

1. はじめに

プラスチック製品の大量廃棄などともなう海洋汚染が問題となっており、既存のプラスチックを代替できる材料として、生分解性を有する木質系材料の需要が高まっている。一方、木質系材料から安価に製品を製造するためには、効率的な加工技術を確立することが重要である。

熱可塑性を有するプラスチック材料の場合には、射出成形や押し出し加工などの成形加工によって様々な形状に加工できるため、安価に大量生産することが可能である。例えば、断面形状が均一な管材などの中空部材は、押し出し加工によって製造されている。しかしながら、熱可塑性を持たない木質系材料に対して、押し出し加工を適用できないため、大量生産が難しく、製造コストが高くなる。

木質系粉末に対して、熱流動性や接着性を付与するバインダを混合し、成形加工する方法(木質プラスチック)も開発されているが、バインダとして石油由来の樹脂を使用するため、プラスチックへの依存からの脱却という観点では、課題が残る。このため、天然由来資源のみを用いて、木質系材料を効率的に成形加工できる技術の開発が求められている。

2. 目的

本研究では、化石由来資源を全く用いることなく、天然系バインダとしてスクロースとクエン酸を添加した木質系粉末の押し出し加工によって、円管を製造する技術を開発する。提案する加工法において、割れなどの不良を抑制し、寸法精度の高い管を成形するためには、試料の流動特性を把握する必要がある。そこで、まず、簡易な金型を用いて、天然系バインダを混合した木粉の流動性におよぼす加熱温度・時間の影響を調査した。次に、押し出し加工用金型を作製し、工具形状および押し出し速度が円管の外観や力学特性に及ぼす影響を調査した。さらに、金型温度の影響を詳細に検討するため、冷却機構を設けた金型を作製し、金型の温度分布の影響を検討した。上記の結果を踏まえ、良好な円管を成形するための適正条件を明らかにした。

3. 実用的な価値、実用化の見込など

押し出し加工は、断面形状が均一な製品を加工する際において、極めて生産性が高い加工法である。本研究において、肉厚比0.22の円管を提案工法によって製造可能であることを示しており、身の回りの文房具などの部品として適用可能と考えている。今後、さらに薄肉の管材の成形性についても調査を行い、薄肉管の製造を実現できれば、使い捨て食

器であるストローとしても使用できる可能性がある。

4. 研究内容の詳細

4.1 供試材料および実験方法

4.1.1 供試材料

木材として、東京都にて伐採、作製された(株)島田小割製材所製のスギのチップ(樹皮なし)を粉砕して得た木粉を使用した。天然系バインダとして、スクロースおよびクエン酸の混合物を使用した。スクロースおよびクエン酸を木粉に混合することによって、成形時における木粉の流動性向上や、成形品の強度および耐水性向上が期待できる^{1)~3)}。

試料の調製に先立ち、木粉、スクロース、クエン酸をそれぞれ80℃の送風乾燥器にて24時間乾燥した。質量を測定後、75:25の質量比にて混合したスクロースとクエン酸を添加剤として、蒸留水に溶かした。得られた水溶液に木粉を入れ攪拌した。攪拌後の混合液を送風乾燥器にて80℃で48時間乾燥後、試料として用いた。

4.1.2 流動性の評価

Fig. 1に示すような金型を用いて流動試験を行った。実験条件をTable 1に示す。流動試験では、加圧時のパンチ面圧の挙動により、流動性を評価した。バンドヒータと熱電対により金型温度を制御した。所定温度 T まで加熱した金型に、あらかじめ常温にて圧縮した試料を投入し、試料を金型内にて t_p の間予熱した。その後、一定速度 $v_p = 0.1 \text{ mm/s}$ でパンチを押し込み、試料をノズルから押し出した。なお、パンチ押し込み開始時のパンチ-ノズル間距離 l_{pn} は65 mmとした。パンチ面圧 P が200 MPaに到達した時点、あるいは l_{pn} が5 mm付近に到達した時点で除荷し、加熱を止めた。ロードセルにより加圧中のパンチ荷重を測定し、パンチ面圧 P を求めた。

