

学 位 論 文 要 旨 (Summary of the Doctoral Dissertation)	
学位論文題目 (Dissertation Title)	Enhancing the Mechanical Properties of Polypropylene-Based Green Composites through Surface Modification and Utilization of Regenerated Cellulose Fibers (表面改質と再生セルロース繊維の利用によるポリプロピレン系グリーン複合材料の機械的特性の向上)
氏 名 (Name)	ONDIEK Wycliffe Odhiambo
繊維強化複合材料（Fiber reinforced plastics, FRPs）は、脆性高強度繊維と延性低強度樹脂を組み合わせた複合材料であり、繊維の脆性を抑制した高強度材料である。代表的な複合材料である炭素繊維強化プラスチックは、鉄鋼材料と同等な機械特性を有するが、密度が低いため鉄鋼材料と比較して比強度が非常に高い。一方、複合材料はリサイクル性や製造・廃棄に関して、環境への負荷が大きい。そのため、近年では環境負荷を抑えた生分解可能な複合材料が注目されている。以上の背景に基づき、本研究は代表的な生分解性複合材料であるグリーンコンポジットの機械的性質の改善に取り組んだものである。 第 1 章は本研究の序論であり、グリーンコンポジットの特性や最先端技術を説明している。グリーンコンポジットは天然繊維を強化材として利用した、生分解可能性やリサイクル性が高い材料であることを述べるとともに、本研究で用いた天然繊維（木繊維、Cordenka、ラミー）の特性を詳しく説明している。そして、本研究の目的として、繊維強化複合材料の機械特性が、繊維の種類、体積率、表面処理に強く依存することから、それらの影響について調査する必要性を述べている。 第 2 章は、木質繊維基ポリプロピレン複合材料の機械特性に及ぼすフィルムラミネート加工の影響を調べている。まず、この複合材料の引張試験片を射出成形した後に、試験片の片面や両面にポリプロピレンフィルムおよび PET 樹脂フィルムをラミネート加工した。続いて、引張特性を引張試験で調べるとともに、PET フィルムラミネート加工により、複合材料の強度が増加する事を明確にした。強度増加の理由として、フィルムにより表面の均質化が起こり、表面の応力集中が低減されることを挙げている。 続いて第 3 章は、異なる表面処理による木質繊維基ポリプロピレン複合材料の機械特性の変化を調査した。射出成形法により試験片を作製し、その後プラズマ処理とセルロースナノファイバーコーティングを行った。このように表面処理した木質繊維基ポリプロピレン複合材料の引張試験や衝撃試験を行い、機械特性が改質（強化）されることを見出している。表面粗さの低下およびコーティング剤と複合材表面の結合性の改質が強化の理由であった。 第 4 章では、木質繊維基ポリプロピレン複合材料の機械特性に及ぼす繊維の種類の影響を調査している。特に、異なるセルロース繊維の影響に注目し、再生セルロース繊維である Cordenka および天然繊維であるラミーを利用している。結果として、ラミー繊維より Cordenka 繊維強化材の引張強さが高くなることを明らかにした。その理由は、Cordenka 繊維の長さは臨時繊維長を超えているためである。 第 5 章は本研究の結論であり、本研究で得られた結果として、木質繊維基ポリプロピレン複合材料における改質方法とその効果をまとめている。特に再生セルロースである Cordenka 繊維が天然繊維より複合材料の強化能力が高いことを強調し、グリーンコンポジットの有力な強化材として推奨している。その後、本研究に基づいた今後の研究課題を提案している。	

学 位 論 文 要 旨 (Summary of the Doctoral Dissertation)	
学位論文題目 (Dissertation Title)	Enhancing the Mechanical Properties of Polypropylene-Based Green Composites through Surface Modification and Utilization of Regenerated Cellulose Fibers (表面改質と再生セルロース繊維の利用によるポリプロピレン系グリーン複合材料の機械的特性の向上)
氏 名 (Name)	ONDIEK Wycliffe Odhiambo
Fiber reinforced plastics (FRPs) are composite materials: strong but brittle fibers are combined with ductile but low strength resin to make a strong non-brittle material. Carbon fiber reinforced plastics (CFRPs), representative composite materials, have mechanical properties on par with steels, but also benefit from low density, meaning that their specific strength is much higher than steels. On the other hand, these composite materials have low recyclability and both production and disposal are an environmental burden. To alleviate this issue, biodegradable composites are being investigated. In the introduction of this study, the state-of-the-art of green composites is explained. Green composites being biodegradable or recyclable composite materials, they are usually manufactured with natural fibers. Thus the properties and effect as FRPs reinforcing material of natural fibers, such as wood, ramie, and Cordenka, are detailed. The purpose of the study is also defined: the mechanical properties of fiber reinforced plastics depend on the manufacturing techniques (of the fibers themselves, and of the composite material) as well as the weight fraction of fibers in the composite material, therefore, this study investigates the effect of the fiber type and surface treatment on the mechanical performance of green composites, using Cordenka, ramie, and wood fibers. Chapter 2 deals with the influence of film lamination on the mechanical properties of wood-plastic composites. Polypropylene (PP) tensile samples and composites made of wood flour and PP were made. Both were then laminated to varying degrees with polypropylene and PET films. It was found that lamination with PET films increased the mechanical properties (strength) of the material. This was attributed to an enhanced homogenization of the surface of the samples. Following this, Chapter 3 explains how the surface treatment of wood-plastic composites affects their mechanical properties. Plasma irradiation, UV irradiation, and cellulose nanofibers (CNF) acrylic coating were applied to composite samples made with PP and wood fibers. The tensile properties were improved by the acrylic coating in particular, regardless of plasma irradiation. Once more, the increase in strength was found out to be due to a lowered surface roughness and improved fiber-matrix adhesion. The effect of fiber type is detailed in Chapter 4, where the differences in mechanical properties of fiber-reinforced polypropylene composites are investigated, when the fibers are Cordenka or ramie. Increasing the volume fraction of fibers increased the strength of the composites, and Cordenka fibers composites were found to have higher strength and toughness than the composites reinforced with ramie fibers, because the Cordenka fibers maintained length above the critical threshold necessary for effective matrix reinforcement. The last chapter summarizes the conclusions and gives recommendations on the applicability of green composites	

and further venues for investigation, emphasizing that the regenerated fibers, Cordenka fibers, demonstrated excellent strengthening for wood fiber reinforced plastics.

