

令和元年5月29日現在

機関番号：12612

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K18265

研究課題名(和文) 素材の流動特性活性化による木質系材料のみを用いた成形技術の開発

研究課題名(英文) Development of molding technology for wood material by activating flow ability

研究代表者

梶川 翔平 (Kajikawa, Shohei)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・助教

研究者番号：00772815

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：石油系添加剤を用いることなく、高い成形性および特性を有する木質系材料を作製することを目的として、“天然系バインダの混合”および“蒸煮プレスを用いた改質”による木粉の流動特性活性化を提案し、各手法の有効性を検討した。天然系バインダとしてスクロースとクエン酸を木粉に混合することによって、木粉の流動性は活性化し、射出成形が可能であった。また、バインダの調製方法を適正化することによって、一般的な木質プラスチックなどと同等の強度や耐水性を有する成形品が得られた。蒸煮プレスを用いた木粉の改質に関しては、新しく開発した装置によって、高圧飽和水蒸気による処理が可能であることを確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

石油系ではなく、スクロースやクエン酸といった天然系の添加剤を用いることによって、木質系材料の熱流動性・成形性が大幅に向上することは、これまでに報告されておらず、学術的に非常に意義のある成果である。また、本手法にて得られた製品は、一般的な木質プラスチックに匹敵する強度・耐水性を有する一方、焼却の際に有害な物質が発生することはない。これは、持続的発展が可能な循環型社会の構築に貢献する成果である。

研究成果の概要(英文)：Activation of flow ability of wood powder by “mix of natural binder” and “press in steam” was proposed for producing wood-based material without petroleum-based plastics, which has high moldability and properties. Effectiveness of the proposed methods was verified. Fluidity of wood powder was activated by mixing the natural binder which is composed of sucrose and citric acid, and products were obtained successfully by injection molding. Strength and water resistance of the injection-molded product were the same level as conventional wood plastics by optimizing preparation of the binder. In addition, it was possible to steam-treat wood powder under very high pressure by using new device which was developed in this study.

研究分野：材料加工・組織制御工学

キーワード：塑性加工・成形 木質系材料 射出成形 押出成形 流動性

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

低環境負荷資源である木質系材料の有効活用技術の開発が求められている。木質系材料は、計画的な植林および伐採によって、持続的利用が可能な資源であることに加え、焼却時においても大気中の二酸化炭素が増えることはない。このような資源の有効活用は、循環型社会への構築に向けても重要な意味を持っている。しかしながら、現状では、製材工程で排出される多くの切りくずや、形状の悪い枝材・端材は有効利用されることがなく廃棄されている。このような粉末・チップ状の木質系材料を加工する手法として、木質系材料をフィラー材、プラスチックをバインダとして用いた木質・プラスチック複合材 (WPC) に関する技術開発が多く行われている。しかしながら、成形性や、強度などをはじめとした製品特性に関する問題により、実用化されている WPC の木質充填率は多くとも 50~60 % 程度である。環境負荷低減や木質系資源の有効利用といった観点からは課題が残る。

そこで、プラスチックを混合せず、木質系粉末のみを用いて、成形加工する手法に関して研究が進められている。本手法における問題は、成形時における粉末の熱流動性である。プラスチックに比べ、木質系材料の熱流動性は大幅に低いため、成形時において金型に材料が十分に充填せず、成形品に割れなどの不良が生じやすい。木質系材料の熱流動性を高める手法としては、蒸煮処理が提案されている。蒸煮処理によって木質系材料に含まれるヘミセルロースなどの構成成分を低分子化すると、糖類が生成される。糖類は、加熱によって流動化し、冷却によって再び固化するため、WPC におけるバインダに似た役割を果たす。このため、蒸煮処理によって、木質系材料に含まれる糖類量を増やすと、木質系材料の熱流動性や自己接着性は高まり、鍛造や射出成形などによって、良好な成形品を得ることが可能となる。一方で、本格的な技術の実用化を考慮した際に、材料の熱流動性・成形性のさらなる向上によって、不良の少ない安定的な成形を実現し、なおかつ、成形品の特性を汎用プラスチックなどの一般的な工業材料に匹敵するレベルまで向上させる必要がある。

