

マルチセル構造を有する天然繊維の強度評価と
特性発現性の解明

**(Strength Evaluation of Natural Fiber with a Multi-cell
Structure and Elucidation of Characteristics Expression)**

平成 26 年 9 月

新 田 悠 二

山口大学大学院理工学研究科

論文要旨

今日、環境問題が地球規模で顕在化しており、複合材料分野においても従来の人工繊維と熱硬化性樹脂を使用した繊維強化プラスチックの廃棄処理問題が浮上している。代表的な繊維強化材料であるガラス強化繊維プラスチック (Glass Fiber Reinforced Plastics, 以下 GFRP と称す) や炭素繊維強化プラスチック (Carbon Fiber Reinforced Plastics, 以下 CFRP と称す) は優れた機械的性質を有するだけでなく、軽量で耐熱性も優れていることから自動車・航空機・船舶など幅広い分野で使用されている。一方で、GFRP、CFRP は焼却処分が難しく、リサイクル方法も確立されていないため、廃棄物の大部分が埋立処分されており、土壤汚染や処分場不足など環境負荷を大きくする欠点も有する。このため、樹脂と繊維を分離するケミカルリサイクル等も研究もされているものの、コストの問題があり積極的に行われていないのが現状である。

このような背景から、近年、生分解性を有し、資源循環可能な亜麻、ラミー、ケナフなどの天然繊維を用いたグリーンコンポジット (Green Composites) の研究が盛んに進められている。グリーンコンポジットとは、マトリックスに生分解性樹脂、強化材に天然繊維を使用した複合材料を指し、それらは微生物によって分解されるため環境への負荷が小さい。また、焼却処理しても発生した二酸化炭素 (CO₂) は植物が成長する際に吸収されるので、カーボンニュートラルにより地球上の CO₂ の増減に影響を与えない。これまで実用化されたグリーンコンポジットは、強化形態を短繊維強化材とする射出成形品が多く、複合材料の最も基本形態である一方向繊維強化材 (単層板) を用いた例はほとんどみあたらない。これは天然繊維の多くが有限長であり、植物系繊維特有の繊維うねりを有することから、連続して一方向に揃えることが困難であるからである。さらに、短繊維、長繊維を問わず、天然繊維そのものの力学的性質を明らかにすることは構造・強度設計上重要であるが、これらに関する報告は先に述べた人工繊維に比べて格段に少ない。特にケナフ繊維に限ると、一方向繊維強化材の基礎データとなるケナフ繊維そのものの力学特性に係る報告は少なく、強度信頼性データやその信頼性モデルの扱いに至っては皆無である。

天然繊維の内部にはセルロース・ミクロフィブリル (Cellulose microfibrils, 以下、CMF と略す) と呼ばれる微小繊維束がらせん状の高次構造を形成しており、繊維の軸方向の剛性・強度は CMF のらせん角に依存することが知られている。天然繊維に引張負荷をかけると CMF のらせん角等の影響で繊維が回転することも報告されている。また、天然繊維の力学評価において断面積は正確な強度を推定するための重要なパラメータであるが、天然繊維の横断面形状は複雑な形状をしている。さらに、天然繊維は繊維間だけでなく、繊維軸方向に沿っても断面積が変動していることが報告されており、断面積の推定が困難である。そ

のため、天然繊維の正確な断面積評価法を確立する必要がある。

一般に、天然繊維の剛性・強度はガラス繊維や炭素繊維のような人工繊維と比べ低く、使用用途が限られているのが現状である。そのため、天然繊維の特性発現性を見出す研究も進められている。これを見出す処理の一つとしてアルカリ処理が挙げられる。天然繊維に低濃度アルカリ処理を施すことで、これを強化材とする複合材料強度の向上が報告されているが、高濃度で処理された天然繊維の機械的特性については十分に明らかにされていない。

そこで、本研究では、代表的な植物系天然繊維であるケナフを取り上げ、以下のような内容を提示している。まず、第 1 章において、前述の研究背景を記述するとともに、本研究の目的を述べた。第 2 章では、天然繊維の断面形状を考慮した断面積の推定方法を提案するとともに、天然繊維の引張特性のうち、ヤング率と引張強度についてその断面積変動の影響を調べた。さらに、繊維断面積の内部変動および繊維間変動を考慮した引張強度に関するワイブル分布を提案し、断面積変動の影響を考察した。第 3 章では、マルチセル型繊維において引張負荷時に繊維の回転が生じ得るかどうかを確認するとともに、回転角度と引張強度およびヤング率との関係を調査した。続いて、CMF 角を空間内でらせん状に配置できるようにモデル化するとともに、これを用いた繊維の回転現象を有限要素解析によって考察した。また、第 4 章では、マルチセル型繊維であるケナフに高濃度アルカリ処理を施し、マーセル化した際の引張特性に及ぼすアルカリ処理効果について調査を行った。さらに、アルカリ処理を施したケナフ繊維の断面積をより正確に評価するために新しい断面積評価方法を構築した。第 5 章は結言として第 2, 3, 4 章を総括するとともに、今後の展望について追記した。

Summary

Recently, environmental problems including global warming caused by petroleum-based materials and energy depletion are increasingly actualized. In the composite material field, also, the disposal problem of fiber-reinforced plastics using conventional artificial fibers and thermosetting resin has been surfacing. Glass fiber-reinforced plastics (hereinafter, denoted as GFRP) and carbon fiber-reinforced plastics (hereinafter, denoted as CFRP) exhibit not only excellent mechanical properties, but are lightweight and also excellent in heat resistance. Thus, GFRP and CFRP are used in various industrial fields, such as automotive, airplane and vessel industries. On the other hand, these materials are accompanied with difficulty in incineration disposal, and furthermore the recycling method has not been established yet. After use, these materials are often disposed in landfill, so that this kind of disposal enlarges environmental impacts, such as soil pollution and a shortage of disposal sites. Although a chemical recycle research about separating the fibers from matrix resin is going on, it has not been studied so often from the viewpoint of cost performance.

Thus, development to producing alternative materials from biomass resources is demanded worldwide. Especially, the research and development of biodegradable resin composite materials reinforced with plant-based natural fibers, such as flax, ramie and kenaf fibers, is carried out actively. This kind of composite is called *green composite*, which is an environment-friendly material due to its biodegradability. Even if this material is incinerated after use, generated carbon dioxide is again absorbed into plants. This circulation means the carbon neutral, which means that the amount of carbon dioxide does not change globally. Practically used green composites are mainly injection-molded products of which reinforcement is randomly distributed short fibers. There are few samples using unidirectional fiber-reinforced composite laminae, one of the most fundamental structures of composite materials. This is because most of natural fibers are limited in length including fiber waviness, and difficult to be arranged unidirectionally. It is important to clarify mechanical properties of natural fibers in performing the structure and strength design, while under the present situation, the number of reports on the mechanical properties is not comparable to that of artificial fibers' reports. Especially, regarding kenaf fiber strength and stiffness, no available reliability data and models have been reported yet.

In a plant-based natural fiber, micro-order fiber bundles called cellulose microfibrils (hereinafter, denoted CMF) are spirally placed. It is known that axial strength and stiffness of the natural fibers depends on CMF spiral angle. This spiral structure sometimes causes a unique deformation behavior, such as rotation around the fiber axis during tensile loading. On the other hand, the cross-sectional area of natural fibers is one of the most important parameter in evaluating natural fiber strength, but it cannot exactly be measured because of complicated morphology of the cross-section. The cross-sectional area also varies along the fiber axis. Thus, an exact measurement method for the cross-sectional area of natural fibers should be developed as a research interest.

In general, the strength and stiffness of natural fibers is lower than that of artificial fibers,

such as glass and carbon. Therefore, research and development to find a mechanical performance which cannot be achieved by artificial fibers, is expected. One possibility of the researches is alkali treatment for natural fibers, which can improve the mechanical properties, but the effect of high concentration alkali treatment has not been clarified enough.

In this doctoral work, thus, the following researches were carried out using a kenaf fiber, one of the representative plant-based natural fibers. In the beginning of this study, the above-mentioned background is summarized (Chapter 1). In Chapter 2, a cross-sectional estimation method of natural fibers is proposed, in which each cross-sectional shape of the fiber specimens is simulated through polygon approximation. In this chapter a new type of Weibull function for natural fiber strength is also proposed, in which the effect of intra- and inter fiber statistical variations in cross-sectional area is included. In Chapter 3, rotation phenomenon during tensile loading is confirmed using a kenaf fiber, a representative multi-cell type fiber. In addition, this phenomenon is simulated through 3D-FEM model, in which spiral structure of cellulose microfibrils is taken into account. Chapter 4 investigates the effect of mercerization on tensile properties of a kenaf fiber. In this chapter, moreover the proposed method in Chapter 2 is improved for cross-sectional area evaluation of mercerized fibers. Finally, conclusions of the present work are described in Chapter 5.

目次

第1章 緒言	
1-1 環境問題とグリーンコンポジット	1
1-2 天然繊維	2
1-2-1 強化材としての天然繊維	2
1-2-2 天然繊維の構造	2
1-2-3 天然繊維の断面積評価	6
1-2-4 ミクロフィブリル配向角 (MFA) と力学的挙動の関係	7
1-3 アルカリ処理	9
1-4 研究目的	10
第2章 マルチセル構造を有する天然繊維の強度評価	
2-1 はじめに	14
2-2 天然繊維の断面積評価手法の提案	15
2-3 繊維の引張特性評価	17
2-4 引張特性に及ぼす断面積変動の影響	19
2-4-1 ヤング率に及ぼす断面積変動の影響	19
2-4-2 引張強度に及ぼす断面積変動の影響	19
2-5 天然繊維の引張強度分布	20
2-5-1 断面積変動の影響を除いた真のワイブル母数の推定	20
2-5-1-1 従来のワイブル分布モデル	20
2-5-2 断面積の繊維内変動を考慮したワイブル分布モデル	21
2-5-3 真のワイブル母数の推定	23
2-6 断面積の繊維内変動を考慮したワイブル分布の定式化	23
2-6-1 ワイブル分布に基づく引張強度分布	23
2-6-2 確率密度関数を同一分布で与える場合	25
2-6-3 条件付き分布による確率密度関数	25
2-6-4 ワイブル母数の比較	26
2-7 結言	27
第3章 マルチセル構造を有する天然繊維の構造と強度	

3-1	はじめに	29
3-2	実験方法	29
	3-2-1 供試材料	29
	3-2-2 引張試験および回転角の導出	29
3-3	実験結果	30
3-4	解析	32
	3-4-1 解析モデル	32
	3-4-2 解析結果	36
3-5	結言	40
第4章 マルチセル構造を有する天然繊維のアルカリ処理による特性発現性の解明		
4-1	はじめに	42
4-2	実験方法	42
	4-2-1 アルカリ処理	42
4-3	実験結果	43
	4-3-1 引張試験結果	43
	4-3-2 繊維の力学的挙動に関する考察	46
4-4	アルカリ処理繊維の結晶構造評価	48
	4-3-1 結晶化度	49
	4-4-2 結晶構造転移率	49
4-5	アルカリ処理繊維の断面積評価	50
	4-5-1 各断面仮定における断面積の比較	51
	4-5-2 近似式の導出	53
	4-5-3 引張試験結果の再評価	55
	4-5-4 実断面積の再評価	55
4-6	結言	57
第5章 結言		
5-1	結論	60
5-2	今後の課題と将来の展望	62

1. 緒言

1-1 環境問題とグリーンコンポジット

現在、環境問題が地球規模で顕在化しており、複合材料分野においても従来の人工繊維と熱硬化性樹脂を使用した繊維強化プラスチック（Fiber Reinforced Plastics, 以下 FRP と称す）の廃棄処理問題が浮上している。代表的な FRP であるガラス強化繊維プラスチック（Glass Fiber Reinforced Plastics, 以下 GFRP と称す）や炭素繊維強化プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Plastics, 以下 CFRP と称す）は優れた機械的性質を持っているだけでなく、軽量で断熱性も優れていることから自動車・航空機・船舶など幅広い分野で使用されている。しかし、GFRP、CFRP は焼却処分が難しく、リサイクル方法も確立されていないため廃棄物の大部分が埋立処分されており、土壌汚染や処分場不足など環境負荷が大きくなっている。また、樹脂と繊維を分離するケミカルリサイクル等も研究はされているが、コストの問題があり積極的に行われていない。そのため、近年、資源循環の可能な亜麻、ヘンプ、ラミー、ジュート、サイザル麻、ケナフ、竹などの天然繊維を用いたグリーンコンポジット（Green Composites）の研究が盛んに進められている。グリーンコンポジットは、マトリックスに生分解性樹脂、強化材に天然繊維を使用した複合材料であり、それらは微生物によって分解されるため環境への負荷が小さい。また、焼却処理しても発生した CO₂ は植物が成長する際に吸収されるので、カーボンニュートラルにより地球上の CO₂ の増減に影響を与えない。

グリーンコンポジット開発の発想は 1940 年代に遡る。米国でフォード社を立ち上げた Henry Ford は、天然由来物資の構造材料化を展望し、ヘンプ繊維と大豆由来樹脂の複合化を試みるとともにこれを「土から生まれた車」と称して自社の自動車のボディに適用した¹⁾。しかしその後、ガラス繊維や合成樹脂の台頭により、この適用は実用化に至らなかった。グリーンコンポジットの実用化に先駆け、欧州において亜麻繊維を強化材とする熱可塑性樹脂基複合材料が 1990 年代から自動車の内装材などに実用化された。その後も母材を生分解性樹脂に置き換えたグリーンコンポジット・プロジェクトが進み、この材料の様々な可能性が広がっている²⁾。わが国では、2000 年代に入ってケナフ繊維や竹繊維を強化材とし、ポリ乳酸（PLA）、ポリブチレン サクシネート（PBS）などの生分解性樹脂を母材とするグリーンコンポジットの開発が進み、自動車の内装部品や携帯電話等に使用されてきた³⁾⁴⁾。特にケナフ繊維は、“環境にやさしい素材”の代表格として、

紙原料やボードとして単独で工業利用されることも多く、グリーンコンポジットの有望な強化材として期待されている。以上のように、今日、複合材料業界におけるグリーンコンポジットの研究開発は、環境問題の解決に向けた取り組みとして注目を浴び、広範な実用化が期待されている。

1-2 天然繊維

1-2-1 強化材としての天然繊維

天然繊維は、一般に植物系、動物系および鉱物系に分類される。このうち、セルロースを主成分とする植物系天然繊維は、セルロースの優れた力学的性質によりグリーンコンポジットの強化材としてしばしば用いられる。先に挙げた亜麻、ヘンプ、ラミー、ジュート、サイザル麻、ケナフはすべてが植物系天然繊維であり、Table 1-1 に示すように、それぞれ優れた力学的性質を有する。例えば、亜麻繊維は強度の最大値が 1500MPa と高く、天然繊維の中でも最大強度を示す繊維の一つに数えられる。またヘンプは、そのヤング率が 70GPa を示し、E ガラス繊維のヤング率とほぼ同値である。一方で、これらの繊維の破断ひずみは全般的に数%しかなく、比較的脆性的に壊れる材料である。先に挙げたケナフ繊維も引張強度が 930MPa、ヤング率が 53GPa であり、高強度・高弾性率繊維に属するものの、前述のように破断ひずみは 1.6% であり、亜麻やヘンプ同様に典型的な植物系天然繊維とみなすことができよう。

これまで実用化されたグリーンコンポジットは、強化形態を短繊維強化材とする射出成形品が多く、積層板の最も基本形態である一方向繊維強化材（単層板）を用いた例はほとんどみられない。これは天然繊維の多くが有限長であり、植物系繊維特有の繊維うねりを有することから、連続して一方向に揃えることが困難であるからである。さらに、短繊維、長繊維を問わず、天然繊維単独の力学的性質を明らかにすることは、グリーンコンポジットを部材に用いる機械構造物の強度設計上重要であるが、ガラスやカーボンなどの人工繊維に関する報告や資料に比べて十分とは言えない。特にケナフ繊維に限ると、これまで単繊維そのものの力学特性に係る報告は極めて少なく、強度信頼性データやその信頼性モデルの扱いに至っては皆無である。

1-2-2 天然繊維の構造

植物系天然繊維はセルロース、ヘミセルロース、リグニンを主成分とし構成されている。Table 1-2 に各種植物系天然繊維のセルロース、ヘミセルロース、リグニンほか、各

成分の重量含有率を示す。Table 1-1 と比較すると、高強度、高弾性率を示す繊維は、セルロースの含有率が比較的高いことがわかる。セルロースの構造式を Fig.1-1 に示す。セルロースはグルコースのポリマーであり、その分子鎖は長さ $1\mu\text{m}$ 程度である。これらの分子鎖は密に平行に集合してセルロース・マイクロフィブリル (Cellulose microfibrils, 以下、CMF と略記する) を形成する。CMF の分子構造を Fig.1-2 に示す。CMF はらせん状の高次構造を形成しており、繊維の軸方向の剛性・強度は CMF のらせん角 (マイクロフィブリル配向角: microfibrillar angle, 以下 MFA と略記する) に依存する。また、CMF 内部は分子鎖配列の整った結晶領域(crystal part)と、分子鎖配列の乱れた非結晶領域(amorphous part)が存在している。結晶領域の弾性率は 138GPa と高い値を発し、アルミニウムやガラス繊維よりも大きな負荷を受け持つことができるが、一方で非結晶領域の弾性率は 58GPa と低く、両者に大きなちがいがあ⁷⁾。種々の素繊維細胞構造の模式図を Fig.1-3 に示す。素繊維細胞の共通点としては、その中心部にルーメンと呼ばれる内孔が存在し、マイクロフィブリルはヘミセルロースを含みながら繊維中心部の原形質を中心にらせん状に成長し、二次細胞壁となる。二次細胞壁の外側にセルロースによって構成されている細胞膜があり、これが一次細胞壁である。Fig.1-3(A)は木質繊維の細胞壁構造のモデルである。木質繊維は一次細胞壁および S_1 、 S_2 および S_3 層からなる二次細胞壁で構成されている。特に S_2 層は一次、二次細胞壁の中で最も厚い細胞壁である、一般に MFA はこの S_2 層の CMF のらせん角を示し、木質繊維の CMF 角は $0\sim 20^\circ$ の範囲を示すと言われている。Fig.1-3(B)は靱皮繊維の細胞壁構造のモデルである。靱皮繊維の S_2 層は複数の層が積層することで構成されている。種類に係らず、靱皮繊維の MFA はそのほとんどが 10° 以下であると報告されており、すべての S_2 層がほとんど同じ角度で配列している。Fig.1-3(C)は竹のような単子葉植物の細胞壁構造のモデルである。単子葉植物は成長していくと、異なった MFA をもつ二次細胞壁が層状に連続的に形成される。形成された二次細胞壁は薄い層と厚い層が交互に形成され積層することが確認されている。Fig.1-3(D)はコットンなどの種子毛繊維の細胞壁構造のモデル図である。このような繊維は Fig.1-3(A)~(C)とは異なり CMF は層ごとに MFA のらせん方向が異なっている。このように、天然繊維の種類によってもその内部構造に違いがあることが知られている。

天然繊維には、シングルセル(single-cell)型の繊維とマルチセル(multi-cell)型の繊維があり、前者は素繊維細胞単独の繊維であり、後者は複数の素繊維細胞が束状に集合して一つの繊維を構成したものである。シングルセル型で代表的な繊維は亜麻繊維やラミー

繊維であり、繊維幅が 20~80 μm と他の麻系繊維と比較して大きい特徴を有する。元々はマルチセル構造であったが、Table2 に示すように、セル間に存在するリグニンの含有率が少なく、粗紡工程においてシングルセル同士に分離したものである。一方、リグニン含有率が比較的高いマルチセル型繊維は、ジュート、ケナフ、サイザル麻やクラワが挙げられる。代表的なマルチセル型繊維であるケナフの断面写真を Fig.1-4 に示す。繊維幅は約 10mm であり、長さ約 3mm の素繊維細胞が 10~20 個程度集合し繊維を形成している⁹⁾。

以上のように、シングルセル内における CMF はらせん状に配向されているので、その力学的挙動に及ぼす影響が議論されてきた。しかし、マルチセル型繊維に対する議論はほとんどされていないのが現状である。

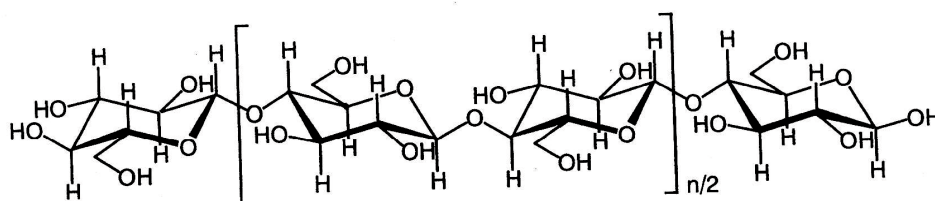


Fig.1-1 Molecular arrangement of cellulose⁶⁾.

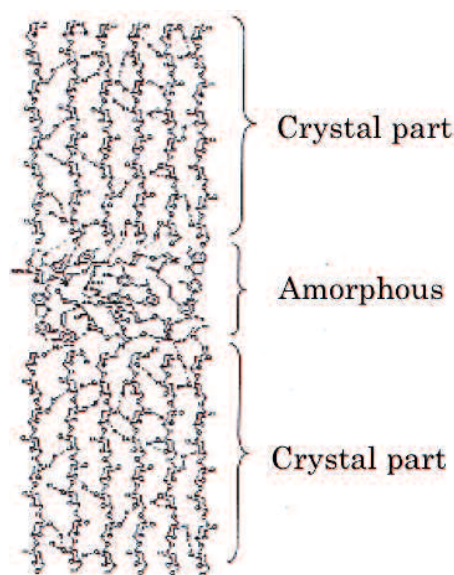


Fig.1-2 Molecular structure of micro-fibril.

