

平成30年度環境省委託業務

平成30年度 セルロースナノファイバーリサイクル
の性能評価等事業委託業務

樹脂製品機能性添加剤用途をターゲットとした
セルロースナノファイバー複合材廃材のリサイクルモデル評価

平成31年3月

事業代表者

国立大学法人 静岡大学

(先端バイオマス利用コンソーシアム)

共同実施者

化薬アクゾ株式会社

株式会社エコフィール

トクラス株式会社

目次

| | |
|-----------------------------------------------------|-----|
| 要旨 | 3 |
| 1. 業務の概要 | 7 |
| 1.1 業務テーマ | 7 |
| 1.2 業務の目的 | 7 |
| 1.3 業務の期間 | 7 |
| 1.4 本業務に至った背景 | 8 |
| 1.5 業務の内容 | 9 |
| 1.6 事業実施体制 | 11 |
| 1.7 事業化・普及の見込み | 13 |
| 2. 業務成果報告 | 15 |
| 2.1 マテリアルリサイクル技術の実証 | 15 |
| 2.1.1 原材料（CNF 複合材廃材）の検証 | 15 |
| 2.1.1.1 CNF 複合材廃材モデルの検討 | 15 |
| 2.1.1.2 熱劣化特性 | 19 |
| 2.1.2 ウッドプラスチック (WPC) 向けリサイクル技術の開発 | 21 |
| 2.1.2.1 リアクティブシステムによる酸変性技術 を用いた WPC 原料の製造 | 21 |
| 2.1.2.2 量産設備によるリアクティブ処理木粉 を用いた WPC 原料の試作 | 38 |
| 2.1.2.3 リアクティブシステムで作成した表面処理木粉 を用いて作成した WPC 製品の評価 | 48 |
| 2.1.3 フィラー充填プラスチック向けリサイクル技術の開発 | 58 |
| 2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証 | 58 |
| 2.1.3.2 フィラー充填プラスチックにおける効果の検証 | 67 |
| 2.2 再生利用の仕組み検証 | 105 |
| 2.2.1 家電用途における CNF 複合材廃材の回収についての調査 | 105 |
| 2.2.1.1 家電プラスチック廃材の現状と課題 | 105 |
| 2.2.1.2 家電リサイクル法にもとづく 家電プラスチックの再商品化状況 | 110 |

要旨（日本語）

本業務では、近い将来、家電、建材、包装容器、自動車等の用途に普及が予想されるセルロースナノファイバー（以下 CNF と略す）複合材を対象とし、その普及に伴い発生する製造時の端材、製品寿命により廃棄される CNF 複合材廃材を活用した CO2 削減効果の実証に取り組んだ。

本業務の要点は、「①アップグレード型のリサイクル用途（汎用リサイクル樹脂の 5～10 倍の付加価値）」、「②CNF 複合材廃材の特性を活用した利用法（ダメージを受けた樹脂特性と CNF が含まれることによる界面補強効果）」、「③拡大する廃材発生量に適合する用途展開（需要と供給のバランスが見合う用途へ展開）」および「④既存の産業（設備）、仕組みを活用して実現できる手法」の 4 点である。

この内、本年度は（1）マテリアルリサイクル技術の検証では、CNF 複合材廃材モデルを作製し、これを原料として用い、リアクティブシステムをウッドプラスチック（以下「WPC」という。）製造に適用した。得られた表面処理木粉を用い、コンパウンドおよびウッドデッキの量産化試作により、LCA に供するデータを取得するとともに、試作品の性能評価を行った。また、炭酸カルシウムおよびタルクをフィラーとした場合に表面処理剤として適した酸変性処理条件をラボ設備にて確立した。酸変性 CNF 複合材廃材モデルを用い、炭酸カルシウムおよびタルク複合系における性能評価を行った。（2）再生利用の仕組み検証では、家電プラスチック廃材リサイクルについての現状を調査し、CNF 複合材廃材を想定した場合の回収にかかわる課題の抽出と対応案を提示した。また、想定される廃棄部品サイズと処理費用に関する経済性の調査を行った。さらに、CNF 複合材廃材を WPC の製造原料として想定した場合のコスト試算を行った。（3）社会実装の検証では、WPC 製造を想定した量産に移行できる設備にリアクティブシステムを適用した場合に得られる製品の品質に関する検証を行うとともに、製造工程数削減による CO2 排出量削減効果について検証を行った。

（1）マテリアルリサイクル技術の実証

- ・ポリプロピレン樹脂をベースとした各種 CNF 複合材廃材のモデルを作製し、その機械特性、分散性等の品質性能を評価した。
- ・CNF 複合材廃材モデルを原料とし、WPC 量産を想定した装置にてリアクティブシステムによる表面処理木粉を試作し、それを用いたコンパウンドおよびウッドデッキ製品の性能評価を行った。
- ・無機フィラー界面における CNF 効果を想定した補強効果のシミュレーションの検証を行った。
- ・CNF 複合材廃材モデルを原料とし、無機フィラーの表面処理剤として適した酸変性処理条件をラボ設備で確立した。
- ・ラボ設備で作製した酸変性 CNF 複合材廃材モデルを用い、無機フィラー充填組成での性能評価を行った。

(2) 再生利用の仕組み検証

- ・家電プラスチック廃材の回収について現状を調査した。
- ・現状の家電プラスチック廃材が CNF 複合材廃材に置き換わった場合の課題点およびその対応案を提示した。
- ・家電プラスチック廃材のリサイクル状況について現状を調査した。
- ・CNF 複合材廃材の想定される廃棄部品サイズと処理費用を算出した。
- ・家電用途における CNF 複合材廃材の用途調査を実施した。WPC 用途におけるリアクティブシステム処理木粉 (WPC-MB) のコスト試算を行い、目標コストを達成するためのモデルを提案した。

(3) 社会実装の検証

- ・リアクティブシステムを導入したウッドデッキ製品の製造工程における CO2 排出量削減効果について検証した。

Summary

Composite materials using cellulose nanofiber (CNF) are estimated to become popular in the field of electronics, construction, packaging material and automobile parts in the near future. In this task, reduction of CO₂ emission by the recycling of CNF composite wastes was demonstrated. Issues to be studied are described as follows;

1. Add the value of recycled material to 5 - 10 times higher than commodity recycled polymer
2. Reproduce new material by using the interface reinforcement due to CNF
3. Develop the application to match the expanding amount of wastes
4. Recycle procedure must be achieved with the conventional facilities

In this year, (1) model material of CNF composite wastes was used for a 'reactive' system to produce surface treated wood flours. The surface treated wood flours were used to produce compound and wood plastic composite (WPC) deck under mass production scale. Physical and mechanical tests were performed for the final products. Life cycle assessment (LCA) was also investigated. An optimal condition of reactive process for the surface treatment of talk and calcium carbonate filler was established under laboratory scale. Physical and mechanical properties of talk and calcium carbonate filler-plastic composite made from wastes of CNF composites were evaluated. Also, (2) existing state of recycle for polymer material derived from consumer electronics are investigated. Potential issues and their measures concerning the collection of CNF composite wastes were proposed. As the economical assessment, relationship between the size of wastes and recycling costs were investigated. Furthermore, material and production costs when CNF composite wastes were used as a raw material of WPC were estimated. Finally, (3) quality of the final products produced under the condition of conventional WPC mass production line combined with proposed reactive system was evaluated. Since this reactive system can simplify the production process of WPC, reduction of CO₂ emission by installing the reactive system into WPC production is investigated.

(1) Verification of the proposal material recycling

- Model materials of polypropylene based CNF composite wastes were produced. Their Mechanical properties and dispersion status of CNF were investigated.
- Surface treated wood flours were produced from the model materials of CNF composite wastes by using reactive system in consideration of the mass production line of WPC. Quality evaluation of compound and WPC deck material made of surface treated wood flours were investigated.
- Influence of CNF on the boundary of inorganic filler in the composite was investigated by the computer based simulation.
- An optimal condition of reactive process of CNF composite wastes for the surface treatment of talk and calcium carbonate filler was established under laboratory scale.
- Model material of inorganic filler composite made by CNF composite wastes were produced and its mechanical and physical properties were evaluated.

(2) Verification of recycling system

- Recent status of collection for polymer wastes derived from consumer electronics are investigated.
- Potential issues and their measures were proposed under the situation if conventional polymer wastes derived from consumer electronics were replaced with CNF composites.
- Recent status of recycling for polymer material derived from consumer electronics are investigated.
- Potential size of CNF composite wastes and their recycling costs were estimated.
- Potential application of CNF composite wastes for consumer electronics was investigated. Manufacturing cost of surface treated wood flour produced by reactive system was estimated. Based on the cost estimation, a production model to match the target cost was proposed.

(3) Verification for the practical realization

- Reduction of CO₂ emission by installing the reactive system into WPC production is investigated.

1. 業務の概要

1.1 業務テーマ

樹脂製品機能性添加剤用途をターゲットとしたセルロースナノファイバー複合材廃材のリサイクルモデル評価

1.2 業務の目的

環境省では、植物由来の素材で鋼鉄の5分の1の軽さで5倍の強度等の特性を有するセルロースナノファイバー（以下「CNF」という。）に着目し、様々な製品等の基盤となる樹脂材料にCNFで補強したCNF活用材料（複合樹脂等）を使用することで、CO₂の削減を図ることを目的とした事業を推進している。

本事業では、近い将来、家電、建材、包装容器、自動車等の用途に普及が予想されるCNF複合材を対象とし、その普及に伴い発生する製造時の端材、製品寿命により廃棄されるCNF複合材廃材を活用したCO₂削減効果の実証に取り組む。このCNF複合材廃材の発生量は緩やかなS字カーブで増加するものと想定しており、その発生量に応じた「リサイクル用途・技術」を提案する。新たに考案した簡略式製法により、CNF複合材廃材を新たな化学的機能の付与された各種フィラー充填マスターバッチ用の酸変性樹脂へと変換する技術を確立するとともに、CO₂削減効果を検証する。また、発生する廃棄物の回収・分別方法といった「仕組み」の観点からも、事業の実用性、経済性等を検証し、社会実装に向けて取り組む。

本業務の要点は、「①アップグレード型のリサイクル用途（汎用リサイクル樹脂の5～10倍の付加価値）」、「②CNF複合材廃材の特性を活用した利用法（ダメージを受けた樹脂特性とCNFが含まれることによる界面補強効果）」、「③拡大する廃材発生量に適合する用途展開（需要と供給のバランスが見合う用途へ展開）」および「④既存の産業（設備）、仕組みを活用して実現できる手法」の4点である。

また、性能目標としては、CNF効果を利用して、既存の酸変性樹脂同等以上の性能向上とコスト削減、さらにCO₂削減目標としては、CNF複合材廃材を直接酸変性樹脂化するリアクティブシステム^{※2}を行い、従来の酸変性樹脂製造時に必要な製造エネルギーを削減することで、20%以上のCO₂削減を図ることとする。

※1 マスターバッチ（MB）：プラスチックに高濃度のフィラーや着色剤を分散させ、プラスチックの成形時に規定の倍率で希釈する成形用材料。

※2 リアクティブシステム：一般に、フィラー充填マスターバッチは、フィラーに樹脂および酸変性樹脂を溶融混練して製造されている。本方法ではフィラー、CNF複合材廃材、無水マレイン酸、有機過酸化物を一括混練し、CNF複合材廃材を直接酸変性処理すると同時にフィラー充填マスターバッチを得る方法である。

1.3 業務の期間

平成30年4月1日から平成31年3月31日

1.4 本業務に至った背景

近い将来、CNF を利用した製品は、家電、建材、包装容器、自動車等の用途への普及、拡大が見込まれる。CNF はカーボンニュートラルの天然資源であり、「軽量」、「低熱膨張率（寸法安定性）」、「ネットワーク構造（補強性）」等の優れた機能を持つ新素材である。CNF という新素材の社会実装期を迎えるにあたり、CNF の活用から再生利用までを CO2 削減という観点から構築することに重要な意義を感じている。

製造時の端材、製品寿命により廃棄される CNF 複合材廃材の発生量は緩やかな S 字カーブで増加するものと想定している。今後、CNF の利用が増加すると、現在サーマルリサイクルが主な処理方法となっている雑多、低品位のプラスチック廃材にも CNF 複合材廃材が含まれるようになるため、再生材製造事業者は、廃材中に含まれる CNF の特性を活かした再生材の市場を新たに構築し、マテリアルリサイクルを推進できる可能性がある。

一方、CNF 複合材廃材の再生材の利用者は、「品質の安定性」のみならず「供給の安定性」も重視する。そのため再生材製造事業者が生産量に見合った規模の市場を選択しなかった場合、供給量の不足や不安定さを理由に、製品性能と関係なく、開発した再生材が市場に受け入れられない恐れがある。よって、需給バランスを考慮したリサイクル用途の確立と市場形成が必須であると考えた。

本業務を遂行する事業実施体制としては、早期に実用化できることを考え、リサイクル事業を行っている広島リサイクルセンターが親会社であり、容器包装リサイクル樹脂コンパウンドの事業化実績がある「株式会社エコフィール」。酸変性樹脂製品を製造販売しており、酸変性技術および樹脂複合材料関連市場についての幅広い情報を持っている「化薬アクゾ株式会社」。WPC コンパウンドを製造販売しており、WPC および CNF 複合材料の製造および研究開発について事業化実績がある「トクラス株式会社」の 3 社が共同実施機関として参画した。また、代表機関である「先端バイオマス利用コンソーシアム（静岡大学）」は、これまで CNF を利用した各種製品の開発への実績や、産学官を含めた広いネットワークを利用し事業を遂行することが可能である。

1.5 業務の内容

(1) マテリアルリサイクル技術の実証

ポリプロピレン樹脂をベースとした CNF 複合材廃材を用いて、融点が 160℃以下となる低分子量化酸変性条件を確立する。成果目標はウッドプラスチック用途において、曲げ強度 20%以上、耐水性（含水量低減）10%向上、フィラー充填プラスチック用途において、ラボレベルにて従来未処理品に対し、曲げ強度 15%、衝撃強度 10%向上を実現させることのできる酸変性樹脂を CNF 複合材廃材から製造することである。本年度は CNF 複合材廃材モデルを用いて検証を行う。そのため、本年度は以下の内容を実施する。

①原材料（CNF 複合材廃材）の検証（トクラス株式会社）

普及が予想される CNF 複合材廃材について、想定されるポリプロピレン樹脂をベースとした各種 CNF 複合材廃材のモデル樹脂を試作し、機械特性、分散性等、品質性能を評価する。

②ウッドプラスチック (WPC) 向けリサイクル技術の開発

ア. リアクティブシステムによる酸変性技術を用いた WPC 原料の製造（静岡大学、化薬アクゾ株式会社）

- ・「(1) ①」で作製した各種 CNF 複合材廃材を原料とし、WPC 用途に適合する表面処理木粉をリアクティブシステムにて量産を想定できる装置で試作すること。
- ・上記試作にて生産コスト（電力、原料）および LCA に供するデータを取得すること。

なお、本項目のうち、表面処理木粉の性状評価については再委託して差し支えない。

*目標性能とは、WPC（相溶化剤無添加のブランク）に対し、曲げ強度 20%、耐水性 10% 向上（吸水量 10%低減）とする。

イ. リアクティブシステムで作成した表面処理木粉を用いた WPC 製品の製造（株式会社エコフィール、トクラス株式会社）

- ・「(1) ②ア」で確立した表面処理木粉を用い、コンパウンドおよびウッドデッキ製品の量産化試作を実施すること。
- ・上記試作にて生産コスト（電力、原料）および LCA に供するデータを取得すること。

ウ. リアクティブシステムで作成した表面処理木粉を用いて作成した WPC 製品の評価（トクラス株式会社）

- ・「(1) ②イ」で試作したコンパウンドおよび WPC 製品の性能評価を行うこと。
 - ・事業終了後、迅速な実用化に移行するため、信頼性評価も実施すること。
- なお、本項目のうち、信頼性評価については再委託して差し支えない。

③ フィラー充填プラスチック向けリサイクル技術の開発

ア. 無機フィラー界面における CNF 効果の検証 (トクラス株式会社)

- ・無機フィラーに対する界面特性の評価から、CNF 効果のメカニズムを検証すること。

なお、本項目のうち、シミュレーションにおける評価については再委託して差し支えない。

イ. 酸変性樹脂化のレシピ検証 (化薬アクゾ株式会社)

- ・CNF 複合材廃材を原料に用い、ラボ設備にて無機フィラー充填プラスチック表面処理剤として適した酸変性樹脂化レシピを確立すること。

なお、本項目のうち、熱特性評価、流動特性評価については再委託して差し支えない。

*ここでの表面処理剤としての適合条件は、MFR 値 100 g /10min とする。

ウ. フィラー充填プラスチックにおける効果の検証 (静岡大学)

- ・「(1) ③イ」で作成したラボ設備試作酸変性樹脂を用いたフィラー充填プラスチックの性能評価を行うこと。

*目標とする性能とは、相溶化剤無添加のブランク材に対し、曲げ強度 15%、衝撃強度 10% の向上とする。

(2) 再生利用の仕組み検証

各種 CNF 複合材廃材の回収から利用において、発生量(回収量)とコストの関係を明らかにする。また、想定される各種 CNF 複合材廃材の分別、処理に係る分析および評価する。そのため、本年度は以下の内容を実施する。

① 家電用途における CNF 複合材廃材の回収についての調査 (株式会社エコフィール)

現状の家電プラスチック廃材の回収状況を調査し、CNF 複合材に置き換わった場合の課題点およびその対応案を構築すること。

なお、現状の廃材状況調査については再委託して差し支えない。

② 家電用途における CNF 複合材廃材のリサイクルに向けた調査 (株式会社エコフィール)

家電プラスチック廃材のリサイクル状況についての現状調査および CNF 複合材廃材をリサイクルする場合の経済性に関する調査をすること。

- ・CNF 複合材想定廃材部品のサイズと処理にかかる費用の検証
- ・人的分別を実施した場合のコストを検証する

なお、現状の廃材状況調査については再委託して差し支えない。

③家電用途における CNF 複合材廃材の用途調査（静岡大学）

既存のリサイクルプラスチックの品質とコストから、CNF 複合材廃材が一般的リサイクルプラスチック用途に展開できる可能性を評価すること。また、「（１）②」より得られた結果をもとに WPC 用途におけるコスト試算を行い、目標コストを達成するためのモデルを提案すること。

- ・「家電等汎用プラスチック用途を想定し、発生する CNF 複合材廃材の SCM モデルから WPC-MB にて 100 円/kg 以下となるモデルを構築すること。」

（３）社会実装の検証（静岡大学）

量産に移行できる設備にて、WPC 用途でのリアクティブシステムを実証する。また、量産設備にて CNF 複合材廃材の酸変性処理の実証および作成された酸変性処理品を用いた複合材料の品質に関する検証を行う。そのため、本年度は以下の内容を実施する。

「（１）②」より得られた製造エネルギー実測値をもとに CO2 排出量に換算する。

*目標値とは、既存生産方式に対し 20%の CO2 削減をいう。

1.6 事業実施体制

静岡大学が事業代表機関とし、株式会社エコフィール、化薬アクゾ株式会社、トクラス株式会社が共同実施機関とした体制で行った。図 1—1 に実施体制図、表 1—1 に本年度実施テーマと担当実施機関を示す。

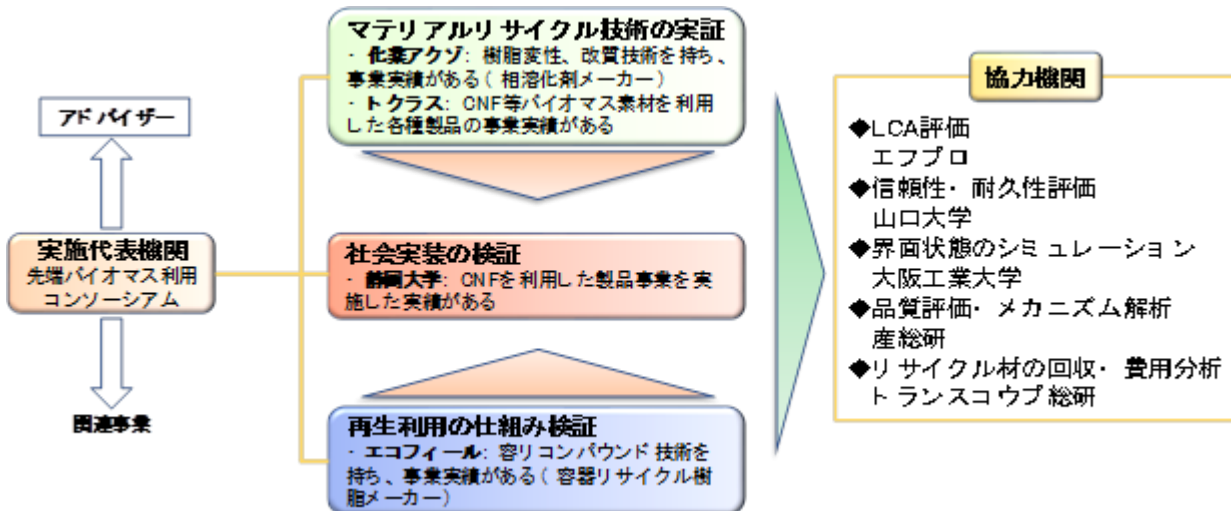


図 1—1 実施体制図

表 1 — 1 本年度実施テーマと担当実施機関

| テーマ | | 担当機関 |
|---------------------------------|--------------------------------------------|----------------------|
| (1) マテリアルリサイクル技術の実証 | | |
| ①CNF 複合廃材の検証 | | トクラス(株) |
| ②ウッドプラスチック (WPC) 向けリサイクル技術の開発 | ア. リアクティブシステムによる酸変性技術を用いた WPC 原料の製造 | 静岡大学 化薬アクゾ(株) |
| | イ. リアクティブシステムで作成した表面処理木粉を用いた WPC 製品の製造 | (株)エコフィール トクラス(株) |
| | ウ. リアクティブシステムで作成した表面処理木粉を用いて作成した WPC 製品の評価 | トクラス(株) |
| ③フィラー充填プラスチック向けリサイクル技術の開発 | ア. 無機フィラー界面における CNF 効果の検証 | トクラス(株) |
| | イ. 酸変性樹脂化のレシピ検証 | 化薬アクゾ(株) |
| | ウ. フィラー充填プラスチックにおける効果の検証 | 静岡大学 |
| (2) 再生利用の仕組み検証 | | |
| ①家電用途における CNF 複合材廃材の回収についての調査 | | (株)エコフィール |
| ②家電用途における CNF 複合材廃材のリサイクルに向けた調査 | | (株)エコフィール |
| ③家電用途における CNF 複合材廃材の用途調査 | | 静岡大学 |
| (3) 社会実装の検証 | | 静岡大学 |

1.7 事業化・普及の見込み

各種熱可塑性プラスチックを利用した CNF 複合材は、自動車、家電、住宅等を中心に普及、拡大するものと思われる。そこで、CNF 複合材廃材の発生量について、まず 2020 年に CNF が家電製品等に採用されはじめるが廃材は製品製造時の端材のみ発生し、2025 年頃から CNF 適用品の廃棄が始まり、2030 年頃に製品寿命到達または買い替えによるリサイクルが本格化し廃材が大きく増加、という S 字カーブを描くと想定した。これに基づき、CNF 複合材廃材の発生量を、2025 年に 2,600t/年、2030 年に 8,500t/年と仮定した。つまり、CNF 複合材廃材の発生量は緩やかな S 字カーブで上昇すると想定した。

他方で、再生材ユーザーは、品質のバラツキが小さく安定的に供給される原料を求めている。表 1—2 に想定されるリスクと本年度の検証事項を示す。そこで、本事業では CNF 複合材廃材発生量の段階的増加と需要のバランスが取れるよう、CNF の普及段階毎に異なる市場へ展開することを提案している。

表 1—2 想定されるリスクと本年度の検証事項

| 想定されるリスク | 検証事項 |
|-------------------------|----------------------------------------------------------|
| CNF複合材廃材の品質の安定性 | 市場展開が予想されるレンジで製造した各種CNF複合材をリサイクル想定品として分別、処理に関する分析、評価を行う。 |
| 供給の安定性 (CNF複合材廃材の調達) | 現行の分別、回収システムをもとに、CNF複合材の廃棄数量に対するリサイクルコストの関係を調査する。 |
| 既設製造装置の利用 | WPC用途でのリアクティブシステムの有効性を小型試作機で検証する。 |

CNF 複合材廃材のマテリアルリサイクル技術として提案しているリアクティブシステムを図 1—2 に示す。従来のプロセスを図 1—3 に示す。本来、フィラー充填プラスチック製造時には、フィラーとの界面接着性向上および分散性向上のため、酸変性樹脂が配合される。本システムでは、フィラーと樹脂との溶融混合と酸変性処理を同時に行うため、本来、外部から購入している酸変性樹脂の製造工程を省略することで CO2 排出量の削減が可能となる。

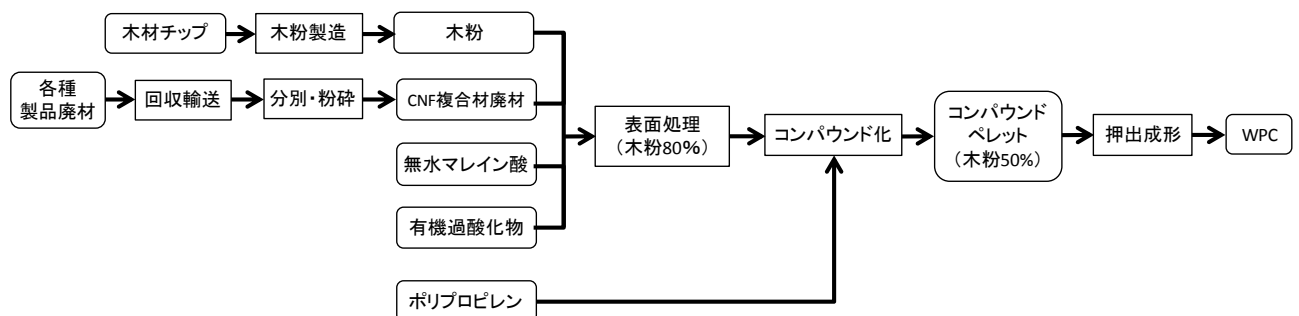


図 1—2 リアクティブシステム

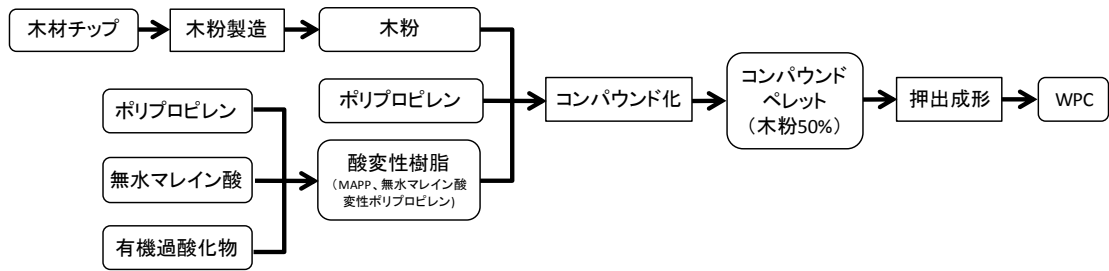


図 1 - 3 従来のプロセス

図 1 - 4 に事業化に向けた流れを示す。CNF 複合材廃材発生量が 5,000t/年程度までの間は、約 4 万 t/年の市場を持つ WPC のメーカーが再生材の主な利用者になると想定している。WPC メーカーは、市場規模が本件に適合するだけでなく、木粉、樹脂、酸変性樹脂等の原材料を自社調達しており、ウッドデッキ、フロア材等の最終製品までの一貫製造を行っていることから、コンパウンド化についての技術レベルが高く、生産に関する技術対応力がある。リアクティブシステム導入により、経済性については酸変性樹脂の購入コストの削減が可能となる。

