

博士学位論文審査要旨

2015年2月17日

論文題目： 天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料における成形プロセス最適化に関する研究

学位申請者： 藤浦 貴保

審査委員：

主査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 田中 達也

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 藤井 透

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 松岡 敬

要 旨：

従来型の繊維強化プラスチック（FRP）に対し環境負荷の少ない、天然繊維と生分解樹脂を原料とする「グリーンコンポジット」への注目が高まり、工業的な成形加工プロセスの確立が切望されている。グリーンコンポジットに関する既往研究では、実験室規模での諸特性評価を行った例は見受けられるものの、実用化を視野に入れた混練・成形プロセスの研究例は少ない。また、混練・成形工程での天然繊維や樹脂の劣化による複合材特性の低下など、グリーンコンポジット特有の問題に取り組んだ研究も少なく、グリーンコンポジットの適用拡大には、量産性と複合材特性両面での課題解決を図ることが重要である。そこで本論文では、実用性の高いグリーンコンポジットの成形法を確立することを目的として、長繊維強化樹脂（LFT）ペレット製造法によるコンパウンド化とその射出成形によるプロセスを提案し、さらにその工程における条件最適化と、複合材の機械的特性の向上・安定化を検討した。

本論文は全7章で構成され、第1章では前述の通りの研究目的について述べた。第2章では、ジュート連続撚糸とポリ乳酸（PLA）を用いたLFTペレットの好適な製造条件を確立し、射出成形材の機械的特性改善の上での研究課題を提言した。第3章では、コンパウンド・成形工程におけるPLAの加水分解が成形材の機械的特性低下に与える影響を明らかにし、加水分解を抑制する有効手段に関する検討結果を、第4章では、ジュート繊維の熱劣化挙動を定量把握し、劣化を抑制しうる事前乾燥手法および成形条件の検討結果を示した。第5章では、ジュート/PLA複合材の衝撃強度改善についての実験的検討結果を報告した。第6章では、同複合材のさらなる機械的特性改善のため、成形材中のジュート繊維の分散性改善を図るコンパウンド手法の検討を行いその結果を報告した。最後に第7章において、これらを総括して全体の結論とした。

本論文はグリーンコンポジットの成形加工技術と特性向上に関する先駆的かつ実用的な研究であり、その成果は同分野の発展に多大な貢献をなすものである。よって本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。

総合試験結果の要旨

2015年2月17日

論文題目： 天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料における成形プロセス
最適化に関する研究

学位申請者： 藤浦 貴保

審査委員：

主査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 田中 達也

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 藤井 透

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 松岡 敬

要 旨：

本論文の提出者は、東京理科大学大学院理学研究科化学専攻博士課程（前期課程）を1990年3月に修了し、2009年4月に本大学院工学研究科機械工学専攻博士課程（後期課程）社会人特別選抜に入学、2012年3月に同課程を退学した者である。

本論文の主たる内容は、『強化プラスチック』, Vol.53, No.10, pp.430-436 (2007)、'WIT Transactions on The Built Environment', Vol 97, pp.231-240 (2008)、'WIT Transactions on Ecology and the Environment', Vol.138, pp.181-188 (2010) に掲載され、すでに十分な評価を受けている。

2015年1月10日午後1時より約2時間にわたり、提出論文に関する博士論文公聴会が開かれ、種々の質疑応答が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに公聴会終了後、審査委員により、論文に関する諸問題につき口頭試問を実施した結果、本人の十分な学力を確認することができた。なお、英語に関しては本学工学研究科博士課程（後期課程）在籍中に語学試験に合格し、ドイツ語についても十分な能力を有すると認定されている。

