

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 14 日現在

機関番号：82105

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26450243

研究課題名(和文) 木粉の加溶媒分解処理による混練型WPCの物性向上効果の解明

研究課題名(英文) Effects of Solvolysis Treatments of Wood Flour on Mechanical Properties of Wood-Plastic Composites (WPCs)

研究代表者

小林 正彦 (Kobayashi, Masahiko)

国立研究開発法人森林総合研究所・木材改質研究領域・主任研究員

研究者番号：00397530

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：加溶媒分解処理による木粉の改質が、木材・プラスチック複合材(混練型WPC)(以下WPCと略す)の衝撃強度等の力学物性に及ぼす効果を明らかにすることを目的として、加溶媒分解処理した木粉とポリプロピレンを原料に用いてWPCを製造し、その力学物性を評価した。その結果、加溶媒分解処理木粉を用いた場合には、無処理木粉を用いた場合と比較し、高い伸び性能と、高い耐衝撃性能を示すことが判明した。これらの結果は、WPCの欠点の一つであった硬くて脆い性質が改善できることを示しており、これまで木質材料が使用されてこなかったプラスチック産業へのWPCの用途拡大に寄与する基礎的な知見である。

研究成果の概要(英文)：Wood plastic composites (WPCs) were manufactured with solvolysis treated wood flour that were prepared with fatty alcohol having a hydrophobic long chain. Effects of the treatment on mechanical properties such as impact strength were evaluated. As a result, it was revealed that WPCs produced by using solvolysis treated wood flour shown better elongation performance and the impact resistance compared to the case of using the untreated wood flour. With this result, hard and brittle properties of WPCs can be improved, and it can be expected to expand the application of WPCs in the plastic industry.

研究分野：木質材料工学

キーワード：木材・プラスチック複合材(混練型WPC) 加溶媒分解処理 衝撃強度

1. 研究開始当初の背景

木粉と熱可塑性プラスチックを加熱下で混練し複合させた木粉・プラスチック複合材 (Wood-Plastic Composites; 混練型 WPC (以下、WPC と略する)) は、プラスチックと同様に熱可塑性を利用した自由な成形加工が可能であり、林地残材、間伐材等の未利用木材や廃プラスチックを原料にできることから、環境適合材料として生産量が急増している新しい木質系材料である。WPC はプラスチック以上の曲げ強度を持ち、防腐・防蟻処理をすることなく熱帯産高耐久樹種と同等の耐水性や耐朽性を発揮するため、主にデッキ材等のエクステリア資材として使用されている。

近年、エクステリア資材以外の用途開発として、これまで木質材料が使用されてこなかったプラスチック分野への用途開発が行われ始めている。しかし、プラスチックと比較して衝撃強度などの物性が低いことが問題となっており、この問題を解決するための技術開発が望まれている。

2. 研究の目的

衝撃強度などの物性を向上させるためには木粉とプラスチックとの相溶性を向上させ、均一に混合することが必要である。しかし、木粉が親水性であるのに対し、プラスチックが疎水性であることから、これらを相溶させることは非常に困難である。また、WPC はプラスチックの連続層に木粉が点在する海島構造をしているため、プラスチックと木粉の界面に応力集中が生じやすく、この部分での破壊が起こりやすい。これらの問題を改善し、WPC の力学物性を向上させるためには、親水性の木粉の表面に疎水基を付加することで木粉を疎水化し、疎水性のプラスチックとの相溶性を向上させることが考えられる。また、木粉を微細化してプラスチックへ均一に分散させ、物性の異なる成分間の界面に生じる応力集中を緩和させることが考えられる。

