【一般論文／Transaction】

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

潟岡 陽^{*1, #}・合田 公一^{*2}

^{*1}山口大学大学院創成科学研究科

^{*2}山口大学工学部機械工学科

Tensile Properties of an Epoxy Resin Matrix Composite Reinforced with Needle-Punched Flax UD Fiber Bundles

Yoh Kataoka^{*1, #} and Koichi Goda^{*2}

^{*1} Graduate School of Sciences and Technology for Innovation, Yamaguchi University

2-16-1 Tokiwadai, Ube Yamaguchi, 755-8611, Japan

^{*2} Department of Mechanical Engineering, Yamaguchi University 2-16-1 Tokiwadai, Ube Yamaguchi, 755-8611, Japan

Abstract: Green composites have high specific strength and rigidity that are comparable to those of glass fiber reinforced plastics (GFRP) and other artificial fiber reinforced plastics. A recently developed unidirectional sheet of flax fibers is available as a laminate similarly to carbon fibers. Laminates generally have low strength in the thickness direction. Although Zanchor is often applied to overcome this shortcoming, Zanchor effects on the mechanical properties of green composites remain unclear. For this study, artificial entanglement was created by needle-punching of a unidirectional flax fiber sheet. Epoxy resin matrix composites were produced using hot-pressing to elucidate tensile property changes. Results show that needle-punching decreased the tensile strength and Young's modulus in the fiber direction, although these properties increased in the direction vertical to the fiber. Furthermore, by quantifying the out-of-plane fiber orientation, we assessed effects of two fiber-orientation changes deriving from needle-punching.

(Received 4 July, 2020; Accepted 7 November, 2020)

1. 緒 言

近年、セルロースナノファイバーの名で知られるように、セルロースの軽量・高強度を活かした植物系天然素材の利活用が注目されている。植物系天然繊維を複合化する際、短繊維に切断して射出成型等で製造する方法と、長繊維状態で製造する方法の2通りに大別される。短繊維は複合材料中の繊維長や分散性、樹脂特性等により繊維の強度特性が異なって発現されるが、長繊維はその強度特性が直接反映されるため、短繊維より強度的利点を有する。繊維工業における天然繊維は、破茎・梳毛処理を経たスライバーと呼ばれる長繊維状束、これを紡績加工した撚糸、さらにこれを縦横に織り込んだ織布の形態で製品化される[1,2]。一方、複合材料分野で天然繊維を使用する際は、スライバー状態のままこれを複合化させる手法がしばしば使われる[1,3,4]。著者らもまた天然繊維スライバーとポリ

乳酸樹脂を複合化し、強度特性へ及ぼす繊維配向変動や繊維間の絡みの影響を調査してきた[5-9]。スライバーはここ最近において新しく製品化され、天然繊維特有のうねり形態をほどよく取り除いた一方向繊維束(Unidirectional fiber sheet, UD 繊維束と記す)状のものやこれに樹脂を合わせたプリプレグが市場に参入している[4]。また、UD 繊維束を炭素繊維とハイブリッド化させ、これを強化材として用いる提案がなされており、衝撃特性や振動減衰性等の改善に向けた取り組みが報告されている[10]。UD 繊維束やプリプレグは、炭素繊維強化プラスチック(以下、CFRP と記す)等と同様に角度を変化させ、積層して疑似等方性を持たせた活用もできるが、一般に積層材は層間強度の脆弱性が問題視されている。層間を強化する方法として、CFRP においては様々な事例が報告されている[11-13]。このうち3次元織物やスティッチングは層間強度の改善効果が非常に高い一方で面内強度は著しく低

corresponding author: Yoh Kataoka (E-mail: i502wc@yamaguchi-u.ac.jp)

下する。そのため、厚さ方向に縫合を施した Zanchor [14,15]と呼ばれる手法の一つとしてニードルパンチ処理が注目されている。これは、面内の繊維を簡便に面外に配向させ、かつ絡みを与えることができる手法であるが、天然繊維への効果は未だに解明されていない。天然繊維は炭素繊維ほど剛性が高くないので、ニードルパンチによって繊維がしなやかに面外に配向し、より効果的に絡みを付与できると予想される。しかし、しなやかさは UD 繊維束面内の繊維配向変化も同時に起こすと考えられ、機械的性質の低下が懸念される。

そこで、本研究では天然繊維の中でも比較的高い強度を有する亜麻繊維の UD 繊維束にニードルパンチ処理を行い、亜麻繊維強化エポキシ複合材料の引張特性に及ぼす繊維配向変化の影響を解明することを試みた。さらに、処理による繊維配向変化のうち、面外への繊維配向を定量化することにより、その影響について考察したので報告する。

