

天然繊維／PP 複合材料の機械的特性に及ぼす 繰返し引張負荷効果

山口大学 [院] ○川本俊幸

山口大学 [院] 松重健一

山口大学 野田淳二

山口大学 合田公一

化薬アクゾ 青木憲治 化薬アクゾ 荒木重雄 化薬アクゾ 丸谷洋正

Effect of cyclic tensile loading on the mechanical properties of natural fiber/PP composites

Toshiyuki KAWAMOTO, Ken-ichi MATSUSHIGE, Junji NODA, Koichi GODA,
Kenji AOKI, Shigeo ARAKI and Hiromasa MARUTANI

1. 緒 言

現在、地球規模で発生している様々な環境問題のうち、複合材料の分野においても未解決の関連項目が挙げられている。すなわち、従来使用されてきたガラス繊維強化プラスチックは、優れた機械的特性を有すものの、廃棄の際にはその特性が処分を困難にするため深刻な問題となっている。大部分が埋め立て処分によって廃棄されているが、非分解性のため環境に負荷がかかる。このような背景から、プラスチック系複合材料の構成素材をバイオマスに置き換える研究・技術開発に関心が寄せられている。中でも、高強度天然繊維を用いたグリーンコンポジットに関わる研究・技術はその最前線にある¹⁾。

本研究では、グリーンコンポジットの広範な実用化を目指して、代表的な高強度天然繊維であるラミー麻と熱可塑性樹脂であるポリプロピレン(以下、PP と略記する)を複合化させたラミー麻/PP 複合材料を作製するとともに、この材料に繰返し引張負荷処理を施し、その機械的特性を改善することを目的とする。

2. 供試材料及び実験方法

2-1. 供試材料

強化材は繊維長 10mm のラミー麻繊維(帝国繊維(株)製)を、母材には PP(株)プライムポリマー製)を用いた。PP には繊維に与える熱履歴を考慮して、融点の異なる高融点ホモポリマー(PP1)、低融点ランダムポリマー(PP2)、また繊維長に与える影響を考慮して低粘度ホモポリマー(PP3)の 3 種類を用いた。また相溶化剤として無水マレイン酸変性 PP(化薬アクゾ(株)製)(以下、MAPP と略記する)を 2wt% 添加した。なお繊維含有率は 0 および 10wt% とした。

2-2. 複合材料作製

ラボプラストミル(東洋精機製作所製)を用いて PP、ラミー麻繊維および MAPP を 10 分間混練した。混練温度は PP1、PP3 では 170℃、PP2 では 150℃ とした。混練後、ホットプレスで板材にした後、ペレット化し射出成形機を用いて幅 3mm、厚さ 2mm、ゲージ長さ 18mm のダンベル状の試験片を作製した。

2-3. 繊維長分布調査

溶媒にキシレンを用いたソックスレー抽出法により複合材料中から繊維のみを取りだし、光学顕微鏡により繊維長を計測した。このとき、サンプル数を 500 とした。

2-3. 繰返し引張負荷

複合材料中の繊維を強化するために繰返し引張負荷処理を施した。天然繊維はセルロースマイクロフィブリル(CMF)が繊維軸に対して螺旋状に配向している。この CMF は繊維内で、ある傾斜角を持って配列しており、繰返し引張負荷処理を施すことにより CMF の配向角が軸方向に傾くことにより、軸方向への強度、剛性を増加させる²⁾。そこで本研究では、射出成形により作製したダンベル型試験片に、小型引張試験機により最大応力の約 70% の応力、繰返し回数 20 回で繰返し引張負荷処理を施した後に、破断まで引張試験を実施した。引張り速度は 10mm/min とした。