流動試験におけるパンチ面圧の挙動をFig. 3に示す。本実験では、試料流出開始点のパンチストロ

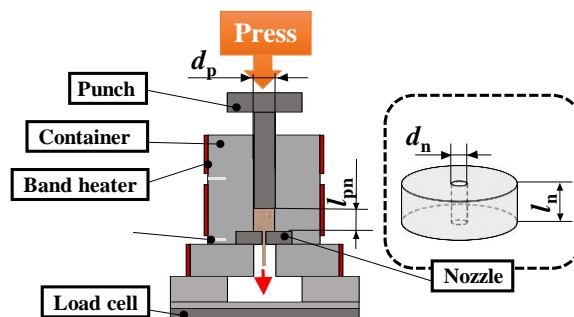


Fig. 1 Schematic diagram of tools for flow test

Table 1 Flow test condition

Nozzle diameter d_n /mm	2
Nozzle length l_n /mm	10
Punch diameter d_p /mm	11.3
Punch velocity v_p /mm \cdot s $^{-1}$	0.1
Temperature T /°C	140~200
Pre-heating time t_p /min	0~15
Limited pressure P_{lim} /Mpa	200
Quantity of sample m /g	5

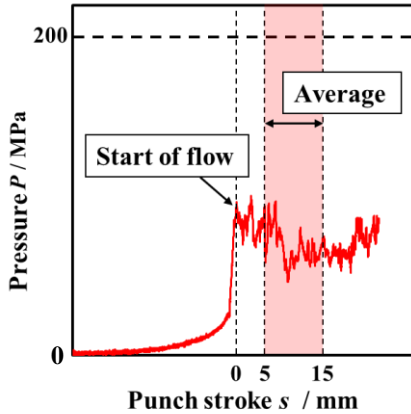


Fig. 2 Schematic drawing of flow test ($T = 180\text{ }^{\circ}\text{C}$, $t_p = 0\text{ min}$)

ーク s を 0 として, $s = 5 \sim 15\text{ mm}$ の区間における平均面圧 P_A を求め, 流動性を評価した. P_A が低いほど, 試料の流動性が高いと考えられる.

4.1.3 天然系バインダの熱分析 (TG-DTA)

天然系バインダの熱的特性を把握するため, 熱重量・示差熱同時測定 (TG-DTA) を行った. 測定には, (株)リガク製の示差熱天秤 TG8120 を使用した. 試料として, 75:25 の質量比になるよう蒸留水内にてスクロースとクエン酸を混合し, 乾燥させた混合物を使用した. アルミニウム製のサンプルパンを使用し, リファレンスとして酸化アルミニウムを使用した. 窒素ガスをパージしながら, $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にて昇温し, その際の質量変化や吸熱・発熱挙動を測定した.

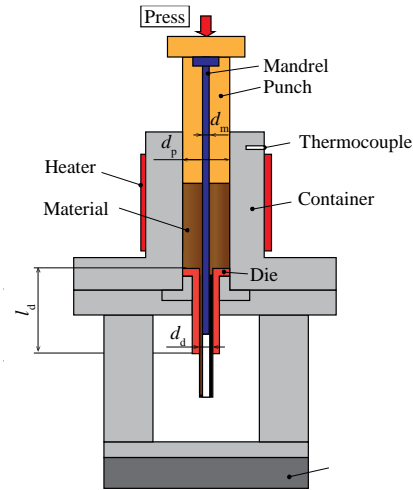
4.1.4 押し出し加工実験

Fig. 3 に示す金型を用いて押し出し加工を行った. 本研究では, タイプ A およびタイプ B の 2 種類の金型を使用した. タイプ A はシンプルな構造となっており, プレスすると, パンチとマンドレルは一体で動く. コンテナ部分はバンドヒータによって加熱した. タイプ B は, マンドレルとパンチは独立しており, マンドレルは固定されている. また, ダイ付近にはシリコンチューブを巻きつけ, 水を流すことにより, ダイの温度を制御した. この時, ダイの温度は Fig. 3 (b) に示す A~D の 4 か所にて測定した.

