

生分解性プラスチックによる竹材の有効利用に関する研究

合田公一 (機械工学科) 浅井 隆 (ダイセル化学) 北村佳之 (機械工学科4年生)

Effective Application of Bamboo to Biodegradable Resin Matrix Composites

Koichi GODA (Mechanical Eng.) Takashi ASAI (Daicel Chemical Industries, Ltd.)
and Yoshiyuki KITAMURA (Undergraduate of Mechanical Eng.)

The purpose of this study is to apply bamboo fibers to biodegradable resin matrix composites, preferably in place of practical engineering plastics. Press forming method was used for fabrication of the composite. The result showed that tensile strength of the composite was 51.4 MPa; Young's modulus was 9.60 GPa. Such mechanical properties are comparable to the engineering plastics. The bamboo fiber composite was also compared with biodegradable composites including sawdust, and indicated four times higher in strength. This reason was clarified from the short-fiber reinforcement theory. Finally a theoretical strength of the bamboo fiber composite was predicted from a rule of mixtures, using the mono-filament test result obtained experimentally.

Key-words: Bamboo, Biodegradable resin, Composites, Press forming, Tensile strength, Young's modulus

1. 緒 言

山口県は全国でも有数の竹の産地である¹⁾。周知のように、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。この竹が、近年、所望の形状に容易に成形されるプラスチックの台頭によってその存在が脅かされている。本来ならば、家電製品の外枠や IT 機器パネルなど、竹の優れた強度・剛性を生かす部材応用は多々あるにもかかわらず、フェノール樹脂をはじめ、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネートなど、いわゆる化石資源から得られる合成プラスチックに取って替えられている。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。

ところで、20 世紀における大量生産と大量消費は、地球資源の枯渇化、廃棄物処理をはじめ、大気汚染や地球の温暖化など地球規模的な環境破壊をもたらし、人類の存亡にも直結する新たな環境問題を産んだ。そのため、ここ数年の循環型社会形成推進基本法や資源有効利用促進法、各種リサイクル法

等の制定にみられるように、国や地方自治体の後押しの下に環境・資源・エネルギーを保護する研究・技術開発の確立が強く求められている。このような観点から、すでに製品の再利用や原材料へ循環させるリサイクル技術の開発など、材料リサイクル率を向上させるための研究が活発に展開されていることは言うまでもない²⁾。

以上の背景から、本研究室では竹材を無駄に廃棄することなく我々の生活に有効に使えるよう、新たな技術開発を進めることを目標としている。今回は、竹材の優れた強度・剛性に着目し、プレス成形による竹繊維強化複合材料の作製を試みた。その結果、従来のエンジニアリングプラスチックの強度レベルに匹敵する、強化効率の高い複合材料の試作に成功したので報告する。

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。用いたものは繊維径 0.125～0.225mm、長さ 5～50mm の範囲に分級されたもので



Fig.1. Appearance of bamboo fibers

ある. 供給状態の竹繊維の外観写真を Fig.1 に示す. 一方, マトリックス材として生分解性プラスチック (水分散タイプ, 商品名: ランディ CP-300, 三好油脂社製) を用いた. 今回用いたものは, とうもろこしの澱粉を分解させた生成物から得られる高分子体である. 廃棄後, 土中で微生物によって容易に分解されるので, 太陽光と水がある限り自然回帰的に得られる高効率物質として, 近年, 開発研究が盛んに行なわれている³⁾. 本研究は資源の有効利用の立場から, 枯渇が予想される合成プラスチックを用いず, 若干強度が劣るものの環境に配慮した材料をマトリックス材とした. 竹材および生分解性プラスチックはともに燃焼負荷が小さく, 微生物による分解可能な, オールグリーン材料であることが大きな特徴である. また, この生分解性プラスチックは水に分散される親水性なので, 竹材などセルロースを主成分とする天然物質との親和性が期待できる. Table 1 に用いた生分解性プラスチックの諸特性を示す. 表値はすべて今回の研究で得られた測定データである.