3. 結果および考察

3-1. 樹脂の違いによる一軸繰返し引張負荷処理効果

Ramie/PP1, PP2 および PP3 複合材料の処理前後における応力-ひずみ線図を Fig.1 に示す。各機械的特性については Fig.2 に示す。なお試験片名の略号として PP が樹脂のみ、FPP が複合材料、-UT or -AT は未処理または負荷処理後を示す。まず、繊維含有による強化効果について述べる。Fig.1 および 2 より、PP1 では繊維を含有した場合、ヤング率が 5% 向上するものの、引張強度の向上幅は小さいことが分かる。一般的に、引張強度は繊維長に敏感であるが、ヤング率は鈍感であることが知られている。繊維を含有したにも関わらず、引張強度の向上が得られない理由として、複合材料中の繊維長が短くなっているのではないかと考えられる。PP2 については、熱履歴を低くする為に低融点 PP を用いたが、PP2 自体の機械的特性が低く、繊維による複合効果が十分現れなかったと考えられる。PP3 については、立ち上がりの勾配が大きくなりヤング率は 18.9%、引張強度は 7.8% 向上していることから繊維含有による強化効果が発揮されていると考えられる。

次に繰返し引張負荷処理について述べる。樹脂のみの場合、いずれにおいても処理前後の引張強度、ヤング率に大きな変化が無いことから、樹脂の処理効果は無いと考えられる。複合材料については、いずれにおいても処理後の引張強度、ヤング率が向上しており、処理効果が確認された。これは、処理によって繊維内部の CMF の配向角が軸方向に傾いたことで、軸方向の耐荷能が向上

したためと考えられる。

3-2. 繊維長分布

平均繊維長は、混練時間 10 分の場合、PP1 および PP2 とともに 0.16mm となった。一方、低粘度樹脂である PP3 を用いた場合、平均繊維長が 0.40mm となり、PP1 および PP2 と比較して平均繊維長が 2.5 倍となった。これは、PP3 が他の樹脂に比べ粘度が低く、混練時に発生するせん断力が小さくなったことにより繊維破断が抑制されたと考えられる。これより、繊維長には混練時間と共に、樹脂の粘度が大きく影響することが分かる。

3-3. CMF の再配列にともなうヤング率の変化

前述のように、ラミー麻繊維に軸方向に引張負荷を施すと、CMF の配向角が軸方向に傾くことにより、軸方向の機械的特性は向上すると考えられる。今回、複合材料の引張負荷効果が確認されたため、複合材料中においても繊維の強化機構は発揮されていると考えられる。そこで、CMF の配向角が揃うことによるヤング率向上の定量的考察を行った。まず、Fig.3 のように繊維内部構造を平板状に展開し、以下の直交異方性理論を適用した。

$$\frac{1}{E_x} = \frac{l^4}{E_L} + \frac{m^4}{E_T} + l^2 m^2 \left(\frac{1}{G_{LT}} - \frac{2\nu_{LT}}{E_L} \right) \quad \cdots(1)$$

$$l = \cos \theta, \quad m = \sin \theta$$

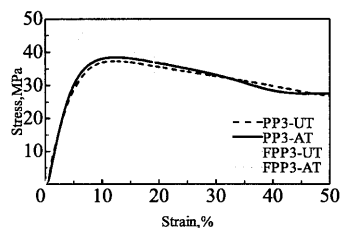
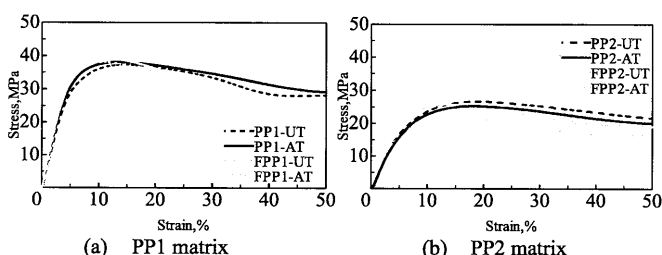
ここで、 E_x は任意角度 θ を有する直交異方性の弾性率である。また、L 軸方向及び T 軸方向の弾性率 E_L 、 E_T はそれぞれ、式(2)、(3)で求めた。

