

引き抜き成形法による天然繊維/生分解性樹脂グリーンコンポジットの開発と高温引張り特性

日大生産工(院) 松田 匠
日大生産工 邊 吾一

1. 緒言

近年、私達の生活空間には数多くのプラスチック材料が使用されている。しかし、そのプラスチックのほとんどが石油を原料としているため、燃焼廃棄では二酸化炭素の排出、土壌廃棄では半永久的に土壌に残留するという課題を抱えている。

そこで現在、石油由来のプラスチック材料の代用品として、土壌で分解する植物由来の生分解性樹脂と強化材として天然繊維を複合させた環境負荷低減型複合材料、すなわちグリーンコンポジットが注目されている。

本研究では、撚り糸状ケナフ繊維束と生分解性樹脂からなるグリーンコンポジットの成形手法の開発とその高温時も含めた引張り特性を実験で評価することを目的とする。生分解性樹脂には植物由来のPLA (Poly lactic acid) と、現在は石油由来であるが、植物から取り出す研究が行われているPBS (Poly butylene succinate) を用いた。

2. 構成材料

連続成形である引き抜き成形を行うために連続繊維である撚り糸状ケナフ繊維束(ユニバックス製、繊維直径0.8mm)(Fig.1)と押出機に投入するPLAペレット(三井化学製、粒径約4mm)(Fig.2左側)とPBSペレット(昭和高分子製、粒径約3mm)(Fig.2右側)を用いた。また、PLAのガラス転移点は58℃、融点は148℃であるが、PBSは熱変形温度の97℃まで室温と同じ特性を示し、融点は114℃であった。



Fig.1 Yarned Kenaf fiber bundle



PLA pellets

PBS pellets

Fig.2 Matrix of green composite

3. 成形方法

Fig.3に引き抜き成形の概略図を示す。成形には、押出機(Fig.4)と引取機(Fig.5)を使用した。熱硬化性樹脂の場合は一般的に樹脂槽を用いるが、今回は熱可塑性の樹脂を用いたため、樹脂を溶融して液状化するために用いたが、押出機が重要な役割を担っている。強化繊維として、ポピンに巻いた撚り糸状ケナフ繊維束(以後ケナフ繊維と示す)を40本用意した。その束をまず押出機に通し、ケナフ繊維に融解した樹脂を含浸する。次に、形状を整えることと樹脂と繊維の含浸性を高めるために加熱した金型(断面寸法15×2mm)に通し、引取機で引き抜いた。金型の入口に余分な樹脂が溜まりそれにより繊維に張力をかけた状態で成形することが可能となった。また、押出機を通り抜けた繊維と樹脂は金型を通過することで徐々に冷却されるが、最後の引取機により成形速度を調節した。この成形方法を用い、PLAを用いた試験体とPBSを用いた試験体の二種類の複合材を得たが、それぞれの成形条件についてTable 1と2に示す。

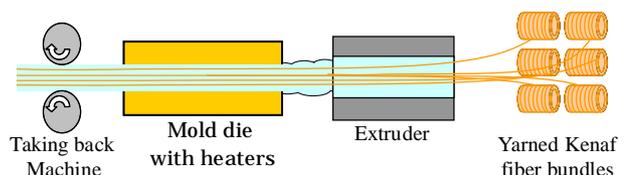


Fig.3 Schematic view of pultrusion molding

Development and Tensile Properties at High Temperatures for
Green Composites Composed of
Natural Fiber/Biodegradable Resin with Pultrusion Method
Takumi MATSUDA, Goichi BEN

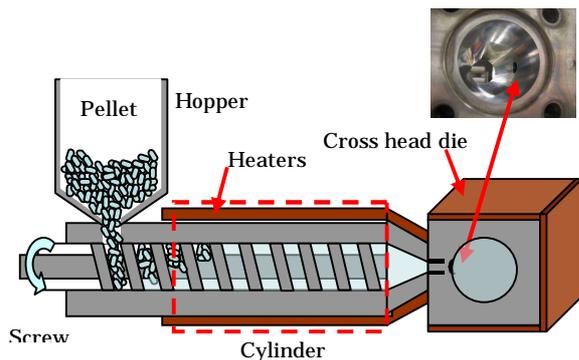


Fig.4 Schematic view of extruder

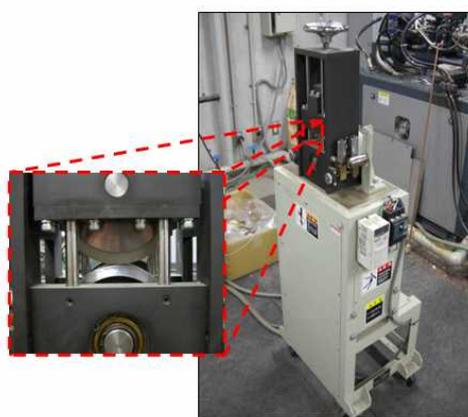


Fig.5 Taking back machine

Table 1 Pultrusion molding condition (PLA)

