

論文

木粉に竹繊維および生分解性接着剤を混合した複合材の開発
— 曲げ強度に及ぼす木粉および竹繊維のアルカリ処理の効果 —木之下 広幸*, 海津 浩一**, 重留 良次*,
徳永 仁夫***, 河村 隆介*, 池田 清彦*Woodchip Matrix Composite with Bamboo Fibers
and Biodegradable Adhesive—Influence of Alkali Treatment of Woodchips and Bamboo Fibers
on Bending Strength of Composite—

Hiroyuki KINOSHITA, Koichi KAIZU, Ryouji SHIGETOME

Hitoo TOKUNAGA, Ryusuke KAWAMURA and Kiyohiko IKEDA

The green composite has attracted special interest recently. From the viewpoint of the effective utilization of waste wood, we proposed the composite composed of woodchips as the matrix material, bamboo fibers as the reinforced fiber and the biodegradable resin as the adhesive. The composite was formed a mixture of those materials into correct shape by press at the appropriate temperature. In this paper, in order to improve the strength of the composite, the surfaces of woodchips and bamboo fibers were modified by the alkali treatment. By examining the bending strength of the composites, it was found that the alkali treatment was effective in order to improve the bending strength of the proposed composite. Especially, it was clarified that the high bending strength was obtained in the case of combination of woodchips with the alkali treatment and bamboo fibers without the alkali treatment.

Key words: Woodchip, Bamboo Fiber, Biodegradable Adhesive, Alkali Treatment, Composite, Bending Stress

1. 緒言

竹や木は再生可能な天然資源であり、環境汚染への影響が少ないことから、資源の有効利用の促進ならびに環境保護という社会的な要望とともに、これらの素材を利用した材料開発が注目されている。著者らは、竹や木をそのまま用いるのではなく、複雑形状の製品を作製できるように、母材としての木粉に、強化材としての竹の長繊維および少量の生分解性接着剤（生分解性プラスチック）を混合した複合材の開発を行ってきた^{1),2)}。これらの環境に与える負荷の小さい3種類の素材を混合した複合材を作製した経緯は次の通りである。

第1段階として、著者らは、林業や木材加工業における従来からの問題点として、長い年月にわたって育てた木を伐採したにもかかわらず、強度不足や形状不良のために建築材や家具材として利用できない材木が多いこと、木材加工を行った際に生じる木粉の廃棄処分が問題となっている

ことに着目し、これらの木材資源を有効利用することにより材料コストを低く抑えることを目指し、木粉を母材とする材料開発を行うこととした。木粉を原料とした材料開発に関する研究は、三木らの木材粉末の成形に関する研究³⁾⁻⁵⁾などがあり、木粉は、素材自体に接着性があるために、接着剤を使用しなくても圧力をかけて固形化できる。特に、粒度が100 μ m程度の木粉を用いた場合には、適切な温度と圧力の条件を適用して圧縮成形すれば、非常に高い曲げ強度と硬度を有する部材が作製可能である³⁾。しかし、木粉のみを固めた材料は、耐水性が悪くかつ脆いという性質がある²⁾。また、木材加工において多用されている1mm程度の厚さの鋸の使用では、100 μ m程度の細かい粒度の木粉はほとんど生じない。従って、木材加工を行った際に生じる廃棄木粉をそのままでは有効に利用できない。そこで、木材の切削加工において多量に排出される1mm程度の粒度の木粉を用いた研究を行った。その結果、木粉を母材とする複合材の強度は木粉の粒度に依存し、1mm程度の粒度の木粉を用いた場合には、100 μ m程度の木粉を用いた場合と比較して複合材の強度は低いことが明らかとなった^{1),2)}。

第2段階として、粒度の大きな木粉複合材の強度不足の解決策として、複合材の強度向上を目的に繊維強化材として竹繊維を混合した。その結果、竹繊維を混合することで

原稿受付 2009年5月1日

* 宮崎大学工学部 (〒889-2192 宮崎市学園木花台西1-1)

