

学位論文要旨 (Summary of the Doctoral Dissertation)	
学位論文題目 (Dissertation Title)	亜麻繊維強化複合材料の力学的性質および 常温保持型エポキシ樹脂の適用性の検討
氏名(Name)	潟岡 陽
<p>近年，地球環境保全の見地から，あらゆる産業分野において急速な技術革新が進む中で省エネルギー化や省資源化の意識が高まっており，複合材料分野においても高性能化や持続可能な動向が注目されている．軽量で高強度・高剛性といった特徴を持つFRP(Fiber Reinforced plastics)は航空宇宙産業や自動車産業において従来の鉄鋼材料やアルミニウム合金を主体とした構造材料の代替材として利活用が進んでおり，量産化の態勢を整えている．しかし，既存の炭素繊維やガラス繊維のような人工繊維は焼却処分が難しく，リサイクル法も確立されていないため，大部分は産業廃棄物として埋め立て処理される．今後成長し続けるであろうFRP市場においても，海洋汚染や土壌汚染，埋め立て地の枯渇問題は看過できないものとなる．</p> <p>これらに対し，最近では亜麻やラミー，竹等の天然繊維を用いた環境にやさしい複合材料であるグリーンコンポジットが注目されている．植物系天然繊維はその主成分にセルロースマイクロファイブリの強靱な骨格を有するため，比強度・比剛性に優れており，かつ生分解性を持つ．そのためコンポスト中で微生物に分解され環境負荷を抑えられる．また，焼却処分しても天然繊維はその生育中に二酸化炭素を吸収しているためカーボンニュートラルであり，実質的な二酸化炭素排出量がないという利点がある．このため，欧州を中心に精力的に研究されており，すでに自動車用内装材等に実用化されている．しかしながら，これまでのグリーンコンポジットは短繊維を熱可塑性樹脂と射出成形によって成形するのが主な作製法であった．これは天然繊維の多くが有限長であることと植物系天然繊維特有の自然由来の形状変動によるうねりが強度特性に影響を与えるからである．このような中で近年，亜麻繊維において繊維うねりを解消した紡績加工前の繊維束(スライバー)状の一方方向シートが市場に参入し，天然繊維を長繊維強化複合材料の強化材としての活用の草分けとなっている．長繊維を強化材として使用する場合，積層材として作製する方法が一般的であるが，積層材は面内方向に対しては強化繊維が荷重を受け持つため，よく耐荷することができるが，面外方向には強化繊維は配向されておらず，また繊維と樹脂の界面の脆弱性も相まってその強度は著しく低い．そのため，CFRP(Carbon Fiber Reinforced Plastics)においては縁合(スティッチング)や三次元織物等の面外強度手法によりその層間破壊靱性の向上を図っている．しかしながら，これらの手法は層間強度の大幅な改善を図れる一方で，コストや工程の複雑さのみならず，面内特性の影響を大きく損なってしまうという問題がある．そのため近年では特殊針を繊維束中で往復させ，面内繊維を強制的に面外に配向させ，強化効果を得るZanchorと呼ばれる手法が工程の簡便さに加え，層間強化効果が得られるため，そのニーズが高まっている．以上はCFRPに関しての知見であり，元々長繊維強化形態をさほど想定していなかったグリーンコンポジットについては，その力学的性質に及ぼす影響は調査されていない．また，長繊維強化複合材料を作製する際の一般的な方法としては，繊維に樹脂を含浸させた中間素材であるプリプレグを積層して作製される．このプリプレグに用いられるエポキシ樹脂は常温で保存すると硬化反応が進んでしまい，成形できなくなってしまうため，多くの場合冷凍設備により保存する．自動車生産などプリプレグが大量に必要な場合，その保管のための冷凍設備も大型となり，それにかかるコストと電力エネルギーも多大なものとなる．これらのことから，常温で未硬化状態を保持できるエポキシ樹脂用硬化剤も市場に出ているが，これを用いたグリーンコンポジットの強度特性の解明も未だ十分とは言えない．</p> <p>以上の問題から，本研究では亜麻繊維強化材を取り上げてZanchorの一手法であるニードルパンチ処理を行い，この処理が単層複合材料に及ぼす面内力学特性への影響を定量的に考察することを目的とした．また，複合材料作製の際に問題となるプリプレグ保管の観点から，亜麻繊維強化複合材料作製に適する常温保持型エポキシ樹脂の作製条件について検討し，この樹脂の適用性について調査した．</p>	

