

# 木質高充填複合プラスチックの製造技術 1 ～木質高充填複合プラスチックの強度向上～

化学環境室 海老原 昇, 龍頭 克典  
材料技術室 篠田 清  
プロジェクト推進室 足達 幹雄  
株式会社倭和テクノス 甲斐 信悟  
(独) 森林総合研究所 木口 実

## Process Technology of Wood Plastic Composites with High Filler Content 1 ～Strength Improvement of Wood Plastic Composites with High Filler Content～

Noboru EBIHARA, Katsunori RYUTO, Kiyoshi SHINODA, Mikio ADACHI  
Shingo KAI<sup>1)</sup> and Makoto KIGUCHI<sup>2)</sup>

<sup>1</sup>Kowa Technos Corp. <sup>2</sup>Forestry and Forest Products Research Institute

千葉県内に存在するスギを中心とした未活用林地残材の有効活用を目的に、木質とポリオレフィンを混練することにより射出成形が可能な木質含有量70%以上の木質複合プラスチック (WPC) コンパウンドの製造並びに評価技術を確認した。添加剤等の最適化により木質含有量70%の射出成形試験片において最大で、曲げ応力74.7MPa, 引張応力41.8MPa及びブライット衝撃強度13.5kJm<sup>-2</sup>の強度を達成した。また、木質とポリプロピレン (PP) を混練して作成した高木質WPCに酸変成PPを添加することでPPの結晶化の低下抑制が認められた。

### 1. はじめに

千葉県内の人工林の樹種別構成では、図 1 に示すように全体の 8 割以上をスギが占めている<sup>(1)</sup>。また、県内東北部の山武地域では“サンプスギ”といわれる挿し木スギの一品種が古くから育てられており、中小企業地域資源活用促進法に基づく地域資源の指定を受けている。しかしながら、ここ数年多くのサンプスギに木材腐朽菌による非赤枯性溝腐病 (図 2) の被害が出ており、その被害材の潜在量は山武地域だけでも 530,000 t と推計されている<sup>(2)</sup>。被害材は幹が腐朽し建築用木材としての価値が大きく低下してしまい、林地に未活用のまま放置されてしまう可能性が大きい。

このような被害材の利活用方法の一つとして、

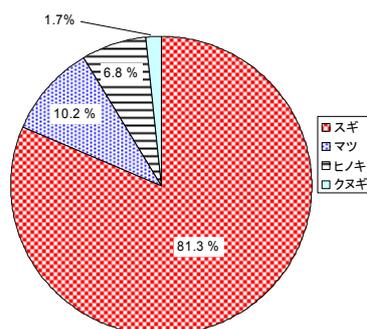


図 1 千葉県内人工林樹種別



図 2 非赤枯性溝腐病

既存プラスチックと比較して環境負荷が小さく、地域に存在する木質バイオマスの有効利用が可能な WPC が注目されている。木質バイオマスの有効利用の観点から、高木質含有量であることが望ましい。しかし、一般的に高木質充填 WPC に分



図3 木質原料の調整

類される木質含有量 70%以上の WPC では、木質含有量が多くなるほど成形時の加工性と成形品の強度や耐水性等の低下が問題となっている。

そこで本研究では、主に千葉県内で産出するサンプスギ（製材残材、間伐材、被害材）を原料として、製造時に使用する添加剤等の条件を最適化し、成形品の強度等に優れた性質を持つ射出成形可能な高木質 WPC コンパウンドを開発することを目的とした。