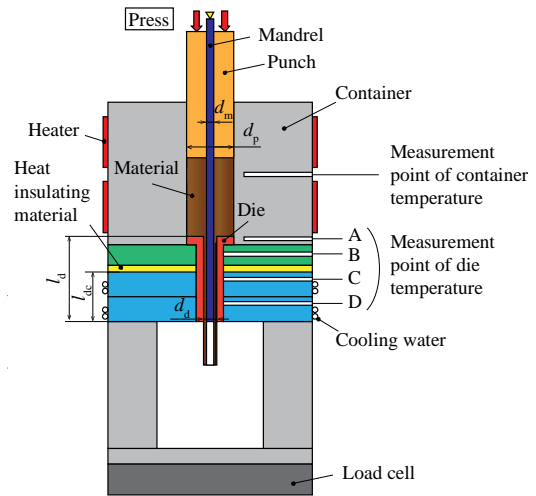
加熱したコンテナに試料を投入し, 試料を 5 分間予熱した. 予熱後, 初期速度 0.5 mm/s にてパンチを押し込み, 試料をコンテナ内で圧縮した. パンチ荷重が 10 kN に到達後, 所定の速度 v_p に変更して

パンチを押し込んだ. なお, 限界押し荷重 $F_{lim} = 180\text{ kN}$ に達した場合, 加工を中断した.

実験条件を Table 2 に示す. ダイ長さ l_d , パンチ速度 v_p , コンテナ温度 T_c およびダイ温度をパラメータとして実験を行った. ダイ温度に関しては, 冷却水や断熱材の有無, 冷却水の温度調整によって, 4 種類の条件を設定した. Table 3 に本実験における



(a) Type A (Without cooling equipment)



(b) Type B (With cooling equipment)

Fig. 3 Schematic diagram of set-up for extrusion test

Table 2 Extrusion condition

Die diameter d_d /mm	18
Die length l_d /mm	10, 40, 80
Die cooling length l_{dc} /mm	40
Punch diameter d_p /mm	35
Mandrel diameter d_m /mm	10
Punch speed v_p /mm \cdot s $^{-1}$	0.02, 0.05, 0.1, 0.2
Temperature of container T_c /°C	140, 160, 180
Water temperature T_w /°C	Room temp. (8~15 °C), 80, No cooling
Pre-heating time t_p /min	5
Limited load F_{lim} /kN	180
Quantity of sample m /g	60

Table 3 Temperature of die
(a) Container temperature $T_c=140^\circ\text{C}$

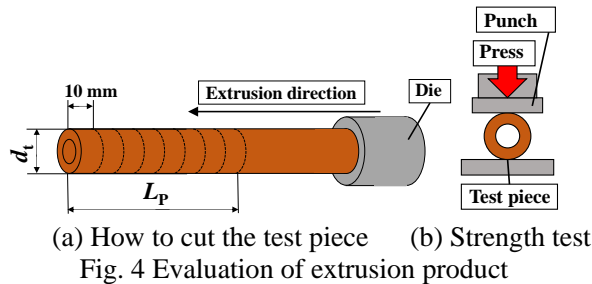
Temperature T_c [$^\circ\text{C}$]		140			
Temperature T_d [$^\circ\text{C}$]	T_{dA} [$^\circ\text{C}$]	139.2	141.7	141.2	138.7
	T_{dB} [$^\circ\text{C}$]	126.5	127.7	120.9	129.2
	T_{dC} [$^\circ\text{C}$]	67.2	85.0	104.9	119.7
	T_{dD} [$^\circ\text{C}$]	58.9	77.3	96.0	114.5
Water temperature T_w [$^\circ\text{C}$]		Room temp.	80	80	No cooling
Heat insulating material		○	○	×	○

(b) Container temperature $T_c=160^\circ\text{C}$

Temperature T_c [$^\circ\text{C}$]		160			
Temperature T_d [$^\circ\text{C}$]	T_{dA} [$^\circ\text{C}$]	158.6	161.4	157.3	158.9
	T_{dB} [$^\circ\text{C}$]	146.1	142.5	128.7	148.2
	T_{dC} [$^\circ\text{C}$]	71.3	88.5	114.1	138.3
	T_{dD} [$^\circ\text{C}$]	60.1	80.9	101.2	129.0
Water temperature T_w [$^\circ\text{C}$]		Room temp.	80	80	No cooling
Heat insulating material		○	○	×	○

(c) Container temperature $T_c=180^\circ\text{C}$

Temperature T_c [$^\circ\text{C}$]		180			
Temperature T_d [$^\circ\text{C}$]	T_{dA} [$^\circ\text{C}$]	180.2	179.3	181.2	180.3
	T_{dB} [$^\circ\text{C}$]	167.3	165.2	153.1	165.4
	T_{dC} [$^\circ\text{C}$]	79.9	97.3	120.1	151.8
	T_{dD} [$^\circ\text{C}$]	69.0	87.5	110.7	143.9
Water temperature T_w [$^\circ\text{C}$]		Room temp.	80	80	No cooling
Heat insulating material		○	○	×	○