Cylinder Temperature [°C]	185
Temperature of cross head die [°C]	185
Die Temperature [°C]	150
Screw Revolution [rpm]	3~4
Pulling speed [mm/min]	41

Table 2 Pultrusion molding condition (PBS)

Cylinder Temperature [°C]	190
Temperature of cross head die [°C]	190
Die Temperature [°C]	140
Screw Revolution [rpm]	3~4
Pulling speed [mm/min]	41

4. 静的引張試験

4.1 試験方法

成形した連続的な試験体を 160mm ずつにダイヤモンドカッターにより切断し、 $2 \times 15 \times 160$ mm の短冊状にした。標点間距離が 100mm となるように両端にタブを接着し試験片とした。試験速度 1mm/min で引張試験を行った。

4.2 試験結果

静的引張試験結果を Table 3 に示す。比較のために加熱圧縮成形した 0° 繊維強化材 (UD 0°) の試験結果¹⁾を併せて示す。また PLA を用いた試験体と PBS を用いた試験体の代表的な応力 - ひずみ線図を Fig.6 と 7 に示す。

引張試験結果から PLA/Kenaf 材における引き抜き成形品の引張強度は樹脂単体と比べて約 3 倍の値を示し、弾性率においては約 4 倍の値を示した。また、PBS/Kenaf 材における引き抜き成形品の引張強度は樹脂単体と比べて約 3 倍の値を示し、弾性率においては約 12 倍の値を示した。更に引抜き成形品は、加熱圧縮成形品の UD 0° と比較して PLA を用いた試験体と PBS を用いた試験体は共に、引張強度および弾性率が向上し、かなりの高強度の複合材を成形することができた。

Table 3 Results of tensile test

	Vf [%]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	
PLA	PLA alone	0	54.9	3.4
	Hot press molding UD 0°	38	112.3	11.8
	Pultrusion molding UD 0°	30	152.4	13.5
PBS	PBS alone	0	30.4	0.8
	Hot press molding UD 0°	38	86.2	8.8
	Pultrusion molding UD 0°	27	98.3	10.2

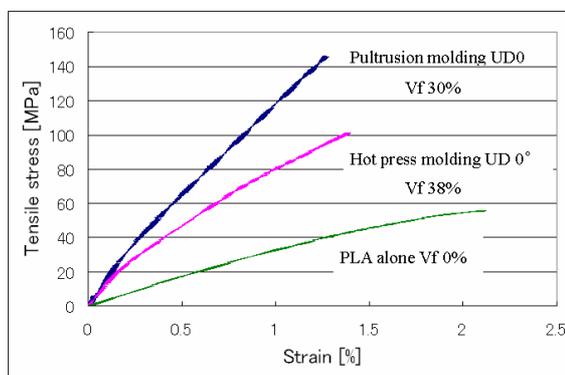


Fig.6 Stress-strain curves of PLA/kenaf composite and PLA alone

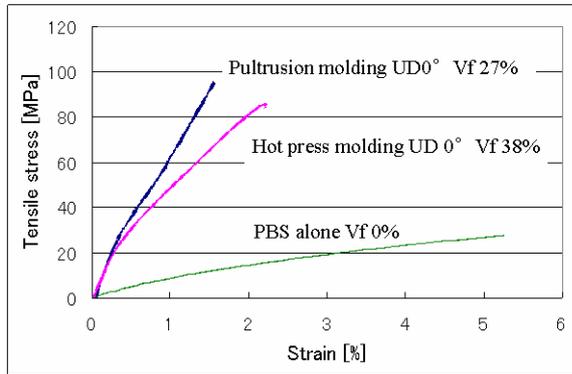
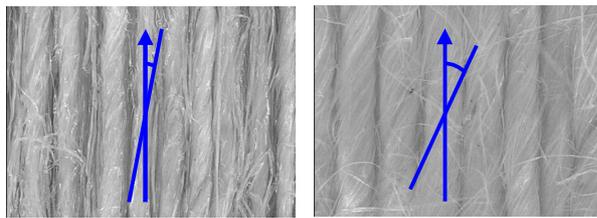


