

博士学位論文審査要旨

2008年2月12日

論文題目 : Development of green composites based on bamboo fibers

学位申請者 : Vu Minh Duc

審査委員 : 主査 同志社大学大学院工学研究科 教授 藤井 透
副査 同志社大学大学院工学研究科 教授 片山 傳生
副査 同志社大学大学院工学研究科 教授 松岡 敬

要旨 :

軽くて丈夫な竹は、木質系材料の一つとしてさまざまな形で用いられてきた。その強さの秘密は繊維にある。竹からジュートなどに代わる繊維が取り出せれば、豊富な天然資源となる。竹は

① 二酸化炭素 (CO₂) 削減など地球環境の維持に貢献するとともに、

② その優れた特性を生かした新たな工業利用が展開できる。この竹繊維、まだ利用は進んでいない。それは、一つには竹繊維が木綿や羊毛のような長くて細い糸にできないからである。竹繊維の「軽くて強い」という特長を生かそうとすれば、これを、高分子を母材とする複合材料の強化材として用いるのが適切である。しかし、母材に石油由来の樹脂を用いたのでは折角の「持続的再生産可能天然資源」としての竹の恩賜も減殺される。本研究では、主として、母材に植物由来のバイオプラスチック、ポリ乳酸 (PLA) を用いた。

PLA は比較的強度が高いが、脆く、ガラス転移温度が約 55℃と低く、耐熱性に問題がある。そのため、構造用だけでなく準構造用材料としても使用できない。本研究では、この PLA の機械的特性を竹繊維との複合により向上させる方策および竹繊維/PLA 複合材料の機械的特性を明らかにした。さらに、高価な PLA に代わり、比較的安価で生分解特性も有するポリビニルアルコール (PVA) で複合した新素材の開発を行った。

本論文は、5章からなる。第1章は、環境にやさしい複合材料 (GC : Green Composites) の意義、天然繊維の種類と GC の成形・製造および本研究で取り扱う二つの樹脂 : PLA と PVA について述べている。

第2章は、本論文の主たる部分で、竹繊維強化 PLA 複合材料の開発を詳述している。第1節では3種類の竹繊維 : ①機械的に取り出した、太い短繊維 (SFB)、②アルカリ処理により取り出した微細繊維 (ATF)、③爆砕により取り出した微細繊維 (SEF) を用い、GC を製造する技術を開発している。これにより、竹繊維を均一で高含有した GC ペレットが製造できる。本節では、3つの竹繊維の中、SEF が PLA の強度を最も高めることを見出した。それは、竹繊維と PLA の界面強度が最も高かったことによる。

第2節では、竹繊維との複合による GC の耐熱性向上を PLA の結晶化度との関係から明ら

かにしている。すなわち、竹繊維との複合により PLA の結晶化度が増し、これにより耐熱性が増すことが分かった。

第3節では、竹繊維との複合により PLA の脆性的性質が改善されるかについて検討された。ここでは、アルカリ処理による、太いが比較的長い竹繊維を用いた。成形法も工夫し、フィルム積層ホットプレス法を用いた。本節での研究の結果、衝撃強さは繊維径が太くても長い繊維を用いた GC の方が PLA 単体に比べて5倍以上に高まることを示した。

第4節は、実用の点で重要と考えられる竹繊維/PLA 複合材料の耐湿性について明らかにし、耐水性改善の重要性を示した。

第3章は、フィブリル化した竹繊維を強化材に用いた PLA-GC に関する研究結果である。これまでの竹繊維はせいぜい直径も 10 数 μm 程度である。既に、PLA-GC の機械的特性には繊維/樹脂界面の強度特性が重要であることが示されたが、竹繊維の界面改質には限界がある。そこで本研究では、微細竹繊維を磨砕と高せん断によりフィブリル化し、樹脂との接着面積を高めた強化材を用いる有効性について述べた。はじめに、フィブリル化方法について検討し、爆砕 \Rightarrow アルカリ処理 \Rightarrow 磨砕・高せん断処理が最も有効であることを見出した。次に、このフィブリル化竹繊維 (MFB) を用い、PLA と均一複合する方法を検討した。MFB が強親水性であることから、水分散性 PLA を GC 成形に用いることを提案した。これにより、均一で高含有の MFB/PLA ペレットが製造できた。これを用い、射出成形の限界を明らかにするとともに、優れた機械的特性を有する MFB/PLA-GC を得た。成形性を考えると、MFB は 30 重量%まで含有可能で、高い曲げ強度が得られることを示した。なお、衝撃強さの面からは MFB の量は 10% で十分であることも分かった。

第4章は、強化材に MFB を脱リグニンした MFC (マイクロフィブリルセルローズ)、母材に PVA を用いた GC の結果である。本章でもユニークな GC の成形法を提案している。MFC は極めて親水性が高く、乾燥すれば凝集し、PVA との均一複合は不可能となる。そこで、はじめに水希釈した PVA と MFC を高圧ホモジナイザーにより均一混合した液を紙漉きの方法を用い、原紙を漉いた。これを乾燥後、必要枚数積層し、ホットプレスにより成形した。その結果、MFC の含有率が 60% のとき引張り強度が 200MPa を超える高強度グリーン複合材料が得られた。弾性率も高く、実用的であることがわかった。