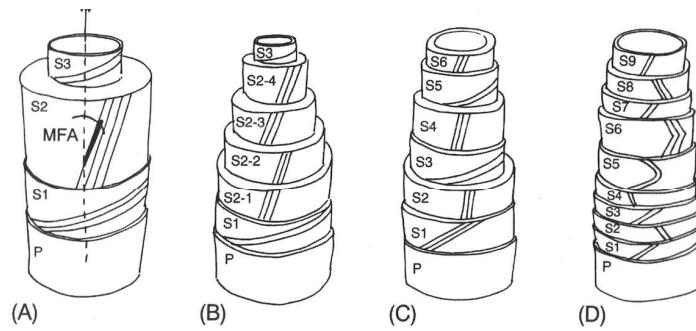


Fig.1-3 Micro structure model of natural fiber. (A) wood fibers, (B) bast fibers, (C) monocotyledonous plant fibers and (D) seed fibers. Black line indicate orientation of CMF⁸⁾.

Table 1-1 Mechanical properties of natural fibers and synthetic fibers⁵⁾.

Fiber	Density [g/cm ³]	Diameter [μm]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [MPa]	Fracture strain [%]
Flax	1.5	40-600	345-1500	27.6	2.7-3.2
Hemp	1.47	25-200	690	70	1.6
Jute	1.3-1.49	25-200	393-800	13-26.65	1.16-1.5
Kenaf	-	-	930	53	1.6
Ramie	1.55	-	400-938	61.4-128	1.2-3.8
Nettle	-	-	650	38	1.7
Sisal	1.45	50-200	468-700	9.4-22	3-7
PALF	-	20-80	413-1627	34.5-82.5	1.6
Abaca	-	-	430-760	-	-
Oil plam EFB	0.7-1.55	150-500	248	3.2	25
Oil plam mesocarp	-	-	80	0.5	17
Cotton	1.5-1.6	12-38	287-800	5.5-12.6	7-8
Coir	1.15-1.46	100-460	131-220	4-6	15-40
E-glass	2.55	<17	3400	73	2.5
Kevlar	1.44	-	3000	60	2.5-3.7
Carbon	1.78	5-7	3400-4800	240-425	1.4-1.8

Table 1-2 Mechanical properties of natural fibers and synthetic fibers⁵⁾.

Fiber	Cellulose [wt%]	Hemicellulose [wt%]	Lignin [wt%]	Pectin [wt%]	Moisture content [wt%]	Waxes [wt%]	Micro fibrillar angle [deg]
Flax	71	18.6-20.6	2.2	2.3	8-12	1.7	5-10
Hemp	70-74	17.9-22.4	3.7-5.7	0.9	6.2-12	0.8	2-6.2
Jute	61-71.5	13.6-20.4	12-13	0.2	12.5-13.7	0.5	8
Kenaf	45-57	21.5	8-13	3-5	-	-	-
Ramie	68-76.2	13.1-15.7	0.6-0.7	1.9	7.5-17	0.3	7.5
Nettle	86	-	-	-	11-17	-	-
Sisal	66-78	10-14	10-14	10	10-22	2	10-22
PALF	70.6	-	5-12.7	-	11.8	-	14
Abaca	56-63	-	12-13	1	5-10	-	-
Oil plam EFB	65	-	19	-	-	-	42
Oil plam mesocarp	60	-	11	-	-	-	46
Cotton	85-90	5.7	-	0-1	7.85-8.5	0.6	-
Coir	32-43	0.15-0.25	40-45	3-4	8	-	30-49

1-2-3 天然繊維の断面積評価

ガラス繊維やカーボン繊維等の人工繊維の断面形状は一般的にほぼ真円である。このような繊維の断面積は、顕微鏡観察やレーザー光等によって繊維の投影幅を測定し、得られた投影幅を直径とする円の面積を算出することによって得られる。天然繊維においても、多くの研究者は人工繊維と同様に天然繊維の形状や寸法を暗に一様と仮定して評価する傾向にある⁵⁻⁸⁾。しかし、天然繊維の断面形状は Fig.1-4 および Fig.1-5 に示す種々の例のように、一般に複雑な形状をしている。そのため、テキスタイル分野では、通常、デニールなどの繊維度を用いて間接的に断面積が算出される¹⁰⁾。しかしながら、力学的性質の正確な導出には断面積の直接情報が必要になる。Xu ら¹¹⁾は、サイザルの多数の光学顕微鏡断面写真から、画像解析によって正確な断面積を導出した。彼らは、従来真円とした扱いでは過小評価され、結果として強度が2倍程度まで過大評価されることを指摘した。この断面積測定法は正確に導出される反面、強度試験を対象とする繊維試料の断面積を直接測定できないところに問題がある。一方、Silva ら¹²⁾は SEM を用いてサイザル麻繊維試料の破断面画像を逐一採取し、破断部近傍の正確な断面積の導出を図っている。

ここで、真円仮定の問題点について、Fig.1-6 に示すケナフ繊維の断面写真を例に具体的に示そう。Fig.1-6(a)中に示す D_V は白矢印方向から測定した繊維の投影幅であり、円は D_V を直径とした真円である。この真円と天然繊維の断面積は明らかに一致していないことがわかる。さらに、Fig.1-6(b)中に示す D_H は黒矢印方向から測定した投影幅であり、 D_V とは異なる投影幅が得られている。同時に D_H を直径とした真円の面積は D_V を直径としたものとは明らかに異なる。このように、天然繊維の断面形状を真円と仮定すると、正確な断面積が得られないばかりでなく、投影幅を測定する方向によっても得られる断面積が異なってしまうという問題も生じる。

以上は、断面積の繊維間変動を問題視したものであるが、鈴木ら⁹⁾はその繊維内変動についても指摘している。彼らは引張試験後のケナフ試料を樹脂内に埋め込み、繊維軸方向に沿って 0.2mm 間隔で連続的にスライスした薄片から断面形状を観察し、画像解析によって断面積を測定した。その結果、この繊維は繊維間の違いだけでなく、繊維軸方向に沿っても断面積が変動することを報告した。また、ケナフ繊維はその軸方向にねじれて成長していることも確認している¹³⁾。

1-2-4 ミクロフィブリル配向角 (MFA) と力学的挙動の関係

1-2-2 項で述べたように、天然繊維の S_2 層の MFA は強度・剛性を強度・剛性を左右する重要なパラメータであり、実験的解析的に MFA の役割が明らかにされている。このような生体由来内部構造と機械的性質の関係について、従来はシングルセル型繊維に基づいて論じられてきたが¹⁴⁾¹⁵⁾、最近では上述のマルチセル型繊維を対象とした議論も展開されている¹⁶⁾¹⁷⁾。シングルセル型繊維の内部構造と機械的性質の関係は数多く報告されており、例えば Salmén ら¹⁴⁾は二次細胞壁を S_1 , S_2 , S_3 層からなる円筒積層材と仮定し、その繊維軸方向の剛性と S_2 層の MFA, S_2 層の厚さおよび S_1 , S_3 層の MFA の関係を数値解析を用いて調査している。また、Markland ら¹⁵⁾は木質繊維の解析モデルにらせん構造を用いた解析を行い、モデル自体のらせん角が及ぼす剛性への影響を調査している。

ところで、植物系天然繊維固有の現象として、吸水やアルカリ処理等による膨潤時に繊維の回転が挙げられる¹⁵⁾¹⁸⁾¹⁹⁾。これは、CMF のらせん状配向がゆえに生じるものであり、引張りによる力学的負荷によっても回転することが示唆されている²⁾⁴⁾。これまで、このような現象はシングルセル機構に基づいて考察されており、マルチセル機構との係りについては触れられていない。この現象について、Fig.1-7 に示すマルチセル型繊維の

引張負荷に関する概念図で説明しよう。上述の CMF がらせん状に配置する部位は、先述のように、 S_2 細胞壁と呼ばれている。この細胞壁には S_1 および S_3 と呼ばれる MFA の大きな細胞壁にも接しているが、 S_2 細胞壁の MFA は 20° 以下と比較的小さいため、先述のように、この部位が力学的性質を支配する¹⁴⁾¹⁷⁾。Fig.1-7 では簡単のため、この部分のみを表示している。Fig.1-7 の個々のシングルセルに着目すると、引張負荷の作用によって回転が生じることは容易に推測できよう。これに対しマルチセル型繊維では、セル同士が膠着している部分において CMF がクロスして配置されているので、回転が起こらないか、または回転したとしてもわずかであると予想される。さらに、CMF の配向方向は Fig.1-7 に示すような左巻きのらせん構造である Z-helix および右

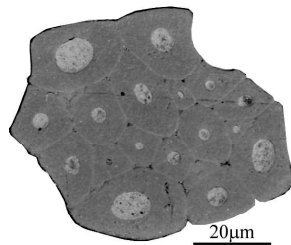


Fig.1-4 Internal structure of kenaf fiber.

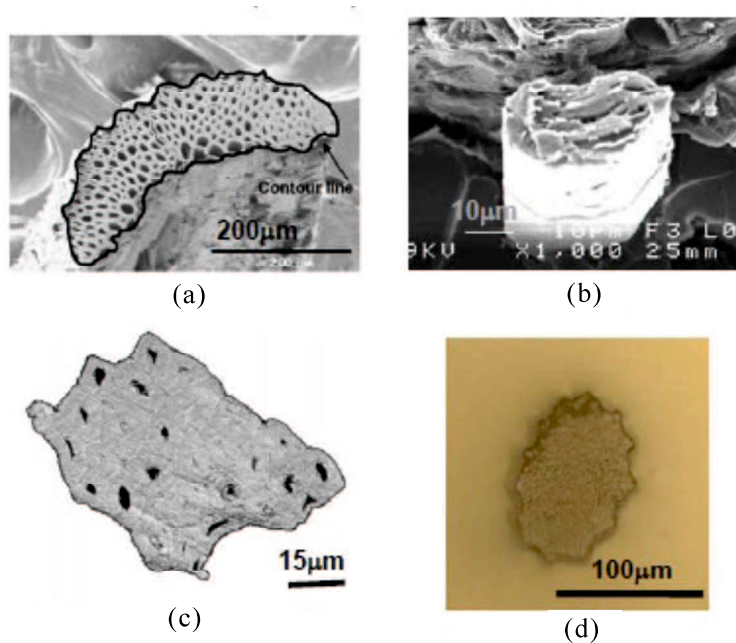


Fig. 1-5 Fracture surfaces or cross-sections of various plant-based natural fibers⁹⁾.
 (a) Sizal (b) Flax (c) Jute (d) Curaua

巻きの S-helix が存在する。繊維の回転方向はらせん構造の配向方向にも依存すると考えられる。このようなマルチセル型繊維の回転挙動やそのモデリングに関する報告は、著者の知る限り、皆無である。

1-3 アルカリ処理

アルカリ処理とは 1844 年にイギリスの Mercer が見出した処理であり、一般に天然繊維に高濃度アルカリ水溶液（水酸化ナトリウム水溶液）に浸す化学処理の一つである。マーセル化とも呼ばれる⁶⁾。アルカリ処理の化学反応式を式(1)に示す²⁰⁾。



この処理は緊張させながらマーセル化すると綿様光沢が得られ、無負荷で処理を行うと

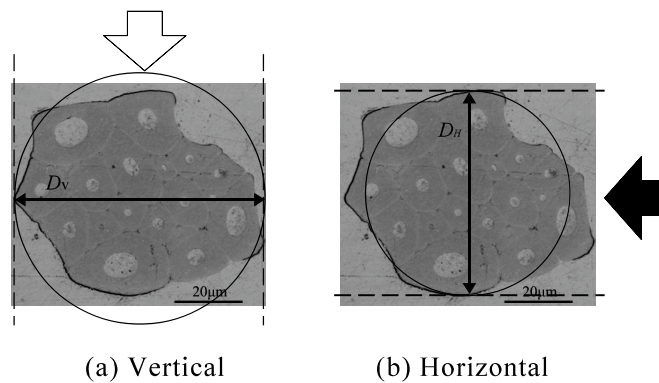


Fig.1-6 Cross-section of kenaf fiber.

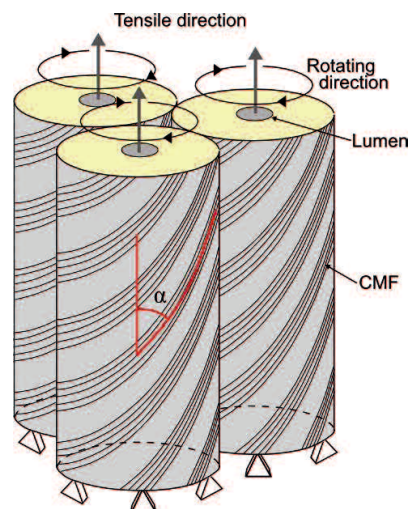


Fig.1-7 Concept of multi-cell structure and rotation during tensile loading of a natural fiber. (In this figures, the secondary wall S_2 only are drawn schematically to easily understand the relation between the rotation and cellulose microfibrils (CMF) orientation. α : microfibrillar angle).

伸縮性のある布が得られることから工業的にも利用されている。また、マーセル化は複合材料の樹脂と繊維の界面特性の改善にも用いられる。これは天然繊維がマーセル化されると繊維表面の粗さが大きくなり、繊維の表面積が大きくなるため樹脂との接着性が増加するためである。これはマーセル化した際に繊維表面のリグニン、ワックスおよび油が除去されることでセルロースの水素結合が分裂し、長さの短いセルロースの結晶ができるためである²⁰⁾。また、天然繊維をマーセル化すると繊維の結晶構造がセルロース I からセルロース II に変化する。このとき、結晶弾性率も 138GPa から 88GPa まで低下する⁷⁾。そのため、天然繊維がマーセル化された場合、天然繊維の機械的性質も変化する。川原ら²¹⁾は NaOH 水溶液の濃度を 1~7%の範囲で変え、アルカリ処理後のケナフ繊維の機械的性質を報告している。その結果、未処理繊維に濃度 5wt%で処理を施した単繊維は引張強度が向上するが、破断ひずみはほとんど変化しない。また、アルカリ処理を施したケナフ繊維を強化材とした複合材料は高い曲げ強さと曲げ弾性率を示す²²⁾。このように、比較的濃度の低いアルカリ処理を施したケナフ繊維は強度の向上が見られることが明らかになっている。一方、ラミー繊維が高濃度アルカリ処理（マーセル化）された場合、機械的性質が劇的に変化し、特に破断ひずみが大きく増加する²³⁾。Table 3 にラミー繊維の機械的特性を示す。引張強度やヤング率は処理によって低下するものの、破断ひずみが大きく向上することがわかる。ラミー繊維はシングルセル型繊維であり、マルチセル型天然繊維に対して以上のマーセル化効果が同様に発現されるかどうかは十分解明されてはいない。

Table 1-3 Tensile properties of untreated and alkali treated ramie fibers.

Fiber type	Number of samples	Tensile Strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Fracture strain [%]
Untreated	20	610	23.1	3.59
15wt%NaOH-treated	20	420	16.5	8.11

1-4 研究目的

天然繊維の強度はその断面積の推定方法や内部構造の影響等で正確な値が推定しにくい。そのため、第 2 章では、天然繊維の断面形状を考慮した断面積の推定方法および天然繊維の引張特性のうち、ヤング率と引張強度についてその断面積変動の影響を調べ、繊維断面積の内部変動および繊維間変動を考慮した引張強度に関するワイブル分布を提

案し、断面積変動の影響を考察した。第3章では、マルチセル繊維において引張負荷時に繊維の回転が生じ得るかどうかを確認するとともに、回転角度と引張強度およびヤング率との関係を調査した。続いて、CMF角を空間内でらせん状に配置できるようにモデル化するとともに、これを用いた繊維の回転現象を有限要素解析によって考察した。第4章では、天然繊維の特性を改善するために高濃度で処理しマーセル化されたマルチセル繊維の機械的特性については十分に明らかにされていない。そのため、マルチセル繊維であるケナフ繊維に高濃度アルカリ処理を施し、マーセル化した際の引張特性に及ぼすアルカリ処理効果について調査を行った。また、高濃度アルカリ処理を施した際の天然繊維の強度低下を抑えつつ靱性を改善するためにケナフ繊維に対する適切なアルカリ処理条件を調査した。さらに、アルカリ処理を施したケナフ繊維の断面積をより正確に評価するために新しい断面積の評価方法を提案した。第5章は結言として第2,3,4章の総括とする。

第1章 参考文献

- 1) Popular Mechanics Magazine, Vol. 76, No. 6, December, 1941.
- 2) Summary Report Biocomp NMP2-CT-2005-515769 (2008): available online at http://www.biocomp.eu.com/uploads/Final_Summary_Report.pdf
- 3) Inoue K, Serizawa S, Yamashiro M, Iji M. Highly functional bioplastics (PAL compounds) used for electronic products. In: Proceedings of Tokyo, January, 2007. p 73–76.
- 4) T. Inoh, “Industrial Products of Plant Origin Material – Effective Use of Plant Origin Plastics for Recycling Society –”, Journal of the Japan Society of Mechanical Engineers, Vol.109, pp.51-52 (2006); M. Iji, S. Serizawa and K. Inoue, “Development of polylactic acid with kenaf and its application to electronic products”, Seikei-Kakou (Journal of JSPP), Vol.15, pp.602-604 (2003).
- 5) Mohanty AK, Misra M, Drzal LT. Natural Fibres, Biopolymers, and Biocomposites. Taylor & Francis; 2005.
- 6) 磯貝明, セルロースの科学, 朝倉書店, 東京(2003), p.4
- 7) 藤井透, 西野孝, 合田公一, 岡本忠: 環境調和複合材料の開発と応用, シーエムシー出版, 東京(2005), p.1.
- 8) Jörg Müssing. Industrial Applications of Natural Fibres Structure, Properties and Technical Applications, John Wiley and Sons, Ltd. 2012
- 9) 合田公一, バイオコンポジットの現状と将来の展望 2. 植物系天然繊維の強度評価 — グリーンコンポジットの現状と将来展望 (2) —, 材料, 59, 12 (2010), pp977-983.
- 10) 繊維学会, 繊維物理学-単繊維を中心として, (1962), 丸善
- 11) X.W. Xu and K. Jayaraman, Journal of Computer Applications inTechnology, **34**, 2, (2009), pp. 115-121.
- 12) F.A. Silva. N. Chawla and R.D.T. Filho, Composites Science and Technology, **68**, (2008), pp. 3438-3443.
- 13) 鈴木浩治, 金原勲, 齊藤博嗣, 舟見国男: 材料, **54**, 8 (2005), pp887-894.
- 14) L. Salmén, A. Ruvo, “A MODEL FOR THE PREDICTION OF FIBER ELASTICITY”, Journal of Wood and Fiber Science, Vol.17(3), pp.336-350 (1985).
- 15) E. Markland and J. Varna, “Micromechanical modeling of wood fibre composites”, Plastics, Rubber and Composites, Vol.38, pp.118-123 (2009).
- 16) A. Beakou and K. Charlet, “Mechanical properties of interfaces within a flax bundle, Part II: Numerical analysis”, International Journal of Adhesion & Adhesives, Vol.43, pp. 54-59 (2013).
- 17) V. Placet, F. Trivaudey, O. Cisse, V. Gucheret-Retel, M. Lamine Boubakar, “Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect?”, Composites: Part A, Vol.43, pp. 275-287 (2012).
- 18) Kh. M .Mannan and Z. Robbany., “Rotation of a natural cellulosic fibre about its fibre axis due to absorption of moisture”, Polymer, Vol.37(20), pp.4639-4641 (1996).
- 19) T. Okano and Y. Nishiyama, “Behavior of Alkali-Swollen Cellulose Fibers and the Crystal Structure”, Cellulose communications, 2, pp.2-5 (1995).

- 20) Xue Li, et al. *Journal of polymers and environment*, Vol.15, Number 1, pp25-33.
- 21) Kawahara Y, Tadokoro K, Endo R, Shioya M, Sugimura Y, Furusawa T. Chemically retted kenaf fibres. *Sen'i Gakkaishi* 2005;61:115–7.
- 22) Aziz SH, Ansell MP. The effect of alkalization and fibre alignment on the mechanical and thermal properties of kenaf and hemp bast fibre composites: Part 1 – Polyester resin matrix. *Compos Sci Technol* 2004;64:1219–30.
- 23) Goda K, Sreekala MS, Gomes A, Kaji T, Ohgi J. Improvement of plant based natural fibres for toughening green composites – effect of load application during mercerization of ramie fibres. *Compos A: Appl Sci Manuf* 2006;37:2213–20.

