

ウッドプラスチック複合材料の疲労破壊特性

M. N. A. Nordin^{*1}・楨野 裕太^{*2}・合田 公一^{*3,#}・伊藤 弘和^{*4}

Fatigue Fracture Properties of Wood Plastic Composites

*M. N. A. Nordin^{*1}, Yuta Makino^{*2}, Koichi Goda^{*3,#}, and Hirokazu Ito^{*4}*

^{*1} Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University, Ube 755-8611, Japan

^{*2} Undergraduate of Faculty of Engineering, Yamaguchi University, Ube 755-8611, Japan

^{*3} Department of Mechanical Engineering, Yamaguchi University, Ube 755-8611, Japan

^{*4} TOCLAS Corporation, Business Development Division, Hamamatsu 432-8001, Japan

Abstract : Fatigue fracture properties of wood plastic composites (WPC) were investigated. The material was based on a wood flour/ polypropylene (PP) master batch, and prepared to be 30wt% and 50wt% wood flour contents by the addition of PP pellets. First, kneading temperature and screw speed of a uni-axial extruder were changed in some conditions, and 190°C and 20rpm were decided from tensile test of the injection-molded WPC specimens as the optimum manufacturing conditions. Next, tensile and fatigue tests were carried out for WPC specimens with 30wt% and 50wt% wood flour contents. The resultant tensile strength and fatigue life were largely improved as compared to neat PP specimens. When a lump of the master batch remained in the WPC specimen, the strength and life were reduced. It should be noted that, while fatigue life of the neat PP specimens was only 10 to 10² cycles to failure range at 30MPa maximum cyclic stress, those of WPC specimens with 30wt% and 50wt% contents were drastically extended to 10³ to 10⁴, and 10⁵ to 10⁶ cycles to failure, respectively. It was estimated that the major cause of fatigue damage in WPC specimens was *craze* occurring in the matrix, which initiated near the specimen surface, extended into the inner, and finally led to the unstable fracture.

(Received 18 May, 2015 ; Accepted 4 September, 2015)

1. 緒言

今日、石油由来資源はこれをベースとする合成樹脂等の大量生産を通して人間生活の利便性を向上させた反面、大量廃棄を通して地球温暖化等の環境問題を引き起こしている。このため、環境・資源・エネルギーを保護する研究・技術開発の確立が求められており、材料分野においても材料のリサイクル技術や、自然分解される天然素材を使った材料開発が進められている[1]。このうち、ウッドプラスチック複合材料[2] (Wood Plastic Composites, WPCと略記)は、木材と比較して高い耐久性・耐水性・成形性を持ち[3]、プラスチックに比べて低い熱膨張性[4]、自然な外観を持つ、木材とプラスチック双方の欠点を補

いあった材料である[5]。木質原料として廃材、間伐材等の未利用材を、母材として産業廃棄されたプラスチックをそれぞれ利用することができ、高いリサイクル性を兼ね備えている。このようなWPCを構造材料として広く適用するためには、今後、耐久性・信頼性に関わる強度データベースの構築が必要となる[6]。しかし、現状ではクリープ特性についての報告例[7]がみられるのみで、疲労特性については著者らの知る限り皆無である。

そこで本研究では、木粉とポリプロピレン、相溶化剤を混合させたWPC試験片を作製し、その作製方法や分散性、木粉の添加率の違いから、WPCの疲労寿命に及ぼす影響を解明することを目的とした。さらに、疲労試験中の損傷観察や試験片の断面・破面観察を通し、WPCの疲労損傷・破壊機構について解明を試みたので以下に報告する。

2. 実験方法

2.1 供試材料

本研究では、強化材として木粉/樹脂マスターバッチ[8] (セルブリッドN, 木粉の繊維長150μm, トクラス(株)製),

corresponding author

^{*1} 山口大学 大学院理工学研究科, 現在 Faculty of Mechanical Engineering, Universiti Teknikal Malaysia Melaka (UTeM)

