

木粉-プラスチック混合物の流動特性 (第 1 報)

キャピラリ流動試験による流動特性の把握*¹

今西祐志*², 相馬奈歩*³, 竹内和敏*³, 杉野秀明*⁴, 金山公三*³

Flow Properties of Wood Powder-Plastic Mixture I. Understanding of flow properties by capillary flow tests*¹

Hiroshi IMANISHI*², Naho SOMA*³, Kazutoshi TAKEUCHI*³,
Hideaki SUGINO*⁴ and Kozo KANAYAMA*³

In order to study the flow properties of wood powder-plastic mixture with a high proportion of wood powder, flow tests using capillaries of various sizes were performed. After starting to load, the mixture did not flow for a while but was only compressed. When the load increased to some extent and the mixture started to flow, a yield point of load was observed. As the mixture began to flow out continuously, flow resistance of the mixture and load generally balanced and a dynamic equilibrium state appeared. A high correlation was observed between yield load and dynamic equilibrium load. By using capillaries of various sizes, extrusion molded material with greatly differing bulk densities and surface characteristics was obtained. As for the surface characteristics, the same phenomenon as the defective molding called melt fracture in plastic molding was observed.

Keywords: wood powder-plastic mixture, flow property, capillary flow test, extrusion molded material.

木粉比率の高い木粉-プラスチック混合物の流動特性を把握するため、様々な寸法のキャピラリを用いた流動試験を行った。混合物は初め、静的な状態で外力に抵抗し、流動が始まって連続的な流動状態になると、巨視的には動的平衡状態と考えられる挙動を示した。静的な状態から動的な状態に移行する際には、木粉比率が高いことに起因すると思われる降伏荷重の発現が認められた。降伏荷重と動的平衡荷重とは高い相関関係にあった。キャピラリから押し出されて得られた成形体のかさ密度および表面性状は、キャピラリ寸法によって大きく異なった。表面性状については、プラスチック成形におけるメルトフラクチャと類似の成形不良の発現が確認された。

1. 緒 言

自然保護や環境問題への関心の高まりから、木質資源のリサイクル利用法の開発が具体的な課題として検討され始めている。建築廃材や工場廃材などとして発生する木質廃材の再利用はカスケード型に行われ、各段階に進むごとにエレメントの大きさは小

さくなる¹⁾。エレメントが比較的大きい場合には再利用の方法がほぼ確立しているが、カスケード型利用の最終段階である木粉は、燃料としてサーマルリサイクルされるか、焼却あるいは埋め立て処分されている。地球温暖化の問題に対する二酸化炭素固定の観点からすれば、木粉を原料としたマテリアルリサイクルによる活用度の向上がより好ましい利用方

*¹ Received June 16, 2004 ; accepted October 18, 2004. 本研究の一部は第53回日本木材学会大会 (2003年 3 月, 福岡), 第52期日本材料学会学術講演会 (2003年 5 月, 東京), 2003年度日本木材学会中部支部大会 (2003年 8 月, 静岡) で発表した。

*² 日本学術振興会 Japan Society for the Promotion of Science, Tokyo 102-8471

*³ 産業技術総合研究所 National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Nagoya 463-8560

*⁴ 新エネルギー・産業技術総合開発機構 New Energy and Industrial Technology Development Organization, Tokyo 170-6028

法であると言える。また、それによって任意の三次元形状の材料が成形できれば、埋蔵資源を由来とする材料の代替を推し進めて、資源問題に対する解決策ともなりうる。

これまで、木粉を原料とした成形材料として、木粉と熱可塑性樹脂（プラスチック）との複合化の研究が1970年頃から数多く研究されてきている²⁾。当初木粉は、プラスチックを押出または射出成形する際に添加する増量剤として用いられていたが、現在では、70~95 wt%の木粉を含む高木粉比率の押出成形体の製造が可能となっている³⁻⁶⁾。成形速度も改善されてきており⁶⁾、押出成形による木質プラスチック複合体については、すでにいくつかの実用化例がある⁷⁻¹⁰⁾。