そこで、木粉への疎水基の付加と木粉の微細化を同時に行うことができる方法として、木粉の加溶媒分解反応に着目した。

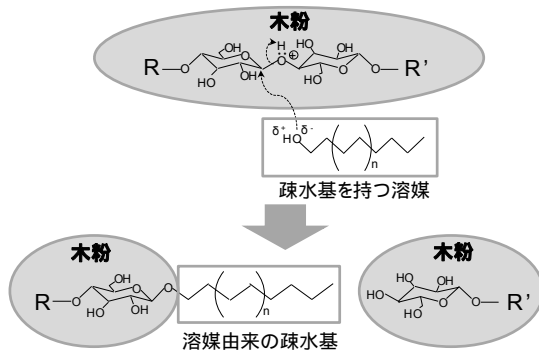


図1 木材の加溶媒分解反応の模式図

図1に示したように、木材の加溶媒分解反

応の主反応は溶媒のアルコール性水酸基による求核置換反応であり、同反応により主としてセルロースのエーテル結合が開裂し、開裂した部位に溶媒の残基が付加される。つまり、疎水基を持つ溶媒を用いて木粉を加溶媒分解処理することにより、木粉への溶媒残基である疎水基の付加と、木粉の分解による微細化が同時に起こる。

そこで本研究では、木粉の加溶媒分解処理が WPC の衝撃強度などの力学物性への効果を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 加溶媒分解木材の調製とその特性評価

スギ木粉 (150 μ m 以下) をステアリルアルコール (1-octadecanol) とグリセリンの混合溶媒を用いて加溶媒分解処理した。反応は、木粉と等量の溶媒を攪拌混合した後、触媒として溶媒に対して 1.5wt% の硫酸を加え、還流下で、150 のオイルバス中で加熱することにより行った。未反応溶媒は処理後の生成物をジエチルエーテルで抽出することにより除去した。処理時間を 10 分、30 分、120 分とし、処理の程度の異なる加溶媒分解処理木粉を調製した。

加溶媒分解処理木粉の顕微鏡観察と粒度分布測定を行い、加溶媒分解処理による形状の変化を評価した。顕微鏡観察はデジタルマイクロスコープを用いて行った。粒度分布測定は、レーザ回折式粒度分布測定装置を用いて行った。さらに、加溶媒分解処理木粉の性状を評価するために、フーリエ変換赤外分光分析装置 (FT-IR)、核磁気共鳴分光計 (1H-NMR)、X 線回折装置 (XRD) を用いて加溶媒分解処理木粉の分析を行った。

(2) 加溶媒分解処理木粉とポリプロピレンの複合化特性評価

処理時間を 120 分として調製した加溶媒分解生成物をポリプロピレン (PP) スギ木粉と様々な割合で混合し、WPC コンパウンド (WPC の原料となるペレット) を製造した。加溶媒分解処理木粉の含有率の違いが WPC コンパウンドの熱流動特性に及ぼす影響を評価するため、キャピラリーレオメーターを用い、コンパウンドの熱流動性の測定を行った。製造したコンパウンドを用いて様々な条件で射出成型機を行い、WPC の力学試験用試験片の製造条件の検討を行った。

(3) 加溶媒分解処理木粉とポリプロピレンを原料として製造した WPC の力学物性評価

木粉の加溶媒分解処理が WPC の力学物性に及ぼす影響を評価するために、処理時間を 120 分として調製した加溶媒分解処理木粉とポリプロピレンの質量比を 1/1 として製造した WPC 試験体それぞれ 3 体を曲げ試験、および引張試験に供した。また、試験体 5 体を衝撃試験に供した。曲げ試験、及び引張試験は万能力学試験機 (島津製作所製、オートグラ

フ)を用いて行った。衝撃試験はシャルピー衝撃試験機を用いて行った。

4. 研究成果

(1) 加溶媒分解木材の調製とその特性評価

ステアリルアルコールとグリセリンの混合溶媒を用いて、様々な条件で木粉を加溶媒分解処理し、その性状を評価した。その結果、図2に示すように、木粉は120分の加溶媒分解反応により、主として繊維を切断する方向に微細化される傾向が認められた。また、粒度分布測定の結果、反応時間を長くするほど微細化が進行し、粒度が均一になる傾向がみられた。