2. 供試材および試験方法

2.1 供試材料

本研究では亜麻繊維からなる UD 繊維束 (FLAXTAPE 200©EcoTechnilin 社製、亜麻繊維 200 g/m²) を強化材として用いた。これは亜麻繊維を一方向に揃え、シート状に加工した製品である。また、汎用エポキシ樹脂アデカレジ EP-4901 (ADEKA 社製) をマトリックス材の主剤に、ジェファーマン T-403 (HUNTSMAN 製) をマトリックス材の硬化剤にそれぞれ用いた。Table 1 にマトリックスに用いた EP-4901/T-403 の物性値を示す。

2.2 ニードルパンチ

本研究ではニードルパンチングマシン (NP-100/4, 圓井繊維機械(株)製) を用い、UD 繊維束の厚さ方向に人工的な絡みを与えた。ニードルパンチ(以後、しばしば NP と記す) とは不織布の作製に用いられる技術の一つで、‘バーブ’ と呼ばれる溝のついた針を繊維束の非繊維軸方向に向かって往復させることにより、繊維を絡ませる手法である。ニードルパンチの模式図を Fig. 1 に示す。この装置は、UD 繊維束をローラーで流しながら針群を往復させることで面外方向に交絡を与えることができる。ニードルパンチ量は 100 mm 当たりの NP 数(往復数)で表されるので、100(1/mm)、200(2/mm)、300(3/mm)、400(4/mm) の条件で行った。以下では、NP 数の表記法として、NP のあとに 1 mm 当たりの NP 数を記して示す。

Fig. 1 Schematic diagram of needle-punching process

2.3 複合材料作製方法

UD 繊維束を供給状態のまま用いて作製した複合材料を UD/EP、NP 処理を行った繊維束を用いて作製した複合材料を NP/EP とそれぞれ記す。

マトリックス材は母材の EP-4901 と硬化剤の T-403 をそれぞれ 100 : 46 の割合で混合し、十分に攪拌を行った。その後、真空槽で樹脂中の気泡が消失するまで脱泡を行った。作製した樹脂を予め金型の試験片作製部(幅 100 mm × 長さ 100 mm × 深さ 19 mm の溝状) に注入しておき、UD 繊維束を供給状態のまま、もしくは NP 処理された UD 繊維束 4 層を金型に入れ、加圧成型装置 (APP-50-300 YS, (株)山本水圧工業所製) を用いて、温度 25℃ で 24 時間、その後温度を 60℃ に上げ 6.5 時間、圧力をかけた状態で保持した。加圧力は条件ごとの繊維体積率を近づけるため Table 2 に示す条件で行った。その後、空冷し板状の UD/EP および NP/EP を作製した。

Table 2 Pressurization condition of composite sheets

UD	8 MPa
NP1	8 MPa
NP2	10 MPa
NP3	10 MPa
NP4	15 MPa

2.4 繊維体積率

本研究では以下の式 (1) を用い、繊維体積率 V_f を算出した。

$$V_f = 1 - \frac{(W - W_f)/\rho_m}{V} \quad (1)$$

ここで、 W_f は複合材料作製前の繊維重量、 W は作製後の全体重量、 ρ_m はマトリックス樹脂の比重量、 V は板材の全体積である。なお、本手法では試験片部を加圧成型機で直接加圧しているので、余分な樹脂・気泡が金型外に抜け、 V_f は 0.6~0.7 程度の値をとり、ボイドはほとんど生じていなかった。そのため式 (1) ではボイド項を考慮していない。

Table 1 Tensile properties of matrix

	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Fracture strain [%]
EP-4901/T-403	65.2	3.2	5.0

2.5 引張試験片の作製および試験方法

NP 処理が及ぼす繊維配向変化の影響を調べるために、本研究では作製された UD/EP および NP/EP の繊維方向 (0° 方向) および繊維垂直方向 (90° 方向) の引張特性を調査した。まず、作製した各板状複合材料を 0° 方向、または 90° 方向に 15 mm 幅に 6 本切り出した。本作製法では UD/EP と NP/EP で繊維配向が異なり、同加圧力では同繊維体積率で作製できないため 2.3 で述べた通り、条件ごとに変更している。また、繊維束を 4 層重ねて加圧しているため樹脂の流動により繊維束のずれが生じ、不均質部分ができる場合が多々ある。そのためサンプル数は 3~6 本となっている。その後、幅方向を研磨して形状を整え、長さ 100 mm の短冊形に加工した。試験片の両端には長さ 25 mm、幅 15 mm、厚さ 1 mm、試験片ゲージ部側にテーパ加工を施したアルミ製タブをエポキシ系接着剤で貼り付け、これをつかみ部とした。得られた引張試験片の形状と寸法を Fig. 2 に示す。

