

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

学位論文題目	Development of a new continuous processing method of ramie spun yarn/PP composites and elastic modulus analysis
氏 名	KIM Hyunbum

Polymer composite materials have been produced by combining synthetic fibers (e.g., glass and carbon) and thermoset matrix such as epoxy or polyester. These materials are obtained based on fossil fuel. The rising concerns for using fossil fuel products are environmental impact matters, exhaustion of resources, and so on. In order to overcome these problems in the future, it has been gaining much more attention to develop alternative materials using biomass-based or -derived materials such as natural fibers and biodegradable thermoplastic resins.

The first priority of using natural fibers must be the establishment of processing method since natural fibers have different characters from glass and carbon fibers. In case of a short fiber composite material, one of the critical parameters is the fiber length inside the composite material. It needs to be longer than *critical fiber length*, which means the minimum length to exhibit the original fiber strength. Otherwise the mechanical properties such as tensile strength and Young's modulus cannot be improved. Several processing methods were introduced to produce natural fiber-reinforced composite materials in the past. Two-steps production method was proposed to increase the mechanical properties. The results showed that the mechanical properties were not enough improved since most of fiber lengths were lower than its critical fiber length. The other fabrication method was actualized for producing long pellets. The results showed good mechanical properties on short fiber composite materials, but it required expensive investment and complicated technique.

In this study, thus, in order to overcome the main drawbacks explained in the above, a new method was developed to produce composite materials using ramie spun yarns and polypropylene, which are the representative plant-based natural fiber yarn and thermoplastic resin. In Chapter 1, first, the background and purpose of this study were introduced.

In Chapter 2, a new continuous process called multi-pin assisted resin impregnation (M-PaRI) for natural fiber composite materials was explained. Using the process, composite strands were produced, and then these were chopped to pellets called master-batch. Finally using the pellets, short fiber composite materials were produced by injection molding. From the experimental results of tensile tests on short fiber composite materials, it was confirmed that tensile strength increased with increasing fiber weight fraction until 30-40wt%, then dropped slightly at 50wt%. Young's modulus increased with increasing fiber weight fraction. It was confirmed from the experimental results that the optimal fiber content was between 30-40wt% on the short fiber composite materials.

Cross-sectional areas of the resultant composite strands were studied in order to investigate dependency of temperatures during fabrication procedure. As the results, voids were observed on composite strands fabricated between 160°C-185°C. However, voids did not occur between 195°C-205°C. From these results, it was estimated that tensile strengths on short fiber composite materials fabricated between 160°C-185°C were low. On short fiber composite materials fabricated over 205°C, over-heating caused decreased tensile strengths. According to the investigation of fiber length extracted from the short fiber composite materials, the results showed that fiber lengths were larger than its critical length.

In Chapter 3, using M-PaRI process, single yarn composite strand and composite tapes containing thirty-three ramie spun yarns were produced. The composite tapes were developed for the purpose of replacing glass woven fabric composites. Regarding single yarn composite strands, since the dependency of MAPP contents was not investigated, these materials were produced in different content of MAPP. Tensile strength and elastic modulus of the single composite strand increased with increasing fiber volume fraction irrespective of MAPP contents (0wt%-2wt%). However, the dependency of MAPP contents was not observed. With respect to composite tapes, a new process called roller system was added after M-PaRI process in order to produce the composite tapes. Tensile strengths of the composite tapes exhibited relatively lower values than composite strand due to size effect.

In order to investigate the cause of the fluctuation in elastic modulus, the experimental values were discussed with conventional theoretical models base on yarn modulus analysis and statistical methods (least squares method, first order second moment approximate method, FOSM) in Chapter 4. From the comparison between experimental values and the theoretical models, the fluctuation on a composite yarn was mainly related to fiber orientation angles. Moreover, according the FOSM model, it is possible to reduce the fluctuation in elastic modulus of the composite materials when the composite materials were produced at bigger size.

In Chapter 5, the conclusions of this study were summarized, and future research subjects were added.

