

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2006-328138

(P2006-328138A)

(43) 公開日 平成18年12月7日(2006.12.7)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8J 5/04 (2006.01)	CO8J 5/04 CFD	4F072
CO8L 67/04 (2006.01)	CO8L 67/04	4J002
CO8L 97/02 (2006.01)	CO8L 97/02 ZBP	4J200
CO8L 101/16 (2006.01)	CO8L 101/16	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2005-150752 (P2005-150752)	(71) 出願人	000005832 松下電工株式会社 大阪府門真市大字門真1048番地
(22) 出願日	平成17年5月24日 (2005.5.24)	(74) 代理人	100083806 弁理士 三好 秀和
		(74) 代理人	100108707 弁理士 中村 友之
		(74) 代理人	100095500 弁理士 伊藤 正和
		(72) 発明者	菅原 亮 大阪府門真市大字門真1048番地 松下 電工株式会社内
		Fターム(参考)	4F072 AA02 AB03 AD04 AD37 AK14 AK15 AL01
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 植物繊維樹脂複合成形品の製造方法及び植物繊維樹脂複合成形品

(57) 【要約】

【課題】 使用時の耐熱性及び機械的特性に優れ、さらに環境負荷を軽減した植物繊維樹脂複合成形品及び植物繊維樹脂複合成形品の製造方法を提供する。

【解決手段】 植物から得られるリグノセルロース繊維と結晶性の樹脂組成物とを含む植物繊維樹脂複合組成物を、結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準とした上下30の範囲の温度の金型で成形することを特徴とする。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

植物から得られるリグノセルロース繊維と結晶性の樹脂組成物とを含む植物繊維樹脂複合組成物を、前記結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準とした上下30の範囲の温度の金型で成形することを特徴とする植物繊維樹脂複合成形品の製造方法。

【請求項 2】

前記結晶性の樹脂組成物としてポリ乳酸を用い、前記金型温度を70以上130以下として成形することを特徴とする請求項1記載の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法。

【請求項 3】

前記ポリ乳酸として、融解熱が10J/g以上のポリ乳酸を用いることを特徴とする請求項2記載の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法。 10

【請求項 4】

前記植物繊維樹脂複合組成物中に、前記リグノセルロース繊維を重量比率で2wt%以上80wt%以下含むことを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項に記載の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法。

【請求項 5】

請求項1乃至4のいずれか1項に記載の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法を用いて製造された植物繊維樹脂複合成形品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本発明は、工業製品などの部材として適用される植物繊維樹脂複合成形品の製造方法及び植物繊維樹脂複合成形品に関する。

【背景技術】

【0002】

プラスチックは、軽量、高強度であり、錆や腐食に強く、着色が自由、電気絶縁性に優れ、成形が容易であり、さらに大量生産が可能であるという利点を有することから、自動車、航空機、家庭用品の材料として多用されている。プラスチックの使用量が増加するに伴い廃プラスチック量も急増しており、廃プラスチックを地中に埋め、又は焼却する等して処分をしていた。しかし、埋め立て用地の確保が必要となるだけでなく、廃プラスチックの焼却により有害ガス（例えば、CO₂）や悪臭等が発生し、環境を汚染してしまうという問題を有していた。 30

【0003】

そこで、近年、環境負荷の軽減を図るために、従来の石油を原料としたプラスチックに替えて、使用後に自然界の微生物によって分解される生分解性プラスチックの開発が急速に進められている。植物を原料とした生分解性プラスチックの代表例としてポリ乳酸が挙げられる。ポリ乳酸は、植物由来成分の分解物の一種である乳酸を重合して得られ、大量生産、低コスト化が可能であり、さらに、結晶性を有し、他の植物由来の樹脂と比較して物性が優れていること等から、有用性が高いとされている。

【0004】

40

しかし、ポリ乳酸の結晶化する速度は遅く、一般的な射出成形、押出成形を用いて成形すると、結晶化が徐々にしか進まず、また、熱処理（アニール処理）などの後処理を行って結晶化する速度を速めたとしても、得られるポリ乳酸の耐熱性及び機械的特性は、既存の熱可塑性樹脂に比べて低くなっていた。

