

プレス成形および射出成形による 竹繊維グリーンコンポジットの開発

合田公一(機械工学科) 北村佳之(機械工学専攻) 大木順司(機械工学科)

Development of Bamboo Fiber Green Composites by Press Forming and Injection Molding

Koichi GODA (Mechanical Eng.)

Yoshiyuki KITAMURA (Master of Mechanical Eng.)

Junji OHGI (Mechanical Eng.)

The purpose of this study is to apply bamboo fibers to biodegradable resin matrix composites, the so-called “green” composites, preferably in place of practical engineering plastics. Press forming and injection molding were used for fabrication of the composite. The result showed that the composite by press forming was 36.2 MPa in tensile strength and 5.91 GPa in Young’s modulus. The composite was also compared with the composite fabricated by injection molding. The latter indicated about a half in both strength and modulus, because bamboo fibers were damaged during fabrication by injection molding and largely decreased in length.

Key-words: Bamboo, Green composites, Biodegradable resin, Press forming, Injection molding, Mechanical properties

1. 緒言

竹はザルや籠などの生活用具，仕上材・造作材などの建築材料を始め，古来より我々の生活に密着した貴重な資源である。しかし，20世紀における石油化学工業の発展により，フェノール樹脂を始め，ポリエチレン，ポリプロピレン，ポリカーボネートなどの合成樹脂の開発に加え，ガラス繊維を始めとする繊維強化プラスチック（FRP）の台頭によって用途が限定されるようになった。しかも，最近では住宅地に広がって地下茎が住宅の基礎や給排水管を破壊するような問題も引き起こしている。このような状況から山口県の竹業界では，竹本来の優れた機能を生かすことなく，その処分・廃棄法を検討しているそうである。

一方，竹は再生可能な資源であり，近年，環境にやさしい天然素材として再評価されている。竹パルプを用いたコーヒー用フィルターや竹繊維の混入した衣服，竹紛ボード，さらに竹繊維で強化した生分解性複合材料（グリーンコンポジット）の開発などがその例である。また，材料リサイクルの観点から，自動車産業を中心にガラス繊維の代替材としても竹の可能性が期待されている。

以上の背景から，当研究室では竹材を無駄に廃棄することなく，その優れた強度・剛性を有効に利用

することを目的としている。本報では，前報¹⁾のプレス成形に加えて，射出成形による竹繊維グリーンコンポジットの作製を試みるとともに，材料内の竹繊維の強度発現性について考察を加えたものである。

2. 実験方法

2-1. 供試材料

強化材の竹繊維は，市販の孟宗竹（中国産）である。この竹繊維をローラーにかけて木質部をだまかに落とした後，ふるいにかけて繊維径別に分級したものを使用した。これは直径0.125～0.225mm，長さ5～50mmの範囲に分級されたものである。供給状態の竹繊維の外観写真を Fig.1 に示す。マトリックス材として粉末状の生分解性樹脂（商品名：コーンポ



Fig.1. Appearance of chopped bamboo fibers

ール CP-5, 日本コーンスターチ社製) を用いた. この粉末 4g をメチルエチルケトン (または酢酸エチル) 6g に分散させた溶剤を使用した. なお, 別途実施した引張試験よりマトリックス材のみの引張強度は 8.16MPa, ヤング率は 590MPa であった.

2-2. 複合材料の作製法

竹繊維 1g を上述した溶剤に混入した後, これを離型剤 (バンティコ (株), QZ13) を塗布し金型に流し込み, 150°Cまで加熱するとともに, 水分蒸発後, 耐圧熱板付プレス機 (容量 20ton) で圧力 13.1MPa を加えた. この際, 加圧は金型を 150°Cから冷却させながら実施した²⁾. 得られた複合材料の外観を Fig.2 に示す. これを Fig.3(a)に示す寸法と形状の試験片に加工した.