** 正会員 兵庫県立大学 (〒671-2280 姫路市書写2167)

*** 宇部工業高等専門学校 (〒755-8555 宇部市常盤台2-14-1)

複合材の強度が向上することを明らかにした。

第3段階として、実用化の観点から、環境への影響を考慮しつつ複合材の耐水性の向上と脆さの解消を図ることを目的に少量の生分解性接着剤(プラスチック)を混合した。

以上のような経緯により、木粉に竹の長繊維と生分解性接着剤を混合した複合材を作製し、作製した試験片を評価するために曲げ試験および衝撃試験を行った。それらの結果から、木粉に竹繊維と生分解性接着剤を混合すると、木粉のみの試験片、あるいは木粉に生分解性接着剤を混合した試験片と比較して、曲げ強度が大幅に向上し靱性も改善すること、耐水性も大幅に改善することを明らかにした²⁾。しかしながら、幅広い製品への適用を考えた場合、さらに複合材の強度を高める必要があると考えられる。

そこで本研究では、木粉に竹繊維と生分解性接着剤を混合した複合材の強度を向上させるために、木粉および竹繊維の表面にアルカリ処理を施す方法を試みた。これまでに、竹粉に水酸化ナトリウム水溶液を用いたアルカリ処理を施すと竹粉と生分解性プラスチックからなる複合材の強度が増すことが報告されている⁹⁾ことから、同じようにアルカリ処理を木粉と竹繊維のそれぞれに施すこととし、曲げ強度に及ぼす各素材のアルカリ処理の効果について検討した。それらの結果について報告する。

2. 実験方法

2.1 試験片の原材料

Fig.1は、本研究で用いた宮崎県産の杉材の木粉と竹繊維(バン株式会社製⁷⁾)を示している。木粉は、市販の角材を電動鋸で切断し、その際に生じた切りくずを1mmのふるいにかけて試験片の試料として用いた。竹繊維は、天然の孟宗竹を爆砕処理して乾燥させたもので、直径約0.4mmの竹繊維を30mmの長さで切断して試験片の試料として用いた。また、生分解性接着剤には、トウモロコシを原料とする澱粉脂肪酸エステルの水系分散体であるランディ CP-100⁸⁾(ミヨシ油脂株式会社製)を用いた。ランディ CP-100は、日本バイオプラスチック協会のグリーンプラとして登録されている⁹⁾生分解性プラスチックである。以上の原材料の主な機械的特性をTable 1に示している。木材および竹繊維の機械的性質は、引張試験および単軸圧縮試験を行うことによって得られたものである。また、生分解性接着剤(ランディ CP-100)の諸性質は、商品のカタログ値¹⁰⁾から引用したものである。

2.2 試験片の作製方法

(1) 作製した試験片の種類

Table 2は、複合材の曲げ強度に及ぼす木粉と竹繊維のアルカリ処理の効果について検討するために作製した試験片の種類を表している。本研究では、木粉と竹繊維の両方もアルカリ処理を施さない場合、一方のみにアルカリ処理を施した場合、および両方にアルカリ処理を施した場合に分けて計8種類の4点曲げ試験片を作製し、複合材の曲げ強度に及ぼす各素材のアルカリ処理の効果について検討し

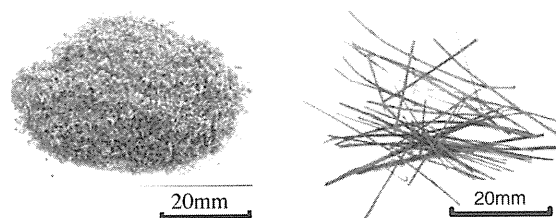


Fig.1 Materials used as specimens

Table 1 Mechanical properties of wood and bamboo fiber used as ingredients for specimen

Tensile strength of wood (Japanese cedar)	55 (MPa)	
Compressive strength of wood	50 (MPa)	
Bending strength of wood	90 (MPa)	
Tensile strength of bamboo fiber	472 (MPa)	
Density of Landy CP-100	1.13 (g/cm ³)	
Young's Modulus of Landy CP-100	540 (MPa)	
Tensile strength of Landy CP-100	25 (MPa)	
Adhesive strength of Landy CP-100		
Temperature of adhesive:	80°C	1.0 (MPa)
	100°C	1.5 (MPa)
	120°C	4.0 (MPa)
	140°C	3.5 (MPa)
	160°C	2.0 (MPa)