木質プラスチック複合体の更なる用途拡大の方策の一つとして、射出成形による複雑形状成形体の製造が考えられるが、高木粉比率での射出成形については困難な課題が多く残されたままである。例えば、木粉-プラスチック混合物の流動特性は、基本的にはプラスチック溶融体のそれに依存するが、木粉比率を高くすることで木粉の寸法形状や物理特性などの影響が多分に現れるようになり、混合物の粘性は急激に上昇する¹¹⁾。射出成形における諸条件の最適化のためには、混合物の流動特性を把握し、その挙動を解析して粘性係数を定量的に評価することが必要であるが、高木粉比率の木粉-プラスチック混合物について精緻な解析が行われた報告例はこれまでにない。

本報では、木粉-プラスチック混合物の流動特性を評価するための基礎的知見を得るため、粘性流体の流動解析の際に一般的に行われるキャピラリ試験により、木粉-プラスチック混合物の流動挙動の把握を試み、とくに混合物の流動および押出成形体の性状に及ぼすキャピラリ寸法の影響について検討した。

2. 実 験

2.1 供試材料

原料木粉は、スギ (*Cryptomeria japonica* D. Don) とヒノキ (*Chamaecyparis obtusa* Endl.) のチップをほぼ同量ずつ混合したものを粉碎機にかけて製造した。電磁振とう式ふるい振とう器を用いて木粉を分級し、目開き53 μm のふるいを通して木粉を使用した。Fig. 1は木粉のSEM観察像である。木粉粒子は、木材が繊維質であることに由来する細長い形状のものが多く、Fig. 1について画像解析を行って求めた木粉粒子のアスペクト比の平均は4.0 (最小1.1、

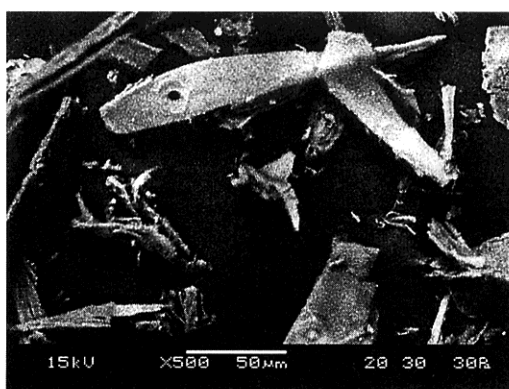


Fig. 1. SEM Photograph showing wood particles.

最大14) であった。

熱可塑性樹脂は、ポリエチレンオキサ이드 (PEO, 明成化学工業(株)製, R-150, 平均分子量約10万, 融点 約67°C, 密度 約1.1 g/cm³) を使用した。PEO は人体や動物に対して無毒で、生分解性があるので環境汚染に対して安全である。そして、水溶性と熱可塑性を併せ持ったプラスチックであり、電子機器や医療・食品、土木・建材、エネルギーなど幅広い分野で一般的に使用されている。

全乾状態の木粉と PEO の粉末を混合して攪拌することにより、15 wt% の PEO を含む木粉-プラスチック混合物を調製した。PEO が親水性であるので、親水性の木粉との混合に際して相溶化剤は使用しなかった。混合物を円筒形の金型に入れ、常温 (約25°C) で加圧して $\phi 29.5 \text{ mm} \times \text{約} 30 \text{ mm}$ のペレット (かさ密度約0.88 g/cm³) を用意した。

2.2 試験方法

Fig. 2 に試験方法を示す。混合物ペレットを内径 30 mm のシリンダに入れ、シリンダ近傍に設置した熱盤により加熱した。Fig. 3 は、80°C に保ったシリンダに混合物ペレットを入れて加熱した時の、ペレット中心部の温度変化を示したものである。加熱開始から約 5 min 後、中心部の温度が60°C を越えたあたりで温度上昇が鈍っているが、これは、木粉と混合した PEO のうち金型近くのものから融点に達して、ペレットが部分的に溶けたことによるものである (PEO の融点は約67°C)。さらに加熱すると、約 30 min でペレット中心部の温度が約80°C に達した。この時点で、混合物ペレット全体の温度は約80°C まで上昇しており、PEO は溶融状態にあると判断した。混合物の温度が約80°C まで上昇してからピストンを一定速度で押し込んで加圧し、シリンダ部の混合物体積と荷重との関係を調べた。ピストンの押し込み

