

エポキシ樹脂で結合した木粉/シラスバルーン複合体の 曲げ特性に及ぼす製造因子の影響

本多 琢己

Influence of Dependent Variables on Bending Characteristics of
Wood-Meal and Shirasu-balloons Epoxy-Bonded Composites

Takumi HONDA

Summary : The purpose of this study is to clarify the characteristic of the composite material which bonded the mixture of the wood flour/shirasu balloon together in epoxy resin. The fast curing type was used for the epoxy resin. It was proven to increase bending strength and bending modulus of direct elasticity of the composition which mixed the shirasu balloon in comparison with the wood flour single. The relation of load-deflection of this composite material showed the considerably good linear relationship. The strain energy freed, when the crack advances, was defined as breaking energy. The effect of epoxy resin and mixture ratio was clarified. The composite as mixture ratio of the wood flour subject is excellent in the breaking energy, when the number of copies of epoxy resin adhesive are equal. The improvement in the bending strength characteristic is also influenced in pressing pressure and pressing time.

要旨 : 木粉の高度利用として、シラスバルーンとの混合物をエポキシ樹脂で結合した複合材料を作製した。この構成によると曲げ強度や曲げヤング係数が増加することが分かった。この複合材料は脆性破壊の様相を呈したので破壊エネルギーを求め、混合比、エポキシ樹脂の影響を明らかにした。エポキシ樹脂接着剤の部数が同じでも、木粉主体の混合比とした方が破壊エネルギーに優れている。圧縮圧や圧縮時間の影響も曲げ強度特性の向上に影響している。

1 緒 言

シラスバルーンとは火山灰を原料とした 0.1 mm 以下の微細な中空のガラス球のことである。軽量で断熱性、耐熱性、耐酸・アルカリ性、混合性・流動性に優れているため、プラスチックや金属その他の工業材料に混合することによる新しい複合材料の開発が期待されている¹⁾。しかし、木質系との複合化に関する検討例は見当たらない。

一方、製材工場から排出される木粉は、充填材として熱硬化性樹脂中に直接混入する方法で利用されている。また、木粉はボードにも利用されており、パーティクルボードの表層に用いて熱圧成型すれば硬くて緻密な表面に仕上げることができる。さらには化学修飾された木粉を熱可塑性樹脂と複合化させるような高度な利用方法も検討されているが、これに関しては追求の余地が残って

いるものと考えられる。こうした材料には共通して熱圧成型が採用されており、エネルギーコストを抑制するための視点から常温成型に関して検討された例は極めて少ない。

本研究では、常温硬化型エポキシ樹脂をバインダーに用いて木粉/シラスバルーン複合体（以下 WSE と記す）の成型を試みた。そして製造因子と 2、3 の物性との関係を考察した。予備試験の結果、これらの複合体は破壊が脆性的な様相を示すことが明らかとなったので、破壊エネルギーの算出も試みた。

2 実 験

2.1 WSE の作製方法

木粉としてカラマツ材の鋸屑から 18.5# を通過し 35.5# をパスしたものを用いた。接着剤には、常温硬化型エポキシ樹脂(K 社製、粘度：700~900 cps、硬化剤：変性ポリアミン、主剤：硬化剤=4：1 の割合で混合)を、また

シラスバルーン (I社製) は平均粒径 $60\ \mu\text{m}$ のものを用いた。木粉とシラスバルーンを所定量混合し、エポキシ樹脂を混練した。木枠の中に手をもってフォーミングし、一定時間の圧縮後、室内で 24 hr 養生し、その後脱型した。20°C、58%RH 程度の雰囲気中で 3 週間以上養生した。なお、目標比重は 0.8 とした。

圧縮時間の影響を調べる実験では、木粉：シラスバルーン：エポキシ樹脂の混合比=50：20：30、圧縮圧：0.98 Mpa とし、圧縮時間を 10、20、30、40 min の 4 水準とした。また、圧縮圧の影響を調べる実験では木粉：シラスバルーン：エポキシ樹脂=50：20：30、圧縮時間：30 min とし、圧縮圧を 0.49 Mpa、0.98 Mpa、1.47 Mpa、1.96 Mpa の 4 水準とした。