以上より、本論文提出者の専門分野に関する学力並びに語学力は充分であることが確認できた。よって、総合試験の結果は合格であると認める。

博士學位論文要旨

論文題目： 天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料における成形プロセス最適化に関する研究

氏名： 藤浦 貴保

要 旨：

繊維強化プラスチック（FRP）はわれわれの生活に利便性をもたらし、航空機や自動車など輸送機器の軽量化用途において、環境保全や化石燃料の消費量低減などの大きなメリットを生み出している。その一方で、FRP の需要拡大に伴い、合成樹脂の原料となる石油資源の使用量や、ガラス繊維や炭素繊維を製造するための消費エネルギーや地球温暖化ガス排出量が増大していることも事実である。限りある資源の消費を抑え、将来にわたって地球環境を維持して循環型・持続可能な社会を発展させていくためには、FRP の構成素材自体にできるだけ環境負荷の低い原材料を活用していくことが重要であり、なかでも天然由来成分を原料としたバイオプラスチックをマトリックス樹脂とし、強化材に天然繊維を用いた「グリーンコンポジット」への注目が高まっている。グリーンコンポジットに関する既往の研究では、実験室規模の基礎的な検討において複合材としての特性評価を行っている例が多く見られるが、工業的な生産への適用を前提としたコンパウンディング・成形プロセスの開発を行っている例は少なく、従来型 FRP を代替するための特性を確保する観点でプロセスの各工程における天然繊維やバイオプラスチック特有の実用課題の解決に取り組んでいる例も多くは見られない。

このような状況を背景に、本研究では、実用性の高い天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料の成形法を確立することを目的として、長繊維強化樹脂（LFT）ペレット製造法によるコンパウンド化とその射出成形によるプロセスを提案し、その工程における諸条件の最適化と、複合材の機械的特性の向上・安定化を検討した。本論文は、7 章から構成されており、以下に各章の概要を述べる。

第 1 章では、従来型 FRP の抱える問題点に触れるとともに、グリーンコンポジットに関する既往の研究例を把握することを通じて、グリーンコンポジットの実用化を進める上での課題点を明らかにし、成形加工プロセスの確立と機械的特性向上の必要性について示した。

第 2 章では、天然繊維であるジュートの連続撚糸とポリ乳酸（PLA）を用いた LFT ペレットの製造方法を検討し、好適なペレット製造条件を確立するとともに、同ペレットの射出成形を行って、成形性や成形品の基本特性を評価した。その結果、工程中の熱履歴によるジュート繊維の変色や劣化が殆どなく、かつジュート繊維間へ PLA が良好に含浸した、ジュートを 50wt% 含有した LFT ペレットの安定製造を可能とした。また、同ペレットが通常の射出成形機にて良好な成形性を有することを検証した。さらに、同ペレットの射出成形品の機械的特性評価から、同成形品が非強化 PLA に対し高い強度、弾性率を有すること、現在自動車部品などの用途で汎用されている 20wt%-ガラス繊維/ポリプロピレン（GF/PP）の射出成形品と比較して曲げ弾性率と引張強度に優れ、曲げ強度もほぼ比肩する一方、衝撃強度で大きく劣り改善の余地があることを見出した。

第 3 章では、ジュート/PLA 複合材の製造や特性の上で主要な問題である、ジュート水分によって引き起こされる PLA の加水分解挙動に焦点を当て、コンパウンディングおよび成形工程における加水分解の進行とそれが複合材の機械的特性に与える影響を調査するとともに、加水分解抑制剤の添加効果の検証、ならびにジュート長繊維の最適な事前乾燥手法の検討を行った。その結果、ジュート/PLA ペレットの水分含有率が高いほど、加水分解によって PLA の平均分子量は

低下し、ひいては複合材の機械的特性の大幅な低下を招くことを定量的に把握した。また、加水分解抑制剤はジュート/PLA ペレットの射出成形工程における PLA 分子量低下を抑制し、複合材の機械的特性確保に有用であること、ジュート長繊維に含まれる水分の低減には凍結乾燥法ないし加熱乾燥法が有効であることを明らかにした。さらに、加水分解性の低いポリアミド 11 をマトリックスに用いた複合材の作製・評価を行って、成形温度上昇に伴うジュート繊維の熱劣化も複合材の機械的特性の低下をもたらすことを具体的に把握し、繊維劣化を生じないコンパウンド・成形条件確立の端緒を示した。