さらに、CNF を含有しているからこそ発現し得る「補強効果」による機械特性の改善が期待できる。CNF 複合材廃材発生量が 5,000t/年を超える量に達した後は、タルク、マイカ、水酸化マグネシウム等のフィラーと配合してマスターバッチ (MB) 化した上で汎用プラスチック市場へ展開することを想定している。

リアクティブシステムは既存設備の利用を前提とした反応処方であり、国内には大小含め相当数のコンパウンドメーカーがあることから、少量からの柔軟な生産対応が可能となる。

本事業提案では、フィラー充填プラスチック市場を基本ターゲットとしているが、酸変性樹脂自体は、塗料、接着剤市場でも使用されており、CNF 複合材が基材であることから期待できる「ネットワーク構造」による塗膜形成向上、あるいは、「低熱膨張率」による寸法安定性向上等が検証されれば、これらの分野への「水平展開」も十分に期待できる。

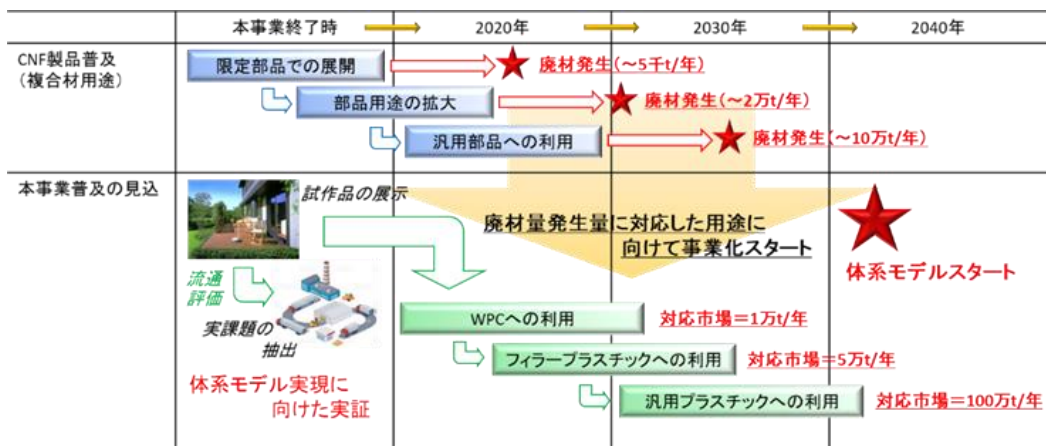


図 1 - 4 事業化に向けた流れ

2. 業務成果報告

2.1 マテリアルリサイクル技術の実証

2.1.1 原材料（CNF 複合材廃材）の検証

普及が予想される CNF 複合材廃材について、想定されるポリプロピレン（PP）樹脂をベースとした各種 CNF 複合材廃材のモデル樹脂を試作し、物性、熱劣化特性を評価した。

種々の CNF においてもっとも平均的な特性を有したのは(株)スギノマシン製「BiNF-i-s」の標準繊維を使用した試作品であった。また、熱劣化特性の検証においては、CNF 複合材廃材モデルの再利用を想定した熱履歴を加えても物性低下は見られなかった。

処理時間を変化させた場合は、粘度や衝撃強度の低下が見られたが、リアクティブシステムを用いた際には、意図的な低分子化を行う為、大きな影響を及ぼすことは無い。よって、「BiNF-i-s」の標準繊維を使用した CNF 複合材廃材モデルを中心に、以降のリアクティブプロセスに利用することとした。以下に検証の詳細を示す。

2.1.1.1 CNF 複合材廃材モデルの検討

2.1.1.1.1 目的

CNF は原料や製法の異なる様々な種類が市販されている。ここでは、CNF の種類毎の CNF 複合材の機械特性を評価し、平均的な特性を持つ CNF 複合材を選定することを目的とする。

2.1.1.1.2 原材料

CNF 複合材として検討した CNF を表 2-1 に示す。

スギノマシン社では繊維長の異なる 5 種類のグレードがある。今回は、特徴的なものとして極長、標準、極短の 3 種について検討した。ウォータージェット法とは、パルプの水分散液を加圧・噴射する際、2つのウォータージェットを斜向衝突させることで開繊させる物理的な手法である。

第一工業製薬社は、東京大学磯貝明教授らのグループにより見出された TEMPO 酸化法により CNF を製造している。TEMPO 酸化法では繊維径が約 3 nm の均一な CNF を得る事ができる。また、CNF 表面に高密度にカルボキシ基が導入されていることも特徴である。

中越パルプ工業社は、竹漂白パルプからウォータージェット法にて CNF を製造している。ウォータージェット法は水中にてウォータージェットを対向方向で衝突させる方法であり、ウォータージェット法にて製造した CNF は比較的疎水性であるとしている。

モリマシナリー社は、リグニンやヘミセルロースを含むリグノセルロースナノファイバー（LCNF）を製造している。比較的大きな繊維径をもつが、価格競争力がある。

表 2-1 検討した CNF の種類

| メーカー | 商品名 | 原料 | 製法 | 品番 | 繊維長 | 平均繊維径 (nm) |
|------------|--------------|--------|------------|-----------|-----|------------|
| 株スギノマシン | BiNF-i-s | 木材パルプ | ウォータージェット法 | IMa-10005 | 極長 | 10~50 |
| | | | | Wfo-10005 | 標準 | 10~50 |
| | | | | Fma-10005 | 極短 | 10~50 |
| 第一工業製薬(株) | レオクリスタ | 木材パルプ | TEMPO酸化法 | I-2SP | 非公開 | 3 |
| 中越パルプ工業(株) | nanoforest-S | 竹漂白パルプ | ウォータージェット法 | CeNF-1 | 非公開 | 非公開 |
| モリマシナリー(株) | セルフィルムL | 檜チップ | 機械処理 | L-45 | 非公開 | 50~300 |

CNF 複合材廃材は家電等から発生すると想定しているため、ベース樹脂にはポリプロピレン (PP) の射出成形用グレードを利用した。

2.1.1.1.3 試作

各種 CNF 材料をメカノケミカル手法 (特許 6249488) を用いたコンパウンドにより CNF の固形分濃度が 5%である複合材を得た。

試験片は小型混練・小型射出成形機 MC5 (Xplore Instruments) にて作製し、分散性と物性の評価を実施した。図 2-1 に小型混練・小型射出成形機、図 2-2 に目視分散確認した分散シートの写真を示す。



図 2-1 小型混練・小型射出成形機



図 2-2 CNF 複合材分散シート

2.1.1.1.4 試作品の物性評価手法

試作品の基礎物性として、曲げ、引張、アイゾット衝撃特性を評価した。曲げ試験は試験速度 2mm/min、スパン 32mm の 3 点曲げ試験とし、曲げ強度と弾性率を算出した。引張試験は試験速度 20mm/min、標点間距離 30mm で行い、引張強度と弾性率を算出した。曲げ試験および引張試験は万能試験機 (Tensiron RTG-1250、エー・アンド・デイ) を用いて行った。衝撃試験は 2J のハンマーを用いたノッチなしアイゾット衝撃試験とし、衝撃強度を算出した。衝撃試験にはアイゾット衝撃試験機 (U-F インパクトテスター、上島製作所) を用いた。試作品の流動性はせん断粘度およびメルトフローレート (MFR) の 2 つの指標で評価した。せん断粘度はキャピラリーレオメータ (LCR7000、日本ダイニスコ) により、せん断速度 100、150、224、334、500 s⁻¹ の 5 段階で測定した。MFR は Melt Indexer G-01 (東洋精機製作所) を用いて、熔融温度 200℃、荷重 2.16kgf の条件で測定した。

2.1.1.1.5 試作品の性能評価

試作した CNF 複合材の物性を表 2-2 および図 2-3~8 に示す。

表 2-2 CNF 複合材の物性

| 試作品名 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | 比重 g/cm ³ | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180℃ | | | | | MFR 200℃ 2.16kgf g/10min | アイゾット 衝撃強度 kJ/m ² |
|--------------|------|------|------|------|-------------------------|-----------------------------|-----|-----|-----|-----|-----------------------------------|------------------------------------|
| | 強度 | 弾性率 | 強度 | 弾性率 | | せん断速度 (1/s) | | | | | | |
| | MPa | GPa | MPa | GPa | | 500 | 334 | 223 | 149 | 100 | | |
| PPのみ | 60.5 | 1.49 | 35.2 | 1.76 | 0.92 | 139 | 180 | 228 | 289 | 354 | 32 | 26.8 |
| BiNFi-s 極長 | 64.5 | 1.99 | 38.0 | 2.10 | 0.93 | 144 | 186 | 239 | 296 | 373 | 31 | 18.7 |
| BiNFi-s 標準 | 64.5 | 2.04 | 39.6 | 2.17 | 0.93 | 155 | 201 | 262 | 329 | 416 | 36 | 18.9 |
| BiNFi-s 極短 | 63.7 | 1.93 | 38.6 | 2.19 | 0.93 | 150 | 194 | 249 | 313 | 393 | 39 | 23.0 |
| レオクリスタ | 64.9 | 2.07 | 38.3 | 2.18 | 0.93 | 169 | 219 | 287 | 365 | 471 | >50 | 18.1 |
| nanoforest-S | 64.4 | 2.03 | 38.6 | 2.14 | 0.93 | 155 | 200 | 257 | 328 | 410 | 38 | 11.9 |
| セルフィルム | 64.7 | 2.07 | 39.4 | 2.16 | 0.93 | 160 | 209 | 269 | 346 | 437 | 27 | 22.1 |
| 各CNF複合材の平均 | 64.4 | 2.02 | 38.7 | 2.15 | 0.93 | 155 | 202 | 260 | 329 | 417 | 34 | 18.8 |

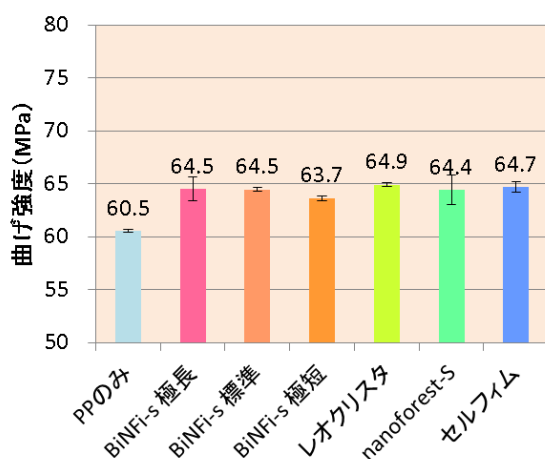


図 2-3 各 CNF 複合材の曲げ強度

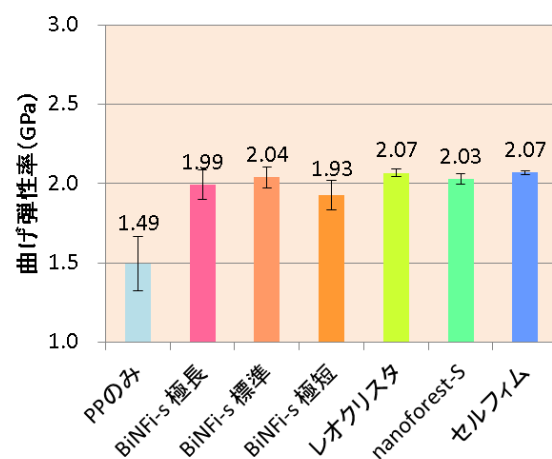


図 2-4 各 CNF 複合材の曲げ弾性率

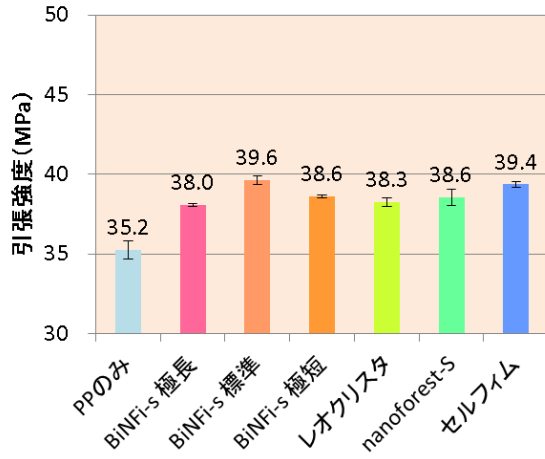


図 2-5 各 CNF 複合材の引張強度

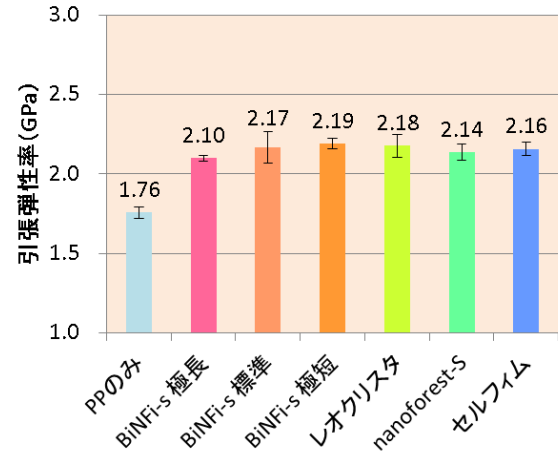


図 2-6 各 CNF 複合材の引張弾性率

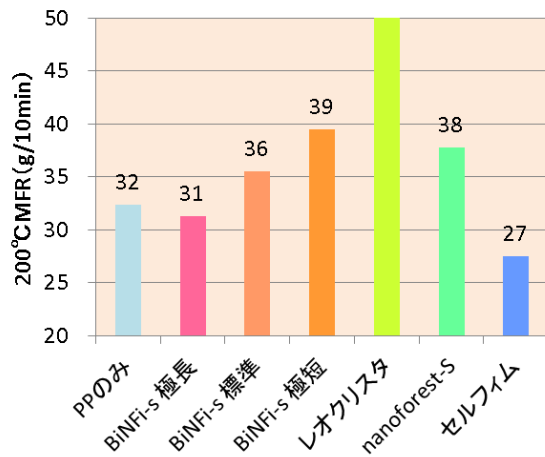


図 2-7 各 CNF 複合材の MFR

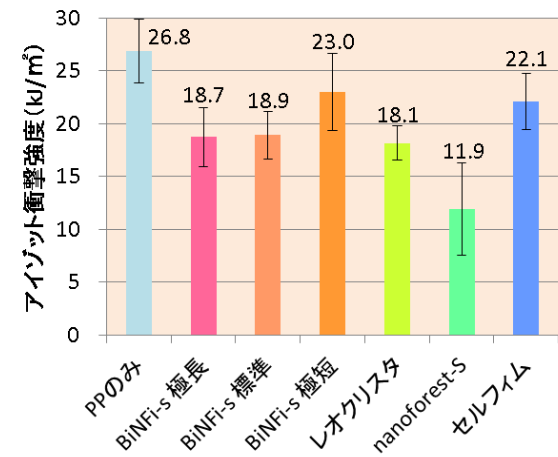


図 2-8 各 CNF 複合材の衝撃強度

曲げ試験および引張試験にて、すべての CNF 複合材が PP よりも高い強度を示し、差がほぼ無い事が確認できた。

180°Cで測定したせん断粘度では、すべての CNF 複合材が PP よりも高い粘度となったが、200°Cで測定した MFR では一部の CNF 複合材にて PP よりも高い流動性となった。MFR は CNF が細かいほど高くなる傾向である。セルロースの熱分解が約 200°Cで始まるため、より細かい CNF の方が比表面積がおおきく、分解、ガス発生がしやすくなる為により流動性が高まったと考える。特にレオクリスタは MFR が高くなる傾向にあった。衝撃強度では、nanoforest-S 以外は 20kJ/m²程度であった。

2.1.1.1.6 まとめ

各種 CNF にて CNF 複合材を試作し、物性を確認した。強度に関しては CNF の種類によらず、ほぼ一定の値が得られた。細かい CNF ほど高温時の流動性が高くなる傾向が見られ、これはセルロースの分解が影響したと考えられる。

各 CNF 複合材においてもっとも平均的な特性を有したのは「BiNF_i-s」の標準繊維を使用した試作品であった。よって、「BiNF_i-s」の標準繊維を中心に CNF 複合材廃材モデルとして使用した。

2.1.1.2 熱劣化特性

2.1.1.2.1 目的

PP は熱により劣化（低分子化）し、強度等が低下する事が知られている。しかし、CNF 複合材廃材を再利用するためには、製品として使われていた材料を再溶解させて成形する必要がある。そのため、CNF 複合材の熱劣化特性を検証することを目的とした。

2.1.1.2.2 原材料

前節で選択した CNF 複合材廃材モデル用 CNF（「BiNF_i-s」の標準繊維使用）を固形分濃度で 10% 添加した PP 複合材を使用した。

2.1.1.2.3 試作と試作品の物性評価手法

熱劣化特性検証の熱履歴条件を表 2-3 に示す。初期状態の CNF 複合材、CNF 複合材廃材の再利用を想定したものを用意した。また、混練時間が CNF 複合材に与える影響を確かめるため、熱劣化①（180℃混練時間 5 分）および熱劣化②（180℃混練時間 15 分）の 2 水準を用意した。

表 2-3 熱劣化特性検証の熱履歴

| CNF複合材 | CNF複合材廃材の再利用 | 熱劣化① | 熱劣化② |
|------------|--------------|--------------|--------------|
| CNF複合材ペレット | CNF複合材ペレット | CNF複合材ペレット | CNF複合材ペレット |
| ↓200℃射出成形 | ↓200℃射出成形 | ↓180℃5分混練 | ↓180℃15分混練 |
| 試験片 | 製品 | 熱劣化① | 熱劣化② |
| | ↓粉砕 | ↓粉砕、200℃射出成形 | ↓粉砕、200℃射出成形 |
| | CNF複合材廃材 | 試験片 | 試験片 |
| | ↓200℃押出成形 | | |
| | CNF複合材廃材ペレット | | |
| | ↓200℃射出成形 | | |
| | 試験片 | | |

物性試験の条件は前項と同様とした。

2.1.1.2.4 試作品の性能評価

CNF 複合材の物性を 100%とした場合の試作品の物性を表 2-4 に示す。

表 2-4 各種熱履歴による物性変化

| 試作品名 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180°C | | | | | アイゾット 衝撃強度 |
|--------------|------|-----|------|-----|------------------------------|-----|-----|-----|-----|---------------|
| | 応力 | 弾性率 | 応力 | 弾性率 | せん断速度 (1/s) | | | | | |
| | % | % | % | % | 500 | 334 | 223 | 149 | 100 | % |
| CNF複合材 | 100 | 100 | 100 | 100 | 248 | 301 | 386 | 451 | 566 | 100 |
| CNF複合材廃材の再利用 | 107 | 107 | 100 | 106 | 239 | 291 | 368 | 452 | 555 | 107 |
| 熱劣化① | 104 | 103 | 99 | 102 | 222 | 272 | 333 | 410 | 504 | 82 |
| 熱劣化② | 103 | 102 | 97 | 100 | 194 | 243 | 282 | 350 | 420 | 92 |

CNF 複合材廃材の再利用を想定した熱履歴条件では初期状態の CNF 複合材と比較し、物性の低下は特にみられなかった。セルロースの分解が始まる 200°Cへの加熱が複数回あっても短時間の混練であれば熱劣化による物性低下は生じないことが確認された。

一方、混練時間の影響を確かめた熱劣化①、②を見ると、初期状態の CNF 複合材と比較し、粘度および衝撃強度が低下した。曲げ試験および引張試験では物性の低下がないことから CNF の分解ではなく樹脂の劣化（低分子化）が影響したと考えられる。

2.1.1.2.5 まとめ

CNF 複合材廃材の再利用を想定した熱履歴条件では初期状態の CNF 複合材と比較し、物性の低下はみられなかった。一方、混練時間の影響を確かめた条件では、分子量低下の影響と思われる粘度および衝撃強度の低下が見られた。しかし、本事業において実施する CNF 複合材廃材を酸変性樹脂化する手法では有機過酸化物により大幅に PP を低分子化させるため、PP の熱劣化程度の分子量低下は問題にならないと推測している。

2.1.2 ウッドプラスチック (WPC) 向けリサイクル技術の開発

「2.1.1 原材料 (CNF 複合材廃材) の検証」で作製した CNF 複合材廃材モデル樹脂を原料とし、WPC 用途に適合する表面処理木粉をリアクティブシステムにてラボレベル、量産設備にて試作し、製品の試作を行った。ラボレベルの条件最適化を行い、量産試作したサンプルの多くの条件で、相溶化剤無添加の WPC に対して曲げ強度 20%、耐水性 10%向上 (吸水量 10%低減) を達成した。以下には、その詳細を示す。

2.1.2.1 リアクティブシステムによる酸変性技術を用いた WPC 原料の製造

2.1.2.1.1 目的

リアクティブシステムでは、CNF 複合材廃材と木粉の熔融混合と酸変性処理を同時に行った表面処理木粉を作製する。図 2-9 にリアクティブシステムの概要を示す。すなわち、CNF および木粉の存在下でポリプロピレン (PP) への無水マレイン酸のグラフト反応 (図 2-10) を行う。量産に向けた指標を得るため、ラボレベルにて、CNF 複合材廃材モデル樹脂を用いたリアクティブシステムの効果を検証した。



図 2-9 リアクティブシステム

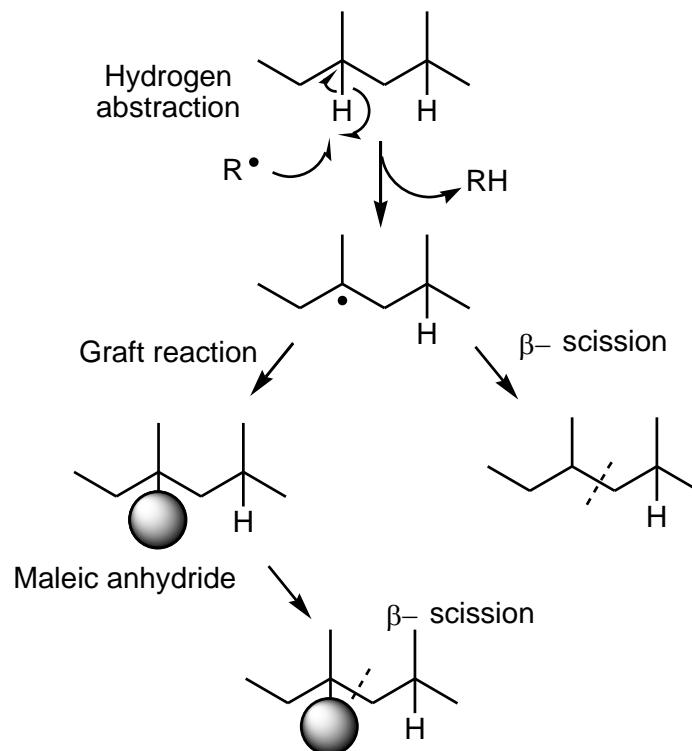


図 2-10 ポリプロピレンへの無水マレイン酸のグラフト反応機構

2.1.2.1.2 試作方法の解説

リアクティブシステムの処方を検討するため、ラボプラストミル（10M100、東洋精機製作所）による試作を行った。CNF 複合材廃材モデル樹脂、無水マレイン酸、有機過酸化物、PP を用い、木粉 70~90%となるリアクティブ処理木粉を作製した。図 2-11 に装置写真を示す。ラボプラストミルを用いたリアクティブ処理条件は、設定温度 190℃で行った。その後、リアクティブ処理木粉の性能を確認するため、同じく設定温度 190℃でラボプラストミルを用い、木粉 50%になるように PP で希釈混合・混練を実施した。表 2-5 にその試作条件を示す。上記コンパウンドにおいて得られた材料を Babyplast (Rambaldi)にて射出成形を行い、物性を確認した。



図 2-1-1 ラボプラストミル(左)、Babyplast(右)

表 2-5 試作条件

| |
|-------------------|
| リアクティブ処理木粉作製 |
| CNF 複合材廃材投入 |
| ↓ 2 分間混練 |
| 木粉投入 |
| ↓ 2 分間混練 |
| 無水マレイン酸、有機過酸化物 投入 |
| ↓ 10 分間混練 |
| 取り出し |
| 木粉 50%となるように希釈 |
| PP 投入 |
| ↓ 3 分混練 |
| リアクティブ処理木粉 投入 |
| ↓ 10 分間混練 |
| 取り出し |

2.1.2.1.3 物性試験

リアクティブ木粉を PP で希釈したコンパウンドを試料とし、キャピラリーレオメータ (LCR7000、日本ダイニスコ) による流動性試験を行った。キャピラリーレオメータは異なるせん断速度下における熔融粘度を測定することができる装置であり、通常用いられるメルトインデクサーによる指標よりも多くの情報が得られる特徴がある。測定条件はダイ径 2.0mm、熔融温度 180℃、試料投入量 9g、事前熔融時間 300s とし、せん断速度 100、150、224、334、500s⁻¹ の 5 段階にて熔融粘度を算出した。