2.2 木粉/シラスバルーン/エポキシ樹脂の混合比の検討

木粉/シラスバルーンの混合比を 100：0、80：20、65：35、50：50、35：65、20：80 の 5 水準とし、それぞれの混合比に対してエポキシ樹脂接着剤 (木粉+シラスバルーンに対する重量比) を 20、25、30、35、40、45 部の 6 水準とした。圧縮条件は圧縮圧が 0.98 Mpa、圧縮時間を 30 min とした。

2.3 曲げ強度試験

幅 10 mm、長さ 120 mm の試片を 1 条件につき 10 個用意した。クロスヘッドスピードを一定 (5 mm/min) とし、スパン 100 mm で中央集中荷重の 3 点曲げ強度試験を行った。

2.4 破壊エネルギーの算出

曲げ試験における荷重-たわみのグラフは直線性を示し、また、破壊は引張側の midpoint で脆性破壊を呈した。このような曲げ破壊のひずみエネルギー U は次式で示せる⁹⁾。

$$U = lbh \sigma_b^2 / 18 E_b$$

ここで、 l ：試片のスパン、 b ：幅、 h ：厚さ、 E_b ：曲げヤング係数、 σ_b ：最大曲げ応力である。

3 結果及び考察

3.1 WSE の曲げ強度特性に及ぼす圧縮時間の影響

木粉：シラスバルーン：エポキシ樹脂の混合比が 50：20：30 の WSE について、圧縮圧を一定 (0.98 Mpa) とした場合の圧縮時間と曲げ強度特性の関係を検討した (Fig.1)。MOR、MOE および破壊エネルギーなどの曲げ強度特性は圧縮時間の増加に伴い低下する傾向を示した。この理由について以下のように考察した。

本研究で行った成型方法ではホットプレス法とは異なり、木粉自体はほとんど可塑化しないため解圧時における木粉の変形回復力が大きい。それゆえエレメント間の結合が切断される割合が高い。一方、今回用いたエポキシ樹脂は常温速硬化型であるため、圧縮の初期段階から硬化が始まっている。しかしエポキシ樹脂の硬化反応が完全に終了する以前に解圧すれば、解圧後もさらに硬化反応が進むため、新たなエレメント間の結合が期待できる。圧縮時間をさらに長くすると解圧時にはエポキシ樹脂の硬化反応がほぼ完了しており、その後、新たにエレメン

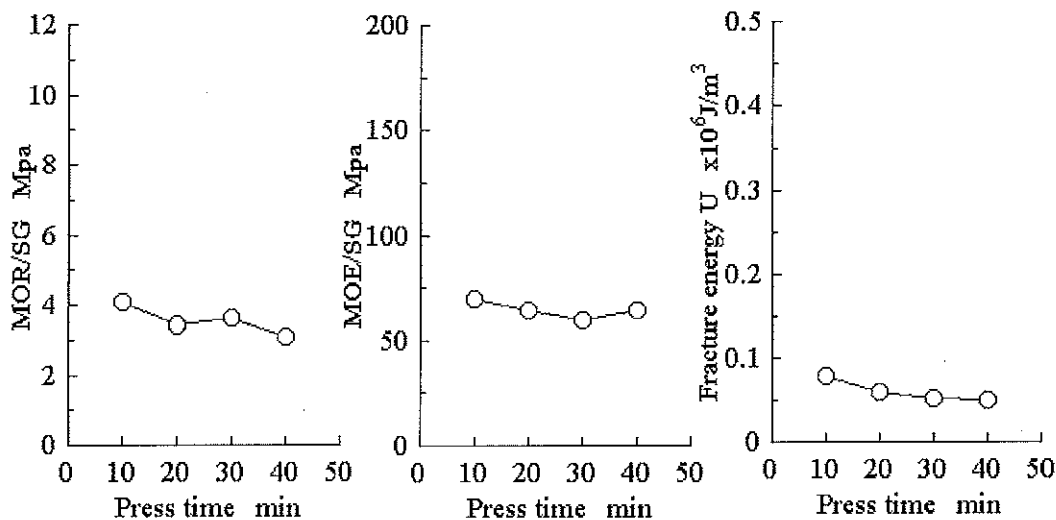


Fig.1 Relationship between hot-press time and bending characteristics of epoxy-bonded boards.
Note: Wood: Filler: Resin=50:20:30
Pressure: 0.98 Mpa