第 4 章では、ジュート/PLA 複合材のコンパウンド・成形工程でジュート繊維の熱劣化を最小限に抑えるための条件最適化のため、熱履歴を加えたジュート繊維の単繊維引張試験、ジュート繊維の熱重量分析を行った。また、コンパウンド・成形において熱劣化の少ない高密度ポリエチレン (HDPE) をマトリックスとしたコンパウンド作製およびその射出成形材の特性評価を行った。その結果、ジュート単繊維の引張強さは、80℃以上の温度域で乾燥温度が高くなるにつれ、また乾燥時間が長くなるにつれてより低下すること、また、ジュート繊維の加熱に伴う重量減少は常温から約 220℃までのなだらかな減少および 250℃以上における急激な減少の 2 段階で進行することを明らかにした。さらに、ジュート繊維と HDPE との混練温度を 190℃以上とした場合には、コンパウンドから得た射出成形材の変色が著しく、引張強度も大きく低下することを検証した。各温度域におけるこれらの挙動より、ジュート繊維の熱劣化はその成分であるヘミセルロース、セルロースやリグニンの熱分解が主因であると判断され、繊維劣化を抑制して樹脂との複合化を図るには、加熱による事前乾燥を 80～100℃程度で行うこと、またコンパウンディング・成形における実温を 200℃程度以下とすることが必須であることを示した。

第 5 章では、ジュート/PLA 複合材の特性上の課題点である衝撃強度改善の実用的な手法として、破断伸度の大きい有機繊維との複合化を試み、ジュート/ポリエチレンテレフタレート (PET) ハイブリッド強化 PLA 射出成形品の作製・評価を行った。その結果、PET 繊維含有率が 10～20wt%と低い場合でも複合材の衝撃強度は飛躍的に改善されることを検証し、試験片の破断面観察から、衝撃強度の改善は PET 繊維の伸びならびに PET 繊維-PLA 間での界面破壊によるエネルギー吸収増大によるものであることを明らかにした。この評価を通じ、同ハイブリッド複合材の実用にあたっては、有機繊維の含有率を最適化して所望の衝撃特性を発現させ、さらにジュート繊維を高含有率化するなどして他の特性を確保することで、必要な諸特性を満たす複合材を得られる可能性を示した。

第 6 章では、当コンパウンド・成形プロセスに残る課題である、成形材中のジュート繊維の分散性改善による複合材の機械的特性向上の方策として、ジュート繊維/PLA の LFT ペレットをさらに二軸押出機で混練して短繊維強化ペレット化し射出成形する手法を試み、成形材中のジュート繊維長や破面観察ならびに特性評価を行った。その結果、同手法によれば、LFT ペレットから直接成形した場合に比較してジュート繊維束の開繊とマトリックス PLA 中への高分散が進行し、成形品の引張強度はこれまでに報告されている射出成形によるジュート/PLA の複合材では最も高い領域の 90MPa 超に及ぶことを明らかにした。さらに、この手法は、二軸混練押出機に直接ジュート長繊維と PLA を投入し複合化するダイレクトコンパウンディングよりも成形材の機械的特性発揮の点で優れることを示し、本手法が、自動車用部材などの用途において GF/PP 複合材などの従来材料をグリーンコンポジットに代替する際の有力な複合材製造法となり得ることを検証した。

第 7 章では、各章の結果について総括し、今後グリーンコンポジットの実用化を加速するために残る技術課題と、今後の展望について述べた。

本研究では天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料の成形法として、LFT ペレットを経て射出成形材を得るプロセスを提案するとともに、天然繊維を強化材に用いる際の特有の課題でありながら既往の研究では明らかにされていなかった、繊維の含有水分により引き起こされる樹脂

劣化や、繊維自体の熱履歴による特性低下の挙動を仔細に把握・解析し、これらの問題を克服する方策を具現化して、より高い複合材の機械的特性を実現するための適切なプロセスウィンドウを明確化した。また、複合材の機械的特性向上に対する、有機繊維の併用やマトリックス樹脂中での天然繊維の分散性改善の有効性も示し、本プロセスがグリーンコンポジット製造法として高い有用性を持つことを示した。

以上