た。試験片 No. 1-1 および No. 1-2 は、それぞれ、アルカリ処理を施していない木粉(質量 5g)とアルカリ処理を施した木粉のみからなる試験片である。試験片 No. 2-1 および No. 2-2 は、それぞれ、アルカリ処理を施していない木粉とアルカリ処理を施した木粉に、さらに生分解性接着剤を 4g 混合した試験片である。また、試験片 No. 3-1~No. 3-4 は、いずれも木粉を 80% (質量 4g)、長さ 30mm の竹繊維を 20% (質量 1g) および生分解性接着剤を 4g 混合した試験片である。No. 3-1 は、木粉と竹繊維の両方ともアルカリ処理を施さない試験片で、No. 3-2 は、木粉と竹繊維の両方にアルカリ処理を施した試験片である。また、No. 3-3 は、木粉のみにアルカリ処理を施した試験片で、No. 3-4 は、竹繊維のみにアルカリ処理を施した試験片である。なお、木粉に長さ 30mm の竹繊維を 20% 混合した理由は、複合材の強度に及ぼす竹繊維の長さの影響、ならびに竹繊維の含有量の影響について検討したこれまでの結果²⁾において、最も高い曲げ強度が得られているからである。

(2) 木粉と竹繊維のアルカリ処理の方法

木粉と竹繊維のアルカリ処理は以下の手順で行った。

- ① 5% の水酸化ナトリウム水溶液中に木粉または竹繊維を浸し、10分おきに数回攪拌する。
- ② 所定の時間まで浸した後、木粉または竹繊維をろ過し、蒸留水にて 5, 6 回すすぎを行う。
- ③ 試料を取り出し、日影で 1 日以上乾燥させる。
- ④ 竹繊維は繊維に付着した不純物を除去する。

なお、水酸化ナトリウム水溶液に素材を浸す時間(以後、アルカリ処理時間と呼ぶ)については、素材の内部までア

ルカリ水溶液が浸透することが必要で、粉末状の繊維のアルカリ処理は、30分から100分程度で行われている。そこで本研究では、木粉のアルカリ処理時間は100分とした。一方、竹繊維に関しては、粉末状試料ではないこと、および竹から繊維を取り出すために爆砕処理が施されていることから、適切なアルカリ処理時間は不明である。そこで、まず竹繊維の適切なアルカリ処理時間について検討するために、竹繊維のアルカリ処理時間を10分から100分まで変えて、Table 2中の試験片No. 3-4（アルカリ処理を施さない木粉とアルカリ処理を施した竹繊維および生分解性接着剤からなる試験片）を作製し、4点曲げ試験を行うことにより竹繊維のアルカリ処理時間と試験片の曲げ強度との関係を探った。

(3) 試験片の作製手順

Table 2の各試験片は長さ60mm、幅18mmで、厚さは竹繊維および生分解性接着剤の有無により異なっている。試験片の作製は以下の手順で行った。

- ① 所定の混合比で1mm以下の木粉と竹繊維を混合し、試験片No. 1-1およびNo. 1-2以外は、さらに生分解性接着剤を4g混合する。
- ② Fig.2に示すようにそれらの試料を金型内に敷き詰め、試料を5分間上型で約15MPaの圧力で圧縮する。さらに、固定金具により上型と下型を固定したまま炉にて130℃で約3時間保持する。
- ③ 型を炉から取り出し、1時間以上空冷した後、型から試験片を取り出す。

なお、本研究では特に竹繊維の方向制御は行わずに、木粉と竹繊維をランダムに混合して試験片を作製した。但し、作製する試験片の幅(18mm)よりも長い30mmの竹繊維を用いているので、竹繊維は、おおむね試験片の長手方向に沿って木粉中に分布しており、後述する3.2節のFig.7に示すような分布状況となっている。