Fig. 2 Size and configuration of tensile specimen

続いて、インストロン型引張圧縮試験機(オートグラフ IS-5000, 島津製作所(株)製)を用い、クロスヘッド速度を 1 mm/min として試験片が破断するまで引張試験を行った。その際、試験片中央部には単軸用のひずみゲージ(KFGS-5-120-C 1-11, (株)共和電業製)を貼り付け、ロードセルによる荷重測定とともに破断までのひずみ測定を行った。

3. 実験結果

3.1 面外における繊維の配向形態

Fig. 3(a) (b)に NP 処理前後における UD 繊維束の表面様相を示す。Fig. 3(b)から判断できるように、NP 処理による繊維の面内配向変化については多少波打って乱れるものの、Fig. 3(a)と比べて顕著な変化は観察できなかった。一方、Fig. 4 で模式的に示すように、NP 処理によって 0° 方向に配列していた繊維の一部は繊維軸方向から外れて面外に配向する。その際、Fig. 5 からわかるようにほとんど折損することなく面外に押し出されることがわかった(以下、NP 処理を受けて面外に配向した繊維を‘面外繊維’と記す)。本研究で用いる亜麻繊維は繊維長が 100 mm 以上あり、面外

Fig. 3 UD flax fiber sheet before and after needle-punching

Fig. 4 Schematic in alignment of needle-punched fibers

Fig. 5 Appearance of fiber bundle after needle-punching

繊維は繊維束外に大きく押し出される。そこで、Fig. 5 では NP 処理後の配向状態を確認するために、NP 処理後に処理部をオレンジ色スプレーで染色し、乾燥後、厚さ方向に圧力をかけてから裏面の観察を行った。これから、染色された繊維がランダムに配向されることが確認できる。加えて、背後に一方に配列した繊維束も確認できる。亜麻繊維の繊維長を考えると、繊維束厚さより押し出された面外繊維が十分長いので、本研究で作製した 4 層積層材は、NP 処理により層間および表面に別途ランダムな繊維層(以下、しばしばランダム層と記す)を有する積層材であると判断できる。一般に、不織布工程では面外繊維は同様にランダム配向するであろうから、不織布の一部として存在するようになり、面外層として特別にふるまうことはない。しかし、UD 材を積層させて NP 処理を行う際、面外繊維はランダムな配向をもって存在するので、その挙動による影響を考慮する必要がある。

実際にランダム層内の面外繊維の配向形態を確認するため、デジタルスコープ(GR130XGA2, (株)松電舎製)を用い、繊維軸に対する配向角を 3400 のサンプルを対象に画像解析により測定した。横軸に配向角を 1° ごとにとり、縦軸にその度数を示したグラフを Fig. 6 に示す。これから、 -90° および 90° 近辺では度数が

Fig. 6 Orientation angle distribution of needle-punched fibers at out-of-plane

低い傾向にあるものの、概ね同程度の頻度で分布することがわかる。よって以降は、ランダム層内の配向分布を一様分布と仮定して議論を進める。

3.2 0°方向の引張特性

0°方向の引張試験による応力-ひずみ線図を Fig. 7 に、引張強度およびヤング率等を Table 3 にそれぞれ示す。Fig. 7 から、各条件とも傾きが異なったまま立ち上がり、ほぼ線形的に推移して破壊に至ることがわかる。NP1/EP、NP2/EP の初期挙動において UD/EP と重なっているようにみえるが、Table 3 に示すように実際にはヤング率は低く発現される。そして、引張強度は UD/EP が NP/EP 全般より高い結果となった。ここで、繊維体積率はおよそ $60 \pm 3.0\%$ の範囲にあって UD/EP が最も高く、厳密には直接比較することはできない。複合則によると、長繊維強化複合材料の繊維方向における強度は V_f の増加にともなって線形的に増加する。よって、ここでは V_f による引張強度のばらつきの影響を除外するため、以下の式(2)に示す応力の複合則を式(3)に示す複合材破断時に受け持つ繊維応力 $\bar{\sigma}_f$ の形に変換し、Table 3 の引張強度を再評価した。