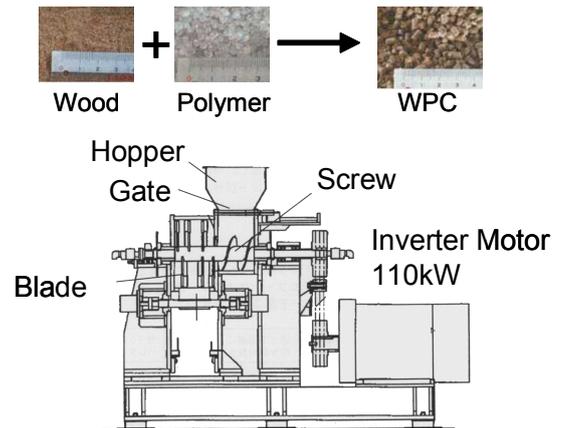


図4 熔融混合装置

## 2. 実験

### 2. 1 試料

木質として使用したサンプスギ木粉は木部を木材用粉碎機で一時破碎した後に回転式粉碎機で処理し作製した(図3)。粉碎粒度は粉碎機のスクリーン孔径を0.5～4mmの範囲で変えることにより調整した。本研究では以前の研究<sup>(3)</sup>で比較的良好な結果が得られている2mmのスクリーン孔径を適用した。また、PPのペレットはプロピレン・エチレン共重合物（ブロックPP）のPMA20V（サンアロマー，MFR45）を使用した。

WPCコンパウンド成形品の強度向上を目的に市販の酸変成ポリプロピレン2種類（APP1，2），オレフィン系エラストマー（OE）及び両親媒性リグニンを使用した。

### 2. 2 装置

木質原料とプラスチック原料の混合は図4に示す熔融混合装置(エムアンドエフ・テクノロジー)を使用した<sup>(4)</sup>。この装置は、反応容器内のスクリューとブレードを回転させるインバーター制御式モーターSF・TH型（三菱電機，400V，110kW）



図5 射出成形機

を有するが加熱機構は持っていない。

木粉の含水率測定には赤外線水分計FD-610(ケット化学研究所)，ダンベル状試験片作製に使用する射出成形機はSG100-C170-HP（住友重機械工業）を使用した（図5）。

WPCコンパウンドの解析及び評価に走査型電子顕微鏡(SEM)JSM5310LV（日本電子），示差走査熱量測定装置(DSC) DSC6200（エスアイア

イナノテクノロジー)を使用した。

成形品の強度測定は万能引張圧縮試験機テンシロンUTM-10(東洋ボールドウィン)及びRTC-1150A(エーアンドデイ)を、衝撃強度測定はアイゾット衝撃試験器No.612(東洋精機製作所)を使用した。

### 2. 3 WPCコンパウンドの作製

木質原料を熔融混合装置に投入する際に含水量の調整はしなかったが、赤外線水分計により含水量を測定し乾燥質量ベースで混合比率を決定した。木粉、PP及び添加剤(混合熔融時に加える場合のみ)をドライブレンドし熔融混合装置に投入した。木質の量は76%とし、添加剤を加える場合はその分PPの量を減らし以下の割合で作製した。

コンパウンド1(C1): 木質:76, PP:24

コンパウンド2(C2):

木質:76, PP:21, APP1:3

コンパウンド3(C3):

木質:76, PP:21, APP2:3

木粉とPPを本装置で混合すると、第1段階として混合開始から数十秒間に約120°Cで木質の水分が蒸発する。続く第2段階としてさらに数十秒間は投入したPPの融点147°Cよりも高い160°C付近で反応が進行する。その後、装置モーターの回転抵抗が急激に増大し温度も急激に上昇する。この時点でモーターを停止し生成物を取り出し、ホットカット法により高木質WPCコンパウンドペレットを作製した。

### 2. 4 WPCダンベル試験片の作製

高木質WPCコンパウンドペレットと各種添加剤をドライブレンドで混合し、射出成形により木質含有量70%以上の試験片を作製した。試験片の形状はJISK7162(ISO527-2)で規定される1A形試験片(厚さ4mm)とした(図6)。

成形条件は金型温度60°C、樹脂温度180°C、回転速度100rpm、射出圧力100MPa及び保持圧力35MPaに設定した。木質70%になるように以下の配合で作製した。

a: C1:92, PP:8

b: C1:92, PP:7, APP1:1

c: C1:92, PP:5, APP1:3

c': C2:92, PP:8

d: C1:92, PP:3, APP1:5

e: C1:92, PP:7, APP2:1

f: C1:92, PP:5, APP2:3

f': C3:92, PP8

g: C1:92, PP:3, APP2:5

h: C1:92, PP:3, OE:5

強度、吸水率、熱分析及び断面の比較はこれらの試料を使用した。

### 2. 5 強度の測定

曲げ特性はJISK7171(ISO178)の方法により、引張特性はJISK7161(ISO527-1)の方法により測定した。試験片は温度 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、 $\text{RH}50\pm 5\%$ で48時間以上状態調節し、同じ温湿度の条件で測定した。試験速度は曲げ・引張どちらの試験も5mm/minに設定した。