2. マルチセル構造を有する天然繊維の強度評価

2-1 はじめに

第1章で述べたように、植物系天然繊維（以下、しばしば単に‘天然繊維’と記す）の強度評価に際し、これまでガラス繊維やカーボン繊維など、人工繊維で取られてきた手法がしばしば流用されてきた。すなわち、断面形状を真円と仮定し、光学顕微鏡やレーザー光などで繊維幅を測定するとともに、これを直径に置き換えて断面積とする評価手法である。しかし、Fig. 1-4に示したように、実際には天然繊維の横断面形状は円形ではなく複雑な形状を呈し、その断面形状も繊維間で異なる。したがって、横断面や破断面を光学顕微鏡あるいは電子顕微鏡などで直接観察し、これを画像解析により断面積に変換して評価する方法が取られてきた¹⁾。

ところで、天然繊維の引張負荷による応力-ひずみ曲線はほぼ線形的にふるまい、若干の非線形挙動を呈したのち破断する。このような脆性的挙動ゆえに、その強度分布評価にワイブル分布が適用されることが多い。その際、天然繊維の断面積は繊維間によっても変動するため、ワイブル分布関数に断面積分布の密度関数を導入したワイブル分布が提案されている（以下、しばしば拡張ワイブル分布と記す）²⁾³⁾。一方、前述のように、天然繊維の断面積は繊維間のみならず、繊維軸に沿っても変動する。よって、天然繊維の強度分布は繊維間と繊維内の両者を加味して評価されるべきである。

本章では天然繊維の新たな断面積評価手法を提案するとともに、代表的な植物系天然繊維であるケナフ繊維のヤング率と引張強度に及ぼす断面積変動の影響を調べた。また、繊維断面積の繊維間および繊維内両者の変動を考慮した引張強度に関するワイブル分布を提案し、断面積変動の影響を考察した。

2-2 天然繊維の断面積評価手法の提案

供試材料には、グリーンコンポジットの強化材として実用化されているケナフ繊維を用いた。繊維を樹脂埋めし、研磨後、光学顕微鏡により断面写真を撮影した。Fig.2-1は繊維断面の一例であり、Fig.2-2は繊維部を黒く塗りつぶした画像である。Fig.1-5(d)のようなクラフ繊維ではその形状が比較的楕円形状に近かったが、ケナフ繊維の断面形状はより複雑な形状を呈することが特徴である。このような写真を繊維312本に対して撮影し、それぞれの断面の幅を15°刻みで0°、15°、...、165°の12方向から測定した。このとき、15°の破線で同図に示すように、実際の幅ではなく投影幅を測定した。そしてFig.2-3(a)の実際の断面形状を近似するためにFig.2-3(b)～(g)に示すように、測定した12方向の投影幅を用いて以下の断面形状を定義した。

- (b) 0°方向の投影幅を直径とする真円。
- (c) 0°方向および90°方向の投影幅をそれぞれ長径および短径とする楕円。
- (d) 12方向の投影幅のうち0°方向から60°刻みの3方向の投影幅をそれぞれの方向のまま中点で重ね合わせ端点を結んだ6角形。
- (e) 12方向の投影幅のうち0°方向から45°刻みの4方向の投影幅をそれぞれの方向のまま中点で重ね合わせ端点を結んだ8角形。
- (f) 12方向の投影幅のうち0°方向から30°刻みの6方向の投影幅をそれぞれの方向のまま中点で重ね合わせ端点を結んだ12角形。
- (g) 12方向全ての投影幅をそれぞれの方向のまま中点で重ね合わせ端点を結んだ24角形。

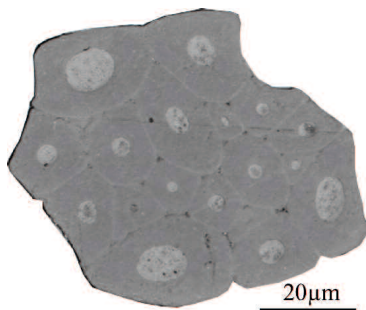


Fig.2-1 Laser microscope image of a kenaf fiber cross-section

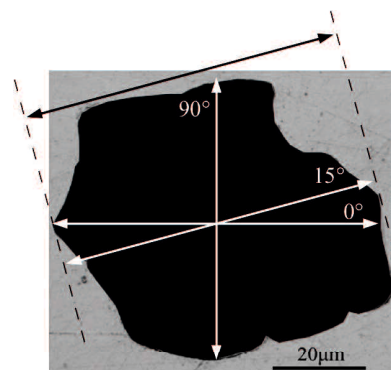


Fig.2-2 Measurements of a real cross-sectional area and fiber widths by 15° interval

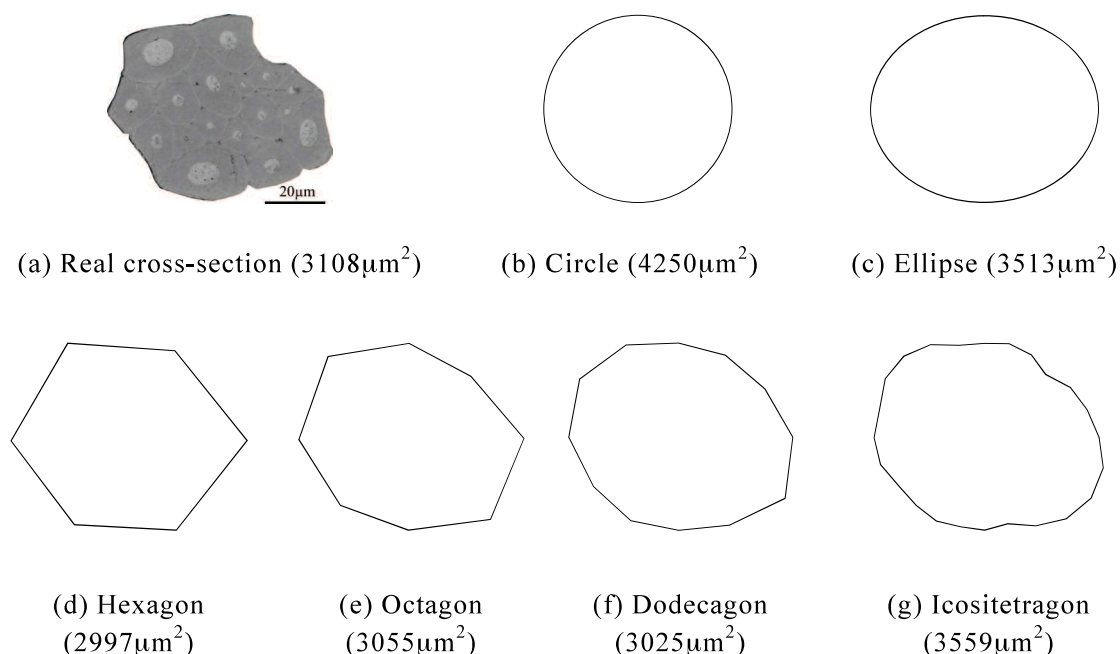


Fig.2-3 Assumption of various cross-sectional shapes.

各繊維断面に対して上記形状における断面積をそれぞれ求めた。併せて、黒く塗りつぶした実断面積も画像解析ソフトより求めた。その結果、例えば Fig.2-3(a)の実断面積 $3108\mu\text{m}^2$ に対して、Fig.2-3(b)~(g)に示すような近似断面積が得られた。これから、各形状の断面積は実断面積と異なっており、過小および過大評価していることがわかる。

ケナフ繊維の実断面積と真円および 24 角形仮定による断面積の関係を Fig.2-4(a), (b)に示す。このとき、両者の断面積の相関係数は 0.800 および 0.909 と求められた。すなわち 24 角形仮定による形状近似が実断面積をより正確に推定していることがわかる。実断面積と、上記に定義したすべての形状における断面積との相関係数を Table 2-1 に示す。これより、真円や楕円仮定では 0.80~0.84 程度と比較的大きい相関係数値ではあるが、使用する投影幅の数が多い形状になるにつれて相関係数はさらに大きくなり、0.9 程度の高い値が得られた。一方で近似形状として 6 角形あたりで飽和しており、投影幅数の増加は必ずしも高い相関性を導くものではない。同表には、各仮定における断面積測定結果の平均値も示す。実断面積と、24 角形仮定断面積における最小自乗近似関数はそれぞれ $y=0.606x+852$ となった。本研究では、この近似関数を用いることで多角形仮定による断面積をそれぞれ実断面積へと変換した。この方法は多数の測定値に基づいて作成したデータベース(DB)を基準にするものであるから、DB 基準断面積評価法 (DBA) と称する。

Table 2-1 Correlation coefficients of real cross-sectional area with assumption cross-sectional areas.

	Real	Circle	Ellipse	Hexagon	Octagon	Dodecagon	Icositetragon
Coefficient of correlation	-	0.809	0.958	0.966	0.965	0.964	0.963
Cross-sectional area [μm^2]	5010	7356	7045	5783	6338	6672	6865

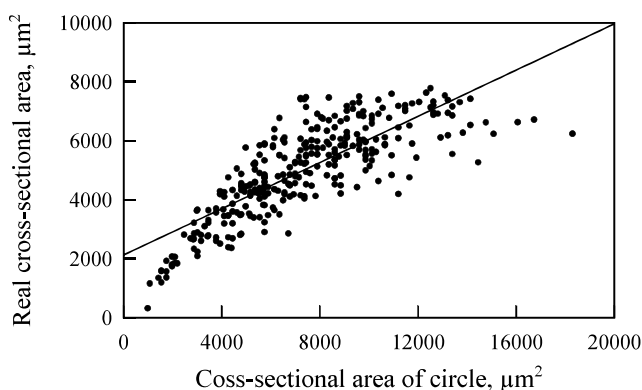


Fig. 2-4(a) Relation between real and circle-assumed cross-sectional areas.

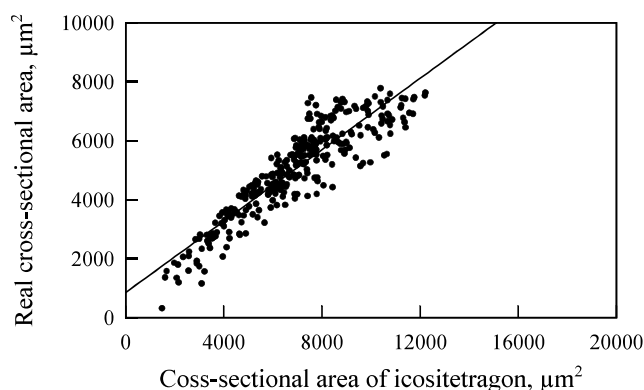


Fig. 2-4(b) Relation between real and icositetragon-assumed cross-sectional areas.

2-3 繊維の引張特性評価

Fig.2-5 に示すような、ゲージ長さ 10mm のケナフ単繊維試験片を、36 本用意した。レーザー寸法測定器((株)ミットヨ, レーザースキャンマイクロメータ LSM-500S)を用いてそれぞれの繊維に対して、Fig.2-6(a)のようにレーザーを当てた状態で単繊維試験片を矢印方向に移動させながら投影幅を測定した。繊維両端部分では試験片の台紙がレーザー光を遮り正しく測定できない場合があるので、測定部分は繊維の両端 1mm を除いた長さ 8mm の部分とし、0.1mm ごとに 81 箇所測定した。測定終了後、Fig.2-6(b)のように繊維を軸として測定器を 15°回転させ、再び繊維長手方向に投影幅を測定した。これを繰返し、15°刻みで 0°, 15°, ..., 165°の 12 方向から繊維投影幅を測定した。一例として、Fig.2-7 に 1 本の繊維の、0°, 60°, 120°方向からの投影幅を示す。これより、投影幅は測定する方向、箇所によって変動しており、軸方向に沿った多方向測定の必要性がうかがえる。得られた投影幅を用いて、各箇所における断面積を 2-1(b)~(g) に示したそれぞれの方法で断面積を算出し、各繊維の平均断面積を求めた。この後、引張試験には、微小荷重検出用引張圧縮試験機 (山口大学製) を使用し実験を行った。変位の測定にはデジタル寸法測定器 (㈱キーエンス製, LS-7500 シリーズ (LS-7500 コントローラー, LS-7030M 測定カメラ)) を使用した。出力される荷重および変位データの記録にはオシロス

コープ（日置電機株式会社製，メモリハイコーダ 8807）を使用し，引張速度 0.8mm/min で引張試験を行った． Table 2-2 に，各形状における平均面積とヤング率，引張強度の平均値を示す．表中 24 角形の近似値は，24 角形仮定の断面積を DB 基準断面積評価法によって実断面積に変換した断面積，およびその値を用いて算出したヤング率，強度である．これから，DB 基準断面積評価法を適用した場合，断面積は Table 1 で求めた実断面積に近いので，ヤング率，強度も正しく推定されていると考えられる．

Table 2-2 Cross-sectional area and tensile strength of kenaf fibers.

	Circle	Ellipse	Hexagon	Octagon	Dodecagon	Icositetragon	Approximation (Icositetragon)
Cross-sectional area [μm^2]	6810	6365	6192	6367	6533	6572	4835
Young's modulus [GPa]	11.6	12.2	12.6	12.2	11.8	11.8	14.8
Tensile strength [MPa]	235	247	256	247	241	240	310

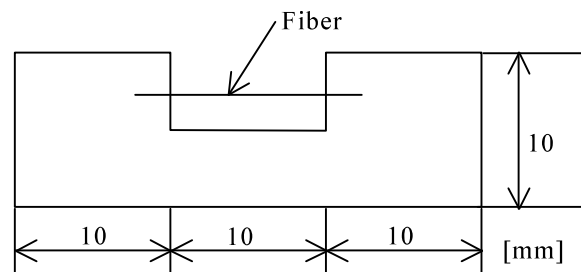


Fig.2-5 Size of fiber specimen.

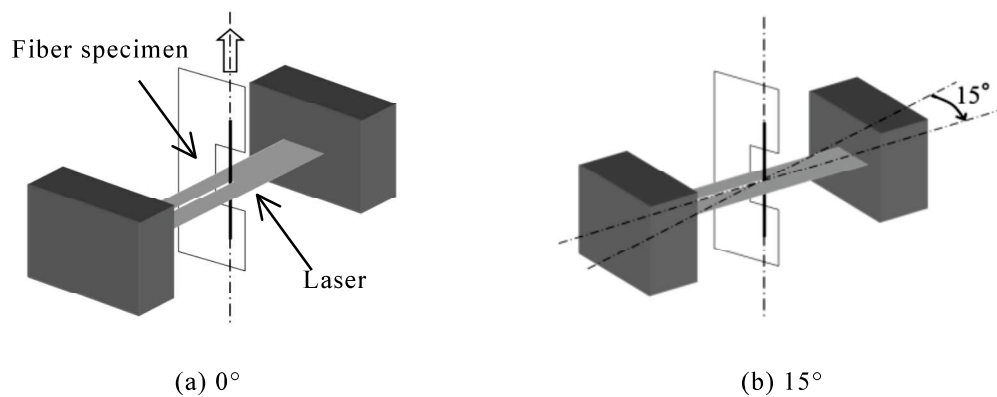


Fig.2-6 Measurement system using laser scan micro meter.

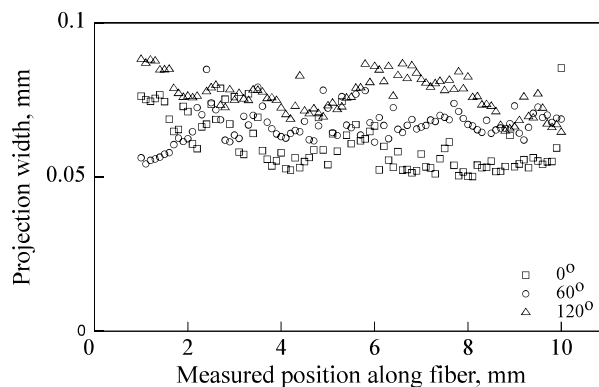


Fig.2-7 Projection width of kenaf fiber.

2-4 引張特性に及ぼす断面積変動の影響

2-4-1 ヤング率に及ぼす断面積変動の影響

Fig.2-8 に 36 本分のケナフ繊維について平均断面積とヤング率の関係を、Fig.2-9 に断面積変動における変動係数とヤング率の関係を示す。Fig.2-8 より、天然繊維のヤング率はその断面積が大きくなるほど低下することがわかる。このヤング率の断面積依存性は、Baley⁴⁾や Charlet⁵⁾も天然繊維の直径との関係より得ており、アラミド繊維⁶⁾にも見られる特有の現象である。また、Fig.2-9 より天然繊維のヤング率は、平均断面積のみならず、その変動係数にも依存して低下することがわかる。これらの天然繊維のヤング率が断面積変動により低下する要因は、引張強度の変化と併せて後述する。

2-4-2 引張強度に及ぼす断面積変動の影響

Fig.10 に平均断面積と引張強度の関係を、Fig.2-11 に断面積変動における変動係数と引張強度の関係を示す。Doan⁷⁾は、簡易的な断面積測定により得られた繊維断面積と引張強度の関係を調べ、引張強度が断面積に依存しない傾向を報告している。しかしながら、Fig.2-10 の引張強度は断面積に強く依存しており、本研究では、欠陥の存在確率の増加で説明される寸法効果が現れている。Fig.2-11 より、天然繊維の引張強度はヤング率と同様に変動係数にも依存して低下することがわかる。

ケナフ繊維は、Fig.2-1 に示すように単位セルが複数集合した多重セル構造を有する天然繊維であるが、この繊維の引張特性に対する断面積変動の影響は、個々のセルの微視的構造に起因し、荷重を主に負担するセルロースマイクロフィブリル角の変化や、ルーメンの寸法に依存して

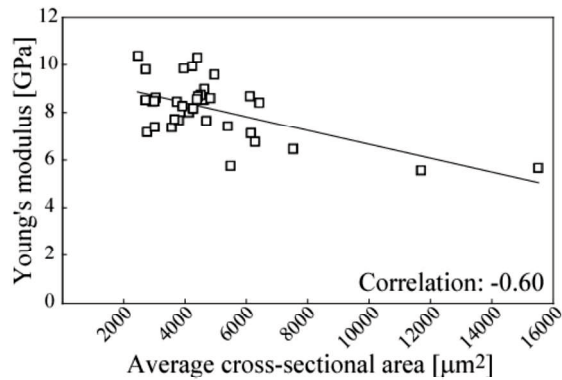


Fig.2-8 Relation between Young's modulus and average cross-sectional areas.

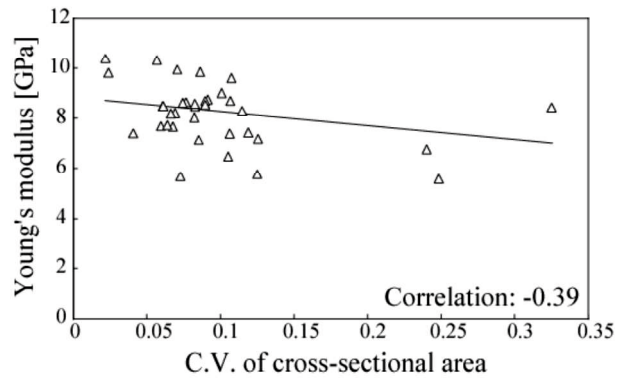


Fig.2-9 Relation between Young's modulus and coefficient of variation of cross-sectional areas

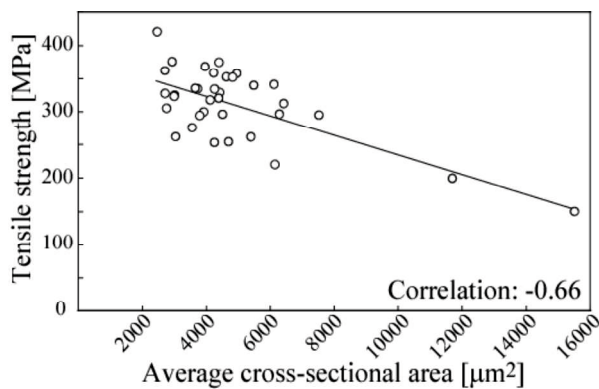


Fig.2-10 Relation between tensile strength and average cross-sectional areas.

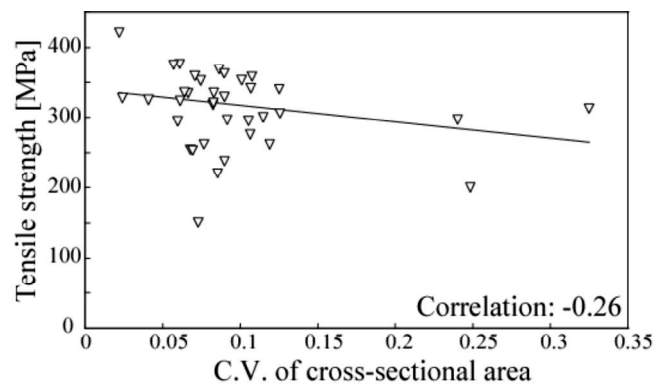


Fig.2-11 Relation between tensile strength and coefficient of variation of cross-sectional areas.