Fig. 7 Stress-strain curves of UD/EP and NP/EP composites at 0° direction

Table 3 Tensile test results of UD/EP and NP/EP composites at 0° direction

Fiber form	Number of samples	Volume fraction [%]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Fracture strain [%]	Fiber bundle stress at break [MPa]	Young's modulus of fiber bundle [GPa]
UD	4	62.6	412 (12.5)	37.0 (5.50)	1.47 (0.15)	629	57.2
NP1	6	57.1	368 (24.4)	31.8 (3.54)	1.62 (0.08)	609	53.3
NP2	6	61.7	384 (29.3)	32.4 (2.54)	1.69 (0.11)	592	50.5
NP3	6	62.5	362 (14.5)	33.2 (1.48)	1.80 (0.06)	551	51.2
NP4	6	62.4	336 (27.6)	33.9 (2.29)	1.61 (0.10)	510	52.4

Values in parentheses show 'standard deviation'

$$\sigma_c = \sigma_f V_f + \sigma_m (1 - V_f) \quad (2)$$

$$\bar{\sigma}_f = \frac{\sigma_c^* - \sigma_m^* (1 - V_f)}{V_f} \quad (3)$$

ここで、 σ_c 、 σ_c^* はそれぞれ複合材料の引張応力および引張強度、 σ_f 、 σ_m はそれぞれ繊維応力、マトリックス応力、 σ_m^* は複合材破断時のひずみレベルにおけるマトリックス応力である。研究前の段階では、マトリックスの応力-ひずみ関係が未知であったため、本研究では引張試験を通して求めた。まず、マトリックス材に用いたエポキシ樹脂を完全に脱泡させ、恒温乾燥機を用いて 25℃ で 24 時間、60℃ で 6.5 時間保持し硬化させた。続いて、得られた成形材を上述と同様に引張試験を行い、その応力-ひずみ線図から各試験片の破断ひずみに対応する σ_m^* を算出した。Table 3 から、破断時に繊維が受け持つ応力は NP1/EP から減少し始め、NP4/EP においては 2 割近く減少することがわかる。一方、NP/EP 全般のヤング率は UD/EP と比較して全体で 3.1~5.2 GPa ほど減少することがわかるが、この場合も V_f によるばらつきの影響を除外するため、UD/EP 材内で発現される繊維のヤング率 E_f を次式の複合則から求めた。

$$E_c = V_f E_f + (1 - V_f) E_m \quad (4)$$

ここで、 E_c は複合材料のヤング率、 E_m は上述のエポキシ樹脂の引張試験の際に得られたヤング率である。結果を Table 3 に示すが、NP/EP のヤング率はすべてにおいて低くなることが確認できるが、NP 数の変化にともなう明白な傾向は得られなかった。破断ひずみに関しては、NP 処理を行うことにより増加する傾向にあった。以上の、NP/EP 全般の引張強度、ヤング率の低下、および破断ひずみの増加は、3.1 節で示したように、

- ① 0°方向繊維の面内配向変化
- ② 面外繊維によるランダム層の生成

に起因すると考えられる。

3.3 90°方向の引張特性

90°方向の引張試験による応力-ひずみ線図を Fig. 8 に、引張強度およびヤング率等を Table 4 にそれぞれ示す。Fig. 8 から、UD/EP の傾きと各条件の

Table 4 Tensile test results of UD/EP and NP/EP composites at 90° direction

Fiber form	Number of samples	Volume fraction [%]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Fracture strain [%]
UD	4	69.7	10.9 (0.21)	3.36 (0.25)	0.46 (0.07)
NP1	6	61.1	13.9 (0.34)	5.35 (0.93)	0.42 (0.09)
NP2	3	62.7	12.3 (0.54)	4.55 (0.08)	0.48 (0.08)
NP3	6	59.5	12.1 (1.53)	4.41 (0.15)	0.43 (0.09)
NP4	6	61.8	16.6 (0.76)	5.34 (0.27)	0.71 (0.19)

Values in parentheses show 'standard deviation'

Fig. 8 Stress-strain curves of UD/EP and NP/EP composites at 90° direction

傾きは明らかに異なったまま立ち上がり、その後、UD/EPを除いて、0.15~0.2%以降は非線形な挙動を呈して破壊に至ることがわかる。非線形性がみられたものの、この場合も0°方向の特性と同様に立ち上がりの傾きのちがいと破断ひずみが同程度であることが強度の差異に反映されている。従来の報告によると90°方向の引張強度[9]およびヤング率[16]に関しては、 V_f の変化に対してそれぞれの変化が鈍いので、Table 4では換算せずに両者を比較する。これから、NP/EPの引張強度、ヤング率は、 V_f が低いにもかかわらず、UD/EPより高い傾向にあることがわかる。特にNP4/EPの引張特性は大きく増加し、引張強度が52%、ヤング率が59%とそれぞれ向上した。これから、90°方向は元来、繊維-樹脂界面の脆弱さにより低強度であるが、NP処理による繊維配向変化により、大きな強化効果を得られることが判明した。この改善も3.2節で述べた①②に起因していると考えられる。一方、破断ひずみに関しては、全体的に0.5%前後と低ひずみで破断に至ることが確認された。仮に面外で形成されたランダム層が早期に破断するならば、Table 3で示した0°方向における破断ひずみの増加を説明できない。また、マトリック材に用いたエポキシ樹脂の破断ひずみが5%程度であることを勘案すると、90°方向の破断原因は、繊維-樹脂間の界面破壊であると推測される。