一方,竹繊維 1g を上述した溶剤に混入したものを恒温乾燥器中で 150°C, 2 時間加熱したものをペレット状に切断し, 微小試料用射出成形機 (株新興セルビック社製) を用いて射出成形した. この際, 金型内に混練物が完全に充填されるよう成形条件を検討した. その結果, シリンダー温度 155°C, ノズル部温度 169°C, 射出圧 11MPa を得た. 得られた複合材料を Fig.3(b)に示す寸法と形状の試験片に加工した.



Fig. 2. Appearance of the fabricated bamboo/ biodegradable resin composite by press forming.

2-3. 試験方法

引張試験はインストロン型引張圧縮試験機(島津社製オートグラフ IS5000)を用いて行った. 試験片はともにゲージ部の長さを 30mm とし, 引張速度を 0.5mm/min とした.

3. 実験結果及び考察

3-1. 複合材料試験片の引張試験結果

プレス成形および射出成形により作製された試験片をそれぞれ 3 本ずつ引張試験した. その結果の平均値を Table 1 に示す. また, 応力-ひずみ線図の一例を Fig.4 に示す. この際, 射出成形において, 繊維長が 5~50mm と大きいため射出圧が十分掛からず, 金型内を充填できない場合があった. そこで, シリンダー内における混練操作を 2 回および 3 回以上繰り返した結果を示す. これから, プレス成形材に関して, 今回得られた粉末状生分解性樹脂による複合材料の機械的性質は, 前報¹⁾で得られた液状生分

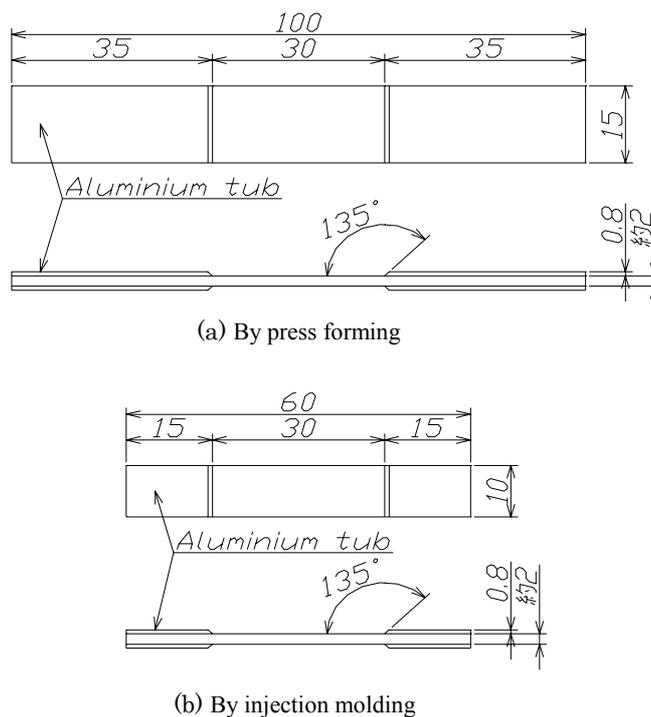


Fig. 3. Shape and dimension of tensile specimens

解性樹脂による複合材料に比べて全般にやや劣るものの, 依然として実用エンジニアリングプラスチックの機械的性質と同等のレベルにあることが判明した. 一方, 射出成形材の引張強度はマトリックス材のおおよそ倍程度であり, 強化効果は小さい. プレス成形材に比べると引張強度およびヤング率ともに大きく下回った. 以上の結果は材料内の繊維長のちがいに依存するものと考えられ, 次節以降で考察する. なお, Fig.4 からわかるように 3 回以上繰り返して得た試験片が 2 回の場合より引張強さが高く, 破断ひずみも大きい場合がみられた. 一般に, 一度得られた射出成形材を細断し再度射出成形すると材料内の繊維の繊維長が短くなるため, この操作を繰り返すにつれて強度が下がる. しかし, 2 回の混練でも竹繊維と樹脂が十分に均一に混ざらない試験片が存在したため, 逆の結果が得られたものと考えられる.

