

(論文)

# 長繊維ペレット製造装置 天然複合材(エココンポジット)への応用

田中達也\*・平野康雄(工博)\*\*

\*機械カンパニー・樹脂機械部 \*\*技術開発本部・化学環境研究所

## Long Fiber Pellet Production Plants and their Application to Natural Fiber Composites (Eco-Composites)

Tatsuya Tanaka・Dr. Yasuo Hirano

A new type of long fiber pellet production twin-screw extruder (H-KTX) system characterized by an original continuous fiber impregnation process, was developed. This system features high productivity features, good fiber dispersion, and excellent fiber / resin wetting. The system can even be applied to natural yarns that have, until now, been considered unsuitable for impregnation. Natural yarn (jute) reinforced thermoplastics (PP) pellets, a type of eco-composite, were prepared with this system and found to yield high-strength molding characteristics when used for injection molding.

まえがき = 各種産業分野では素材から加工プロセスを経て製品化に至る全工程に渡り、地球環境への配慮から、温暖化の原因であるCO<sub>2</sub>を削減するための見直しと改善に取り組み始めた。樹脂分野においても、工場内での樹脂原料のリサイクルはもちろんのこと、PET ボトルやパンパのリサイクルに見られるような、一度市場に出回った製品自体も回収され、元と同じあるいは別の製品用途へと適用される場合が増えてきた。一方、CO<sub>2</sub>を固定化できることや樹脂との複合化が可能なることで、天然繊維であるジュート、ケナフや竹などが樹脂への強化繊維として注目されている<sup>1)~4)</sup>。

このような流れを受けて、当社はガラス繊維や炭素繊維用として開発された独自の連続長繊維含浸プロセスを、天然繊維と樹脂との複合素材製造用として応用開発した。本稿では、まず長繊維ペレット製造装置について解説し、ついで天然繊維強化複合材へ適用した場合の成形品の機械的特性について紹介する。

今後の展開としては、材料面ではガラス繊維強化熱可塑性樹脂の代替を、装置面ではより生産性の向上と高含有率化による設備コストならびにランニングコストの低減を目指す予定である。

### 1. 長繊維ペレット製造装置

#### 1.1 概要

本装置をもちいれば、種々の強化繊維束に熱可塑性樹

脂を含浸させて、強化繊維が一方に配列したストランド(ロッド)を製造できる。さらにストランドを所定の任意長さ(通常3~15mm)に切断することで、射出成形にもちいる長繊維強化熱可塑性樹脂ペレット(以下、一般的な総称としてLFPと呼ぶ)が製造できる。天然繊維を強化繊維とする場合、その耐熱性の問題から含浸ヘッド部での樹脂温度制御が重要となる。

LFP製造装置は下記の主要装置により構成されている。概略図を第1図に示す。

- ローピングスタンド(強化繊維の繰出し工程)
- 二軸混練押出機(混練作用による熱可塑性樹脂の溶解および改質工程)
- 含浸ヘッド(溶解樹脂を強化繊維へ含浸する工程)
- 冷却装置(ストランドの冷却工程)
- 引取装置(強化繊維にテンションをかけるとともにストランドに撚りをかける工程)
- ペレタイザ(ストランドの切断ペレット化工程)