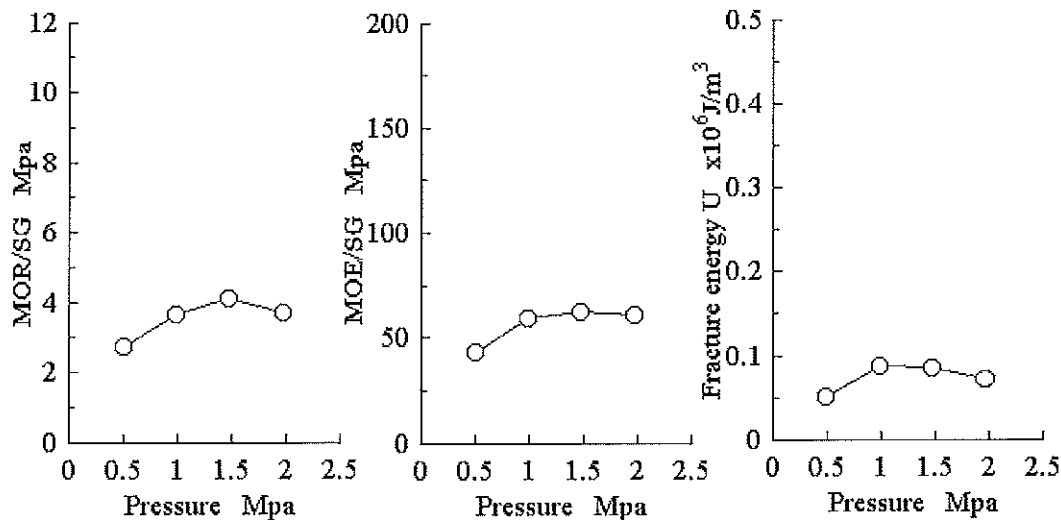


Fig. 2 Relationship between hot-press pressure and bending characteristics of epoxy-bonded boards.
Note: Wood:Filler:Resin=50:20:30
Press time:30 min

ト間の結合が形成されることはほとんど無いと考えられる。

一方、エポキシ樹脂が硬化する際には体積収縮を生じ、圧縮中のボード内部に応力が発生する。内部応力が解放されずにそのまま残留応力としてボード中に残存すると、曲げ特性などに影響を及ぼす。樹脂の硬化反応が厚さ方向の変形回復が拘束された状態（圧縮）で進行すると、非拘束下に比べてなお応力が解放されにくくなる。また、速硬化型のエポキシ樹脂では、内部応力の発生が比較的初期の圧縮段階から始まっているものと推定される。そのため圧縮下、つまり変形拘束下における樹脂硬化時間がある長さ以上に保持した場合には、樹脂硬化に伴う内部応力が增大する。さらに、解圧の時点で既に樹脂硬化が相当進んでいれば、除圧による応力の解放がさほど期待できず、ボードの養生中も引き続き相当量の残存応力が存在していると考えられる。

エポキシ樹脂の WSE 中での硬化においては、変形拘束下の硬化時間の全硬化時間に対する割合が内部応力の解放、残留応力の大小やエレメント間の再結合の形成に大きな影響を及ぼしていると考えられる。

以上より、圧縮時間がマトリックス間の結合状態や内部応力の解放に影響を及ぼすため、圧縮時間の増加に従って WSE の曲げ強度特性が低下したものと考えられる。従って適正な時間で圧縮圧力を解除し、応力をスムーズに緩和させる必要がある。