Table 1. Properties of biodegradable resin

Density (Mg/m ³)	Tensile strength (MPa)	Young's modulus (MPa)	Fracture strain
1.16	10.6	531	0.065

2-2. 複合材料の作製

竹繊維と生分解性プラスチックの複合化をプレス成形により試みた. 成形に当たり, まず加圧時に生じる樹脂の漏洩を防止できる金型形状を検討した. その結果, 金型は一体型よりむしろ分離させて接触部を広く取ればということがわかった. 実験に用いた金型は, 底面および四方の側面をそれぞれ分離させ, 各々の接触面積を大きくしたものを用いた. 本金型により, 長さ 100mm×幅 15mm×厚さ 1~2mm の平板状複合材料を作製することができる.

複合材料の作製は以下の手順で実施した. まず,

金型に離型剤 (バンティコ (株), QZ13) を塗布した後, 金型内に所定重量 (重量比 20%) の竹繊維を挿入するとともに, 液状の生分解性プラスチックを金型内に所定の重量を流し込む. 熱板温度を所定の値に設定し, 微小圧力を 2 時間加えて水分を完全蒸発させる. その後常温までの冷却過程において所定の成形圧力を加えた (Fig.2 参照). 本研究では, 既報⁴⁾の麻繊維/生分解性プラスチックの複合化に関する研究を参考に, 成形温度 150°C および成形圧力を 13.1MPa とした. なお, 竹繊維は高温で熱分解し

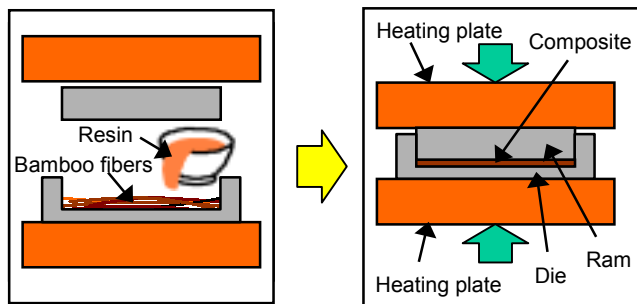
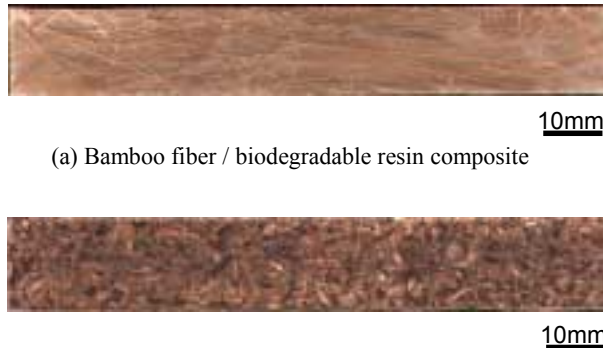


Fig.2. Schematic of fabrication process of bamboo fiber / biodegradable composites



(a) Bamboo fiber / biodegradable resin composite

(b) Sawdust / biodegradable resin composite

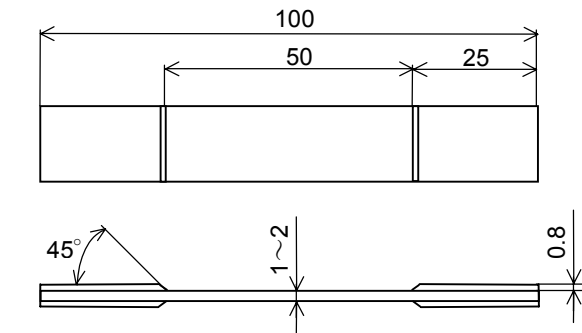


Fig.4. Shape and dimension of tensile-test specimen

て強度低下を引き起こすが、用いた成形温度 150℃ は低下の起こらない限界温度である⁹⁾。得られた竹繊維／生分解性プラスチック複合材料の外観写真を Fig.3(a) に示す。竹繊維と生分解性プラスチックは剥離欠陥など有することなく、良好に結合していることがわかる。また、生分解性プラスチックの半透明性により、竹繊維が概ね 2 次元ランダムに配向していることがわかる。

