

製紙技術を活用したバイオマス複合材料の開発 (第1報)

松原弘一¹、関 範雄¹、野村貴徳¹、杉野秀明²、遠藤浩一郎²

Development of Biomass-Composite by using Abaca/Ramie and PLA Paper

Hirokazu Matsubara, Norio Seki, Takanori Nomura, Hideaki Sugino and Kouichiro Endo

本研究では、カーボンニュートラル素材から構成される複合材料の開発について検討した。マニラ麻/苧麻紙とポリ乳酸との複合化により、製紙材料を出発材料とした複合材料を作製し、その評価を行った。結果、一軸配向としたマニラ麻/苧麻紙とポリ乳酸紙との複合材料は、引張強さ 200MPa、曲げ強さ 300MPa 以上を示した。

1. はじめに

地球温暖化の進展、資源の枯渇、地球環境の悪化により、環境・省資源・省エネルギーに対する様々な取り組みが世界規模で行われている。ものづくり産業分野においても、環境・資源・エネルギーは、今後の経済成長の大きな要因となっており、機能重視から環境重視の技術革新が強く求められている。特に工業製品では、循環型社会形成推進基本計画において、今までの大量生産、大量消費、大量廃棄を改め、資源保全、再使用、再資源化等の循環型経済システムの構築が求められている。

一方、岐阜県では長期構想において、「生産性や付加価値の向上を支援するための産学官、企業間連携による新技術・新商品開発の支援」等、今後県が取り組む政策の方向を明記している。また、岐阜県地球温暖化防止基本条例において、「地球温暖化の防止に貢献する技術に係る研究開発の促進並びに当該技術を有する産業の育成及び振興に関すること。」を県が実施する施策として定めている。

複合材料を使用する分野においては、年々増加するガラス繊維強化複合材料 (GFRP) の廃棄問題が取り沙汰される中、カーボンニュートラル素材採用による温室効果ガス削減という新たな取り組みが行われるようになってきた。環境調和と性能を組み込んだ製品として、天然繊維とバイオマスプラスチックを組み合わせた環境型複合材料開発が大手企業を中心に進められている。しかし、これら製品は主に射出成形法、押出成形法で作製されるが、樹脂中に高体積率の天然繊維を混練、均一分散させることが難しく、優れた強度特性が得られていない。このため、当センターでは、セルロースの水素結合を活用した製紙材料を出発原料とする環境配慮型複合材料の研究開発^{1),2),3)}に取り組んできた。その結果、試作品強度においてGFRPの射出成形品と同等を目標としたが、まだ達することができていない。

そこで本研究では長繊維の天然繊維を強化材とし、これまでの手法を応用することにより、機械強度として引張強度及び曲げ強度 200MPa、比強度 $2 \times 10^6 \text{cm}$ を目標とし、更なる強度の向上を図った。

2. 実験

2.1 長繊維強化材の紙料化

複合材料の強化材としてマニラ麻と苧麻を用いた。マニラ麻は、PFI ミル (熊谷理機工業 (株)) を用いて、パルプを叩解し、CSF190ml とした。苧麻は、スライバーをトウカッターで 10~30mm にカットし、ナギナタビーターで離解分散した。

2.2 マニラ麻/苧麻紙

このマニラ麻、苧麻混合スラリーに製紙薬剤を添加し、タッピスタンダードシートマシン (200mm×250mm) により坪量 60g/m²で抄紙し脱水した後、120℃のプレス乾燥を行い成紙とした (以下マニラ麻/苧麻紙と略記)。また、マトリックス材料としてポリ乳酸ショートカットファイバーを用いた。レギュラー型とバインダー型の配合比を 80/20 とし、タッピスタンダードシートマシンにより坪量 40g/m²で抄紙し脱水した後、115℃のプレス乾燥を行い成紙とした (以下 PLA 紙と略記)。

次にタッピ手抄きのデータを基に、当紙研究部のコンピネーションテストマシンでマニラ麻/苧麻の連続紙の作製を行った。このときマニラ麻は CSF145ml に叩解したものをを用いた。苧麻は 20~30mm カット品を離解させたものをを用いた。マニラ麻と苧麻との配合比は 80/20 とし、円網/円網の二層抄き、ヤンキードライヤーによる乾燥を行い 60~100 g/m²の成紙とした。

2.3 成形加工・評価

これらの製紙材料を出発材料として複合材料の作製を検討した。坪量 60g/m²のマニラ麻/苧麻紙 10 枚と 40g/m²の PLA 紙 11 枚を用いて、両表面が PLA 紙となるように交互に積層し、2 枚の板状金型に挟み込み真空引きを行いながらホットプレス機 (SF-37: 神藤金属工業所) を用いて圧縮成形した。金型温度は 180℃とし、所定時間後、水冷し試験片とした。このとき作製した試験片の寸法は 110mm×90mm×1~2mm とした。複合材料の成形概念と成形体断面を図 1 に示す。