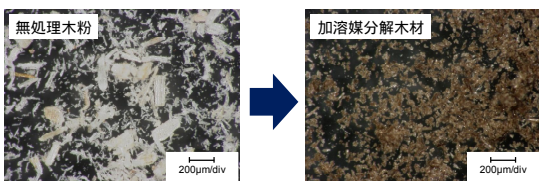


図2 加溶媒分解処理による木粉形状の変化

さらに、加溶媒分解処理を120分を行った後の処理木粉をFT-IRを用いて分析した結果、図3に示すように、加溶媒分解処理木粉のスペクトルには、無処理木粉のスペクトルには認められなかった、溶媒由来のCH₂結合やC-H結合由来の吸収ピーク(CH₂結合: 1465 cm⁻¹、C-H結合: 717 cm⁻¹)が認められたことから、溶媒由来の疎水基が木粉に導入されていることを明らかとなった。しかし、加溶媒分解処理時間が10分、および30分の処理木粉においては疎水基の導入は認められなかった。このことから、以下の実験には処理時間を120分として調製した加溶媒分解処理木粉を用いることとした。

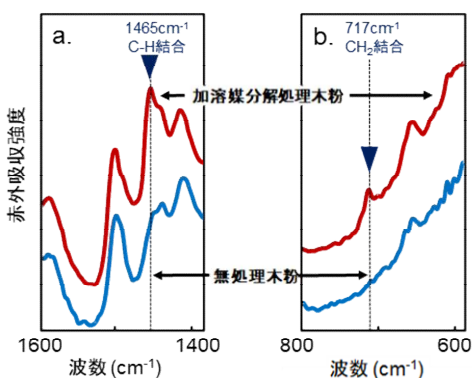


図3 加溶媒分解処理木粉と無処理木粉の表面のFTIRスペクトル

なお、¹H-NMR、XRD分析においてもFTIR分析と同様に加溶媒分解処理木粉のスペクトルには溶媒由来の吸収ピークが認められた。

(2) 加溶媒分解処理木粉とポリプロピレンの複合化特性評価

加溶媒分解処理した木粉とポリプロピレンとの配合比を変えて様々なWPCコンパウン

ドを調製し、熱流動特性を測定することにより、加溶媒分解処理木粉の含有率の違いがWPCコンパウンドの熱流動特性に及ぼす影響を評価した。その結果、表1に示すように、無処理の木粉を用いた場合には、木粉の含有率が50%の場合には熱流動性の指標であるメルトフローレート(MFR)は35.8 g/10minであり、木粉の含有率を高め、60%とした場合には4.0 g/10minであった。これに対し、加溶媒分解処理木粉を用いた場合には加溶媒分解処理木粉の含有率が50%の場合のMFRは59.1 g/10minであり、木粉の含有率が60%の場合には33.7 g/10minであった。

表1 加溶媒分解木材を用いて製造したWPCのメルトフローレート(MFR)

木粉含有率	60%	50%
無処理木粉(g/10min)	4.0	35.8
加溶媒分解処理木粉(g/10min)	33.7	59.1

このことから、加溶媒分解処理木粉を用いることによりWPCの流動特性が向上し、その含有率を高めても流動特性の低下が小さく抑えられることが判明した。これらの結果をもとにWPCの射出成形条件の検討を行った結果、本研究における射出成形条件を射出温度200、射出圧力9.0 MPaに決定した。

(3) 加溶媒分解処理木粉とポリプロピレンを原料として製造したWPCの力学物性評価

木粉の加溶媒分解処理がWPCの力学物性に及ぼす影響を明らかにするために、加溶媒分解処理木粉の含有率を50%として射出成形により製造したWPCの曲げ試験、引張試験、および衝撃試験を行い、無処理木粉を用いた場合の結果と比較した。その結果、図4に示したように、曲げ試験では、無処理木粉を用いた場合には、最大曲げ強度が46.0MPaであり、破断点ひずみ(伸び)が約4.8%であったのに対し、加溶媒分解処理木粉を用いた場合には、最大曲げ強度が39.0MPaに低下したが、本研究における試験条件では破断しなかった。

