

高混練二軸押出機を用いた乾燥 CNF/PP 複合材料の性能評価に関する研究

ものづくり基盤技術課 川野優希、高松周一、岡野 優、水野 渡^{*1}

1. 緒言

セルロースナノファイバー(CNF)は、高強度・高弾性率・低線膨張係数といった特徴から、樹脂へのフィラー材料として期待できるが、CNF は水分を含んだ材料であるため、疎水性熱可塑性樹脂との複合が困難である。また、セルロース分子同士は結合しやすく凝集物が発生し、凝集物は優れたフィラーとしての効果が活かせず、強度低下の原因となる。

これまでに、CNF の凝集固化を防ぎながら乾燥させる前処理方法の検討を行った結果、セルロース混合可塑化成形装置を乾燥処理に用いることで高せん断を掛けながら短時間で処理した CNF の乾燥材(乾燥 CNF)が得られることを見出した。

本研究では、セルロース混合可塑化成形装置を用いて処理した乾燥 CNF と熱可塑性樹脂であるポリプロピレンの複合材料を作製し、高せん断非外部加熱による乾燥処理方法が複合材料の強度特性に及ぼす影響について検討した。強度試験は引張、曲げおよび疲労試験について実施した。

2. 実験方法

2.1 使用材料

CNF は固形分 10 %となる中越パルプ工業株式会社製の含水 CNF(nanoforest-S/BB-S-1 (10 %))を用いた。熱可塑性樹脂にはポリプロピレン(株式会社プライムポリマー製、H700: PP)を用いた。また、CNF と PP の界面強度の向上を目的とし無水マレイン酸変性ポリプロピレン(理研ピタミン株式会社製、リケエイド MG-441P: MAPP)を用いた。

2.2 CNF 乾燥方法

CNF の乾燥処理にはセルロース混合可塑化成形装置(株式会社エムアンドエフ・テクノロジー製、MF-1001R)を用いた。乾燥条件は、回転羽根の回転数を 2700 rpm とし、水分が蒸発し CNF が粉体となって回転羽根のトルクが減少したところで乾燥処理を終了した。乾燥処理終了後、チャンバーを開け乾燥 CNF を回収した。

2.3 混練方法および成形方法

乾燥 CNF と PP の混練には高混練二軸押出機(東芝機械株式会社製、TEM-48)を用いた。乾燥 CNF の含有量は CNF

の固形分で複合材料総量に対して 5 mass%とした。乾燥 CNF と PP はドライブレンドし、混練条件はバレル温度 180 °C、材料供給量 12 kg/h、スクリー回転数 200 rpm とし、水冷した後ペレタイザーでペレット化した。また、界面活性剤の添加量は複合材料総量に対して 3 mass%とした。複合材料の成形には真空射出成形機(株式会社ソデック製、MS100)を用いて、引張試験片の形状(ダンベル形、タイプ 1A 形)および曲げ試験片の形状(短冊形、タイプ B)に成形した。成形条件は、樹脂溶融温度 180 °C、金型温度 40 °C、冷却時間 20 sec とした。また、比較材料とし PP のみを射出成形した試験片を用意した。

2.4 複合材料強度評価方法

複合材料の強度評価として引張試験および 3 点曲げ試験を行った。いずれの試験も小型強度試験機(株式会社島津製作所製、EZ-LX)を用いた。引張試験条件は、試験速度 5 mm/min、標線間距離 50 mm、試験本数 5 本とし、引張強度および引張弾性率を算出した。曲げ試験条件は、試験速度 1 mm/min、支点間距離 64 mm、試験本数 5 本とし、曲げ強度および曲げ弾性率を算出した。

2.5 複合材料疲労特性評価方法

疲労試験には大型油圧サーボ疲労試験機(株式会社島津製作所製、EHF-UV200k2)を用いた。疲労試験は正弦波荷重下で荷重制御、周波数 10 Hz、最小荷重 0.05 N で行い、繰返し数 10^7 回で試験を打ち切った。

3. 実験結果および考察

Table 1 に、引張試験および曲げ試験の結果を示す。試験の結果より、PP/CNF の引張特性、曲げ特性は強度および弾性率の値いずれも PP と同等もしくは若干低い値を示した。引張試験後の PP/CNF の破断面近傍を X 線 CT 装置で観察したところ Fig. 1 に示す通り破壊起点部において CNF の凝集物が確認された。また、CNF 凝集物周辺では PP との界面剥離やき裂の発生が確認された。そのため、強度特性の値に向上が見られなかったのは、CNF の凝集物が影響していると考えられる。

Fig. 2 に疲労試験より得られた S-N 線図を示す。縦軸は振幅応力 σ_a 、横軸は破断繰返し数 N_f である。●プロットは PP を、△プロットは PP/CNF をそれぞれ示してい