2. 研究の目的

木質系材料の熱流動性を高めるためには、材料に含まれる糖類量を増やし、低分子化することが必要である。これらを可能とする処理として、(1) 糖類を主とした天然系バインダの混合、および、(2) 蒸煮プレスを用いた改質を提案する。提案手法による処理を施した木質系粉末に対して、流動試験および成形試験を実施することによって、処理の効果や、流動性や成形性を高めるあたって適切な処理条件を明らかにする。さらに、得られた成形品の強度および耐水性を評価する。本検討によって、石油系の添加剤を用いることなく、汎用プラスチックに匹敵する成形性および特性を有する木質系材料の作製を目指す。

3. 研究の方法

(1) 糖類を主とした天然系バインダの混合による流動特性活性化

木質系材料の流動性を高めるため、糖や酸から構成される天然系バインダの混合を提案する。糖は成形加工時における流動化成分としての役割が期待できる。さらに、酸は糖を分解して低分子化させることができる。このため、糖に酸を混合すると、糖の融点低下にともなう流動性向上が期待できる。本実験では、糖としてスクロース、酸としてクエン酸を使用することにした。本手法の有効性を検証するため、以下の方法で調査を行った。

①材料調製

表 1 に材料調製条件を示す。木粉として、ふるいによって粒子のサイズを任意の範囲に揃えたスギ粉末を使用した。天然系バインダとして、スクロース、クエン酸およびスクロース・クエン酸の混合物 (SC バインダ) を使用した。SC バインダに関しては、スクロース (S) とクエン酸 (C) の成分配合比 S:C が異なるバインダを複数準備した。木粉とバインダは、蒸留水中にて攪拌することによって混合した。混合後は、80°C の送風乾燥器にて水分を飛ばした後に、実験に使用した。試料に含まれるバインダ含有率 B は 20~50 wt% の範囲で変化させた。

②流動試験

図 2 に示す金型を用いて試料の熱流動性を評価した。パンチによってコンテナに投入された

表 1 材料調製条件

木粉	スギ
粒子サイズ d [mm]	0.5 以下 (メッシュパス) 0.3 以下 (メッシュパス) 0.3 ~ 0.5, 0.5~1.0, 1.0~2.0, 2.0~2.8, 2.8~4.0, 4.0~5.6 (メッシュオン~メッシュパス) 5.6 以上 (メッシュオン)
バインダ	スクロース, クエン酸, SC バインダ (成分配合比 S:C=25:74, 50:50, 75:25)
バインダ含有率 B [wt%]	20, 30, 40, 50

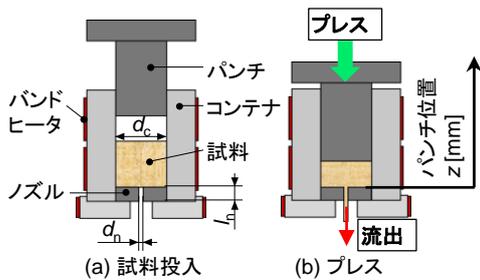


図1 流動試験の概略

表2 流動試験条件

ノズル径 d_n [mm]	2
ノズル長さ l_n [mm]	10
コンテナ径 d_c [mm]	30
金型温度 T [°C]	100, 120, 140, 160, 180, 200

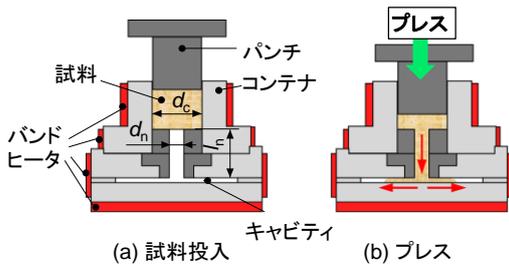


図2 射出成形の概略

表3 射出成形条件

ノズル径 d_n [mm]	10
ノズル長さ l_n [mm]	25
コンテナ径 d_c [mm]	30
金型温度 T [°C]	180, 190, 200
キャビティ形状	小型容器 (外径 16×高さ 13 ×肉厚 3 mm) プレート (縦 90×横 50×厚 さ 4 mm)

試料をプレスすると、試料はノズルから流出する。この時、パンチに加わる力が小さいほど、試料の流動性は高いと言える。試験条件を表2に示す。金型温度 T は、バインダの示差熱・熱重量同時測定 (TG-DTA) を実施した上で、バインダの融解温度前後の温度域とした。まず、加熱した金型に試料 (30g) を入れ、金型内にて 5 分間試料を予熱した。その後、一定速度 (0.1 mm/sec) でパンチを押し込んだ際における荷重の変化を測定した。試料がおおよそ全て流出する、もしくは、パンチ面圧 P が 200 MPa に達した時点でプレスを止め、試験を終了した。