ダイの温度分布を示す。先端部の温度 T_{dD} を各条件におけるダイ温度の代表値とした。

成形品の形状精度、密度および強度を評価した。試験片の作製方法を Fig. 4 (a) に示す。成形品先端から軸方向に 10 mm 間隔で切断し、試験片を作製した。質量と寸法を測定し、密度 ρ を算出した。また、測定した試験片外径 d_t を、ダイ内径 $d_d = 18$ mm で除した外径の寸法比 d_t/d_d を算出した。強度試験の概略図を Fig. 4 (b) に示す。試験片の側面から速度 $v_p = 1$ mm/min にて変位を与え、破断に至るまでの荷重 F_b を測定した。最大荷重を、試験片の軸方向長さで除した値を単位長さ当たりの最大荷重とし、強度 F_{max} とした。

4.2 加熱温度および時間が木粉の流動性に及ぼす影響

Fig. 5 に、流動試験において、加熱時間 t_p および温度 T がパンチ面圧 P_A に及ぼす影響を示す。 T が高いほど、 P_A が低い一方、長時間の加熱によって P_A は上昇し、最終的に流動不可となった。 T が高いほど、流動不可となるまでの t_p は短く、 $T=200^\circ\text{C}$ に至っては、 $t_p=0$ min の場合を除き、流動しなかつ

た。したがって、 $T=190^\circ\text{C}$ までであれば、温度が高くなるほど、高い流動性が見込める一方、加熱時間ともなう流動性の変化に注意する必要がある。

Fig. 6 に、天然系バインダの熱分析結果 (TG-DTA) を示す⁴⁾。天然系バインダは、 $150\sim 200^\circ\text{C}$ の間に吸熱ピークが発生しており、このピーク発生におもない、質量減少が開始している。したがって、この反応は、一時的な試料の流動性向上をもたらす一方、反応が進行しすぎると、試料は流動性を失うと考えられる。

4.3 ダイ長さ l_d およびパンチ速度 v_p が成形性に及ぼす影響⁵⁾

本調査では、タイプ A の金型を用いて実験を行い、天然系バインダを混合した木粉の押し出し加工特性について基礎的な検討を行った。

4.3.1 ダイ長さが成形性に及ぼす影響

コンテナ温度 $T_c = 180^\circ\text{C}$ 、パンチ速度 $v_p = 0.05$ mm/s の条件にて、ダイ長さ l_d が成形性に及ぼす影響を調査した。Fig. 7 に l_d が成形品の外観に及ぼす影響を示す。 $l_d=10$ および 40 mm の場合、成形

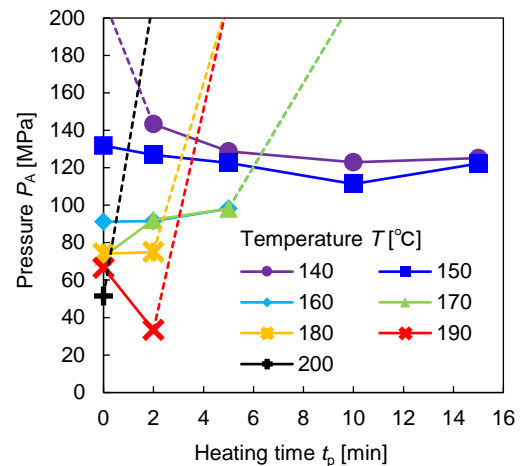


Fig. 5 Influence of pre-heating time t_p and temperature T on pressure in flow test.

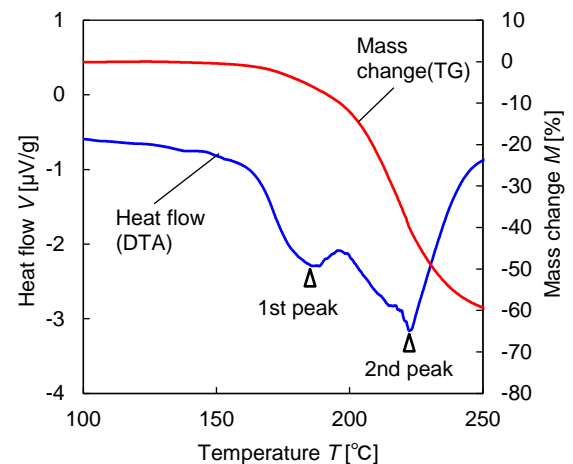


Fig. 6 Thermal analysis results of natural binder (Sucrose : citric acid = 75:25).