3.2 WSE の曲げ強度特性に及ぼす圧縮圧の影響

木粉：シラスバルーン：エポキシ樹脂の混合比が 50：20：30 の WSE について、圧縮時間を一定（30

min）とした場合の圧縮圧と材質の関係を検討した (Fig.2)。圧縮圧 0.98 Mpa 以上の条件で作製すると、MOR や MOE などの曲げ特性は比較的安定してくる。圧縮圧 0.49 Mpa の条件で作製した WSE の場合、解圧後の厚さ回復が大きいため目標比重からのずれが著しかった。本研究で行った成型方法はホットプレスで加熱圧縮する方法とは異なり、木粉自体は可塑性しない。そのためエレメント相互を十分に密着させるには 0.98 Mpa 以上の圧縮圧が必要と考えられる。ただし、圧縮圧 1.96 Mpa の場合、MOR が若干低下する傾向を示した。これは、圧縮圧が必要以上に高い条件下ではマトリックスが完全に拘束された状態で硬化が進み、応力緩和が抑制されるためと推測される。

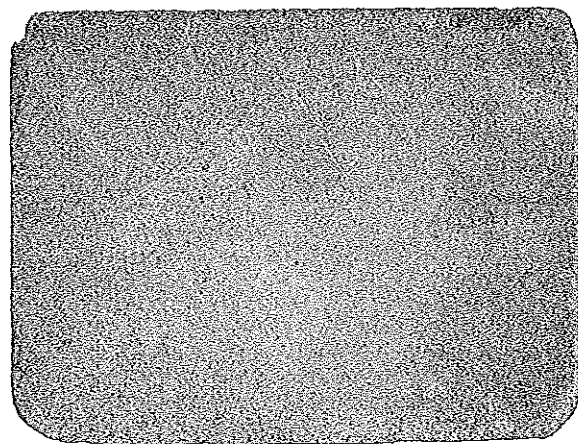


Fig. 3 Wood-Meal and Shirasu-balloons Epoxy-Bonded Composites.
Note: Wood:Filler=35:65, Resin30%

3.3 WSEの曲げ強度特性に及ぼす木粉:シラスバルーン混合比およびエポキシ樹脂接着剤の部数の影響

Fig.3にWSEの試作例(木粉:シラスバルーンの混合比35:65、接着剤30部)を示す。

エポキシ樹脂接着剤が20部、25部の場合でもWSEの成型自体は可能であったが、丸鋸で鋸断する際にクラックが発生したため曲げ強度試験から除外した。こうした切削に伴う損傷は切削方法を工夫することで低減できるものと考えられるが、さらに2次加工を行う場合を考慮に入れば、エポキシ樹脂接着剤は最低でも30部以上

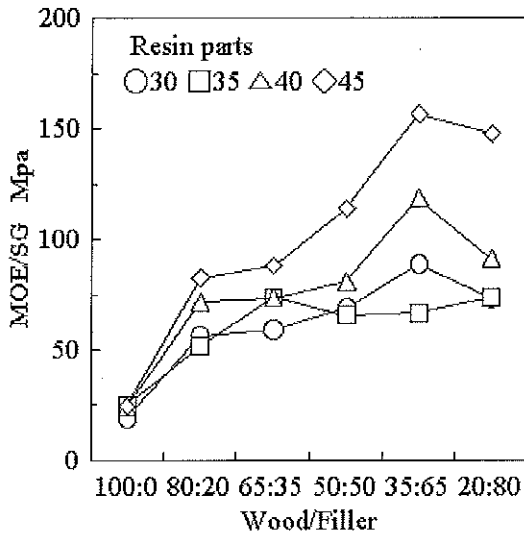


Fig. 4 Relationship between wood-meal: shirasu-balloon ratio and specific modulus of elasticity of epoxy-bonded boards.

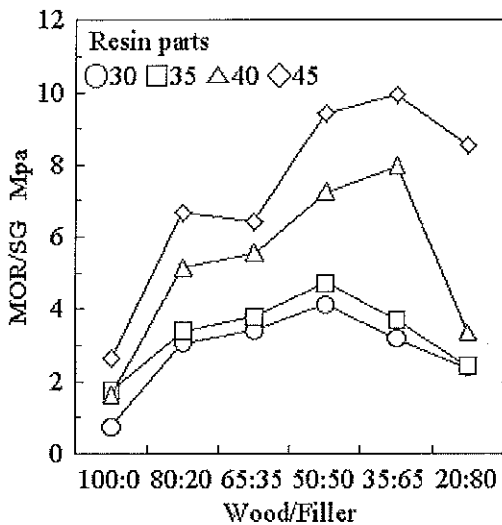


Fig. 5 Relationship between wood-meal: shirasu-balloon ratio and specific modulus of rupture of epoxy-bonded boards.