射出成形体を用いて引張、曲げ、衝撃試験を行った。

ダンベル形試験片を用いて万能試験機 (Tensiron RTG-1250、エー・アンド・デイ) を用い、引張強度 (σ_t)、引張弾性率 (E_t) を下記式 (2-1)、(2-2) より算出した。

$$\sigma_t = \frac{F_t}{A} \text{ (MPa)} \quad (2-1)$$

$$E_t = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \text{ (GPa)} \quad (2-2)$$

F_t は引張試験時の最大荷重、 A は断面積であり、 σ_1 はひずみ $\varepsilon_1=0.0005$ において測定された引張応力、 σ_2 はひずみ $\varepsilon_2=0.0025$ において測定された引張応力である。試験速度は 20 mm/min とし、ロードセルは 5 kN とした。

曲げ試験は試験速度 2 mm/min、スパン 48 mm とし、中央集中荷重方式で行った。試験には万能試験機 (Tensiron RTG-1250、エー・アンド・デイ) を用い、曲げ強度 (σ_f)、曲げ弾性率 (E_f) を下記式 (2-3)、(2-4) より算出した。

$$\sigma_f = \frac{3F_f L_f}{2b\hbar} \text{ (MPa)} \quad (2-3)$$

$$E_f = \frac{L_f^3 m_f}{4b\hbar^3} \times 10^{-3} \text{ (GPa)} \quad (2-4)$$

F_f は曲げ試験時の最大荷重、 L_f はスパン、 b は試験片の幅、 \hbar は試験片の厚さ、 m_f は弾性域の傾きである。

衝撃試験は容量 2 J のハンマーで打撃するノッチなしアイゾット衝撃試験とした。試験にはアイゾット衝撃試験機 (U-F インパクトテスター、上島製作所) を用い、アイゾット衝撃強度 (a_{iN}) を式 (2-5) により算出した。

$$a_{iN} = \frac{W}{b\hbar} \times 10^3 \text{ (kJ/m}^2\text{)} \quad (2-5)$$

W は衝撃試験時の吸収エネルギー、 b は試験片の幅、 \hbar は試験片の厚さを示す。

2.1.2.1.4 木粉の乾燥状態の検証

2.1.2.1.4.1 目的

無水マレイン酸は水で加水分解することでマレイン酸となる（図2-12）。マレイン酸では無水マレイン酸と比較してPPへのグラフト反応の効率が100分の1に低下すると言われている。無水マレイン酸の反応性からすると水の混入は望ましくない。

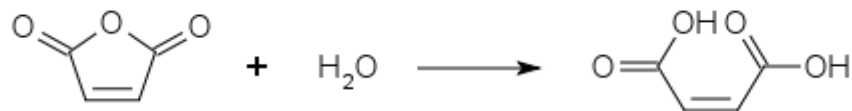


図2-12 無水マレイン酸の加水分解

一方、ラジカル反応の阻害因子として酸素がよく知られている。酸素分子は酸素-酸素間の結合が1重結合のジラジカルである。酸素は、有機過酸化物から発生するラジカルのような酸素ラジカルとは反応しないが、水素引抜き反応によりPPに発生した炭素ラジカルとは反応し、ラジカル反応が停止すると考えられる（図2-13）。反応系の中に水があれば、水が気化することで酸素を反応系外に押し出し、ラジカル反応が阻害されないとも考えられる。



図2-13 ラジカル反応の酸素による阻害

木粉には5~10%程度の水分が含まれている。この水分がリアクティブシステムにおよぼす影響を検討した。

2.1.2.1.4.2 原材料および配合条件

本項において使用した原材料、配合条件は以下のとおりである。

リアクティブ処理木粉原料配合

| | |
|-------------------------------|--------|
| CNF 複合材廃材モデル樹脂：CNF 固形分濃度 5% | 20 phr |
| 木粉：C100（レッテンマイヤー）（乾燥あり or なし） | 80 phr |
| 無水マレイン酸：試薬特級（和光純薬） | 4 phr |
| 有機過酸化物：トリゴノックス 101（化薬アクゾ） | 1 phr |

試験体配合（木粉 50%となるように希釈）

| | |
|--------------------------------|--------|
| リアクティブ処理木粉 | 62 phr |
| PP：プライムポリプロ J107G（ホモ：プライムポリマー） | 38 phr |

木粉の事前乾燥を80℃にて8時間以上行い、含水率が1%未満になるようにした「木粉乾燥あり」と「木粉乾燥なし」の2条件にて、検討した。

2.1.2.1.4.3 物性評価

木粉の事前乾燥の有無による物性を表2-6および図2-14~20に示す。

表2-6 木粉の事前乾燥有り無し時の物性

| 試作品名 | リアクティブ処理木粉 | 木粉50%の物性 | | | | | | | | | | |
|--------|------------|----------|------|------|------|-------------------|-----------------------------|-----|-----|-----|-----|-------------------|
| | グラフト率 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | 比重 | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180℃ | | | | | アイソット 衝撃強度 |
| | | 強度 | 弾性率 | 強度 | 弾性率 | | せん断速度 (1/s) | | | | | |
| | % | MPa | GPa | MPa | GPa | g/cm ³ | 500 | 334 | 223 | 149 | 100 | kJ/m ² |
| 木粉乾燥なし | 0.96 | 68.6 | 4.76 | 41.0 | 3.18 | 1.11 | 319 | 392 | 457 | 597 | 712 | |
| 木粉乾燥あり | 1.17 | 67.6 | 4.72 | 43.0 | 3.27 | 1.12 | 345 | 419 | 510 | 639 | 768 | 9.6 |

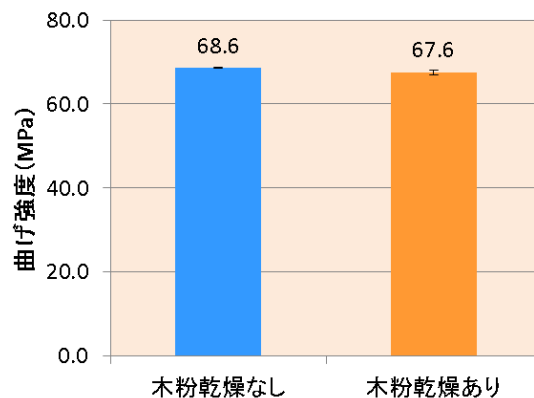
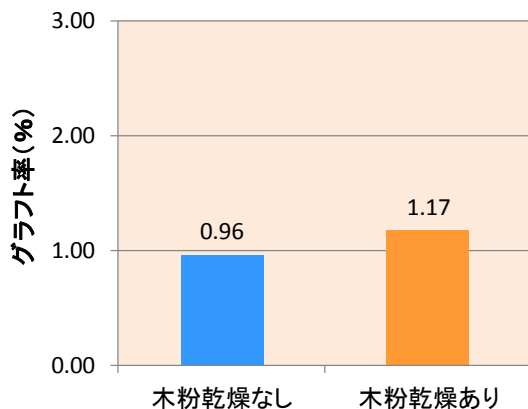


図2-14 木粉乾燥有無によるグラフト率

図2-15 木粉乾燥有無による曲げ強度

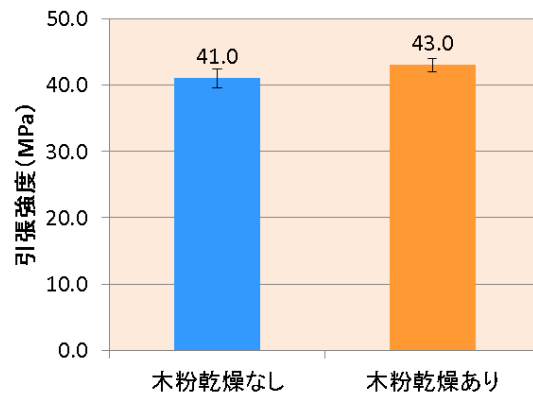
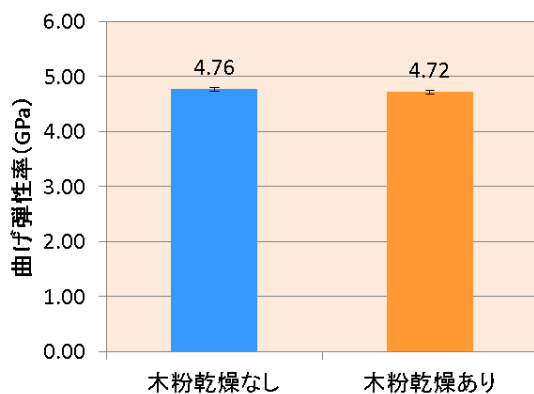


図2-16 木粉乾燥有無による曲げ弾性率

図2-17 木粉乾燥有無による引張強度

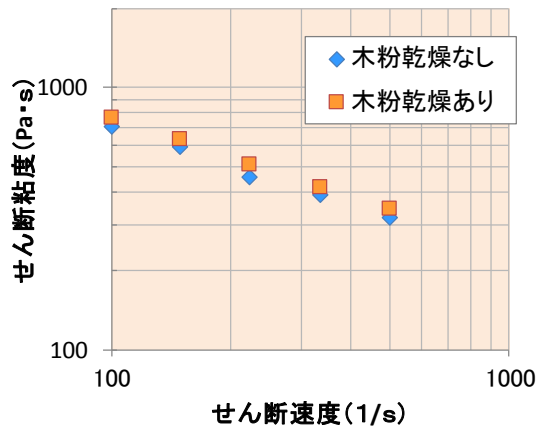
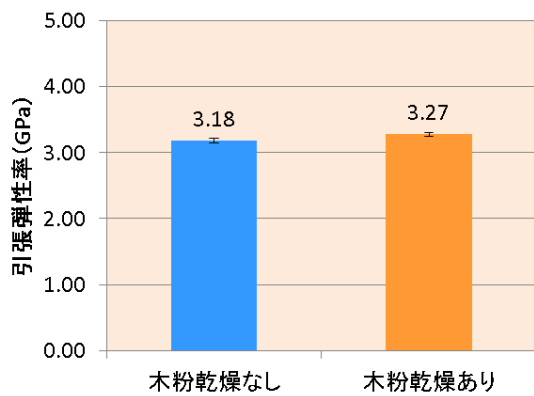


図 2 - 1 8 木粉乾燥有無による引張弾性率 図 2 - 1 9 木粉乾燥有無によるせん断粘度

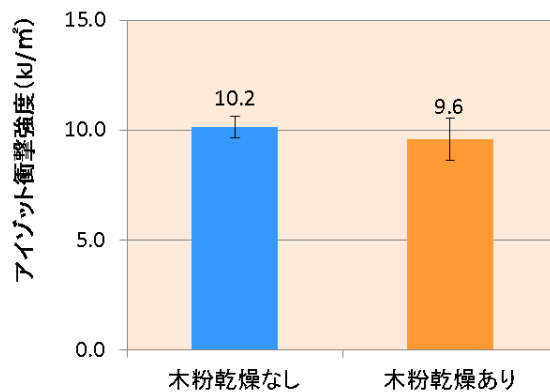


図 2 - 2 0 木粉乾燥有無による衝撃強度

一般的に相溶化剤は、マレイン酸のグラフト率が高く、分子量が多い方が物性が高くなると言われている。分子量は熔融粘度の高さで疑似的に評価することができる。「木粉乾燥あり」の方が若干グラフト率および分子量は高いが、その差は小さく、物性への影響は少ない。この結果より、リアクティブシステムにおいて木粉を事前乾燥させる必要がないことが確認できた。

2.1.2.1.5 木粉の濃度の検証

2.1.2.1.5.1 目的

木粉の濃度の影響を検討することを目的とし、木粉の濃度を变化させた試験体を作製し、物性評価した。

2.1.2.1.5.2 原材料および配合条件

本項において使用した原材料、配合条件は以下のとおりである。

リアクティブ処理木粉原料配合

| | |
|-----------------------------|----------------|
| 木粉：C100（レッテンマイヤー）（乾燥なし） | 90, 80, 70 phr |
| CNF 複合材廃材モデル樹脂：CNF 固形分濃度 5% | 10, 20, 30 phr |
| 無水マレイン酸：試薬特級（和光純薬） | 4 phr |
| 有機過酸化物：トリゴノックス101（化薬アクゾ） | 1 phr |

試験体配合（木粉 50%となるように希釈）

| | |
|--------------------------------|----------------|
| リアクティブ処理木粉 | 56, 62, 71 phr |
| PP：プライムポリプロ J107G（ホモ：プライムポリマー） | 44, 38, 29 phr |

上記配合にてリアクティブ処理木粉の濃度は 90～70phr とし検討を行った。

2.1.2.1.5.3 物性評価

リアクティブ処理木粉濃度による物性を表 2-7 および図 2-21～27 に示す。

表 2-7 リアクティブ処理木粉濃度による物性

| 試作品名 | リアクティブ処理木粉 | 木粉50%の物性 | | | | | | | | | | |
|----------|------------|----------|------|------|------|------|-----------------------------|-----|-----|-----|------|-----------|
| | グラフト率 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | 比重 | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180℃ | | | | | アイソット衝撃強度 |
| | | 強度 | 弾性率 | 強度 | 弾性率 | | せん断速度 (1/s) | | | | | |
| | | MPa | GPa | MPa | GPa | | g/cm ³ | 500 | 334 | 223 | 149 | |
| 木粉_90phr | 0.84 | 72.6 | 4.81 | 45.1 | 3.39 | 1.12 | 513 | 620 | 788 | 983 | 1199 | 10.9 |
| 木粉_80phr | 0.96 | 68.6 | 4.76 | 41.0 | 3.18 | 1.11 | 319 | 392 | 457 | 597 | 712 | 10.2 |
| 木粉_70phr | 0.71 | 63.9 | 4.47 | 39.9 | 3.22 | 1.11 | 214 | 259 | 306 | 370 | 452 | 8.0 |

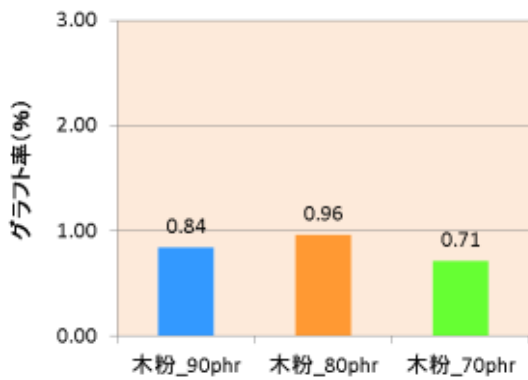


図 2-2-1 木粉濃度によるグラフト率

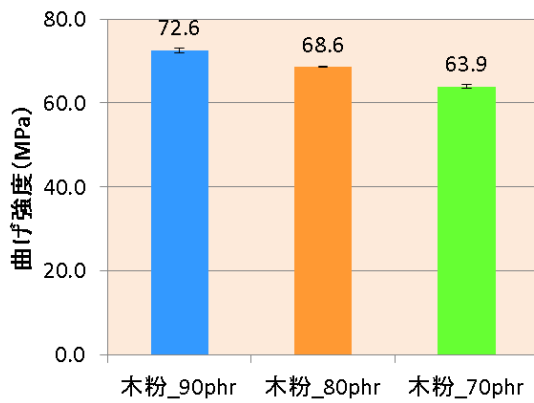


図 2-2-2 木粉濃度による曲げ強度

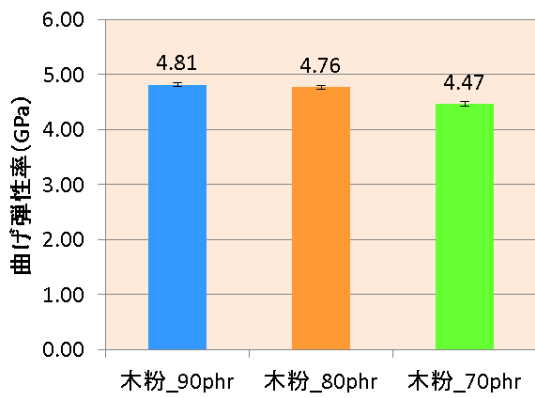


図 2-2-3 木粉濃度による曲げ弾性率

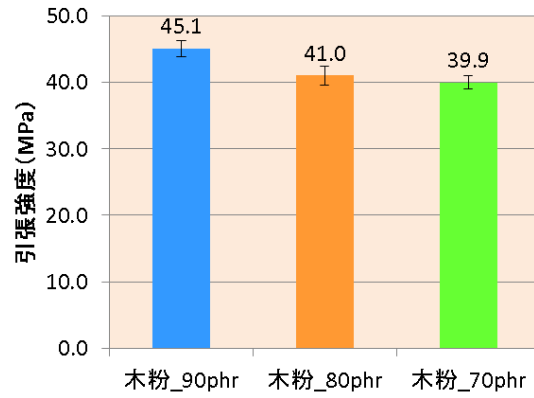


図 2-2-4 木粉濃度による引張強度

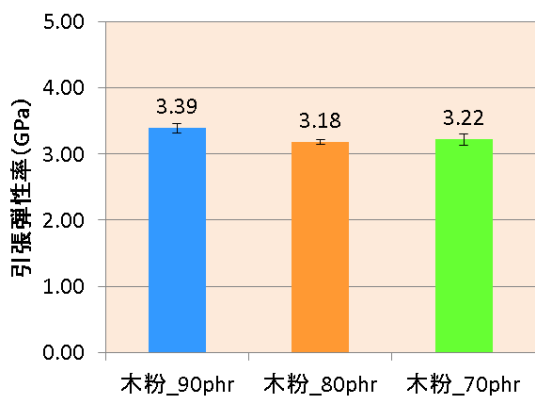


図 2-2-5 木粉濃度による引張弾性率

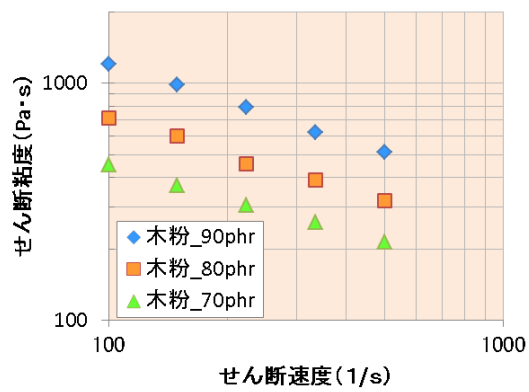


図 2-2-6 木粉濃度によるせん断粘度

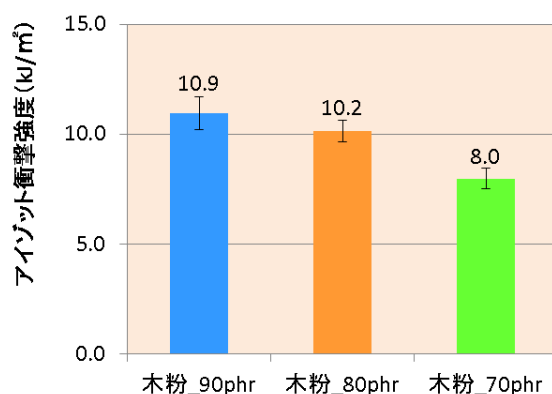


図 2 - 2 7 木粉濃度による衝撃強度

リアクティブ処理木粉の木粉濃度が高いほど、物性およびせん断粘度が高い結果となった。リアクティブ処理木粉の作製時には、マレイン酸のPPへのグラフト化反応のほかに、PPの低分子化が行われる。リアクティブ処理木粉の濃度が低いほど、低分子化されるPPの量が増え、物性の低下につながったと考えられる。

本検証では少量にて試作できるラボプラストミルを用いているが、量産を想定した場合、ヘンシェルミキサーにてリアクティブ処理木粉を作製し、リアクティブ処理木粉とPPを押し出成形にてコンパウンド化する。押し出成形を行う際に木粉の嵩密度が低いとスクリーへのくいこみが悪くなり、生産性が低下する。リアクティブシステムの物性および生産性を考慮するとリアクティブ処理木粉の濃度は80phrが適当であると考えられる。

2.1.2.1.6 有機過酸化物の検証

2.1.2.1.6.1 目的

有機過酸化物は分子内に O-O 結合を持った化学構造である。この結合は C-O 結合や O-H 結合と比べ、結合力が非常に弱く、外的刺激によって容易に解離し、分解、そして高活性反応基（フリーラジカル）を発生する。発生したラジカル種により、付加反応あるいは水素引き抜き反応を起こし、その結果、重合、架橋等が起きる。表 2-8 に各種化学構造における水素の均一結合解離エネルギーを示す。

表 2-8 各種化学構造における均一結合解離エネルギー

| 化学構造 | 均一解離 | 均一結合解離エネルギー(kJ/mol) |
|--------------------------------------|----------------------------------------------------|---------------------|
| $\text{-CH}_2\text{C(O)O-H}$ | $\text{-CH}_2\text{C(O)O}\cdot + \text{H}\cdot$ | -443 |
| $\text{CH}_3\text{-H}$ | $\text{CH}_3\cdot + \text{H}\cdot$ | -434 |
| $\text{C}_6\text{H}_5\text{-H}$ | $\text{C}_6\text{H}_5\cdot + \text{H}\cdot$ | -430 |
| $(\text{CH}_3)_3\text{CO-H}$ | $(\text{CH}_3)_3\text{CO}\cdot + \text{H}\cdot$ | -430 |
| $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{-H}$ | $\text{CH}_3\text{CH}_2\cdot + \text{H}\cdot$ | -410 |
| $(\text{CH}_3)_2\text{CH-H}$ | $(\text{CH}_3)_2\text{CH}\cdot + \text{H}\cdot$ | -395 |
| $(\text{CH}_3)_3\text{C-H}$ | $(\text{CH}_3)_3\text{C}\cdot + \text{H}\cdot$ | -380 |
| $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{-H}$ | $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\cdot + \text{H}\cdot$ | -355 |
| $(\text{CH}_3)_2\text{C(CN)-H}$ | $(\text{CH}_3)_2\text{C(CN)}\cdot + \text{H}\cdot$ | -334 |

均一結合解離エネルギーが大きいほど結合力が強く、化合物としては安定であることを示すが、逆にその結合が開裂して発生したラジカルは不安定である。このラジカルの安定性が付加重合あるいは水素引き抜き反応のどちらに効果的に機能するかを決定する。不安定なラジカルは、より安定性の高い状態になるために自己分子内あるいは他分子から水素を引き抜いて自己を安定化させる。

リアクティブシステムにて実施検証する酸変性つまりグラフト反応は、分子鎖からの水素引き抜き反応が開始反応であることから、均一結合解離エネルギーが大きい、言い換えれば、不安定なラジカル種を発生させる構造体が有効である。そこで、 $(\text{CH}_3)_3\text{CO}\cdot$ を発生させることができるトリゴノックス 101（化薬アクゾ）および $\text{-CH}_2\text{C(O)O}\cdot$ を発生させることができるトリゴノックス 42（化薬アクゾ）にて有機過酸化物の検証を行った。表 2-9 に検証する有機過酸化物の構造と 1 分間半減期温度を示す。

表 2-9 検証する有機過酸化物の構造と 1 分間半減期温度

| 有機過酸化物 | 1分間 半減期 温度(°C) |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------|
| <p>トリゴノックス101</p> $\begin{array}{ccccccc} & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 \\ & & & & & & & \\ \text{CH}_3 & -\text{C} & -\text{OO} & -\text{C} & -\text{CH}_2 & -\text{CH}_2 & -\text{C} & -\text{OO} & -\text{C} & -\text{CH}_3 \\ & & & & & & & & \\ & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 & & & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 \end{array}$ | 181 |
| <p>トリゴノックス42</p> $\begin{array}{ccccccc} & \text{CH}_3 & & & & \text{CH}_3 & & \text{CH}_3 \\ & & & & & & & \\ \text{CH}_3 & -\text{C} & -\text{OO} & -\text{C} & -\text{CH}_2 & -\text{CH} & -\text{CH}_2 & -\text{C} & -\text{CH}_3 \\ & & & & & & & \\ & \text{CH}_3 & & \text{O} & & & & \text{CH}_3 \end{array}$ | 159 |

2.1.2.1.6.2 原材料および配合条件

本項において使用した原材料、配合条件は以下のとおりである。

リアクティブ処理木粉原料配合

| | |
|------------------------------------|---------------|
| 木粉：C100（レッテンマイヤー）（乾燥なし） | 80 phr |
| CNF 複合材廃材モデル樹脂：CNF 固形分濃度 5% | 20 phr |
| 無水マレイン酸：試薬特級（和光純薬） | 4 phr |
| 有機過酸化物：トリゴノックス(Tx)101 or 42（化薬アクゾ） | 0.5, 1, 2 phr |

試験体配合（木粉 50%となるように希釈）

| | |
|--------------------------------|--------|
| リアクティブ処理木粉 | 62 phr |
| PP：プライムポリプロ J107G（ホモ：プライムポリマー） | 38 phr |

有機過酸化物の種類に加え添加量を変化させることで、ラジカルの種類と発生量の影響を検討した。

2.1.2.1.6.3 物性評価

各有機過酸化物 (Tx) による物性を表 2-10 および図 2-28~34 に示す。

表 2-10 各有機過酸化物 (Tx) による物性

| 試作品名 | リアクティブ 処理木粉 | 木粉50%の物性 | | | | | | | | | | |
|--------------|----------------|----------|------|------|------|-------------------|-----------------------------|-----|-----|-----|------|-------------------|
| | グラフト率 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | 比重 | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180℃ | | | | | アイソット 衝撃強度 |
| | | 強度 | 弾性率 | 強度 | 弾性率 | | せん断速度 (1/s) | | | | | |
| | % | MPa | GPa | MPa | GPa | g/cm ³ | 500 | 334 | 223 | 149 | 100 | kJ/m ² |
| Tx101_0.5phr | 0.43 | 71.9 | 4.59 | 39.8 | 3.01 | 1.11 | 401 | 492 | 604 | 741 | 921 | |
| Tx101_1phr | 0.96 | 68.6 | 4.76 | 41.0 | 3.18 | 1.11 | 319 | 392 | 457 | 597 | 712 | 10.2 |
| Tx101_2phr | 1.80 | 61.8 | 4.74 | 39.1 | 3.27 | 1.11 | 294 | 362 | 452 | 552 | 622 | 8.8 |
| Tx42_0.5phr | 0.20 | 70.3 | 4.24 | 44.8 | 2.96 | 1.11 | 464 | 586 | 727 | 902 | 1107 | 11.7 |
| Tx42_1phr | 0.32 | 74.9 | 4.53 | 44.1 | 3.23 | 1.11 | 487 | 610 | 771 | 967 | 1158 | 12.6 |
| Tx42_2phr | 0.67 | 70.7 | 4.47 | 46.4 | 3.01 | 1.12 | 404 | 502 | 624 | 789 | 960 | 11.6 |