比較のために、竹材同様に有効利用が検討されている“おが屑”を強化材として、プレス成形による複合材料の製造を試みた。用いたおが屑の寸法は 0.1～1mm 程度のチップ状である。また、製造条件は上述のとおりとした。得られたおが屑／生分解性プラスチック複合材料の外観写真を Fig.3(b) に示す。この場合も両素材の結合は良好である。

2-3. 複合材の強度評価

作製した竹繊維／生分解性プラスチック複合材料の強度評価として引張試験を実施した。試験に先立ち、引張試験片を作製した。試験片の形状と寸法を Fig.4 に示す。これは、両端にアルミニウム板をエポキシ系接着剤で貼り付けた掴み部があり、ゲージ長さ 50mm を有する。引張試験は、インストロン型引張試験機（オートグラフ IS5000, 島津製作所）に平板用チャックを取り付けて実施した。試験では、JIS K 7073（炭素繊維強化プラスチックの引張試験方法）を参照し、ゲージ部のひずみ速度を 0.01/sec（引張速度 0.5mm/min）とした。試験片の中央には単軸用ひずみゲージ（共和電業社製）を張り付け、ひずみ測定を併せて実施した。

本研究では、作製された複合材料の品質を繊維の強化効率によって評価する立場から、さらに竹繊維の引張試験を JIS R 7601（炭素繊維試験方法）に準じて実施した。まず、竹繊維を適度に解繊し、ゲージ長さ 10mm を有する単繊維試験用台紙に貼り付けた。これを光学顕微鏡（ニコン社製、ECLIPSE ME600）とマイクロスケールを用いて繊維の軸径を逐一求め、円形断面と仮定して断面積を算出した。単繊維引張試験は、別途製作した微小荷重検出用引張試験機（容量 10N）に台紙を取り付け、台紙両端を切断して行った。引張速度を 1mm/min、試験本数を 52 本とした。

3. 実験結果および考察

3-1 引張特性

Fig.5 に竹繊維／生分解性プラスチック複合材料試験片の応力-ひずみ曲線の一例を示す。初期段階において、応力とひずみの関係は直線関係にあるが、

ひずみ 0.003～0.004 辺りから傾きが次第に変化する。これはマトリックスの非線形変形からもたらされる挙動と考えられる。その後、ひずみ 0.006 近傍で傾きが緩やかになる。これは、繊維破断の蓄積に伴う挙動であると推定される。そして、試験片は急激に破断分離し応力が低下した。すなわち、脆性繊維／延性マトリックス複合材料における典型的な応力-ひずみ関係を呈した。この例では、最大応力（引張強度）は 51.4MPa、破断ひずみは 0.0064 である。また、ひずみ 0.002 における応力レベルは 19.2MPa であった。これを縦弾性係数に換算すると、9.60GPa となる。すなわち、得られた強度および縦弾性係数は実用エンジニアリングプラスチックと遜色のない高いレベルにあることが判明した。

得られた竹繊維／生分解性プラスチック複合材料試験片 3 本の平均引張強さは 51.6MPa であった。おが屑／生分解性プラスチック複合材料試験片 3 本の平均引張強さと比較して Fig.6 に示す。これから、