Fig.7 Stress-strain curves of PBS/kenaf composite and PBS alone

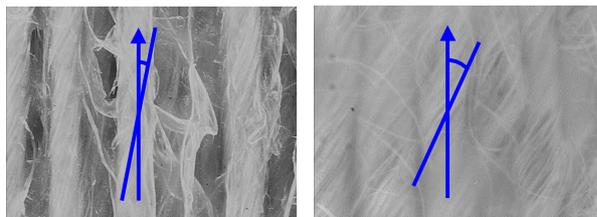
5. 断面観察

Fig.8と9にそれぞれのグリーンコンポジットの引き抜きと加熱圧縮成形品の表面と光学式顕微鏡（50倍）により観察した試験片断面をそれぞれ示す。両成形法の写真を比較すると同じ繊維束を用いたが、成形後の繊維直径が異なることから、引き抜き成形において張力をかけた状態で成形できていることが確認できる。

また、試験片断面の写真より、加熱圧縮成形では張力がかかっていない状態で成形したことから、加熱圧縮時に繊維の撚りを緩めてしまい、試験体の表面写真から見て取れるように繊維方向が引張方向から傾いてしまう。引き抜き成形では張力を掛けながら成形したことで繊維方向が引張方向とずれないため、引き抜き成形法による引張強度・弾性率の向上が達成できたと考えられる。



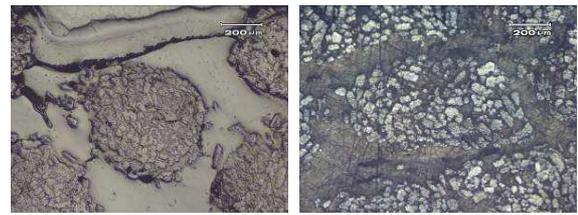
PLA/Kenaf



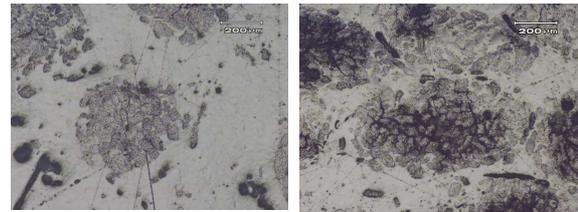
PBS/Kenaf

Pultrusion molding Hot press molding

Fig.8 Aspect of outer surface



PLA/Kenaf



PBS/Kenaf

Pultrusion molding Hot press molding

Fig.9 Cross section of both green composites

6. 高温下での引張試験

6.1 試験方法

常温では、PLA樹脂を用いた複合材のほうが高い引張り特性を持っていたが、ここでは、高温下での引張試験を行い、高温下での引張り特性について評価した。これまでの試験機に高温槽を設置して試験温度 25, 50, 100 において試験を行った。

6.2 高温下での引張試験結果

6.2.1 引き抜き成形品と樹脂単体の比較

引き抜き成形法による PLA を用いた試験体と PBS を用いた試験体の、高温下における代表的な応力 - ひずみ線図を図.10 と 11 に示す。比較のために樹脂単体の高温下での引張試験の結果¹⁾を併せて示す。

PLA 単体ではガラス転移点の 58 に近づくため、軟化し、50 以上では結果を得られなかった。次に PLA/Kenaf 材ではケナフ繊維を複合していることにより 50 においても常温の約 6 割の強度を示したが、100 では PLA 単体と同様に結果は得られなかった。PBS 単体では 100 では結果を得られなかったが、PBS/Kenaf 材は 100 においては常温の約 5 割の強度保持を示した。これより、PLA と PBS 両方の樹脂において、ケナフ繊維の補強効果による高温下での引張り特性の向上が確認できた。

6.2.2 PLA/Kenaf 材と PBS/Kenaf 材の比較

引き抜き成形法と加熱圧縮成形法により作成した PLA/Kenaf 材と PBS/Kenaf 材の高温下での引張試験の結果を Table 4 に示す。

25 において、引き抜き成形品、加熱圧縮成形品ともに PLA/Kenaf 材は PBS/Kenaf 材より高い値を示した。そして、50 において、PLA/Kenaf 材と PBS/Kenaf 材の引張強度は近い値となり、100 において、PLA/Kenaf 材の引張強度は樹脂の軟化により結果を得られなかった。それに対し、PBS/Kenaf 材は常温の約 5 割の強度保持を示した。