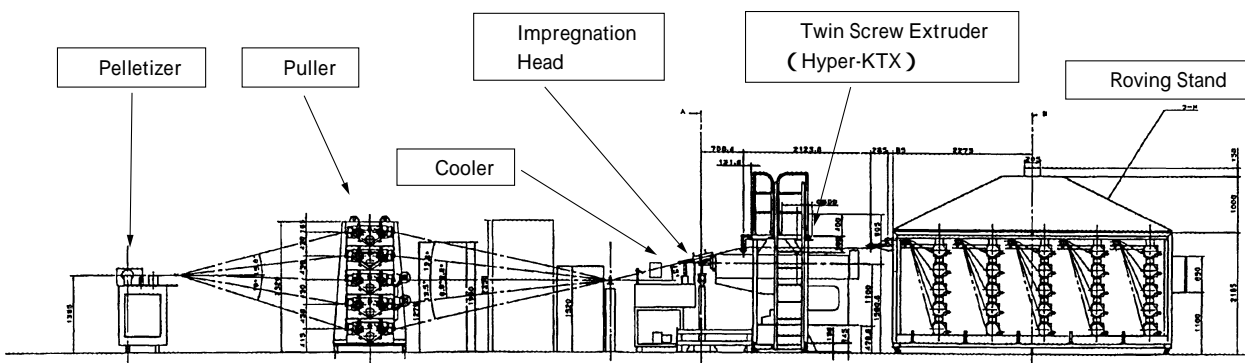
#### 1.2 特長

##### 1.2.1 二軸混練押出機(HYPER-KTX)

樹脂の溶融押出し装置として、各種コンパウンドおよびプロセス用途に実績のある当社の同方向完全噛合い型二軸混練押出機HYPER-KTXを適用している。

種々のLFP製造に対して、二軸混練押出機をもちいる利点は、以下のとおりである。

- ・高粘度なPP(ポリプロピレン)樹脂に過酸化物を添



第1図 長繊維ペレット製造装置全体概略図

Fig. 1 General view of KOBELCO's long fiber pellet production plant

加して低粘度化し、射出成形用ペレットとして流動性を改善した低粘度 PP に樹脂粘度を調整しうる。

- ・ PP 樹脂と強化繊維との濡れ性を改善するために無水マレイン酸を添加して PP を変性しうる。
- ・ 直接乾燥押出により、PET 樹脂の乾燥工程を省略しうる。
- ・ タルクや粉体フィラを添加し、樹脂の特性をプロセス中で改質しうる。

これらの混練押出技術を適用することにより広範囲な樹脂材料への対応が可能となる。

### 1.2.2 含浸ヘッド

当社で独自に開発した特殊含浸ヘッド<sup>5)</sup>を採用することでストレートな繊維束をはじめとして、天然繊維に代表される撚りや毛羽のある繊維束など、従来含浸が不可能とされていた強化繊維束へも良好に樹脂含浸することができる。また、この含浸ヘッドの採用で、繊維の 1 本 1 本にまで樹脂を含浸被覆でき、含浸性の非常に良好な LFP をえることができるようになった。

その結果として、機械的特性は向上し、ストランド表面や切断面から強化繊維が飛散（ダスト）し難くなるとともに、樹脂が繊維の 1 本 1 本を被覆しているのでスクリュによる繊維折損も抑えられる。

さらに含浸ヘッド部はパーツ（インナパイプ）交換方式になっており、樹脂替えや繊維切れなどによるメンテナンスが容易である。繊維切れを起こし易い天然繊維に対しても、生産を止めることなく短時間でトラブルシューティングが可能である。

### 1.2.3 引取装置およびペレタイザ

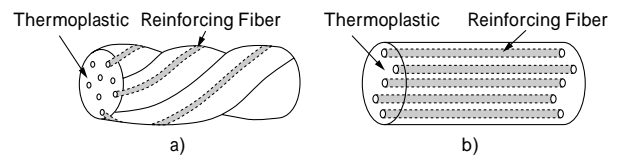
含浸ヘッドとともに当社が独自開発した特殊撚り機構を持つ引取装置<sup>6)</sup>の採用によって、含浸ヘッド部内での引取抵抗が下がり、ストランドの安定した高速引取が可能である。ガラス繊維（GF）50wt% と PP との組合せで 70m/min 高速引取の実績がある。高生産性を達成することが可能となった結果、製造コストに関してもコンパウンド用混練押出機で製造される従来の短繊維強化ペレットとくらべて十分競争力のある LFP を提供できるものと考えている。