^{*1} 現 企画管理部

Table 1 Strength test results

Sample	Tensile test		Flexural test	
	Strength [MPa]	Modulus [MPa]	Strength [MPa]	Modulus [MPa]
PP	32.6	2140	48.3	1710
PP/CNF	32.1	1960	47.9	1620

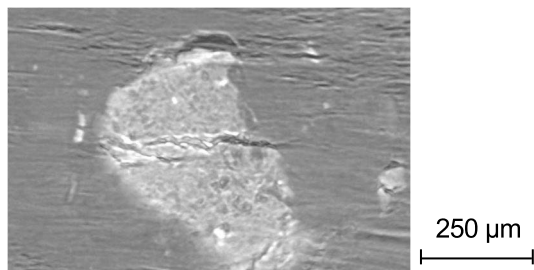


Fig. 1 X-ray CT images of composite material after the tensile test

る。実線と破線は、それぞれのデータを近似したものである。図よりいずれのデータにおいても、振幅応力 σ_a と破断繰返し数 N_f の関係は若干のばらつきがあるものの、直線近似することができ右下がりの傾向を示す。なお、疲労強度のばらつきは PP よりも PP/CNF の方が大きいように見受けられる。また、PP と PP/CNF の疲労強度を比較すると、低サイクル域から高サイクル域に至るまでの全寿命域で、PP/CNF が PP より低強度側に位置していることが分かる。引張特性および曲げ特性において PP/CNF は CNF の凝集物の影響で特性向上が見られなかったことから、疲労特性についても全寿命域において CNF の凝集物が強度低下に影響を及ぼしていると考えられる。また、PP/CNF の疲労強度のデータのばらつきについても CNF の凝集物が影響を及ぼしているためであると考えられる。今後は、CNF の乾燥時に分散剤を用いることで

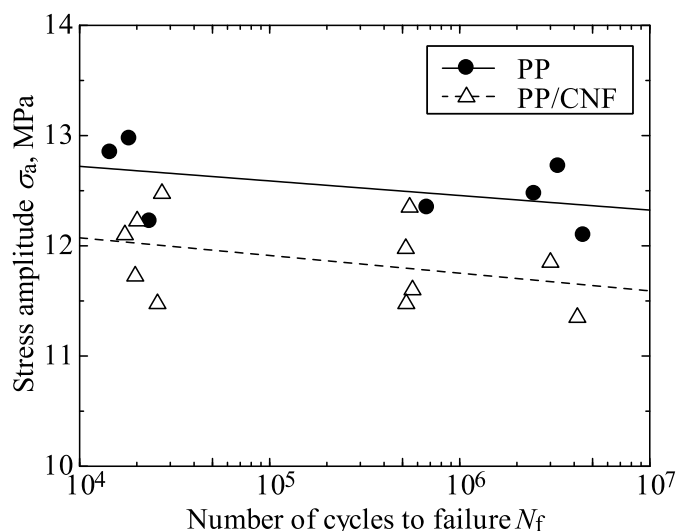


Fig. 2 S-N curves of PP and PP/CNF

凝集物の発生を抑えた乾燥 CNF を用いて複合材料を作製し各種物性について評価していく予定である。

4. 結言

セルロース混合可塑化成形装置を用いて乾燥処理した乾燥 CNF と PP の複合材料を作製し引張、曲げ、疲労特性について評価を行った。PP と各種物性を比較したところ、引張特性および曲げ特性については PP と同等もしくは若干低い値を示すことを明らかにした。引張試験後の試験片の内部の状態について X 線 CT を用いて確認したところ CNF の凝集物が確認され PP との界面剥離やき裂の発生が確認された。疲労特性については全寿命域において PP よりも低強度側に位置することを明らかにした。

キーワード：セルロースナノファイバー、高混練二軸押出機、分散剤、強度評価、疲労特性

Study on Performance Evaluation of Dry Cellulose Nanofiber / Polypropylene Composite Materials by the High Kneading Twin Screw Extruder

Core Manufacturing Technology Section; Yuki KAWANO, Shuichi TAKAMATSU, Masaru OKANO
and Wataru MIZUNO^{*1},

In this study, effect of cellulose nanofiber (CNF) dried by high shear and non-external heating on strength properties of composite material were investigated. Drying treatment of CNF was used by the cellulose mixing- plasticization molding machine. Kneading of dry CNF and PP were used by the high kneading twin screw extruder. It was found that the tensile strength, flexural strength and fatigue strength of dry CNF/PP composite material were lower than those of PP. Both fatigue fractures of dry CNF/PP composite material and PP presented the different aspect at a low cycle area and a high cycle area.