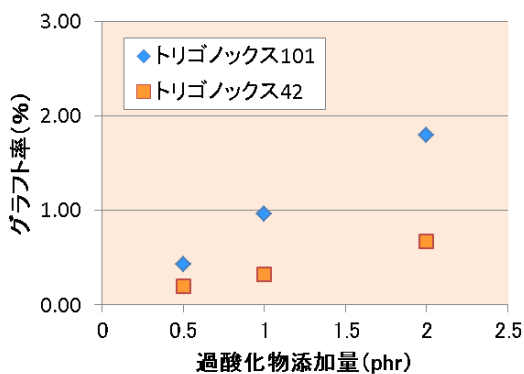


図 2-28 各 Tx によるグラフト率

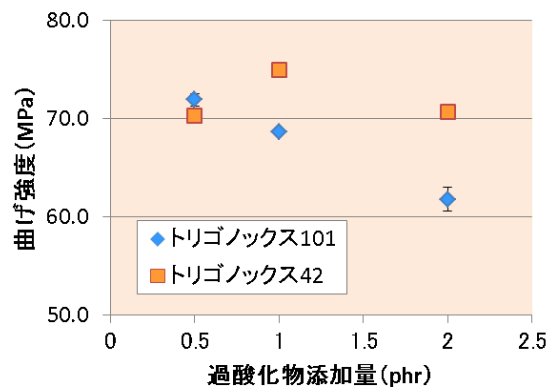


図 2-29 各 Tx による曲げ強度

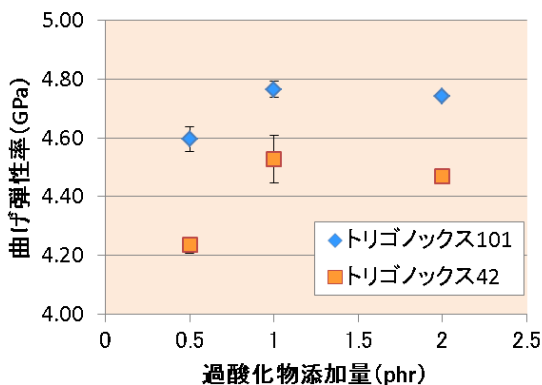


図 2-30 各 Tx による曲げ弾性率

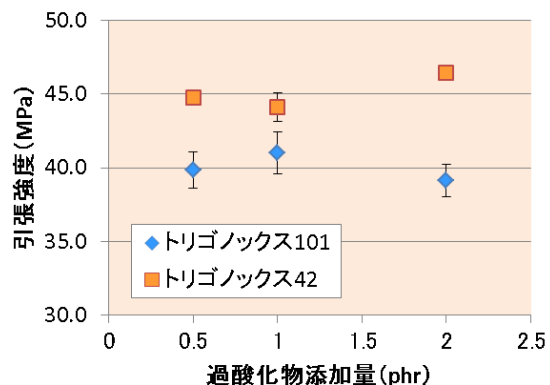


図 2-31 各 Tx による引張強度

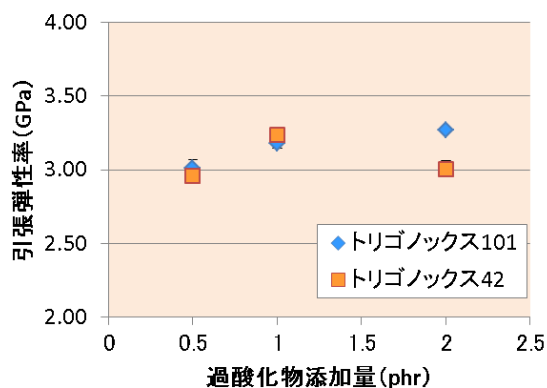


図 2-3-2 各 Tx における引張弾性率

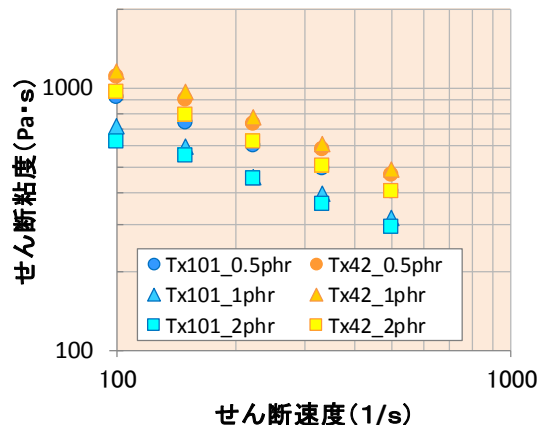


図 2-3-3 各 Tx におけるせん断粘度

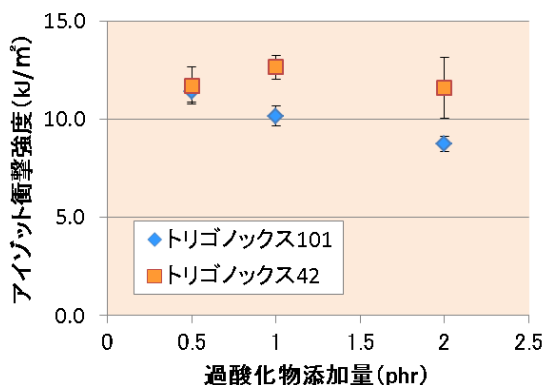


図 2-3-4 各 Tx における衝撃強度

有機過酸化物の添加量の増加にともないグラフト率の増加がみられた。トリゴノックス 101 は分子中に過酸化結合を 2 か所所有しているため、トリゴノックス 42 よりもトリゴノックス 101 を用いた方が高いグラフト率となった。しかし、曲げ強度、引張強度、アイゾット衝撃強度においてトリゴノックス 42 の方が高い傾向がある。これは、トリゴノックス 101 を用いたのほうがせん断粘度が低く、PP の分解が進んでいるためだと考える。

一方、曲げ弾性率ではトリゴノックス 101 を用いた方がトリゴノックス 42 よりも大幅に向上している。曲げ弾性率に寄与する因子としては、フィラーの種類、量および PP の結晶化度が挙げられるが、今回はフィラーの種類、量ともに同一であるため PP の結晶化度が向上していると考えられる。CNF がラジカル反応により微細化されて結晶核剤効果が発現したものと推測される。

本検証の目標は、曲げ強度の向上であることから、有機過酸化物はトリゴノックス 42 を用い、無水マレイン酸：有機過酸化物=4：1 の比率が適当であると考えられる。

2.1.2.1.7 原材料費の圧縮

2.1.2.1.7.1 目的

通常の WPC の製造では、木粉、相溶化剤、PP から表面処理木粉を作製する。一方、リアクティブシステムでは、木粉、無水マレイン酸、有機過酸化物、CNF 複合材廃材からリアクティブ処理木粉を作製する。表面処理木粉およびリアクティブ処理木粉の配合例を表 2-11 に示す。

表 2-11 表面処理木粉およびリアクティブ処理木粉の配合例

| 表面処理木粉 | | リアクティブ処理木粉 | |
|--------|-----|------------|-----|
| 原材料 | phr | 原材料 | phr |
| 木粉 | 80 | 木粉 | 80 |
| PP | 20 | CNF 複合材廃材 | 20 |
| 相溶化剤 | 3.2 | 無水マレイン酸 | 4 |
| | | 有機過酸化物 | 1 |

相溶化剤は約 1,000 円/kg であるため表 2-11 の配合では表面処理木粉 1kg 当たりの相溶化剤の費用は 31 円となる。一方、無水マレイン酸は 154 円/kg (2018 年 12 月, 経済産業省 生産動態統計)、有機過酸化物は約 2500 円/kg であるためリアクティブ処理木粉 1kg 当たりの無水マレイン酸および有機過酸化物の価格は 30 円となり表面処理木粉とリアクティブ処理木粉の添加剤の原材料費は、ほぼ等しく、プロセス変更による変動費のコストメリットは小さい。また、リアクティブ処理木粉マスターバッチのコスト試算における 100 円/kg 以下の目標値を達成するためには、無水マレイン酸、有機過酸化物の原材料費を半減する必要があり、その検討を行った。尚コスト試算の詳細については「2.2.3.3 WPC 用途におけるコスト試算とモデル提案」に記載する。

2.1.2.1.7.2 原材料および配合条件

本項において使用した原材料、配合条件は以下のとおりである。

リアクティブ処理木粉原料配合

| | |
|-----------------------------|------------|
| 木粉：C100 (レッテンマイヤー) (乾燥なし) | 80 phr |
| CNF 複合材廃材モデル樹脂：CNF 固形分濃度 5% | 20 phr |
| 無水マレイン酸：試薬特級 (和光純薬) | 2, 4 phr |
| 有機過酸化物：トリゴノックス 42 (化薬アクゾ) | 0.5, 1 phr |

試験体配合 (木粉 50% となるように希釈)

| | |
|---------------------------------|--------|
| リアクティブ処理木粉 | 62 phr |
| PP：プライムポリプロ J107G (ホモ：プライムポリマー) | 38 phr |

添加量は最適な条件である無水マレイン酸：有機過酸化物=4：1 の割合で添加量とし、全体の添加量を減らす検討を実施した。

2.1.2.1.7.3 物性評価

各添加量における物性を表2-12および図2-35～41に示す。

表2-12 各添加量における物性

| 試作品名* | リアクティブ処理木粉 | 木粉50%の物性 | | | | | | | | | | |
|-------------|------------|----------|------|------|-----|-------------------|-----------------------------|-----|-----|-----|-------|-------------------|
| | グラフト率 | 曲げ試験 | | 引張試験 | | 比重 | せん断粘度 (Visc. (Pa-s)) : 180℃ | | | | | アイソット衝撃強度 |
| | | 強度 | 弾性率 | 強度 | 弾性率 | | せん断速度 (1/s) | | | | | |
| | % | MPa | GPa | MPa | GPa | g/cm ³ | 500 | 334 | 223 | 149 | 100 | kJ/m ² |
| MA:PO=2:0.5 | 0.22 | 73.2 | 4.48 | 46.2 | 3.0 | 1.12 | 483 | 603 | 753 | 952 | 1,208 | |
| MA:PO=4:1 | 0.32 | 74.9 | 4.53 | 44.1 | 3.2 | 1.11 | 487 | 610 | 771 | 967 | 1,158 | 12.6 |

* MA:無水マレイン酸、PO:有機過酸化物

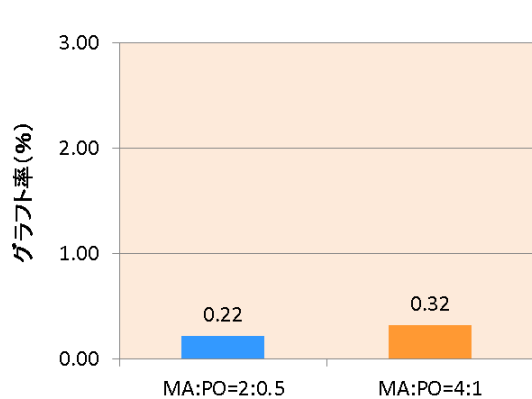


図2-35 各添加量におけるグラフト率

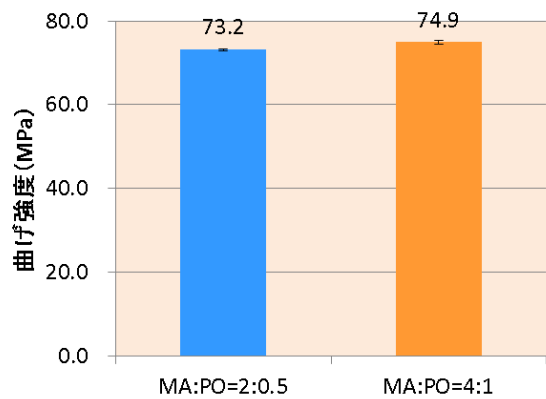


図2-36 各添加量における曲げ強度

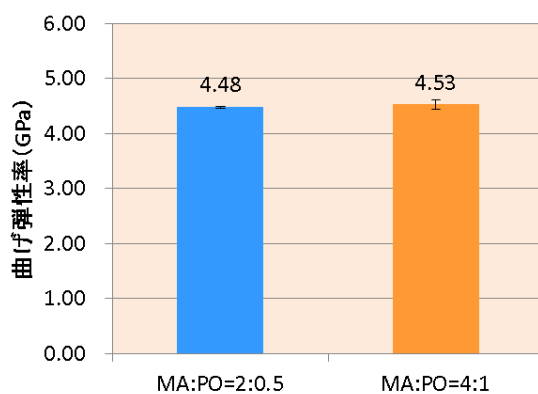


図2-37 各添加量における曲げ弾性率

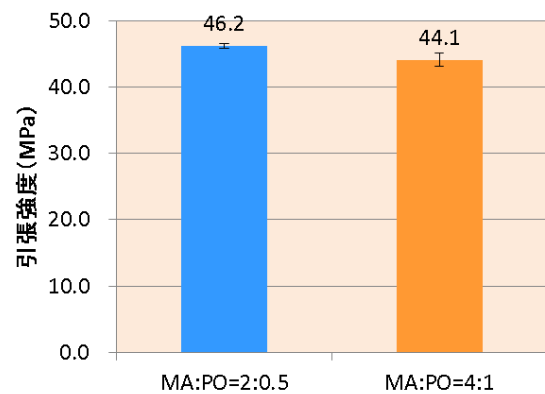


図2-38 各添加量における引張強度

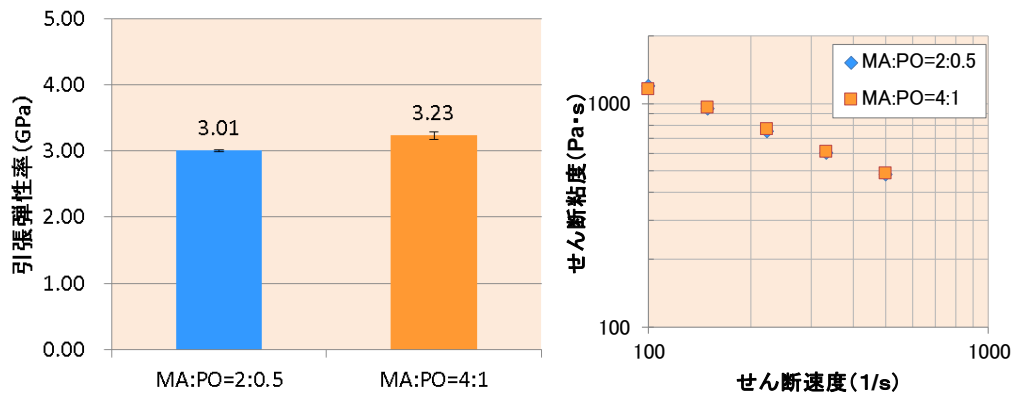


図 2 - 3 9 各添加量における引張弾性率 図 2 - 4 0 各添加量におけるせん断粘度

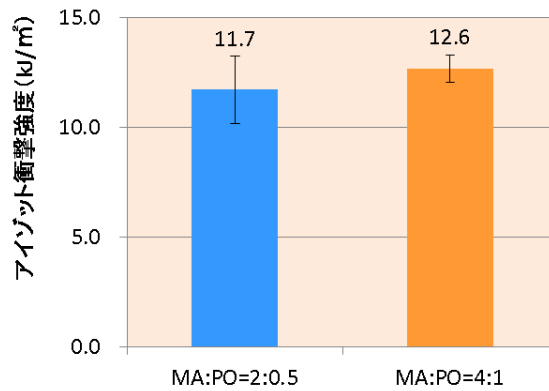


図 2 - 4 1 各添加量における衝撃強度

無水マレイン酸および有機過酸化物の添加量を半減させてもあまり物性が下がらないことが確認できた。原材料費を加味し、無水マレイン酸は 2phr，有機過酸化物は 0.5phr が適当と考えられる。

2.1.2.1.8 まとめ

ラボプラストミルにてリアクティブ処理木粉の原材料の検証を実施した。木粉 80phr に対し、CNF 複合材廃材モデル樹脂 20phr，無水マレイン酸 2phr，有機過酸化物としてトリゴノックス 42 を 0.5phr が物性および原材料費の面から適当と考えられる。

2.1.2.2 量産設備によるリアクティブ処理木粉を用いた WPC 原料の試作

2.1.2.2.1 目的

「2.1.2.1 リアクティブシステムによる酸変性技術を用いた WPC 原料の製造」ではラボレベルにおける CNF 複合材廃材モデル樹脂、無水マレイン酸および有機過酸化物を用いたリアクティブシステムによる木粉表面処理を行った木粉を用いた WPC の物性を検討した。しかし、ラボレベルと量産に向けた設備を利用した際の PP 複合材料の物性の確認が必要である。ここでは、実際に製造現場で用いられているバッチ式量産設備であるヘンシェル型ミキサーを使用した。ヘンシェル型ミキサーは原材料を高速攪拌することで、材料同士の衝突により発生する摩擦熱で加熱し、プラスチックとフィラーを熔融混練する仕組みを持っている。この混練と昇温を行う過程の中でリアクティブ処理木粉を作製するため、無水マレイン酸と有機過酸化物の添加のタイミングや処理時間が重要になる。ここでは、量産に向けたヘンシェル型ミキサーによるリアクティブ処理の条件を検討するため、無水マレイン酸と有機過酸化物の添加温度や処理時間等を変化させて作製したリアクティブ処理木粉を用いた WPC の物性評価を行った。

2.1.2.2.2 試験方法

2.1.2.2.2.1 原材料

「2.1.1 原材料 (CNF 複合材廃材) の検証」にて選定した CNF 複合材廃材モデル樹脂 (CNF 固形分濃度 5%) を用いた。木粉には粒径 150 μm 以下 (平均粒径約 100 μm) の市販木粉 (C100、レッテンマイヤー) を用いた。マトリックス樹脂には PP ペレット (PPJ107G、プライムポリマー) を使用した。また、リアクティブシステムによる木粉の酸変性処理に用いた無水マレイン酸および有機過酸化物 (トリゴノックス 42、化薬アクゾ) を用いた。有機過酸化物は前項にて定めた条件から、選択した。各材料の写真を図 2-42 に示す。



図 2-42 原材料の写真

2.1.2.2.2 リアクティブ処理木粉の作製

木粉 80phr、CNF 複合材廃材モデル樹脂 20phr に対し、無水マレイン酸 2phr、有機過酸化物 0.5phr を加え、ヘンシェル型ミキサー（SMV-20A、カワタ）にて混練し、リアクティブ処理木粉を作製した。木粉、CNF 複合材廃材モデル樹脂のミキサーへの投入温度はミキサー内温度 100℃に固定した。図 2-43 にリアクティブ処理木粉作製の概要と作製されたリアクティブ処理木粉の一例を示す。

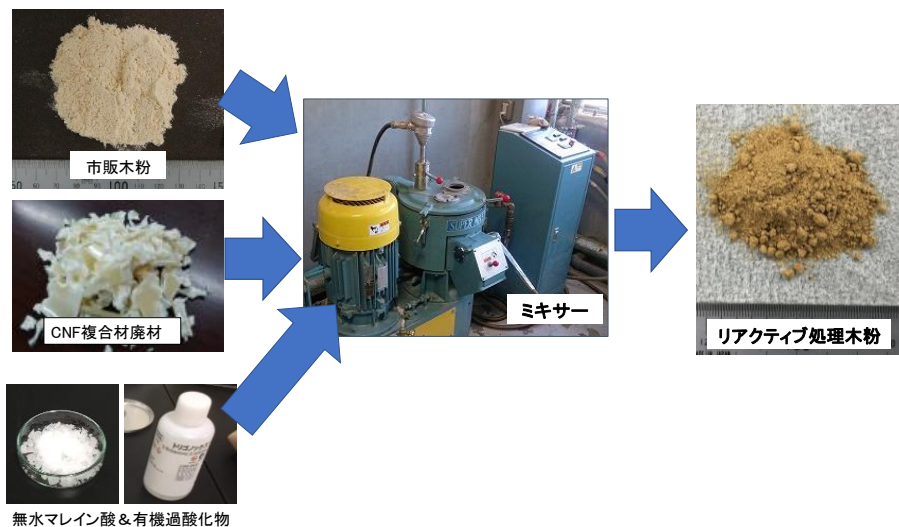


図 2-43 リアクティブ処理木粉作製概要とリアクティブ処理木粉の一例

続いて表 2-13 に作製したリアクティブ処理木粉の配合比、処理条件を示す。

表 2-13 リアクティブ処理木粉の配合比および処理条件

| サンプル名 | 配合比 | | | | 無水マレイン酸と有機過酸化物を添加するミキサー温度 (°C) | 無水マレイン酸と有機過酸化物添加後の処理条件 |
|-------|----------------------|------------|---------------|--------------|--------------------------------|------------------------|
| | CNF複合材廃材モデル樹脂* (phr) | 市販木粉 (phr) | 無水マレイン酸 (phr) | 有機過酸化物 (phr) | | |
| M1 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 100 | 190℃到達まで処理 |
| M2 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 120 | 190℃到達まで処理 |
| M3 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 140 | 190℃到達まで処理 |
| M4 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 160 | 190℃到達まで処理 |
| M5 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 180 | 190℃到達まで処理 |
| M6 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 180 | 180℃で5分処理後に190℃到達まで処理 |
| M7 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 180 | 180℃で20分処理後に190℃到達まで処理 |

*CNF複合材廃材モデル樹脂のCNF添加率は5%

条件 M1-M5 は無水マレイン酸と有機過酸化物の添加温度の影響を確認するため、条件 M5-M7 は無水マレイン酸と有機過酸化物投入後の処理時間が与える影響を確かめるために検討した条件である。

2.1.2.2.2.3 リアクティブ処理木粉を用いた WPC コンパウンドの作製

材料比が木粉 50%となるようにリアクティブ処理木粉に PP を加え、2 軸ベント式押出成形機 (AS30 m/m、ナカタニ機械) にて押出成形を行い、ペレット状の WPC コンパウンドを得た。混練条件は、ダイス側より設定温度 190°C/190°C/200°C/215°C/200°C/165°C、スクリー回転数：85rpm とし、その際の処理量は 9-12kg/h であった。コンパウンド作製の概要と作製されたコンパウンドの一例を図 2-44 に示す。また、リアクティブ処理木粉を利用した条件の比較対象として、市販木粉 50%、PP50%を直接押出成形した Control 条件 (相溶化剤無添加のブランク) を用意した。

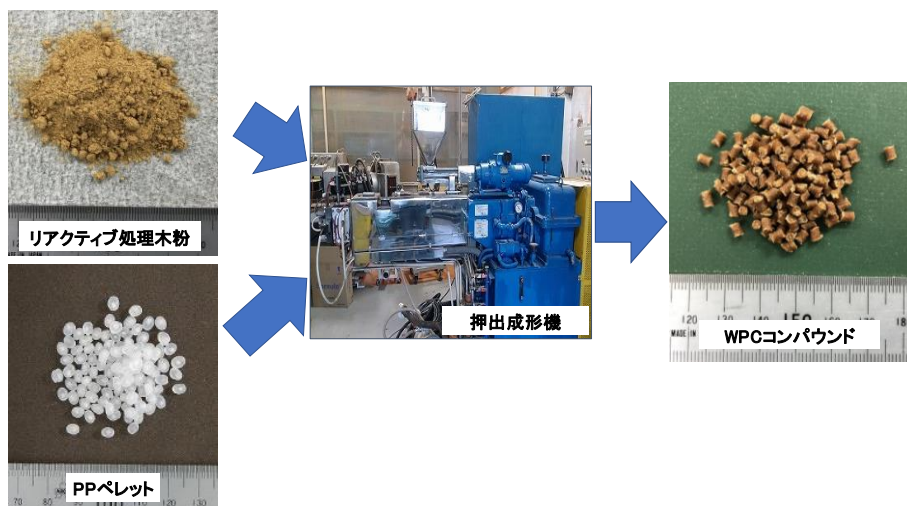


図 2-44 コンパウンド作製の概要と作製されたコンパウンドの一例

2.1.2.2.2.4 コンパウンドの流動特性測定

WPC コンパウンドについてキャピラリーレオメータ (LCR7000、日本ダイニスコ) による流動性試験を行った。キャピラリーレオメータは異なるせん断速度下における熔融粘度を測定することができる装置であり、通常用いられるメルトインデクサーによる指標よりも多くの情報が得られる特徴がある。測定条件はダイ径 2.0mm、熔融温度 180°C、試料投入量 9g、事前熔融時間 300s とし、せん断速度 100、150、224、334、500s⁻¹ の 5 段階にて熔融粘度を算出した。これは「2.1.2.1.3 物性試験」と同様の条件である。

2.1.2.2.2.5 WPC 試験片の作製

作製したコンパウンドを 80°C に設定した強制対流定温乾燥器にて 8 時間以上乾燥した後、小型射出成形機 (BABYPLAST、Rambaldi) を用いて、短冊形試験片、ダンベル形試験片に成形した。短冊形試験片は厚さ 3mm、幅 10mm、長さ 60mm とし、成形温度 200°C、射出圧 50bar にて作製した。ダンベル形試験片は、平行部の寸法を厚さ 2mm、幅 5mm、長さ 15mm、つかみ部幅 12mm、全長 60mm とし、成形温度 200°C、射出圧 50bar にて作製した。試験片作製の概要と作製された試験片の一例を図 2-45 に示す。



図 2-4-5 試験片作製の概要と作製された試験片の一例

2.1.2.2.2.6 吸水試験

短冊形、ダンベル形両試験片を用いて、吸水試験を行った。吸水はステンレスポット内に水と試験片を入れ、強制対流定温乾燥器内に静置する方式とした。水温は 60℃とし、1 週間吸水し、2、4、7 日目の吸水率を下記式 (2-6) により算出した。

$$WA_t = \frac{(W_t - W_0)}{W_0} \times 100 (\%), \quad (2-6)$$

W_t は吸水時間(t)における重量であり、 W_0 は常態条件における重量である。

2.1.2.2.2.7 引張試験

ダンベル形試験片を用いた引張試験を万能試験機 (Tensiron RTG-1250、エー・アンド・デイ) により実施し、引張強度および引張弾性率を算出した。これは「2.1.2.1.3 物性試験」と同様の条件である。

2.1.2.2.2.8 曲げ試験

短冊形試験体を用いた曲げ試験を万能試験機 (Tensiron RTG-1250、エー・アンド・デイ) により実施し、曲げ強度および曲げ弾性率を算出した。これは「2.1.2.1.3 物性試験」と同様の条件である。