いる^{8,9)}。特に、内部変動率の大きな繊維には、断面積が小さく局所的に大きな変形を伴う部分が存在するため、測定されるヤング率や引張強度が低下すると考えられる。

2-5 天然繊維の引張強度分布

2-5-1 断面積変動の影響を除いた真のワイブル母数の推定

2-5-1-1 従来のワイブル分布モデル

繊維の強度分布モデルとして一般的に用いられるワイブル分布は、繊維間での断面積変動のみを考慮した直線棒モデルを考えており、破断確率 F は次式のように表される。

$$F = 1 - \exp\left[-\frac{V}{V_0}\left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right] = 1 - \exp\left[-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0}\left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right] \quad \dots(1)$$

ここで、 m 、 σ_0 はそれぞれワイブル形状母数、尺度母数を表す。 \bar{A} は繊維軸方向に沿って複数個所測定された断面積の平均値である。 $\bar{\sigma}$ は破断荷重を \bar{A} で除したもので、破断時に繊維が平均的に担った応力である。 V_0 、 A_0 、 L_0 はそれぞれ基準体積、基準断面積、基準長さである。式(1)はワイブル確率紙上では次式で与えられる。

$$\ln \ln \left(\frac{1}{1-F_i} \right) - \ln \left(\frac{\bar{A}}{A_0} \right) - \ln \left(\frac{L}{L_0} \right) = m \cdot \ln \bar{\sigma}_i - m \cdot \ln \sigma_0 \quad \dots(2)$$

ここで $i=1,2,\dots,N$ であり、強度の昇順である。 N は繊維の本数を表す。

2-5-2 断面積の繊維内変動を考慮したワイブル分布モデル

天然繊維の断面積には、繊維軸方向に沿った内部変動があるので、文献¹⁰⁾のように微小長さ Dx を単位とするランダムに断面積の異なる多数の繊維要素が互いに連結した段付棒モデルに置き換えることができる。そして、そのうちの最弱繊維要素（最も破断応力が低い要素）が近傍繊維要素の断面積の大きさに依存することなく破断し、全体の強度が決定されるような破断機構が考えられる。以上のことを勘案した強度の分布関数をワイブル分布に基づいて以下のよう提案した。

先述のように、繊維は繊維軸に沿って断面積が変動している。1本の試験片における j 番目の繊維要素の強度の分布関数をワイブル分布で表すとき、破断確率 F_j は、

$$F_j = 1 - \exp \left[-\frac{V_j}{V_0} \left(\frac{\sigma_j}{\sigma_0} \right)^m \right] = 1 - \exp \left[-\frac{A_j \cdot \Delta x}{A_0 \cdot L_0} \left(\frac{\sigma_j}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad \dots(3)$$

となる。 V_j 、 A_j は j 番目の要素の体積および平均断面積を表す。最弱リンクモデルによると、繊維全体の強度は、 n 個に分割された繊維要素 1, 2, ..., n の中で最も弱い箇所により決定される。すなわち、

$$F = 1 - \prod_{j=1}^n (1 - F_j) = 1 - \exp \left[-\frac{\Delta x}{L_0} \cdot \sum_{j=1}^n \left(\frac{A_j}{A_0} \right) \cdot \left(\frac{\sigma_j}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad \dots(4)$$

である。式(1)と比較するために、

$$\sigma_j = \frac{P_i}{A_j} = \frac{\bar{A}}{A_j} \cdot \bar{\sigma} \quad \dots(5)$$

と置き換えて、破断時の平均応力で表す。ここで、 P_i は i 番目の繊維の破断荷重を示す。断面積変動の連続的な変化を考えると、 Dx を 0 に近づけて、

$$F = 1 - \exp\left[-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m \cdot R\right], R = \frac{1}{L_0} \int_0^L \left(\frac{\bar{A}}{A(x)}\right)^{m-1} dx \quad \dots(6)$$

となる。ここで、 $A(x)$ は断面積変動を表す繊維軸方向の確率過程である。断面積が変化しない場合は $A(x) = \bar{A}$ から式(1)と一致する。繊維軸に沿って離散的に複数箇所を測定する場合 R は、

$$R = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \left(\frac{\bar{A}}{A_j}\right)^{m-1} \quad \dots(7)$$

と書き換えることができる。 R は断面積の内部変動の度合いを表し、 $m > 2$ のときほぼ $R > 1$ を満たす。 R が大きくなれば内部変動が大きくなることを意味する。このとき、段付棒モデルでは $A_j \sim A_{j+1}$ 間の中央に段付を仮定している。式(7)はワイブル確率紙上では次式の形となる。

$$\ln \ln \left(\frac{1}{1-F_i}\right) - \ln \left(\frac{\bar{A}}{A_0}\right) - \ln \left(\frac{L}{L_0}\right) - \ln R_i = m \cdot \ln \bar{\sigma}_i - m \cdot \ln \sigma_0 \quad \dots(8)$$

式(8)の $-\ln R_i$ によって内部変動の影響が除外され、式(1)が R によって補正されていることがわかる。平均強度 $\bar{\sigma}_F$ は式(9)で与えられる。

$$\bar{\sigma}_F = \sigma_0 \cdot \Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \cdot \left(\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0}\right)^{\frac{1}{m}} \cdot R^{\frac{1}{m}} \quad \dots(9)$$

先に強度測定を行ったケナフ繊維では、2-2項で測定した投影幅を用いて計算されたことより、0.1mm 間隔で 81 箇所の離散的な断面積が得られている。その測定時の概要を Fig.2-12 に示す。

本研究では各測定断面積間の応力 s_j (要素内平均応力) を相加平均モデルで意味づけた。1本の繊維の断面積が A_1, A_2, \dots, A_{n+1} と $n+1$ 箇所得られるとき、上で提案したワイブルモデルの各繊維要素は n 個になる。要素 j (A_j と A_{j+1} 間の要素) の平均応力 $\bar{\sigma}_j$ は A_j と A_{j+1} の平均値を代表面積とすることによって、

$$\bar{\sigma}_j = \frac{1}{l} \int_0^l \sigma dx = \frac{P_i}{l} \int_0^l \frac{dx}{A(x)} = \frac{2P_i}{A_j + A_{j+1}} \quad \dots(10)$$

と与えられる。すなわち $\bar{\sigma}_j$ は A_j と A_{j+1} の相加平均によって定義される。このとき(7)式は

$$F = 1 - \exp\left[-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m \cdot R\right], R = \frac{1}{n} \cdot \sum_{j=1}^n \left(\frac{2\bar{A}}{A_j + A_{j+1}}\right)^{m-1} \quad \dots(11)$$

と書き換えられる。

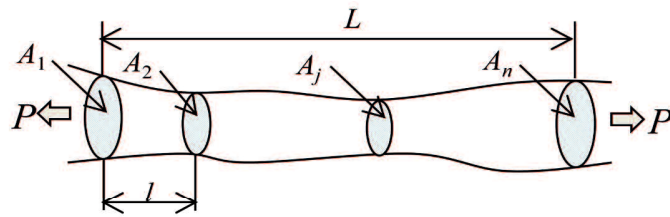


Fig.2-12 Schematic of measurement for cross-sectional area along fiber axis.

2-5-3 真のワイブル母数の推定

先に強度測定を実施した繊維に対して，提案した各ワイブルモデルによるワイブル母数を求めた．Fig.2-13 に，ケナフ繊維の引張強度に関するワイブルプロットを示す．式(2)，(8)の左辺を Y ，右辺の $\ln \bar{\sigma}_j$ を X とおくことにより， X と Y は一次式で記述される．これを最小二乗法で近似することにより形状母数 m と尺度母数 σ_0 を求めた．このとき，累積確率は $F_j=j/(N+1)$ とし，平均ランク法により与えた．ケナフ繊維における形状母数および尺度母数を Table 3 に示す．同表より，式(8)による形状母数値 m ，尺度母数 σ_0 が，式(2)を用いた場合よりも大きな値をとることがわかる．これは R を考慮することで，繊維間の変動のみならず，内部変動の影響を除外した母数推定値となり，真の強度は大きく，そのばらつきは小さく現れた結果である．

2-6 断面積の繊維内変動を考慮したワイブル分布の定式化

前節では断面積変動の影響を除外した真のワイブル母数を実験値の補正により推定することはできたが，断面積変動の影響をモデル化できれば，その変動を定量化することができる．Watson ら¹¹⁾は断面積が異なる炭素繊維の強度分布に断面積分布の密度関数を導入してワイブル分布を拡張した．Steenbakkers ら⁶⁾もケブラー繊維に，Zhang ら¹²⁾も羊毛繊維にそれぞれ同様な拡張ワイブル分布の流用を図っている．また，この密度関数にワイブル分布を用いた Curtin のモデル¹³⁾では，CFRP の一方向材強度を精度良く予測できることが報告されている．また，亜麻繊維の引張強度に関して内在するキंकバンド間隔の分布をワイブル分布と仮定し，その強度に Curtin のモデルを適用した研究も存在する¹⁴⁾．以上はすべて同様な拡張ワイブル分布形である．本節では，ケナフ繊維の引張強度分布に対して内部変動を加味した拡張ワイブル分布を新たに定式化する．

2-6-1 ワイブル分布に基づく引張強度分布

断面積の平均値 \bar{A} が繊維間で変動するとみなした直線棒モデルのワイブル分布式(1)は \bar{A} および $\bar{\sigma}$ の 2 変数関数である.

$$F = F(\bar{A}, \bar{\sigma}) \quad \dots(12)$$

\bar{A} を繊維間で変動する確率変数とみなし, その確率密度関数を $g(\bar{A})$ とおくととき, 強度分布 F_t は

$$\begin{aligned} F_t &= \int_0^\infty F(\bar{A}, \bar{\sigma}) \cdot g(\bar{A}) d\bar{A} \\ &= 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right\} \cdot g(\bar{A}) d\bar{A} \end{aligned} \quad \dots(13)$$

となる. 式(13)は最終的に以下の形に導かれることが証明されている¹¹⁾.

$$F_t = 1 - \exp\left[-\left(\frac{\bar{A}}{A_0}\right)^\lambda \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right] \quad \dots(14)$$

ここで, λ はサイズスケール補正指数である. また, 上式では簡単のため $L=L_0$ とおいている. 上述のように, 各種繊維の強度分布に対して式(14)を用いた議論が展開されてきた⁶⁾¹¹⁾¹²⁾. 一方, 断面積の繊維間変動に加えて内部変動も加味したワイブル分布は, これまで提案したように,

$$F = F(\bar{A}, \bar{\sigma}, R) \quad \dots(15)$$

で表される. 式(15)と式(12)の違いは断面積の内部変動を表すパラメータ R の有無である. いま $\bar{A}^* = \bar{A}R$ なるパラメータを定義すると, $R>1$ のとき \bar{A}^* は \bar{A} より大きくなる. このとき, 式(15)は

$$F_j(\bar{A}^*, \bar{\sigma}) = 1 - \exp\left\{-\frac{\bar{A}^*}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right\} \quad \dots(16)$$

と書ける. これはすなわち, 内部変動せずに一様な平均断面積 \bar{A}^* を有するワイブル分布とみなすことができる. 同様に \bar{A}^* の確率密度関数を $g^*(\bar{A}^*)$ とおくととき, F_t^* は

$$\begin{aligned} F_t^* &= \int_0^\infty F(\bar{A}^*, \bar{\sigma}) \cdot g^*(\bar{A}^*) d\bar{A}^* \\ &= 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\bar{A}^*}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right\} \cdot g^*(\bar{A}^*) d\bar{A}^* \end{aligned} \quad \dots(17)$$

と記述できる.

ここで, ケナフ繊維 34 本分の断面積測定結果より, 平均断面積 \bar{A} , および内部変動パラメータを考慮した平均断面積 \bar{A}^* の度数分布を Fig.2-14 に示す. これらの分布に対し, 有意水準

5%で χ^2 検定を行って、正規分布に適合することを確認した。よって以下では、 $g(\bar{A})$ および $g^*(\bar{A}^*)$ に正規分布の確率密度関数を用いて議論を進める。

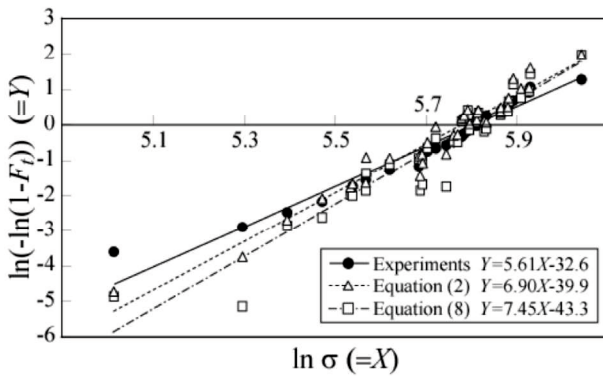


Fig.2-13 Weibull distributions using Eqs. (2) and (8) of tensile strength.

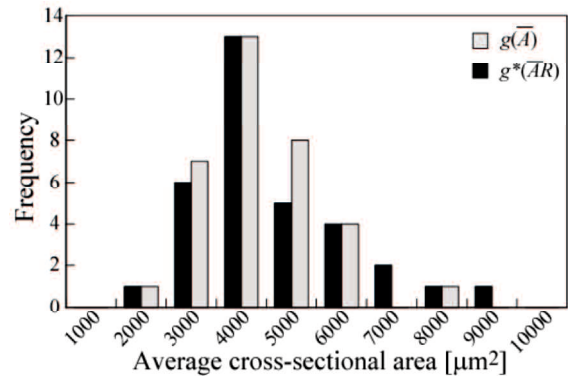


Fig.2-14 Frequency distribution of average cross-sectional area

2-6-2 確率密度関数を同一分布で与える場合

繊維間での平均断面積の分布が正規分布に従う場合、確率密度関数に正規分布を仮定した強度分布は、断面積の内部変動がない直線棒モデルの場合、次式で表される。

$$F_t = 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma'_0}\right)^{m'}\right\} \cdot \frac{1}{\sqrt{2\pi S_1^2}} \exp\left[-\frac{(\bar{A} - \mu_1)^2}{2S_1^2}\right] d\bar{A} \quad \dots(18)$$

となる。ただし、上式において μ_1 は平均断面積分布 \bar{A}_j における平均値、 S_1 はその標準偏差である。また、 σ'_0, m' は式(2)により求まる尺度母数と形状母数を用いた。

同様に、内部断面積変動を考慮した段付棒モデルでは、次式となる。

$$F_t = 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\bar{A}^*}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma''_0}\right)^{m''}\right\} \cdot \frac{1}{\sqrt{2\pi S_2^2}} \exp\left[-\frac{(\bar{A}^* - \mu_2)^2}{2S_2^2}\right] d\bar{A}^* \quad \dots(19)$$

上式において μ_2 は平均断面積分布 \bar{A}_j^* における平均値、 S_2 はその標準偏差である。また、 σ''_0, m'' は式(8)により求まる尺度母数と形状母数を用いた。なお、本研究では、式(18)、(19)を数値的に求めた。

2-6-3 条件付き分布による確率密度関数

ケナフ繊維の平均断面積分布は正規分布に従うことを明らかにしたが、Fig.10に示したように、引張強度の平均値は平均断面積に依存することが分かる。すなわち、 $\bar{A}_j = \bar{A}(\bar{\sigma})$ であり、式

(13)を次式で再考する.

$$\begin{aligned}
 F_i &= \int_0^\infty F(\bar{A}, \bar{\sigma}) \cdot g(\bar{A}_j(\bar{\sigma})) d\bar{A} \\
 &= 1 - \int_0^\infty \exp\left\{-\frac{\bar{A}}{A_0} \cdot \frac{L}{L_0} \cdot \left(\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_0}\right)^m\right\} \cdot g(\bar{A}_j(\bar{\sigma})) d\bar{A}
 \end{aligned} \quad \dots(20)$$

ここで、条件付き確率密度関数は、確率変数 $\sigma (=X)$ および $A_j (=Y)$ とおき、2次元正規分布を用いると、次式となる.

$$g(\bar{A}_j(\bar{\sigma})) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}S_Y\sqrt{1-\rho_{XY}^2}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\bar{A}_j - \mu_Y - \rho_{XY}(S_Y/S_X)(\bar{\sigma} - \mu_X)}{S_Y\sqrt{1-\rho_{XY}^2}}\right)^2\right] \quad \dots(21)$$

ただし、 μ_X, S_X および μ_Y, S_Y はそれぞれ σ および A_j の平均値と標準偏差、 ρ_{XY} は相関係数である.

ここでは μ_X, S_X については実験値から算出される平均値と標準偏差を用いた. ここでは式(20)も同様に数値的に求めた.

2-6-4 ワイブル母数の比較

ケナフ繊維に対して、式(18), (19)および(20)より、正規分布および条件付き2次元正規分布を有するワイブルモデルを用いて、ワイブル母数を求めた. Fig.15 に、ケナフ繊維の引張強度に関するワイブルプロットを示す. 得られた形状母数および尺度母数を Table 3 に追記する. 同表より、正規分布を用いた式(18)と(19)について、内部変動パラメータ R の違いはさほど現れない上、形状母数は高く尺度母数は小さく見積もることがわかる. 一方で引張強度の断面積依存性を考慮した条件付き分布を用いた式(20)では、母数推定値が実験値に近い. つまり、内部および繊維間の断面積変動を考慮した天然繊維の強度分布は式(20)により定式化できることがわかる.

Table 2-3 Weibull shape and scale parameters.

	Experiments	Eq. (2)	Eq. (8)	Eq. (18)	Eq. (19)	Eq. (20)
m	5.61	6.90	7.45	6.68	6.86	5.88
σ_0 [MPa]	336	324	334	336	327	343

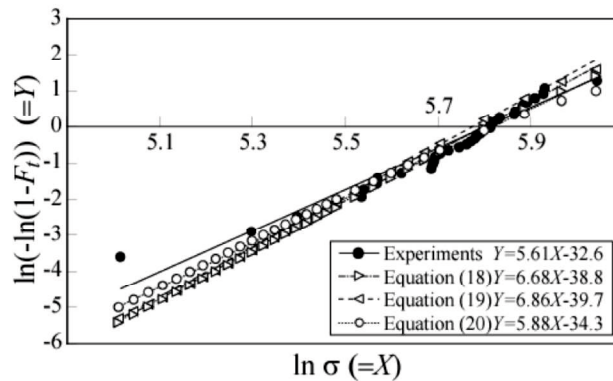


Fig.2-13 Weibull distributions using Eqs. (18), (19) and (20) of tensile strength.

2-7 結 言

本研究では、代表的な天然繊維であるケナフ繊維の断面形状を真円、楕円および6~24角形断面と仮定し、多数の顕微鏡断面写真データから実断面積との相関を逐一調べることにより、断面積評価法に用いる最適な断面形状を探索した。その結果、従来から行われている断面積の真円仮定に比べ、多角形仮定を行う方が実断面積分布との相関が高いことが明らかになった。

次に多角形DB基準断面積評価法により推定した断面積を用いて、天然繊維の引張特性のうち、ヤング率と引張強度についてその断面積変動の影響を調べた。その結果、天然繊維のヤング率と引張強度はその断面積のみならず、その変動係数の増加にも依存して低下することが判明した。

最後に、断面積変動パラメータ R を提案して、断面積変動の影響を除いた天然繊維の持つ引張強度の真のワイブル母数を実験的に求めた。さらに、繊維断面積の内部変動および繊維間変動を考慮した新たなワイブル強度分布を定式化し、断面積変動の影響を加味した天然繊維の引張強度のワイブル母数を数値的に推定した。強度の断面積依存性を考慮することにより、天然繊維の引張強度分布を断面積の変動を含めて予測することができる。

第 2 章 参考文献

- 1) F. A. Silva, N. Chawla, R.D.T. Filho, Tensile behavior of high performance natural (sisal) fibers, *Composites Science and Technology*, **68**, (2008), pp.3438-3443.
- 2) P. Lodha and A.N. Netravali, *Journal of Material Science*, **37**, (2002), 3657-3665.
- 3) N. Defoirdt, S. Biswas, L.D. Vriese, L.Q.N. Tran, J.V. Acker, Q. Ahsan, L. Gorbatikh, A. V. Vuure and I. Verpoest, *Composites, Part A*, **41**, (2010), 588-595.
- 4) C. Baley, *Composites Part A*, **33**, (2002), 939-948
- 5) K. Charlet, S. Eve, J.P. Jernot, M. Gomina and J. Breard, *Procedia Engineering*, **1**, (2009), 233-236.
- 6) L.W. Steenbakkers and H.D. Wagner, *Journal of Material Science Letters*, **7**, (1988), 1209-1212.
- 7) T.T.L. Doan, S.L. Gao and E. Mader, *Compos. Sci. Technol.*, **66**, (2006), 952-963.
- 8) J. Gassan and A.K. Bledzki, *Journal of Engineering and Applied Science*, **2** (1996), 2552-2557.
- 9) B. Madsen, A. Thygesen and H. Lilholt, *Compos. Sci. Technol.*, **67**, (2007), 1584-1600.
- 10) 田辺克典, 松尾貴則, Alexandre Gomes, 合田公一, 大木順司: *材料*, **57**, 5 (2008), 454-460.
- 11) A.S. Watson and R.L. Smith, *Journal of Materials Science*, **20**, (1985), 3260-3270.
- 12) Y. Zhang, X. Wang, N. Pan and R. Postle, *Journal of Material Science*, **37**, (2002) 1401-1406.
- 13) W.A. Curtin, *Journal of Composite Materials*, **34**, 15, (2000), 1301-1332.
- 14) J. Andersons, E. Sparnins and E. Porike, *Journal of Composite Materials*, **43**, 22, (2009), 2653-2664.

3. マルチセル構造を有する天然繊維の構造と強度

3-1 はじめに

天然繊維は吸水やアルカリ処理および引張負荷をかけた際に繊維軸周りに回転することか知られている¹⁾²⁾。このような、回転現象やCMF角と強度・剛性の関係は主にシングルセル繊維に基づいて議論されてきた²⁾³⁾⁴⁾。そこで、本章では、マルチセル繊維において引張負荷時に繊維の回転が生じ得るかどうかを実験的に確認するとともに、回転角度と引張強度およびヤング率との関係を調査した。さらに、CMF角を空間内でらせん状に配置できるようにモデル化するとともに、これを用いた繊維の回転現象を有限要素解析によって考察した。

3-2 実験方法

3-2-1 供試材料

供試材料として、第2章で扱ったものと同じく、代表的なマルチセル繊維であるケナフ繊維 (*Hibiscus cannabinus*, ベトナム産) を用いた。この繊維は、環境に優しい資源として紙や薄板の素材として、あるいはPLA系複合材料の強化材としてしばしば用いられている⁷⁾⁸⁾。ケナフ繊維の特性をTable 3-1に示す。また、繊維の断面形状はFig. 2-1に示すような形状であり用いたケナフは明らかにマルチセル構造を呈することがわかる。

Table 3-1 Properties of kenaf fibers⁵⁾⁶⁾

Cellulose [wt%]	Hemicellulose [wt%]	Lignin [wt%]	Pectin [wt%]	Density [g/cm ³]	MFA [deg]
45-57	21.5	8-13	3-5	1.4	10

MFA: Microfibrillar angle

3-2-2 引張試験および回転角の導出

ケナフ単繊維の引張試験は、JIS規格「炭素繊維—単繊維の引張特性の試験方法 (JIS7606)」に準じ、引張圧縮試験機 (山口大学製, 容量: 19.6N) を用いて実施した。試験本数は42本であり、引張試験片のゲージ長さは25mm, 引張速度は1.0mm/minである。なお、試験片本数については、統計処理におけるばらつきの収束性として試料数40

以上が推奨されており⁹⁾、本研究でもこれに準じた。試験片の投影幅はレーザスキャンマイクロメータ (LSM-500S, Mitutoyo Co.) を用い、繊維の軸方向に沿って 0.1mm 間隔で 0°, 60°, および 120° の 3 方向から測定するとともに、繊維断面積を第 2 章で提案した DBA 法より推定した。ここでは、断面形状を六角形と仮定した。試験機の掴み治具の上部は金属製丸棒によって支えられ、金属リングでつながっている。この機構により、リングは 180° 未満の角度範囲で回転することができる。

繊維回転角はデジタルマイクロスコープ (KH-1300, HiROX) によって引張試験中に撮影された動画画像から測定した。最初の画像で、特徴点を初期点に設定し、この点が破断するまで連続的に存在するかを確認した。特徴点が最後の画像まで存在するとき、回転角 ψ と画像上での移動距離 L の関係は Fig.3-1 に示すようになる。 L は

$$L = x_0 - x_0 \cos \psi + y_0 \sin \psi \quad \dots(1)$$

であり、 x_0 と y_0 は X-Y 平面上の原点(0,0)に設定された初期特徴点の位置座標である。実験では、 L を初期画像からの最終画像の移動距離とした。本研究では、原点を DBA から導出した仮定六角形の 3 本の対角線の交点として認識し、 y_0 は六角形の辺上の点として仮定した。以上より、回転角 ψ は式(1)を陰解法によって解くことで得られる。

3-3 実験結果

Fig.4 に引張試験中の繊維表面写真を示す。矢印で示すように、特徴点は上側に移動するだけでなく、僅かながら左 (Fig.3-2(a)) から右 (Fig.3-2(c)) へ移動していくことがわかる。すなわち、ケナフ繊維は引張変形とともに回転することが確かめられた。以下、このような回転を反時計回りと称す。Fig.3-2 では回転とともに、繊維の幅も変化するこ

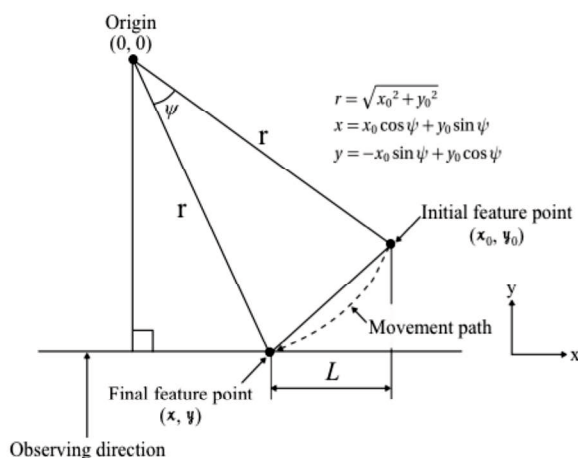


Fig.3-1 Schematic of movement path from initial feature point (x_0, y_0) to final feature point (x, y) , and measured distance L .