アイゾット衝撃強さはJISK7110(ISO180)の方法によりノッチ無し、エッジワイズ平行で2.75Jの振り子を使用して測定した。状態調節と試験時の温湿度条件は曲げ特性試験と同様にした。

### 2. 6 吸水率測定

吸水率はJISA5905の方法を適用し、試料は強度試験と同様のダンベル試験片を用いて、温度 $20\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、 $\text{RH}65\pm 5\%$ で恒量にした後に、 $20\pm 1^{\circ}\text{C}$ の水中に24時間浸漬した際の質量変化から吸水率を求めた。



図6 ダンベル試験片

## 2. 7 熱分析 (DSC) による融解及び結晶化温度の測定

木質と PP からなる WPC に APP を添加した際の PP の結晶化温度の変化を調べるため DSC を使用して融解温度と結晶化温度を調べた。試料はダンベル試験片を数 mg 程度に切り分けたものを使用した。測定に先立って試料の熱履歴を除去するため窒素雰囲気中で 210℃まで加熱した後、約 40℃まで 10℃/min で冷却した。測定は 40℃から 210℃まで昇温中に融解温度を測定し、210℃から降温中に結晶化温度を測定した。

## 2. 8 SEM による断面観察

射出成形品の内部を観察するため、試験片を液体窒素で冷却後に切断し、よう素と一緒に PTFE 製の密閉容器に入れて 40℃で 10 分程度放置した。その後、試験片を取り出し減圧した真空デシケーターに入れて余分なよう素を除去し観察資料とした。SEM 画像は試料室の圧力を 13Pa に設定した低真空モードで反射電子像を測定した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1 曲げ及び引張特性

木質含有量 70%の試験片で添加剤の種類と添加量を変えたときの試料毎の曲げ強さと曲げ弾性率を図 7 に、引張強さと引張弾性率を図 8 に示す。

曲げ、引張どちらの試験においても APP 添加の試験片 (b-g) で、曲げ強さが未添加 (a) の 26.5MPa に対して 50.3-74.8MPa、同じく引張強さが 12.0MPa に対して 25.4-41.8MPa とそれぞれ増加が認められた。弾性率についても、曲げ弾性率が 4.3GPa から 5.4-5.9GPa に引張弾性率が 3.5GPa から 6.0-6.7GPa に増加した。また、添加量 1,3,5%の比較 (b-d 及び e-f) ではそれぞれの APP で添加量の増加とともに曲げ、引張強さが若干増加する傾向が見られたが大きな変化は見られなかった。混合熔融後の WPC コンパウンドにドライブレンドで APP を添加した場合と、木粉と PP の混合熔融時に APP を添加した場合の APP

の種類と添加量が同一の場合の比較 (c-c'及び f-f') ではそれぞれに明確な差は認められなかった。また、OE を 5%添加した試験片 (h) では曲げ、引張どちらも強さもと弾性率が低下した。

これらの結果から、APP に関しては 1%程度の添加割合でも強さと弾性率が大きく増加すること、また APP の添加方法に関して木粉と PP の混合熔融時でも混合熔融後でも大きな違いがないことと、OE を 5%添加した場合は強さが減少してしまうことがわかった。