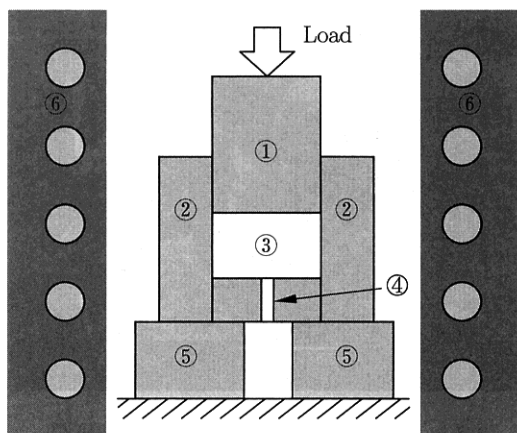


Fig. 2. Schematic illustration of the capillary flow test.
Legend: ① : Piston, ② : Cylinder, ③ : Wood powder-plastic mixture, ④ : Capillary, ⑤ : Jig, ⑥ : Heater.

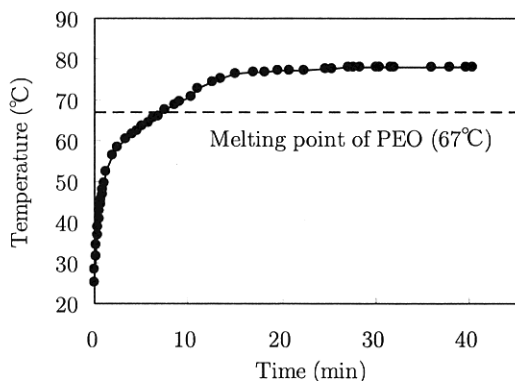


Fig. 3. Change of temperature at center of wood powder-plastic mixture.
Notes: Heating method: Refer to Fig. 2, target temperature: 80°C.

速度は1.5 mm/min, 目標荷重は120 kNである。キャピラリの長さ (L) は10, 20, 30 mm, 直径 (D) は1, 3, 5 mmである。なお, 試験結果に大きな影響を及ぼす可能性のあるキャピラリー部の表面は, 10 μ m 粒径のダイヤモンドペーストで研磨して仕上げた。

3. 結果と考察

3.1 シリンダ内部の木粉-プラスチック混合物体積と荷重との関係

Fig. 4 は, シリンダ内部の木粉-プラスチック混合物体積と荷重との関係を示したものである。ここでは (L, D)=(10, 3) の場合を例示した。ピストンが押し込まれても, 初めのうちは混合物の流動はなく, シリンダ内部の混合物が圧縮されて体積が減少して

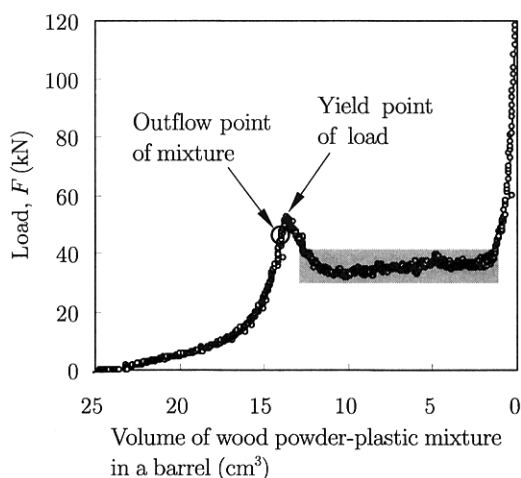


Fig. 4. Relationship between volume of wood powder-plastic mixture in a cylinder and load in a capillary flow test.