また、このような高速引取により、繊維束の含浸ヘッド部での滞留時間を短くできるため、天然繊維のような耐熱性が比較的低い強化繊維の使用も可能となった。さらに、天然繊維を強化繊維とする場合、繊維のコストは樹脂よりも安価な場合が多い。含浸ヘッドと高速引取によって、天然繊維を高含有率とすることができ、従来のガラス繊維を強化繊維とする LFP にくらべて安価な天然長繊維強化ペレットを製造することが可能となる。

従来の LFP と本装置で製造された LFP の模式図を第 2 図に示す。また、天然繊維（ジュート繊維）50wt% のペレット断面を写真 1 に示す。

## 2. 天然繊維強化複合材（エココンポジット）

以下、とくに本開発装置により製造された天然繊維強化複合材（エココンポジット：以下 E-LFP）の強度特性に関して、ペレット製造条件および射出成形条件が及ぼ



第 2 図 本プロセスで製造される LFP a) と従来の LFP b) の模式図

Fig. 2 Schematic diagrams of LFP prepared by KOBELCO's process a) and conventional LFP b)

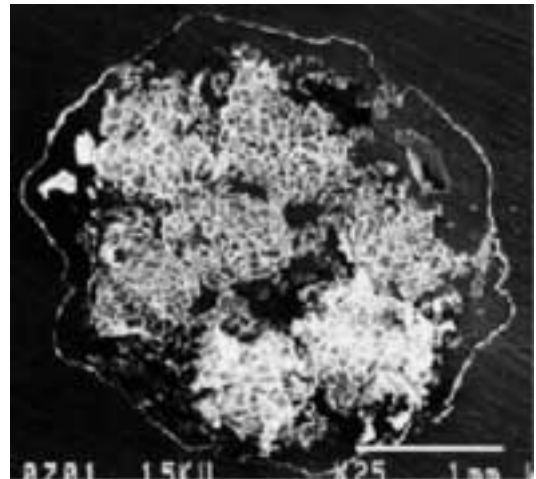


写真 1 ジュートと PP の組合せによるエココンポジットの断面写真

Photo 1 Cross section view of E-LFP composed of Jute and PP

す影響について述べる。

### 2.1 概要

強化繊維として、天然繊維の中でも生産性が高く安価で、比較的容易に入手可能かつ機械的特性にも優れたジュート繊維をもちいた。本開発装置で E-LFP を製造し、それをもちいて長繊維かつ高含有率を目指した射出成形品を試作し、ペレットに含まれるジュート繊維の繊維長・ペレット製造時にかけた繊維束への撚り方向・成形時のスクリュ背圧などが射出成形品の強度特性に及ぼす影響を調べた。

ここで、繊維束の撚り方向には S 撚りと Z 撚りの二通りがあり、S 撚りとは繊維束が右ネジの方向に、また Z 撚りとは左ネジの方向に撚られたものである。S 撚りと Z 撚りの違いに関しては、第 3 図に模式図を示す。

