

氏名	はす <b>ハス</b>
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第714号
学位授与の日付	平成26年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 先端フアイブ科学専攻
学位論文題目	<b>植物繊維およびその複合材料の熱劣化時の色特性と機械的特性に関する研究</b>
審査委員	(主査)教授 木村照夫 教授 西村寛之 教授 佐藤哲也 准教授 奥林里子

### 論文内容の要旨

社会の化石資源依存率が高くなったことにより資源枯渇や地球温暖化といった環境問題が生じている。ものづくりの分野においては、その解決法の一つとしてバイオベース材料の成形素材としての活用が推進されており、中でも植物繊維であるセルロースの利用が注目されている。しかし、セルロースは加熱にともないその結晶領域や非結晶領域の変性、高分子の分解による脱水、ガス放出、タール状物生成、炭化といった現象が生じ強度が低下する。また、このような熱による変化が生じる際、分子内の水酸基脱離反応などにもない高分子骨格中に共役二重結合が生成され可視光領域のエネルギーを吸収するようになり、変色が発生する。このようなセルロースの熱劣化による強度低下や変色の抑制技術の開発が大きな問題となっている。そこで本研究では、熱負荷を受けるセルロース繊維の変色と強度変化を明らかにするとともに、それらの関係を明確にした。また、セルロース繊維のプラスチック複合材料の強化材としての応用を念頭に置き、汎用樹脂の融点付近である 200℃程度の温度範囲におけるセルロースの化学処理による耐熱性向上を目指し、耐熱処理された繊維およびその複合材料の機械的特性と変色の関係も明確にした。

本論文は 6 章で構成されており、第 1 章の緒論では、前述のような研究の背景と既往の研究を取りまとめている。

第 2 章では、セルロース繊維としてコットン、ラミーおよびケナフを試料として用い、これに熱負荷を与えて劣化試料を作製し、繊維の変色および単繊維の引張強度に与える影響や変色と引張強度の相関関係を考察した。その結果、実用的な熱負荷の範囲においては加熱による色差が大きくなるほど強度が直線的に低下することが示され、セルロース繊維に熱負荷が与えられた場合、色差を測定することによって強度変化の評価指標となりうることを明らかにした。

第 3 章では、代表的な天然繊維であるコットンの耐熱性を向上させる目的で、TEOS による化学処理を行い、単繊維引張強度と弾性率の低下を抑制できることを明らかにした。また、そのメカニズムとして、分子内および分子鎖間のシロキサン結合の形成による加熱時の分子内脱水反応抑制の影響が大きいことを明らかにした。

第 4 章では、第 3 章の手法により得られた耐熱性コットン繊維を用いて繊維強化複合材料を圧縮成形し、その機械的特性を検討し、未処理コットン繊維を用いた成形品と比べて成形時の熱負

荷による強度低下が抑えられることを示した。また、耐熱性コットン繊維を用いることで繊維の熱劣化が抑制され、加熱成形により長い時間をかけることが可能になり、その結果、樹脂の含浸性を高めた機械的特性に優れた複合材料が成形できることを明らかにした。

第5章では、耐熱性コットン繊維に熱負荷を与えた場合、および耐熱性コットン繊維を用いて複合材料を加熱圧縮成形した場合の変色特性を分析することにより、変色と引張強度との関連性を検討し、耐熱性コットン繊維の変色が未処理セルロース繊維より少ないことを明らかにした。また、耐熱性コットン繊維を用いて複合材料を成形した場合、成形品の変色を低減できることを示した。さらに、繊維および成形品の強度と色差の関係より変色の程度が強度低下の評価指標となることが示唆された。

第6章では、第2章から第5章までの総括と今後の課題および将来の展望をまとめた。

本研究によりセルロース繊維の熱劣化による変色と強度低下の相関関係が明らかになり、さらなる詳細な検討を加える必要はあるが、色差をセルロース繊維強化複合材料の成形加工プロセス中の製品の強度管理へ適用できる可能性も見出した。

### 論文審査の結果の要旨

本論文は熱負荷を受けるセルロース繊維ならびにセルロース繊維で強化した複合材料の変色と強度変化の相関性を見出し、その関係を明確にした点に特徴がある。

資源枯渇や地球温暖化といった環境問題を解決する一手段として繊維産業界において天然繊維が見直され、繊維強化複合材料分野においても強化繊維が、従来のガラス繊維から天然繊維に置き換えられつつある。しかし、天然繊維は熱負荷に弱く強度劣化や変色が生じることから熱劣化による強度低下や変色の制御技術の開発が求められている。本論文ではまず、種々の天然繊維に対する熱負荷実験を行い、強度変化と変色には相関性があることを見出し、変色の程度を測定することにより強度劣化を評価できることを明らかにした。また、天然繊維にTEOSによる化学処理を行い、強度、変色に対する耐熱性の向上が得られることを明らかにするとともにこれらの耐熱繊維を用いて繊維強化複合材料を作製し、熱負荷を受ける繊維強化複合材料の強度と変色にも相関関係があることを見出し、変色の程度が複合材料の劣化評価の指標になり得ることを明らかにした。

本論文で得られた熱劣化による強度変化と変色の相関関係に関する知見は天然繊維ならびに天然繊維強化複合材料の設計と評価に大いに役立つものとして高く評価できる。

本論文の内容は以下の3編の査読付き学術雑誌に掲載あるいは掲載が決定しており、すべて申請者が筆頭著者である。

#### 【本学位論文の基礎となった学術論文】

1. Ha Si, Haruhiro Ino, Teruo Kimura and Akihiro Suzuoka, "Improvements in Heat Resistance of Cellulose Fiber by Surface Silylation", Sen'I Gakkaishi, Vol.69, No.11 (2013), pp.213-221
2. Ha Si, Haruhiro Ino, Teruo Kimura and Akihiro Suzuoka, "The Effect of Molding Conditions on the Mechanical and Color Properties of Cellulose Fiber Reinforced Composite", Seikei-kakou (掲載決定)

3. 哈斯, 井野晴洋, 木村照夫, “植物繊維の熱劣化による変色と強度変化”, 繊維学会誌 (掲載決定)

【本研究に関する参考論文等】

1. Ha Si, Haruhiro Ino, Teruo Kimura and Akihiro Suzuoka, ”Study on chemical treatment of cellulose fiber to improve heat resistance and the mechanical property of composite materials using treated fiber”, 19<sup>th</sup> International conference on composite materials, Montreal Canada (2013)
2. Ha Si, Haruhiro Ino, Teruo Kimura and Akihiro Suzuoka, ”Study on heat resistance improvement of cellulose fiber and composite materials using improved fiber”, Proc. of 42<sup>nd</sup> Textile Research Symposium, Fuji, Japan (2013)