Legend: ○ : Point showing the outflow of wood powder-plastic mixture from the capillary exit, ■ : Area showing the dynamic equilibrium state.

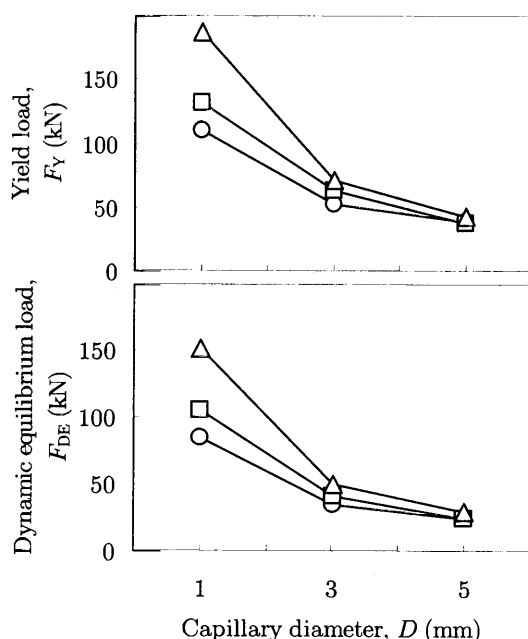
Notes: Capillary length: 10 mm, capillary diameter: 3 mm.

いく。混合物を圧縮するための荷重が増大していき, ある程度まで混合物が圧縮されるとキャピラリー出口から混合物が流出し始め, その後, 荷重値が一旦急激に低下する。この荷重低下が生じる前の最大荷重を, 以下では降伏荷重 (F_Y) と称す。降伏荷重が現れた後は, 混合物が連続的に流出していても荷重値の変動は比較的小さく, 巨視的には動的平衡状態にあると考えられる領域が現れる。この領域の荷重の平均値を, 以下では動的平衡荷重 (F_{DE}) と称す。動的平衡状態を過ぎてシリンダ内部の混合物がほとんど流出してしまうと, シリンダ内部でのキャピラリー入口への混合物の移動がなくなり, わずかな混合物を挟んで金型同士がほぼ接触した状態となり, 荷重値は一気に上昇して目標荷重 (120 kN) に達する。

3.2 降伏荷重と動的平衡荷重

Fig. 4 の中の○は, キャピラリー出口からの混合物の流出が確認できた点を示しているが, F_Y の発現はこれよりも後であった。この現象は, いずれのキャピラリーを用いた場合でも同様に見られた。このことから, F_Y の発現は混合物の流動開始を表すものでないことは明らかである。

Fig. 5 に, F_Y および F_{DE} とキャピラリー寸法との関係を示す。 F_Y および F_{DE} のいずれも, D が小さく, L が大きいほど大きい傾向にあった。また, これら二つの荷重の間には, Fig. 6 に示すように, 高い相

Fig. 5. Effect of D on F_Y and F_{DE} .Legend: \circ : $L=10$ mm, \square : $L=20$ mm, \triangle : $L=30$ mm.Note: L : Capillary length.

関係が認められた。これは、 F_Y の大小には、 F_{DE} と同様、混合物がキャピラリーを流動する際の抵抗が関係していることを示している。

以上のことから、 F_Y が現れるメカニズムとして、次のことが考えられる。負荷開始後しばらくは、混合物中の粒子同士の摩擦によって静止した状態が続く。シリンダ内の圧力がある程度まで上昇すると、キャピラリー入口付近の一部の混合物が流動し始めるが、キャピラリー入口から上方のある部分では、混合物中の粒子同士が押し合って一種のアーチ化の状態が形成されて、ここで上方からの圧力が支えられる。そして、それより上の位置での混合物は流動しない。さらに内圧が上昇すると、シリンダ内では徐々に流動部分が拡大し、アーチ化が生じている部分の下側の混合物がキャピラリー入口へと流動し、キャピラリーの寸法に応じた抵抗を受けつつも混合物が連続的に流出する。ある程度まで流動が進むと、アーチ化の状態が突然に壊れて荷重値が一気に低下し、シリンダ内の全ての混合物が流動しやすい状態に移行する。このようなメカニズムは、粒状固体の大型容器からの流出挙動¹²⁾から推察できるものであるが、それを実証するためにはさらに詳細な実験的検討を要する。しかしながら、少なくとも、静的状態においては粉体としての特性、動的状態においては流体