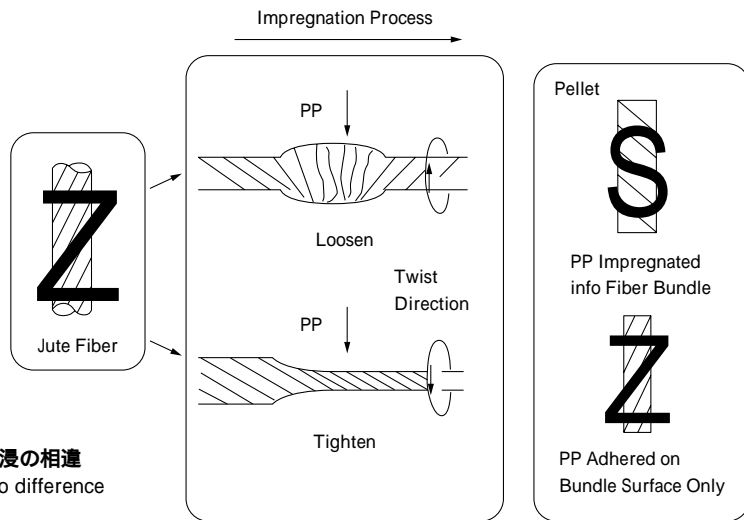
### 2.2 実験

#### 2.2.1 材料

強化繊維にはジュート繊維、母材には PP とマレイン酸変性 PP をドライブレンドしたものをもちいた。マレイン酸変性した PP の割合は 5wt% である。

#### 2.2.2 試験片及び試験条件

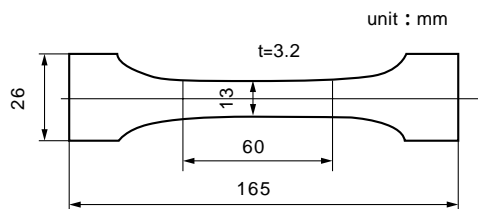
まず、LFP 製造装置をもちい第 1 表の左部分に示す条件で LFP をそれぞれ製作し、第 4 図に示す引張試験片形状に射出成形した。E-LFP を写真 2 に示す。第 3 図に示すように、本実験で用いたジュート繊維束は Z 撚りである。そのため、S 方向に撚りながら引取られた場合は、ペレット製造時に繊維束が逆方向に撚られ、いったんほぐれた状態で PP が付着する結果、繊維束内部まで PP は含浸していると言える。一方、Z 方向に撚られて引取ら



第3図 繊維の撚り方向の違いによるPP含浸の相違  
Fig. 3 Difference of PP impregnation due to difference of fiber twist direction

第1表 ペレット製造および射出成形条件と強度特性  
Table 1 Specimen manufactured condition and mechanical properties

No.	Volume Fraction of Fiber wt%	Pellet Length mm	Back Pressure kgf/cm <sup>2</sup> / MPa	Tensile Strength MPa	Initial Modulus GPa
1	50	12	2/0.196	48.3	5.65
2	50	12	15/1.470	52.1	5.20
3	50	12	2/0.196	35.9	5.18
4	50	12	15/1.470	48.5	5.28
5	50	4	2/0.196	52.1	6.18
6	50	4	15/1.470	52.4	5.00
7	50	4	2/0.196	47.4	5.39
8	50	4	15/1.470	52.2	5.75
9	30	12	2/0.196	43.8	3.78
10	30	12	15/1.470	38.6	3.34
11	30	12	2/0.196	36.8	3.45
12	30	12	15/1.470	37.2	3.09
13	30	4	2/0.196	42.7	3.92
14	30	4	15/1.470	42.4	3.09
15	30	4	2/0.196	40.4	3.81
16	30	4	15/1.470	40.3	3.47



第4図 引張試験片形状  
Fig. 4 Shape and dimension of tensile test specimen



写真2 ジュートとPPの組合せによるペレット(エココンポジット)のサンプル  
Photo 2 Jute fiber reinforced PP composites pellets (E-LFP)