$$E_L = E_f V_f + E_h (1 - V_f) \quad \cdots(2)$$

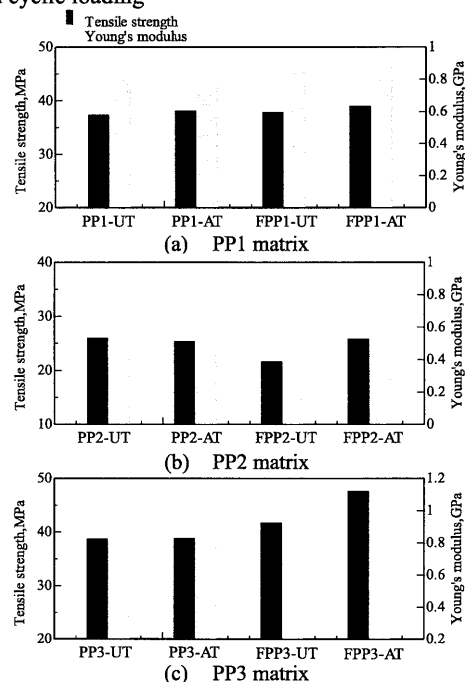
$$\frac{1}{E_T} = \frac{V_f}{E_f} + \frac{(1 - V_f)}{E_h} \quad \cdots(3)$$

ここで、 E_f 、 E_h はマイクロフィブリルの弾性率(138GPa)、ヘミセルロースの弾性率(10GPa)、 V_f は、マイクロフィブリルの体積含有率(70%)、 ν_{LT} は、ポアソン比(0.49)である。また、せん断弾性係数 G_{LT} の値は経験的に E_T の 0.5~0.8 倍として求めた。式(1) から CMF の角度 θ の増加にともなう繊維軸方向のヤング率の変化を Fig.4 に示す。

Fig.4 より CMF の初期角度 7.5 度³⁾から 0 度に傾くことによりヤング率は最大で 7.3% であることがわかる。しかし、実験の向上率は 8~24% であり、解析値より高くなっていることから、CMF の再配列以外にもヤング率を向上させる要因の存在が考えられる、その一つとして、軸方向へ繰返し引張負荷処理を施されることにより CMF の非結晶部のランダムに配向している分子鎖が軸方向に揃ったことでヤング率が向上することが挙げられる。詳細は今後の検討課題としたい。



(c) PP3 matrix
Fig.1 Stress-strain curves of Ramie/PP1, PP2, PP3 before and cyclic loading



(a) PP1 matrix
(b) PP2 matrix
(c) PP3 matrix
Fig.2 Mechanical properties of Ramie/PP1, PP2, and PP3 before and after cyclic loading.

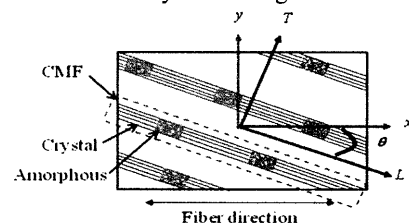


Fig.3 Off-axis CMF model

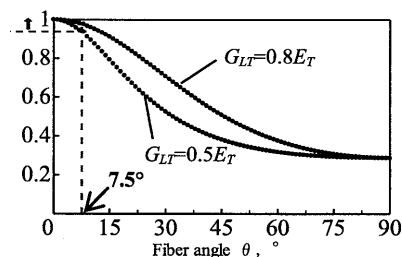


Fig.4 Relation between Young's modulus and CMF angle in a ramie single fiber

参考文献

- 1) 大窪和也, 高木均, 合田公一, 日本材料学会誌「材料」, Vol.55, No.4, (2006) pp.438-444
- 2) 土井貴文, 伊藤昌弘, 加治岳士, 中村理恵, 合田公一, 大木順司, 日本複合材料学誌, Vol.35, No.2, (2009) pp.56-63
- 3) 藤井透, ほか監修, 環境調和複合材料の開発と応用, シーエムシー出版, (2005) pp.29-40

〔結言、謝辞 省略〕