また弾性率においても、25 では、PLA/Kenaf 材のほうが PBS/Kenaf 材よりも高い値を示したが、50 において、PLA/Kenaf 材と PBS/Kenaf 材の弾性率は近い値となり、100 において、PLA/Kenaf 材の弾性率は樹脂の軟化により結果を得られなかった。それに対し、PBS/Kenaf 材は 7 割以上の弾性率を保持した。これらの結果より、PBS/Kenaf 材の方が、PLA/Kenaf 材よりも高い耐熱性があることを示した。

Table 4 Results of tensile test at different temperatures

Test temperature [°C]	Tensile strength [MPa]			
	PLA/kenaf UD 0°		PBS/kenaf UD 0°	
	Pultrusion molding	Hotpress molding	Pultrusion molding	Hotpress molding
25	152.4	112.3	98.3	86.2
50	92.4	81.7	84.1	85.7
100	N.A.	N.A.	51.6	50.4
Test temperature [°C]	Young's modulus [GPa]			
	PLA/kenaf UD 0°		PBS/kenaf UD 0°	
	Pultrusion molding	Hotpress molding	Pultrusion molding	Hotpress molding
25	13.5	11.8	10.2	8.8
50	8.7	6.6	8.0	8.7
100	N.A.	N.A.	7.8	7.0

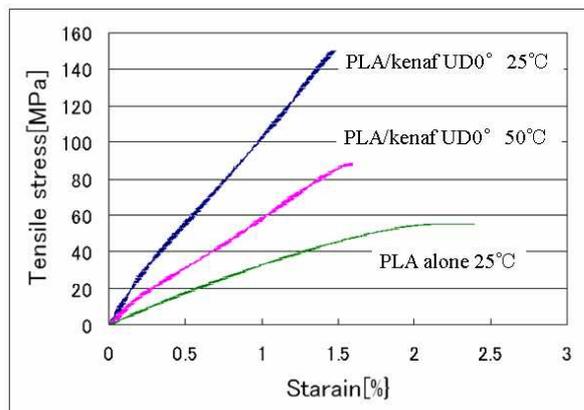


Fig.10 Stress-strain curves of PLA composite and PLA alone at different temperatures

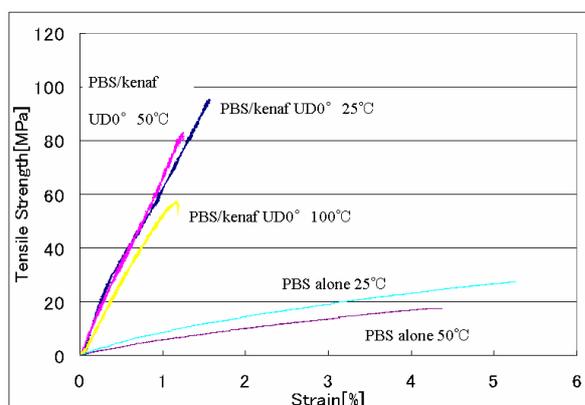


Fig.11 Stress-strain curves of PBS composite and PBS alone at different temperatures

7. 結言

- 1) 撚り糸状ケナフ繊維束と押出機を用いた、引き抜き成形法により連続成形が可能であることを示した。
- 2) 撚り糸状ケナフ繊維束を PLA, PBS に複合化させることで生分解性樹脂の強度・弾性率の改善が可能であることが確認できた。また高温下の引張試験結果から、高温においても、ケナフ繊維の補強効果が確認できた。
- 3) 引抜き成形では、撚り糸状ケナフ繊維束に張力をかけながら成形することにより、高い引張強度と剛性を与えることを示した。
- 4) 高温下において PBS/Kenaf 材の方が、PLA/Kenaf 材よりも高い引張り特性を示した。このことから PBS の高い耐熱性を確認できた。

「参考文献」

- 1) 邊, 松田: 第 32 回複合材料シンポジウム 講演要旨集 P.55-56 (2007年, 10月)
- 2) 邊, 松田: 日本複合材料学会 2007 年度研究発表講演会予稿集 P.27-28 (2007年, 5月)
- 3) 邊, 木原: JCOM-36 講演論文集 - 材料・構造の複合化と機能性に関するシンポジウム - P.1-5 (2007年, 3月)