れた場合は、繊維束がほぐれないため、PPは繊維束内部まで含浸せず表面だけに付着している。

引張試験には、インストロン材料万能試験機を使用した。引張速度は1mm/minとした。

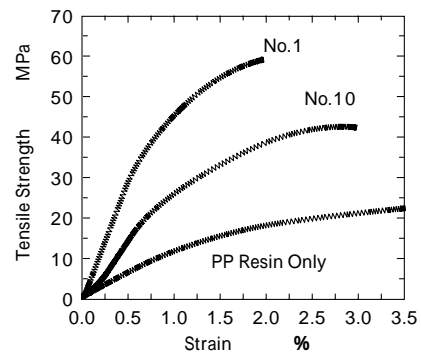
## 2.3 結果および考察

### 2.3.1 実験結果

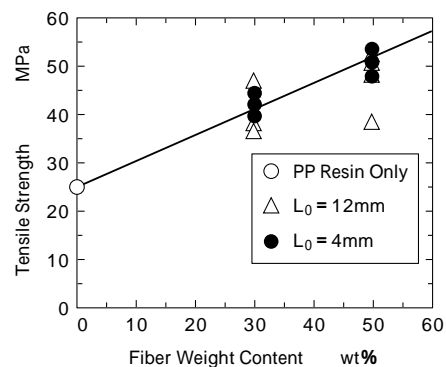
引張試験における応力 - 歪み線図の一例を第5図に示す。約0.3%の歪みまでは線形性が保たれている。引張強度と剛性の結果を第1表の右部分に示す。値はいずれの条件も5本実施した時の平均値である。以下、ペレット製造条件および成形条件が引張り強度に及ぼす影響について調べた結果を記述する。

### 2.3.2 繊維含有率の影響

ペレット繊維長をパラメータとした時の繊維含有率と引張強度との関係を第6図に示す。PP単体の引張強度は使用した樹脂のカタログ値である。図よりジュート繊維を50wt%の高含有率にしても引張強度は低下せず30wt



第5図 応力 - 歪み線図の一例 (番号は第1表の試験片番号に対応する)  
Fig. 5 Examples of stress-strain curve (Numbers in curves correspond to specimen number in Table 1)



第6図 各ペレット繊維長での繊維含有率と引張強度の関係  
Fig. 6 Relationships between tensile strength and fiber weight

%の場合より向上している。これは、ガラス繊維の場合と同様に、繊維含有率を高くすれば強度向上が期待できることを示唆しており、本装置をもちいれば、さらなる高含有率の高強度化された E-LFP 製造の可能性がある。そして、繊維含有率を高めれば高めるほど、環境負荷およびコストの点において大きなメリットが期待できる。

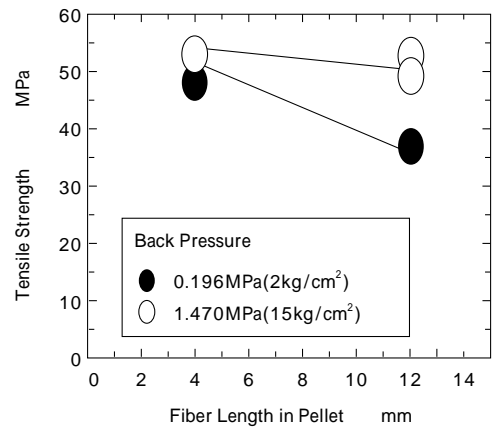
### 2.3.3 繊維長およびスクリュ背圧の影響

スクリュ背圧をパラメータとした時のジュート繊維長と引張強度との関係を第7図に示す。従来のガラス繊維を強化繊維としてもちいた場合、一般に繊維長が長いほど、引張強度は向上すると言われている<sup>7)</sup>。しかし、図を見るとペレット繊維長4mmと12mmの引張強度はほぼ同じで、スクリュ背圧が小さいと逆に多少低くなる傾向が見られる。そこで、成形品の表面写真により、繊維長およびその配向、分散状態を観察し原因を調べた。代表的な成形品の表面状態を写真3に示す。繊維の撚り方向(S撚り)、繊維含有率とスクリュ背圧が同じで、ペレット繊維長の異なる No.2 と No.6 とを比較すると、元のペレット繊維長が長くても、No.2の成形品内部の繊維はかなり切断されていることがわかる。これは、ペレット繊維長が長い場合、スクリュ背圧の影響を大きく受け、射出成形の可塑化時に繊維が切断されてしまったものと考えられる。その結果、元のペレット繊維長が長くても、成形品中の繊維長は短くなり、引張強度で4mm品と同等になったのではないかと考えられる。