Table 1. Tensile properties of fabricated composite specimens

| | Press forming | Injection (2-times) | Injection (3-times or more) |
|------------------------|---------------|---------------------|-----------------------------|
| Tensile Strength (MPa) | 36.2 | 16.3 | 16.2 |
| Ultimate Strain (%) | 0.65 | 0.58 | 0.79 |
| Young's modulus(GPa) | 5.91 | 3.10 | 3.02 |

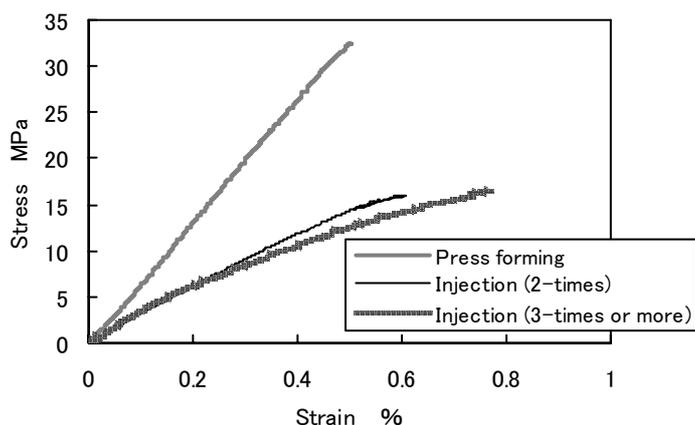


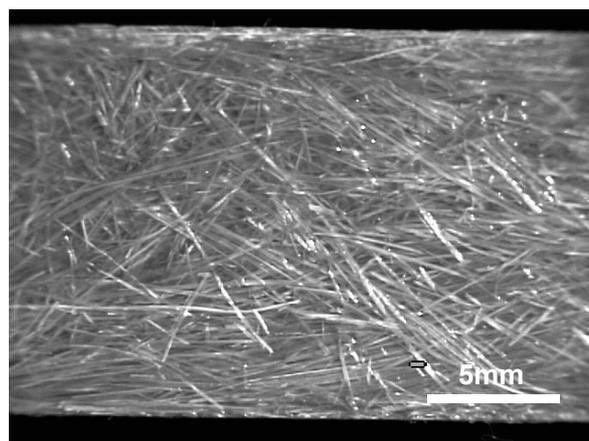
Fig. 4. Stress-strain diagrams of bamboo / biodegradable resin composites

3-2. 繊維長および繊維配向角測定

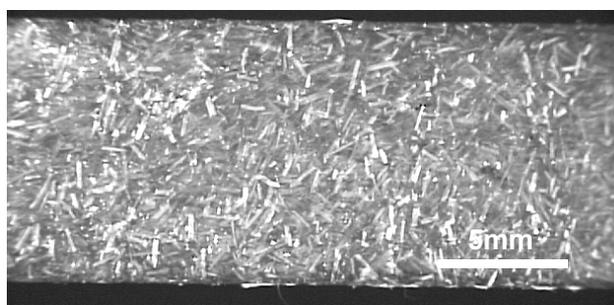
光学顕微鏡 (ECLIPSE ME600, (株)ニコン製) とマイクロスケールを用いて、複合材料内の表面近傍の繊維長を測定した。表面近傍の繊維配向の様相を Fig.5 に示す。また、測定結果の統計的性質を Table 2 に、その分布図を Fig.6 にそれぞれ示す。測定は Fig.5 と同様な表面写真からそれぞれ 100 本の繊維を任意に選んで実施したものである。これから、繊維長は当初の長さ (5~50mm) に比べてともに大きく低下することがわかる。特に、Fig.5, 6 からも明らかのように、射出成形材の繊維長は大きく低下し、ばらつきは小さくなる。これは前述のように、射出成形機による混練時の繊維損傷によるものである。繊維長測定とともに試験片の長手方向に対する配向角測定も実施した。その結果を Fig.7 に絶対値で示す。これから、射出成形材では 0 度および 90 度を中心に配向する割合が多いが、プレス成形材では 0~40 度に比較的多く存在する。前者の配向角は射出時の繊維流動に関連し、特に試験片側面に 0 度方向に配向される繊維が比較的多くみられることが特徴である。これに対し、後者では金型幅が 15mm であることから、竹繊維を金型内に充填する際、長い繊維が金型の枠内で方向性をもって配置されることに起因するものである。なお、繊維長と配向角の相関係数はプレス成形で -0.223、射出成形では -0.066 であった。すなわち、プレス成形材において長い繊維が低角度側により多く配向されることを示す結果となった。