2.1.2.2.2.9 衝撃試験

衝撃試験は容量 2 J のハンマーで打撃するノッチなしアイゾット衝撃試験とした。これは「2.1.2.1.3 物性試験」と同様の条件である。

2.1.2.2.3 結果と考察

2.1.2.2.3.1 リアクティブ処理木粉の処理時間の評価

図2-46にリアクティブ処理木粉作製時の処理時間と処理温度の関係を示す。図2-46aは無水マレイン酸と有機過酸化物の添加タイミングを変化させた条件の処理時間と処理温度の関係である。条件M1-M5では温度変化の挙動は同様であり、190℃までの到達時間は条件M3（ミキサー温度140℃にて無水マレイン酸と有機過酸化物を加えた条件）は他の条件よりも長かったが、それ以外の条件では同程度となった。図2-46bは無水マレイン酸と有機過酸化物の添加後の処理時間を変化させたリアクティブ処理木粉の処理時間と処理温度の関係である。初期の温度上昇の挙動は条件M5-M7で同様であった。

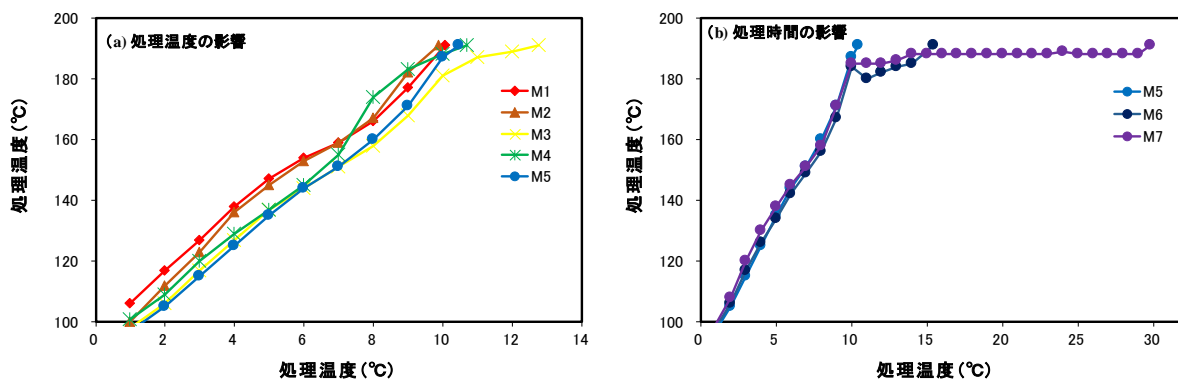


図2-46 リアクティブ処理木粉作製時の処理時間と処理温度の関係

以上より、無水マレイン酸と有機過酸化物の添加がリアクティブ処理における処理時間と処理温度に与える影響は小さいことが示唆された。また、ここで得られた消費電力の測定結果をCO₂排出量評価用データとして利用した。

2.1.2.2.3.2 流動特性評価

図2-47にせん断速度100-500s⁻¹におけるWPCの溶融粘度を示す。リアクティブ処理を行っていない条件Controlは、処理を行った条件M1-M7に比べて、各せん断速度に対する溶融粘度が高かった。有機過酸化物はPP鎖を切断し分子量を低下させることでPPの溶融粘度を低下させることが知られている。よって、無水マレイン酸を含む材料の溶融粘度が低くなったのは、有機過酸化物の存在によってPP鎖の切断が生じたためだと考えられる。無水マレイン酸と有機過酸化物の添加処理温度の影響を検討した条件M1-M5を見ると、100℃で添加した条件M1が最も高い粘度となり、120℃で添加した条件M2が次点、それ以上の添加温度では同程度となった(図2-47a)。図2-47bには無水マレイン酸と有機過酸化物の処理時間の違いが溶融粘度に与える影響を示した。条件M5-M7においては、溶融粘度はすべてのせん断速度下で同程度となった。よって、無水マレイン酸と有機過酸化物をミキサー温度180℃で添加した際には、処理時間の変化は溶融粘度に大きな影響を及ぼさないことが示唆された。

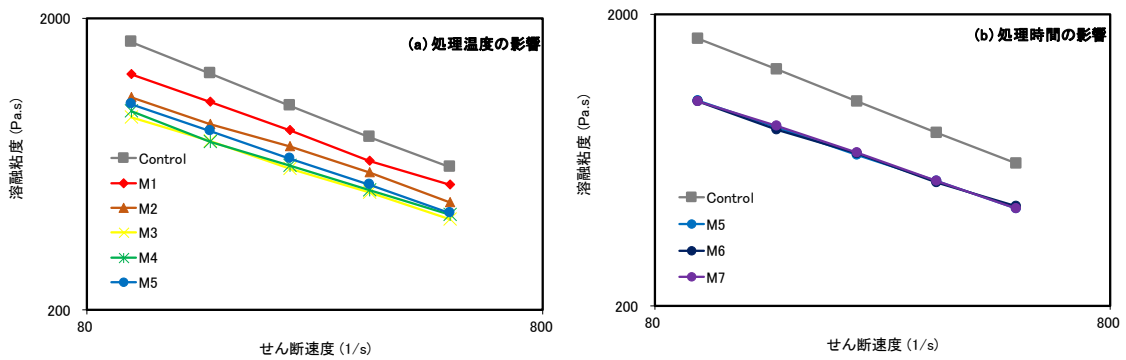


図 2-47 せん断速度 100-500(1/s)における WPC の熔融粘度

以上より、リアクティブ処理木粉を用いることで、未処理の条件より熔融粘度が低下する結果となった。熔融粘度の低下は生産性に直結するため、リアクティブ処理は生産性向上に効果的な手法であると考えられる。

2.1.2.2.3.3 リアクティブ処理木粉を用いた WPC の物性

図 2-48 に引張強度を示す。リアクティブ処理木粉を用いた WPC は未処理の Control 条件と比較し、すべての条件で高い引張強度となった。よって、リアクティブ処理は CNF 複合材廃材を有効活用する手法として、適していると考えられる。添加温度の違いが引張特性に与える影響を検討した条件、すなわち M1-M5 を見ると、条件 M3 および M4 で引張強度は低く、そのほかの添加温度では同程度となった。また、処理時間の違いが引張特性に与える影響を検討した条件、すなわち M5-M7 を見ると、明確な傾向はみられなかった。そのため、処理時間の影響はほとんど受けないことが示唆された。

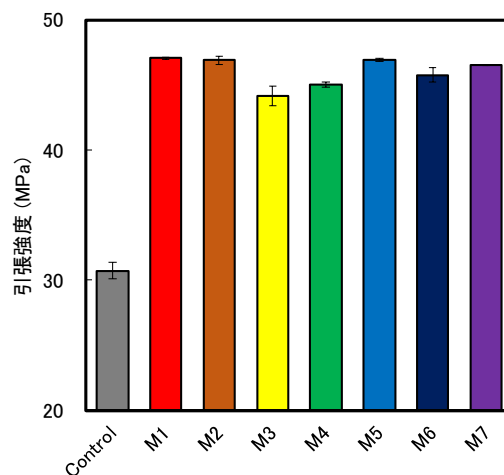


図 2-48 引張強度

図 2-49 に引張弾性率を示す。リアクティブ処理木粉を用いた WPC の引張弾性率は一般的に Control よりも高い値を示した。無水マレイン酸と有機過酸化物の添加温度の影響 (M1-M5) を見ると、条件 M2 で高い値を示したが、それ以外の添加温度では差はみられなかった。一方、引張弾性率は M7>M6>M5 の順に高くなった。処理時間が長いほど引張弾性率が向上する傾向がみられた。

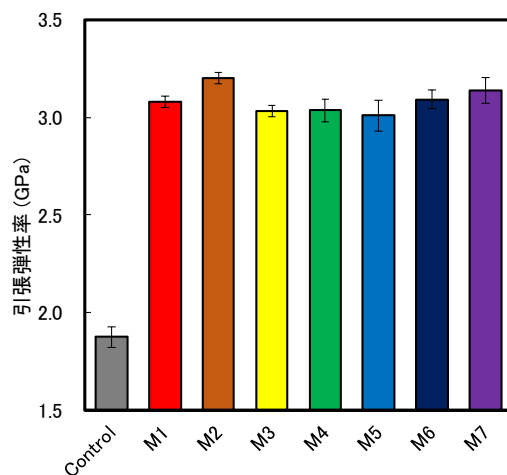


図 2-49 引張弾性率

図 2-50 に曲げ強度を示す。曲げ強度には Control (相容化剤無添加のブランク) に対し、曲げ強度 20%向上という目標性能に対して、リアクティブ処理木粉を用いたすべての条件で、目標は達成された。よって、リアクティブ処理が CNF 複合材廃材を有効利用する手法であることが確かめられた。添加温度の影響について検討した条件 (M1-M5) を見ると、添加温度 140°C (条件 M3) まで強度が低下し、それ以上の温度では上昇に転じた。これは有機過酸化物の反応温度が関与している可能性がある。一方、処理時間の違いが曲げ強度に与える影響 (M5-M7) を見ると、M7>M5>M6 の順に高い曲げ強度となった。よって、処理時間と曲げ強度の間には明確な関係はみられなかった。

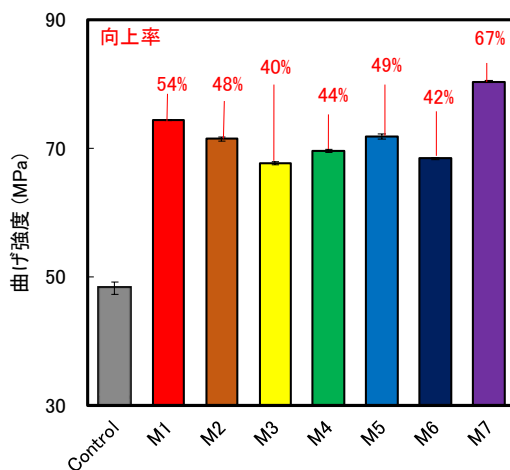


図 2-50 曲げ強度

図 2-5 1 に曲げ弾性率を示す。曲げ弾性率を見ると全般的に Control よりもリアクティブ処理木粉を用いた条件が低い値となった。これは引張弾性率と異なる傾向であった。処理温度の影響を見ると、曲げ強度と同様に条件 M3 で値が低下する結果となった。また、条件 M5-M7 は同程度の結果を示し、処理時間の影響は無いものと考えられる。

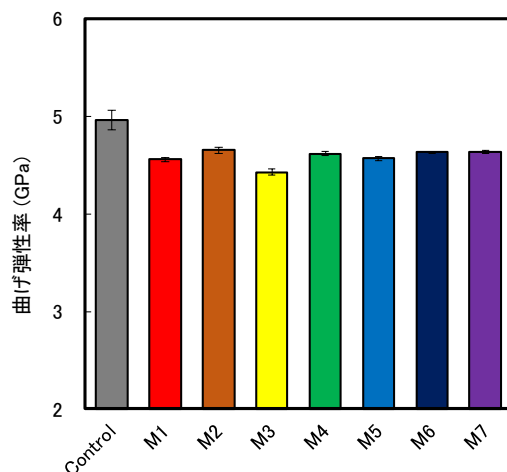


図 2-5 1 曲げ弾性率

図 2-5 2 に衝撃強度を示す。Control と比較し、リアクティブ処理木粉を用いたすべての条件で強度の向上が見られた。添加温度の違いが衝撃特性に与える影響 (M1-M5) を見ると、条件 M3 の衝撃強度が他の条件よりも低くなった。これは引張、曲げ特性と同様の傾向であった。本項で作製されたリアクティブ処理木粉を用いた WPC の物性は 140℃付近で無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した際には効果が低下する可能性が示された。処理時間の違いが衝撃強度に与える影響 (M5-M7) を見ると、M5>M7>M6 の順に高い値となった。処理時間と衝撃強度の間には明確な関係はみられなかった。

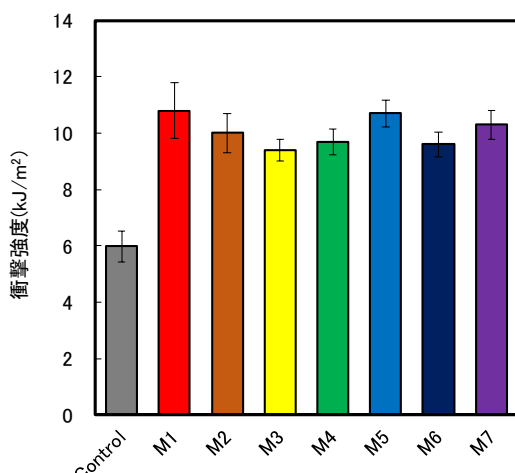


図 2-5 2 衝撃強度

以上より、リアクティブ処理木粉を用いることで、未処理の条件より強度特性が向上する結果となった。物性の向上が見られたため、リアクティブ処理は WPC 製品の性能向上に効果的な手法と言える。

2.1.2.2.3.4 WPCの吸水特性

図2-53に吸水率の経時変化を示す。吸水試験はControl、M1、M3、M5、M7について実施した。無水マレイン酸と木粉表面の水酸基の間には、エステル結合や水素結合が生じる。これは無水マレイン酸と有機過酸化物によるリアクティブ処理においても木粉表面の親水基と無水マレイン酸が反応し、エステル結合や水素結合が生じていると考えられる。その結果、フィラーの疎水化が進んだことで吸水特性が改善されたと考えられる。

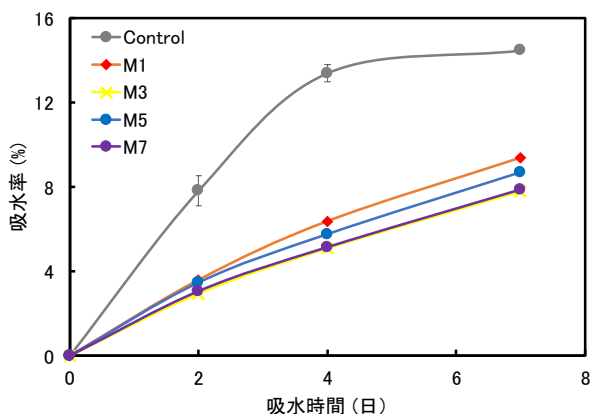


図2-53 吸水率の経時変化

図2-54に60℃温水浸漬、7日経過時のWPC吸水率を示す。本事業において、Control（相溶化剤未添加のblank）に対し、耐水性10%向上（吸水量10%低減）という目標性能がある。この目標はリアクティブ処理木粉を用いたすべての条件で達成した。無水マレイン酸と有機過酸化物を使用した条件では、 $M1 > M5 > M3 \approx M7$ の順に高い吸水性を示した。M3とM7は比較的長いミキサー処理時間が必要とされた条件である。木材は熱処理により、疎水化や寸法安定性の向上が見られる材料であることが古くから知られている。フィラーが長時間熱を受ける状況にいたことで疎水化が進み、さらに吸水率が減少したと考えられる。

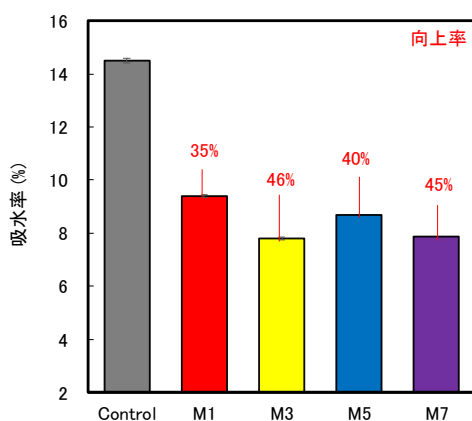


図2-54 7日経過時の吸水率

以上より、リアクティブ処理木粉を用いることで、Controlの条件より吸水率が減少する結果となった。吸水率の減少はエクステリア用ウッドデッキ等に用いられるWPCにとっては非常に大切な性質である。

2.1.2.2.4 まとめ

本項目では、量産を前提とした設備を用いてリアクティブ処理木粉を作製し、これを用いた WPC の評価を行った。主な結果は以下のとおりである。

1. バッチ型量産設備であるヘンシェル型ミキサーにより、リアクティブ処理木粉を試作した。この際、無水マレイン酸と有機過酸化物の添加がリアクティブ処理における処理時間と処理温度に与える影響は小さいことが示唆された。
2. 無水マレイン酸と有機過酸化物を添加したリアクティブ処理木粉を用いた WPC は未処理の条件より熔融粘度が低下、すなわち流動性が向上した。
3. 引張、曲げ、衝撃強度はリアクティブ処理を行うことで、Control（相容化剤無添加のブランク）より明らかに向上した。曲げ強度 20%向上という目標性能に対して、リアクティブ処理木粉を用いたすべての条件で、目標は達成した。
4. 吸水特性（60℃温水浸漬）において、Control（相溶化剤未添加のブランク）に対し、耐水性 10%向上（吸水量 10%低減）という目標性能はリアクティブ処理木粉を用いたすべての条件で達成した。

以上より、リアクティブ処理を行うことで、未処理の条件よりも WPC の物性が向上することが確かめられた。

これは CNF 複合材廃材を WPC に用いるに際し、リアクティブ処理が有用な手法であることを示しており、量産設備においてもリアクティブ処理が有効であることを明らかにした結果である。

2.1.2.3 リアクティブシステムで作成した表面処理木粉を用いて作成した WPC 製品の評価

2.1.2.3.1 概要

「2.1.2.1 リアクティブシステムによる酸変性技術を用いた WPC 原料の製造」において求めたラボレベルでのリアクティブ処理最適レシピの結果を元に、量産設備での製造テストを実施し、LCA 算出に使用する電力データを取得した。また、リアクティブ処理木粉を利用した WPC の信頼性評価について実施した。

2.1.2.3.2 WPC 製品の試作

CNF 複合材廃材によりリアクティブ処理された木粉を用いた WPC デッキについて量産設備を用いて、製造テストを実施した。リアクティブ処理木粉にバージン PP を加え木粉量を 50% となるように調整した材料を用いて成形した。また、2018 年 2 月に JIS A 5741「木材・再生プラスチック複合材」にて R60（リサイクル材料使用率 60%）以上の基準に合致するウッドプラスチックデッキがグリーン調達品目に登録されたことから、本処理技術を採用した容器包装リサイクル樹脂をベース樹脂として使用したサンプルの作製も実施した。

2.1.2.3.2.1 試作条件

原材料、使用設備、試作場所は以下のとおりである。

○原材料

①CNF 複合材廃材リアクティブ処理木粉+バージン樹脂 PP（木粉量 50%）

②CNF 複合材廃材リアクティブ処理木粉+容器包装リサイクル樹脂（木粉量 50%）

○設備 Φ55mm コニカル 2 軸押出機（型式：KCT-55（株）北畑鉄工所製）

○場所（株）エコフィール 福山工場

製品試作はバージン樹脂 PP を用いた条件と容器包装リサイクル樹脂を用いた条件の 2 条件を設定した。成形条件は以下表 2-14, 15 のとおりである。

表 2-14 バージン樹脂 PP 利用の場合の成形条件

| 部位 | SC | C-1 | C-2 | C-3 | C-4 | AD1 | AD2 | |
|----------|--------|----------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 設定温度(°C) | 50 | 180 | 183 | 185 | 185 | 183 | 183 | |
| 部位 | D-1 | D-2 | D-3 | D-4 | D-5 | D-6 | D-7 | D-8 |
| 設定温度(°C) | 180 | 178 | 175 | 170 | 170 | 170 | 170 | 150 |
| スクリー | フィーダー | 吐出 | | | | | | |
| 8.2rpm | 8.0rpm | 29.9kg/h | | | | | | |

表 2-15 容器包装リサイクル樹脂利用の場合の成形条件

| 部位 | SC | C-1 | C-2 | C-3 | C-4 | AD1 | AD2 | |
|----------|--------|----------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 設定温度(°C) | 50 | 150 | 160 | 170 | 175 | 173 | 173 | |
| 部位 | D-1 | D-2 | D-3 | D-4 | D-5 | D-6 | D-7 | D-8 |
| 設定温度(°C) | 178 | 178 | 175 | 160 | 160 | 160 | 160 | 140 |
| スクリー | フィーダー | 吐出 | | | | | | |
| 8.2rpm | 8.0rpm | 29.9kg/h | | | | | | |

2.1.2.3.2.2 試作工程および製品概要

リアクティブ処理木粉を利用したWPCウッドデッキ成形テストの状況を図2-55に、製造されたウッドデッキサンプルを図2-56に示す。

押出時の変動（サージング）も観察されず安定な押出成形性を確認することができた。成形したウッドデッキサンプルの物性測定の結果を図2-57、58に示す。また、ここで得られた消費電力の測定結果をCO2排出量評価用データとして利用した。



図2-55 押出成形時の様子



図2-56 WPC成形テスト品 (W156×H20)

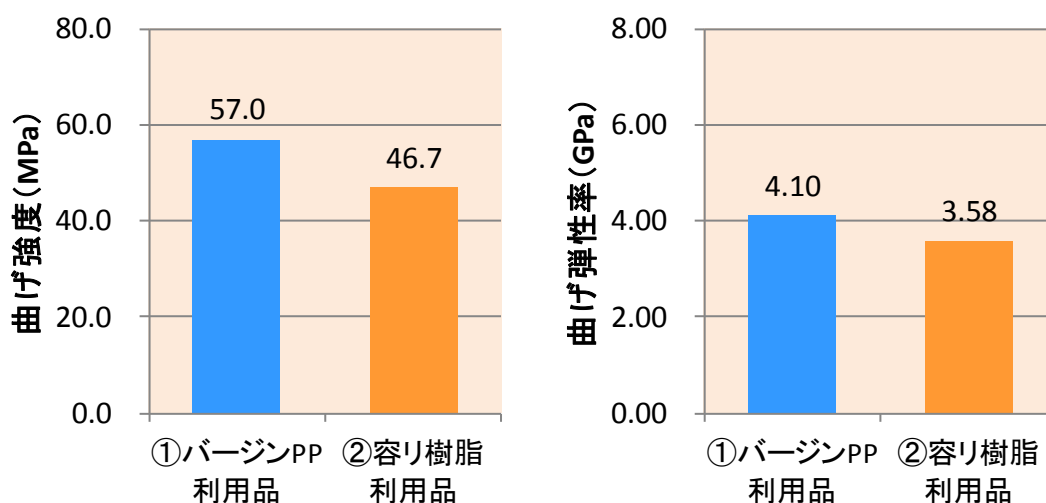


図 2-57 WPC ウッドデッキ用材料の曲げ試験結果

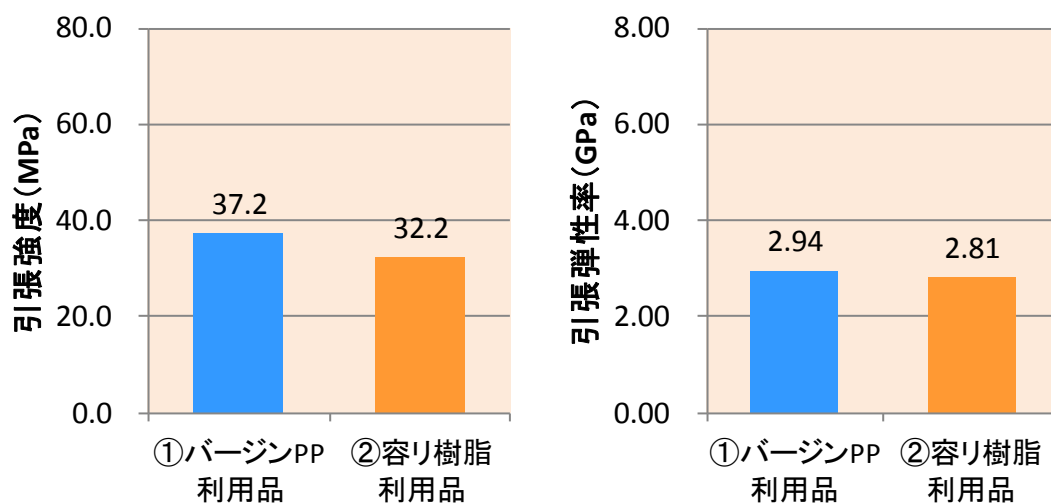


図 2-58 WPC ウッドデッキ用材料の引張試験結果

JIS A 5741「木材・プラスチック再生複合材」にて規定された曲げ強度の基準は 20MPa となっている。上記の結果より、本製造プロセスで作製されたウッドデッキは一般的に使用できるレベル（JIS A 5741 基準）以上の強度を保有していることが確認できた。

2.1.2.3.3 コンパウンドおよびWPC製品の信頼性評価

2.1.2.3.3.1 目的（信頼性評価の意義等）

材料の疲労破壊は引張強度以下で生じるため、構造用材料にとって疲労破壊は極めて深刻である。したがって、長期にわたって耐荷材として利用される材料では、安全な疲労設計をするためには、材料の疲労特性に関する知見が非常に重要である。短期的な負荷における変形と長期的な負荷による変形のメカニズムは同一とは限らないため、長期的に耐荷材として使用される材料の変形や破壊を予測するために引張試験のみを用いるのは不十分である。疲労強度が引張強度に依存し、一般的に高い引張強度を持つ材料は疲労強度も高いとはいうものの、この関係はいつでも当てはまるわけではなく、特に低い負荷を繰り返しかけた場合に顕著である。したがって、低い繰り返し負荷において、ある材料は疲労損傷が小さくなり、結果として耐疲労性が向上する。また、複合材料の疲労寿命を推定することは、疲労試験のデータにばらつきが大きいことから重要な問題である。均一な材料の場合、亀裂成長速度は単一の欠点における線形破壊力学で推定することができるが、複合材料の場合では疲労は繊維の破断やマトリックスの欠点やひび、繊維—マトリックス界面の層間はく離などによって生じる。さらに、複合材料の場合は、その不均一性から、割裂が全体に広がったり、硬いフィラーの存在によって割裂の拡大が妨げられる。このようなことから、複合材料の疲労試験のデータはばらつきが大きくなる。したがって、様々な負荷条件下における疲労試験に基づく疲労解析と疲労信頼性の検証は安全な疲労設計のために極めて重要である。

既往の研究^{※3,4}より、湿式粉碎木粉で補強したPPベースのWPCでは高い疲労寿命を持つことが示されている。これは木粉を湿式粉碎することで表面に生じたフィブリル構造によるフィラー表面積の増加により、PPと木粉の界面相互作用がより強くなることを意味している。また、WPCの疲労寿命が向上することは、フィブリル化木粉が高い亀裂抵抗を示すことを示唆している。これらの研究と同様に、CNF複合材廃材は、ナノサイズの繊維であるCNFによるフィラーの表面積増加およびナノ繊維を利用しているため、PPとの界面相互作用も強くなることから、高い疲労寿命を示すと考えられる。加えて、本試験ではCNF複合材廃材モデル樹脂、木粉、無水マレイン酸および有機過酸化物を混合したリアクティブ処理木粉を用いたWPCを作製し、その評価を行っている。リアクティブ処理による酸変性処理はCNF複合材廃材モデル、PPおよび木粉間に高い相溶性を与えることが期待されるため、高い疲労特性を示すことが期待される。

以上を背景に、CNF複合材廃材モデル樹脂を用いて試作したWPC試験片の疲労試験とその結果を用いた疲労解析と疲労信頼特性を行った。

引用・参考資料

※3: Haque, M. M.; Goda, K.; Ito, H.; Ogoe, S.; Okamoto, M.; Ema, T.; Kagawa, K.; Nogami, H. Melt-viscosity and mechanical behaviour of polypropylene (PP)/wood flour composites: effect of pulverization of wood flour with and without water. *Advanced Industrial and Engineering Polymer Research* (article in press). <https://doi.org/10.1016/j.aiepr.2018.11.001>

※4: Minhaz-Ul Haque, Koichi Goda, Hirokazu Ito, Shinji Ogoe, Masaki Okamoto, Tomoyuki Ema, Keiko Kagawa, Hidetaka Nogami. Fatigue performance of wet and dry pulverized wood flour reinforced PP composite. *Journal of Composites Science*. (Accepted).