【0005】

そこで、原材料中に無機繊維（例えば、ガラス繊維）を複合化させて、耐熱性や機械的特性を向上させた樹脂も開発されている。しかし、無機繊維は不燃物であるため、樹脂の廃棄時に焼却処理すると燃焼効率が低下し、燃焼炉の損傷、さらには焼却後の残さが増加するなどの新たな問題も生じていた。

【0006】

50

そこで、ガラス繊維などの無機繊維に替えて植物繊維を強化材とした複合材料が開発されている（特許文献1及び特許文献2参照）。

【特許文献1】特開平5-92527号公報

【特許文献2】特開2002-69208号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながら、前述した植物繊維を強化材として用いた複合材料は、廃棄時に容易に焼却でき、環境負荷を軽減できるという利点を有するが、従来の熱硬化性樹脂や熱可塑性樹脂に比べると、耐熱性、機械的強度に劣り、使用時の特性が低下するという恐れを有していた。

10

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明は、上記課題を解決するためになされたものであり、すなわち、本発明の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法は、植物から得られるリグノセルロース繊維と結晶性の樹脂組成物とを含む植物繊維樹脂複合組成物を、結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準とした上下30の範囲の温度の金型で成形することを特徴とする。

【0009】

また、本発明の植物繊維樹脂複合成形品は、上記植物繊維樹脂複合成形品の製造方法を用いて製造されたことを要旨とする。

20

【発明の効果】

【0010】

本発明の植物繊維樹脂複合成形品の製造方法によれば、使用時の耐熱性及び機械的特性に優れ、環境負荷を軽減した植物繊維樹脂複合成形品を得ることができる。

【0011】

本発明の植物繊維樹脂複合成形品によれば、使用時の耐熱性及び機械的特性を損なうことなく、環境負荷を軽減することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

以下、本発明の実施の形態に係る植物繊維樹脂複合成形品の製造方法及び植物繊維樹脂複合成形品を説明する。

30

【0013】

本発明の実施の形態に係る植物繊維樹脂複合成形品の製造方法は、植物から得られるリグノセルロース繊維と、結晶性の樹脂組成物とを含む植物繊維樹脂複合組成物を、結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準とした上下30の範囲の金型温度として成形するものである。

【0014】

ここで、結晶性の樹脂組成物中にリグノセルロース繊維を含めて成形している。この理由として、リグノセルロース繊維が、強化材として機能して成形品の耐熱性、機械的特性を高めることができるからである。また、リグノセルロース繊維は、その表面に存在する微細構造により、樹脂組成物の結晶核剤として作用し、樹脂組成物の結晶化を促進するからである。逆に、リグノセルロース繊維を含めずに結晶性の樹脂組成物を単独で成形した場合には、成形品の耐熱性、機械的特性が劣るだけでなく、樹脂組成物の結晶化速度が遅いため、結晶性の低い成形品しか得ることができない。実際、結晶性の樹脂組成物として、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート、シンジオタクチックポリプロピレンなどを用いることができるが、ポリエチレンは結晶化温度が高く、溶融した樹脂組成物を冷却すると、融点付近で凝固しさらに結晶化する。また、ポリエチレンテレフタレート、シンジオタクチックポリプロピレンなどは、結晶化速度が遅いため、冷却速度を遅くすると融点以下の結晶化温度で結晶化するが、樹脂を急速に冷却した場合には、結晶化せず、ガラス転移温度以下で凝固して非晶（ガラス）状態となるため、成形加工が難しくなる。

40

50

【0015】

また、上記製造方法では、金型温度を結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準とした上下30の範囲内としている。この理由は、結晶性の樹脂組成物の結晶化温度を基準として下に30を超えると、樹脂が急速に冷却されてしまい、樹脂を結晶化できないからであり、逆に、上に30を超えると金型内で樹脂組成物が十分に凝固し難くなり、金型から取り出し難くなるからである。このため、上記範囲の温度で成形し、除々に冷却することにより、樹脂の結晶化を促進することができる。なお、結晶性の樹脂組成物を単独で用いた場合、本範囲の温度で成形すると、凝固した樹脂組成物は、柔らかく、金型から取り出すことが難しく、さらに取り出し時に変形が生じる恐れもある。これに対して、上記製造方法では、樹脂組成物中に植物から得られるリグノセルロースを含有させたため、樹脂の強度が向上し、金型から容易に取り出すことができ、さらに取り出し時の変形をも防ぐことができる。