^{*2} 山口大学 学部生

^{*3} 山口大学 工学部機械工学科

^{*4} トクラス(株) 事業開発推進部

母材としてポリプロピレン(ホモ系, MI=30, 株)プライムポリマー製, 以下 PP と記す)をそれぞれ用いた. 木粉/樹脂マスターバッチ構成素材の配合率を Table1 に示す. Table1 の Maleic anhydride-modified PP(無水マレイン酸変性 PP)とは, 木粉と PP の界面結合を高めるために用いられる相溶化剤であり, この添加によって界面強度は大き

Table 1 Compound ratio of wood flour/PP master batch [8]

Wood flour	PP	Maleic anhydride-modified PP
68.1wt%	29.2wt%	2.7wt%

く向上することが知られている [5,8].

2.2 作製方法

マスターバッチと PP を恒温乾燥機で 120℃, 5 時間処理し, 木粉含有率が所定の割合になるように混合した. これを単軸押出機(ムサシノキカイ(株)製)に投入し両者を混練した. 得られた混練物を簡易ペレタイザによって切断し, 条件によっては得られたペレットを再度混練・切断し, 射出成型機(井元製作所(株)製)を用い, 温度 200℃ で試験片形状の射出成形品を得た(以下, 再度混練したものを'混練回数 2 回'と記し, 1 回のみを'混練回数 1 回'と記す). Fig. 1 にその形状と寸法を示す. まず疲労試験に先立ち, 30wt%木粉含有率の条件下, 単軸押出機の混練温度 180, 190℃, スクリュー回転速度を 5, 10, 20, 30rpm に変化させた計 8 条件を用い, 静的引張試験によって最適混練温度および最適回転速度(以下, 最適条件と記す)を選定した. なお, 用いたスクリュー回転速度は混練時間に換算すると, 53, 46, 20, 11 分にそれぞれ対応する. 続いて, 得られた最適条件で 50wt%木粉含有率の試験片も作製するとともに, 木粉の分散性の影響も評価するため, 混練回数 1 回および 2 回の試験片を作製し, 疲労試

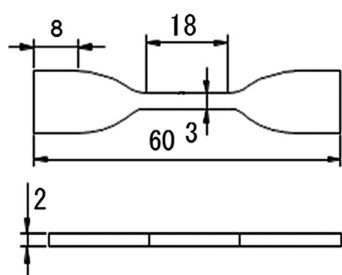


Fig. 1 Shape and dimension of neat PP and WPC specimens.

験を実施した.

2.3 引張および疲労試験

疲労荷重の設定に際し, 予め静的引張試験を実施した. 試験機として小型卓上試験機(容量:1.0kN, JT トーシ(株)製)を用い, ひずみの測定にはひずみゲージ法を用いた. 引張試験は大気中常温下で行ない, クロスヘッド速度 1.0mm/min で試験片が破断するまで実施した.

疲労試験には電気油圧サーボ式材料試験機(容量:9.8kN, サーボパルサー EHF-FBI-4LA, 島津製作所(株)製)を用いた.

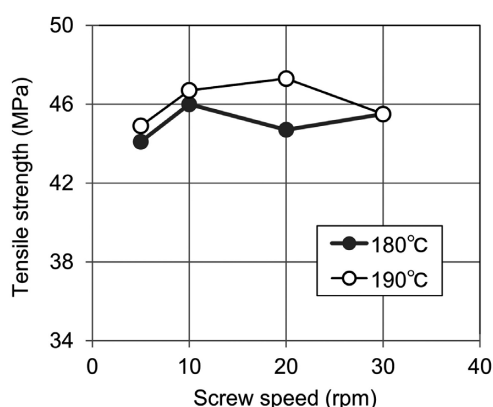


Fig. 2 Effects of kneading temperature and screw speed on tensile strength of WPC specimens.

