

## 学 位 論 文 の 要 旨

論 文 名 「ケナフ靱皮繊維/高分子複合材料における繊維細胞の特徴的構造の活用に関する研究」

“Study on utilization of the characteristic structure of the fiber cell  
in the kenaf bast fiber / polymer composite materials”

氏 名 沈 軼 驊 (Shen Yihua) 印

過去 20 年間、石油の将来的な不安定供給や温室効果ガスの排出問題が顕在化しており、高分子複合材料においても植物繊維を用いた環境調和型複合材料に関する研究が盛んに進められている。ケナフ靱皮繊維に代表される植物繊維は、ガラス繊維や炭素繊維といった従来の強化繊維と比べ、カーボンニュートラル、低コスト、生分解性、低機械摩耗性、低密度などの利点を有している。また、植物繊維は可燃性および生分解性を有し、焼却および埋め立てによる最終処分が可能であることが、ガラス繊維やカーボン繊維などと大きく異なる。そのために植物繊維強化複合材料は、建材、航空機、自動車産業にシェアを広げている。

植物繊維を強化繊維として用いることは、環境保護の観点だけでなく、機械的特性に優れる点でも有益である。例えば、ヘンプ、ラミー、ケナフの弾性率は E ガラス繊維に匹敵し、比強度も比較的大きい。従来の研究の殆どは、植物繊維を表面処理した後、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂などと複合化し、複合材料の機械的特性の向上を目指すことに集中している。一般的に植物繊維の添加により複合材料の引張強度および弾性率が向上するが、破断伸びは大きく低下する。その結果、複合材料製品をねじ止めするときボスが脆性破壊するという問題が生じる。従って、これまでの研究で重視されてきた材料の剛性や強度だけではなく、靱性やその他の特性に注目することが必要である。

従来、紡績工程では、マーセル化という化学処理方法がリグノセルロース繊維に含まれるヘミセルロースやリグニンなどを除去して繊維細胞壁の構造を変化させ、繊維の光沢性および発色性を向上させるために利用されてきた。またマーセル化によりラミー繊維、竹繊維の破断伸びが向上することも報告されているが、ケナフ繊維のマーセル化に関する研究はほとんど行われていない。

一方、ケナフの基本繊維細胞は、その中心部にルーメンと呼ばれる中空構造が存在している。このような構造を有するケナフ靱性繊維を高分子マトリックスと複合化すると、複合材料に空隙を内包させることが可能である。その結果、ケナフ靱皮繊維の添加により、複合材料の力学性能が向上するだけでなく、断熱効果の発現も期待できる。

以上のような課題ならびに着想に基づいて、本研究では、ケナフ靱皮繊維細胞の特徴的構造を活用し、靱性および断熱性を有するケナフ靱皮繊維/高分子複合材料を開発することにより、植物繊維含有高分子複合材料の新たな応用可能性を提示することを目的とした。まず、第一章において、以上の研究背景を記述し、本研究の目的を述べた。

第二章では、ケナフ靱皮繊維の機械的特性に影響を与える細胞壁構造に着目し、ケナフ靱皮繊維の高靱性化を実現するマーセル化条件を見出すため、ケナフ靱皮繊維を異なる濃度の水酸化ナトリウム溶液で処理し、繊維の機械的特性を調査した。その結果、水酸化ナトリウム濃度が15wt%以上では、濃度増加に伴い、ケナフ靱皮繊維の破断ひずみが大幅に増加することが明らかになった。従って、ケナフ靱皮繊維の靱性を向上するためには、15wt%以上の水酸化ナトリウム濃度の選択が必要であることが分かった。さらに、アルカリ処理のケナフ靱皮繊維の結晶構造および化学組成を調査した。水酸化ナトリウム濃度が15wt%以上の場合、繊維の重量損失度は殆ど変化しない状態で、結晶系がII型に転移し、結晶化度も低下した。細胞壁のヘミセルロースとリグニンが除去されるとともにセルロースの結晶状態が変化することにより、マイクロフィブリルの変形が起きやすくなり、破断ひずみが増加するものと考えられる。

第三章では、第二章の結果を踏まえて、マーセル化ケナフ靱皮繊維とポリスチレンよりなる複合材料を押出成形、射出成形により作製し、その力学特性を明らかにした。水酸化ナトリウム濃度の増加により、ケナフ靱皮繊維強化ポリスチレンの弾性率はやや低下するが、引張強度は逆に増加することが分かった。また、15wt%以上の水酸化ナトリウムで処理したケナフ靱皮繊維を用いた複合材料の破断ひずみおよび靱性は、水酸化ナトリウム濃度の増加とともに向上した。さらに、シランカップリング剤による処理を併用することにより、複合材料の界面接着性が向上し、引張強度、弾性率、破断ひずみなどが増加し、複合材料の靱性が大幅に向上した。

第四章では、植物繊維細胞の特徴的構造であるルーメンに着目し、その中空構造を利用して、断熱効果に優れたケナフ靱皮繊維/ポリエチレン複合材料を開発した。溶媒法や押出成形法などの成形プロセスの差異によらず、繊維含有量の増加に伴い、複合材料の熱伝導率が減少した。また、成形プロセスを変化させることによって、内包する空隙率が異なる複合材料を作製することができた。溶媒法を用いて、ケナフ靱皮繊維のルーメン由来の中空構造を維持したままのポリエチレンとの複合化を行った場合は、繊維含有率が50%の複合材料の熱伝導率がポリエチレンの熱伝導率の2/3に減少した。