10

【0016】

従って、上記製造方法により成形された植物繊維樹脂複合成形品は、その耐熱性が高く、高温時の機械的特性が向上する。

【0017】

ここで、リグノセルロース繊維としては、セルロースとリグニンを主成分とした材料が使用可能であり、例えば、麻類植物（例えば、ケナフ、亜麻、ラミー、大麻、ジュートなど）の韌皮から採取される繊維、麻類植物（例えば、マニラ麻、サイザル麻など）の茎又は葉の筋から採取される繊維、あるいは木材繊維を挙げることができる。これらの繊維は、セルロースとリグニンとを主成分として、その他にヘミセルロースやペクチン等の成分が含まれる。例示した繊維の中でも麻類植物の繊維を用いることが好ましい。麻類植物の繊維は、結晶性が高く、強度の高いセルロースに含有される比率が60%以上であり、木材繊維中に含有されるセルロースの比率（30%～50%）に比べて高いからである。

20

【0018】

また、前述した植物は、レッティングと呼ばれる浸水処理又は物理的な解繊処理によって、長さ20mm以上、直径30～200 μ mの繊維を容易に得ることができる。そして、これらの繊維は、長さ1～20mm以上、直径10～30 μ mの単繊維細胞から構成されて、パルプ化等の化学処理によって単繊維化することができる。また、前述した処理から得られる繊維以外にも、繊維状、紡糸処理によって糸状とし、さらにリグノセルロース繊維を加工処理して、シート状、不織布、織布として用いることもできる。

30

【0019】

また、リグノセルロース繊維は可燃性であることから、廃棄する際の焼却時に発生する残さ量が減少し、廃棄処理が容易となる。また、廃棄後のリサイクルを考慮すると、リグノセルロース繊維は、燃焼により熱量を発生し、高効率で熱回収できるため、サーマルリサイクルが容易となる。さらに、リグノセルロース繊維は、無機繊維（ガラス繊維など）と異なり有機物であるため、加水分解処理、微生物処理、発酵処理などの処理により、エタノール、水素にまで分解されるため、ケミカルリサイクルをすることもできる。

【0020】

樹脂組成物としては、結晶性を有するものであれば良く、特に限定されないが、結晶化する速度が遅い樹脂組成物を用いることが好ましい。このような樹脂組成物としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、シンジオタクチックポリプロピレン、ポリ乳酸を挙げることができ、特に、ポリ乳酸を用いることが好ましい。

40

【0021】

ポリ乳酸は、トウモロコシやサツマイモなどから得られるデンプン、あるいは木本植物などから得られるセルロースを原料として、乳酸発酵して得られる乳酸を脱水縮合して得ることができる。ポリ乳酸にリグノセルロース繊維を含有して植物繊維樹脂複組成物成形品とする場合には、ポリ乳酸の結晶化温度が約100であるため、金型温度を70～130の範囲として成形することが好ましい。さらに結晶化速度を速くするために、金型温度を85～115の範囲とすることが好ましい。

50

【0022】

また、ポリ乳酸は、L-体、D-体の光学異性体を有しており、L-体とD-体の混合比率に応じてポリ乳酸の結晶性は変化する。樹脂組成物としては、結晶性が高い樹脂組成物を用いることが好ましい。樹脂の結晶性の指標として、樹脂の融解熱を挙げることができるが、樹脂組成物としてポリ乳酸を用いた場合、リグノセルロース繊維を含有させる前の段階で、融解熱が10 J/g以上のポリ乳酸を用いることが好ましい。ポリ乳酸の融解熱が10 J/g未満になると、リグノセルロース繊維が結晶化剤として作用するものの、その後結晶化が促進されず、得られる植物繊維樹脂複合成形品の結晶性が低下し、本発明の効果が相対的に低くなるからである。なお、融解熱は、結晶化した樹脂組成物を加熱しながら、熱分析(DSC)して測定することができる。また、結晶化温度は、溶融した樹脂組成物を冷却しながら、熱分析(DSC)して測定することができる。