とが観察される。これは、Fig.2-1 に示すように、また鈴木ら¹⁰⁾も指摘しているように、ケナフ繊維の断面が楕円とも四角形とも言い難い複雑な形状をしており、観察方向によって繊維幅が異なる試料だからである。そのため回転によって繊維幅の大きさが変わりながら観察される。このような変化もまた、引張試験中に回転することを実証するものである。一方、この例とは逆の時計回りに回転する試験片もいくつか確認できたが、多くの繊維において回転を確認することはできなかった。Table 3-2 に試験片の引張試験結果を示す。回転が確認された試験片は 11 本であった。以後、回転が確認された試験片を RI-試験片 (Rotation-identified specimen)、回転を確認できなかったものを NRI-試験片 (Non-rotation-identified specimen) とそれぞれ略記する。RI-試験片のうち、時計回りのものは 5 本、反時計周りは 6 本であった。つまり、RI-試験片は全体の約 1/4 を占め、引張負荷によって回転が生じる確率は 1/4 程度である。また、すべての試験片の結果と比較すると、引張強度は若干低くなることがわかる。ヤング率についてはほぼ同程度の値を示した。Fig.3-3 に測定した回転角と引張強度およびヤング率との関係を示す。回転角が算出できた繊維は、Fig.3-3 に示すように、11 本中 10 本であった。引張強度は回転角と相関があるように見えるが、相関係数はわずか-0.211 と算出された。すなわち、繊維強度の回転角への依存性は小さいと思われる。一方、ヤング率と回転角の関係について相関係数を求めたところ、-0.518 と算出された。この値は両者の間に少なからず相関関係を認めるものである。しかしながら、本研究で見積もった上述の係数値は、RI-試験片のうち回転が計測できなかった 2 つを除外しており、わずか 9 個のデータによる推定値であることから十分に信頼性のある値とは言えない。RI-試験片の回転角と強度・剛性の関係については、今後の課題としてさらなる検討を要する。

Table 3-2 Tensile properties of kenaf fiber specimens

	Number of samples	Corresponding number	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]
Total	42	-	350	33.0
RI specimens	-	11	331	32.8
NRI specimens	-	31	357	33.1

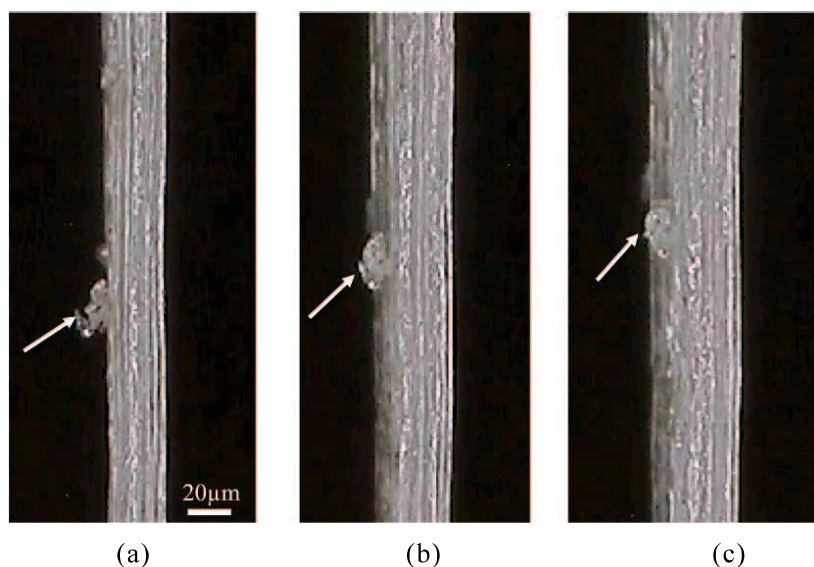


Fig.3-2 Observation of rotation during tensile test of a kenu fiber.

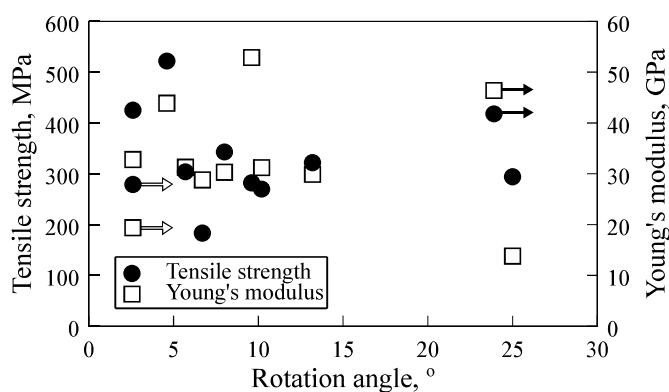


Fig.3-3 Effect of rotation angle on tensile strength and Young's modulus. Rotation angles of two specimens were not measured in the total number of RI-specimens, because the feature points moved to the outside of observation image (black arrows) or became defocus (white arrows) during tensile test.

3-4 解析

3-4-1 解析モデル

本研究において、ケナフ単繊維の引張試験中における繊維軸周りの回転が観察された。この回転機構は次のように2とお考えられる。

【機構 1】文献¹¹⁾でも指摘されているように、天然繊維のセル内のCMFの多くは‘Z’型のらせん配置（以下、Z-helixと記し、‘S’型のらせん配置をS-helixと記す）を取っている。このため、引張負荷によりCMF角が減少し、これにともなって回転が生じると考

えられる。しかし、マルチセル繊維では、セルが互いにリグニン等の細胞間物質で膠着されているので、緒言でも述べたように、相対するセル間において CMF 角はクロスし、回転を妨げる。よって、回転機構の検証には力学的なモデリングが必要である。

【機構 2】鈴木ら¹⁰⁾によると、セルは成長する過程で隣り合うセル同士が密に凝集し、互いに絡まり合いながら伸びていく。したがって、セルは繊維全体の軸に沿って複雑にねじれた構造を呈する。このねじれをらせん配置とみなすならば、引張負荷によってらせん角は減少し、繊維が回転すると考えられる。この場合、ねじれの度合いとして S-helix が強ければ反時計に回転し、Z-helix が強ければ時計回りに回転すると予想される。しかし、多くの試験片が実際には回転しなかったことを考え合わせると、両者の程度は同等であり、一部の試験片においてどちらかのねじれの影響が強かったものと推測される。

本研究では、機構 2 のモデリングは不確定な要因が多々含まれることから、まず、機構 1 のみに着目し、従来から指摘されてきた CMF に起因する回転現象のモデル化を行なう。すなわち、セルのねじれ配置を考慮せず、縦方向にセルを直線状に積上げたマルチセル繊維有限要素モデルを作成した。使用した有限要素モデルはアイソパラメトリック 8 節点 6 面体要素である。ここでは、Fig.3-4(a)に示すように、1つのセルモデルの断面は中央にルーメンを有する六角形とし、Fig.3-4(b)のように単一セルを積上げた。セル内の CMF は一方向繊維の集合体と考えられるため、各要素を直交異方性体とみなした。また、セルの 1 辺の長さおよび軸方向の高さはケナフ繊維の断面観察からそれぞれ 0.005mm, 0.02mm とした。

一般に、直交異方性体の応力—ひずみ関係の剛性マトリックスは、

$$[D] = \begin{bmatrix} \frac{1-\nu_{23}\nu_{32}}{E_{22}E_{33}\Delta} & \frac{\nu_{12}-\nu_{13}\nu_{32}}{E_{11}E_{33}\Delta} & \frac{\nu_{21}+\nu_{21}\nu_{32}}{E_{22}E_{33}\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\nu_{12}-\nu_{13}\nu_{32}}{E_{11}E_{33}\Delta} & \frac{1-\nu_{31}\nu_{13}}{E_{11}E_{33}\Delta} & \frac{\nu_{23}-\nu_{21}\nu_{13}}{E_{11}E_{22}\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\nu_{31}+\nu_{21}\nu_{32}}{E_{22}E_{33}\Delta} & \frac{\nu_{23}-\nu_{21}\nu_{13}}{E_{11}E_{22}\Delta} & \frac{1-\nu_{12}\nu_{21}}{E_{11}E_{22}\Delta} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & G_{23} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & G_{31} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & G_{12} \end{bmatrix} \quad \dots(2)$$

と表わされる。ここで、 E_{11} 、 E_{22} はそれぞれ CMF 軸に垂直方向の縦弾性係数であり、 E_{33} は CMF 軸方向の縦弾性係数である。 ν_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$) は、 i 軸方向に負荷されたときの j 軸方向の横ひずみに対するポアソン比である。 G_{23} 、 G_{31} 、 G_{12} はそれぞれ 2-3、3-1、1-2 面のせん断弾性係数である。また、

$$\Delta = \frac{1}{E_{11}E_{22}E_{33}}(1 - \nu_{12}\nu_{21} - \nu_{23}\nu_{32} - \nu_{31}\nu_{13} - 2\nu_{12}\nu_{23}\nu_{31})$$

である。座標変換マトリックス[T]を通して表される¹²⁾。本研究では、CMF角 α を表現するために[T]を以下のように与えた。

$$[T] = \begin{bmatrix} l^2 & m^2 & n^2 & 2lm & 2mn & 2nl \\ l'^2 & m'^2 & n'^2 & 2l'm' & 2m'n' & 2n'l' \\ l''^2 & m''^2 & n''^2 & 2l''m'' & 2m''n'' & 2n''l'' \\ ll' & mm' & nn' & lm' + l'm & mn' + m'n & nl' + n'l \\ l'l'' & m'm'' & n'n'' & l'm'' + l''lm' & m'n'' + m''n' & n'l'' + n''l' \\ ll'' & mm'' & nn'' & lm'' + l''m & mn'' + m''n & nl'' + n''l \end{bmatrix} \quad \dots(3)$$

$$\begin{aligned} l &= \cos\phi & m &= -\sin\phi\sin\theta & n &= -\sin\phi\cos\theta \\ l' &= 0 & m' &= \cos\theta & n' &= -\sin\theta \\ l'' &= \sin\phi & m'' &= \cos\phi\sin\theta & n'' &= \cos\phi\cos\theta \end{aligned}$$

と表わされる。ここで、 ϕ と θ は3次元直交座標系において、それぞれ主軸（ベクトル \mathbf{OR} 上の軸）の x - z 平面および y - z 平面上における z 軸およびベクトル \mathbf{OR}' からの傾角である。Fig.6 にその座標系と主軸が傾いた様相を示す。このとき、角度 α は式(3)の n'' にあたる $\cos\phi\cos\theta$ の逆関数で与えられる。 α を満たす ϕ と θ の組み合わせは無数にあるので、これを仮定②で述べたように、セルの周軸に一様に配置させるために x - y 平面上における y 軸からの周方向になす角度 β を導入した。

Fig.3-5 に、CMFを有する6面体要素が角度 β ほど旋回して Z-helix 状に配置される例を追示している。CMF角 α とCMF軸は、原点 O から x - y 平面内で半径方向に伸びた法線に対する垂直面（Fig.3-5 のCMFを有する6面体要素上の面）では常に一定に与えられる。これを Fig.3-5 内の矢印で示すように、原点 O に向けて移動させるとき、CMF軸はベクトル \mathbf{OR} と一致し、またCMF角は先述の $\cos\phi\cos\theta$ の逆関数で与えられ、それぞれ3次元表示となる。これを z 軸周りではせん状に一様に表現するために、 β を各要素の座標に応じて割り振ることで ϕ と θ を見積もった。その換算式を Table 3-3 に整理して示す。

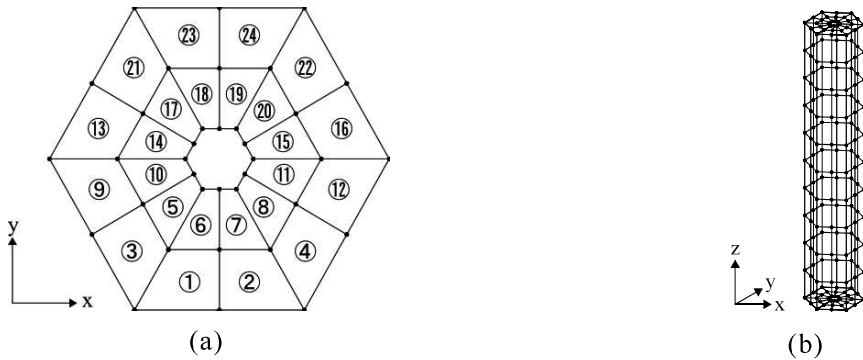


Fig.3-4 FEM mesh of one elementary cell. (a) Cross-sectional FE mesh, (b) 3D-FE mesh

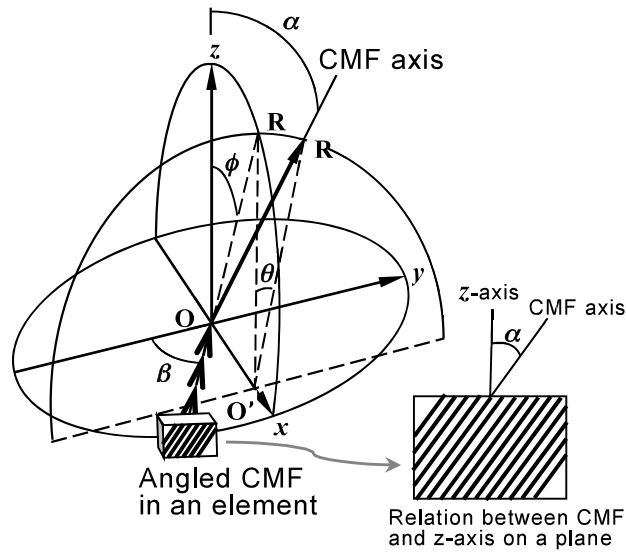


Fig.3-5 Schematic of coordinates transformation on x - z and y - z planes

Table 3-3 Relation of CMF and location angles α , β with coordinate transformation angles ϕ , θ

		Element No.				
	1					18
	2	3, 5, 9, 10	4, 8, 11, 12	13, 14, 17, 21	15, 16, 20, 22	19
	6					23
	7					24
ϕ	α	$\tan^{-1}(\tan(-\alpha) \cdot \cos(-\beta))$	$\tan^{-1}(\tan \alpha \cdot \cos \beta)$	$\tan^{-1}(\tan \alpha \cdot \cos(\pi + \beta))$	$\tan^{-1}(\tan(-\alpha) \cdot \cos(\pi - \beta))$	$-\alpha$
θ	0	$\cos^{-1}(\cos(-\alpha)/\cos \phi)$	$\cos^{-1}(-\cos \alpha/\cos \phi)$	$\cos^{-1}(-\cos \alpha/\cos \phi)$	$\cos^{-1}(\cos(-\alpha)/\cos \phi)$	0

α と β を適宜与えることにより ϕ が算出でき、これを用いて θ を見積もることができる。各値は第1象限から第4象限にかけて異なった換算式になるものの、これを各要素の座標に応じて配置することにより、らせん構造の空間的表現が可能となる。本研究ではCMFのらせん構造をZ-helixと仮定して計算を実施した。使用した材料定数を以下に示す。

$$E_1=E_2=10.0\text{GPa}, E_3=30.0\text{GPa}, G_{12}=G_{23}=G_{31}=7.0\text{GPa},$$

$$\nu_{31}=\nu_{32}=0.2, \nu_{12}=0.3$$

E_3 は文献¹³⁾で得られた実験結果を参考にして決定した。 E_1, E_2 は文献¹⁴⁾¹⁵⁾¹⁶⁾から E_3 のおおよそ1/3程度であったことから10.0GPaとした。せん断弾性係数は E_1, E_2 の0.5~0.8倍程度の値を取ることが多く、本研究では簡単のため、すべて0.7倍の値として統一した。ポアソン比についてはセルロース等の軸方向のポアソン比が0.2程度であるため、 ν_{31} を0.2とした¹⁷⁾。また、 ν_{12} については著者らが調べた範囲内において出典が見当た

らず、便宜上 0.3 とおいた。境界条件として、要素底面の節点の z 軸方向を固定条件とし、上面の各節点に対して z 方向に強制変位 0.002mm（ひずみ 1.0%に相当）を与えた。また、底面のルーメンに当たる節点についても x および y 方向に対して固定し、上面節点の x および y 方向はすべてフリーとした。なお、本研究で用いた有限要素コードは著者らで作成したものである。

3-4-2 解析結果

Fig.3-6 に 1 セルモデルで得られた上面節点の変位ベクトルを示す。この図は文献¹⁸⁾を参考に $\alpha=10^\circ$ で設定した結果であり、すべての節点は時計回りに回転することが確認できる。このとき、回転角度は 4.89° であり、ヤング率 28.6GPa が得られた。ところで、一般に直交異方性材料の非主軸方向における弾性定数は以下のように与えられる¹⁵⁾。

$$E(\alpha) = \left\{ \frac{\cos^4 \alpha}{E_1} + \left(\frac{1}{G_{12}} - \frac{2\nu_{12}}{E_1} \right) \cos^2 \alpha \cdot \sin^2 \alpha + \frac{\sin^4 \alpha}{E_2} \right\}^{-1} \quad \dots(4)$$

ここで、 α は非主軸角であり、本研究の CMF 角に相当する。同じ弾性定数を用い、 $\alpha=10^\circ$ を式(4)に代入すると、28.5GPa が得られた。1 セルモデルから得られる値とさほど変わらないものの、式(4)による弾性定数は 0.1GPa ほど低くなる。マルチセル構造をシミュレートするために、Fig.3-7 に示すように、有限要素分割を 7 セルモデルに拡張した。その結果、Fig.3-8 に示すように、1 セルモデルと同様に時計回りに回転することが確認できた。回転角度は 0.95° であり、回転はするものの、1 セルモデルより規模が小さくなる。これは、セルとセルが接している要素間では、上述のように CMF 角がクロスして配置されており、回転が生じにくくなったことが原因と考えられる。得られたヤング率は 29.1GPa であり、1 セルモデルより大きな値を示した。CMF 角の変化にともなうヤング率の推移を Fig.3-9 に示す。比較のため、2 セルモデルの場合も結果に加えた。これから、ヤング率は直交異方性材料の弾性定数よりもすべて大きく、特に CMF 角が 10° を過ぎた辺りからその傾向が顕著になる。また、セル数が多くなるにつれて、同様に高いヤング率を示すようになり、繊維の回転を小さくするようなマルチセル構造は、ヤング率を増加させる効果を有する。CMF 角が増加してもヤング率の低下が少ないことから、マルチセル繊維はシングルセル繊維より構造に鈍感な材料であると推測される。またこのことが、RI-試験片のヤング率が NRI-試験片に比べてさほど変わらない原因の一つであると考えられる。回転現象が機構 1 に起因する場合には、今回の RI-試験片の回転角度の程度は計算のレベルとさほど大きく変わらないと予想される。よって、機構 2 との関連を

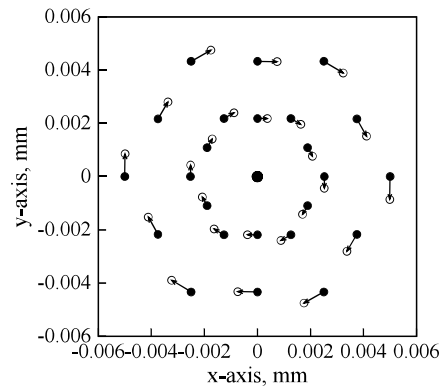


Fig.3-6 Nodal-points (●) before and (○) after calculation displacement vectors of one-cell model at $\alpha=10^\circ$ (Top view).