品に多くのき裂や破断が生じた。 $l_d=80$ mm の場合、き裂などはなく、各部分の断面において円形状に加工できた。

タイプ A の金型は、コンテナ部分のみバンドヒーターで加熱しており、ダイは加熱していない。そのためダイ内部を流動する試料は徐々に冷却される。ダイ長さ l_d が短いと、ダイ内部で試料が十分に冷却されず、固化しないままダイから押し出される。ダイによる拘束がなくなった際に、熱軟化している試料の圧密状態の緩和や、加熱によって生じるガスによって、成形品が膨張および破断に至ったと考えられる。これに対し、 l_d が長いと、ダイ内部で試料が十分に冷却された後に押し出されるため、割れが発生しなかったと考えられる。以上の結果を踏まえると、ダイ内部で十分に冷却・固化させた後に、ダイ外部へ押し出すことが重要と考えられる。

4.3.2 パンチ速度が成形性に及ぼす影響

試料のダイ内における試料の冷却に影響する条件として、パンチ速度 v_p が挙げられる。 v_p が増加すると、ダイ内部での試料の流動速度が増加し、その影響で加熱時間と冷却時間がともに減少するため、成形品の形状や材質にも変化が生じる可能性がある。そこで、コンテナ温度 $T_c = 180$ °C、ダイ長さ $l_d = 80$ mm の条件において、 v_p が成形品の形状や材質に及ぼす影響を調査した。

Table 4 に、パンチ速度 v_p が成形品外観に及ぼす影響を示す。 $v_p = 0.05 \sim 0.2$ mm/s の条件では、割れのない成形品を成形できた。一方、 $v_p = 0.02$ mm/s では、成形品が脆くなり、割れが発生した。 $v_p = 0.02$ mm/s の場合、試料の押し出しに 29 分要する。このため、長時間の加熱によって、試料が熱劣化し脆くなったと考えられる。

成形品の精度を比較するため、ダイ内径 $d_d = 18$

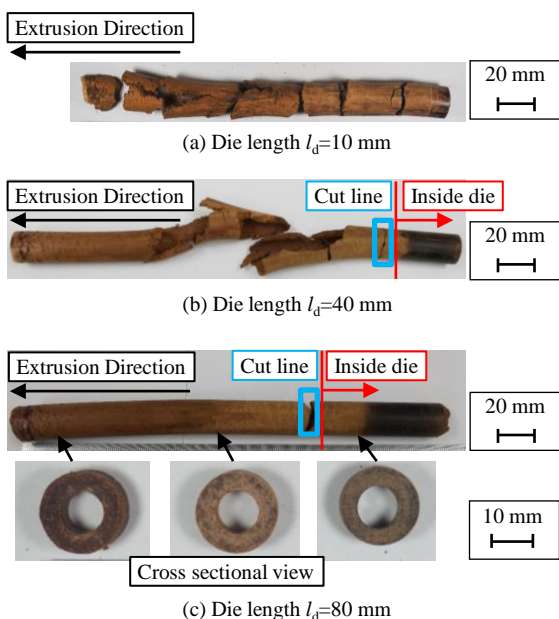


Fig. 7 Influence of die length l_d on appearance of formed tube.

mm に対する成形品の外径 d_t の寸法比 d_t/d_d の分布を Fig. 8 に示す。いずれの条件も、成形品の先端付近にて d_t/d_d が大きくなった。流動開始直後は、ダイ内部の大半が空洞であり、ダイ壁面と試料の接触面積が小さい。その影響で摩擦による抵抗も小さくなるため、ダイ内にて試料が圧密されにくい。このため粒子間の接着が弱く、押し出された後に試料が膨張したと考えられる。一方、パンチの押し込み終了後、ダイ内部に留まっていた部分は、膨張しなかった。これは試料がダイからの拘束を受けている状態で冷却・固化したため、ダイから取り外した後も周方向に膨張しなかったと考えられる。しかしながら、押し出し加工の利点は連続加工ができる点であるため、実験終了後にダイから押し出された成形品の特性が重要である。したがって、以降は先端からの距離 $L_p = 10 \sim 150$ mm における成形品の特性を評価する。

パンチ速度 v_p が外径寸法比 d_t/d_d に及ぼす影響に着目すると、 v_p の低下にともない、 d_t/d_d は 1 に近づき、良好な精度が得られていることがわかった。

Table 4 Influence of punch speed v_p on appearance of extruded product.