¹岐阜県産業技術センター、²岐セン (株)

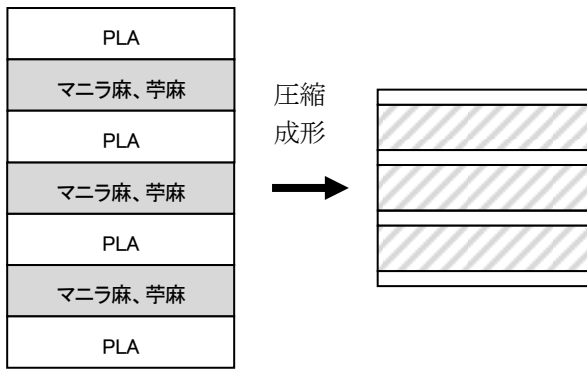


図1 複合材料の成形概念と成形体断面

3. 結果及び考察

3.1 長繊維強化材の紙料化

葉脈繊維であるマニラ麻は繊維の長さ 2~12mm、幅 16~32 μ m であり、製紙では良く用いられるものである。マニラ麻は叩解によりフィブリル化が進み、水素結合によるシート強度の増加が見込めるため CSF190ml とした。しかし、このマニラ麻だけからなる強化材では曲げ強さが目標値に達しないため、マニラ麻に苧麻を配合することとした。韌皮系麻類の中で苧麻は、繊維の長さ 60~250mm、平均 150mm、幅 20~80 μ m で、韌皮細胞中、最大である。また、強度は繊維植物中、最大である⁴⁾。しかしこの苧麻を抄紙するには繊維が長すぎるため、スライバーをトウカッターで切断し、紙料とした。繊維長は 10、15、20、25、30mm とした。

3.2 マニラ麻/苧麻紙

3.1 で作製した苧麻をマニラ麻(CSF190ml)に配合し、ハイブリッド強化材としてマニラ麻/苧麻紙を作製した。

3.3 成形加工・評価

マニラ麻/苧麻紙と PLA 紙との圧縮成形加工によりバイオマス複合材料を作製した。成形体の作製条件等は前報²⁾を参考とし、タッピ手抄きにより試作した想定坪量 60g/m²のマニラ麻/苧麻紙 10 枚と、想定坪量 40g/m²の PLA 紙のそれぞれ 11 枚を用いて積層成形した。このときの成形温度を 180 $^{\circ}$ C、成形圧力を 7.5MPa、成形時間 4 分とし、苧麻の繊維長 10~30mm にしたときのマニラ麻と苧麻配合率による成形体強度への影響を検討した。成形した複合材料の機械強度を評価するため、万能試験機 (AG-20kNG: (株) 島津製作所) で引張試験、曲げ試験を行った。なお、つかみ具の移動速度は 5mm/min、支点間距離は 50mm とした。このときの結果を図 2、3 に示す。

苧麻はマニラ麻に比べて繊維が長いいため、苧麻の繊維長が長くなる程、また、苧麻の配合率が多くなる程、抄紙時のスラリーの分散が悪くなった。これは成形体の引張強さにはマイナス要因となり、引張応力は低下傾向を示した。これに対して、曲げ強さについては苧麻の繊維