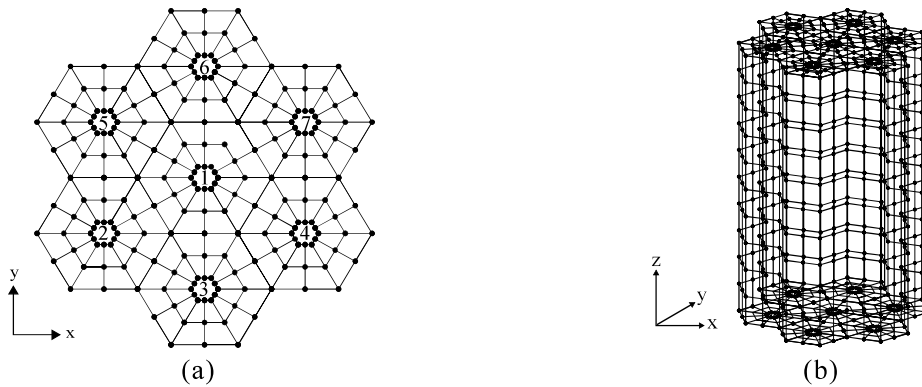


Fig.3-7 FEM mesh of seven elementary cell. (a) Cross-sectional FE mesh, (b) 3D-FE mesh.

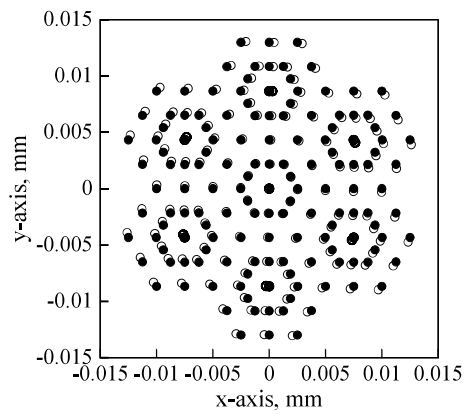


Fig.3-8 Nodal-points position (●) before and (○) after calculation of seven-cell model at $\alpha=10^\circ$ (Top view)

明らかにすることが、回転角度の定量的な把握につながると言える。そのため、繊維自体のねじれ構造を簡易的に表現するために、本研究ではさらに、機構2で述べたセルのらせん構造を取り入れたマルチセルモデルを作成した。すなわち、FEモデルの平面を座標回転させ同様に各要素を積み上げた。このとき、繊維内部の配向角である θ 、 ϕ にモデルの傾きを考慮するためにモデルのz軸周りの回転角を求め θ 、 ϕ に足しあわせることにした。モデルを平面回転させた場合のz-y平面の回転角 η とz-x平面の回転角 ζ は中心のセルを除く6つのセルそれぞれの各層における重心座標に応じて各象限ごとに求めた。Table 3-4に各象限と η 、 ζ の関係を示す。ここで、 x_c 、 y_c はそれぞれ各セルのx、y軸の重心座標であり、 z_h は各セルの高さである。Fig.3-10にS-helix および Z-helix に回転させたモデルを示す。Fig.3-11にその解析結果を示す。計算ではセルのらせん角を $-5^\circ \sim 15^\circ$ の小規模な範囲に留め、CMF角 α は 0° または 10° とした（らせん角は時計回りを正とする）。図中、○および□印は $\alpha=10^\circ$ の結果を示す。これから、回転角はセルのらせん角の増加とともに減少することがわかる。その度合いは、例えば $7^\circ \pm 2^\circ$ 辺りでは回転角度

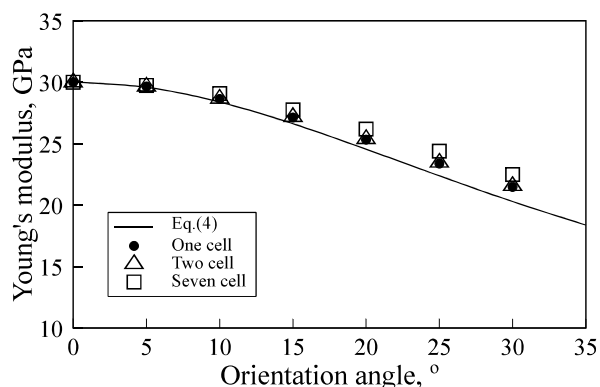


Fig.3-9 Young's moduli of one-, two- and seven-cells obtained in the present FE model.

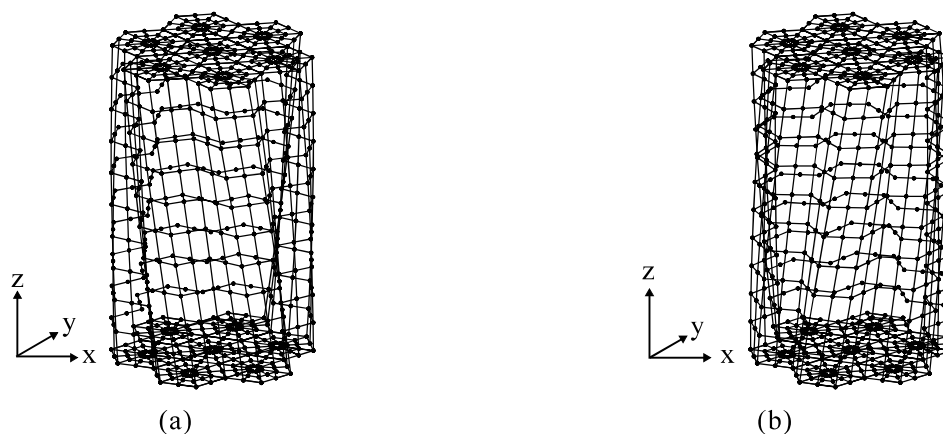


Fig.3-10 3D-FE mesh with helical cells. (a) Clockwise torsion, (b) Anticlockwise torsion.

Table 3-4 Relation of CMF and rotation angles η and ζ .

	First quadrant	Second quadrant	Third quadrant	Fourth quadrant
η	$-\tan^{-1}\left(\frac{x_{c+1}-x_c}{z_h}\right)$	$\tan^{-1}\left(\frac{x_{c+1}-x_c}{z_h}\right)$	$-\tan^{-1}\left(\frac{x_{c+1}-x_c}{z_h}\right)$	$\tan^{-1}\left(\frac{x_{c+1}-x_c}{z_h}\right)$
ζ	$\pi - \tan^{-1}\left(\frac{y_{c+1}-y_c}{z_h}\right)$	$\pi - \tan^{-1}\left(\frac{y_{c+1}-y_c}{z_h}\right)$	$\tan^{-1}\left(\frac{y_{c+1}-y_c}{z_h}\right)$	$\tan^{-1}\left(\frac{y_{c+1}-y_c}{z_h}\right)$

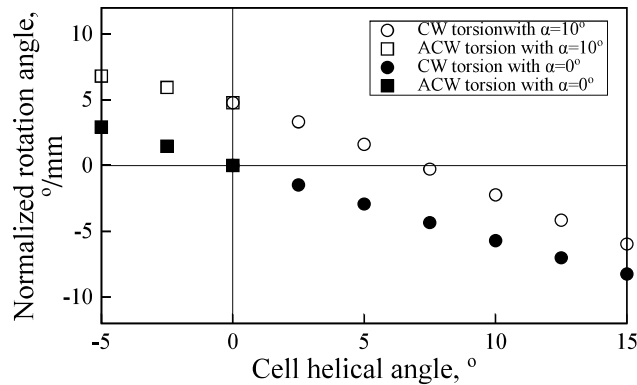


Fig.3-11 Effect of cell helical angle on rotation angle during tensile loading by 3D-FE analysis. (CW: Clockwise, ACW: Anticlockwise)

が $\pm 2^\circ/\text{mm}$ 程度となり，回転の大きさとしては極めて小さい範囲にあると考えられる．一方，●および■印は $\alpha = 0^\circ$ の場合の結果である．この場合もセルらせん角の増加とともに減少する．すなわち，セルのらせん構造のみでも回転の発生を確認することができた．この結果は，マルチセル繊維の回転機構が CMF のらせん構造だけではないことを示唆するものである．以上の計算結果を実際の現象に照らし合わせ，以下にマルチセル繊維の回転機構を総括する．NRI-試験片は，CMF のらせん構造とセルの絡み合い構造において力学的均衡が保たれ，CMF による回転をセルの逆向き回転で抑制していると推測される．また，この回転を阻止する構造発現性は，植物が自然環境の中で外的要因に抵抗するために必然的に培われたものであると思われる．一方，セルの絡み合いは統計的に時計方向または反時計方向に規模の大きい場合も幾らか存在し，CMF のらせん構造と力学的均衡が保てなくなった場合，RI-試験片のようにどちらかの回転として発現されたのではないかと推測される．そして，均衡の保てないようなセルの絡み合い構造は，強度に影響する構造欠陥としても作用し，そのことが RI-試験片の引張強度を低下させた原因の一つと考えられる．

3-5 結言

代表的なマルチセル繊維であるケナフを取り上げ、引張負荷による繊維軸周りの回転現象について調査した。また、回転角と機械的性質との関係について明らかにするとともに、有限要素法により、マルチセル繊維の回転機構について考察を行なった。得られた結論は以下のように要約される。

- 1) ケナフ繊維が引張負荷によって繊維軸周りに回転することを確認した。ただし、すべての繊維で回転が起こるとは限らず、試験数全体の約4分の1程度の割合であった。また、その回転方向は時計回りまたは反時計回りのどちらかであった。
- 2) 回転の確認された繊維は、回転の確認できなかった繊維の引張強度と比較し、若干低いことが認められた。一方、ヤング率については両者ともほぼ同程度の値を示した。
- 3) CMFのらせん構造をZ-helixと仮定し、シングルセル繊維およびマルチセル繊維の有限要素解析を行なったところ、ともに時計回りの回転が確認できた。ただし、後者の回転の度合いは前者におけるより小さい。
- 4) さらに、マルチセルの絡み合い構造を時計回りまたは反時計回りの微小ならせん構造と仮定し、同様な有限要素解析を実施したところ、時計回りのらせん構造において回転が生じないセルのらせん角の存在を確認した。
- 5) 以上から、ケナフ繊維の引張負荷時に観察される回転は、CMFのらせん構造とマルチセルの絡み合い構造の力学的均衡が保たれない場合に生じる現象であると推測される。

第 3 章 参考文献

- 1) E. Markland and J. Varna, "Micromechanical modeling of wood fibre composites", *Plastics, Rubber and Composites*, Vol.38, pp.118-123 (2009).
- 2) V. Placet, F. Trivaudey, O. Cisse, V. Gucheret-Retel, M. Lamine Boubakar, "Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect?", *Composites: Part A*, Vol.43, pp. 275-287 (2012).
- 3) L. Salmén, A. Ruvo, "A MODEL FOR THE PREDICTION OF FIBER ELASTICITY", *Journal of Wood and Fiber Science*, Vol.17(3), pp.336-350 (1985).
- 4) Kh. M .Mannan and Z. Robbany., "Rotation of a natural cellulosic fibre about its fibre axis due to absorption of moisture", *Polymer*, Vol.37(20), pp.4639-4641 (1996).
- 5) H.M. Akil, M.F. Omar, A.A.M. Mazuki, S. Safiee, Z.A.M. Ishak, A. Abu Bakar, "Kenaf fiber reinforced composites: A review", *Materials and Design*, Vol.32, pp.4107-4121 (2011).
- 6) N. Reddy, Y. Yang, "Preparation and Characterization of Long Natural Cellulose Fibers from Wheat Straw", *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, Vol.55, pp.8570-8575 (2007).
- 7) K. Inoue, S. Serizawa, M. Yamashiro, M. Iji. Highly functional bioplastics (PAL compounds) used for electronic products. In: *Proceedings of Tokyo*, January, 2007. pp.73-76.
- 8) T. Oda and M. Yamato. Application of Bioplastics for Automobile and Harmony with Environment. In: *Proceeding of Detroit*, March, 2004.
- 9) M. Kawai and H. Abe, *Reports Res. Lab. Asahi Glass Co., Ltd.*, Vol.30, pp111-120 (1980).
- 10) K. Suzuki, I. Kimpara, H. Saito, K. Funami, "Cross-Sectional Area Measurement and Monofilament Strength Test of Kenaf Bast Fibers", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.54. pp.887-894 (2005)
- 11) C. Sellén and P. Isaksson, "A mechanical model for dimensional instability in moisture-sensitive fiber networks", *Journal of Composite Materials*, Vol.0(0), pp.1-13 (2012).
- 12) T. Komori, "A Generalized Micromechanics of Continuous-Filament Yarns Part I: Underlying Formation", *Textile Research Journal*, Vol.71 (10), pp.898-904 (2004).
- 13) Y. Nitta, K. Goda, J. Noda, and W.-I., Lee, "Cross-sectional area evaluation and tensile properties of alkali-treated kenaf fibres", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol.49, pp. 132-138 (2013).
- 14) A. Beakou and K. Charlet, "Mechanical properties of interfaces within a flax bundle, Part II: Numerical analysis", *International Journal of Adhesion & Adhesives*, Vol.43, pp. 54-59 (2013).
- 15) C. Baley , "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase", *Composites: Part A*, Vol.33, pp. 939-948 (2002).
- 16) P. Xu and H. Liu, "Models of microfibril elastic modulus parallel to the cell axis", *Wood Science and Technology*, Vol.38, pp.363-374 (2004).
- 17) L. Salmén, A. Ruvo, "A MODEL FOR THE PREDICTION OF FIBER ELASTICITY", *Journal of Wood and Fiber Science*, Vol.17(3), pp.336-350 (1985).
- 18) N. Reddy, Y. Yang, "Preparation and Characterization of Long Natural Cellulose Fibers from Wheat Straw", *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, Vol.55, pp.8570-8575 (2007).

4. マルチセル構造を有する天然繊維のアルカリ処理による特性発現性の解明

4-1 はじめに

一般に、繊維強化複合材料の製造の前段階において繊維と樹脂の界面結合を高めるために、人工繊維、天然繊維に係らず、繊維への表面処理や樹脂への相溶化剤添加が行われる。第1章でも述べたように、アルカリ処理は天然繊維に対して界面結合を高める有力な手法の一つであるが、この水溶液濃度が高まると、天然繊維そのものの構造が変化するだけでなく力学的性質も付随して変化することが知られている。力学的性質の変化が、元々の天然繊維にみられない力学的性質の改善につながるものであれば、天然繊維の新たな特性発現性を見出したことになる。

このような特性発現性は、これまでラミー繊維を対象に解明されており、マーセル化によって破断ひずみが未処理繊維の2~3倍に改善されることが報告されている¹⁾。また、マーセル化処理繊維を用いたグリーンコンポジットは、衝撃吸収エネルギーも大きく向上することが確認されている²⁾。しかし、ラミー繊維はシングルセル型繊維であり、マルチセル型天然繊維に対してマーセル化効果が同様に発現されるかどうかは議論の余地がある。マルチセル型天然繊維は、アルカリ処理によってセル間のリグニンが除去されて空隙が生成するとともに膨潤により断面形状も大きく変化するからである。

本章では、これまでと同様に代表的マルチセル型天然繊維であるケナフを対象に、その力学的性質に及ぼす高濃度アルカリ処理効果の解明を目指し、処理繊維の力学的挙動および強度特性について検討するとともに、処理による繊維断面形状の変化を考慮した新たな断面積評価手法を構築した。

4-2 実験方法

4-2-1 アルカリ処理

第2章および第3章で述べた同様のケナフ繊維を用い、これに高濃度アルカリ処理を施した。処理方法は、まず、常温の水酸化ナトリウム水溶液の中に繊維束を浸透させ、処理後、アルカリ処理を止めるため、繊維束を若干の酢酸を含む水中で中和洗浄し、真空乾燥機【アズワン株式会社, avo-250】を用いて60°Cで24時間乾燥させた。Table 2-1に処理条件を示す。UTとは未処理繊維、A(*1)-(*2)は*1が処理濃度、*2は処理時間を

表す。例えば A10-2 は処理濃度 10wt%，処理時間 2hr を示す。処理した繊維を Fig.4-1 に示す単繊維引張試験用台紙に貼りつけ、試験片とした。試験片のゲージ長さは 25 mm とした。また、引張試験は 3-1 で記述した同条件で実験を行った。

Table 4-1 Alkali-treatment condition of kenaf fibers.

Fiber Type	Concentration of NaOH [wt%]	Treating time [hr]
UT	-	-
A10-2	10	2
A15-1	15	1
A15-2	15	2
A15-4	15	4
A15-6	15	6

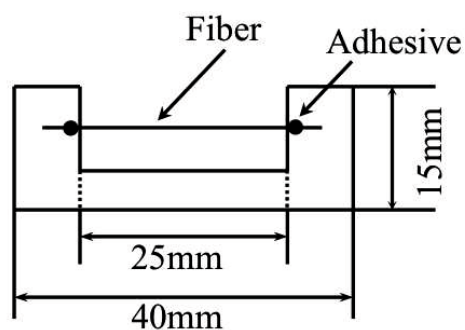


Fig.4-1 Single fiber specimen.

4-3 実験結果

4-3-1 引張試験結果

ケナフ繊維の単繊維引張試験結果を Table 4-2 に示す。また、各条件での代表的な応力-ひずみ線図を Fig.4-4 に示す。Table 4-2, Fig.4-4 より、A10 と A15 繊維の引張強度は UT 繊維に比べて低下していることがわかる。また、A15 繊維は 82.2%，63.7%，61.9%，48.4%と処理時間が長くなるほど引張強度が低下していることがわかる。このことから、マーセル化した際の引張強度の低下を抑えるには処理時間を短くする必要がある。ヤン

Table 4-2 Tensile properties of untreated and alkali treated kenaf fibers.

Fiber type	Number of sample	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Fracture strain [%]
UT	10	320	29.5	1.28
A10-2	10	235	7.77	2.64
A15-1	10	263	6.67	6.14
A15-2	10	204	5.12	4.94
A15-4	10	198	5.21	3.57
A15-6	10	155	2.01	5.15

グ率においては UT 繊維に比べ 25.2~6.5%まで低下している。これは Table 1-1 のラミー繊維の弾性率の低下と比較しても低下が大きいことがわかる。マーセル化されたケナフ繊維は少なくとも UT 繊維のヤング率の 21.7%まで低下している。一方、破断ひずみはラミー繊維のようなシングルセル型の天然繊維と同じく増加している。特に A15-1 繊維はすべての試験片で最大の値を示しており、UT 繊維に比べ 380%増加している。また、処理時間を長くしても 2hr 以降はあまり変化していない。これらのことから、NaOH 濃度を高くすると、破断ひずみは増加し、引張強度が低下する。また、NaOH 濃度が高くても処理時間を短くすることで引張強度の低下を抑えることができることがわかる。さらに、応力-ひずみ線図から算出される面積は破壊エネルギーの目安とされていることから、Fig.4-4 の応力-ひずみ線図より UT 繊維、A15-1 繊維の面積を求め、破壊エネルギーに換算した。Table 4-2 に計算結果を示す。この結果から、マーセル化することによって靱性も改善されることがわかる。Fig.4-4 より、A15-4、A15-6 繊維は他のアルカリ処理繊維に比べ応力-ひずみ線図の立上りがなだらかになっており、その後、急激に立ち上がっている。これは、長時間アルカリ処理を施すことによって、セルを接合しているセル間のリグニンが除去され繊維内のセルの接合が弱くなり、引張りの初期では荷重の掛りがあまく、徐々に繊維が伸びることでセル間のたわみがなくなって線形的な挙動を示し、最終的に繊維束型の破壊が起こったものと考えられる。そのため、単繊維試験片の破断面の SEM 観察を行い、実際にどのような破断をしているかを観察した。Fig.4-5(a)に UT および Fig.4-5(b)に A15-6 繊維の破断面の SEM 画像を示す。Fig.4-5(a)から、未処理繊維の破断面からはセルの引抜けを示す箒状破面は確認できない。A15-6 繊維はアルカリ処

理することで繊維間のリグニンが除去され繊維束のようになっていることが見て取れる。さらに、Fig.4-6の模式図に示すように天然繊維がマーセル化された際、セル内に含まれるヘミセルロースが除去される³⁾。ヘミセルロースが除去されるとマイクロフィブリル間の拘束が弱くなり、すべりが生じる。そのため、繊維に塑性変形が生じひずみが増加したと考えられる。

Table 4-3 Fracture energy of untreated and alkali treated kenaf fibers

Fiber type	UT	A15-1
Fracture energy [J]	0.206×10^{-3}	3.02×10^{-3}

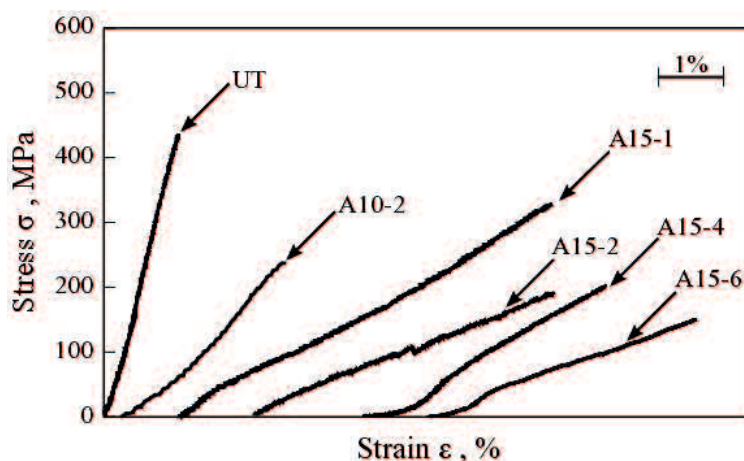
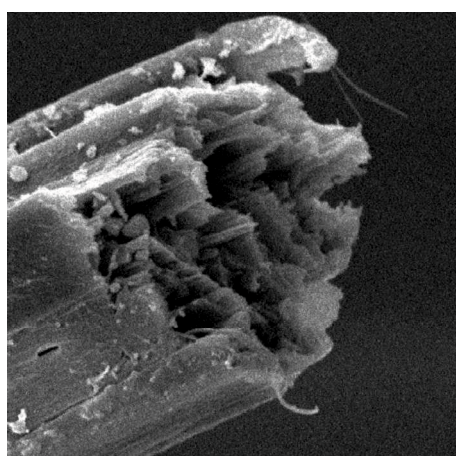
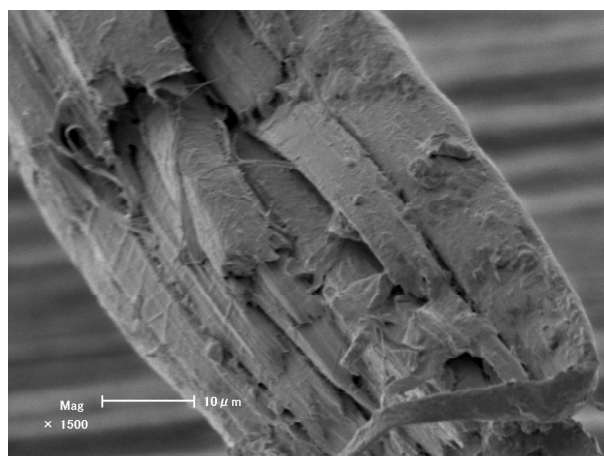


Fig.4-4 Tensile properties of untreated and alkali-treated kenaf fibers.