第五章は、総括として第二、三、四章をまとめるとともに、今後の研究に関する展望を記述した。

【英文】

In the last two decades, there has been a significant increase in the use of plant fibers for making an environment friendly composite materials due to threats of uncertain petroleum supply in the near future and great concerns for greenhouse gas emissions. Plant fiber typified by kenaf bast fiber has advantages such as carbon neutral, low cost, biodegradability, low mechanical abrasion resistance, low density, etc. compared with conventional reinforcing fiber such as glass fiber and carbon fiber . In addition, plant fibers have flammability and biodegradability, and it is possible that final disposal by incineration and landfill is possible, which is greatly different from glass fiber, carbon fiber and the like. Therefore, plant fiber reinforced composite materials are expanding their share to building materials, aircraft and automobile industry.

The use of vegetable fibers as reinforcing fibers is beneficial not only from the environmental protection point of view but also from the viewpoint of excellent mechanical properties. For example, the elastic modulus of hemp, ramie and kenaf is comparable to that of E glass fiber and its specific strength is also relatively large. Most of conventional research focuses on improving the mechanical properties of composite materials by complexing vegetable fibers with thermoplastic resin or thermosetting resin after surface treatment. In general, the tensile strength and elastic modulus of the composite material are improved by adding the plant fiber, but the elongation at break is greatly reduced. As a result, there arises a problem that the boss is brittle fractured when screwing the composite material product. Therefore, it is necessary to pay attention not only to the rigidity and strength of the material which has been emphasized in previous studies but also toughness and other characteristics.

Conventionally, in the spinning process, a chemical treatment method called mercerization has been used to remove the hemicellulose and lignin contained in the lignocellulose fiber and change the structure of the fiber cell wall, thereby improving the glossiness and coloring property of the fiber. It has also been reported that the fracture elongation of ramie fibers and bamboo fibers is improved by mercerization, but research on mercerization of kenaf fibers has barely been conducted.

On the other hand, a basic fiber cell of kenaf has a hollow structure called a lumen in its center. When a kenaf bast fiber having such a structure is compounded with a polymer matrix, voids can be included in the composite material. As a result, addition of kenaf bast fiber improves not only the mechanical performance of the composite material but also the insulation effect.

Based on the above problems and ideas, in this study, we developed a kenaf bast fiber / polymer composite material with toughness and heat insulation utilizing the characteristic structure of kenaf bast fiber cells. It aimed to present new applicability of fiber containing polymer composite material. First, in the first chapter, the above research background is described and the purpose of this research is described.

In the second chapter, we focused on the cell wall structure which influences the mechanical properties of kenaf bast fibers, and found out the condition of mercerization realizing the toughening of kenaf bast fibers. In order to find the condition of mercerization, the kenaf bast fibers were treated with NaOH aqueous solutions of different concentrations and the mechanical properties of the fiber were investigated. As a result, it was revealed that when the NaOH concentration is 15 wt% or more, the fracture strain of the kenaf bast fiber increases greatly with increasing the concentration. Therefore, in order to improve the toughness of the kenaf bast fiber, it is necessary to select the NaOH concentration of 15 wt% or more. Furthermore, the crystal structure and chemical composition of alkali-treated kenaf bast fibers were investigated. When the NaOH concentration was 15 wt% or more, the crystal system was transformed to type II and the degree of crystallinity was also decreased in spite that the weight loss of the fiber hardly changed. It is considered that hemicellulose and lignin on the cell wall are removed and the crystalline structure of cellulose is changed so that deformation of microfibrils easily occurs and fracture strain increases.

In the third chapter, based on the results of chapter 2, composite materials composed of mercerized kenaf bast fibers and polystyrene were prepared by extrusion molding and injection molding, and their mechanical properties were clarified. It was found that the elastic modulus of the kenaf bast fiber reinforced polystyrene slightly decreased due to an increase in NaOH concentration, but the tensile strength increased conversely. The fracture strain and toughness of the composite material using kenaf bast fiber treated with NaOH of 15 wt% or more improved with increasing the concentration. Further, by using the treatment with the silane coupling agent in combination, the interfacial adhesion of the composite material was improved, the tensile strength, the elastic modulus, the fracture strain and the like were increased, and the toughness of the composite material was greatly improved.

In chapter 4, we focused on the characteristic structure of plant fiber cells, lumen, and developed a kenaf bast fiber / polyethylene composite material with excellent insulation effect by utilizing the hollow structure. Regardless of the difference in molding process such as solvent method and extrusion molding method, the thermal conductivity of the composite material decreased with increasing fiber content. Moreover, by changing the molding process, it was possible to prepare a composite material having different porosity contained therein. When compounding with polyethylene that maintains the hollow structure derived from the lumen of kenaf bast fibers using the solvent method, the thermal conductivity of the composite material with a fiber content of 50% decreased to 2/3 of polyethylene.

The fifth chapter summarizes chapters 2, 3, and 4 as a summary and describes future prospects for research.