2.1.2.3.3.2 試験方法

2.1.2.3.3.2.1 試験片

「2.1.2.2 量産設備によるリアクティブ処理木粉を用いた WPC 原料の試作」における条件 M1～M6 のサンプルを用いた。また、比較検討用のサンプルとして、PP 単体のダンベル形試験片を作製した。表 2-16 に疲労試験に供した WPC および PP の条件を示す。

表 2-16 疲労試験に供した WPC および PP の条件

| サンプル名 | 配合比 | | | | 無水マレイン酸と有機過酸化物を添加するミキサー温度 (°C) | 無水マレイン酸と有機過酸化物添加後の混練条件 |
|-------|---------------------|------------|---------------|--------------|--------------------------------|-------------------------|
| | CNF複合廃材モデル樹脂* (wt%) | 市販木粉 (wt%) | 無水マレイン酸 (phr) | 有機過酸化物 (phr) | | |
| PP | - | - | - | - | - | - |
| M1 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 100 | 190°C到達まで混練 |
| M2 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 120 | 190°C到達まで混練 |
| M3 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 140 | 190°C到達まで混練 |
| M4 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 160 | 190°C到達まで混練 |
| M5 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 180 | 190°C到達まで混練 |
| M6 | 20 | 80 | 2 | 0.5 | 180 | 180°Cで5分混練後に190°C到達まで混練 |

*CNF廃材モデル樹脂のCNF固形分濃度は5%

PP 単体のダンベル形試験片は PP ペレットを 80°C に設定した強制対流定温乾燥器 (SOFW-600、アズワン) にて 1 日乾燥した後、小型射出成形機 (BABYPLAST 6/10P、CRONOPLAST) を用いて、成形温度 200°C、射出圧 50bar にて作製した。ダンベル形試験片は、平行部の寸法を厚さ 2mm、幅 5mm、長さ 15mm、つかみ部幅 12mm、全長 60mm とし、成形温度 200°C、射出圧 50bar にて作製した。図 2-59 に PP 単体の試験体を示す。



図 2-59 PP 単体の試験体

2.1.2.3.3.2.2 引張試験

まず疲労試験時に試験片に付与する応力を定めるため、引張試験を行った。引張試験の手順は以下のとおりである。

- ・試験体の表面中央部に 2 mm、ゲージ率 $2.14 \pm 1.0\%$ のひずみゲージ (Kyowa strain gage, KFGS-2N-120-C1-11, Japan) を貼りつけた。
- ・試験片を温度 25°C、相対湿度 40%RH の恒温恒湿室にて 5 日間養生した。
- ・材料試験機 (EHF-F1, Shimadzu, Japan) を用いて 1kN のロードセルを用いて変位速度 10 mm/min、掴み具間距離 18mm で引張試験を行った。
- ・1 条件につき 5 体の試験片で引張試験を行い、最大強度の平均を求めた。

2.1.2.3.3.2.3 疲労試験

上記 3) - 2 - 2 で求めた引張強度の平均値を、疲労試験で付与する最大の荷重とし、同様の材料試験機を用いて疲労試験を行った。試験条件は Tension-tension loading mode、応力比 0.1、繰り返し周波数 3.5Hz とし、付加する応力は最大引張強度の 90, 80, 70, 60 および 55% とした。また、試験に先立ち試験片にひずみゲージをはり、25°C、相対湿度 40%RH で 5 日間養生した。試験体数は 1 条件につき最低 2 体とした。

得られた疲労試験の実測データを対数線形回帰し、実測の疲労試験結果に基づく 95% 信頼区間を計算した。

2.1.2.3.3.3 結果と考察

2.1.2.3.3.3.1 引張特性

図 2-60 に PP および WPC の引張強度を示す。「2.1.2.2」とは試験速度やつかみ具間距離が異なっている。すべての条件で WPC は PP 単体よりも高い引張強度となった。無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した条件では、条件 M3 (無水マレイン酸と有機過酸化物をミキサー温度 140°C で添加した条件) が他と比較し、低い値となった。これらの傾向は「2.1.2.2」と同様であり、試験速度 2-20mm/min の間では、引張強度の傾向は変化しなかった。

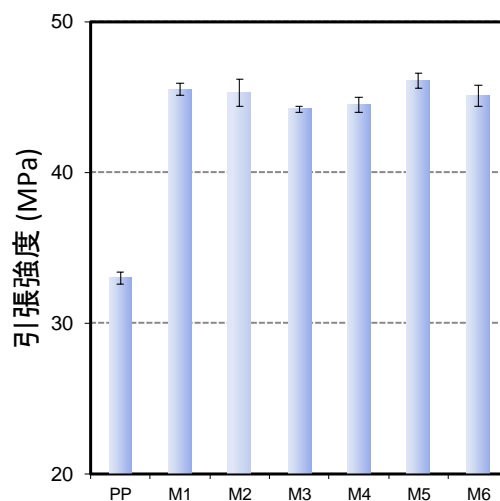


図 2-60 PP および WPC の引張強度

2.1.2.3.3.2 疲労特性

上記「2.1.2.3.3.1 引張特性」の結果から、疲労試験の付加応力を決定した。表2-17に各サンプルに対し、付加した応力を示す。

表2-17 サンプル名と疲労試験の付加応力

| サンプル名 | 引張強度 (MPa) | 疲労試験の付加応力 (MPa) | | | | |
|-------|---------------|-----------------|------|------|------|------|
| | | 90 | 80 | 70 | 60 | 55 |
| PP | 33.0 ± 0.4 | 29.7 | 26.4 | 23.1 | 19.8 | 18.2 |
| M1 | 45.5 ± 0.4 | 41.0 | 36.4 | 31.9 | 27.3 | 25.0 |
| M2 | 45.3 ± 0.9 | 40.8 | 36.2 | 31.7 | 27.2 | 24.9 |
| M3 | 44.2 ± 0.2 | 39.8 | 35.4 | 30.9 | 26.5 | 24.3 |
| M4 | 44.5 ± 0.5 | 40.1 | 35.6 | 31.2 | 26.7 | 24.5 |
| M5 | 46.1 ± 0.5 | 41.5 | 36.9 | 32.3 | 27.7 | 25.4 |
| M6 | 45.1 ± 0.7 | 40.6 | 36.1 | 31.6 | 27.1 | 24.8 |

疲労特性を検討するにあたって、最大応力と破壊時のサイクル数 (S-N) の関係をプロットした。これらの関係に対して、下記の式を用いて対数線形回帰を行った。

$$\sigma_{\max} = b \cdot \log(N) + c \quad (2-7)$$

ここで、 σ_{\max} は最大荷重、N は破壊に要したサイクル数を示す。b と c は材料に固有の定数である。それぞれの作製条件において、回帰式と実測値の相関係数は-0.83 程度、決定係数は 0.98 以上であった。相関係数-0.83 は σ_{\max} と $\log(N)$ の間に強い負の線形関係があることを示す。回帰式 (2-8) は Mandell によって考案された疲労モデル (3) に良く似ている。

$$\sigma_{\max} = b \cdot \log(N) + \sigma_{\text{uts}} \quad (2-8)$$

ここで、 σ_{uts} は最大引張強度である。2 種類のサイクル数に対する各種 WPC の疲労強度を式 (2-7) に基づき計算した結果を表 2-18 にまとめた。PP 単体と比較し、WPC では明らかに高い疲労強度を示した。一般的に、複合材料はマトリックス単体よりも高い疲労特性を示す。これは硬いフィラー粒子がマトリックスに生じた亀裂先端部におけるマトリックスの変形を軽減するからである。WPC のサイクル数 10^3 における疲労強度を見ると最大値は条件 M2 となり、最小値は条件 M6 となった。ただし、条件ごとの値の差は小さく、無水マレイン酸と有機過酸化物の処理時間や処理温度はほとんど疲労強度に影響を及ぼさない結果となった。

表 2-18 最大応力と破壊時のサイクル数(S-N)の関係

| サンプル名 | 引張強度 (MPa) | *異なるサイクル数 (N)における疲労強度 (MPa) | |
|-------|------------|-----------------------------|---------------------|
| | | 10 ³ (N) | 10 ⁶ (N) |
| PP | 33.0 ± 0.4 | 25.5 | 17.9 |
| M1 | 45.5 ± 0.4 | 40.3 | 27.1 |
| M2 | 45.3 ± 0.9 | 41.0 | 26.9 |
| M3 | 44.2 ± 0.2 | 39.0 | 24.9 |
| M4 | 44.5 ± 0.5 | 39.1 | 26.0 |
| M5 | 46.1 ± 0.5 | 40.6 | 27.1 |
| M6 | 45.1 ± 0.7 | 38.1 | 25.6 |

*疲労強度は式(2-7)により算出した

また、各付加荷重における破壊時の強度とサイクル数の関係を図2-61に示す。一般的に複合材料の疲労寿命はPP単体よりも高いが、実測値においてもこの傾向が見られた。続いて、無水マレイン酸と有機過酸化物の添加温度が疲労寿命に及ぼす影響について条件M1-M5を比較し検討した。条件M3とM4、すなわち、無水マレイン酸と有機過酸化物を温度140、160℃で添加したリアクティブ処理木粉を用いたWPCは他の条件よりも低い疲労特性を示した。条件M3が低い傾向は引張強度と同様である。その他の添加温度ではほとんど差が見られないことから、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加する温度には適正值があると考えられる。また、条件ごとの差はサイクル数が増えるほどその差は小さくなったため、疲労期間が長くなるほど、添加温度が疲労寿命に与える影響は小さくなると考えられる。続いて、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した後の処理時間を変化させた条件について確認した。処理時間の短い条件M5のほうが処理時間の長い条件M6より高い疲労寿命を示した。疲労寿命は無水マレイン酸と有機過酸化物の処理時間が短いほうが長くなる可能性が示された。また、添加温度同様、疲労期間が長くなるほど処理時間が疲労寿命に与える影響は小さくなった。無水マレイン酸と有機過酸化物の添加温度および処理時間を変化させると疲労特性も変化することから、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した条件ではPP、CNF複合材廃材モデル樹脂および木粉の間に何らかの相互作用が生じていると考えられる。

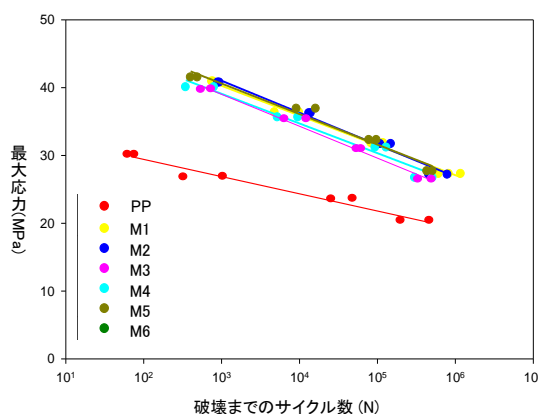


図 2-61 PP 単体および複合材料の S-N 曲線

2.1.2.3.3.3 疲労信頼性評価

疲労試験における試験結果のばらつきが大きかったため、疲労強度が減少しているかの判断は明確にできていない。そこで、疲労信頼性評価を行った。疲労信頼性を推定するため、疲労試験の結果より、95%信頼区間を計算した。図2-62に一例としてPP単体、M1の疲労試験データの95%信頼区間を示す。これはSigma plot ソフトウェアを用いて算出した。上側95%信頼区間は破壊される確率が95%であることを示し、下側95%信頼区間では破壊が生じる確率が95%であることを示す。

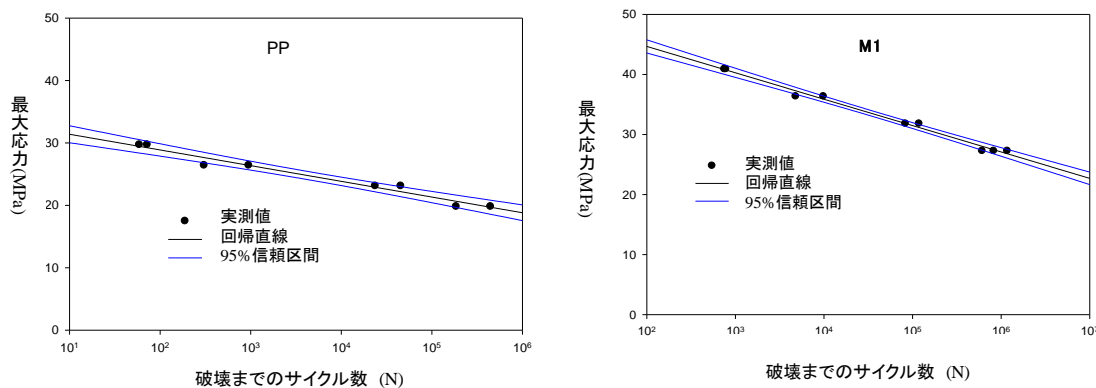


図2-62 PPおよびM1の疲労試験データの95%信頼区間

95%信頼区間に基づき算出した様々な繰り返しサイクル数における疲労強度を表2-19にまとめた。サイクル数にかかわらず信頼区間は上限と下限の間で1-3 MPa程度の差が生じた。サイクル数が増えるほどPP単体とWPCの疲労強度に差は小さくなった。下側95%信頼区間では95%の試験体で破壊が生じないことになるので、表2-19の結果は95%の確率で破壊しない材料の信頼性指標として扱うことができる。この指標をみるとPP単体と比較し、明らかにWPCは高い疲労強度を示した。無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した温度が異なる条件(M1-M5)を比較すると、M3とM4が低い値を示した。この結果は疲労強度と同様であり、95%信頼区間を算出しても傾向は変化しなかった。また、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した後の処理時間を変化させた条件(M5、M6)をみるとM5のほうが高い信頼区間となった。

表2-19 95%信頼区間に基づき算出した繰り返しサイクル数における疲労強度

| サンプル名 | 異なる繰り返しサイクル数(N)における疲労強度 (MPa) | | | | | | |
|-------|-------------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | 10 ³ | 10 ⁴ | 10 ⁵ | 10 ⁶ | 10 ⁷ | 10 ⁸ | 10 ⁹ |
| PP | 25.4-27.3 | 22.9-24.7 | 20.5-22.2 | 18.0-19.7 | 15.5-17.1 | 13.0-14.6 | 10.5-12.0 |
| M1 | 39.5-41.0 | 35.2-36.6 | 30.8-32.2 | 26.4-27.8 | 22.0-23.4 | 17.6-18.9 | 13.3-14.5 |
| M2 | 39.9-42.1 | 35.2-37.4 | 30.5-32.7 | 25.8-27.9 | 21.0-23.2 | 16.3-18.5 | 11.6-13.8 |
| M3 | 38.1-40.0 | 33.4-35.2 | 28.9-30.4 | 24.2-25.6 | 19.6-20.8 | 15.0-16.1 | 10.4-11.3 |
| M4 | 37.6-40.6 | 33.4-36.0 | 29.1-31.5 | 24.9-27.0 | 20.7-22.5 | 16.4-18.0 | 12.2-13.5 |
| M5 | 39.2-42.0 | 34.8-37.4 | 30.5-32.7 | 26.1-28.1 | 21.7-23.4 | 17.4-18.8 | 13.0-14.1 |
| M6 | 37.4-38.7 | 33.3-34.5 | 29.1-30.4 | 25.0-26.2 | 20.8-22.0 | 16.7-17.9 | 12.5-13.7 |

2.1.2.3.3.4 まとめ

本研究ではCNF複合材廃材樹脂を用いたWPCの疲労解析と疲労信頼性を報告した。また、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加した際の添加温度および無水マレイン酸と有機過酸化物添加後の処理時間の違いがWPCの疲労特性に及ぼす影響を評価した。無これにより算出されたリアクティブ処理木粉を使用したWPCの下側95%信頼区間は95%の確率で試験体が破壊しない（試験体が破壊される確率は5%）ことを示す。これにより計算された疲労寿命は95%の確度を持った信頼性指標として利用可能であることが示された。

2.1.3 フィラー充填プラスチック向けリサイクル技術の開発

フィラー充填プラスチックにおける無機フィラー用表面処理剤として、CNF 複合材廃材の酸変性処理技術を確立するため、無機フィラー界面における CNF 効果の検証、酸変性樹脂化のレシピ検証、フィラー充填プラスチックにおける効果の検証を行った。酸変性樹脂化レシピの検討において、表面処理剤としての適合条件である熔融時の流動性指標（MFR 値）100 g /10min を達成した。また、フィラー充填プラスチックにおける効果の検証により、相溶化剤として、相溶化剤無添加のブランク材に対し、曲げ強度 15%、衝撃強度 10%向上という目標性能を達成した。以下にはその詳細を記す。

2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証

2.1.3.1.1 目的

CNF 複合材廃材を原料に用い、ラボ設備にて無機フィラー充填プラスチック表面処理剤として適した酸変性樹脂化の条件を検討した。本項では、少量スケールで変性条件を検討し、相溶化剤としての性能が最も発揮される性能になることを目指した。相溶化剤としての適合条件は「MFR 値:100g/10min 以上」と設定した。また、グラフト率と分子量についても着目し、酸変性レベルの制御を目指した。酸変性の程度を制御することができれば、フィラーの種類に合わせた相溶化剤としてグレードを設計することが可能になる。

2.1.3.1.2 原材料

使用した材料を表 2-20 に示す。CNF 複合材廃材としては、「2.1.1 原材料（CNF 複合材廃材）の検証」で選択した CNF 複合材廃材モデル樹脂（スギノマシン社製、Binfis-S 標準繊維）を中心に使用し、比較としてリグニン等の木材成分が含まれる LCNF 複合材廃材モデル樹脂（モリマシナリー社製、セラフィム L を使用）を使用した。以降、CNF 複合材廃材モデル樹脂を bCNF、LCNF 複合材廃材モデル樹脂を cCNF と称す。それぞれの CNF の特徴は表 2-1 に、複合材廃材モデル樹脂の物性は表 2-2 に示されている。マトリックス樹脂には PP ペレット（J107G、プライムポリマー）を用いた。無水マレイン酸と有機過酸化物は酸変性処理剤であり、それぞれ日本触媒社製、化薬アクゾ社製を選択した。有機過酸化物は変性用途に適した 3 種類の特徴的な構造群から選択した代表的な製品である。全ての原料は工業的に利用されている汎用品であり、量産を見据えた原材料である。

表 2-20 使用材料

| 材料 | 名称 | メーカー | 詳細 |
|--------------------|-------------|----------|---------------|
| CNF 複合材廃材 モデル樹脂 | bCNF | | CNF10%添加品 |
| | cCNF | | |
| 樹脂 | PP J107G | プライムポリマー | MFR 30g/10min |
| 無水マレイン酸 | 同左 | 日本触媒 | |
| 有機過酸化物 | トリゴノックス 101 | 化薬アクゾ | ジアルキルパーオキシド類 |
| | トリゴノックス 117 | | パーオキシカーボネート類 |
| | トリゴノックス 42 | | パーオキシエステル類 |

2.1.3.1.3 配合

試料の配合表を表2-21に示す。本レシピにて①有機過酸化物种の影響、②酸変性処理剤量の影響、③廃材中のCNF含有量の影響、及び④廃材中のCNF種の影響について調査した。

表2-21 配合表

| 試作品名 | PP [phr] | CNF 複合材廃材 [phr] | | MA [phr] | 有機過酸化物 [phr] | | |
|--------------|----------|-----------------|------|----------|--------------|-------------|------------|
| | J107G | bCNF | cCNF | 無水マレイン酸 | トリゴノックス 101 | トリゴノックス 117 | トリゴノックス 42 |
| bCNF-g-MA-BL | 67 | 33 | - | - | - | - | - |
| bCNF-g-MA-1 | 67 | 33 | - | 1.0 | 0.3 | - | - |
| bCNF-g-MA-2 | 67 | 33 | - | 2.0 | 0.5 | - | - |
| bCNF-g-MA-3 | 67 | 33 | - | 4.0 | 1.0 | - | - |
| bCNF-g-MA-4 | 67 | 33 | - | 8.0 | 2.0 | - | - |
| bCNF-g-MA-5 | 67 | 33 | - | 4.0 | 0.5 | - | - |
| bCNF-g-MA-6 | 67 | 33 | - | 4.0 | 2.0 | - | - |
| bCNF-g-MA-7 | 67 | 33 | - | 4.0 | 4.0 | - | - |
| bCNF-g-MA-8 | 67 | 33 | - | 4.0 | - | 1.0 | - |
| bCNF-g-MA-9 | 67 | 33 | - | 4.0 | - | - | 1.0 |
| bCNF-g-MA-10 | 50 | 50 | - | 4.0 | 1.0 | - | - |
| bCNF-g-MA-11 | - | 100 | - | 4.0 | 1.0 | - | - |
| cCNF-g-MA-BL | 67 | - | 33 | - | - | - | - |
| cCNF-g-MA-1 | 67 | - | 33 | 4.0 | 1.0 | - | - |
| cCNF-g-MA-2 | 67 | - | 33 | 8.0 | 2.0 | - | - |

2.1.3.1.4 酸変性樹脂の作製手法

図2-63にサンプルの作製工程を示す。190℃に設定したラボプラストミルにPPとbCNF(もしくはcCNF)を投入し、30rpmで混練した。続いて、無水マレイン酸を投入し、2分間の混練を行った後、有機過酸化物を2分かけて投入した。有機過酸化物の投入開始から10分間混練を続けた後、サンプルを回収した。

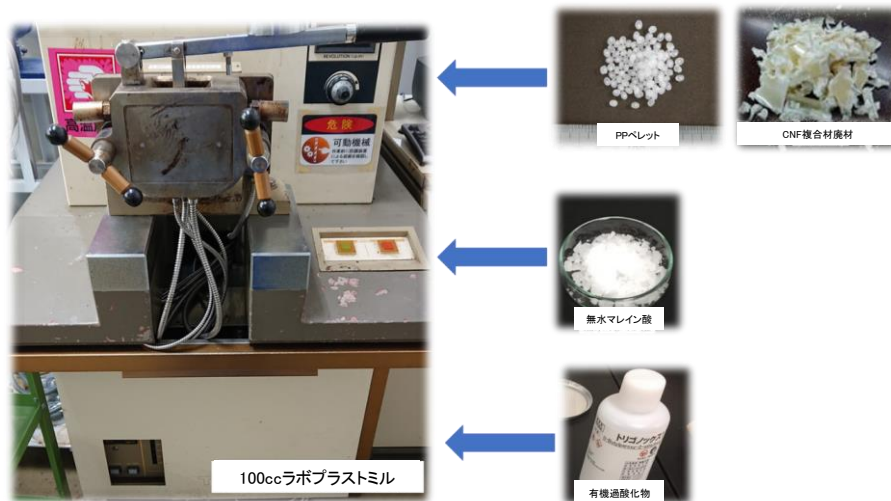


図2-63 酸変性方法

2.1.3.1.5 酸変性樹脂の評価

2.1.3.1.5.1 MFR測定結果

上記で作製したサンプルの評価を実施した。重要な指標はグラフト率とMFRおよび分子量となる。MFRはMelt Indexer G-01(東洋精機製作所)を用いて測定した。まず表面処理剤としての適合条件であるMFR100g/10min以上をすべての酸変性樹脂で達成した(表2-22)。CNFを含有したPP樹脂においてもバージンPPと同様に有機過酸化物による低分子化反応が確認できた。また、CNFによる反応阻害も起きていないことから酸変性は十分に可能と考えられる。そこで、下記にて具体的な結果を示す。

表2-22 フィラープラスチック向けのMFR

| 試作品名 | MFR [g/10min] | 試作品名 | MFR [g/10min] |
|--------------|---------------|--------------|---------------|
| bCNF-g-MA-BL | 30 | bCNF-g-MA-8 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-1 | >1,000 | bCNF-g-MA-9 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-2 | >1,000 | bCNF-g-MA-10 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-3 | >1,000 | bCNF-g-MA-11 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-4 | >1,000 | cCNF-g-MA-BL | 32 |
| bCNF-g-MA-5 | >1,000 | cCNF-g-MA-1 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-6 | >1,000 | cCNF-g-MA-2 | >1,000 |
| bCNF-g-MA-7 | >1,000 | | |

2.1.3.1.5.2 分子量測定結果

高温 GPC 法により測定した。融点と分子量の関係を示す (図 2-64)。分子量と融点には相関性があり、分子長の低下に伴い、融点も低下する。これは酸変性化反応時に生じる低分子化反応による現象である。低分子量になるほどベースポリマーの分子がランダムに切断され、また無水マレイン酸のグラフトによる結晶規則性が崩れることにより融点が低下していることが示唆される。