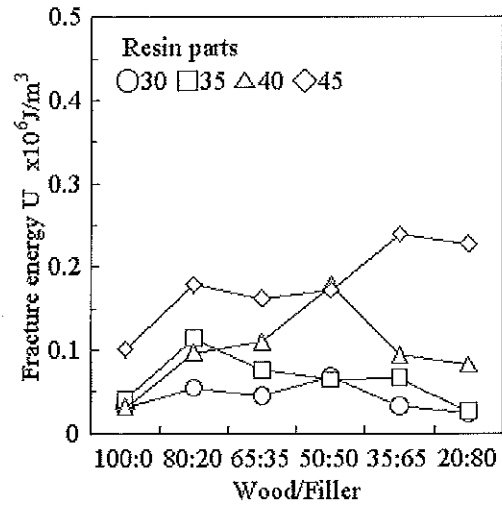


Fig. 6 Relationship between wood-meal: shirasu-balloon ratio and fracture energy of epoxy-bonded boards.

必要と考えられる。

木粉:シラスバルーンの混合比に対するMOEの結果をFig.4に、MORの結果をFig.5に、また破壊エネルギーの結果をFig.6に示した。MOE及びMORは木粉単独よりもシラスバルーンを混合した方がエポキシ樹脂接着剤の部数に関わらず大きな値を示し、その傾向は40部以上の配合において顕著であった。木粉:シラスバルーンの混合比が20:80ではMOEやMORが急減した。破壊エネルギーに関してはMOEやMORの場合とほぼ同様にシラスバルーンの混合やエポキシ樹脂接着剤の部数の増加に対する効果が確認されたが、シラスバルーン混合比が50%を超えると破壊エネルギーは逆に減少に転じた。

ここで、エポキシ樹脂接着剤の部数が45部の場合に注目すると、シラスバルーンの混合比が高い領域でも破壊エネルギーの低下は少ない。このことからエポキシ樹脂接着剤の部数をさらに増加すれば、50%以上のシラスバルーン混合比においても破壊エネルギーの低下を抑制できる可能性がある。さらに、エポキシ樹脂接着剤の部数ごとに各物性値を比べると、MOEは30部:61.0、35部:59.5、40部:76.6、45部:102.0各Mpa、MORは30部:2.81、35部:3.30、40部:5.14、45部:7.27各Mpa、破壊エネルギーは30部:0.0431、35部:0.0653、40部:0.0992、45部:0.181各 $\times 10^6$ J/m³である。このようにエポキシ樹脂接着剤の部数に比例して物性が改良されることが分かる。これはエポキシ樹脂の部数が多いほどエポキシ樹脂がマトリックス間のフレームワークとして働くようになるためと考えられる。このことは、エポキシ樹脂を主体とするWSEとは構造の異なる複合材料の可能性を示唆している。すなわち、エポキシ樹脂マ

トリックス中に木粉などのフィラーが分散した構造を有する材料で、フィラーがマトリックスを補強するように機能する。WSE はこれとは本質的に異なる特徴を有しており、エポキシ樹脂がバインダーとして機能し木粉などのエレメントを相互に結合している。しかし本研究の目指すところはあくまでも木粉の有効利用にある。樹脂量が木粉量以上になっては目的にそぐわなくなるため、ここでは考察程度に留めたい。

4 結 言

エポキシ樹脂接着剤の部数が 25 部以下では成型体は脆い性状を示した。エレメント相互の結合が不十分なこ

とが主因と考えられる。エレメントとエポキシ樹脂との反応性をさらに高めるためには、エレメントをカップリング剤等で表面処理し反応基を導入する必要がある。そうすることで、より少ない接着剤部数でもさらに強固な接着結合が得られるものとする。

文 献

- 1) 粉体工学会編, “最新粉体物性図説”, NGT, p.212 (2004).
- 2) 鈴木正治, 藤田浩史: 木材学会誌, 34, 690-696 (1988).