3-3. 短繊維強化理論による強度予測

以上の結果に対して、短繊維強化理論による強度予測に関する考察を行う。いま、繊維直径を d_f 、繊維長を l_f 、マトリックスのせん断降伏応力を τ_{my} とおく



(a) By press forming method



(b) By injection molding (2-times)

Fig. 5. Optical microphotographs of bamboo/ biodegradable resin composites

Table 2. Average and coefficient of variation in bamboo fiber length of the composite specimens

| | Average (mm) | Coefficient of variation |
|-------------------|--------------|--------------------------|
| Press forming | 3.97 | 0.551 |
| Injection molding | 0.980 | 0.235 |

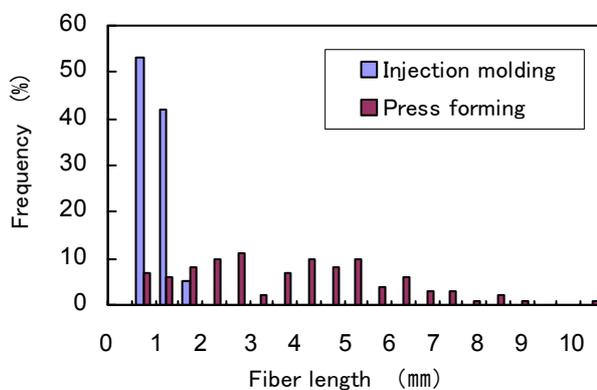


Fig. 6. Fiber length distribution of bamboo fibers in the composite specimens

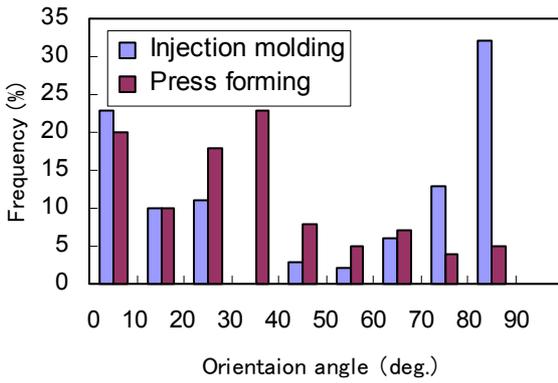


Fig. 7. Orientation distribution in absolute value of bamboo fibers in the composite specimens.

とき、軸方向負荷に対して繊維が受持つ応力 σ_f は次式のように表される³⁾。

$$\sigma_f = 4\tau_{my} \frac{l_f}{d_f} \quad (1)$$

式(1)からアスペクト比 l_f/d_f が大きいほど繊維応力 σ_f は大きくなるのがわかる。式(1)に Table 2 で得られた平均繊維長を代入すると、プレス成形材において 534MPa、射出成形材において 131MPa がそれぞれ得られた。この際、竹繊維の直径に関しては前報¹⁾で得られた単繊維試験結果を流用した。その結果を Table 3 に強度特性と併せて示す。これから、プレス成形材で得られる σ_f は竹繊維の平均強度 368MPa を上回り、十分な強化効果が期待される。一方、射出成形材で得られる σ_f は繊維強度に達せず、繊維は十分に応力を負担できないものと判断される。

短繊維強化複合材料に関する強度 σ_c は一般に次式で与えられる³⁾。

$l_f \geq l_c$ のとき、

$$\sigma_c = \alpha V_f \sigma_f^* \left(1 - \frac{l_c}{2l_f}\right) + (1 - V_f) \sigma_m^{\#} \quad (2)$$

$l_f < l_c$ のとき、

$$\sigma_c = \alpha V_f \frac{\tau_{my}}{d_f} l_f + (1 - V_f) \sigma_m^{\#} \quad (3)$$