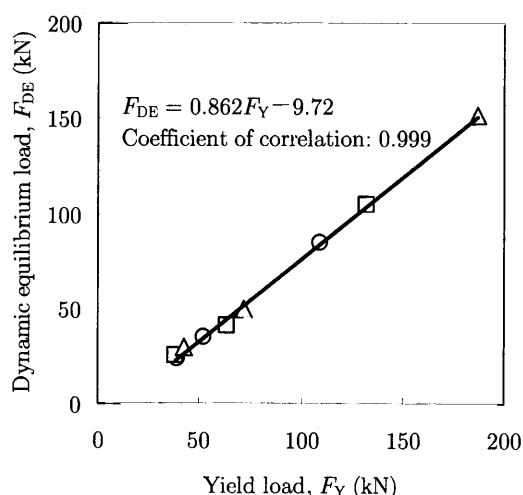


Fig. 6. Relationship between yield load and dynamic equilibrium load.

Legend: Refer to Fig. 5.

としての特性がそれぞれ強く現れていると解釈することは合理的であると考えられる¹¹⁾。そして F_Y は、木粉の形状や大きさ、硬さなどの機械的特性、摩擦係数などの物理的特性のほか、木粉とプラスチックの混合割合、混練方法などによって大きく影響されることが考えられ、実際の成形における条件の最適化のためには、さらに詳細な検討を要する。

また、 F_Y の発現後に現れる動的平衡状態においては、混合物は流動状態にあり、キャピラリー出口からは連続的に混合物が流出し続けている。この時、ピストンに作用している荷重に対して、混合物が流動変形を生じることで抵抗し、おおむね力学的な平衡状態となっている。木粉には流動性はほとんどないので、キャピラリー内での混合物の流動は基本的にはPEOの流動特性に依存して、非ニュートン挙動を示すと考えられる。しかし、木粉との混合によって粘性係数は大きく変化し¹¹⁾、その変化の程度は木粉の形状特性および物理的特性などによっても変わると考えられる¹³⁾。そして、キャピラリーの末端では圧力損失が生じており¹⁴⁾、流れはキャピラリー壁でのすべりをともなったものであると考えられる¹⁵⁾。このように、混合物のキャピラリー流動は複雑であることが予想されるが、動的平衡状態は、実際の成形において非常に重要なパラメータである混合物の流動特性を定量的に評価するための手がかりとなるものであり、今後、さらに詳細な解析が必要である。

3.3 混合物のかさ密度

シリンダ内の混合物は、負荷開始後、圧縮によってかさ密度が増大する。混合物はある時点から流動し始めるので、かさ密度の最大値を特定することは困難であるが、キャピラリ出口からの混合物の流出が確認できたとき (Fig. 4 参照) のかさ密度は、それとかなり近いものと考えられる。この時の混合物体積と混合物の初期重量から、かさ密度を算出したものを Fig. 7 に示す。 D が小さいほどかさ密度が大きく、より圧縮されていることが分かるが、木材および PEO の無負荷状態での真密度がそれぞれ 1.5, 1.1 g/cm^3 程度であることを考えると、混合物には数%~十数%の空隙が存在すると考えられる (混合物ペレットの時点では空隙は約 38%)。また、粉体流出時のかさ密度への L の影響は比較的小さく、同一の D に対してほぼ同じ値であった。