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	ONDIEK Wycliffe Odhiambo
審 査 委 員	主 査 : MACADRE Arnaud
	副 査 : 大木 順司
	副 査 : 南 和幸
	副 査 : 古賀 毅
	副 査 : 中原 佐
論 文 題 目	Enhancing the Mechanical Properties of Polypropylene-Based Green Composites through Surface Modification and Utilization of Regenerated Cellulose Fibers (表面改質と再生セルロース繊維の利用によるポリプロピレン系グリーン複合材料の機械的特性の向上)
【論文審査の結果及び最終試験の結果】 繊維強化複合材料は、低強度・低密度な樹脂と比較的高強度な繊維を組み合わせ、低密度・高強度化された材料である。主に知られている複合材料は、炭素繊維強化材およびガラス繊維強化材である。鉄鋼材料より比強度がはるかに高いものの、非生分解性であるため、使用後の廃棄処理が困難である。一方、これらの材料ほど高強度を示さないが、グリーンコンポジットは、再生可能な資源を用いており、生分解性、リサイクル性などの特徴を有し、環境への負荷が低いため、近年大きな注目を浴びている。グリーンコンポジットの強化材として、天然セルロース繊維や再生セルロース繊維が挙げられるが、特に後者を用いた強化効果に関する研究において、まだ不明な点が多く残っている。また、前者においても強化効果に対する表面被覆効果に関しては十分把握されているとはいえない。 以上の背景から、本学位論文は、木質繊維基ポリプロピレン複合材料を射出成形により作製し、強度特性に及ぼす天然および再生セルロース繊維の影響を調べた。表面被覆に関しては、ラミネート加工を実施し、また別途プラズマ処理やアクリルコーティングを行うことで、グリーンコンポジットの引張特性の変化を調査し、表面改質効果を明らかにしたものである。 本学位論文は、5章からなる。各章の概要は下記のとおりである。 (第1章) 緒言であり、本研究の背景を説明し、本研究の必要性を明確にしている。また新規性についても述べている。 (第2章) 木質繊維基ポリプロピレン複合材料にフィルムラミネート加工を実施し、複合材料の機械特性の変化を調べている。実施方法として、ラミネートの貼付範囲を変化させ、最終的にその強化機構を説明している。	

(第 3 章) 木質繊維基ポリプロピレン複合材料の表面被覆処理により機械特性の改質を試みたものである。改質法として、プラズマ処理およびセルロースナノファイバーのコーティングを実施し、複合材料に対する強化効果を明確にしている。

(第 4 章) グリーンコンポジットの強化材である天然セルロース繊維と人工セルロース繊維の効果の違いについて調べている。結果として、再生セルロースの強化効果がより優れていることを明らかにしている。

(第 5 章) 第 1 章から第 4 章までまとめ、今後の展望について述べている。

予備審査会での試験および試問として 4 名の副査から次の課題が課された。

1. 第 2 章において、フィルムおよび複合材料の体積率の求め方
2. 第 3 章の表面処理に関して、プラズマ処理と表面粗さの関係
3. 複合則に対して、ラミネート加工された試料の応力の求め方

以上の試問に対して、本審査会にてパワーポイント資料に基づいて適切に回答がなされた。公聴会での口頭試問に対しても十分に回答がなされた。審査会は英語で行い、論文はすべて英語で発表され、十分な英語能力を有すると判断した。

以上より本研究は独創性、信頼性、有効性と実用性ともに優れ、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。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記のとおりである。(関連論文 計 3 編、参考論文 計 1 編)

1. 関連論文の印刷公表の方法及び時期

(a) 査読のある雑誌等

- 1) Wycliffe ONDIEK, Masahiro KONDO, Maki ADACHI, Arnaud MACADRE, Koichi GODA, *Effect of Surface Coating and Plasma Treatment on Mechanical Properties of Wood Plastic Composites*, Journal of Composites Science, 7 巻 7 号 (2023) p.296
- 2) Wycliffe ONDIEK, Amirul RIDZUAN, Masaki IWAMOTO, Arnaud MACADRE, Koichi GODA, *Comparative Analysis of Mechanical and Morphological Properties of Cordenka and Ramie Fiber-Reinforced Polypropylene Composites*, Materials, 17 巻 22 号 (2024) p.5519

(b) 査読のある国際会議の会議録等

- 1) Wycliffe ONDIEK, Masaki IWAMOTO, Maki ADACHI, Arnaud MACADRE, Koichi GODA, *Effect of Fiber Content, UV-irradiation, and Surface Coating on Tensile properties of Wood Plastic Composites*, Proceedings of the 2nd Japan-China-Korea (JCK) Joint Symposium on Composite Materials (2023)

2. 参考論文

(a) 査読のある雑誌等

- 1) Wycliffe ONDIEK, Harrison NGETHA, James N. KERAITA, Jean B. BYIRINGIRO, *Investigating the Effect of Fiber Concentration and Fiber Size on Mechanical Properties*