繰返し条件は, 負荷荷重の最大値 P_{max} を引張強度から換算した荷重の 45~80% の範囲とし, 応力比^{*5} を 0.1, 周波数を 3~5[Hz], 正弦波形で実施した. 高分子材料では周波数に依存して温度上昇が生じ, 熱損傷・破壊の影響が指摘されている [9]. 本研究で用いた最大周波数 5Hz では, PP において 4~6℃ 程度の上昇 [10] が懸念されるものの, この程度ならば疲労破壊にさほど影響を及ぼさないと判断した. なお, 本研究では試験片が破断もしくはネッキングが起こり, 荷重負荷ができなくなるまでの繰返し回数を疲労寿命とした.

3. 実験結果および考察

3.1 最適条件

単軸押出機の混練温度およびスクリュー回転速度を変化させた 8 条件に対し, それぞれ 5~9 本の引張試験を行なった. その平均強度を Fig. 2 に示す. これから, 混練温度が 190℃ になると 180℃ より強度が多少増加することがわかる. また, 混練温度 190℃ の強度は, スクリュー回転速度 10~20rpm において, 5rpm もしくは 30rpm におけるより幾らか向上することも確かめられる. 回転速度が高くなると混練時間が短くなり十分な混練は得られず, 一方で回転速度が低く混練時間が長くなると木粉の熱劣化が起こりうる. すなわち, 木粉の低分散性や材質劣化によって強度が幾らか低下したと考えられる. 以上より, 本研究では混練温度 190℃, スクリュー回転速度 20rpm を最適条件とみなし, 以降の試験片作製に用いた.

3.2 引張試験結果

3.1 節で得られた最適条件を用い, 木粉含有率 30wt%, 50wt% および混練回数 1 回および 2 回について WPC 試験片を作製し, 引張試験を行なった. その代表的な応力-ひ

*5 応力比とは, 負荷応力の最大値に対する最小値の比であり, 応力振幅や最小値の引張または圧縮レベルを決める目安となる. 本研究で設定した 0.1 は, 最小応力, 最大応力ともに引張側の負荷であることを意味する.

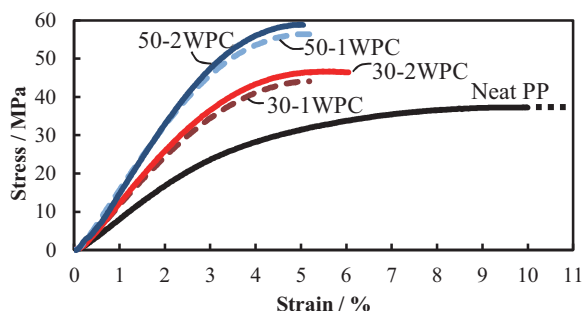


Fig. 3 Typical stress-strain diagrams of Neat-PP and WPC specimens.

Table 2 Tensile properties of Neat-PP and WPC specimens.

Type of specimens	Number of specimens	Tensile strength [MPa]	Fracture strain [%]	Young's modulus [GPa]
Neat-PP	5	38.2 (2.03)	10.0	2.00
30-1WPC	5	44.1 (0.87)	5.52	3.87
50-1WPC	5	55.9 (0.93)	5.08	4.79
30-2WPC	12	46.5 (0.63)	5.89	3.49
50-2WPC	6	57.7 (3.02)	4.94	4.70

Each value in parenthesis is the standard deviation of tensile strength for each specimen

ずみ線図を Fig. 3 に示す。図中、Neat-PP は同様にして作製した PP のみの試験片である(混練回数 1 回)。各試験片の起首に記載された数字は木粉含有率および混練回数を示す。例えば、'30-1WPC' は木粉含有率が 30wt% であり、混練回数が 1 回の WPC 試験片である。これから、木粉を添加すると変形抵抗が大きくなるのがわかる。また混練回数が 1 回のは、混練回数 2 回におけるより変形抵抗が若干低くなる。また、いずれの場合もひずみ 3% 辺りから非線形挙動が現われるようになり、変形抵抗にちがいはあるものの、WPC 試験片は Neat-PP に追従した力学的挙動を呈する。Table 2 に引張試験から得られた機械的性質を示す。これから、木粉を添加すると強度およびヤング率が増加し、一方で破断ひずみは減少することがわかる。その傾向は、木粉含有率が高いほど強くなる。またヤング率および破断ひずみに関して、混練回数が 1 回のもの(30-1WPC および 50-1WPC)は混練回数 2 回のもの(30-2WPC および 50-2WPC)と優劣はさほど見られず、むしろ前者が秀でていた場合も幾つかみられる。一方、強度に関しては 30-2WPC および 50-2WPC が明らかに優れている。混練回数が 1 回では押出機による混練が不十分であり試験片内にマスターバッチの塊まりが残り、これが早期破断を誘発する起点になったものと推測される。