Punch speed v_p [mm/s]			
0.02	0.05	0.1	0.2
×	○	○	○
○ : Success × : Crack			

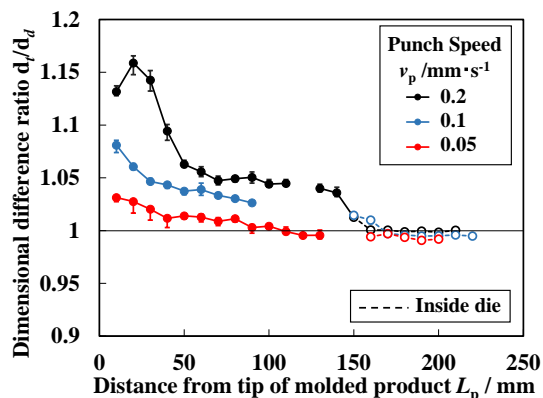


Fig. 8 Influence of punch speed v_p on distribution of dimensional difference ratio d_t/d_d of diameter.

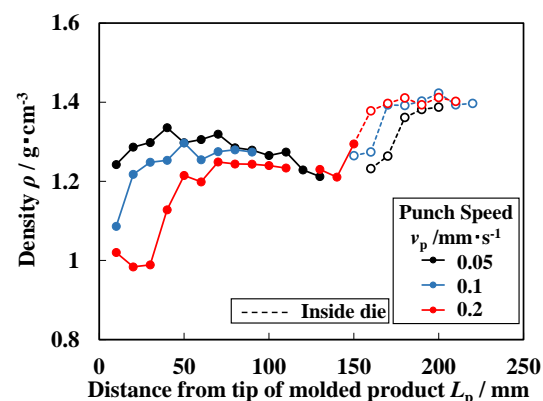


Fig. 9 Influence of punch speed v_p on distribution of density ρ .

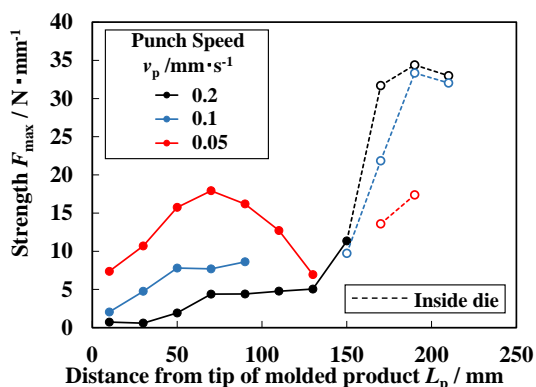


Fig. 10 Influence of punch speed v_p on strength F_{max} .

パンチ速度が高いと、その分ダイの内部で冷却される時間が短くなる。高温のまま試料がダイの外に流動し、試料が膨張したため周方向に広がったと考えられる。

成形品の密度 ρ の分布を Fig. 9 に示す。パンチ速度 v_p が早い場合に ρ が小さくなった。 v_p が早くなると、押し出された試料が膨張するため、それにともない密度が低下したと考えられる。

成形品の強度 F_{max} の分布を Fig. 10 に示す。パンチ速度 v_p が遅いと、 F_{max} は大きくなる傾向を示した。 v_p が遅いほど、長い間試料がダイ内にて圧縮・冷却されてからダイ外に押し出されるため、高密度状態で固化したと推測できる。それにともない、 F_{max} も高くなったと考えられる。これらのことから、試料が、過度に加熱されない範囲内でパンチ速度を遅くすることにより、ダイ内部で試料が圧密・冷却・固化し、高い密度と強度を得ることができると考えられる。

4.4 コンテナおよびダイ温度が成形性に及ぼす影響⁶⁾

天然系バインダを混合した木粉の押し出し加工において外観や強度に優れた成形品を得るためには、ダイ内部にて十分に冷却・固化させる必要がある。コンテナやダイの温度は非常に重要なパラメータである。そこで、ダイの温度制御が可能なタイプ B のの金型を用いて、コンテナおよびダイ温度が成形性に及ぼす影響を調査した。本調査では、ダイ長さ $l_d=80\text{mm}$ 、パンチ速度 $v_p=0.05\text{ mm/s}$ とした。