長や配合率による曲げ応力の大きな変化はなかった。今後はマニラ麻/苧麻の配合率を 80/20 で固定することとした。

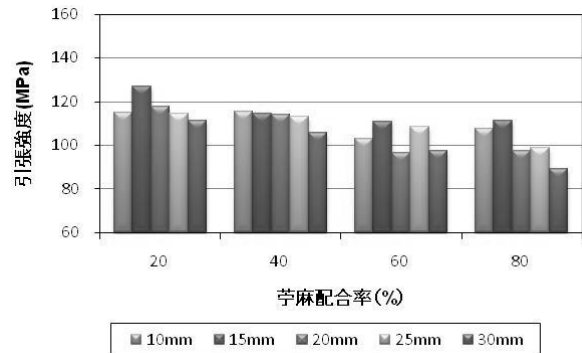


図2 苧麻繊維長・配合率と引張強度

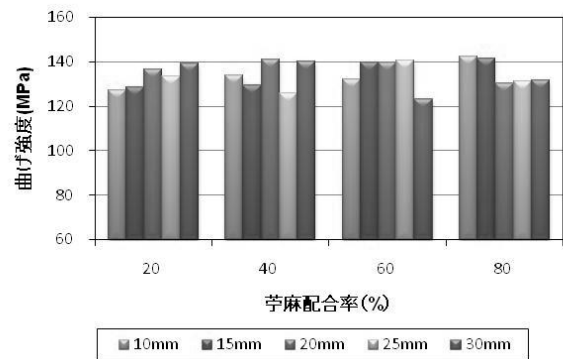


図3 苧麻繊維長・配合率と曲げ強度

次に苧麻の繊維長 15~30mm としたとき、強化材原紙坪量による成形体強度への影響を検討した。この結果を図 4、5 に示す。強化材原紙坪量が増加すると引張強度、曲げ強度が高くなる傾向となった。また、苧麻繊維長が長くなる程、曲げ応力にはプラスに働くことが分かった。

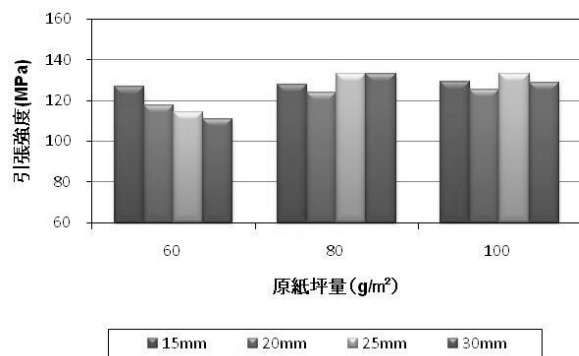


図4 苧麻繊維長・強化材原紙坪量と引張強度

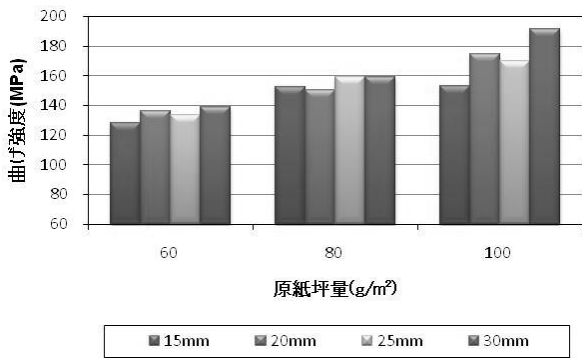


図5 苧麻繊維長・強化材原紙坪量と曲げ強度

これまでの結果を基に当研究部コンビネーションテストマシンでマニラ麻/苧麻紙の連続抄紙を行った。マニラ麻/苧麻紙の苧麻は繊維長を25mmとした。成形体の試作には、想定坪量60g/m²のマニラ麻/苧麻紙と、想定坪量40g/m²のPLA紙を用いて、マニラ麻/苧麻紙×PLA紙のプライ枚数を10×11、15×16、20×21、25×26、30×31とし、成形時間を4分、成形圧力を15.0MPaの成形条件とし、積層体プライ枚数による強度への影響を検討した。

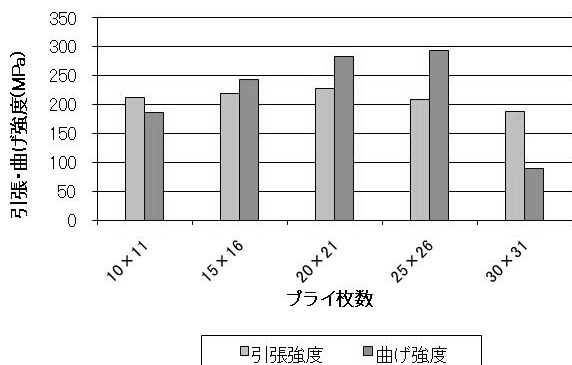


図6 積層体プライ枚数と強度特性

この結果を図6に示すように、プライ枚数が多くなるに従い、引張強度、曲げ強度が向上していき、引張強度は20×21のとき最大で228MPaとなり、曲げ強度については25×26のとき最大で293MPaを示した。

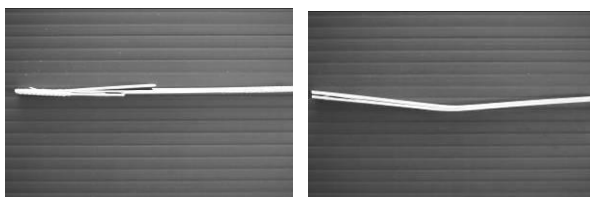


図7 成形体破断時の層間剥離
(左：引張強さ試験、右：曲げ強さ試験)

しかし、図7に示すとおり25×26のときに引張破断時に試験体の層間剥離が起こった。さらに30×31のときは引張破断時及び曲げ破断時に試験体の層間剥離が起こり、強度特性を低下させる原因となった。