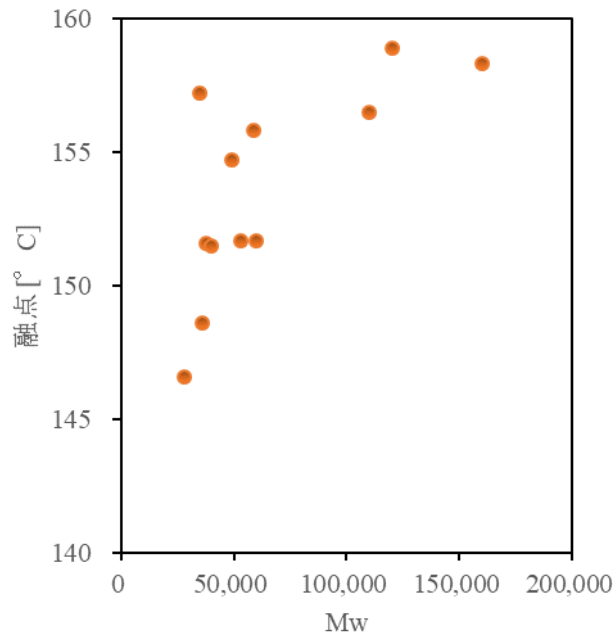


図 2-64 分子量と融点の関係

2.1.3.1.5.3 グラフト率と分子量の制御手法の確立

ここでは表2-21で示したレシピをもとに、酸変性樹脂の性能評価に関係する「グラフト率」と「分子量」を制御する方法を模索した。具体的には下記方法を検討した。

有機過酸化物の種類

原材料の添加量

CNF 複合材廃材中の CNF 含有量

CNF の種類

本手法を以って、フィラー充填プラスチック向けの酸変性樹脂を生産するためのベースとなる条件を確立することを目指した。

2.1.3.1.5.3.1 有機過酸化物の種類による影響

有機過酸化物はその構造によって反応性が異なるため、変性用途に向いている3群の中から代表的なものを選択した。これにより、有機過酸化物の構造による酸変性反応の制御を試みた。図2-65に有機過酸化物種類の違いによる反応性、すなわちグラフト率と分子量(Mw)への影響を示す。ジアルキルパーオキサイド類のトリゴノックス101が最も反応性が高く、それ以外の2種類については反応性が低かった。反応性が低いと高分子量になることから特定の機械特性を向上させる可能性もある。有機過酸化物の選択によって酸変性反応(グラフト率と分子量)の制御が可能になることが示唆された。

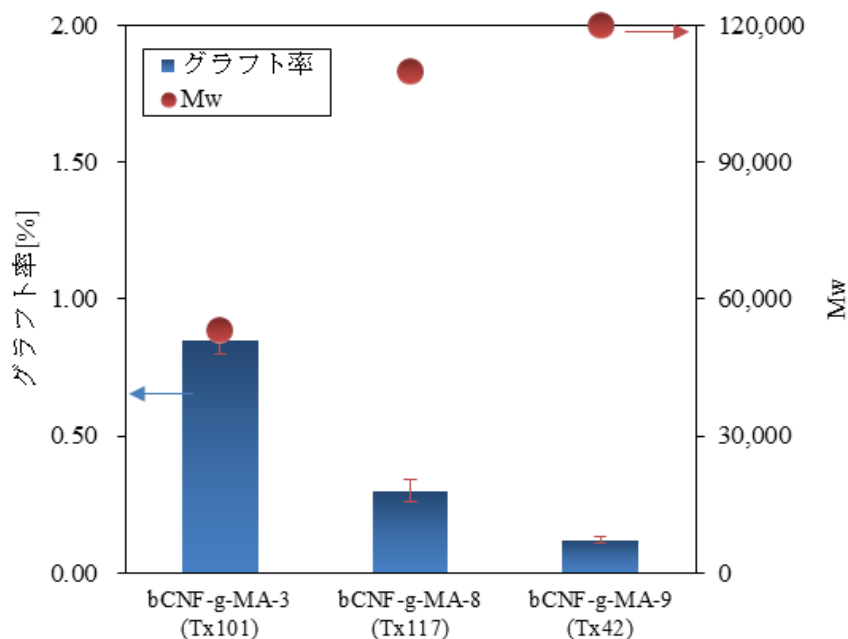


図2-65 有機過酸化物種類の違いによる反応性への影響

2.1.3.1.5.3.2 原材料の添加量による影響

続いて上述で最も反応性の高かった有機過酸化物である「トリゴノックス 101」に固定して、酸変性条件を検討した。本項では、「マレイン酸量を固定した場合」、「有機過酸化物/無水マレイン酸比を固定した場合」でそれぞれの傾向を調査した。

図2-66に有機過酸化物添加量の変更による酸変性反応への影響を示す。

無水マレイン酸量を固定した場合、グラフト率の上昇は有機過酸化物添加量が1.0%で最大となった。また、有機過酸化物2.0%以上の添加では分子量の低下が確認されている。よって、有機過酸化物：無水マレイン酸=1：4において高い分子量とグラフト率のバランスを保つことができると判断した。

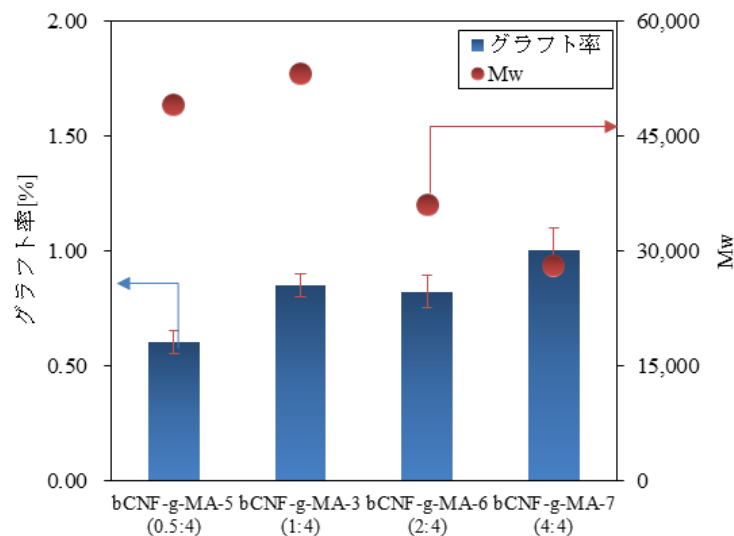


図2-66 有機過酸化物添加量の変更による酸変性反応への影響
(有機過酸化物添加量：無水マレイン酸添加量)

有機過酸化物とマレイン酸の添加量比を維持したまま全体の添加量を変化させた条件について調査した結果を図2-67に示す。結果として添加量を増やすほどグラフト化および低分子量化が進行することを確認した。「2.1.3.1.5.3.1 有機過酸化物の種類による影響」と同様にレシピ変更により酸変性樹脂のグラフト率と分子量を制御することができた。これらの結果をもとにターゲットに適した酸変性条件を設定することが可能である。また、現時点では有機過酸化物 1%/無水マレイン酸 4%である「bCNF-g-MA-3」が最良の条件と考えられる。

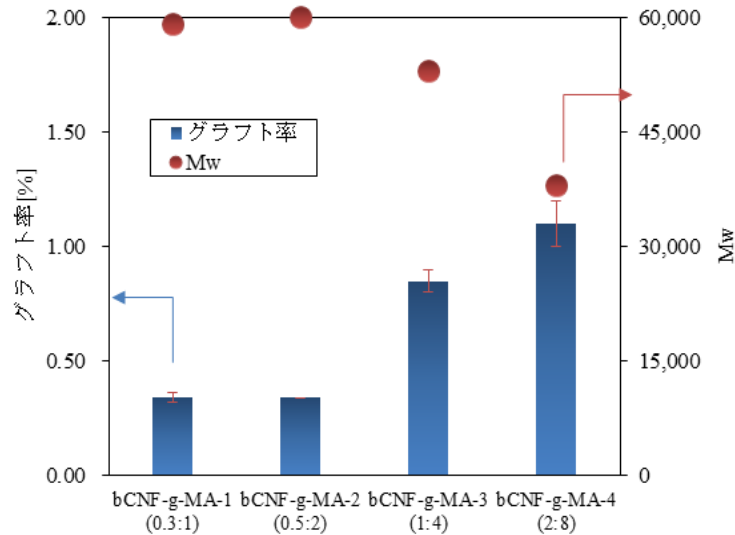


図 2-67 添加比率固定における添加量変化による影響
(有機過酸化剤添加量：無水マレイン酸添加量)

2.1.3.1.5.3.3 CNF 含有量による影響

本項では CNF の含有量による酸変性反応への影響を調査した。この結果を図 2-68 に示す。CNF 含有量が多いほど反応性が向上することが確認できた。これは図 2-67 と同様に酸変性される PP に対する有機過酸化剤と無水マレイン酸の割合が増加することで生じた現象と考えられる。その場合は、CNF とのエステル化反応よりも PP の酸変性化反応の方が優先的に発生していることが示唆される。

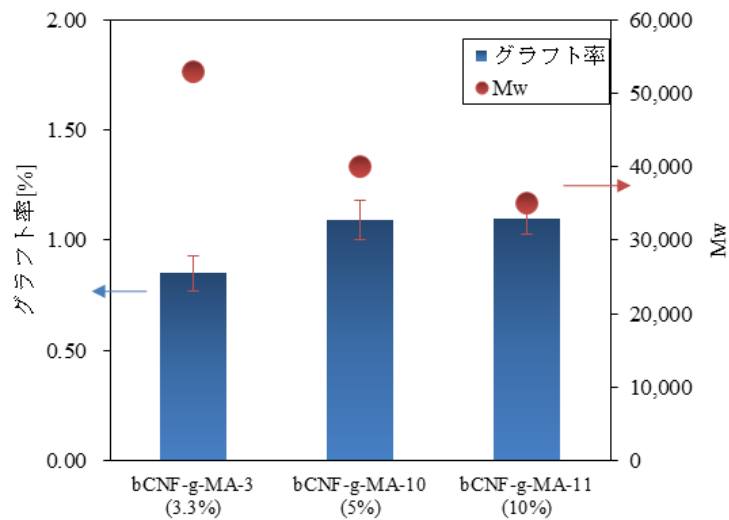


図 2-68 CNF 含有量による酸変性への影響
(CNF 含有量)

2.1.3.1.5.3.4 CNFの種類による影響

ここでは廃材中のCNFを変更した場合の影響について調査した。bCNFの結果を図2-69に、cCNFの結果を図2-70に示す。bCNFとcCNFどちらにおいても有機過酸化剤と無水マレイン酸の添加量に伴い、酸変性反応が進行した。cCNFにおいては有機過酸化剤および添加量を増加させた場合で、グラフト率の上昇はするものの、bCNFのような分子量の低下は見られなかった。リグニンの有無によって酸変性反応の挙動が異なる結果が得られた。今後、更なる解明を進める。

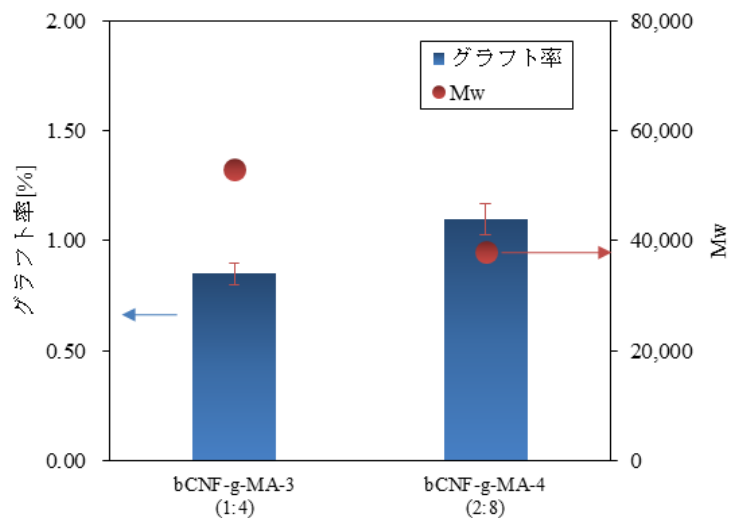


図2-69 CNF複合廃材モデル樹脂(bCNF)の酸変性処理結果
(有機過酸化剤添加量：無水マレイン酸添加量)

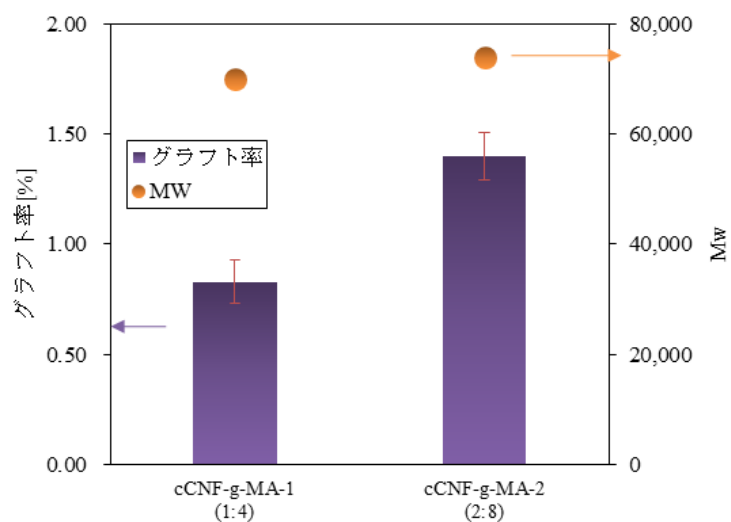


図2-70 LCNF複合廃材モデル樹脂(cCNF)の酸変性処理結果
(有機過酸化剤添加量：無水マレイン酸添加量)

2.1.3.1.6 まとめ

本内容によって CNF を含有した樹脂において酸変性処理が可能であることを確認できた。表面処理剤としての適合条件である MFR100 g/10min 以上をすべての酸変性樹脂で達成した。

最大の成果は、CNF 含有品においても酸変性樹脂の性能を制御する方法を確立したことである（図 2-71）。これにより現在ターゲットとしているタルク以外のフィラーに対する需要に向けても応用が可能であり、CNF 含有樹脂のリサイクル後の市場においても可能性を見出した。変性条件としては、「bCNF-g-MA-3」が相溶化剤として、グラフト率と分子量のバランスが良い。本試験結果より、「bCNF-g-MA-3」をベースにして、各種フィラーに合わせた酸変性樹脂を設計することが可能になった。

また、CNF 複合材廃材中に含まれる CNF の種類や量によらず変性処理が可能と確認できたことで、今後の CNF 複合材を用いた製品全般の廃材を酸変性樹脂とするアップグレードリサイクルが可能であり、これによる CNF 複合材リサイクルの幅を広げられるものと期待する。

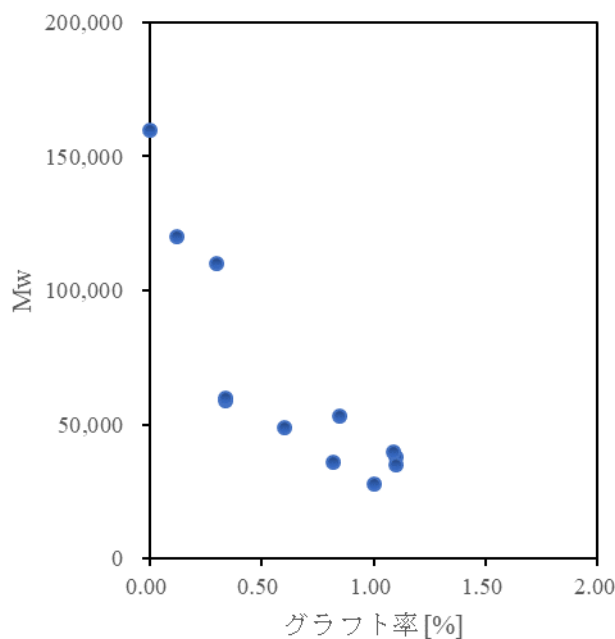


図 2-71 酸変性結果のまとめ

2.1.3.2 フィラー充填プラスチックにおける効果の検証

2.1.3.2.1 概要

「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で作製した酸変性樹脂を用いたフィラー充填プラスチックの性能評価を実施した。本項では、機械特性を中心に前述で作製した変性樹脂の相溶化剤としての性能を比較検討した。以下には、その詳細を示す。

2.1.3.2.2 ラボ設備を用いたフィラー充填プラスチックの性能評価

2.1.3.2.2.1 目的

CNF 複合廃材を使用した酸変性樹脂の相溶化剤としての効果を検証するため、ラボ設備（バッチ処理）で試作したタルク充填プラスチックの性能評価を行った。

2.1.3.2.2.2 試験方法

2.1.3.2.2.2.1 原材料

使用した材料を表 2-23 に示す。マトリックス樹脂は上述同様に PP J107G として、タルクは日本タルクの SSS (粒子径 D50: 12 μ m) を選定した。汎用品に分類される SSS は、プラスチックや製紙、ゴム等の様々な分野で充填剤として使用されている。CNF 複合材廃材酸変性樹脂は「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で作製した表 2-21 中のサンプルを用いた。CNF 樹脂の比較用として、市販されているカヤブリッド 002PP (グラフト率: 2%、Mw: 59,000 化薬アクゾ社) とユーメックス 1010 (グラフト率: 3%、Mw: 30,000 三洋化成工業社) を用いた。

表 2-23 使用材料

| | 名称 | メーカー |
|----------------|--------------|-----------|
| 樹脂 | PP J107G | プライムポリマー |
| タルク | SSS | 日本タルク |
| 相溶化剤 | カヤブリッド 002PP | 化薬アクゾ |
| | ユーメックス 1010 | 三洋化成工業 |
| CNF 複合材廃材酸変性樹脂 | bCNF-g-MA-BL | 表 2-21 より |
| | bCNF-g-MA-1 | |
| | bCNF-g-MA-2 | |
| | bCNF-g-MA-3 | |
| | bCNF-g-MA-4 | |
| | bCNF-g-MA-5 | |
| | bCNF-g-MA-6 | |
| | bCNF-g-MA-7 | |
| | bCNF-g-MA-8 | |
| | bCNF-g-MA-9 | |
| | bCNF-g-MA-10 | |
| | bCNF-g-MA-11 | |
| | cCNF-g-MA-BL | |
| | cCNF-g-MA-1 | |
| | cCNF-g-MA-2 | |

2.1.3.2.2.2 配合条件

試料の配合表を表2-24に示す。本レシピにて、「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で酸変性処理したサンプルの評価を市販品と比較を交えながら実施した。

表2-24 配合表

| No. | 配合 |
|--------------|---------------------------------|
| BLANK-TALC | PP 75% Talc 25% |
| PP-TA-bMA-BL | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-BL 2% |
| PP-TA-bMA-1 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-1 2% |
| PP-TA-bMA-2 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-2 2% |
| PP-TA-bMA-3 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-3 2% |
| PP-TA-bMA-4 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-4 2% |
| PP-TA-bMA-5 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-5 2% |
| PP-TA-bMA-6 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-6 2% |
| PP-TA-bMA-7 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-7 2% |
| PP-TA-bMA-8 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-8 2% |
| PP-TA-bMA-9 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-9 2% |
| PP-TA-bMA-10 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-10 2% |
| PP-TA-bMA-11 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-11 2% |
| PP-TA-cMA-BL | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-BL 2% |
| PP-TA-cMA-1 | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-1 2% |
| PP-TA-cMA-2 | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-2 2% |
| 市販品 1 | PP 73% Talc 25% カヤブリッド 002PP 2% |
| 市販品 2 | PP 73% Talc 25% ユーメックス 1010 2% |

2.1.3.2.2.2.3 タルク充填プラスチックの作製方法

図2-72にサンプルの作製工程を示す。表2-24の配合表をもとに、原料をラボプラストミルに投入した。15分の混練を行い、サンプルを採取した。その後、粉碎した混練サンプルを射出成形機にて試験片を作製し、各種評価を実施した。射出成形方法、機械特性、熔融粘度の測定および透過型電子顕微鏡 (TEM) によるフィラー界面の観察を行った。

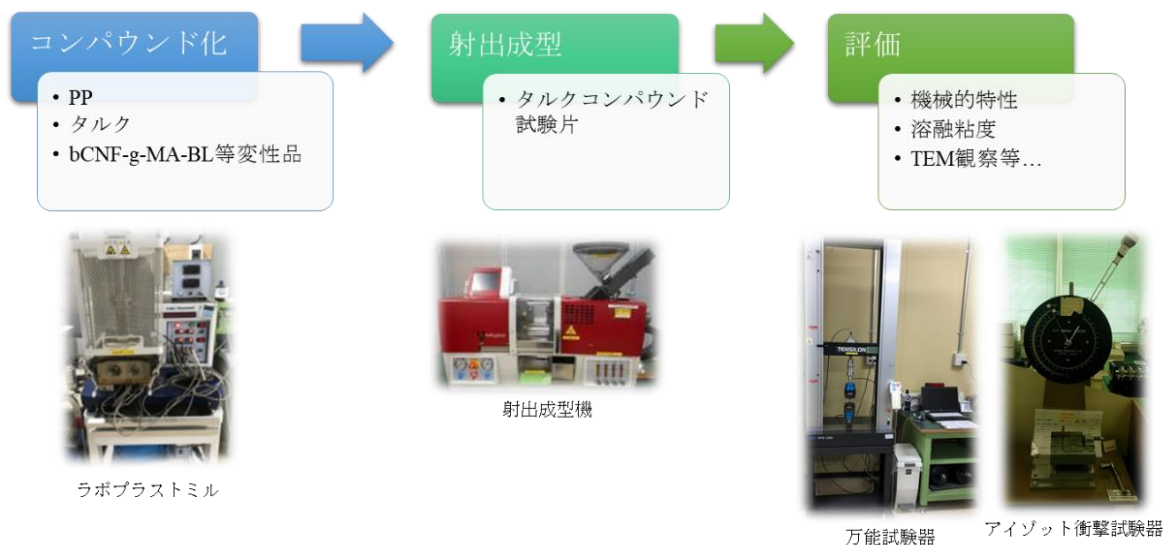


図2-72 サンプルの作製と評価工程

2.1.3.2.2.3 物性評価

2.1.3.2.2.3.1 曲げ強度

まず曲げ強度の結果を図2-73に示す。酸変性未処理である CNF 複合材廃材モデル樹脂の PP-TA-bMA-BL において対ブランク材で7%の物性向上が確認された。CNF が存在することによる機械的特性の向上が見られたことから CNF1 の補強効果が発揮されたことになる。その CNF 複合材廃材モデル樹脂を酸変性処理することで、市販品と同等の曲げ強度を発現した。そして、PP-TA-bMA-3 をはじめとする多くの酸変性樹脂において、目標数値である曲げ強度 15 %の向上を達成した。達成できなかったものは変性率の低いものであり、酸変性効率の優れた有機過酸化剤としてトリゴノックス 101 であることが重要であると言える。グラフト率が 0.5 %を超えた酸変性樹脂であれば、数値目標を達成できることが判明した。グラフト率と分子量には相関があることから、グラフト率 0.5%以上の酸変性処理を施すことで曲げ強度を目標値まで向上させることができると言える。

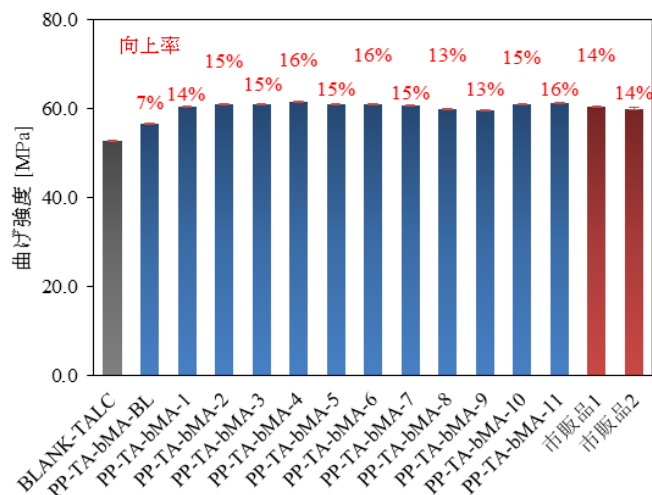


図2-73 タルク充填プラスチックにおける曲げ強度

加えて、図2-74に示すように曲げ強度の高い条件ほど熔融粘度が低いことが確認された。また、CNF 含有量が多い場合、曲げ特性が優れていることが確認された。

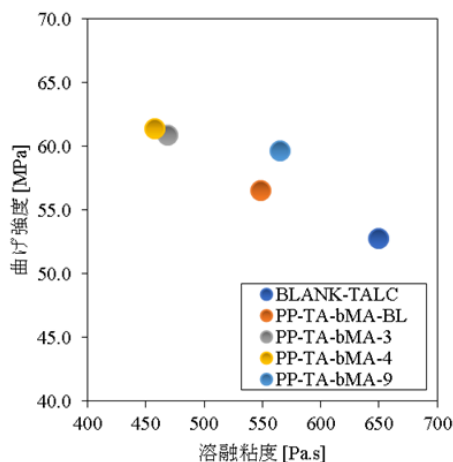


図2-74 熔融粘度と曲げ強度の関係(せん断速度: 100(1/s))

2.1.3.2.2.3.2 衝撃強度

衝撃強度の結果を図2-75に示す。衝撃強度においては、CNFによる補強効果は発現しなかった。本強度を向上させるためには酸変性処理が不可欠であると言える。そこで酸変性処理を施した場合、全てのサンプルにおいて市販品と同様に数値目標である10%の向上を確認した。市販品の結果より、市販品1のような分子量とグラフト率をバランスよく共存させた相溶化剤が優れていることがわかる。CNF複合材廃材酸変性樹脂においても一定のグラフト率を持つ場合、分子量が高いサンプルの方が優れた結果を示す傾向にあった。

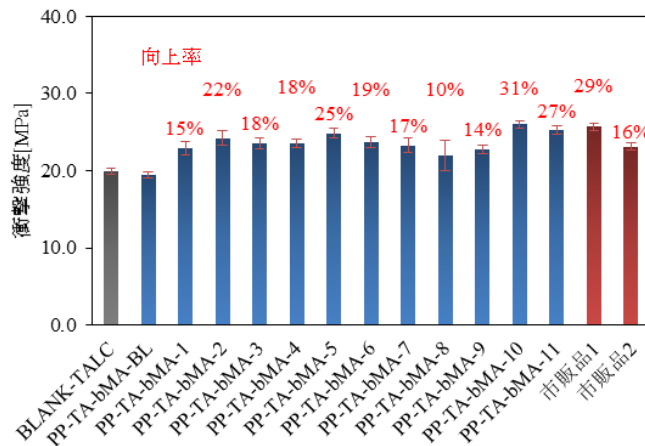


図2-75 タルク充填プラスチックにおける衝撃強度

図2-76に示すように、熔融粘度と衝撃強度には相関があり、機械特性の良いコンパウンドほど流動性が高く、成形性が良いと言える。また、曲げ強度と同様にCNF含有量が高いほど強度が向上することが判明した。