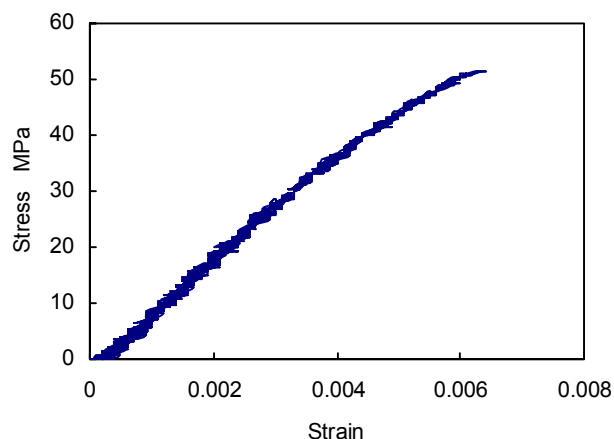


Fig.5. Stress-strain diagram of a bamboo fiber / biodegradable resin composite

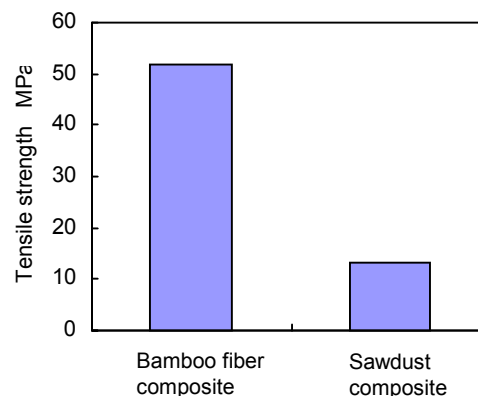


Fig.6. Comparison between tensile strengths of bamboo fiber and sawdust composites

Table 2. Statistical properties of ramie fiber diameter and strength

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	0.436	2.74	412.5	-0.606

前者は後者のほぼ4倍の引張強さを発することがわかる。木質系素材はセルロースを主成分としており、ともに界面における生分解性プラスチックとの親和性は高く界面結合は良好であると考えられる。したがって、竹繊維とおが屑の形状のちがいが強度差を引き起こしたものと推察する。一般に、マトリックス中に埋め込まれている短繊維は、繊維端で負荷荷重を受持つことはできないが、繊維端から遠ざかるにつれてその荷重を受持つことが可能になる。これは、界面結合が良好ならば、荷重がマトリックスのせん断変形を通して繊維に伝達されるからである。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} とおくと、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⁶⁾。

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

ここで、 l_f/d_f はアスペクト比と呼ばれ、繊維直径に対する繊維長の比率である。式(1)からアスペクト比が大きいほど繊維応力 σ_f は大きくなることが理解できよう。本研究で用いた竹繊維のアスペクト比は上述した平均直径と繊維長の分布から 35.7~357 の範囲にある。一方、おが屑は繊維状のものは少なく、長いものでもおおよそ 1~10 の範囲程度であった。 τ_{my} をマトリックスの引張強さの 1/2 と仮定して式(1)を用いると、竹繊維で 757~7570MPa、おが屑で 21.2~212MPa と算出された。後者は応力を十分に負担できないことが理解できる。以上から、竹繊維とおが屑の形状のちがいが二つの複合材料における強度のちがいをもたらしたものと推定される。

3.2 単繊維試験結果

繊維の引張試験結果を Table 2 に示す。竹繊維は他の高強度天然繊維と同様に、ほぼ直線的に荷重が上昇したあと破壊によりすぐさま荷重を失う、極めて脆性的な変形・破壊挙動を示した。試験片 52 本の平均強度は 368.0MPa であり、ばらつきの指標である変動係数は、0.436 であった。また、ワイブル形状母数 (ワイブル係数) および尺度母数の推定値も表に示す。形状母数値 2.74 は無機繊維⁷⁾よりいくらか小さい。ところで、Table 2 において、繊維直径のばらつきに着目したい。通常、脆性材料は寸法の大きな