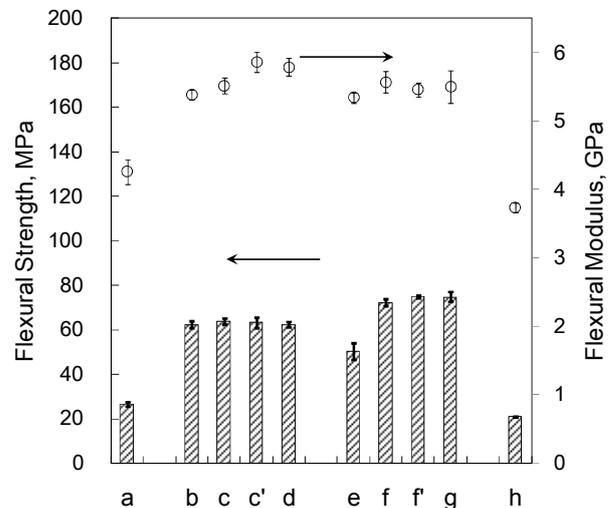


図 7 添加剤使用時の曲げ強さと曲げ弾性係数

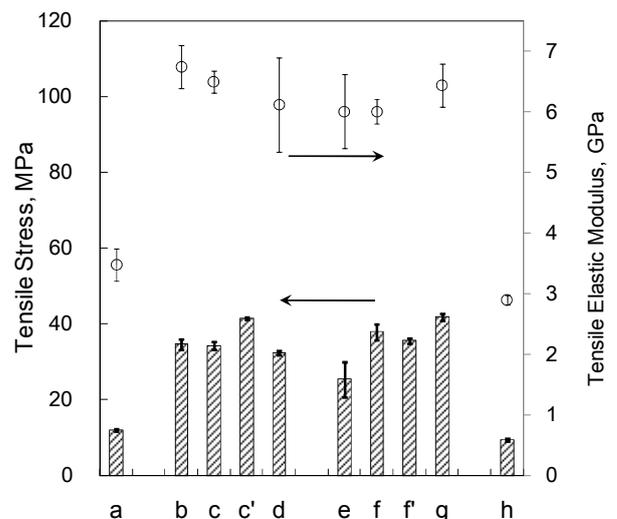


図 8 添加剤使用時の引張強さと引張弾性係数

### 3. 2 アイゾット衝撃強さ

APP 添加による WPC の曲げ及び引張強さの向上については、従来から多くの報告<sup>(6)・(7)</sup>があるが、衝撃強度が大幅に向上したという報告は少ない。図 9 は前項と同様に添加剤の種類と添加量を変えたときの試料毎のアイゾット衝撃強さを比較したものである。

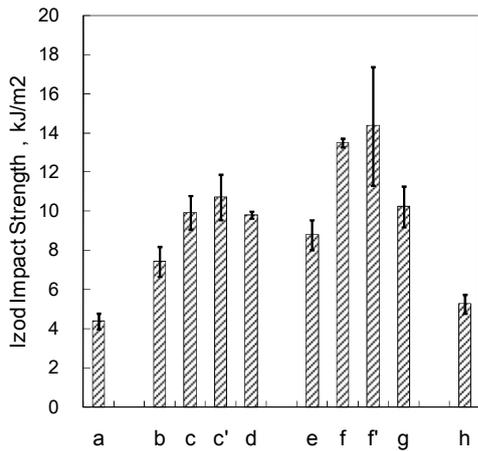


図 9 添加剤使用時のアイゾット衝撃強さ

曲げ、引張強さ同様に APP 添加の試料 (b-g) で衝撃強さが未添加 (a) 4.4kJ/m<sup>2</sup> に対して 7.4-14.4 kJ/m<sup>2</sup> と大幅に増加した。曲げ、引張強さと異なる傾向として APP の添加量 3%と 5%の場合のアイゾット衝撃強さを比較すると 2 種類の APP どちらも添加量 3%の方が大きな値を示した。今回の試験では、APP の添加量と同じ割合の PP 含有量を減らしていることが APP5%の試験片においてアイゾット衝撃強さの値が小さくなった原因だと考えられる。OE を添加した試験片 (h) のアイゾット衝撃強さは 5.3 kJ/m<sup>2</sup> と添加前より 2 割程度の増加しか認められなかった。

### 3. 3 吸水率

高木質 WPC を利用する際の制約事項の一つに水に弱いという点が挙げられる。WPC の破断面を観察すると図 10 に示すとおり木質部分と樹脂部分が剥離していることが認められる。