2. 3 強度試験の方法

作製した試験片の強度について検討するためにFig.3に示す4点曲げ試験を行った。4点曲げ試験はオートグラフ(島津AG-500A)を用いて、クロスヘッドスピード0.5mm/sで行った。そして、その時の最大荷重を測定し、Eq.(1)から各試験片の最大曲げ応力を求めた。

$$\sigma_{max} = \frac{3P(L-a)}{2bh^2} \quad (1)$$

ここで、 P は最大荷重、 L は下部支点間距離、 a は上部荷重点間距離、 b は試験片の幅、 h は試験片の厚さである。

3. 実験結果および考察

3. 1 アルカリ処理を施した木粉および竹繊維の様相

Fig.4およびFig.5は、それぞれ、アルカリ処理を施さない場合と施した場合の木粉ならびに竹繊維の様相を示している。これらは、実体顕微鏡により観察したものである。

天然繊維にアルカリ処理を施すと繊維表面の改質が行

Table 2 Types of specimens with alkali treatment

No.	Types of specimens	
	Content	Alkali treatment
1-1	・Woodchips 100%(5g)	Woodchips : ×
1-2	・Woodchips 100%(5g)	Woodchips : ○
2-1	・Woodchips 100% (5g) ・Biodegradable adhesive(4g)	Woodchips : ×
2-2	・Woodchips 100%(5g) ・Biodegradable adhesive(4g)	Woodchips : ○
3-1	・Woodchips 80%(4g) ・Bamboo fibers 20%(1g) and ・Biodegradable adhesive(4g) (Length of bamboo fibers: 30mm)	Woodchips : × Bamboo fibers : ×
3-2		Woodchips : ○ Bamboo fibers : ○
3-3		Woodchips : ○ Bamboo fibers : ×
3-4		Woodchips : × Bamboo fibers : ○

○ : With alkali treatment, × : Without alkali treatment

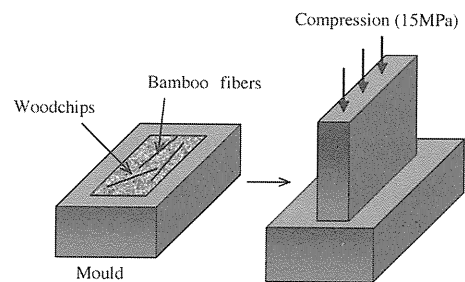


Fig.2 Forming of the specimen

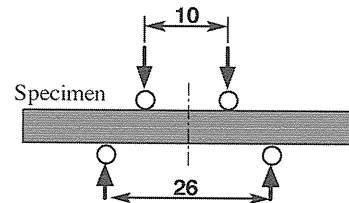
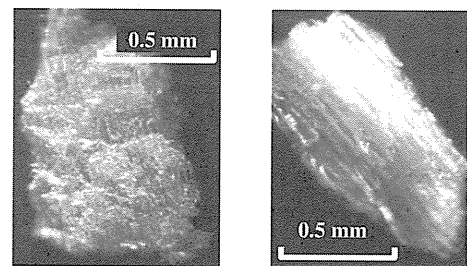
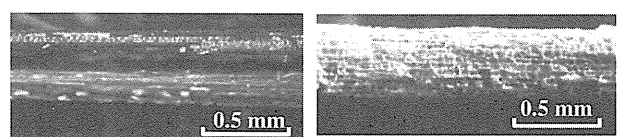


Fig.3 Method of bending test



Without alkali treatment With alkali treatment

Fig.4 Aspects of woodchips before and after alkali treatment (alkali treatment time : 100 minutes)



Without alkali treatment With alkali treatment

Fig.5 Aspects of bamboo fibers before and after alkali treatment (alkali treatment time : 40 minutes)

われると言われているが, Fig.4 および Fig.5 から, 本研究で用いた木粉ならびに竹繊維においても繊維表面の改質が行われていることが確認できる. すなわち, アルカリ処理を施した木粉は, 不純物を取り除かれることにより, 繊維が一方方向に配列した様相を呈している. また, アルカリ処理を施した竹繊維は, 表皮を取り除かれ, 細胞壁が表面に露出した様相を呈している.

なお, 木材等の天然繊維において, 表皮部分は主にリグニンとヘミセルロースで構成され, 細胞壁はセルロースで構成されていることが知られている. また, 木材の引張強さには主としてセルロースの寄与が大きいことが知られている¹¹⁾. これらのことから, 本研究でアルカリ処理を施した後の木粉ならびに竹繊維は, セルロース, ヘミセルロースおよびリグニンからなる構造から, セルロース主体の構造に改質されたものと考えられる. 従って, 曲げ強度の向上が考えられる.