③射出成形試験

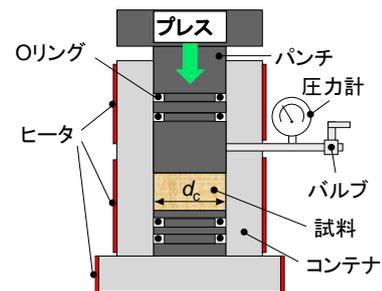
図3に示すような金型を用いた射出成形を実施し、小型容器やプレートを作製した。コンテナに投入された試料はプレスされることによって、ノズルを通じて、キャビティへと流入し、所定の形状に成形される。表3に成形条件を示す。金型温度 T は、流動試験にて良好な結果が得られた温度とした。詳細な試験方法は流動試験と同様であり、5 分間の予熱後、パンチ面圧が 200 MPa に達するまで一定速度で試料をプレスした。その後、金型を冷却してから、成形品をキャビティから取り出した。

④成形品の評価

成形品の密度、強度および耐水性を評価した。密度は、成形品の質量および寸法測定結果から求めた。強度は、JIS K 7171 に基づく曲げ試験によって評価した。成形体から 80 × 10 × 4 mm の短冊形を切り出し、試験片とした。支点間距離は 64 mm、試験速度は 10 mm/min とした。耐水性は吸水厚さ膨張率試験によって評価した。10 × 10 × 4 mm にカットした試験片を、水中に 24 時間浸漬した後に、試験片の厚さを計測した。

(2) 蒸煮プレス用いた改質による流動特性活性化

木質系材料を蒸煮プレスし、構成成分の加水分解を促すことによって、材料内部から糖類を生成する手法を提案する。木質系材料に蒸煮処理を施すと、一部の構成成分は低分子化し、糖類に変化するため、糖類量の増加にともない、材料の熱流動性は向上する。しかしながら、さらに反応が進行すると、糖が脱水によって変性し、高温域で揮発しやすい状態となる。すなわち、蒸煮処理において、糖が生成されると同時に、揮発によってその一部が失われる。一方、より高圧状態で蒸煮処理を施すと、処理時における糖の揮発を抑制できる可能性がある。本研究では、高圧状態で木質系材料に蒸煮処理を施すため、新しく蒸煮プレス装置を開発した。図3に蒸煮プレス装置の概略図および外観を示



(a) 装置概略図



(b) 装置外観

図3 蒸煮プレス装置

す。通常の蒸煮処理用の装置と異なり、パンチによって外力を負荷できる機構を取り入れた。水分を含ませた木質系粉末を密閉金型で加熱・プレスすることによって、高圧状態の飽和水蒸気にて処理できると考えられる。

詳細な処理方法について説明する。まず、内径 $d_c=50$ mm のコンテナ部に含水率 M を調製した試料 (全乾質量 30g) を投入し、パンチにて試料に初期圧 (パンチ面圧 P_i) を負荷する。次に、装置全体を所定温度 T_s まで加熱する。この時、試料に含まれる水分の蒸発によって、装置内部は飽和水蒸気で満たされるとともに、内部の気圧 P_a は温度上昇にともない飽和水蒸気圧まで上昇する。 T_s に達したのちに、パンチにて成形圧 (パンチ面圧 P_s) を試料に加えると、試料内の圧力は飽和水蒸気圧よりも高い状態となる。この高圧状態にて、所定時間 t_s 、一定温度にて試料を処理する。主な処理条件として、 M 、 T_s 、 P_i 、 P_s および t_s が考えられる。本実験では、これらの条件が処理時における装置内部の P_a に及ぼす影響を調査し、高圧状態の蒸煮処理が可能な条件を明らかにした。さらに、処理後の試料に対して、図 1 の装置を用いた流動試験を実施し、処理による流動性の向上効果について検証した。