APP の添加により木粉-PP 界面の結合が強くなれば吸水率が減少することが期待される。添加剤使用時の吸水率を比較した結果を図 11 に示す。

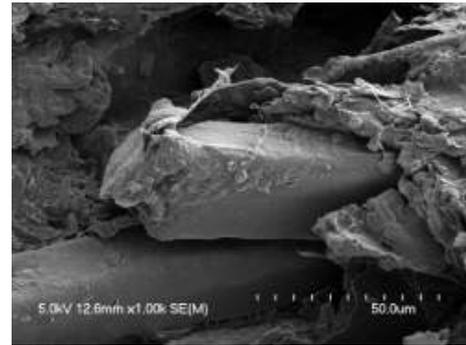


図 10 引張試験後の破断面写真(試験片 A)

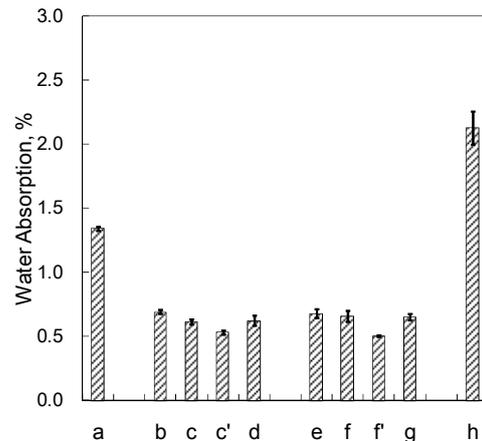


図 11 添加剤使用時の吸水率

APP の添加により吸水率が 1.3%から 0.5-0.7% に減少した。APP 添加量 1-5%の範囲においては、添加量や添加方法による明確な吸水率の違いは認められなかった。また OE 添加 (h) では吸水率が 2.1%に増加した。これらの結果から APP の添加により試験片の表面から内部に水が浸透しにくくなることが推測される。

### 3. 4 融解及び結晶化温度の変化

DSC 測定により観察された融解温度(T<sub>m</sub>)及び結晶化温度 (T<sub>c</sub>) の吸発熱のピークを図 12 に示す。

高木質 WPC では PP と比較して T<sub>c</sub> が低温側にシフトしている。これは、WPC の内部で PP 成分の結晶化度が低下しているためと考えられる。また、APP の添加で T<sub>c</sub> が高温側にシフトしていることが認められ、PP の結晶化度の低下が抑制されていると考えられるが、1-5%の APP 添加量による差は見られなかった。

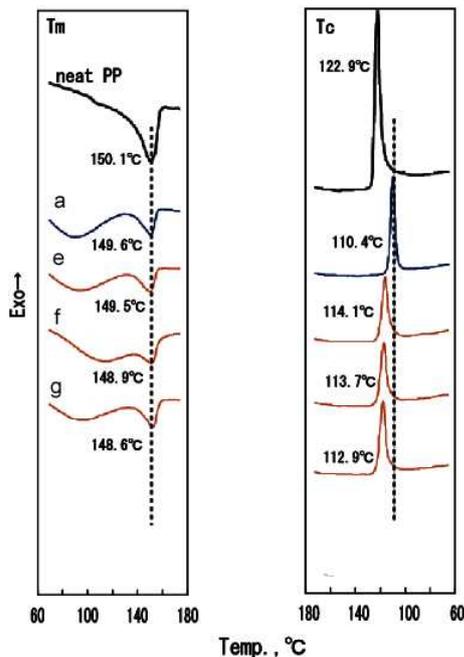


図 12 添加剤使用時の融解温度と結晶化温度

セルロースと PP を混練して作製した複合材に APP を添加すると PP の結晶化度の低下が抑制されたという報告<sup>⑧</sup>があるが、本研究の結果は APP をドライブレンドで添加した高木質 WPC コンパウンドの射出成形試験片でも同様の効果が有ることを示している。

### 3. 5 SEM による断面観察

図 13 上は試験片 (a)、図 13 下は試験片 (f) の断面 SEM 反射電子像である。試験片 (a) では木質と PP の間に空隙が認められるが、APP を添加した試験片 (f) では木質と PP が密になっていることが観察される。