そこで成形体の強化材体積占有率(Vf)と層間剥離の関係を調べると、表1に示すとおり強化材Vf60~65%を境にして、それ以上のVfでは層間剥離が発生することが分かった。Vfが高くなるということは、成形により強化材原紙間のマトリックス樹脂が流れ出ることで、原紙同士の接着が不十分になると推測される。よって強化材Vfが60~65%になるように成形時間、成形圧力を制御することとした。

表1 強化材Vfと層間剥離の関係

プライ枚数	10×11	15×16	20×21	25×26	30×31
強化材Vf	59%	60%	62%	65%	67%
層間剥離	無	無	無	有 (引張時)	有 (引張・ 曲げ時)

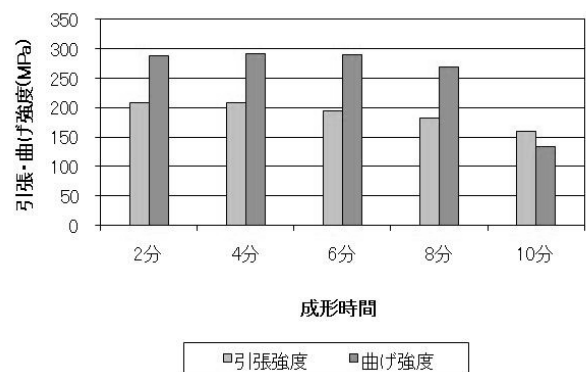


図8 成形体成形時間と強度特性

次にマニラ麻/苧麻紙×PLA紙のプライ枚数を25×26とし、成形時間を2~10分として、成形時間による強度への影響を検討した。このときの結果を図8、表2に示す。成形時間が2分の時、強化材Vfが61%となり、破断時の層間剥離は発生しなかった。

表2 成形時間による強化材Vfと層間剥離

成形時間	2分	4分	6分	8分	10分
強化材Vf	61%	65%	71%	68%	75%
層間剥離	無	有 (引張時)	有 (引張時)	有 (引張時)	有 (引張時)

プライ枚数20×21、25×26、30×31について、強化材Vfが60~65%になるように成形時間、成形圧力を制御して、成形体の機械強度特性を評価した結果を表3に

示す。その結果、プライ枚数 20×21 の成形体で引張強度 214MPa、曲げ強度 308MPa、比強度 $1.54 \times 10^6 \text{cm}$ となり目標としていたガラス繊維強化複合材料とほぼ同等の機械強度特性に達することができた。

a result, the composites were improved tensile and bending stress, comparing with the composite that molded mixing Manila hemp, PLA fiber.

表3 プライ枚数によるバイオマス複合材料の物性

プライ枚数	20×21	25×26	30×31
引張強度 MPa	214.3	210.1	203.3
比強度 $\times 10^6 \text{cm}$	1.54	1.52	1.46
曲げ強度 MPa	308.2	296.8	271.3
強化材 Vf	63.8	60.0	60.4

4. まとめ

本研究では、カーボンニュートラル素材から構成される複合材料の開発について検討した。環境に優しい天然素材であるマニラ麻/苧麻紙とトウモロコシを原料としたプラスチックであるポリ乳酸紙とを積層化し、これを圧縮成形することにより、製紙材料を出発材料としたバイオマス複合材料を作製し、その評価を行った。その結果、一軸配向としたマニラ麻/苧麻紙とポリ乳酸紙との複合材料は、引張強さ 200MPa、曲げ強さ 300MPa 以上を示した。この機械強度特性はガラス繊維強化複合材料とほぼ同等であるため、その代替となる可能性が出てきた。

この研究では、セルロース強化材の水素結合を十分に活用すること、天然の長繊維を採用すること、プレス成形の長所を利用することにより、強度の向上が期待できる。また、素材がカーボンニュートラルであるため、廃棄時の環境負荷を低減することができる。この材料が輸送機器等の構造体へ採用された場合、軽量化することで、より温室効果ガスの削減に寄与でき、今後、有望な材料となることを期待している。

【参考文献】

- 1) 松原ら, 岐阜県産業技術センター研究報告 2, pp.49-51, 2008.
- 2) 松原ら, 岐阜県産業技術センター研究報告 3, pp.39-41, 2009.
- 3) 松原ら, 岐阜県産業技術センター研究報告 4, pp.45-47, 2010.
- 4) 石川ら, 繊維, 東京電機大学出版局, pp.57-58, 1988.

Abstract

The biomass-composites using Manila hemp/Ramie paper and PLA sheet have been molded by compression method. As