4. 研究成果

(1) 糖類を主とした天然系バインダの混合による流動特性活性化

①天然系バインダを混合した木質系粉末の熱流動性

まず、バインダとして糖であるスクロースを使用した際の流動性を調査した。図 4 に、スクロースを用いた際のパンチの押し込みにもなうパンチ面圧 P の変化を示す。いずれの温度 T においてもパンチ位置 z が 30 mm 程度に達すると、 P が急増した。この間、試料はノズルから流出しておらず、シリンダ内にて試料が圧縮されている状態であった。 $T=160$ °C では、そのまま P が増加し続け、試料は流出しなかった。 $T=180$ および 200 °C では、 P が急増するものの、所定の P に達すると試料の流出が開始し、それにもとない P は低下した。 $T=200$ °C において流出時の P が最も低く、スクロースを用いた際の適正な温度であると言える。

図 5 に、SC バインダを用いた際のパンチ面圧 P の挙動を示す。バインダとしてスクロースのみを用いた際と比べ、試料の流動が可能な温度域が拡大し、なおかつ流動時の P も大幅に低下した。これは、スクロースがクエン酸によって分解され、低分子化したことによって、低融点のフルクトースやグルコースへと変化したことに起因すると考えられる。試料流動時の P は、 T の上昇にともない低下し、 $T=180$ °C にて最も低くなった。一方、 $T=200$ °C になると、ガスの発生量が多くなるため、流動の挙動は不安定となるとともに、流動時の P もやや上昇した。した

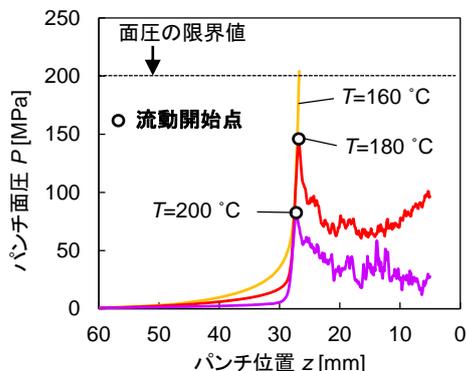


図 4 温度 T が流動挙動に及ぼす影響 (バインダ: スクロース, バインダ含有率 $B=50$ wt%, $d=0.5$ mm 以下)

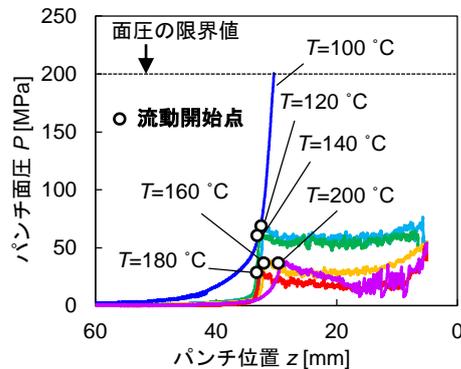


図 5 温度 T が流動曲線に及ぼす影響 (バインダ: SC バインダ (S:C=50:50), バインダ含有率 $B=50$ wt%, $d=0.5$ mm 以下)

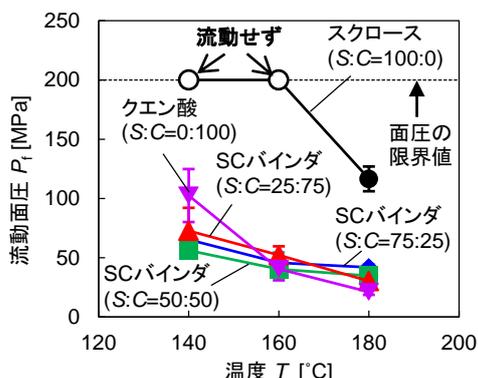


図 6 温度 T およびバインダ成分配合比 S:C が流動面圧 P_f に及ぼす影響 (バインダ含有率 $B=50$ wt%, $d=0.5$ mm 以下)

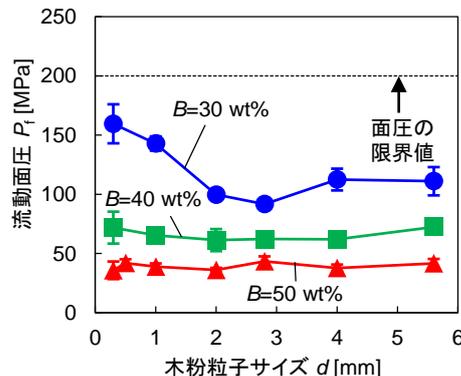


図 7 木粉粒子サイズ d およびバインダ含有率 B が流動面圧 P_f に及ぼす影響 (バインダ: SC バインダ, 成分配合比 S:C=50:50)