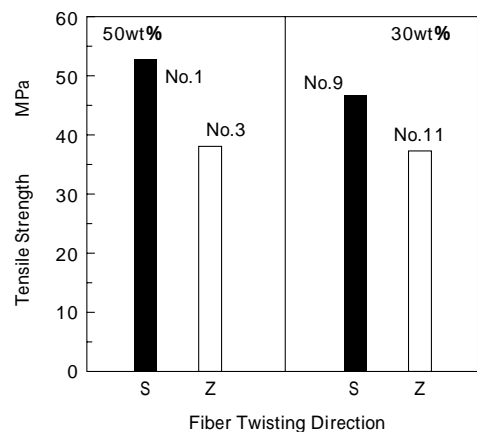
次に、ペレット繊維長が同じでスクリュ背圧の低い No.1 の場合、長繊維はそのまま残ってはいいるが、ガラス繊維の場合と同様に、繊維の分散が悪い。このことから、スクリュ背圧を小さくすれば長い繊維長を維持できるが、繊維分散が悪いために、補強効果が発現できずに強度の低下を招いたのではないかと考えられる。これらのことより、最適の繊維長および低いスクリュ背圧を選択し、さらに繊維分散を考慮したスクリュ(CMHリング付きなど)で射出成形すれば、さらに高強度の成形品を与えることができると考えられる。

### 2.3.4 繊維束の撚り方向の影響

第8図には、繊維長を12mm、スクリュ背圧を0.2MPaとした場合の繊維の撚り方向の影響について、繊維含有率を30wt%と50wt%とで比較した結果を示す。いずれの含有率においてもS方向に撚りながら引取った方が高い引張強度を示した。これは、先の撚り方向の説明で述べたように、Z方向に撚って引取った場合と比較してS方



第7図 各背圧での引張強度と繊維長の関係  
Fig. 7 Relationships between tensile strength and fiber length



第8図 長繊維を維持した場合の繊維束の撚り方向と引張強度との関係(繊維含有率は50wt%, 30wt%)  
Fig. 8 Relationships between tensile strength and fiber twisting direction (Fiber weight contents are 50 and 30wt% respectively)

向に撚られた繊維束の方が、内部まで樹脂が含浸している結果、成形時に繊維の分散性が良くなるためと考えられる。

### 2.3.5 破壊形態

先に高強度を示した No.1 試験片の破面を SEM により観察した結果を写真4に示す。破面での繊維の露出が見られ、繊維と母材樹脂との間で引抜きが生じている。このことより、ジュート繊維とPPの成形品は界面破壊が強度を支配していると考えられる。このことから、ジュート繊維においても、繊維と樹脂との界面の接着性を向上させることができれば、さらに強度の向上が期待できると考えられる。

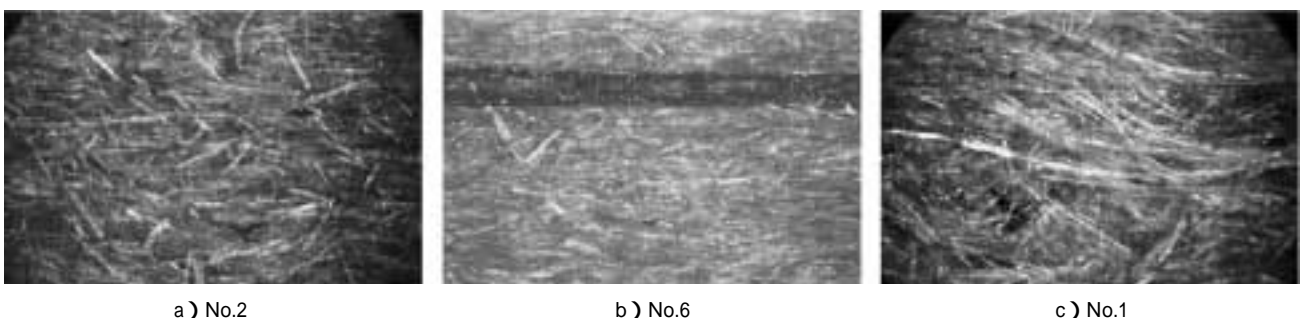


写真3 各条件での試験片の表面写真(番号は第1表の試験片番号に対応する)