(a)



(b)

Fig.4-5 SEM micrograph of fracture surface. (a): untreated fiber, (b): treated fiber.

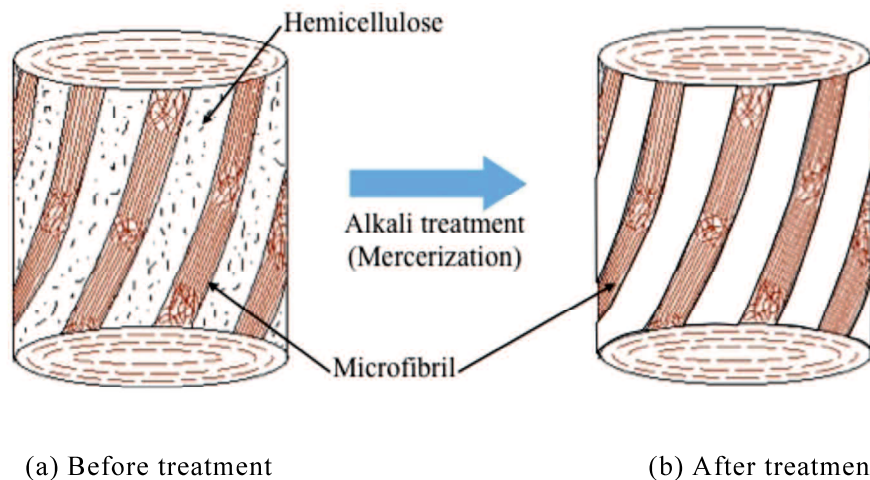


Fig.4-6 Schematic of structural change in the fiber by high concentration alkali treatment.

4-3-2 繊維の力学的挙動に関する考察

天然繊維の応力-ひずみ線図は非線形的な挙動を示す。Placeら⁴⁾は応力-ひずみ線図は非線形的な挙動はセルロースの損傷およびそれに伴うCMFの再配向によるものではないかと考察している。Charletら⁵⁾は天然繊維の破壊挙動を天然繊維の微小構造の変形機構に基づいて天然繊維(フラックス)の応力-ひずみ線図を3つのステージに分類している。Fig.4-7に典型的な天然繊維の応力-ひずみ線図を示す。最初の線形部をStage 1とし、それぞれの細胞壁の変形により現れており、非線形部な部分であるStage 2は細胞壁の非晶質部分が粘弾塑性変形することで現れていると考えられている。また、最後の直線部Stage 3においては引張ることにより配向が整えられたマイクロフィブリルの弾性変形部だと考えられる。しかし、高濃度で長時間アルカリ処理を施したケナフ繊維の応力-ひずみ線図は立上りが非線形的な挙動を示す。そこで、Fig4-8に示すように、応力-ひずみ線図のなだらかな立上り部をStage 0、急激に立ち上がっている部分をStage 1、その後の伸びをStage 2+3とし、各Stageのひずみ量を破断ひずみで割ることで定量化し繊維の破壊挙動を考察した。Fig.4-9に計算結果を示す。UT, A10-2繊維はほぼStage 2+3であり応力ひずみ線図が線形的に伸び、破壊に至ることが分かる。また、濃度15wt%のものでは1, 2hrのものからStage 2が増加し、4, 5hrよりStage 0の増加が見られる。このことからStage 1の繊維の結晶構造がセルロースIからセルロースIIへ変化し、繊維の弾性変形量が増加することにより現れると考えられ、Stage 0はアルカリ処理による繊維の収縮(縮れ)を伸ばすことにより現れると考えられる。

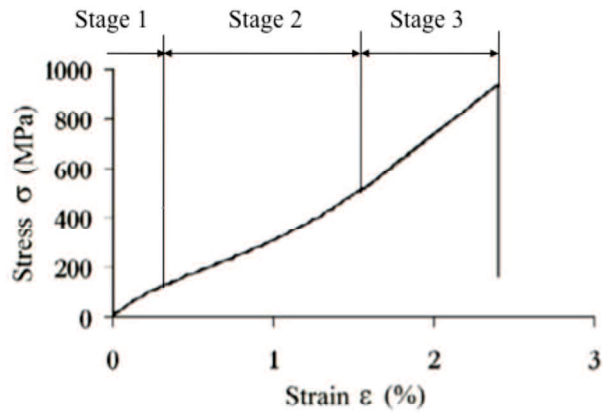


Fig.4-7 Example of a stress-strain curve of an elementary flax fiber³⁾

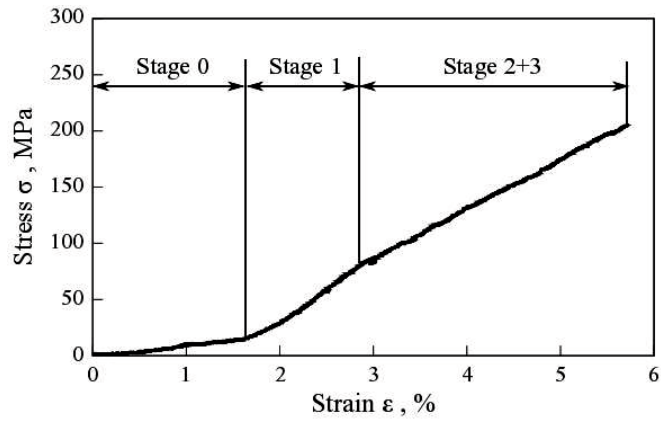


Fig.4-8 Example of a stress-strain curve of A15-4 fiber.

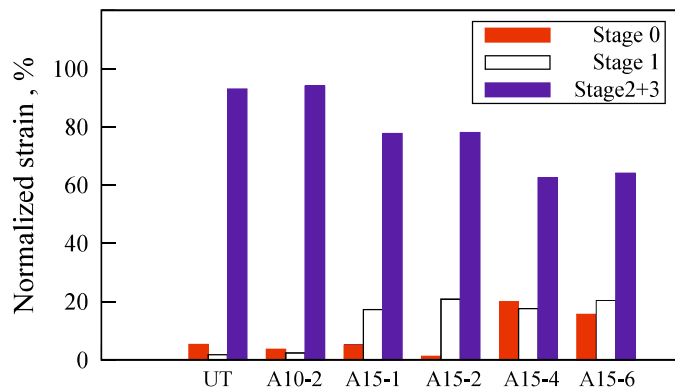


Fig.4-9 Normalized strain at each stage.

4-4 アルカリ処理繊維の結晶構造評価

天然繊維の高濃度アルカリ処理はマーセル化とも呼ばれ、セルロース I はセルロース II へ結晶構造が変態する²⁾。マーセル化されたシングルセルタイプの天然繊維は強度と剛性が低下するが、それは結晶化度の減少とセルロース II が生じたためである。しかし、繊維のマイクロフィブリルを拘束しているヘミセルロースが部分的に除去されたことで靱性が向上している²⁾。さらに、マーセル化されたケナフ繊維は細胞の分離を引き起こした。そのため、アルカリ処理されたケナフ繊維の繊維構造を調査するために X 線回折調査を行なった。X 線回折調査には X 線回折装置【理学電気(株), RINT-2500HF】を使用した。測定は CuK α 線(40kV, 200mA)を用い、走査範囲 $2\theta = 5^\circ \sim 35^\circ$ で行なった。Fig.4-10 に未処理および各条件でアルカリ処理を施したケナフ繊維の X 線回折図を示す。Fig.4-10 より、UT 繊維の回折ピークは回折角度 $2\theta = 16.5^\circ, 22.5^\circ$ にあり、A5, A10 繊維は同じ回折角でピークを示している⁶⁾⁷⁾。A15 繊維はセルロース II のピーク角度である、約 $12.1^\circ, 21.8^\circ$ に変化し始めている。しかし、セルロース I のピーク角度である $2\theta = 16.5^\circ$ に未だピークが存在している。ラミー繊維が完全にマーセル化される処理条件⁷⁾でアルカリ処理を行ったものの、繊維は完全にマーセル化していないことを示す。このような変化はシングルセルタイプの天然繊維では見られないことから、マルチセル型の天然繊維であるケナフ繊維は部分的にマーセル化するが、完全にはマーセル化していないことがわかる。

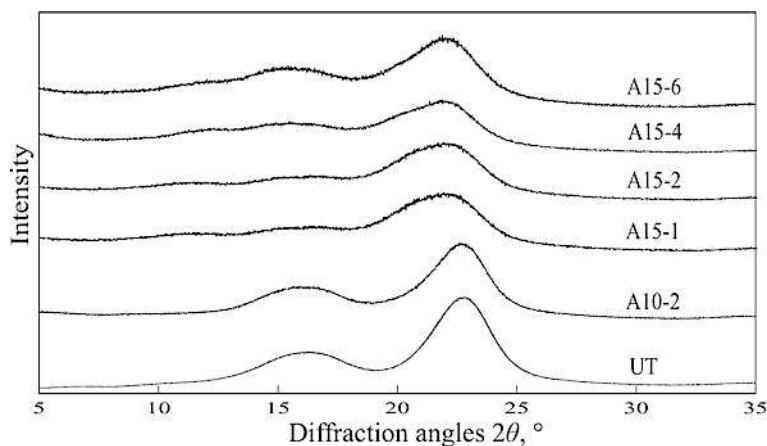


Fig.4-10 X-ray diffraction diagrams of untreated and alkali-treated kenaf fibers.

4-4-1 結晶化度

アルカリ処理を施したケナフ繊維の結晶がどの程度かを調べるため、Fig.4-10 の回折強度からピーク法により結晶化度を式 (1) で求めた⁸⁾。

$$CrI(\%) = \frac{I_{002} - I_{am}}{I_{002}} \times 100 \quad \dots(1)$$

ここで、 I_{002} は結晶、非結晶要素の回折強度 ($2\theta=22, 23^\circ$)、 I_{am} は非結晶要素の回折強度 ($2\theta=18, 19^\circ$) である¹⁰⁾。Fig.4-11 にアルカリ処理を施したケナフ繊維の結晶化度を示す。A5、A10 繊維の結晶化度は UT 繊維の結晶化度と比べほとんど変化していないことがわかる。一方、A15 繊維の結晶化度は UT 繊維に比べ 25%程度減少している。ラミ―繊維の結晶化度はアルカリ処理を施すことで 70-80%の値から 50%程度まで減少することが知られている²⁾。よって、繊維の部分的なマーセル化はシングルセル繊維の引張強度とマルチセル型の天然繊維の剛性の低下を引き起こすと考えられる。さらに、結晶化度の低下は非結晶部の増加を意味するので、引張強度も大きく低下したと考えられる。以上のように、ケナフ繊維のヤング率はマーセル化によって著しく低下する。したがって、セル間に樹脂を浸透させることがアルカリ処理を施したケナフ長繊維のグリーンコンポジットを作製する上で重要な課題となる。なお、濃度 15 wt%で処理した繊維は処理時間を変更しても結晶化度が変わっていないことから、結晶化度は処理時間よりも処理濃度に左右されることが分かる。

4-4-2 結晶構造転移率

アルカリ処理を施したケナフ繊維の結晶構造がどの程度セルロース I からセルロース II へ転移しているかを調べるため式(2)より、結晶構造転移率を求めた⁸⁾

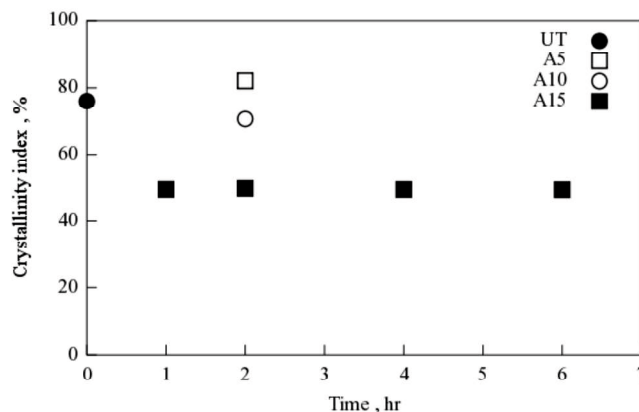


Fig.4-11 Effect of NaOH concentration on the crystallinity index of kanaf fibers.

$$\alpha_{tr} = \frac{I_{12.1}}{I_{12.1} + 0.5(I_{14.6} + I_{16.5})} \quad \dots(2)$$

Fig.3-9 に格繊維の結晶構造転移率を示す。UT 繊維に比べ 5 wt%の濃度では結晶構造が変化していないことがわかる。濃度 10 wt%から徐々に結晶転移が始まり、15wt%では約 45%まで増加するものの、前述のように、濃度 15 wt%ではケナフ繊維は完全にマーセル化するものではない。しかしながら、高濃度アルカリ処理を施した繊維は部分的でも結晶構造がセルロース I からセルロース II へと変化するので、結晶弾性率も 138GPa から 88GPa まで低下する¹¹⁾。さらに、結晶化度も低下するため引張強度、ヤング率が低下したと考えられる。

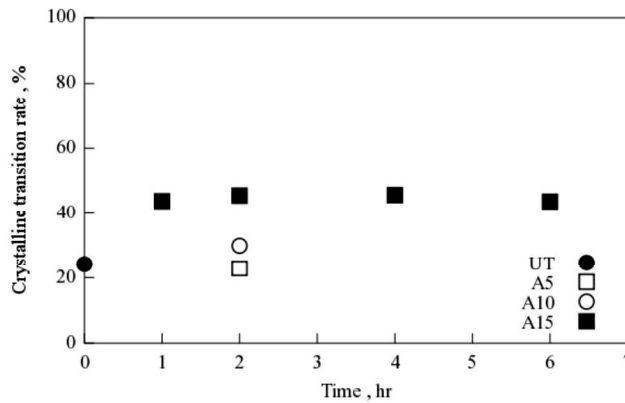


Fig.4-11 Effect of NaOH concentration on the crystalline transition rate of kenaf fibers.

4-5 アルカリ処理繊維の断面積評価

Fig.4-12 にアルカリ処理されたケナフ繊維の断面写真を示す。マーセル化されたケナフ繊維の断面は Fig.2-1 と比較してもセルの形状が大きく変わっていることがわかる。また、アルカリ処理によりリグニンが除去されセル間に多くの空孔が存在していることが見て取れる。そのため、アルカリ処理を施したケナフ繊維は断面積評価方法(DBA)を再検討する必要がある。そこで、第2章と同じ方ようにアルカリ処理されたケナフ繊維のDBAを新たに作成した。断面積の算出には 3D レーザ顕微鏡 (OLYMPUS, LEXT OLS400) によりアルカリ処理を施したケナフ繊維 159 本を撮影し、画像から実断面積と Fig.2-3(b)~(g)に示す各形状の近似断面積を算出し、実断面積に換算する近似式を得る。測定には A15-2 繊維を使用した。このアルカリ処理を施したケナフ繊維の DBA

(DBA-AT)と称す。

4-5-1 各断面仮定における断面積の比較

各形状における断面積の相対、累積度数を Fig.4-13(a)～(g)に示す。さらに、Table 4-4に実断面積と各形状の近似断面積を示す。近似断面積が実断面積より大きな値を示すことがわかる。これは、DBAと同じく定義した形状では繊維断面の外周をプロットした形状ではないのため、凹んだ部分を認識できないためである。また、変動係数を見ると実断面積、各近似形状ともばらつきが大きいことが見て取れる。どの近似仮定においても相対、累積度数ともにほとんど変わらないが、相対度数が若干右に歪んでいることから断面積を過大評価していることがわかる。

Table 4-4 Cross-sectional area and C.V. of alkali-treated kenaf fibers.

	Real	Circle	Ellipse	Hexagon	Octagon	Dodecagon	Icositetragon
Average [μm^2]	2067	2731	2640	2248	2444	2604	2762
C.V.	0.465	0.535	0.446	0.442	0.423	0.489	0.444

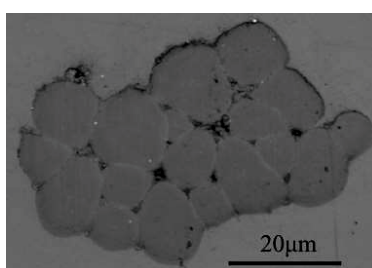


Fig.4-12 Laser micrograph of cross-section on alkali-treated kenaf fiber.

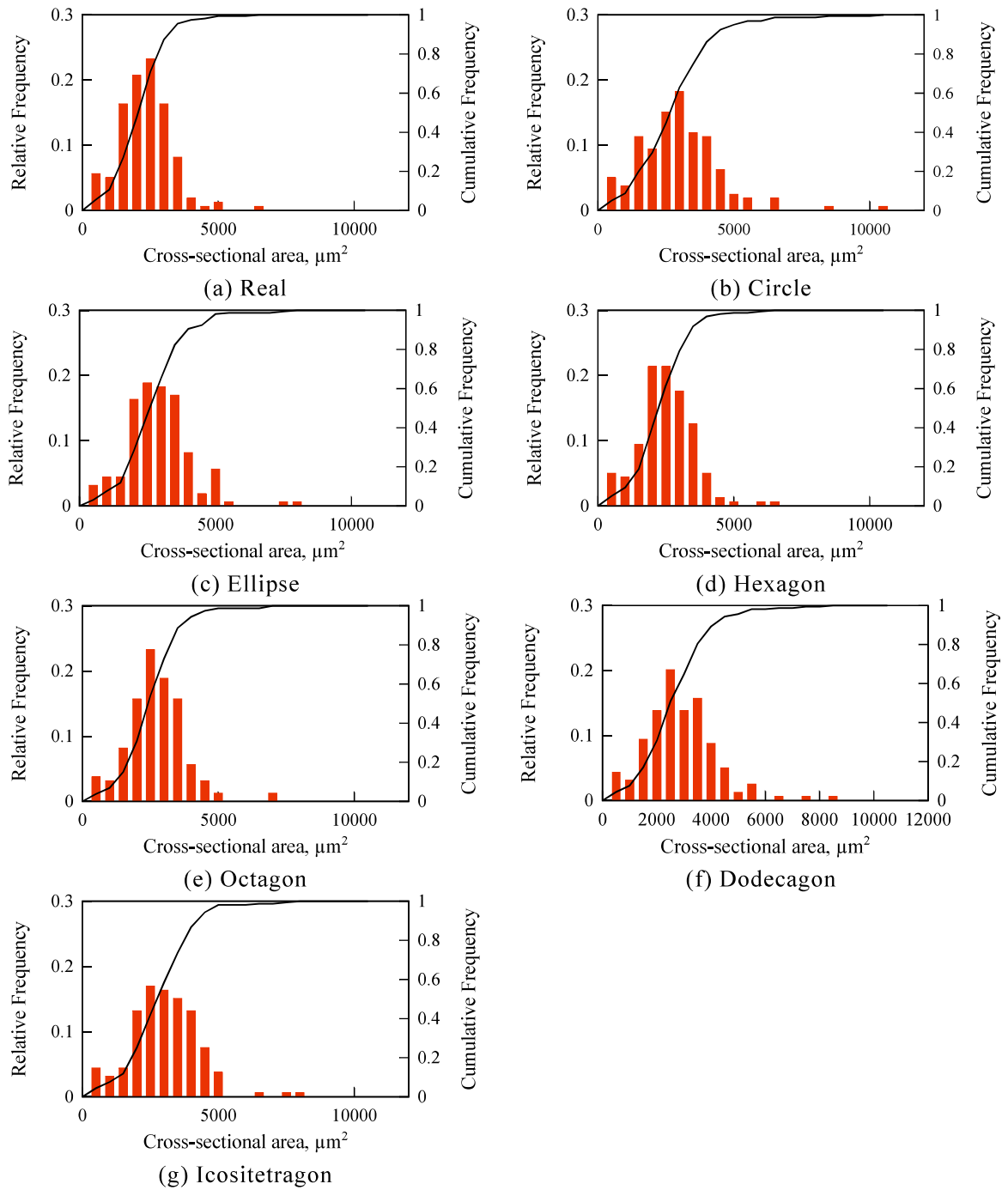


Fig.4-13 Relative and Cumulative frequency of cross-sectional area of kenaf fibers.

4-5-2 近似式の導出

実断面積と角形状で近似した近似断面積との関係を Fig.4-14(b)～(g)に示す。これらのグラフから、6 角形以上の近似形状では実断面積との相関が殆ど変わらないことがわかる。実断面積と各形状の近似断面積の相関係数を Table 4-5 に示す。これより、真円、楕円仮定では相関係数が 0.6～0.7 と低い数値となっている。また、6 角形以上の形状では相関係数が 0.9 以上と高い値を示しており、ほぼ飽和している。そのため、測定する投影幅が少ないため近似が容易でなおかつ相関係数が高い 6 角形仮定を使用しアルカリ処理を施したケナフ繊維の断面積を求めるものとした。6 角形の断面積を実断面積へ変換する近似式を Fig.4-14(d)の相関図から最小二乗法により導出した。その近似式を式(3)に示す。

$$S_{real} = 0.916S_{hex} + 57 \quad \dots(3)$$

この近似式により、仮定された形状における断面積を実断面積へと変換した。また、6 角形仮定以降の相関図では近似直線の切片が 0 に近い値から始まっているため、この方法で求められる断面積は最小値であると考えられる。

Table 4-5 Coefficient of correlation between actual and each assumed cross-sectional area.