がって、SC バインダを用いた際の適正温度は、 $T=180^{\circ}\text{C}$ と言える。

図6に、温度 T およびバインダ成分配合比 $S:C$ が、試料流出開始時の面圧 P_f に及ぼす影響を示す。スクロースやクエン酸のみと比べ、SC バインダを用いた場合のほうが P_f は低くなる傾向を示した。したがって、SC バインダは木粉の流動性を高めるにあたって優れている。また、SC バインダにおいて、 $S:C$ の影響はほとんど見られず、いずれも $T=180^{\circ}\text{C}$ で最も P_f が最も低くなった。

図7に、木粉の粒子サイズ d およびバインダ含有率 B が流出時の面圧 P_f に及ぼす影響を示す。 $B=40\sim 50\text{ wt\%}$ の場合は、 d の影響がほとんど見られず、ノズル径 $d_n=2\text{ mm}$ よりも大きな粒子でも流動した。これは、ノズルに流入する際に、粒子が破碎するためである。 $B=30\text{ wt\%}$ の場合、 $d=2.8\sim 4.0\text{ mm}$ にて最も P_f が小さくなった。したがって、木粉の流動性を高めるにあたって、粒子サイズは流路径と同程度、もしくは少し大きく調整するべきである。

②天然系バインダを混合した木質系粉末の射出成形性および成形品の特性

バインダとしてスクロースのみを用いて、小型容器の作製を試みた結果を図8に示す。 $T=180^{\circ}\text{C}$ の場合は、試料が金型奥部まで完全充填せず、底部と側壁部で密度差による色ムラが見られた。一方、試料の流動性が最も高まる $T=190\sim 200^{\circ}\text{C}$ では、金型に試料が完全充填し、色ムラのない良好な外観を有する容器を成形できた。

SC バインダを用いた場合において、バインダ含有率 B およびバインダ成分配合比 $S:C$ が成形品の外観に及ぼす影響を図9に示す。いずれの $S:C$ においても、 B が多くなるほど成形性は向上し、密度のムラがない均一な色のプレートが成形できた。また、 $S:C$ は成形性に影響し、バインダ中におけるスクロースの比率が高くなるほど成形性は向上した。本実験においては、 $S:C=75:25$ が最適と言える。適正条件にて得られたプレートの密度は 1.4 g/cm^3 程度であった。これは、一般的なスギ材の3~4倍程度の値である。曲げ強度は $28\sim 37\text{ MPa}$ 、吸水厚さ膨張率は $8\sim 10\%$ であり、一般的な木質プラスチック (JIS A 5741) やファイバーボード (JIS A 5905) に匹敵する値を示した。

(2) 蒸煮プレス用いた改質にとまなう流動特性活性化

図10に、木質系粉末の蒸煮プレス時における金型温度 T および内部圧力 P_a の変化を示す。また、参考として、 T から計算できる飽和水蒸気圧の理論値 P_v もあわせて示している。 T が 200°C に達した後、成形圧 P_s を加えると、 P_a は最終的に P_v より高い値まで上昇した。これは、本装置を用いることによって、通常よりも高い圧力で蒸煮処理を施すことが可能であることを示している。処理によって、図11に示すような改質ビレットが得られた。しかしながら、図1に示す金型を用いて改質ビレットの流動試験を行ったところ、試験温度 $T=180^{\circ}\text{C}$ にて試料は流動しなかった。この原因をより詳細に調査するため、蒸煮プレス前後の試料の成分分析を行った上で、成形圧 P_s 、温度 T_s および処理時間 t_s を中心とした処理条件の再検討が必要である。

(3) まとめ

木質系材料の熱流動性を高め、成形性を向上させることを目的として、(1)糖類を主とした天然系バインダの混合、および(2)蒸煮プレスを用いた改質を提案し、各手法の有効性を検討した。



図8 金型温度 T が容器の外観に及ぼす影響 (バインダ: スクロース, バインダ含有率 $B=40\text{ wt\%}$, $d=0.5\text{ mm}$ 以下)

バインダ含有率 B [wt%]	バインダ成分配合比 $S:C$			30 mm
	75 : 25	50 : 50	25 : 75	
20		成形不可	成形不可	
30			成形不可	
40				
50				

図9 バインダ成分配合比およびバインダ含有率がプレートの外観に及ぼす影響 (バインダ: SC バインダ, 温度 $T=180^{\circ}\text{C}$, $d=0.5\text{ mm}$ 以下)