3. 2 曲げ強度に及ぼす木粉および竹繊維のアルカリ処理の効果

(1) 竹繊維のアルカリ処理時間

Fig.6 は, 竹繊維の適切なアルカリ処理時間について検討するために, 竹繊維のアルカリ処理時間を 10 分から 100 分まで変えて, アルカリ処理を施さない木粉とアルカリ処理を施した竹繊維および生分解性接着剤からなる試験片 (Table 2 の試験片 No. 3-4) を作製し, 4 点曲げ試験を行った結果を示している. 曲げ試験はそれぞれ 5 本の試験片を用いて行い, 図中の■は最大曲げ応力の平均値を表し, 上下の棒が示す範囲は標準偏差を表している. Fig.6 から, 試験片の最大曲げ応力は, アルカリ処理時間が 40 分以上でほぼ一定となっている. また, アルカリ処理時間が 40 分の場合では, 最大曲げ応力の偏差が小さい. この結果から, 本研究で用いる竹繊維のアルカリ処理時間を 40 分として, Table 2 に示す No. 3-2 および No. 3-4 の試験片を作製した.

(2) 曲げ強度に及ぼす木粉および竹繊維のアルカリ処理の効果

Fig.7 は, 木粉と竹繊維のいずれかをアルカリ処理して作製した試験片の一例を示している. 試験片番号とその種類は Table 2 に示した通りである. これらの写真からわかるように, 木粉に生分解性接着剤を混合した試験片は, 色が黒ずんでいる特徴がある. また, 試験片 No. 3-2 および No. 3-3 から, 木粉中に竹繊維が混合されている状態がわかる.

Fig.8 は, アルカリ処理を施した木粉のみからなる試験片 No. 1-2 と木粉と竹繊維の両方にアルカリ処理を施した試験片 No. 3-2 の表面を 4 点曲げ試験後に観察した結果を示している. 観察した部位は, 4 点曲げ試験において最大曲げ応力が生じる領域である. 木粉のみからなる試験片は, 曲げ試験後に, 図に示すような明瞭なクラックが試験片に生じているが, 竹繊維と生分解性接着剤を混合した試験片にはこのようなクラックは認められない. このことから, 木粉に竹繊維と生分解性接着剤を混合することにより, き裂進展抵抗が増大するものと考えられる.