Photo 3 Photograph of specimen surface of each manufactured condition (Numbers correspond to specimen number in Table 1)

むすび = 1. 当社独自の繊維への樹脂含浸および撚りを行った引取り方法の開発により、繊維分散性の良い、生産性の高い長繊維ペレット製造プロセスならびに装置が開発された。

2. 同装置を適用して、生育時のCO<sub>2</sub>の固定化や焼却しても残さが残らないという点で、素材としての環境負荷の小さい天然繊維（ジュート繊維）を強化繊維とするエココンポジット（E-LFP）が製造された。

3. 従来は、繊維束中への樹脂の含浸が困難なために、長繊維の形態を有しても原料形態として板状なものが多く、汎用性の低いプレス成形が選択されていた。しかし、今回、射出成形に使用する長繊維化したペレット製造技術を開発したことで、天然繊維強化複合材料の適用範囲を広げることが可能である。

4. 天然繊維はガラス繊維よりも剛直性が小さく攪拌スクリュへの耐摩耗性も小さいので、射出成形機のメンテナンス性で有利である。

5. E-LFPの製造条件および射出成形条件が引張強度に及ぼす影響を調べた結果、以下のことがわかった。

強化繊維としてジュート繊維をもちいることは、複合材の強度向上に有効であり、高含有率であっても強度低下は見られず、今後はさらなる高含有率化も期待できる。

E-LFP製造時の撚り方向によって、繊維と樹脂の密着性が向上し、成形品の高強度化が可能である。

スクリュ背圧を小さくすれば、成形品中の長繊維の維持が可能であるが、繊維分散が悪くなる。そのため、スクリュ背圧と繊維分散性を向上させるスクリュ形状の採用が必要である。

破断面の観察より、ジュート繊維と樹脂との界面の密着性を向上させることができれば、さらなる強度向上が期待できる。

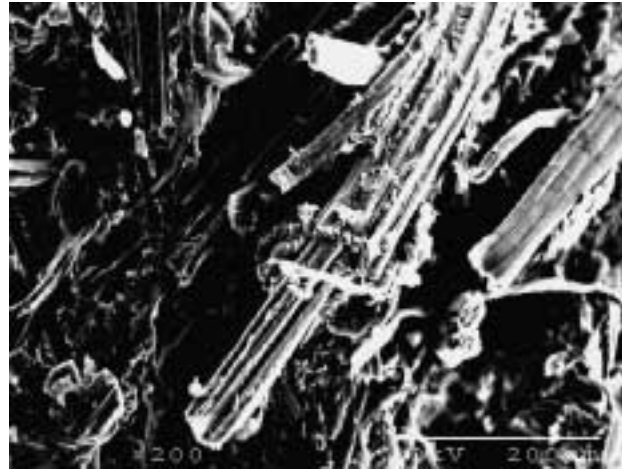


写真4 破断面のSEM写真（No.1試験片）

Photo 4 SEM Photograph of fracture surface (No.1)

天然繊維強化熱可塑性樹脂（エココンポジット）の強度特性の評価に関して、同志社大学 藤井教授ならびに研究室の方々に多大なご協力とご助言を頂きました。ここに記して謝意を表します。

#### 参考文献

- 1) D. N. Saheb et al : A Review Advances in Polymer Technology, Vol. 18, No.4 (1999) p.351.
- 2) J. Jiang et al : 45th FRP CON-EX 2000, p.18.
- 3) 長谷川 正: プラスチックス, Vol.51, No.11 (2000) p.62.
- 4) Daimler Chrysler News : The Environmental Report 2000.
- 5) 特許: 第 2124287 号
- 6) 特許: 第 3114311 号
- 7) 片山傳生ほか: 第23回FRPシンポジウム講演論文集(1994) p.47.