また、Fig. 7 には、キャピラリ試験で得られた押出成形体のかさ密度もあわせて示してある。成形体のかさ密度は、 D が小さく、 L が大きいほど大きい傾向にあるが、全体的に、前述のシリンダ内におけるかさ密度よりも小さい。Fig. 8 に、押出成形体のかさ密度と、 L と D の比 (L/D) の関係を示す。 L/D の値が大きくなるほどかさ密度は大きくなる傾向にあるが、とくに $L/D=5$ 付近でのかさ密度の変化が顕著であり、この値を境に、かさ密度が 1.3 程度の

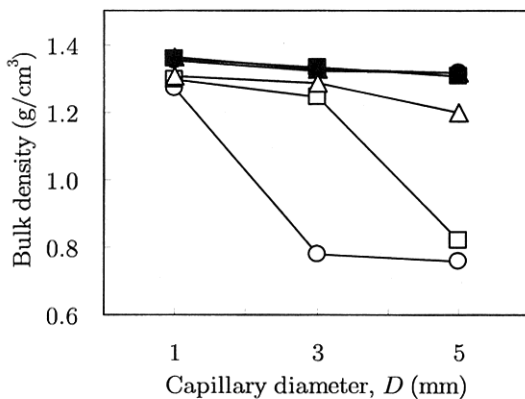


Fig. 7. Effect of capillary size on bulk density of wood powder-plastic mixture and extrusion molded material.

Legend: Solid symbol: bulk density of wood powder-plastic mixture in a cylinder; open symbol: bulk density of extrusion molded material. ●, ○: $L=10$ mm, ■, □: $L=20$ mm, ▲, △: $L=30$ mm. L : Capillary length.

Notes: Bulk density of wood powder-plastic mixture in a cylinder is a calculated value based on the mixture volume when the outflow of mixture from the capillary exit was confirmed (Refer to Fig. 4).

ものと 0.8 程度の 2 つのグループに押出成形体を分けることができる。 $L/D > 5$ の場合には、成形体のかさ密度は、前述のシリンダ内におけるかさ密度とそれほど大きな差はないが、 $L/D < 5$ の場合には、成形体のかさ密度は、シリンダ内におけるかさ密度から大きく低下しており、もとのペレットのそれ (約 0.88 g/cm^3) よりも小さくなっている。このような 2 つのグループのかさ密度の違いは、後述する押出成形体の表面性状の違いと一致していた。

3.4 押出成形体の外観

Fig. 9 は、異なる寸法のキャピラリから押し出された成形体の写真である。キャピラリ寸法の違いにより表面性状に差が生じており、表面に無数の亀裂が生じて荒れているもの ($(L, D) = (10, 3), (10, 5)$),

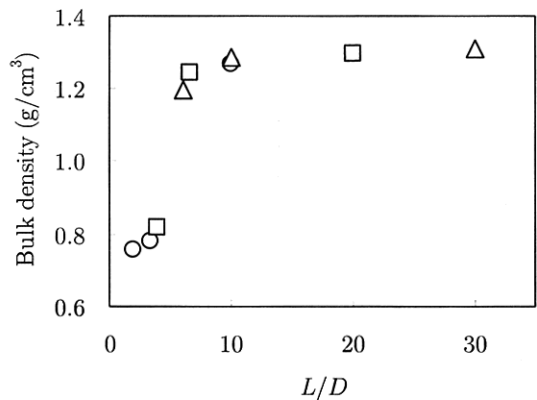


Fig. 8. Effect of L/D on bulk density of extrusion molded material.

Legend: Refer to Fig. 5.

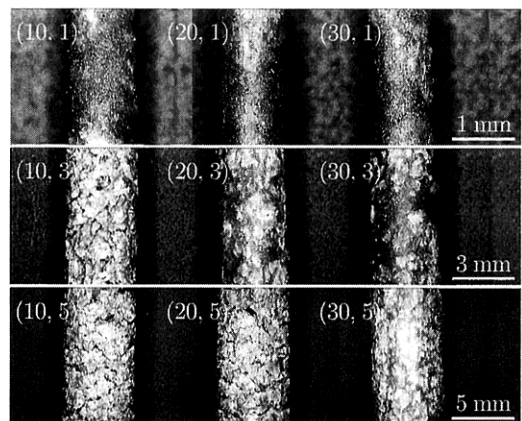


Fig. 9. Photographs of the extrusion molded material.