ものほど強度が低下する、いわゆる寸法効果を示す。今回の結果においても直径と強度の相関係数は -0.606 となり、負の相関を示した。著者らの経験によると、単繊維強度測定に際して実験者が試験片作製に未熟であれば、実験者は直径の大きな繊維を抽出して作製する傾向にある。したがって、直径のばらつきが大きい繊維ほど、測定された強度は小さくなる。著者らも単繊維強度試験の熟練者ではないので、上述の影響が含まれていることを否定できない。今回得られた結果は同種の竹繊維を用いた高木ら⁵⁾の結果より約 20% 小さく、上述した考察を裏付けている。天然繊維の直径分布は制御できないので、この種の強度評価法は今後十分な検討を必要とする。

竹繊維の引張強さに基づいて、複合則による複合材料強度 σ_c の予測を行った。短繊維強化複合材料に対する複合則は一般に次式で与えられる⁶⁾。

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

ここで、 α は繊維の形態によって決まる係数であり、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、 σ_f^* は繊維強度、 $\sigma_m^{\#}$ 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 は臨界繊維長さであり、

$$l_c = \frac{d_f}{2\tau_{my}} \sigma_f^* \quad (3)$$

と与えられる。竹の密度⁸⁾は 0.80Mg/m³ であり、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。また、マトリックスの応力 $\sigma_m^{\#}$ については、生分解性プラスチックのみからなる試験片を上述と同様な方法で作製し、その応力-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(2)に代入した結果、 $\alpha=0.5$ のとき、繊維長 5~50mm の範囲で $\sigma_c=26.7\sim 48.1$ MPa が得られた。実験より得られた 51.6MPa はこの値を十分に満足している。ただしこの見積もりは、先述したように、竹繊維の引張強さを過小評価した可能性について留意すべきである。また、 $\alpha=0.5$ は直交積層板に該当する値であり、今回のような 2 次元ラ

ンダム配向に当てはまるかどうか確かではない。この種の材料の複合則等による強度解析は、繊維の試験法と併せて今後の検討課題である。

4. 結 言

竹材の有効利用を目指し、プレス成形法による生分解性プラスチック基複合材料の作製を試みた。得られた結論は以下のように要約される。

(1) 本プレス成形法により、外観上欠陥のみあたらない良好な竹繊維/生分解性プラスチック複合材料が得られた。この材料は、引張強さ 51.4MPa および縦弾性係数 9.60GPa を呈し、実用エンジニアリングプラスチックに匹敵する十分な機械的性質を示した。

(2) 竹材とともに有効利用が期待されている“おが屑”を強化材とする複合材料を同様な成形法で作製した。その結果、この材料の引張強さは竹繊維複合材料のおよそ 1/4 程度まで低下した。この理由を短繊維強化理論により明らかにした。

(3) 竹繊維の単繊維引張試験を実施した結果、平均強度は 368.0MPa、変動係数 0.436 であった。さらに、直径のばらつきから繊維強度を過小評価する可能性について考察し、複合則の適用に際しての留意点を挙げた。

謝 辞 本研究の遂行にあたり、同志社大学教授 藤井 透先生、同大学教授 松岡 敬先生、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、山口県立大学教授 神武正信先生および同大学 石川正一先生には貴重なご助言を頂きました。記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 市村孝雄・ほか, 「山口竹プロジェクト」報告集, (2002).
- 2) 木村照夫, 材料, 50, pp.1158-63 (2001).
- 3) 白石信夫, 谷 吉樹, 工藤謙一, 福田和彦, “実用化進む生分解性プラスチック”, pp.39-76, (2000) 工業調査会.
- 4) 合田公一, 浅井 隆, 山根達也, 材料, 投稿中.
- 5) 越智真治, 高木 均, 仁木龍佑, 材料, 51 (2002) 掲載予定.
- 6) 合田公一・ほか, 機械材料学, pp.206-222, (2002) 朝倉書店.
- 7) K. Goda and H. Fukunaga, J. Mater. Sci., 21, pp.4475-80. (1986).
- 8) 蔣 建業, 藤井 透, 強化プラスチック, 45, pp.365-371 (1999).

(平成 14 年 8 月 30 日受理)