ここで、 σ_f^* は繊維強度を示す。 α は繊維配向によっ

て決まる係数であり、例えば、一方向強化の場合、 $\alpha=1$ 、二直交方向強化の場合、 $\alpha=0.5$ で与えられる。 V_f は繊維体積率、 $\sigma_m^{\#}$ は複合材料の破断ひずみに相当するマトリックス応力である。 l_c は、いわゆる臨界繊維長さ³⁾であり、

$$l_c = \frac{d_f}{2\tau_{my}} \sigma_f^* \quad (4)$$

と与えられる。この値は寸法効果によって繊維長に依存して変化するので、ここでは σ_f^* をワイブルの平均強度とみなして、以下の式から数値的に l_c を見積もった。

$$l_c = \frac{d_f}{2\tau_{my}} \sigma_0 \left(\frac{l_c}{L_0}\right)^{-\frac{1}{m}} \Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \quad (5)$$

ここで、 m 、 σ_0 はワイブル形状母数、尺度母数である。 L_0 はワイブル母数推定時のゲージ長さであり、ここでは 10mm である。 $\Gamma(\cdot)$ はガンマ関数を示す。式(5)より $l_c=6.41\text{mm}$ が得られた。Fig.6 で示したように、材料内の繊維長は分布しているので、式(2)(3)を併せて次のように書き換えることができる⁴⁾。

$$\sigma_c = \alpha V_f \bar{\sigma}_f + (1 - V_f) \sigma_m^{\#} \quad (6)$$

ここで、

$$\bar{\sigma}_f = \int_0^{l_c} \frac{\tau_{my}}{d_f} l_f f(l_f) dl_f + \int_{l_c}^{\infty} \sigma_f^* \left(1 - \frac{l_c}{2l_f}\right) f(l_f) dl_f$$

式(6)において、 $f(l_f)$ は繊維長分布の確率密度関数である。竹の密度⁵⁾は 0.80Mg/m^3 であり、計算ではこれを考慮して竹繊維の重量含有率を繊維体積率に換算した。生分解性樹脂の密度は液状生分解性樹脂 (CP-300) を基準にして 1.16Mg/m^3 とした¹⁾。その結果、 $V_f=0.27$ が得られた。また、マトリックスの応力 $\sigma_m^{\#}$ については、生分解性樹脂のみの応力-ひずみ曲線の多項式近似から複合材料の破断ひずみに相当する応力値を求めた。以上の値を式(6)に代入した結果、 $\alpha=1.0$ のとき、プレス成形材に対して $\sigma_c=40.2\text{MPa}$ 、射出成形材に対して $\sigma_c=14.7\text{MPa}$ がそれぞれ得られた。このとき、 $f(l_f)$ に関しては Fig.6 における頻度をそのまま使い、式(6)の数値積分を実施した。

Table 3. Statistical properties of bamboo fiber diameter and strength at G.L. = 10mm.

| Sample number | Average diameter (mm) | Coefficient of variation in diameter | Average strength (MPa) | Coefficient of variation in strength | Weibull shape parameter | Weibull scale parameter (MPa) | Coefficient of correlation |
|---------------|-----------------------|--------------------------------------|------------------------|--------------------------------------|-------------------------|-------------------------------|----------------------------|
| 52 | 0.140 | 0.259 | 368 | 0.436 | 2.74 | 413 | -0.606 |

Fukuda ら⁴⁾によると、 α は繊維の配向角分布に大きく依存し、配向角分布が0~90度で一様に分布する場合、 $\alpha=0.27$ となることを解析的に示している。また、分布の形を余弦関数で近似し、かつ配向角が制限されて例えば0~45度で分布する場合、 $\alpha=0.80$ まで増加する。上述のように、プレス成形材中の繊維配向角も金型枠の形状より制限され、多くはFig.7で示すように0~45度程度で分布する。そこで、便宜上 $\alpha=0.80$ を代入して式(6)から複合材料強度を予測すると、 $\sigma_c=33.3\text{MPa}$ が得られた。この値は実験結果にはほぼ匹敵する。