Note: Two numbers in each parenthesis, the first is the capillary length, L (mm), and the second is the capillary diameter, D (mm).

(20, 5)) と、表面が比較的平滑であるものに分けることができる。前述のように、このような2つのグループの表面性状の違いはかさ密度の違いと一致しており、両者の違いを特徴づけるパラメータとして $L/D=5$ を見出すことができた。すなわち、本研究で取り上げた木粉-プラスチック混合物で押出成形を良好に行うためには、 D の5倍を超える L とすることが必要であった。ところで、押出成形体の表面が荒れたような状態になる現象は、プラスチックの押出成形におけるメルトフラクチャと呼ばれる成形不良と類似している¹⁶⁾。メルトフラクチャは、キャピラリ内での溶融プラスチックの流速が大きすぎる場合にキャピラリ内で平行な流線が形成される余裕がなく、溶融プラスチック内の応力の強弱が周期的に変動するために発生する異常流出現象である。本研究では、流速のみをパラメータとして変化させた検討を行っていないので、観察された押出成形体の成形不良がメルトフラクチャと同じメカニズムによるものかどうかは現時点では明確ではないが、最適な成形条件の決定のためには、流動挙動についてのさらに詳細な検討が必要である。

4. 結 言

高木粉比率の木粉-プラスチック混合物についてキャピラリ試験を行い、その流動挙動の把握を行った。混合物の流動は、基本的にはプラスチックの流動特性に依存すると考えられるが、高木粉比率であることに起因すると思われる降伏荷重の発現が認められた。連続的な流動状態にあつては、巨視的には動的平衡状態と考えられる挙動が確認された。押出成形体のかさ密度および表面性状は、キャピラリ寸法によって大きく異なることが示され、表面性状については、プラスチック成形におけるメルトフラクチャと類似の成形不良の発現が確認された。

謝 辞

本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金（特

別研究員奨励費）により行われた。ここに記して謝意を表する。

文 献

- 1) 有馬孝禮：材料 **43**, 127-136 (1994).
- 2) 岡本 忠：木材学会誌 **49**, 401-407 (2003).
- 3) 柏山晃毅, 前田直実：木質プラスチック複合体研究会 第1回研究会要旨集, 京都, 2001, pp. 1-11.
- 4) Polts, K., 柏山晃毅, 前田直実：プラスチックス **51**(5), 26-31 (2000).
- 5) 前田直実：日本接着学会誌 **37**, 487-492 (2001).
- 6) Clemons, C.: *Forest Prod. J.* **52**(6), 10-18 (2002).
- 7) Rowell, R.: 木質プラスチック研究会 第3回研究会要旨集, 奈良, 2002, pp. 1-7.
- 8) 柏山晃毅, 前田直実：プラスチックス **52**(5), 26-31 (2001).
- 9) 長谷川正：ポリマーダイジェスト **53**(4), 45-55 (2001).
- 10) 沢田慶司：ポリマーダイジェスト **54**(1), 79-88 (2002).
- 11) 明石光弘, 大沼加茂也：木材学会誌 **21**, 22-28 (1975).
- 12) 三輪茂雄：“粉粒体工学”, 朝倉書店, 東京, 1972, pp. 185-219.
- 13) 遠藤茂寿, 山口賢治, 遠藤 展：化学工学 **45** 450-452 (1981).
- 14) Bagley, E. B.: *J. Appl. Phys.* **28**, pp. 624-627 (1957).
- 15) Blyler, L. L., Hart, A. C.: *Polym. Eng. Sci.* **10**, 193-203 (1970).
- 16) Tadmor, Z., Gogos, C. G.: “プラスチック成形加工原論”, 大柳 康 訳監修, シグマ出版, 東京, 1991, pp. 517-520.