4.4.1 成形品外観

Fig. 11 に、コンテナ温度 T_c およびダイ温度 T_{dD} を変えた際における典型的な成形品の外観を示す。 $T_c=140^\circ\text{C}$ の場合、表面に光沢のある良好な成形品が得られた。 $T_c=160^\circ\text{C}$ の場合、成形品は得られたが、長さが短くなった。これは、押し出し加工時において、成形荷重が過大となり、コンテナに投入した試料の全てを押し出すことができなかったためである。 $T_c=180^\circ\text{C}$ の場合、押し出し可能であったものの、成形品に割れが生じた。

Table 5 に、コンテナ温度 T_c およびダイ温度 T_{dD} が成形品の外観に及ぼす影響を示す。 $T_c=140^\circ\text{C}$ の場合において成形性が良く、いずれの T_{dD} の場合においても、不良なく成形可能であった。これに対

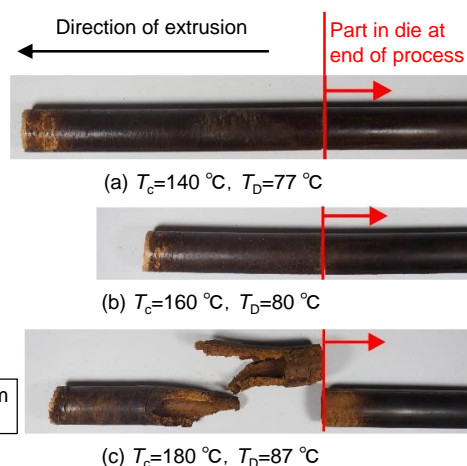


Fig. 11 Influence of container temperature T_c on appearance of extruded tube.

Table 5 Influence of container and die temperature on appearance of extruded product.

Container temperature T_c [°C]	140	$T_{dD}=69$	$T_{dD}=87$	$T_{dD}=111$	$T_{dD}=143$
		○	○	○	○
160	$T_{dD}=60$	$T_{dD}=80$	$T_{dD}=101$	$T_{dD}=129$	
	△	△	△	○	
180	$T_{dD}=58$	$T_{dD}=77$	$T_{dD}=96$	$T_{dD}=114$	
	×	×	×	○	

T_{dD} : Temperature at die tip [°C]
 ○: Success △: Suspended due to high load ×: Crack

し、 $T_c =160$ および 180°C の場合においては、不良が発生しやすい傾向を示した。これは、コンテナ内における長時間の加熱によって、試料の流動性が低下したことが原因と考えられる。

4.4.2 寸法精度、密度および強度

成形品の外径の寸法比 d_t/d_d の平均値に及ぼすコンテナおよびダイ温度 T_c, T_{dD} の影響を Fig. 12 に示す。 T_{dD} が低くなるにつれて、 d_t/d_d が 1 に近づいた。 $T_{dD} = 100 \sim 130^\circ\text{C}$ では、 d_t/d_d が 1 を超えた。ダイにおける試料の冷却が十分になされず、試料が固化されないままダイ外部に押し出されたため、膨張したことが原因と考えられる。

成形品の密度 ρ の平均値を Fig. 13 に示す。コンテナ温度 T_c およびダイ温度 T_{dD} が低いほど、密度は高くなる傾向であった。これは、コンテナ温度 T_c が低いと、加熱による添加剤のガスの発生が抑制されるため、より強く圧密・固化できたと考えられる。

成形品の強度 F_{max} の平均値を Fig. 14 に示す。ダイ温度 T_{dD} が小さくなるにつれて、 F_{max} は増加し、2 ~ 3 倍の強度となった。一方で、 T_{dD} が約 70°C を下回ると、強度は低下した。スクロースおよびクエン酸から構成される天然系バインダは、高温に加熱されることによって変性し、冷却後に高い接着性が発現することが知られている³⁾。本実験において、ダイ温度 T_{dD} が低すぎると、加工時に添加剤が十分に変性しないまま固化した可能性が考えられる。これらのことから、ダイの冷却を過度に行うと、強度が低下するため、適切な条件は $T_{dD} = 75 \sim 95^\circ\text{C}$ 程度であることがわかった。