なお、Table 2 の引張強度欄の括弧内は標準偏差を示すが、その変動係数は 1~5% 程度の範囲に換算され、ばらつきは少ないことがわかる。また、本研究で得られた 50-1WPC および 50-2WPC の引張強度、ヤング率をガラス短繊維 PP 複合材料[11,12]と比較すると、繊維長 3mm、繊維含有率 30wt% のものとほぼ同等のレベルに

ある。

以上の結果を踏まえ、疲労試験における P_{max} は Table 2 の各試験片条件における引張強度に基づき決定し、疲労試験毎に試験片の断面積で除して最大応力とした。

3.3 疲労寿命および疲労感受性

Neat-PP および WPC 試験片の疲労寿命の常用対数を横軸に、繰返し負荷時の最大応力を縦軸にとってプロットした、いわゆる S-N 線図(Stress versus Number of cycles Diagram)を Fig. 4 に示す。これから、木粉を添加すると疲労寿命は向上し、木粉含有率が高いほど増加することがわかる。また、疲労試験においても混練回数 2 回のものが 1 回におけるより寿命は改善される。Fig. 4 中の各直線は各寿命データに適合するように引いた最小二乗法による近似直線である。いずれの場合も片対数グラフ上で概ね線形性を維持している。ここで、疲労寿命の向上の度合いに着目すると、例えば、応力 30MPa に対する軸と近似直線の交点は、Neat-PP 試験片において $10^1 \sim 10^2$ 回間に存在するが、30-2WPC 試験片では $10^3 \sim 10^4$ 間に存在し、さらに 50-2WPC 試験片では $10^5 \sim 10^6$ 間に存在するようになる。つまり、PP に木粉を 30wt%、さらに 50wt% 含有させることによって、疲労寿命が 10^2 程度のオーダーで向上する。以上のように、本研究における WPC は、繰返し負荷による疲労寿命に対して極めて優れた材料であることが判明した。

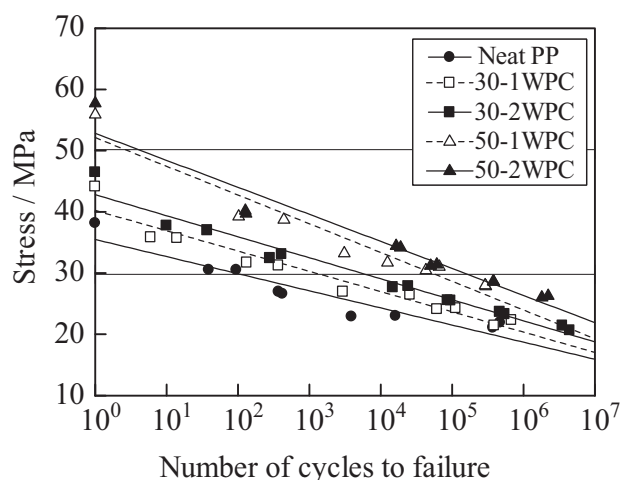


Fig. 4 Diagrams of maximum stress vs. number of cycles to failure of Neat-PP and WPC specimens.

