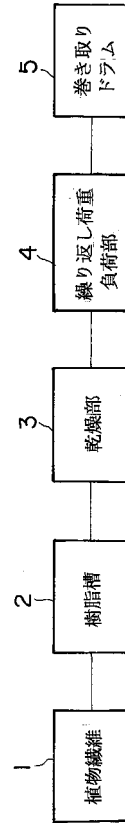
20

30

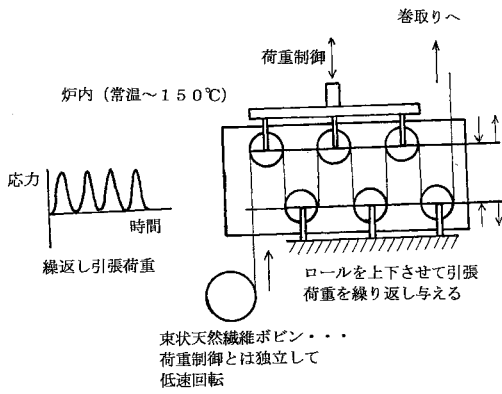
【 図 1 】



【 図 2 】

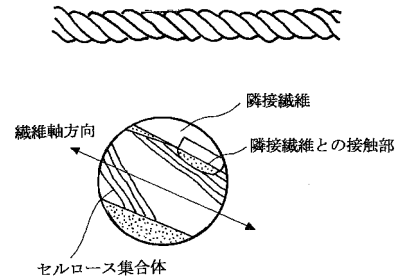


【 図 3 】

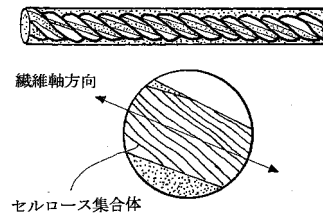


【 図 4 】

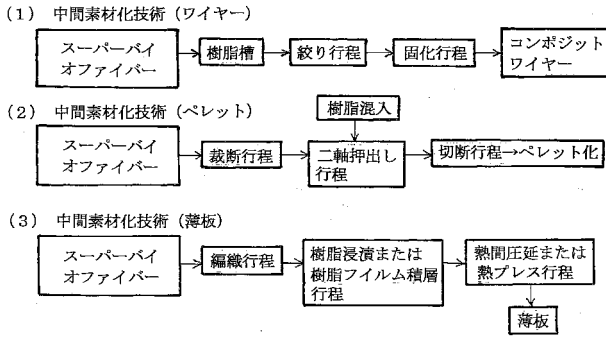
(a) 供給状態の燃糸に引張荷重を掛ける



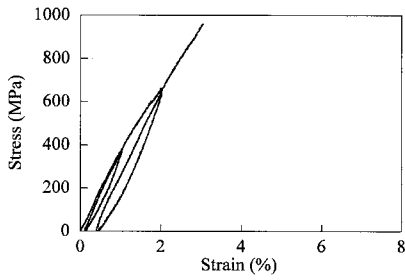
(b) 樹脂に埋まった燃糸に引張荷重を掛ける



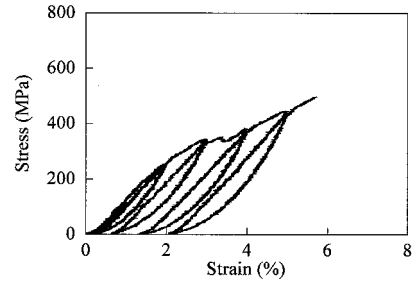
【 図 5 】



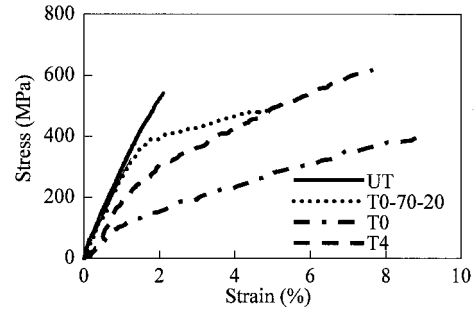
【 図 6 】



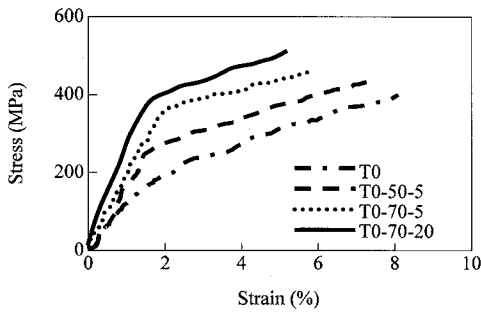
【 図 7 】



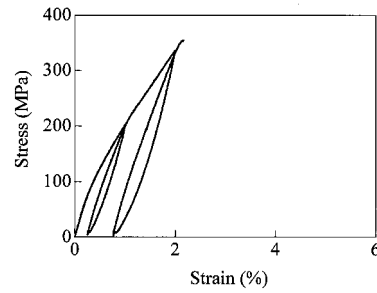
【 図 8 】



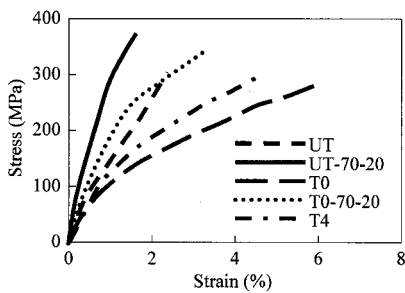
【 図 9 】



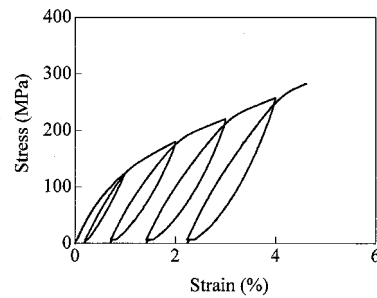
【 図 1 1 】



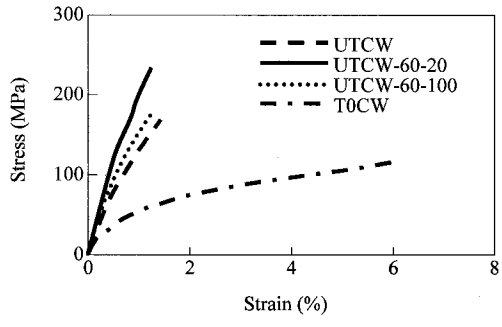
【 図 1 0 】



【 図 1 2 】



【 図 1 3 】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.

F I

テーマコード(参考)

D 0 6 M 101:04