第5章では本研究を総括している。

以上、本論文では化石資源を使用しない、かつ身近に、豊富に存在する竹を持続的再生産可能天然資源として捉え、これを工業的に利用する技術を開発した。特に、竹の「軽くて強い」原点である竹繊維に焦点を当て、これを強化材とする、構造用材料としても利用可能な高品質の複合材料を開発した。その製造方法の詳細を示すとともに、開発された環境にやさしい複合材料の機械的特性も明らかにした。加えて、PLA を強化するのに最も適した竹繊維とその処理について示した。また、安価な PVA をバインダーとしながらも、マイクロフィブリル化セルローズを用いることにより、極めて優れた強度特性を有する GC を開発することにも成功した。本研究は竹の有効利用に大いに寄与すると共に地球環境維持のためにも意義深い。工学的にも工業的にもその成果は大きく遡及する。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あるものと認める。

総合試験結果の要旨

2008年2月12日

論文題目: Development of green composites based on bamboo fibers

学位申請者: Vu Minh Duc

審査委員:

主査: 同志社大学大学院工学研究科 教授 藤井 透

副査: 同志社大学大学院工学研究科 教授 片山 傳生

副査: 同志社大学大学院工学研究科 教授 松岡 敬

要 旨:

本論文提出者は、2005年4月に同志社大学大学院工学研究科機械工学専攻 博士後期課程学生として入学し、竹繊維を強化材、PLA およびPVA を母材とする環境に優しい高分子系複合材料(グリーンコンポジット)の開発およびその特性評価に取り組んだ。各年度において優れた成果を挙げてきた。本論文の主たる内容は、Bamboo Journal (Vol.27, pp.17-26, 2007), Journal of Materials Science (Vol.43, pp.775-787, 2008), Proc. of 2nd Vietnam-Japan Joint Symposium on Bamboo (2007) に掲載され、十分な評価を受けている。

本年2月2日(土)午後2時より約1時間半にわたって提出論文に対する学術講演会(博士論文公聴会)が開かれた。その場で種々の討議がなされたが、いずれも提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに、講演会終了後、審査委員により学位論文に関連した諸問題について口頭試問を実施した結果、いずれも十分な学力を有することを確認した。英語に関しては、3編の英文論文が著されるとともに、博士論文・公聴会も英語で行われたことから十分な能力を有していると認められた。また、ロシア語についてもベトナムで認定されている。

よって、総合試験の結果は合格であると認める。

博士学位論文要旨

論文題目: **Development of green composites based on bamboo fibers**

氏名: Vu Minh DUC

要旨:

We are consuming a lot of fossil resources such as petroleum and coal for modern industries. Public attentions are now being placed on the sustainable natural resources to reduce the global impact due to CO₂ emission. Green composites, which are often referred to as biocomposites or eco-composites, have become a hot issue in composite materials fields during the last decade. Recently many industries including automobile manufacturers have paid much attention on environmentally friendly green composites, which consist of natural fibers.

People would like to use natural plant fibers having superior mechanical properties as reinforcement if possible. As a cheap and fast-grown resource with superior physical and mechanical properties compared to most natural fibres, bamboo offers great potential as reinforcement in green composites. One of benefits using bamboo fibers is that bamboo is an abundant natural resource in Asia and Middle & South America. Bamboo is expected as the last sustainable plant resource which has not been massively used. In fact, with a maturation period of 3-8 years, it grows more rapidly than any other wood on earth. The high strength with respect to its weight is derived from fibers longitudinally aligned with its body. Therefore, bamboo fibers are often called natural glass fibers. Moreover, the use of bamboo could help in reducing the bamboo pollution.

The purpose of this study was to develop completely biodegradable green composites based on bamboo fiber (BF) and biodegradable polylactic acid (PLA) and polyvinyl alcohol (PVA).

This study developed successfully three type completely biodegradable green composites.

For green composites based on PLA and bamboo fibers, the results show that:

- Steam-exploded filament extracted from bamboo fibers most significantly increases the bending strength of PLA matrix composites due to the highest interfacial strength between PLA and steam-exploded filament although aspect ratio of filaments decreases significantly at fabrication.
- Addition of bamboo fibers promotes crystallinity of PLA in PLA/BF composites, and the thermal properties of PLA composites are improved.
- When medium length bamboo fiber bundles are put into PLA, the impact strength greatly increases.
- Thermal properties and heat resistance of PLA and PLA/BF composites are well improved by annealing process (at 110^o C for 5 hours).
- The bending strength of PLA/medium bamboo fiber composites decreases after moisture absorption while the fracture toughness of PLA/medium bamboo fiber composites increases due to moisture absorption. The interfacial shear strength between

bamboo fiber and PLA matrix decreases, and the interfacial critical release rate increases due to moisture absorption.

For green composites based on PLA and microfibrillated bamboo fibers (MFB), the results show that:

- Mixing MFB in PLA-based solution in water made MFB disperse well in composites.
- The higher MFB content in composites, the stronger bending properties composites can get.
- At 10 % MFB content, the impact strength of composites was the highest among those of 30% MFB composite and neat PLA.

For green composites based on PVA and microfibrillated cellulose fibers (MFC) extracted from bamboo fiber, the results show that:

- This MFC was used as a useful reinforcement in green composites based on PVA.
- By using high pressure homogenizer, MFC was dispersed well in composites.
- At 60% wt MFC content, the composites have the best properties.