短繊維系複合材料の疲労分野では、繰返し回数にともなう疲労寿命の低下割合を判別するパラメータとして、いわゆる'疲労感受性'が議論されてきた[9]。これは、片対数グラフ上で線形関係が成り立つとし、以下の式における傾き b を意味するものである。

$$S/S_0 = 1 - b \log N \quad (1)$$

ここで、 S は負荷応力の最大値、 S_0 は引張強度、 N は破断寿命を表す。 S_0 には Table 2 の引張強度値をそれぞれ用いた。 b が大きければ傾きが大きくなり、応力負荷が低くても破断に至りやすくなる。本実験結果から求めた b

Table 3 Fatigue sensitivity b of WPC specimens

Specimens	b
Neat-PP	0.090
30-1WPC	0.095
50-1WPC	0.099
30-2WPC	0.090
50-2WPC	0.093

を Table3 に示す. これから本研究における WPC 試験片の b は概ね 0.09~0.10 にあることがわかる. ガラス短繊維複合材料では $b = 0.10 \sim 0.15$ の範囲にあり, 炭素短繊維複合材料では $b < 0.1$ になる傾向が強い[9]. これから, 今回得られた WPC 試験片はガラス短繊維複合材料より疲労に対する感受性が鈍く, この点においても耐疲労性に優れた材料であると言えよう.

ここで, S-N 線図における各データ点の推移に着目すると, 疲労寿命 10^6 回のプロットは引張試験結果であり, いずれも近似直線の上側に位置する. これより, 全体のデータ点の流れは左斜め下側に幾らか凸状の曲線のように幾分推移する. このような特徴は, 疲労限度を明確に示さないアルミニウム合金など非鉄金属材料の挙動[13]に類似している. WPC の疲労限度の有無についてはさらに詳しく研究を進める必要があり, 今後の課題である.

3.4 断面・破面および疲労損傷観察

Fig. 5 に 30-1WPC および 30-2WPC 試験片の断面写真を示す. Fig. 5(a) の拡大写真に示すように, 混練回数が 1 回であればマスターバッチ中の木粉が十分に分散せず, 塊まりで残っていることがわかる (矢印では数か所のみ示しているが, 多数見られる白い繊維状のものが木粉である). このような分散性の不具合が引張強度および疲労寿命を低下させたと判断できる. これに対し 30-2WPC 試験片 (Fig. 5(b)) は良好に分散していることがわかる. また, Fig. 5(c) に 50-1WPC 試験片の断面写真を示す. 50-1WPC については, 本研究の範囲内で塊まりで残ったものは確認されず, 巨視的には良好に分散していることがわかる. また, 50-2WPC についても Fig. 5(c) と同じような様相を示した. しかし, 50-1WPC は 50-2WPC に比べて静的強度や疲労寿命が劣っていることから, 50-1WPC では微視レベルにおいて個々の木粉が十分に分散していない可能性も考えられる. 今後, 木粉の分散性を定量化して比較するなど, より詳細な議論が必要である. 一方, ヤング率に関しては, 先述のように混練回数と相関付けられず, 金属などの既存材料[14]と同じく, WPC の強度・寿命は構造に敏感であるものの, 剛性には鈍感であると結論付けられる.

Fig. 6(a) に疲労試験中の試験片表面における損傷を示す. WPC の疲労損傷部は, 矢印で示すように, 白化することが新たに確認できた. 白化は, 巨視的にはまず試験片の