10

【0023】

また、上記植物繊維樹脂複合組成物中のリグノセルロース繊維の重量比率は、特に限定されるものではないが、2 wt% ~ 80 wt%とすることが好ましい。リグノセルロース繊維の重量比率が2 wt%未満になると、強化繊維としての効果が低下し、成形金型からの取り出し時に変形し易くなるからであり、逆に、80 wt%を超えると、リグノセルロース繊維と樹脂組成物との結合力が弱まり、得られる成形品の耐熱性、機械的特性が低下するからである。なお、リグノセルロース繊維は、ポリ乳酸の融点以下の温度で軟化することが無いため、得られる植物繊維樹脂複合成形品の耐熱性、機械的特性は向上する。

【0024】

次に、結晶性の樹脂組成物中にリグノセルロース繊維を含める方法としては、リグノセルロース繊維を溶融、あるいはエマルジョン化等により液状とした樹脂組成物に、リグノセルロース繊維を分散又は含浸する方法を用いることができる。また、リグノセルロース繊維と共に、繊維状あるいはペレット状とした樹脂組成物を混抄する方法を用いることができる。

20

【0025】

例えば、樹脂組成物を溶融した後、リグノセルロース繊維と混練する方法を用いると、樹脂組成物とリグノセルロース繊維とが均一に分散されて、均一な成形体とすることができる。この場合には、一般的な混練機、押出機(例えば、一軸押出機、二軸押出機、ロール混練機など)を用いることができる。

30

【0026】

成形方法としては、金型を用いて、溶融した樹脂組成物中にリグノセルロース繊維を含めた植物繊維樹脂複合組成物を成形する方法であれば、特に限定されず、上述した押出成形、射出成形、プレス成形、真空成形、圧空成形、ブロー成形、発砲成形などの方法を用いることができる。

【0027】

成形条件は、射出成形を用いた場合、スクリュ部温度が樹脂の融点から ± 20 以内とすることが好ましい。スクリュ部温度が低くなりすぎると、ショートが発生する等して成形が不安定となり過負荷に陥りやすく、また、成形温度が高くなりすぎると熱分解が起こり、得られる成形体の強度が低下し、着色等の問題が生じるからである。

40

【0028】

さらに、植物繊維樹脂複合組成物には、リグノセルロース繊維及び結晶性の樹脂組成物の他にも、他の種類の樹脂組成物、あるいは結晶化を促進する結晶核剤などの添加剤、充填剤を含めることもできる。

【0029】

以下、さらに具体的に実施例により説明する。

【0030】

実施例 1

ケナフ茎部の外皮部分となる韌皮から得られたケナフ繊維束(平均径 $82 \mu\text{m}$)を用いて作成した繊維マットに、ポリ乳酸(融解熱 6J/g 、融点 170 、結晶化温度 105 (PL-1000,

50

ミヨシ油脂(株)社製)のエマルジョンを含浸した。このとき、乾燥した時の重量比率が、ケナフ繊維束マット60wt%、ポリ乳酸40wt%となるように絞りによって調整した。ポリ乳酸を含浸した繊維マットを乾燥器により180 で5分間加熱して、その後、すぐに金型温度90、圧力3.5MPaとして120秒間プレス成形した。得られた成形体を切削してASTM規格測定用サンプルを作製した。

【0031】

実施例2

ケナフ茎部の外皮部分となる韌皮から得られたケナフ繊維束(平均径82 μ m)1wt%と、ポリ乳酸のペレット(融解熱42J/g、融点170、結晶化温度105(レイシアH-100J,三井化学工業(株)社製)98wt%と、添加剤としてタルク(竹原化学(株)社製)1wt%とを、一軸混練押出機により180、5分間混練して、押出しにより樹脂ペレットを作製した。得られた樹脂ペレットをシリンダ温度190、金型温度90、金型で120秒間保持して、射出成形した。その後、得られた成形体からASTM規格測定用サンプルを作製した。

10

【0032】

実施例3

ケナフ茎部の外皮部分となる韌皮から得られたケナフ繊維束(平均径82 μ m)30wt%と、ポリ乳酸のペレット(融解熱42J/g、融点170、結晶化温度105(レイシアH-100J,三井化学工業(株)社製)70wt%とを、一軸混練押出機により180、5分間混練して、押出しにより樹脂ペレットを作製した。得られた樹脂ペレットをシリンダ温度190、金型温度90、金型での保持時間を120秒間として射出成形した。その後、得られた成形体からASTM規格測定用サンプルを作製した。