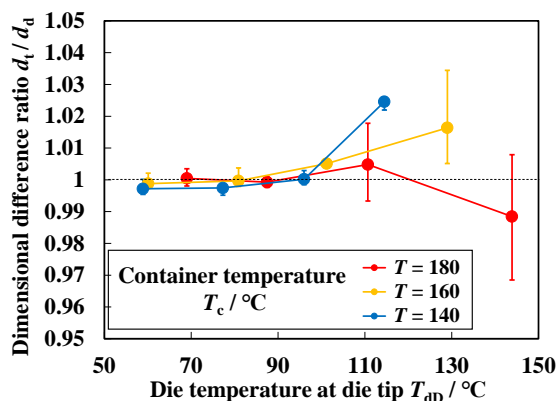


Fig. 12 Influence of container and die temperature T_c and T_{dB} on dimensional difference ratio d_t/d_d of diameter.

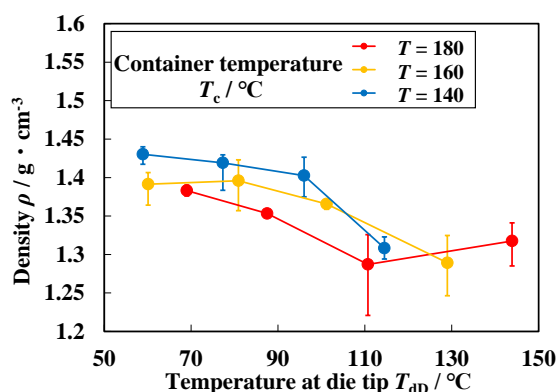


Fig. 13 Influence of container and die temperature T_c and T_{dB} on density ρ .

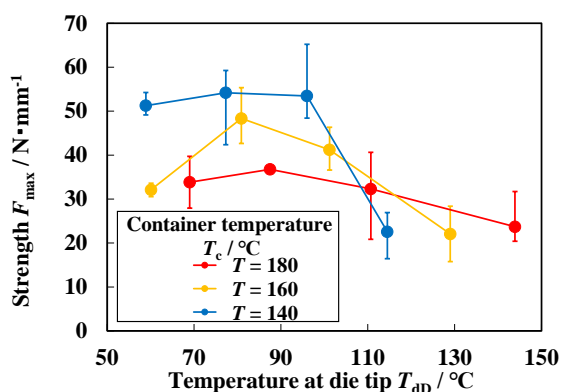


Fig. 14 Influence of container and die temperature T_c and T_{dB} on strength F_{max} .

5. まとめ

本研究では、天然系バイндаを混合した木粉の押し出し加工を提案し、提案工法によって良好な外観および力学特性を有する円管を作製できる条件を検討した。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) 天然系バイндаを混合した木粉は、190 °Cまでの範囲において、温度が高くなるほど、高い流動性が見込める一方、長時間の加熱によって、流動性が低下しやすくなる。
- (2) 成形品の割れを防ぐためには、ダイ内部で木

粉が十分に冷却・固化する必要がある。ダイ長さが短すぎると、木粉が十分に固化しないため、押し出された後に割れが生じる。本実験において適正なダイ長さは 80 mm であった。

- (3) 押し出し速度が遅いほど、ダイ内で冷却される時間が短くなるため、寸法精度および強度に優れた成形品が得られる。一方で、押し出し速度が遅すぎる場合、試料の熱劣化によって、成形品に割れが生じる。本実験において適正なパンチ速度は 0.05 mm/s であった。
- (4) コンテナ温度を 140 °C に設定することによって、良好な流動性を保ちつつ成形が可能であり、その結果として、割れなどの不良がない円管を成形可能である。
- (5) ダイを適切な温度で冷却すると、試料の加熱によるガスの発生が抑制されるために、寸法精度が高くなるとともに、密度も向上する。
- (6) 成形品の強度は、ダイ先端温度が低くなるにつれて増加するが、約 70 °C を下回ると、強度は低下する。

6. 参考文献等

- 1) S. Kajikawa, et al., BioResources, Vol. 15, (2020), pp. 1702-1715.
- 2) 梶川翔平ほか, 材料, Vol.69, No.6, (2020), pp.440-445.
- 3) K. Umemura, et al., J. Wood Science, Vol. 59, No.3, (2013), pp. 203-208.
- 4) S. Kajikawa et al., Proc. 13th ICTP, (2021), pp. 2031-2040.
- 5) 鈴木雄也ほか, 材料, Vol.70, No.12, (2021), pp.912-917.
- 6) 鈴木雄也ほか, 72 塑加連講論, (2021), pp.301-302.