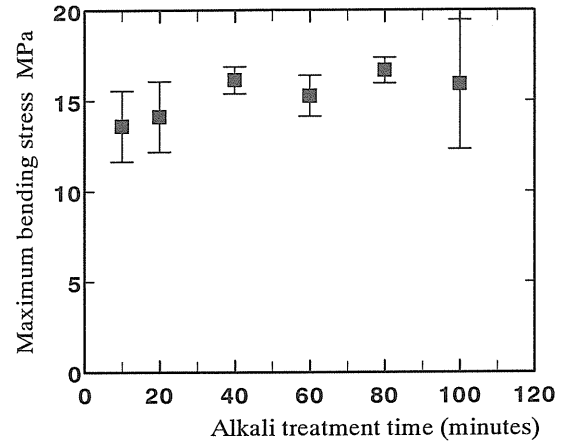


Fig.6 Relationship between maximum bending stress and alkali treatment time

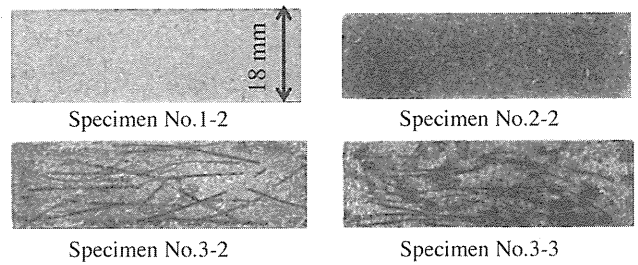


Fig.7 Examples of specimens

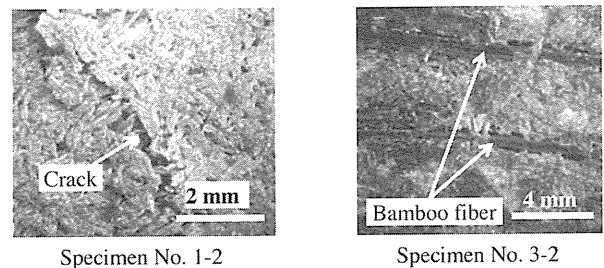


Fig.8 Aspects of specimens fractured by bending tests

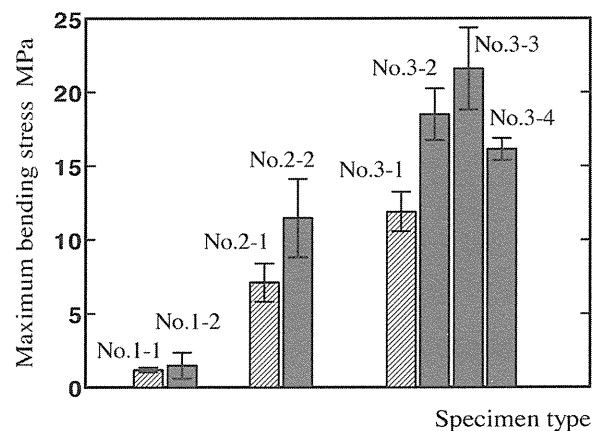


Fig.9 Comparison of maximum bending stress for No.1-1~ No.3-4 specimens

Fig.9 は、Table 2 に示す試験片の最大曲げ応力を示している。まず、木粉のみからなる試験片 No. 1-1 および No. 1-2 の最大曲げ応力を比較すると、木粉にアルカリ処理を施しても最大曲げ応力はほとんど増加しないことがわかる。

次に、木粉に生分解性接着剤を混合した試験片 No. 2-1 および No. 2-2 の最大曲げ応力を比較すると、木粉にアルカリ処理を施して生分解性接着剤を混合すると試験片の最大曲げ応力は明らかに増加する。このことから、木粉のアルカリ処理は、木粉と生分解性接着剤との結合力を高める効果があることがわかる。

木粉と竹繊維および生分解性接着剤を混合した No. 3-1 ~No. 3-4 試験片の最大曲げ応力を比較すると、少なくとも木粉か竹繊維のどちらか一方にアルカリ処理を施すと最大曲げ応力は増加することがわかる。特に、木粉のみにアルカリ処理を施した試験片 (No. 3-3) の曲げ応力が高く、次に木粉と竹繊維の両方にアルカリ処理を施した試験片 (No. 3-2) の曲げ応力が高い。また、竹繊維のみにアルカリ処理を施した試験片 (No. 3-4) も曲げ応力は増加するが、木粉のアルカリ処理よりも効果が小さいことがわかる。

Fig.10 は、アルカリ処理を施した竹繊維の引張強度について検討するために、アルカリ処理を施した竹繊維とアルカリ処理を施していない竹繊維の引張試験を行った結果を示している。引張試験はオートグラフ (島津 AG-500A) を用いて、クロスヘッドスピード 1.0mm/s で行った。また、引張試験にはそれぞれ 10 本の試験片を用いている。この図から、アルカリ処理を施した竹繊維の引張強さは、アルカリ処理を施さない場合と比べて、10%程度しか増加しない。従って、竹繊維にアルカリ処理を施しても、竹繊維自体の強度は余り増加しないことがわかる。このことから、竹繊維のみにアルカリ処理を施しても、試験片の大幅な曲げ応力の増加は見込めないと考えられる。

木粉にアルカリ処理を施すことにより試験片の最大曲げ応力が増加する理由は、先に述べたように高い引張応力を担うことのできるセルロースを主体とする構造に木粉の表面が改質されたこと、および木材繊維にアルカリ処理を施すと、繊維が収縮することが報告されており¹²⁾、繊維の圧縮残留応力によって引張強度が増すことも考えられる。

なお、木粉と竹繊維の両方にアルカリ処理を施した場合よりも木粉のみにアルカリ処理を施した場合の方が最大曲げ応力が高い結果となっている理由については、アルカリ処理を施すことによる木粉と竹繊維の強度の増加だけではなく、これらの素材と生分解性接着剤との結合力も考慮して検討する必要がある、今後の課題としたい。