20

【0033】

比較例1

比較例1では、実施例1と同様の方法を用いて調整したポリ乳酸を含浸した繊維マット(ケナフ繊維束マット60wt%、ポリ乳酸40wt%)を乾燥器により180で5分間加熱して、その後、すぐに金型温度30、圧力3.5MPaとして120秒間プレス成形した。得られた成形体を切削してASTM規格測定用サンプルを作製した。

【0034】

比較例2

比較例2では、ケナフ繊維を加えずに、ポリ乳酸のペレット(融解熱42J/g、融点170、結晶化温度105(レイシアH-100J,三井化学工業(株)社製))を用いて、シリンダ温度190、金型温度90、金型での保持時間を120秒として射出成形をした。しかし、材料が柔らかすぎるため、金型から材料を取り出すことができなかった。その後、金型での保持時間を240秒として再び射出成形をしたが、依然として材料が柔らかく、金型から材料を取り出すことができなかった。

30

【0035】

比較例3

比較例3では、実施例2と同様の方法を用いて調整した樹脂ペレット(ケナフ繊維束1wt%、ポリ乳酸のペレット98wt%、タルク1wt%)を用いて、シリンダ温度190、金型温度30、金型での保持時間を120秒として射出成形をした。得られた成形体を切削してASTM規格測定用サンプルを作製した。

40

【0036】

比較例4

比較例4では、実施例3と同様の方法を用いて調整した樹脂ペレット(ケナフ繊維束30wt%、ポリ乳酸のペレット70wt%)を用いて、シリンダ温度190、金型温度30、金型での保持時間を120秒として射出成形をした。得られた成形体を切削してASTM規格測定用サンプルを作製した。

【0037】

上述した実施例1~実施例3、比較例1~比較例4の各サンプルをそのままの状態として、ロックウェル硬さ(ASTM D685)及び熱変形温度(ASTM D648,荷重0.45MPa)を測定した。

50

表 1 に、その結果を示す。

【表 1】

	原材料			成形条件		成型品の物性		
	含有比率[wt%]		ポリ乳酸 融解熱[J/g]	ポリ乳酸 結晶化温度[°C]	方法	金型温度 [°C]	ロッキング硬度 (MSケール)	熱変形温度 [°C]
	ポリ乳酸	ケナフ繊維						
実施例 1	40	60	6	105	プレス成形	90	測定せず	60
実施例 2	98	1	42	105	射出成形	90	81	80
実施例 3	70	30	42	105	射出成形	90	92	152
比較例 1	40	60	6	105	プレス成形	30	測定せず	51
比較例 2	100	-	42	105	射出成形	90	成形不能	
比較例 3	98	1	42	105	射出成形	30	59	54
比較例 4	70	30	42	105	射出成形	30	78	57

10

20

30

40

50

【0038】

表 1 に示すように、実施例 1 と比較例 1 は、金型温度以外は同じ条件とし、実施例 1 では金型温度をポリ乳酸の結晶化温度（105）の上下 30 の範囲内としたため、範囲外とした比較例 1 に比べて、熱変形温度が高くなっていることが判明した。また、実施例 2 と比較例 3 は、金型温度以外は同じ条件として、実施例 2 の金型温度は 90、比較例 3 の金型温度は 30 としたため、比較例 3 に比べて実施例 3 の熱変形温度が若干高くなっていることが判明した。さらに、実施例 3 と比較例 4 は、金型温度以外は同じ条件とし、実施例 3 ではポリ乳酸の結晶化温度（105）の上下 30 の範囲内とし、さらにケナフ繊維の割合を 30 wt% 以上としたため、金型温度を本発明の範囲外とした比較例 3 に

比べて、熱変形温度が大幅に向上し、さらにロックウェル硬度も高く、耐熱性及び高温時の機械強度が向上したことが判明した。逆に、ケナフ繊維を含有しない比較例 2 では、材料が柔らかすぎて、金型から材料を取り出すことができなかった。この事実から、ケナフ繊維が、強化材と結晶化剤としての両機能を果たしていることが実証された。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J002 AH00X BB12W CF06W CF18W FA04X FD01X
4J200 AA06 AA14 BA07 BA09 BA14 BA22 EA04 EA07