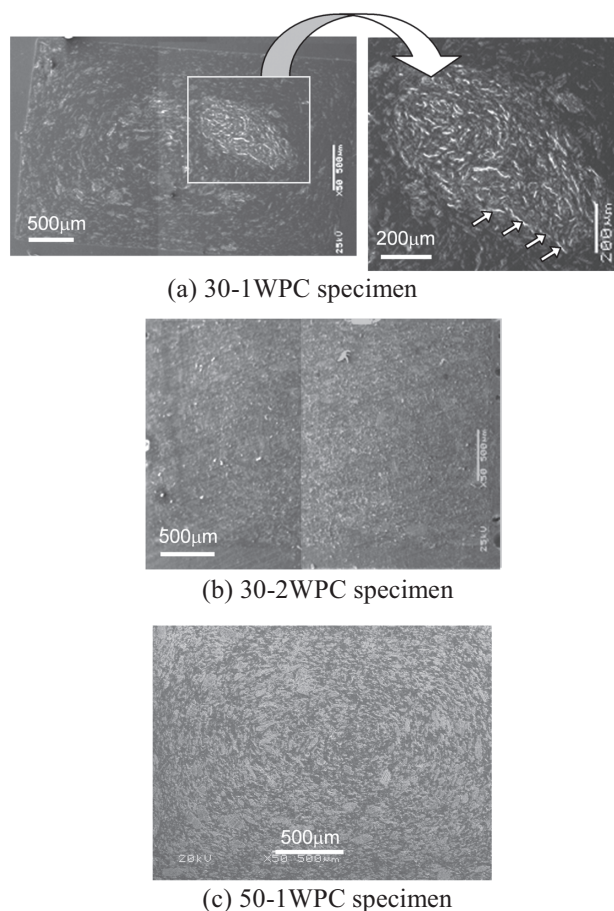


Fig. 5 Cross-section of WPC specimens.

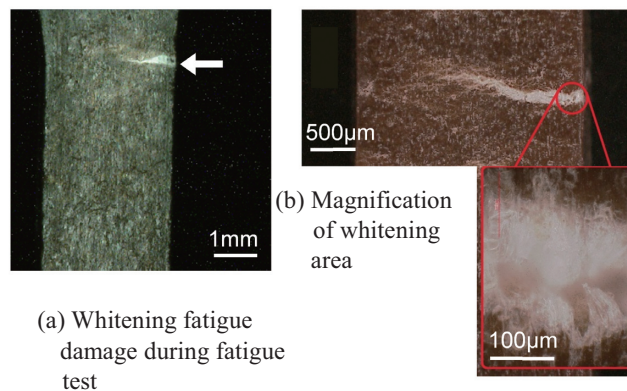


Fig. 6 Fatigue crack and fracture surface of 30-2WPC specimen (Maximum stress to strength : 50%).

表面(側面側)から発生し, 徐々に試験片内部へ進展していき, 最終的に瞬時に破断することを観察した. この傾向は他の試験片においても同様であった. 白化をさらに倍率を上げて確認したところ, Fig. 6(b) に示すように, 木粉の存在は確認できなかった. したがって, 本研究における白化は, ガラス短繊維/ポリエステル複合材料の疲労損傷でしばしばみられる繊維-樹脂間の界面はく離[15]に起因するものではないと推測される. 同様な白化はいずれの試験片においても確認された. また, 白化した損傷部がき裂ならば, 巨視的な空隙が形成されるべきであるが, Fig. 6(b) に示すように, 空隙は観察されなかった.

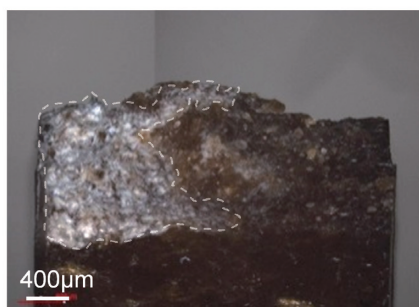
次に疲労破面に着目する。この場合も、白化領域は Fig. 7(a)の点線による囲い線で示すように、比較的平坦な形状を呈する。一方、最終的な不安定破壊に相当する破面領域では白化しておらず、全体的に凹凸を有する形状になることがわかる。以上から、白化はいわゆる‘疲労き裂’のように安定的に成長し、限界寸法に達するまで生成し続ける。その機能は通常の金属材料の疲労き裂とまったく同様である。比較のために、静的引張試験による破面様相を Fig. 7(b)に示す。Fig. 7(a)と比較すると白化領域の占める割合は明らかに小さく、Fig. 7(a)の白化が安定成長したことを裏付けている。