	Circle	Ellipse	Hexagon	Octagon	Dodecagon	Icositetragon
Correlation	0.759	0.649	0.944	0.922	0.917	0.943

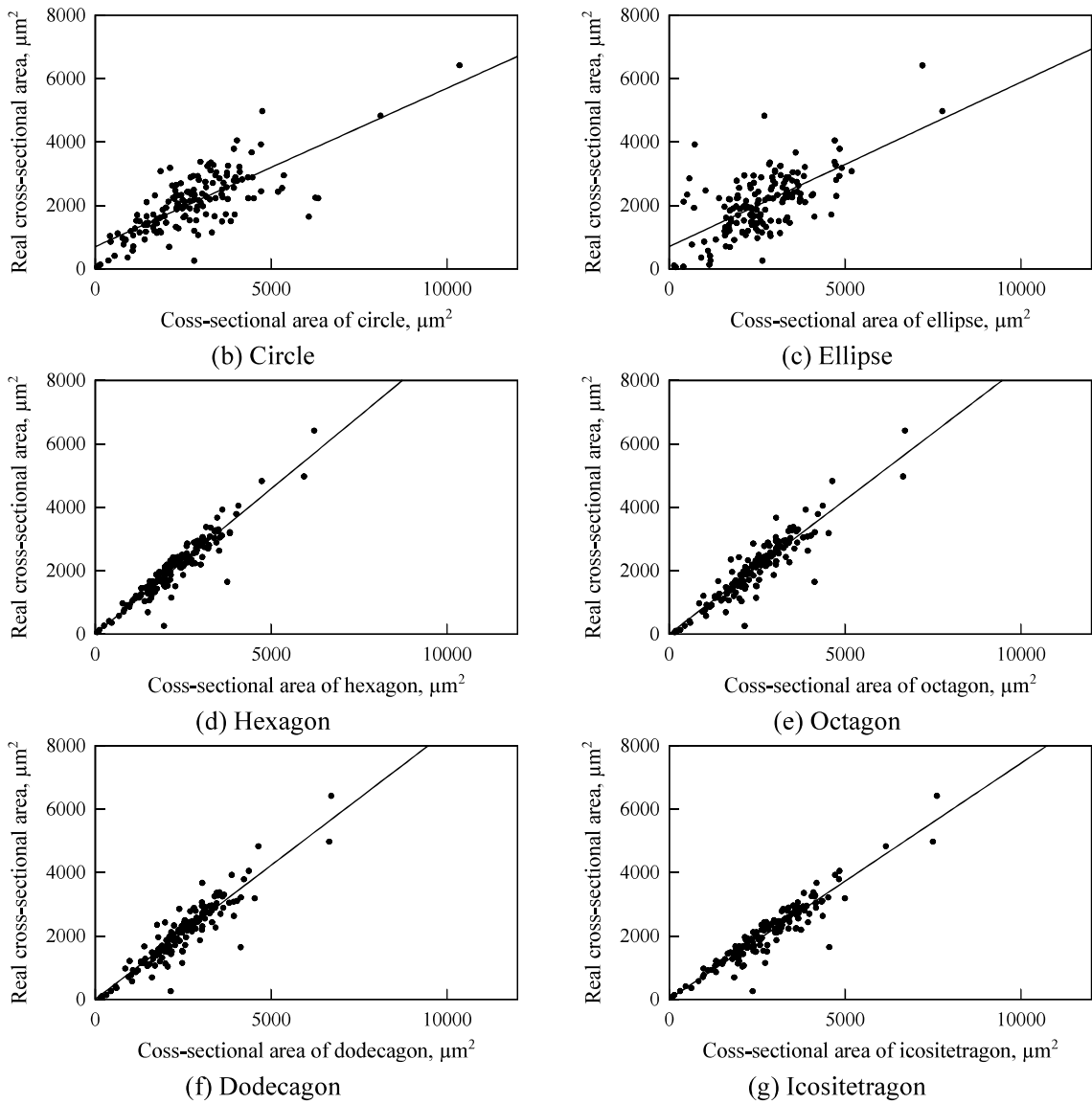


Fig.4-14 Relation between actual and each assumed cross-sectional areas of kenaf fibers.

4-5-3 引張試験結果の再評価

4-6-2 で求めた近似式を使用し DBA で評価していた断面積を再評価し，引張試験結果の比較を行なった．Table 4-6 に DBA，DBA-AT 双方で求めた断面積および引張特性を示す．断面積においては DBA-AT で処理した断面積は DBA で処理した断面積よりも約 17% 程度減少している．また，引張強度，ヤング率に関してはともに約 20% 程度増加している．しかし，アルカリ処理されたケナフ繊維はリグニンが除去されセル間に多くの空孔が存在していることから従来の画像処理方法では断面積を過大評価していると思われる．そのため，セル間の空孔を考慮するために繊維のセル一つ一つの楕円近似を行い，各セルの断面積を足し合わせたものを実断面積とすることとし実断面積の再評価を行った．

Table 4-6 Cross-sectional area and tensile properties corrected from DBA-AT.

Corrected from DBA			
Fiber type	Cross-sectional area [μm]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]
UT	3734	320	29.5
A10-2	3489	235	7.77
A15-1	2987	263	6.67
A15-2	2683	204	5.12
A15-4	2748	198	5.21
A15-6	3410	155	177
Corrected from DBA-AT			
A10-2	2448	262	8.69
A15-1	2468	342	8.65
A15-2	2502	215	5.29
A15-4	2167	276	7.37
A15-6	3004	177	2.41

4-5-4 実断面積の再評価

セルの楕円近似は Fig.4-15 に示すように繊維 1 本中の各セルの 0° ， 90° 方向の投影幅を画像解析から求め楕円近似によりセル一つの断面積を求めた．Table 3-5 にケナフ繊維の従来の方法である繊維を断面を黒く塗りつぶしたものとセルを楕円近似した際の断面積を示す．塗りつぶし際の断面積が楕円近似を行なったものよりも若干大きくなっている．また，相対，累積度数を Fig.3-13 に示す．これからも Fig4-16(b)は(a)に比べやや左に歪んでいることから楕円近似では断面積を過小評価していることがわかる．近似式は Fig.4-14 の相関図から求め， $S_{\text{ellipse}} = 0.868S_{\text{hex}} + 57$ であった．相関係数は 0.944 と高い相関があることがわかる．この近似式を使用し繊維強度の再評価を行い楕円近似で求めた

引張強度との比較を行った。評価対象として A15-2 繊維の強度を再評価した。Table3-6 にそれぞれの強度を示す。黒く塗りつぶした際の断面積はセルを楕円近似した断面積よりも約 4%程度大きくなっている。さらに、引張強度、ヤング率はそれぞれ 4, 6%程度減少していることがわかる。そのため、実際の引張強度、ヤング率はこの値の間にあると考えられる。

Table 4-7 Comparison of black-painted cross-sectional area with ellipse approximation.

	Black painted	Ellipse approximation
Cross-sectional area [μm^2]	2067	2099

Table 4-8 Tensile properties changes to differences in calculation method of cross sectional area.

Calculated method	Cross-sectional area [μm^2]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]
Black painted	2613	206	4.99
Ellipse approximation	2502	214	5.29

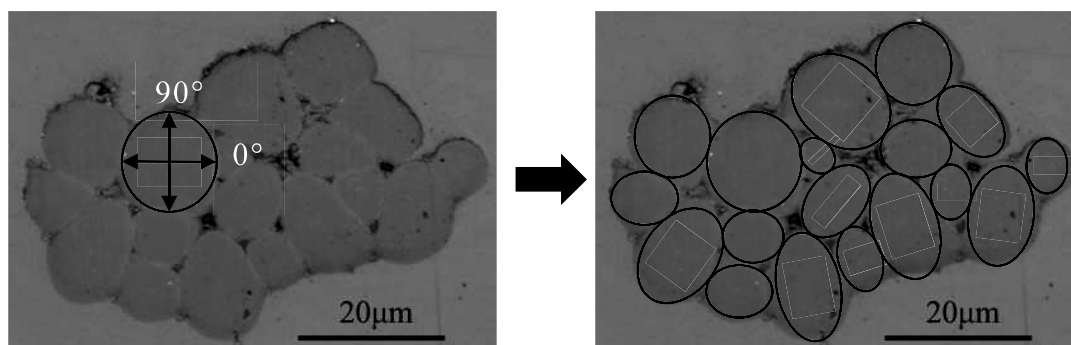


Fig.4-15 Measuring method of alkali-treated kenaf fiber.

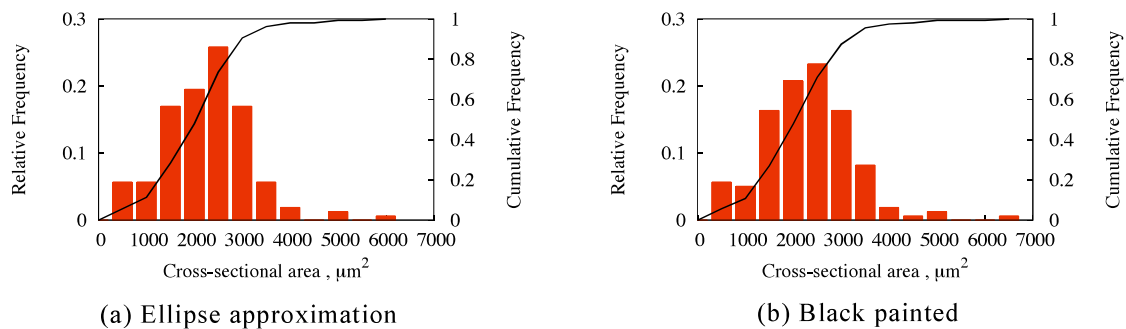


Fig.4-16 Relative and Cumulative frequency of cross-sectional area.

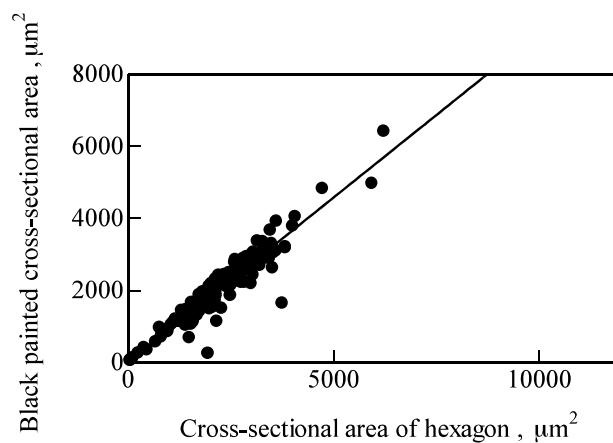


Fig.4-17 Relation between black paint and hexagon-assumed cross-sectional areas of kenaf fiber.

4-7 結 言

4 章では、マルチセル型の代表的な天然繊維であるケナフ繊維の引張特性に及ぼす高濃度アルカリ処理の影響を調査するため、アルカリ処理濃度、処理時間を変え、処理を施したケナフ繊維の引張試験を実施した。得られた結果を以下に要約する。

- 1) ケナフ繊維に高濃度アルカリ処理を施した際、処理溶液のアルカリ処理濃度が高いほど引張強さが低下し破断ひずみが増加する。また、アルカリ処理時間を短くすることで引張強度の低下を抑えることができる。さらに、長時間処理を行っても破断ひずみは増加しない。そのため、破断ひずみの増加は処理濃度が影響していると思

われる。

- 2) 破断ひずみの増加は高濃度アルカリ処理されマーセル化した際にセル内に含まれるヘミセルロースが除去され、マイクロフィブリル間の拘束が弱くなって相対的なすべりが生じ、繊維に塑性変形が現れたためだと考える。
- 3) アルカリ処理を施したケナフ繊維の破壊挙動を見出すために応力-ひずみ線図のなだらかな立上り部を Stage 0、急激に立ち上がっている部分を Stage 1、その後の伸びを Stage 2+3 と 3 つに分け各 Stage のひずみ量を破断ひずみで割ることで定量化し繊維の破壊挙動を考察した。その結果、Stage 0 は長時間アルカリ処理を施すことで繊維の収縮（縮れ）を伸ばすことで現れる。Stage 1 の急激な増加はリグニンの除去よりも繊維の結晶構造がセルロース I からセルロース II に変化した結果、繊維の弾性変形量が増加したためだと思われる。
- 4) X 線回折調査からアルカリ処理繊維は未処理繊維に比べ結晶化度が低下し、セルロースの構造が完全ではないがセルロース II へ変化していた。そのため、上記の変化やセルロース I から II への結晶変態などにより引張強度、ヤング率の低下が起こる。
- 5) ケナフ繊維に高濃度アルカリ処理を施すとセルの形状が多角形から楕円状に変化していた。そのため、アルカリ処理を施したケナフ繊維の DBA (DBA-AT: Data based approximation for alkali-treated fiber) を提案した。その結果、アルカリ処理を施したケナフ繊維の最適な近似仮定は 6 角形仮定であることがわかった。

第4章 参考文献

- 1) Goda K, Sreekala MS, Gomes A, Kaji T, Ohgi J. Improvement of plant based natural fibres for toughening green composites – effect of load application during mercerization of ramie fibres. *Compos A: Appl Sci Manuf* 2006;37:2213–20.
- 2) Haraguchi K, Suizu N, Uno T, Goda K, Noda J, Ohgi J. Effect of alkali treatment on the tensile and impact properties of ramie plied yarn-reinforced green composites. *J Soc Mater Sci* 2009;58:375–7.
- 3) 磯貝明, セルロースの科学, 朝倉書店(2003)
- 4) V. Placet, O. Cissé, M. L. Boubakar, “Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I. Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations”, *Composites: Part A*, Vol.56, pp319-327 (2014).
- 5) K. Charlet et al. , *Procedia Engineering* 1, (2009), pp233-236
- 6) Nishino T, Hirano K, Kotera M, Nakamae K, Inagaki H. Kenaf reinforced biodegradable composite. *Compos Sci Technol* 2003;63:1281–6.
- 7) Reddy N, Yang Y. Preparation and characterization of long natural cellulose fibers from wheat straw. *J Agric Food Chem* 2007;55:8570–5.
- 8) 原口慶樹, 水津直己, 宇野隆, 合田公一, 野田淳二, 大木順司, *材料*, Vol. 58 (2009), pp375-377
- 9) Tserki V, Zafeiropoulos NE, Simon F, Panayiotou C. A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres. *Compos A: Appl Sci Manuf* 2005;36(8):1110–8.
- 10) Roncero MB, Torres AL, Colom JF, Vidal T. The effect of xylanase on lignocellulosic components during the bleaching of wood pulps. *Bioresour Technol* 2005;96(1):21–30.
- 11) 藤井透, 西野孝, 合田公一, 岡本忠監修, 環境調和複合材料の開発と応用, シーエムシー出版(2005)

5. 結言

5-1 結論

環境問題が地球規模で深刻化している。そのため、リサイクル可能な環境にやさしい材料であるグリーンコンポジットが注目されている。これまで実用化されたグリーンコンポジットは、強化形態を短繊維強化材とする射出成形品が多く、積層板の最も基本形態である一方向繊維強化材（単層板）を用いた例はほとんどみあたらない。これは天然繊維の多くが有限長であり、植物系繊維特有の繊維うねりを有することから、連続して一方向に揃えることが困難であるからである。さらに、短繊維、長繊維を問わず、天然繊維そのものの力学的性質を明らかにすることは構造・強度設計に重要である。しかしながら、代表的なマルチセル型天然繊維であるケナフ繊維の力学特性に係る報告は少なく、強度信頼性データやその信頼性モデルの扱いに至っては皆無である。天然繊維の強度はその断面形状や繊維軸方向に対するばらつきなどの影響やその内部構造の影響により正確な強度評価が困難である。また、天然繊維の特性改善を目的とした処理の一つとしてアルカリ処理がある。これまでシングルセル繊維におけるアルカリ処理効果は多くの研究結果が得られているが、高濃度で処理されたマルチセル繊維がシングルセル繊維と同じような力学特性を発現するとは限らない。

そこで、1章では以上の問題点を踏まえ、本研究の目的を述べた。すなわち、①ケナフ繊維の強度信頼性データの取得およびその信頼性モデルの構築、②ケナフ繊維の内部構造を加味した力学的挙動の解明と力学モデルの構築、さらには③高濃度アルカリ処理によるケナフ繊維の特性発現性の解明および強度評価のための断面積推定手法の提案、を目的とした。

2章では天然繊維の新たな断面積評価手法を提案するとともに、ケナフ繊維のヤング率と引張強度に及ぼす断面積変動の影響を調べた。また、繊維断面積の繊維間および繊維内両者の変動を考慮した引張強度に関するワイブル分布を提案し、断面積変動の影響を考察した。その結果を以下に示す。

従来から行われている植物系天然繊維の断面積評価方法である真円仮定に比べ、多角形仮定を行う方が実断面積分布との相関が高いことが明らかになり、この断面積評価方法を用いてケナフ繊維の引張特性のうち、ヤング率と引張強度についてその断面積変動

の影響を調べた。その結果、天然繊維のヤング率と引張強度はその断面積のみならず、その変動係数の増加にも依存して低下することが判明した。

さらに、断面積変動パラメータ R を提案して、断面積変動の影響を除いた天然繊維の持つ引張強度の真のワイブル母数を実験的に求めた。さらに、繊維断面積の内部変動および繊維間変動を考慮した新たなワイブル強度分布を定式化し、断面積変動の影響を加味した天然繊維の引張強度のワイブル母数を数値的に推定した。強度の断面積依存性を考慮することにより、天然繊維の引張強度分布を断面積の変動を含めて予測することができることが明らかとなった。

3 章では、天然繊維固有の現象である繊維の回転現象を取り上げ、これについて調査を行った。回転現象は吸水やアルカリ処理および引張負荷をかけることにより引き起こされるがこれらの議論はシングルセル繊維に基づくものでありマルチセル繊維においてはほとんど議論されていない。そこで、本章では、マルチセル繊維において引張負荷時に繊維の回転が生じ得るかどうかなを実験的に確認するとともに、回転角度と引張強度およびヤング率との関係を調査した。さらに、CMF 角を空間内でらせん状に配置できるようにモデル化するとともに、これを用いた繊維の回転現象を有限要素解析によって考察した。その結果を以下に示す。

ケナフ単繊維が引張負荷によって繊維軸周りに回転することを確認した。ただし、すべての繊維で回転が起こるとは限らず、試験数全体の約 4 分の 1 程度の割合であった。回転が確認された繊維は回転の確認できなかった繊維の引張強度と比較し、若干低いことが認められ、ヤング率については両者ともほぼ同程度の値を示した。回転角と引張強度の相関はさほど認められなかったが、ヤング率との相関については比較的大きな相関係数を示すことが明らかとなった。回転現象における CMF 角の影響を調査するために CMF のらせん構造を Z-helix と仮定し、有限要素法によりシングルセル繊維およびマルチセル繊維の変形解析を行なったところ、ともに時計回りの回転が確認できた。このとき、セル数の増加とともにヤング率は増加した。また、CMF 角の増加とともにヤング率は低下するが、その低下割合はマルチセル繊維がシングルセル繊維より小さく、前者は後者に比べて構造に鈍感な性質を有することが明らかになった。さらに、繊維自体のらせん構造を考量し、FE モデルの平面を座標回転させ各要素を積み上げたらせん構造を簡易的に表現した FE モデルを作成し解析を行った。その結果、セルのねじれ構造のみで

も回転の発生を確認した。これはマルチセル繊維の回転機構が CMF のらせん構造だけではないことを示唆するものである。これらのことから引張負荷時に回転しない繊維は CMF のらせん構造とセルの絡み合い構造において力学的均衡が保たれることで現れると推測される。また、均衡の保てないようなセルの絡み合い構造は、繊維の回転が発生し、強度に影響する構造欠陥としても作用し、そのことが回転が発生した試験片の引張強度を低下させた原因の一つと考えられる。

4 章では、ケナフ繊維の力学的性質に及ぼす高濃度アルカリ処理効果の解明を目指し、処理繊維の力学的挙動および強度特性について検討するとともに、処理による繊維断面形状の変化を考慮した新たな断面積評価手法を提案した。その結果を以下に示す。

高濃度アルカリ処理を施したケナフ繊維は処理濃度が高いほど引張強さが低下し破断ひずみが増加する。また、アルカリ処理時間を短くすることで引張強度の低下を抑えることができる。破断ひずみの増加は高濃度アルカリ処理されマセル化した際にセル内に含まれるヘミセルロースが除去され、マイクロフィブリル間の拘束が弱くなって相対的なすべりが生じ、繊維に塑性変形が現れたためだと考える。高濃度アルカリ処理を施した繊維は断面形状が大きく変化しており、セルの形状が多角形から楕円状に変化していた。そのため、新たにアルカリ処理を施したケナフ繊維の DBA (DBA-AT: Data based approximation for alkali-treated fiber) を提案し、最適な近似仮定が 6 角形仮定であることを見出した。

5-2 今後の課題と将来展望

本研究では、マセル型繊維の回転現象を有限要素法解析により考察したが、3-4 節で示した、セルが互いに絡み合いながら、らせん状に成長するという天然繊維の構造を簡易的に有限要素モデルに付与することでマルチセル繊維の回転現象の調査を行った。しかしながら、Fig.2-1 で示したように、天然繊維の実際の断面形状は複雑であり、その軸方向にも形状が変化している。これらをモデルに組み込むことができれば剛性・強度および回転現象をより正確に解明することができると思う。このようならせん構造を持った繊維モデルを複合材料モデルに組み込むことで、グリーンコンポジットのより正確な強度評価ができると思われる。

今後、天然繊維の構造を細胞壁の積層や断面形状等をより詳細に再現したモデルを構築することができたならば繊維の構造を CT スキャン等で把握することで強度のばらつ

きの幅を抑えた繊維を複合材料に使用することでその強度信頼性を高めることが出ると
思われる。