どちらの試料も射出成形後にも木質の構造が保たれている。このことが、木質含有量が低い WPC よりも<sup>⑨</sup>本研究の高木質 WPC において APP 添加によるアイゾット衝撃強さの増加量が大きい理由の一つだと考えられる。

### 4. まとめ

千葉県内の林地に未活用で放置されているサンプスギをはじめとした林地残材の有効利用を目的として、サンプスギを利用した高木質 WPC の性

能向上を試みた。酸変成 PP (APP) 及びオレフィン系エラストマー (OE) を添加して各種物性を比較した結果次のことがわかった。

- (1) APP を 1-5% 添加することで曲げ及び引張強さが 2 倍以上向上した。
- (2) APP を 1-5% 添加することでアイゾット衝撃強さも最大で約 3 倍向上した。
- (3) APP を 1-5% 添加することで吸水率は約半分に低下した。
- (4) OE の添加では弾性係数が若干低下したものの衝撃強度、曲げ及び引張強さの向上は認められなかった。
- (5) APP を添加した WPC の射出成形試験片の融解及び結晶化温度を測定したところ、APP を添加していない WPC と比較して結晶化温度が高温側にシフトしており、APP 添加により PP の結晶化度の低下が抑制されていることが示された。
- (6) SEM 反射電子像による断面観察の結果、射出成形試験片で木質の組織構造が維持されていることと、APP 添加により木質と PP の界面が密になっていることが確認された。

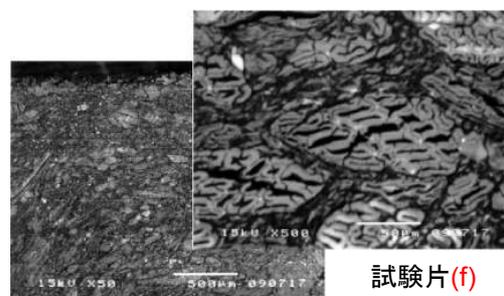
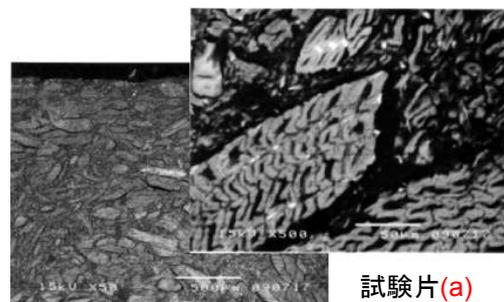


図 13 断面の SEM 反射電子像(よう素染色)

今後は、射出及び押出成形が可能な高性能な高木質 WPC の生産に本研究の結果を活用したいと考えている。

本研究は農林水産省“地域活性化のためのバイオマス利用技術の開発委託事業”により行いました。

#### 参考文献

- 1) 平成 20 年度千葉県森林・林業統計書 千葉県農林水産部森林課 (2009)
- 2) 千葉県モデル・バイオマスタウン設計業務調査報告書 千葉県環境生活部資源循環推進課 (2005)
- 3) 平成 20 年度地域資源活用型研究開発事業「千葉県産サンプスギを用いたウッドプラスチックの研究開発」成果報告所 関東経済産業局 (2009)
- 4) 特許第 3099064 号：非熱可塑性セルロース系天然高分子物質からの熱可塑化複合体の製造法、及びその成形体
- 5) S. Takase, N. Shiraishi: *J. Appl. Polym. Sci.*, **37**, 645 (1989)
- 6) S. Lai, F. Yeh, Y. Wang, H. Chan, H. Shen: *J. Appl. Polym. Sci.*, **87**, 487 (2003)
- 7) M. Takatani, A. Ikemiya, Y. Nagata, T. Kitayama, T. Okamoto: *J. Adhes. Soc. Jpn.*, **41**, 301 (2005)
- 8) W. Qiu, F. Zhang, T. Endo, T. Hirotsu: *Polym. Compos.*, **26**, 448 (2005)
- 9) K. Oksman, C. Clemons: *J. Appl. Polym. Sci.*, **67**, 1503 (1998)