3.5 WPC の疲労損傷・破壊機構

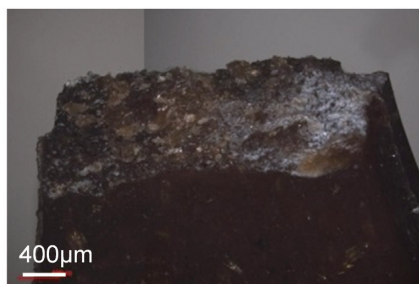
以上の結果を踏まえ、WPCの疲労損傷・破壊機構について考察する。本研究で作製したWPCは木粉/樹脂間の界面接着性が良好であり、界面はく離や木粉の破断はさほど起こらず、マトリックス樹脂(PP)の白化、すなわちクレーズの発生[16]が疲労損傷を進展させる要因であると考えられる。まず、Fig. 8(a)に模式図で示すように、試験片表面(自由表面)のPP部で発生する微視き裂(もしくは

は微視的せん断降伏)に起因し、表面から少し内部に入った領域で膨張応力(負の静水圧応力)が作用する。これは、内部の剛性の高い木粉間においてPPの変形が拘束され、x-y方向にポアソン効果が働くからである。この作用によってボイドが発生し、クレーズとなる。繰返し負荷にともない、クレーズ先端では同様なPPへの変形拘束によりボイドが形成されクレーズが進展する(Fig. 8(b))。後方では白化の要因となるフィブリルが形成されていくので、巨視的な空隙を形成することはない(Fig. 8(c))。ボイドは木粉を巻き込んで形成されることもあるが、フィブリルはPPにおいてのみ生じる。したがって、フィブリルで木粉が覆い隠されることもあり、巨視的な破面様相は白化したように観察されたと考えられる。Fig. 9に白化した損傷部のSEMによる観察結果を示す。矢印で示すように、この破面には幾らかの木粉を確認できるものの、多くはPPから発生したフィブリルから構成されており、上述の巨視的な白化の原因を裏付けている。

クレーズ(フィブリル部)はPPのみから構成されており、非損傷部に比し耐荷能は小さい。よって、クレーズが負荷方向と垂直方向にある程度まで進展すると、上述のように、試験片は繰返し負荷に耐えることができなくなり最終破壊(不安定破壊)に至る。Fig. 3から判断できるように、繰返し応力に相当するひずみは3%にも満たない低いレベルにある。つまり、クレーズが負荷方向に大きく成長することはなく、フィブリルが上下面を架橋できる範囲にあったため、損傷部はき裂様相を呈しなかったと考えられる。



(a) Fatigue fracture surface (30-2WPC specimen)
(Maximum stress to strength: 50%)



(b) Tensile fracture surface (30-2WPC specimen)

Fig. 7 Fatigue and tensile fracture surfaces by laser microscope.

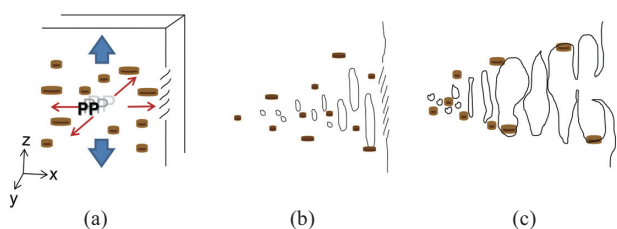


Fig. 8 Schematic of crazing process (a) occurrence of expansion stress after matrix shear damage (b) occurrence of voids (c) fibrillation.

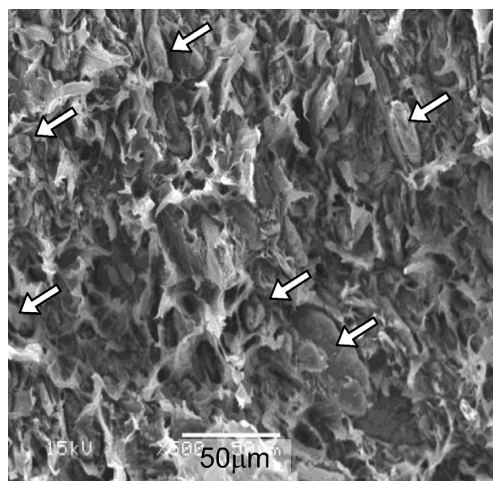


Fig. 9 Fatigue fracture surface at the crazing formation area of 50-2WPC specimen (Arrows show wood flours).