【論文審査結果の要旨】

環境問題が深刻化する現在、環境適合型材料の一つとして、高強度天然繊維と熱可塑性樹脂を組み合わせた天然繊維複合材料の研究開発が注目を浴びている。この材料を短繊維による強化形態とする場合、押出し成形によって中間素材としてのマスターバッチを作製したのち、樹脂と所望の割合で混合し射出成形品として利用する。このとき、天然繊維は押出し成形中に細かく分断されるため、最終成形品の強度低下が問題視されている。一方、天然繊維複合材料を長繊維による強化形態とする場合、紡績工程より得られる撚糸（紡績糸）を用いるが、圧縮成形やロール成形によって製品化されることが多く、押出し成形による長繊維系撚糸複合材料製品はあまり見られない。ところで、撚糸は紡績工程において繊維がらせん状に配向されるので、らせん構造による弾性率低下の度合いを明らかにすることが論点となる。テキスタイル工学の分野では古くから様々な理論モデルが提案され、その有効性が議論されてきた。撚糸を強化材として用いる複合材料分野においても、理論モデルの有効性やその信頼性を議論することは工学的見地から重要である。

本研究は、以上の背景を踏まえ、短繊維強化形態にもかかわらず高アスペクト比を有する複合材料用ペレット（中間素材）の作製装置を開発し、その作製工程を提案している。続いて同装置の一部を改良し、長繊維強化形態であるストランド状およびテープ状撚糸複合材料についても作製できることを実証している。さらに、得られた撚糸複合材料の弾性率解析にも着手し、実験結果と理論モデルの適合性を確認するとともに弾性率の統計的変動要因を信頼性工学的見地から考察している。

内容は、まず緒言（第1章）で本研究の必要性を述べた上で、以下のように要約されている。

1. 紡績糸への樹脂被覆工程とは別に樹脂含浸工程を新たに設けることで、複合材料用ペレットを連続的に作製できる新しい簡易成形装置を開発している。作製された複合材料用ペレットをマスターバッチとして活用し、種々の射出成形品が作製できること、および従来品と比べて十分に高い強度・剛性が発現されることを実証している。（第2章）。

2. 第2章で開発した簡易成形装置を使って得られるストランド状撚糸複合材料を用い、長繊維強化形態に対するマトリックス材への相溶化剤添加効果の有無を明らかにしている。また、同装置の一部を改良し、テープ状撚糸複合材料を新たに作製するとともに機械的特性をストランド状撚糸複合材料と比較し、その特

性レベルを解明している（第3章）。

3. 従来の撚糸弾性率予測に関する理論モデルを幾つか取り上げ、その有効性を第3章で得られた実験結果に適合させている。その上で、弾性率の統計的変動が理論モデルのちがいに依存するのではなく、撚糸のらせん構造の変動に依存することを信頼性工学的手法から言及している（第4章）。

4. 以上の総括を行なっている（第5章）。

以上のように、本研究は従来困難であった撚糸内への樹脂含浸を簡便に実施できる手法を提案し、これを実際に装置化して連続的に複合材料用ペレットが作製できることを実証するとともに、得られる射出成形品が従来品より優れた力学的特性に達することを示した。また、長繊維強化形態であるテープ状撚糸複合材料についても同装置の改良によって作製できることを示した。さらに、得られた撚糸複合材料の弾性率変動の原因を撚り構造のばらつき因子から理論的に解明し、当該分野における新たな工学的知見を見出している。今後の当該分野の発展に大いに貢献できるものと判断される。

本審査会では、予備審査会で指摘された不十分な箇所の訂正、追加を行うとともに、質問事項に対する明確な回答があった。また、公聴会における主要な質問内容は、弾性率に及ぼす体積率の影響や環境劣化に対する対策、撚糸弾性率の寸法効果等に関するものであったが、いずれの質問に対しても的確な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、発展性、工学的価値に優れ、博士（工学）の論文に十分値するものと判断した。