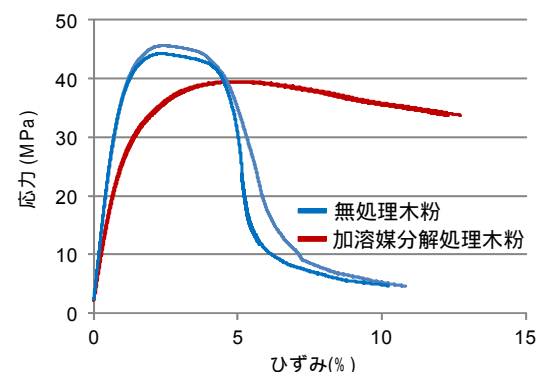


図4 加溶媒分解処理木粉を用いて製造したWPCの曲げ試験における応力-ひずみ曲線

引張試験の結果を図5に示す。無処理木粉

を用いた場合には最大引張強度が 22.4MPa であり、破断点ひずみが 2.3%であったのに対し、加溶媒分解処理木粉を用いた場合には最大引張強度は 18.8MPa に低下したが、破断点ひずみが 9.5%であったことから、伸び性能が約 4 倍に向上することが判明した。

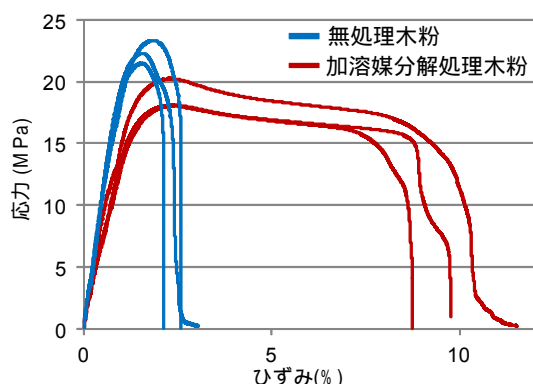


図 5 加溶媒分解処理木粉を用いて製造した WPC の引張試験における応力-ひずみ曲線

衝撃試験の結果を図 6 に示す。加溶媒分解処理木粉を用いた場合の衝撃強度の平均値は 7.94 kJ/m² であり、無処理木粉を用いた場合の 5.63kJ/m² の約 1.4 倍の衝撃強度を示すことが判明した。

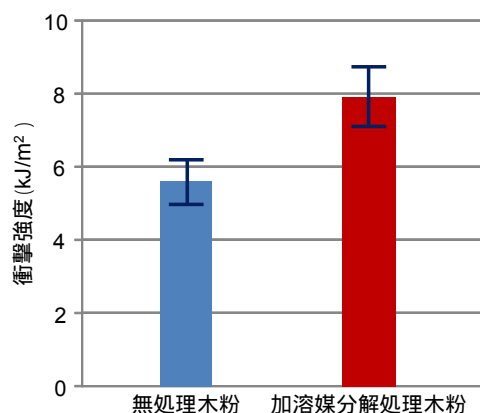


図 6 加溶媒分解処理木粉を用いて製造した WPC の衝撃試験結果 (エラーバーは標準偏差を示す。(n=5))

これらの結果から、木粉の加溶媒分解処理により、WPC の欠点の一つであった硬くて脆い性状を改善し、伸び性能と耐衝撃性能に優れた WPC を製造できることを明らかにした。

現在、WPC の用途は単純な形状のエクステリア資材に限られているが、本研究で得られた成果により、今後、複雑な形状の自動車部品、家電製品の筐体や日用雑貨などに WPC の用途を拡大できると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

小林正彦、片岡厚、石川敦子、松永正弘、神林徹、木口実：木材・プラスチック複合材 (混練型 WPC) の耐候性に及ぼす木粉含有率と表面研削の影響、森林総合研究所研究報告、

査読有、16(1)、1-12、2017

三浦健司、三ヶ田祐也、岡英夫、関野登、小林正彦、木口実、大友祐晋：磁性粉配合混練型木質プラスチックを用いる多層型電波吸収体の二波共用特性実現のための厚さ最適化、電子情報通信学会論文誌、査読有、BJ99-B(3)、241-243、2016