4. 考 察

NP処理にともなう繊維配向変化は、3. 実験結果において①および②のように存在することが判明した。また、各試験片の応力-ひずみ線図において、立ち上

Fig. 9 Schematic of an original layers (fibers and resin layers) and a random layer formed after needle-punch

がりのちがいと破断ひずみが同程度であることがそのまま強度特性の差異に現れていたため、これは繊維配向変化に基づくものと推測される。そこで、本章ではヤング率を対象に繊維配向を考慮したモデリングを行い、①②の影響の度合いを考察する。

4.1 ランダム層のヤング率モデル

一般的に複合則やReuss則、Halpin-Tsai則[17]などは、繊維と母材の体積割合より、複合材料の特性平均値を求める手法であり、繊維層と樹脂層の一对を基本単位としたモデルで表される。しかし、NP/EPではランダム層の存在が認められたので、既存モデルでは説明が困難である。そこで、ランダム層を付加したモデルの提案をまず行う。面外繊維は、Fig. 5で示したように、ランダムに配向しているため、まずFig. 9に示す繊維層と樹脂層、面外繊維を含むランダム層の3要素をユニットとした並列モデルを考える。ここで、Fig. 9において繊維層と樹脂層を合わせたものをオリジナル層と呼称する。ランダム層はNP処理によりオリジナル層から繊維と樹脂が流入することで形成されるとし、全繊維からの流入割合を ω_f 、全樹脂からの流入割合 ω_m とおく。このとき、全体に対するランダム層の占有率 P_r およびオリジナル層の占有率 P_o は、それぞれ

$$P_r = \omega_f V_f + \omega_m (1 - V_f) \quad (5)$$

$$P_o = (1 - \omega_f) V_f + (1 - \omega_m) (1 - V_f) \quad (6)$$

となり、 $P_r + P_o = 1$ である。ここで、本研究ではNP処理による①の定量化が困難なので、①が生じず、②のみ生じると仮定して議論を進める。つまり、UD/EPにオリジナル層が付加された複合材料をモデリングし、これを実験結果と比較することで①の影響を考察する。いま、オリジナル層の繊維体積率をそのまま V_f とお

くと、 V_f を変えることなくランダム層を形成させるためには、 $\omega_f = \omega_m$ でなければならない。この条件ではランダム層の繊維体積率も V_f となる。このとき、複合材料全体の x 方向 (0° 方向) ヤング率 E_L と y 方向 (90° 方向) ヤング率 E_T はオリジナル層とランダム層のヤング率 E を用いて

$$E_L = E_{ox}P_o + E_rP_r \quad (7)$$

$$E_T = E_{oy}P_o + E_rP_r \quad (8)$$

と表せる。添え字 ox , oy はそれぞれオリジナル層の x 方向と y 方向、添え字 r はランダム層を表す。ここでは、ランダム層のヤング率 E_r を x , y 方向の如何によらず等価と仮定している。また、式(7)におけるオリジナル層のヤング率 E_{ox} は式(4)に等しくなる。また、 E_{oy} は次のように Reuss 則により

$$E_{oy} = \frac{E_f E_m}{E_m V_f + E_f (1 - V_f)} \quad (9)$$

あるいは Halpin-Tsai 則により

$$E_{oy} = E_m \frac{1 + \xi \eta V_f}{1 - \eta V_f} \quad (10)$$

と表わされる。ここで、

$$\eta = \frac{E_f/E_m - 1}{E_f/E_m + \xi}$$

$$\xi = 2 + 40V_f^{10}$$

である [18]。

Table 3 および Table 4 で示したように、NP/EP の V_f は UD/EP より低い傾向にあった。ここで試験片破断面の写真を Fig. 10 に示す。Fig. 10 において横方向が厚さ方向である。Fig. 10 から UD より NP3 の方が横方向に配向する繊維量が多く、この配向の変わった繊維が圧縮成形時に抵抗して変形しにくくなり、またランダム層中では UD/EP と比較して樹脂が抜けきれず、残留することが原因であると考えられる。そこで、ランダム層内の残留樹脂率を UD/EP 内の樹脂に対する比率 α として定義する。これにより Fig. 11 に示すモデルのように各層の占有割合が変化する。これから、