一方、ガラス短繊維を含んだ熱可塑性樹脂の流動解析によると、薄肉平板中のせん断流れ場に基づき、ガラス短繊維の配向挙動が可能である⁶⁾。この解析結果によると、繊維配向挙動は樹脂流動方向(試験片長手方向)に支配される傾向にある。しかし、試験片の厚さ方向については、内部より表面近傍において流動樹脂の固化の進行が速く、繊維の配向回転の途中で固化が終了して配向が乱れることを示している。すなわち、射出成形材ではFig.5(b)やFig.7で示した繊維配向性より多くの竹繊維が長手方向に配列している可能性が考えられる。射出成形材の配向角分布に関して、今後実験的に確認する必要があるものの、 $\alpha=1.0$ で得られる理論値と実験値がほぼ同じであることは、以上の理由も一要因であると考えられる。

以上のように、プレス成形法によって引張強さ36.2MPa、ヤング率5.91GPaの竹繊維グリーンコンポジットが得られた。これに対し射出成形材では、強度およびヤング率ともにプレス成形法の1/2程度のレベルにあった。射出成形によって繊維が細断され、繊維長の減少によってマトリックス内で強化効果を十分に発揮できないことが主要因である。このことは逆に、プレス成形法は強度発現に必要な繊維長を比較的保持することができ、竹繊維グリーンコンポジットの高強度化に有利であることを示している。

4. 結 言

本研究は、竹材の有効利用を目指し、竹繊維グリーンコンポジットの開発を進めたものである。すなわち、前報¹⁾の手法に従ってプレス成形法による粉末状生分解性樹脂基複合材料を作製し、その強度特性を調査するとともに、射出成形法によって作製し

た同材料の強度特性と比較検討した。得られた結果を要約すると、以下のとおりである。

(1) 粉末状の生分解性樹脂をマトリックス材とする竹繊維グリーンコンポジットをプレス成形法によって新たに作製した。その結果、引張強さ36.2MPa、ヤング率5.91GPaの引張特性が得られた。

(2) 粉末状の生分解性樹脂をマトリックス材とする竹繊維入りペレットを新たに作製した。このペレットを用いて射出成形を実施すると、混練回数1回の場合、良好な試験片は得られない。この試験片を細断後、再度混練し、その回数を増やすことによってより良好な複合材料が得られることを確かめた。引張強度は、混練数2回において16.3MPa、3回以上において16.2MPaであり、プレス成形材の引張強度36.2MPaに比べて大きく低下する。これは、混練時において繊維が損傷し、繊維長が減少したことに起因する。

(3) 繊維強化理論による強度予測を実施した。繊維配向によって決まる係数を適宜選択することにより、理論値と実験値が程よく一致することを示した。しかし、今回用いた理論モデルは繊維端の応力集中の影響を考慮したものではなく、更なる検討が必要である。今回近似的に用いた繊維配向角分布の正確な適用、および正当性の確認を深めるための理論モデルの新たな構築は今後の課題である。

謝 辞 本研究の遂行にあたり、同志社大学教授 藤井 透先生、同大学助教授 大窪和也先生には懇篤なご指導と試料の提供を受けました。また、射出成形機の使用にあたり、山口県産業技術センターの友永文昭氏には多大なるご援助を受けました。記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 合田公一, 浅井隆, 北村佳之, 山口大学工学部研究報告, **52** (2002)
- 2) 合田公一, 浅井隆, 山根達也, 材料, **52** (2003), 掲載予定
- 3) 合田公一・ほか, 機械材料, 機械材料学, (2002), 朝倉書店
- 4) H. Fukuda and T. W. Chou, J. Mater. Sci., **17** (1982)
- 5) 蔣建業, 藤井透, 強化プラスチック, **45** (1999)
- 6) 藤井昌浩, 学位論文, ガラス短繊維強化ポリアミド6のCAE用力的特性予測に関する研究 (2003)

(平成15年8月29日受理)