三浦健司、関野登、久保田賢二、岡英夫、小林正彦、木口実、大友祐晋：電波吸収機能を有する磁性粉配合混練型 WPC、木材学会誌、査読有、62(1)、9-17、2016

小林正彦：木材・プラスチック複合材料 (混練型 WPC) 中の木材の間に定量分析法、木材工業、査読有、70(9)、409-412、2015

小林正彦、久保智史、片岡厚、石川敦子、松永正弘、木口実、大友祐晋：示差走査熱量法および赤外分光分析法による木材-プラスチック複合材料 (混練型 WPC) の定量分析 - PP / PE 混合物をプラスチック原料とする WPC への適用性 -、木材保存、査読有、41(1)、8-17、2015

〔学会発表〕(計 6 件)

小林正彦、片岡厚、石川敦子、松永正弘、神林徹、木口実：木材・プラスチック複合材 (混練型 WPC) の促進耐候性試験における木粉含有率と表面研削の影響、第 67 回日本木材学会大会、2017 年 03 月 17 日-19 日、九州大学 (福岡県福岡市)

小林正彦、片岡厚、石川敦子、松永正弘、神林徹、木口実：混練型 WPC の耐候性に及ぼす木粉率の影響 - 屋外暴露 6 か月の色差と L* 値の変化傾向 -、日本木材保存協会第 32 回年次大会、2016 年 5 月 24 日-25 日、メルパルク東京 (東京都港区)

小林正彦、片岡厚、石川敦子、松永正弘、神林徹、木口実：混練型 WPC の変色とチョーキングの発生度合いに及ぼす屋外暴露傾斜角と木粉率の影響、第 66 回日本木材学会大会、2016 年 03 月 27 日-29 日、名古屋大学 (愛知県名古屋市)

KOBAYASHI Masahiko, KUBO Satoshi, KATAOKA Yutaka, ISHIKAWA Atsuko, MATSUNAGA Masahiro, KIGUCHI Makoto, OHTOMO Yushin: Quantification of wood and plastics in WPCs containing a mixture of PP and PE as plastic raw material., International Symposium on Wood Science and Technology 2015 (IAWPS 2015), March 15-17 2015, Tower Hall Funabori, Tokyo, JAPAN

大友祐晋、小林正彦、片岡厚、松永浩史、木口実：表面改質による木質感の高い混練型 WPC の耐候性向上、日本木材保存協会第 30 回年次大会、2014 年 5 月 27 日-28 日、メルパルク東京 (東京都港区)

小林正彦、片岡厚、石川敦子、川元スミレ、松永正弘、木口実、大友祐晋：示差走査熱量法および赤外分光分析法による木材-プラスチック複合材料 (混練型 WPC) の定量分析

とその応用、日本木材保存協会第 30 回年次大会、2014 年 5 月 27 日-28 日、メルパルク東京（東京都港区）

〔図書〕(計 1 件)

小林正彦：「ウッドプラスチック」公益社団法人日本木材加工技術協会、ISBN978-4-88962-007-8、V. ウッドプラスチックをとりまく技術動向 1. ウッドプラスチックに関する最近の研究動向、70-75、2014

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小林 正彦 (KOBAYASHI, Masahiko)
国立研究開発法人 森林総合研究所・木材改質研究領域・主任研究員
研究者番号：00397530

(2) 研究分担者

久保 智史 (KUBO, Satoshi)
国立研究開発法人 森林総合研究所・森林資源化学研究領域・チーム長
研究者番号：50399375

(3) 研究分担者

片岡 厚 (KATAOKA, Yutaka)
国立研究開発法人 森林総合研究所・木材改質研究領域・室長
研究者番号：80353639

(4) 連携研究者

木口 実 (KIGUCHI, Makoto)
国立研究開発法人 森林総合研究所・研究ディレクター・木質バイオマス利用研究担当
研究者番号：50353660