Fig. 10 Fracture surfaces of UD and NP3 specimens

Fig. 11 Schematic of fibers and resin flow from an original layer into a random layer, and retained resin

ランダム層内に $\alpha(1 - V_f)$ ほど樹脂が残留し、全体量が $1 + \alpha(1 - V_f)$ に変化するので、複合材料全体の繊維体積率 V_f' は次式に示す V_f' に変化する。

$$V_f' = \left\{ 1 / (1 + \alpha(1 - V_f)) \right\} V_f \quad (11)$$

これにより、ランダム層の占有率 P_r は式(5)から次式のように変化する。

$$P_r = \frac{\omega_f + \alpha(1 - V_f)}{1 + \alpha(1 - V_f)} \quad (12)$$

ここでは $\omega_f = \omega_m$ を仮定している。式(11)において、 $\alpha \ll 1/(1 - V_f)$ のとき、後述のように ω_f は小さい値をとるので $P_r \approx \omega_f + \alpha(1 - V_f)$ が成立する。よって、本研究のように樹脂残留がさほど多くない場合、 α の増加とともに P_r は線形的に増加することになる。式(11) (12) より、試験片全体の繊維体積率 V_f' は次のように表せる。

$$V_f' = \frac{1 - P_r}{1 - \omega_f} V_f \quad (13)$$

ここでオリジナル層の繊維体積率 V_f は 0° 方向引張において 0.626, 90° 方向引張において 0.697 にそれぞれ相当する。 ω_f がわかれば、式(13)にこれらの値と NP/EP 材の各繊維体積率 V_f' を代入すると、 P_r が得られ、さらには α も求められる。

ここで、繊維の弾性定数について検討する。前述のように 0° 方向の実験結果からは $E_f(0^\circ) = 57.2$ GPa が得られた。また、式(9) (10) にそれぞれ示す Reuss 則と Halpin-Tsai 則に実験値を代入して 90° 方向の繊維のヤング率を求めたところ、少数第 2 位まで同値であり、 $E_f(90^\circ) = 3.43$ GPa が得られた。これから、 0° と 90° 方向では繊維のヤング率が明らかに異なっており、亜麻繊維の異方性が大きいことがわかった。植物系天然繊維はマイクロフィブリルによるらせん構造を持っており、これによる天然繊維の機械的特性への影響が研究されている。例えば、Hearle ら [19] は天然繊維内でマイクロフィブリルがらせん構造をとることで起こる影響をマイクロフィブリルと非晶質からなる複合材料を仮定して議論しており、Baley ら [20–22] は横方向とせん断

負荷に対して亜麻繊維の弾性挙動が極めて低いことを指摘している。また、Baley らは天然繊維が‘ルーメン’と呼ばれる穴を繊維中心にもつ中空円筒型であることから、マイクロフィブリルのらせん構造を解繊して一方向板材と仮定する提案をしている。そこで本研究では Baley らが提案している仮定を採用し、亜麻繊維を一方向に配列したマイクロフィブリルとフィブリル間の非晶質をマトリックスとする直交異方性複合材料として考える。ここで、単層板の直交異方性理論によると、 θ 方向のヤング率 $E_f(\theta)$ は、繊維方向のヤング率 E_1 、繊維直交方向のヤング率 E_2 、面内のせん断弾性率 G_{12} 、ポアソン比 ν_{12} を用いて

$$\frac{1}{E_f(\theta)} = \frac{\cos^4\theta}{E_1} + \frac{\sin^4\theta}{E_2} + \cos^2\theta \sin^2\theta \left(\frac{1}{G_{12}} - \frac{2\nu_{12}}{E_1} \right) \quad (14)$$

と表せる。本研究では、実験結果から得られた値として $E_1 = E_f(0^\circ) = 57.1$ GPa, $E_2 = E_f(90^\circ) = 3.43$ GPa を用い、また Baley らの文献値[22]を参考に $G_{12} = 2.41$ GPa, $\nu_{12} = 0.498$ として式(14)を活用する。