様式7号（第12条，第31条関係）

（様式7号）（Format No.7）日本語版

第1章では近年の環境意識の高まりから複合材料分野の研究動向がどこに向かっているのか言及し、近年注目の集まるセルロース系天然繊維を強化材とする複合材料の優位性を述べるとともに、従来研究の現状とその課題を概説した。

第2章ではうねりを有する亜麻スライバーに対してニードルパンチ処理を行い、繊維配向の変化が及ぼす力学的性質への影響を定量的に調査した。既存の生分解性樹脂とニードルパンチ処理亜麻スライバーを複合化させ、現状のグリーンコンポジットの成型品としての力学特性を論じた。

第3章では、一方向亜麻繊維に対してニードルパンチ処理を行い、強度変化のメカニズムを詳細に解明するため、力学特性の安定したエポキシ樹脂をマトリックス材とし、その引張特性について検討した。その後、ニードルパンチ処理した単層複合材料のモデル化を行い、種々の破壊則にあてはめながら、その強度特性、ヤング率特性などを論じ、特性変化の要因を明らかにした。

第4章では低温保管を必要とするプリプレグの問題解決のため、既存の常温保持型エポキシ樹脂の複合材料用マトリックスとしての適用性を調査した。樹脂の強度特性が加熱条件とその硬化度によってどのように変化するか調査し、複合材料用マトリックスとして最適な加熱条件の提案を行った。また、実際に複合材料化した際の樹脂の適合性についても力学特性の見地から考察を行った。

第5章では第2章，第3章および第4章で得られた結果を総括し、今後の当該研究分野に対する課題と展望をまとめた。

（和文 2,000 字程度 / 英文 800 語程度）

（about 800 words）

(様式 9 号)

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	瀧岡 陽
審 査 委 員	主 査： 合田 公一
	副 査： 陳 猷
	副 査： 大木 順司
	副 査： 吉武 勇
	副 査： Macadre, Arnaud
論 文 題 目	亜麻繊維強化複合材料の力学的性質および常温保持型エポキシ樹脂の適用性の検討 (Mechanical Properties of A Flax Fiber Reinforced Resin Matrix Composite Material and Its Applicability to Room Temperature Holding Type Epoxy Resin)
<p>【論文審査の結果及び最終試験の結果】</p> <p>(1) 学位論文の背景及び内容の概要</p> <p>はじめに、本研究の背景について以下のように示されている。</p> <p>近年、亜麻やラミー、竹等の天然繊維を用いた環境負荷低減に資する複合材料、いわゆるグリーンコンポジットが注目されている。欧州を中心に精力的に研究がなされており、すでに自動車用内装材等に実用化されている。最近では、天然由来の繊維うねりを解消した紡績加工前の一方向亜麻繊維シートが市場に参入し、複合材料用強化材として更なる利活用が期待されている。天然繊維あるいは人工繊維を長繊維強化材として使用する場合、面内方向においては強化繊維が荷重を受け持つため高い耐荷能を示すが、面外方向には強化繊維は配向されておらず、また繊維-樹脂界面の脆弱性も相まってその強度は著しく低下することが指摘されている。そのため、CFRP (Carbon Fiber Reinforced Plastics) においては縫合(ステッチング)や三次元織物、Zanchor 等の面外強化手法によりその層間強度の向上が図られている。しかしながら、グリーンコンポジット分野ではその効果の検証が十分行われているとは言えない。</p> <p>一方、常温で未硬化状態を保持できるエポキシ樹脂用の硬化剤は、熱硬化性樹脂の環境負荷を低減させる可能性の高いマトリックス樹脂用硬化剤である。すでに市場に参入しているが、これを用いたグリーンコンポジットの作製・評価については過去に実施されていない。</p> <p>このような背景を踏まえて、本学位論文はグリーンコンポジットのうち亜麻繊維強化複合材料を取り上げ、Zanchor の一手法であるニードルパンチ処理を紡績前のスライバー及び一方向繊維シートの2種類の亜麻繊維束に行うとともに、この処理による面内力学特性へ及ぼす影響を論じている。さらにニードルパンチ処理効果に加え、亜麻繊維強化複合材料用マトリックスとして常温保持型エポキシ樹脂の適用性を検討している。</p> <p>本学位論文は5章からなる。各章の概要を以下に記す。</p> <p>(第1章) 本研究に関わる背景を詳しく述べた上で、本研究の必要性が述べられている。</p> <p>(第2章) うねりを有する亜麻繊維スライバーに対してニードルパンチ処理を行い、繊維配向の変化が及ぼす力学的性質への影響を定量的に調査している。その上で力学的性質、特に引張強度に対するニードルパンチ処理の有効性を明らかにしている。</p> <p>(第3章) 一方向亜麻繊維シート材に対してニードルパンチ処理を行い、ヤング率変化のメカニ</p>	