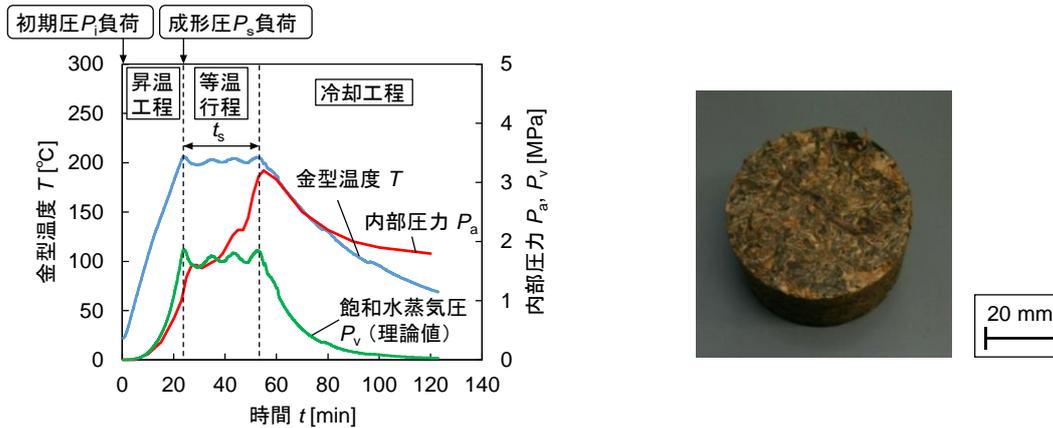


図 10 温度および内部圧力の変化 (初期圧 $P_i=1$ MPa, 図 11 改質ビレットの外観 ($d=2.0\sim 2.8$ mm)
 $P_s=6$ MPa, $T_s=200^\circ\text{C}$, $t_s=30$ min)

その結果、天然系バインダとしてスクロースとクエン酸を木粉に混合することによって、木粉の流動性は大幅に向上し、射出成形が可能であった。また、バインダの調製・混合方法を適正化することによって、一般的な木質プラスチックなどに匹敵する強度および耐水性を有する成形品を得ることに成功した。蒸着プレスを用いた木粉の改質においては、新しく開発した装置によって、高压の飽和水蒸気による処理が可能であることを確認できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 1 件)

- ① Shohei Kajikawa, Masaya Horikoshi, Soichi Tanaka, Kenji Umemura, Kozo Kanayama : Molding of wood powder with a natural binder, *Procedia Engineering*, 査読有, Vol.207, 2017, pp.113-118. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2017.10.747>

〔学会発表〕 (計 5 件)

- ① 梶川 翔平, 堀越 将矢, 久保木 孝 : スクロースおよびクエン酸を混合した木質系粉末の射出成形, 2019 年度塑性加工春季講演会講演論文集, 2019, 506.
- ② Shohei Kajikawa, Takashi Iizuka, Toshio Takahata, Tsuneo Maki : Mechanical property and flame retardancy of composite material produced from aluminum hydroxide sludge and polyethylene, *IN-TECH* 2018, 2018, pp. 109-112.
- ③ 曹 基宇, 梶川 翔平, 久保木 孝 : 天然系添加剤を混合した木質系粉末の成形性に及ぼす粒子サイズの影響, 平成 30 年度塑性加工春季講演会講演論文集, 2018, pp.37-38.
- ④ 曹 基宇, 堀越 将矢, 梶川 翔平, 久保木 孝 : 天然系添加剤を混合した木粉の成形性に及ぼす木粉粒度の影響, 関東学生会第 57 回学生員卒業研究発表講演会, 2018, 812.
- ⑤ 堀越 将矢, 梶川 翔平, 田中 聡一, 梅村 研二, 金山 公三 : 三次元形状部品の成形加工を目的としたスクロース・クエン酸混合物添加木粉の熱流動特性の評価, 第 67 回日本木材学会大会, 2017, I17-07-1115.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ : <http://www.mt.mce.uec.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究協力者

研究協力者氏名 : 久保木 孝, 金山 公三, 梅村 研二, 田中 聡一

ローマ字氏名 : (KUBOKI, Takashi), (KANAYAMA, Kozo), (UMEMURA, Kenji), (TANAKA, Soichi)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。