さて、NP 処理によって繊維配向は、3.1 節で検討したように、 x - y 平面上に一樣に分布する。よって、ランダム層内では負荷方向にかかわらず繊維が発現されるヤング率は同値である。このランダム層内の繊維の平均ヤング率を $\bar{E}_f$ とし、繊維配向分布の確率密度関数を $f(\theta)$ とおくと、

$$\bar{E}_f = \int_{-\pi/2}^{\pi/2} E_f(\theta) f(\theta) d\theta \quad (15)$$

と表すことができる。また、 $f(\theta)$ を一様分布とおくと、区間 $-\pi/2$ から $\pi/2$ において $f(\theta) = 1/\pi$ と与えられる。本研究では、式(14)で得られる $E_f(\theta)$ を代入し、これを数値積分して平均値を算出することで $\bar{E}_f = 12.8$ GPa を得た。ここで、ランダム層内の繊維体積率 V'_{fr} は、残留した樹脂流入割合 $\alpha(1 - V_f)$ と $\omega_f = \omega_m$ を考慮して、

$$V'_{fr} = \frac{\omega_f V_f}{\omega_f + \alpha(1 - V_f)} \quad (16)$$

と表すことができる。これを用いて、次式に示すように、ランダム層のヤング率 E_r を求めることができる。

$$E_r = \bar{E}_f V'_{fr} + E_m(1 - V'_{fr}) \quad (17)$$

さらに、これを式(7)(8)に代入して、全体のヤング率 E_L , E_T を求めることができる。

4.2 繊維の流入割合 ω_f の決定と解析結果

ランダム層の影響を定量的に明らかにするには、その占有率 P_r を押さえておく必要がある。そこで、式(12)における ω_f を決定するために、NP1 から NP4 に対して、ニードルによる繊維の引っ掛かり数を実験的

に調査した。ここでは、NP 処理に用いたニードル 1 本を繊維束に挿入し、裏側に押し出される繊維数を目視でカウントすることで測定した。その結果を Table 5 に示す。これより、NP 数の増加に伴って ω_f の値も増加することがわかる。しかし、ニードルが一度貫通した場所に再貫通して繊維がバープに引っ掛かりにくくなる場合があり、NP 数に比例して増えるわけではない。これから、 ω_f は NP 数最大の NP4 の条件においても 1.83% と低い値であることが判明した。

Fig. 12 に P_r の変化にともなうヤング率の理論曲線 E_L , E_T および NP/EP, UD/EP の実験値をプロットした結果を示す。また、点線は式(12)において $\alpha = 0$ を代入した値、すなわち ω_f のレベルであり、 P_r がこのレベルを起点に増加することを意味する。なお、Fig. 12 では $\omega_f = 0.0183$ の場合を示しているが、その他の ω_f を代入しても解析結果に差異がほとんど生じないことを確認した。先に触れたように、実線は②の影響のみを表わすものであり、 0° 方向では P_r の増加にともなって UD/EP のレベル(白抜き○印)から減少することがわかる。実験結果のプロット点も徐々に低下しており、その傾向は黒実線の推移と類似している。しかし、実験点は①②双方の影響を含んでいるので、両者の開きが①の影響であると考えられる。一方、 90° 方向における青実線は UD/EP のレベル(白抜き○印)とさほど変わらない。これは、 P_r が ω_f 程度の値をとるとき、式(8)に示すようにオリジナル層のヤング率の影響が大きくなり、UD のヤング率に近づくことに関連する。すなわち、 $P_r = 0.128 \sim 0.187$ の範囲では V'_{fr}

Table 5 Fiber content flowing into the random layer

Fiber form	$N_f/(1.25\text{mm}^2)$	ω_f	Ratio to NP100
NP1	9.6	0.00543	1.00
NP2	18.7	0.0106	1.95
NP3	27.4	0.0155	2.85
NP4	32.3	0.0183	3.37

N_f : Number of fibers

Fig. 12 Comparison between theoretical and experimental Young's moduli with change in P_r of UD/EP and NP/EP composites (In the solid lines, only the effect of fiber orientation change ② is included)

が5.6～8.8%にあり、そのため式(17)に示す $\bar{E}_f$ があまり効かずマトリックスのヤング率の影響が強くなるからである。実際の計算値ではマトリックスのヤング率が3.2 GPaであるのに比べて E_r 値は0.8 GPa程度しか上回っていなかった。実験値は①の影響も含まれているので、青実線との差異は①による影響の度合いを表わしている。すなわち、90°方向におけるヤング率の繊維配向変化は①の影響が大きいと判断できる。

以上から、NP処理後の繊維配向変化のヤング率へ及ぼす影響は①による度合いが大きく、面外繊維によるランダム層の生成を抑えることで90°方向の特性を引き上げるだけでなく0°方向の特性を大きく下げずに維持できると推測される。

5. 結 言

本研究では、一方向シート状亜麻繊維スライバーにニードルパンチ(NP)処理を行い、繊維配向変化が複合後の引張特性に及ぼす影響を調査した。以下に得られた結果を要約する。