4. 結言

本研究では、木粉に竹繊維および生分解性接着剤を混合した複合材の強度の向上を目的に、木粉および竹繊維にアルカリ処理を施し、複合材の曲げ強度に及ぼすアルカリ処理の効果について検討した。それらの結果を以下にまとめる。

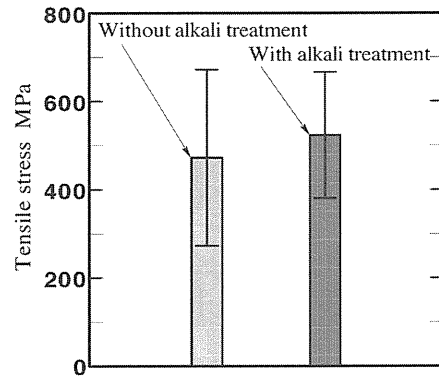


Fig.10 Comparison of tensile stress for bamboo fibers with and without alkali treatment

- (1) アルカリ処理を施した木粉のみからなる試験片の曲げ強度は増加しない。一方、アルカリ処理を施した木粉と生分解性接着剤を混合した試験片の曲げ強度は、未処理の木粉と生分解性接着剤を混合した試験片の曲げ強度よりも増加する。
- (2) 木粉と竹繊維および生分解性接着剤を混合した試験片では、木粉と竹繊維の両方に処理を施した場合、木粉のみに処理を施した場合、および竹繊維のみに処理を施した場合のいずれも試験片の曲げ強度は増加する。
- (3) アルカリ処理を施した木粉と未処理の竹繊維、および生分解性接着剤を混合すると、試験片の曲げ強度は大幅に増加する。

参考文献

- 1) Kinoshita H., Kaizu K., Koga K., Tokunaga H., Ikeda K., Fukuda M.: Mechanical Properties of the Recycle Material Using Woodchip with Biodegradability Adhesive (in Japanese), *Proc. Japan Society of Mechanical Engineers M&M2007* (2007) (CD-ROM).
- 2) Kinoshita H., Kaizu K., Fukuda M., Tokunaga H., Koga K., Ikeda K.: Development of the Green Composite Consists of Woodchips, Bamboo Fibers and Biodegradable, *Advanced Materials Research* 47-50 (2008), 322-325.
- 3) Miki M., Takakura N., Kanayama K., Yamaguchi K., Iizuka T.: Effects of Forming Conditions on Compaction Characteristics of Wood Powders (in Japanese), *Trans. of the Japan Society of Mech. Eng., Series C*, 69-678 (2003), 502-508.
- 4) Miki M., Takakura N., Kanayama K., Yamaguchi K., Iizuka T.: Effects of Forming Conditions on Flow Characteristics of Wood Powders (in Japanese), *Trans. of the Japan Society of Mech. Eng., Series C*, 69-679(2003), 766-772.
- 5) Miki M., Takakura N., Iizuka T., Yamaguchi K., Kanayama K.: Possibility and Problems in Injection Moulding of Wood Powders (in Japanese), *Trans. of the Japan Society of Mech. Eng., Series C*, 70-698(2004), 2966-2972.
- 6) Takagi H., Takura R.: The Manufacture and Mechanical Properties of Composite Boards Made from Starch-Based Biodegradable Plastic and Bamboo Powder (in Japanese), *Journal of Material Science*, 52-4 (2003), 357-361.
- 7) Ban Co., Ltd.: <http://www.nmt.ne.jp/~toban/>.
- 8) Miyoshi-yushi Co., Ltd.: *A Catalog of Landy CP-100*, <http://www.miyoshi-yushi.co.jp/>.
- 9) Japan Bioplastics Association: <http://www.jbpaweb.net/>.
- 10) Japan Corn Starch Co., Ltd.: *A Catalog of Cornpol Resin*.
- 11) Haraguchi T.: *Chemistry of Woods*, Bunceido Publishing (1985), 110-116.
- 12) Ishikura Y., Nakano T.: Shape Changes with Alkali Treatment of Woods (in Japanese), *Mokuzai Gakkaishi*, 51-2 (2005), 92-97.