(様式 9 号)

ズムを定量的に解析するとともに、非主軸方向に対するヤング率変化の有効性を示している。

(第 4 章) 常温保持型エポキシ樹脂の複合材料用マトリックスとしての適用性を調査し、樹脂単独の強度特性を引き上げる処理条件を見出すとともに、複合材料用としての有効性を検討している。さらに、第 4 章の補足としてこの樹脂の CFRP への適用性も検討している。

(第 5 章) 第 1 章から第 4 章までの総括を行なうとともに、今後の研究に対する検討課題を述べている。

(2) 本審査委員会の判定結果

審査会では、申請者から予備審査会で指摘した 8 つの事項について説明があり、いずれの項目についても的確に回答していることを確認した。加えて、カーボン繊維への常温型エポキシ樹脂の適用性について実験結果を述べることで、熱硬化性樹脂に対する環境負荷低減の可能性について第 4 章の内容を補完する説明があった。

公聴会での主な質問内容は、繊維の含水率が複合材料に与える影響、物理的要因以外での複合材料の力学的性質へ及ぼす影響、ニードルパンチ処理の際のニードルピッチの影響、常温保持型エポキシ樹脂を CFRP に適用した際の保持期間による結果のちがいにに関するものであった。いずれの質問に対しても申請者からの的確な回答がなされた。

以上より本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに優れ、博士(工学)の論文に十分値するものと判断した。

論文内容及び審査会、公聴会での質問に対する応答などから、最終試験は合格とした。

(3) 関連論文

【査読付き論文 (計 2 編)】

1. 野村剛志, 瀧岡陽, 伊達雄人, 合田公一, 亜麻繊維強化複合材料の強度特性へ及ぼすニードルパンチ処理効果, *Journal of Fiber Science and Technology*, 75 pp.63-71. 2019.
2. 瀧岡陽, 合田公一, ニードルパンチ処理された亜麻 UD 繊維束を強化材とするエポキシ樹脂基複合材料の引張特性, *Journal of Fiber Science and Technology*, 77 pp. 31-39. 2021.

【国際会議録 (計 3 編)】

1. Yoh Kataoka, Tsuyoshi Nomura, Yoshiaki Kawaoka, Katsushige Kouge, Koichi Goda, Effect of Epoxydized Polybutadiene on Tensile properties of Pre-Cured Resin Storable at Room Temperature, Comp-11-P01 (USB 配布), 11th Asian-Australasian Conference on Composite Materials, 2018.7.30-31(Cairns, Australia)
2. Y. Kataoka, K. Goda, Influence of needle-punching on strength properties of flax sliver-reinforced composites, 論文番号 190362, 5th International Conference on Materials and Reliability, 2019.11.28 (Jeju, South Korea)
3. Yoh Kataoka, Takuya Yamasaki, Koichi Goda, Effect of Z-anchor method on Joint strength properties of flax sliver-reinforced composites, A-03 (USB 配布), The 12th Korea-Japan Symposium on Composite Materials, 2019.12.6(Changwon, South Korea)