- NP処理による繊維配向変化は大きく2つに分けられた。すなわち、①0°方向繊維の面内配向の変化、および②ニードルによって繊維束外に押し出された繊維の配向変化である。前者は定量化が困難であるが、後者は配向変化の測定が可能であり、概ねランダムな配向を取った。
- 0°方向の引張特性はNP処理によって強度、ヤング率ともに低下する傾向にあり、NP4においてUDと比較して引張強度で18.4%、ヤング率で8.4%減少した。一方、破断ひずみは増加する傾向にあり、NP3においてUDと比較して22.4%もの向上がみられた。90°方向の引張特性はNP処理によって強度、ヤング率ともに増加し、NP4においてUDと比較して引張強度で52.2%、ヤング率で58.9%の大幅な向上がみられた。0°方向の複合材破断時に繊維が受け持つ応力以外は、NP数との明確な関連性を示さなかった。
- NP処理による複合材料ヤング率に及ぼす影響を調べるために、②の影響のみを有する複合材料をモデル化し、①②双方の影響を含む実験値との比較を行った。その結果、0°方向のヤング率において、①②双方がその変化に影響を及ぼし、ランダム層の占有率が大きくなるほど②の影響が大きくなることがわかった。具体的には②の影響によりランダム層の占有率 $P_r=0.25$ のとき0°方向ヤング率は22.7%の減少がみられた。また、90°方向のヤング率は、主に①による影響の度合いが大きいと判断された。このことから面外繊維によるランダム層の生成を抑えることで90°方向の特性を引き上げるだけでなく0°方向の特性を大きく下

げずに維持できると推測される。

参考文献

- CELC European Scientific Committee, *Flax and Hemp fibres: a natural solution for the composite industry*, (2012) JEC Composites.
- D. E. Akin, J. A. Foulk, R. B. Dodd, D. D. McAlister, *Journal of Biotechnology*, **89**, pp.193-203 (2001).
- M. Miao, M. Shan, *Composites Science and Technology*, **71**, pp.1713-1718 (2011).
- EcoTechnilin Home Page : <https://eco-technilin.com/en/>
- T. Piyatuchsananon, B. Ren, K. Goda, Chapter 4, 57-76, *Natural and Artificial Fiber-Reinforced Composites as Renewable Sources*, edited by Ezgi Günay, (2018) IntechOpen.
- B. Ren, J. Noda, K. Goda, *Journal of the Society of Materials Science*, Volume 59, Issue 7, pp.567-574 (2010).
- B. Ren, T. Mizue, K. Goda, J. Noda, *Composites Structures*, **94**(12), 3457(2012).
- T. Piyatuchsananon, A. Furuya, B. Ren, K. Goda, *Advances in Materials Science and Engineering*, **2015**, Article No. 345398(2015).
- T. Nomura, Y. Kataoka, Y. Date, K. Goda, *Journal of Fiber Science and Technology*, **75**(6), pp.63-71(2019).
- J. Flynn, A. Amiri, & C. Ulven, *Materials and Design*, **102**, 21 (2016).
- Y. Iwahori, T. Ishikawa, N. Watanabe, A. Ito, Y. Hayashi, S. Sugimoto, *Journal of the Japan Society for Composite Materials*, **32**(3), 127 (2006).
- S. C. Dai, W. Yan, H. Y. Liu and Y. W. Mai, *Compos. Sci. Technol.*, **64**, 2451(2004).
- Y. Morikawa, K. Obunai, T. Fukuta, K. Ozaki, *Transactions of Society of Automotive Engineers of Japan*, **47**(3), 801 (2016).
- T. Kusaka, K. Watanabe, M. Hojo, T. Fukuoka and M. Ishibashi, *Journal of the Japan Society for Composite Materials*, **34**, 102 (2008).
- T. Itabashi, Y. Iwahori, N. Watanabe, M. Ishibashi, F. Takeda, T. Ishikawa, CD-ROM Proceedings of 16th International Conference on Composite Materials (ICCM-16), (Kyoto, 2007).
- S. Ogihara, Chapter 3, *Mechanics of Composite materials(Introduction to Engineer Beginners)* edited by Hiroshi Suemasu, Baifukan, 71 (2009).
- J.C. Halpin, S.W. Tsai, *Effects of Environmental Factors on Composite Materials AFM-TR- 67*

- (1969).
18. RL. Hewitt, An approximation for longitudinal shear modulus of continuous fiber composites. *J Compos Mater* 1970;4:280.
 19. JWS. Hearle, *J Appl Polym Sci.*, Vol. 7, 1207–23 (1963).
 20. C. Baley, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **33**(7), 939 (2002).
 21. C. Baley, Y. Perrot, F. Busnel, H. Guezenoc, and P. Davies, *Materials Letters*, **60**(24), 2984 (2006).
 22. D. Scida, A. Bourmaud, and C. Baley, *Materials and Design*, **122**, 136 (2017).