4. 結 言

ウッドプラスチック複合材料(WPC)の疲労特性を調査するために、木粉/PP マスターバッチを用い、木粉含有率を30wt%および50wt%に調製したWPC試験片を射出成形

によって作製した。また、木粉の分散性を制御するために、押出し機での混練を1回または2回行なったものを準備した。このように作製したWPC試験片の引張および疲労試験を実施し、その強度・寿命を評価するとともに、疲労試験中の損傷観察ならびに断面・破面観察を通してこの材料の疲労損傷・破壊機構について考察を加えた。得られた結論を要約すると、以下のとおりである。

- 1) 単軸押出機の混練温度およびスクリー回転速度を変化させて混練条件を検討し、引張試験により最適条件を検討した。その結果、本研究の範囲内で最適混練温度190℃、最適スクリー回転速度20rpmが得られた。
- 2) 単軸押出機での混練が1回であれば、マスターバッチの塊まりが残存し、引張強度および疲労寿命を低下させる。一方、ヤング率は混練回数いかにかわらず、その値はほぼ同等である。
- 3) WPCはマトリックス材であるPPに比し、その疲労寿命が大きく改善される。繰返し最大応力30MPaにおいて、木粉含有率30wt%であれば寿命値はほぼ2桁向上し、50wt%であればさらに2桁の向上がみられた。
- 4) WPCの疲労損傷が白化によって現われることを新たに見出した。これは、巨視的にはWPC試験片内の表面から発生し、その後内部に進展して最終破壊をもたらす。疲労損傷はPPから生じるクレーズが原因であると推察されるが、金属材料の疲労き裂と同様な損傷因子である。

文 献

1. K. Goda, M. S. Sreekala, S. K. Malhotra, K. Joseph, S. Thomas, "Polymer Composite : Biocomposites", Vol. 3 (S. Thomas et al., Ed.), Wiley-VCH, p.1 (2014).
2. K. Umemura, *Wood Industry*, **67**, 504 (2012).
3. M. Kiguchi, Y. Kataoka, H. Matsunaga, I. Momohara, S. Kawamoto, Y. Ohtomo, *Wood Preservation*, **36**, 52 (2010).
4. H. Ito, H. Hattori, T. Okamoto, M. Takatani, *Journal of Wood Chemistry and Technology*, **30**, 360 (2011).
5. H. Ito, *Journal of the Japan Society of Polymer Processing*, **24**, 686, (2012) pp.686-691.
6. S. Suzuki, et al., Agriculture, forestry and fisheries industry and food industry science and technology research promotion business (Practical technology development stage), *Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council*, 23045 (2011-2013).
7. M. M. Sain, J. Balatinez, S. Law, *Journal of Applied Polymer Science*, **77**, 260 (2000).
8. R. Makise, *Plastic Age*, **60**, 95 (2014).
9. J. F. Mandell, "Fatigue of composite materials", Vol. 4 (K. L. Reifsnider Ed.), Elsevier, p. 231 (1990).
10. I. Narisawa, "Koubunshi zairyuu no subete" S&T Publisher, p.371 (2012).
11. J. L. Thomason, M. A. Vlug, *Composites : Part A*, **27A**, 477 (1996).
12. J. L. Thomason, M. A. Vlug, G. Schipper, H. G. L. T. Krikor, *Composites : Part A*, **27A**, 1075 (1996).
13. Z. Nakai, et al. "Zairyuu kyoudo gaku", The Society of Materials Science, Japan, p. 88 (2005).
14. E. Yuasa, "Kikai zairyuu no kiso", Nisshin Publisher, p. 1 (2000).
15. S. M. Zebarjad, *Materials and Design*, **24**, 531 (2003).
16. p. 129 in Reference [10].