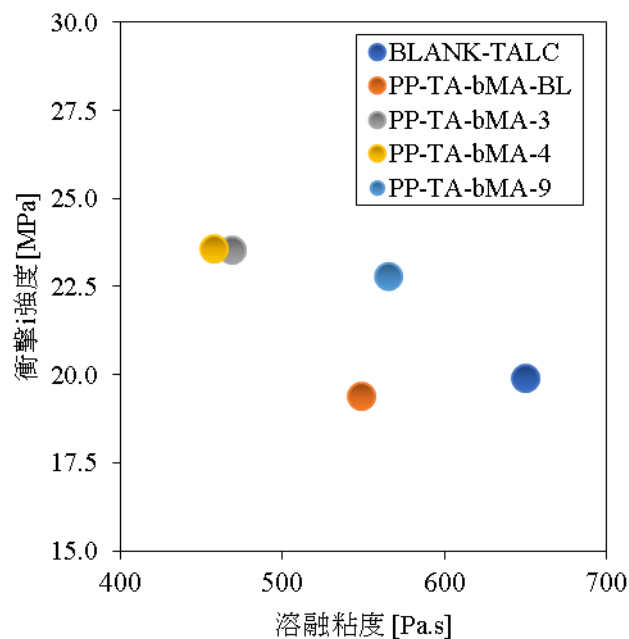


図2-76 熔融粘度と衝撃強度の関係(せん断速度: 100(1/s))

2.1.3.2.2.3.3 引張強度

図2-77にタルク充填プラスチックにおける引張強度を示す。引張強度においてはCNFによる補強効果は見られなかったものの、酸変性を行うことで10%程度の向上を確認した。そして、市販品と同等に使用することができると言える。

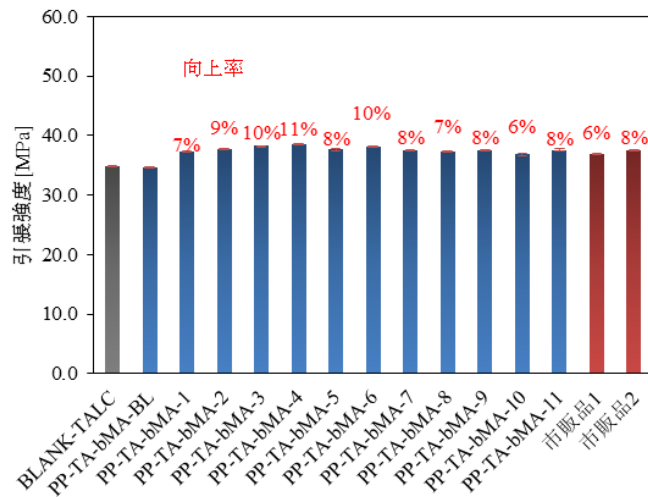


図2-77 タルク充填プラスチックにおける引張強度

2.1.3.2.2.3.4 含有CNF種類の変更

ここで含有するCNFの影響について調査した。その結果を図2-78～80に示す。廃材中のCNFを変更した場合においても全ての機械特性の挙動は元のCNFと同様であった。よって、酸変性処理はCNFの種類に依存することなく、タルク充填プラスチックの機械特性を向上させることが確認できた。

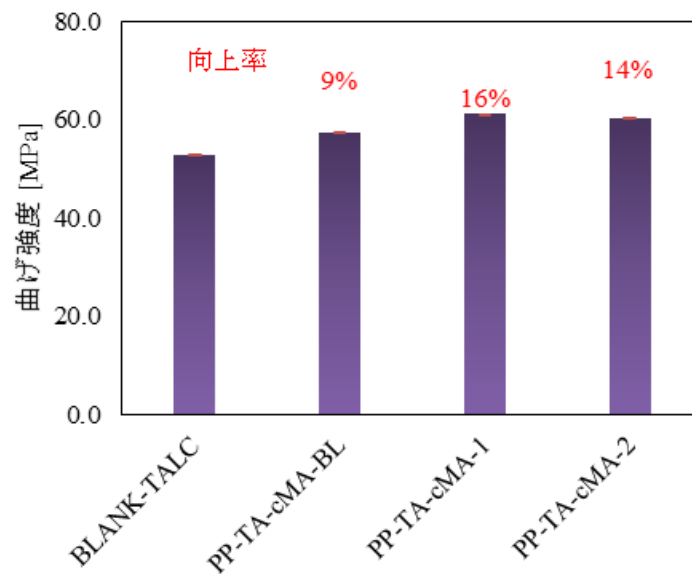


図2-78 タルク充填プラスチックにおける曲げ強度

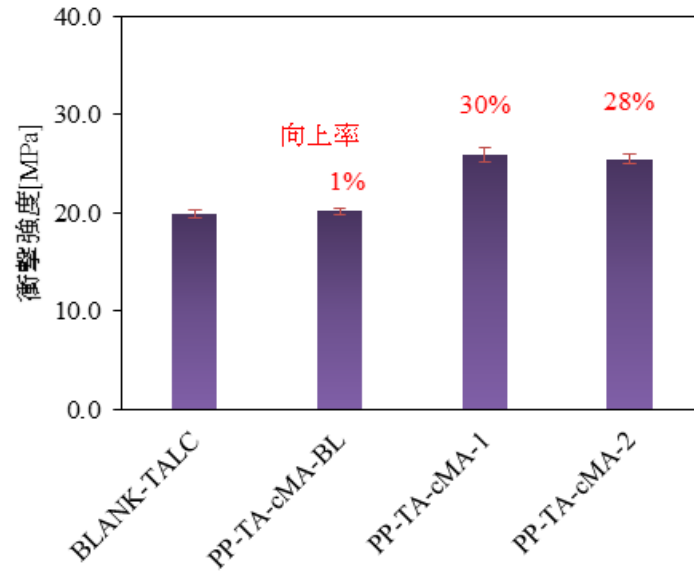


図 2-79 タルク充填プラスチックにおける衝撃強度

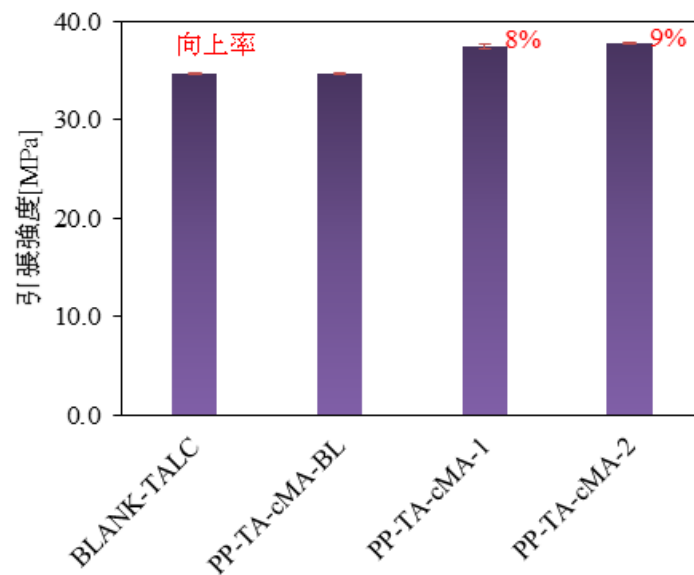


図 2-80 タルク充填プラスチックにおける引張強度

2.1.3.2.2.4 まとめ

本項では、タルク充填プラスチックへの利用を目的としたCNF複合材廃材モデル樹脂の酸変性樹脂について機械特性の評価を実施した。酸変性樹脂を相溶化剤として、相溶化剤無添加のブランク材に対し、曲げ強度15%、衝撃強度10%向上という目標性能を達成した。図2-81~83にグラフト率と各強度の関係を示した。

今回得られた結果を以下に示す。

1. CNFによる補強効果が相溶化剤としての特性を向上させていた。
2. グラフト率は0.5%以上で物性改善に十分な影響が確認された。
3. 機械特性が優れているほど、流動性も高いため、生産性が高い。
4. 含有されているCNFの種類に影響を受けない。

上記内容より、CNF複合材廃材をそのままリサイクルするよりも酸変性処理をすることで市場に存在する相溶化剤と同様に使用することが可能となり、リサイクル後の循環型社会に適合した素材にグレードアップできる。

グラフト率が0.5%以上に達することで機械特性を市販品と同等まで引き出す作用を持つ。また、CNF含有量が多いほど曲げ強度と引張強度が向上し、どちらも既存品を上回る性能を発揮した。これはCNFが含まれていることと酸変性処理の相乗効果であり、本コンセプトに沿ったシステムの構築によって、CNF複合材廃材を優れた製品に再生することができると思う。

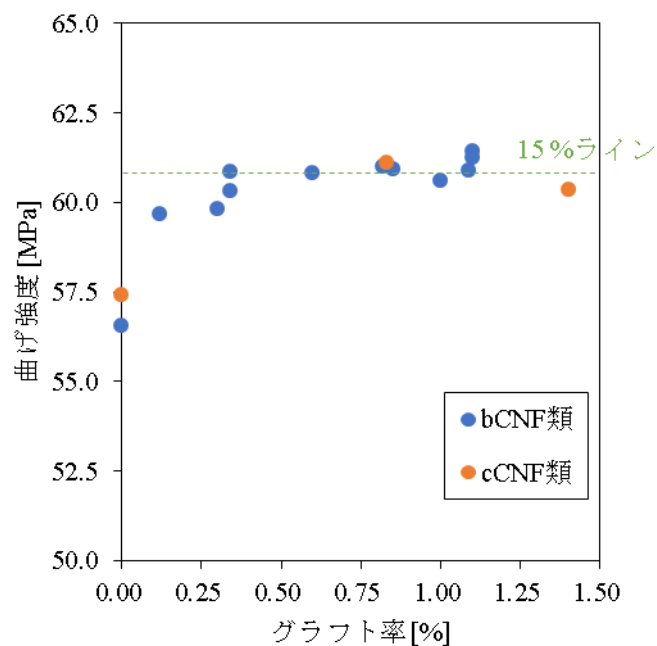


図2-81 グラフト率と曲げ強度の関係まとめ

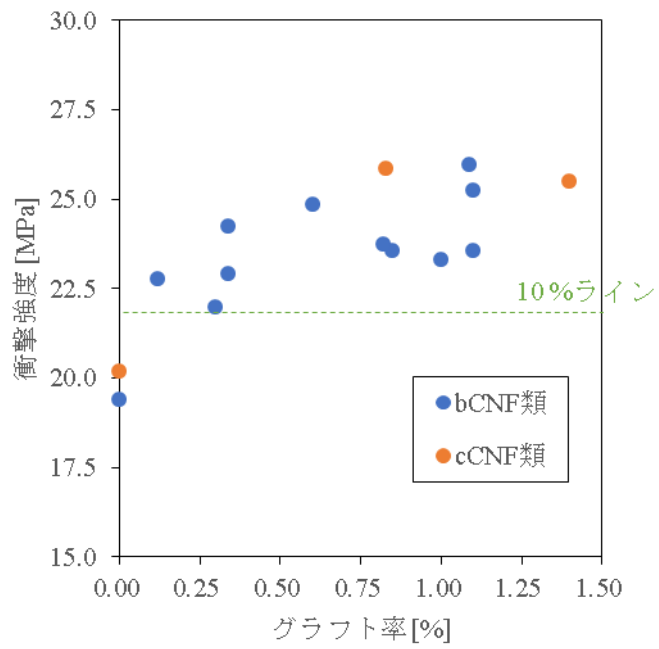


図 2-8-2 グラフト率と衝撃強度の関係まとめ

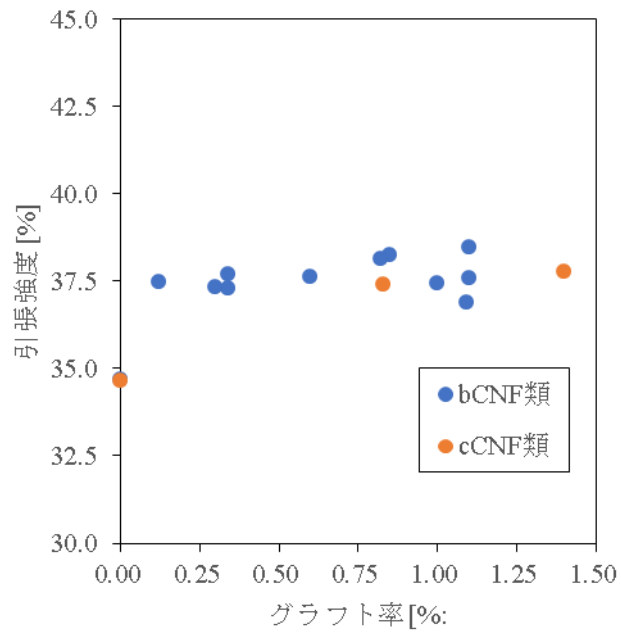


図 2-8-3 グラフト率と引張強度の関係まとめ

2.1.3.2.3 押出機を利用したフィラー充填プラスチックの物性評価

2.1.3.2.3.1 目的

前項にてラボ設備（バッチ処理）で試作したタルク充填プラスチックの性能評価を行った。ここでは、実際の量産では連続処理となる押出機を使用するため、押出設備を利用し、量産を見越した押出成形と射出成形のプロセスで作製した試験片を用いて評価を行った。ここでは前項に用いたタルクに加え、炭酸カルシウムをフィラーとして使用した。

2.1.3.2.3.2 炭酸カルシウム充填プラスチック

2.1.3.2.3.2.1 試験方法

2.1.3.2.3.2.1.1 原材料

マトリックス樹脂は上述同様にPP J107Gとし、炭酸カルシウム（CaCO₃）はカルファイン社製のKS-1000を使用した。KS-1000は表面処理をおこなっていない炭酸カルシウムであり、ゴムや合成樹脂等への充填剤として汎用的に用いられている。CNF複合材廃材変性樹脂は「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で作製した表2-21中のサンプルを用いた。表2-25に使用材料の一覧を示す。

表2-25 使用材料

| | 名称 | メーカー |
|------------------------------|--------------|-------------|
| 樹脂 | PP J107G | プライムポリマー |
| 炭酸カルシウム (CaCO ₃) | KS-1000 | カルファイン |
| 相溶化剤 | カヤブリッド 002PP | 化薬アクゾ |
| | ユーメックス 1010 | 三洋化成工業 |
| CNF 複合材廃材変性樹脂 | bCNF-g-MA-BL | 表2-21 配合表より |
| | bCNF-g-MA-1 | |
| | bCNF-g-MA-2 | |
| | bCNF-g-MA-3 | |
| | bCNF-g-MA-4 | |
| | bCNF-g-MA-5 | |
| | bCNF-g-MA-6 | |
| | bCNF-g-MA-7 | |
| | bCNF-g-MA-8 | |
| | bCNF-g-MA-9 | |
| | bCNF-g-MA-10 | |
| | bCNF-g-MA-11 | |
| | cCNF-g-MA-BL | |
| | cCNF-g-MA-1 | |
| cCNF-g-MA-2 | | |

2.1.3.2.3.2.1.2 配合条件

試料の配合表を表2-26に示す。本レシピにて、「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で酸変性処理したサンプルの評価を実施した。

表2-26 配合表

| No. | 配合 (重量ベース) |
|-----|----------------------------------------------|
| C1 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-BL 2% |
| C2 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-1 2% |
| C3 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-2 2% |
| C4 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-3 2% |
| C5 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-4 2% |
| C6 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-5 2% |
| C7 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-6 2% |
| C8 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-7 2% |
| C9 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-8 2% |
| C10 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-9 2% |
| C11 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-10 2% |
| C12 | PP 73% CaCO ₃ 25% bCNF-g-MA-11 2% |
| C13 | PP 73% CaCO ₃ 25% cCNF-g-MA-BL 2% |
| C14 | PP 73% CaCO ₃ 25% cCNF-g-MA-1 2% |
| C15 | PP 73% CaCO ₃ 25% cCNF-g-MA-2 2% |

2.1.3.2.3.2.1.3 作製方法

CNF複合材廃材酸変性樹脂とPP、炭酸カルシウム (CaCO₃) を所定の配合比でドライブレンドした。混練は40mm単軸押出機 (型式40M/M EXTRUDER : いすゞ化工機製) を用い、混練条件は、設定温度230℃ (ダイス側より230℃/230℃/230℃/230℃)、スクリー回転数 : 50rpmとした。装置を図2-84に示す。



図2-84 40mm単軸押出機 (型式40M/M EXTRUDER : いすゞ化工機製)

得られたコンパウンドを射出成形にて試験片に成形した。射出成形はFE80S12ASE（日精樹脂工業製）を用い、ISOに準拠した多目的タイプAを作製した。表2-27に射出成形条件を示す。

表2-27 射出成形条件

| | |
|----------|---------------------|
| 熔融樹脂温度 | 200℃ |
| シリンダ設定温度 | 195℃/195℃/195℃/175℃ |
| 金型温度 | 40(℃) |
| 平均射出速度 | 200±20(mm/s) |
| 保圧時間 | 40(s) |
| 冷却時間 | 10(s) |
| 一次圧設定時 | 107(MPa) |
| 保圧設定値 | 72(MPa) |
| スクリー回転数 | 100(rpm) |

また、図2-85に射出成形機、図2-86に金型を示す。



図2-85 射出成形機FE80S12ASE型（日精樹脂工業製）



図2-86 金型：ISO多目的タイプA（AXXCON社製）

2.1.3.2.3.2.1.4 物性試験

射出成形にて成形した試験片を用い、引張試験、曲げ試験、アイゾット衝撃試験、荷重たわみ温度（HDT）測定を行った。測定条件を表2-28～31に示す。

表 2-28 引張試験条件

| | |
|---------|----------------------|
| 試験装置 | ストログラフAPIⅡ（東洋精機製作所製） |
| 試験片形状 | 1A形 |
| 試験速度 | 50mm/min |
| 標線間距離 | 50mm |
| チャック間距離 | 115mm |
| 試験温湿度 | 23℃, 50%RH |
| 試験数 | n=5 |

表 2-29 曲げ試験条件

| | |
|----------|--------------------------------------|
| 試験装置 | ベントグラフⅡ（東洋精機製作所製） |
| 試験片形状 | 80mm×10mm×4mm (1A形ダンベルの平行部から切削加工) |
| 試験速度 | 2mm/min |
| 試験温湿度 | 23℃, 50%RH |
| スパン間 | 64mm |
| 圧子、支持台半径 | 5.0mm |
| 試験数 | n=5 |

表 2-30 アイゾット衝撃試験条件

| | |
|---------|--------------------------------------|
| 試験装置 | デジタルインパクトテスター（東洋精機製作所製） |
| 試験片形状 | 80mm×10mm×4mm (1A形ダンベルの平行部から切削加工) |
| ノッチ形状 | A |
| 打撃方向 | エッジワイズ |
| 試験温湿度 | 23℃, 50%RH |
| ハンマひょう量 | 1J |
| 破断形状 | C（完全破断） |
| 試験数 | n=10 |

表 2-31 荷重たわみ温度測定条件

| | |
|---------|--------------------------------------|
| 試験装置 | AUTO HDT TESTER（東洋精機製作所製） |
| 試験片形状 | 80mm×10mm×4mm (1A形ダンベルの平行部から切削加工) |
| 試験荷重 | 0.45MPa |
| 試験片方向 | フラットワイズ |
| 昇温速度 | 120℃/h |
| ハンマひょう量 | 1J |
| 試験数 | n=3 |

2.1.3.2.3.2.1.5 フィラー分散状態の観察（X線CTスキャン）

各種評価結果を踏まえ、いくつかの組成についてはX線CTスキャンによる非破壊断層撮影を行った。装置は高分解能3DX線頭顕微鏡（nono3DX：リガク製）を使用した。測定条件を表2-32に示す。

表2-32 X線CTスキャン観察条件

| | |
|---------|--------------------|
| X線源 | Cu |
| 管電圧・管電流 | 40kV・30mA |
| 検出器 | X線CCDカメラ（レンズ：2160） |
| 解像度 | 4.24 μm/voxel |

なお、X線CTスキャンで得られた断層像において、X線を透過しやすい（低密度）成分は黒色のコントラスト、X線を吸収しやすい（高密度）成分は白色のコントラストで表示される。図2-87に観察方向と観察画像（例）を示す。

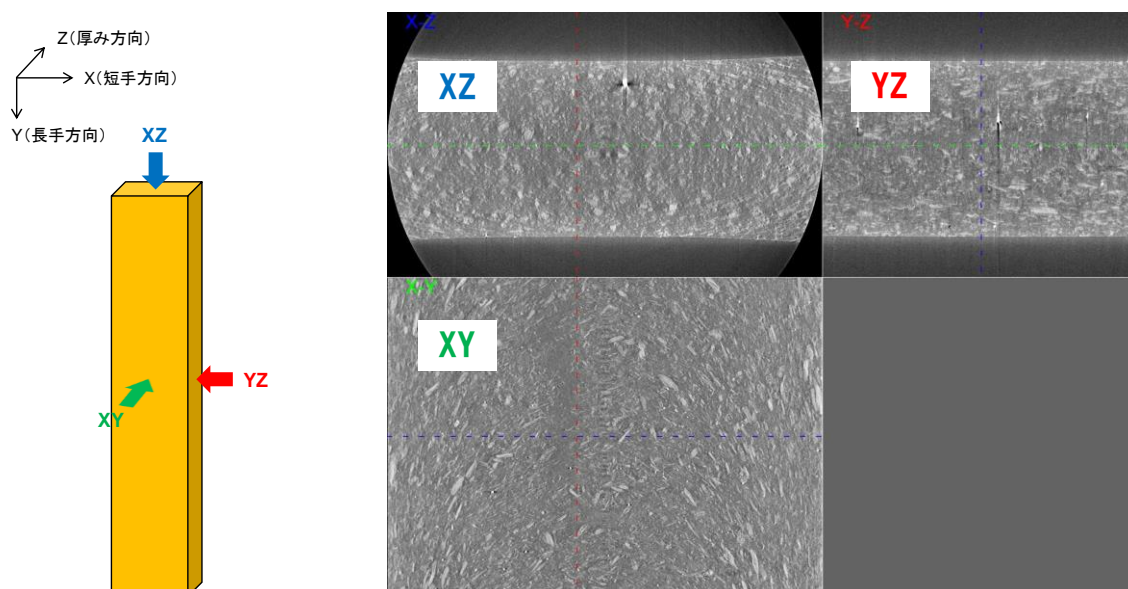


図2-87 X線CTスキャンの観察方向と観察画像（例）

2.1.3.2.3.2.1.6 透過型電子顕微鏡（TEM）によるフィラー界面の観察

フィラーとマトリックス樹脂間の界面を観察するため、TEM観察を行った。観察条件は表2-33に従った。

表2-33 染色TEMでの観察条件

| | |
|----------|----------------------------|
| 前処理 | エポキシ樹脂包埋 四酸化ルテニウム染色、超薄切片作製 |
| 装置及び操作条件 | 日本電子製 JEM1010、加速電圧：100kV |
| 観察部位 | 流れ方向と平行な面（Edge面）、中心付近 |
| 写真倍率 | 5,000倍、100,000倍 |

2.1.3.2.3.2.2 結果と考察

2.1.3.2.3.2.2.1 物性試験結果

表2-34に試験結果一覧を示す。

表2-34 試験結果一覧

| | 酸変性樹脂 | | 引張試験 | | | 曲げ試験 | | | ノッチ付アイゾット衝撃値 (23℃) (kJ/m ²) | 荷重たわみ温度 (0.45MPa) (℃) |
|-----|--------------|-----------|------------|------------|-----------|----------|-----------|---------|-----------------------------------------|-----------------------|
| | 名称 | グラフト率 (%) | 降伏応力 (MPa) | 破壊応力 (MPa) | 破壊ひずみ (%) | 強度 (MPa) | 弾性率 (MPa) | ひずみ (%) | | |
| C1 | bCNF-g-MA-BL | — | 29.2 | 23.9 | 19 | 48.4 | 2450 | 5.4 | 2.5 | 115 |
| C2 | bCNF-g-MA-1 | 0.34 | 35.3 | 32.2 | 7.6 | 53.4 | 2420 | 5.7 | 2.2 | 117 |
| C3 | bCNF-g-MA-2 | 0.34 | 36.7 | 34.2 | 8.3 | 54.4 | 2400 | 5.9 | 3.0 | 116 |
| C4 | bCNF-g-MA-3 | 0.85 | 37.2 | 34.8 | 9.6 | 55.2 | 2410 | 5.9 | 3.3 | 115 |
| C5 | bCNF-g-MA-4 | 1.10 | 36.7 | 35.6 | 7.3 | 54.4 | 2370 | 5.9 | 3.3 | 114 |
| C6 | bCNF-g-MA-5 | 0.60 | 36.8 | 35.5 | 8.1 | 54.8 | 2380 | 6.0 | 3.2 | 114 |
| C7 | bCNF-g-MA-6 | 0.82 | 37.0 | 35.9 | 8.4 | 55.1 | 2380 | 5.9 | 3.0 | 113 |
| C8 | bCNF-g-MA-7 | 1.00 | 36.5 | 35.3 | 7.8 | 54.1 | 2340 | 5.9 | 2.7 | 112 |
| C9 | bCNF-g-MA-8 | 0.30 | 34.5 | 32.6 | 6.7 | 53.0 | 2430 | 5.6 | 2.0 | 117 |
| C10 | bCNF-g-MA-9 | 0.12 | 34.9 | 33.7 | 6.3 | 53.2 | 2400 | 5.8 | 2.0 | 114 |
| C11 | bCNF-g-MA-10 | 1.09 | 36.9 | 35.8 | 8.0 | 55.0 | 2410 | 5.9 | 3.2 | 115 |
| C12 | bCNF-g-MA-11 | 1.10 | 37.0 | 35.4 | 8.9 | 55.4 | 2400 | 6.0 | 3.2 | 115 |
| C13 | cCNF-g-MA-BL | — | 29.5 | 25.8 | 12 | 48.8 | 2450 | 5.5 | 2.5 | 114 |
| C14 | cCNF-g-MA-1 | 0.83 | 37.0 | 36.0 | 7.3 | 55.3 | 2420 | 5.9 | 2.9 | 117 |
| C15 | cCNF-g-MA-2 | 1.40 | 37.1 | 35.4 | 9.4 | 55.2 | 2390 | 6.0 | 3.1 | 116 |

続いて、CNF複合廃材酸変性樹脂のグラフト率と曲げ強度の関係を図2-88に示す。

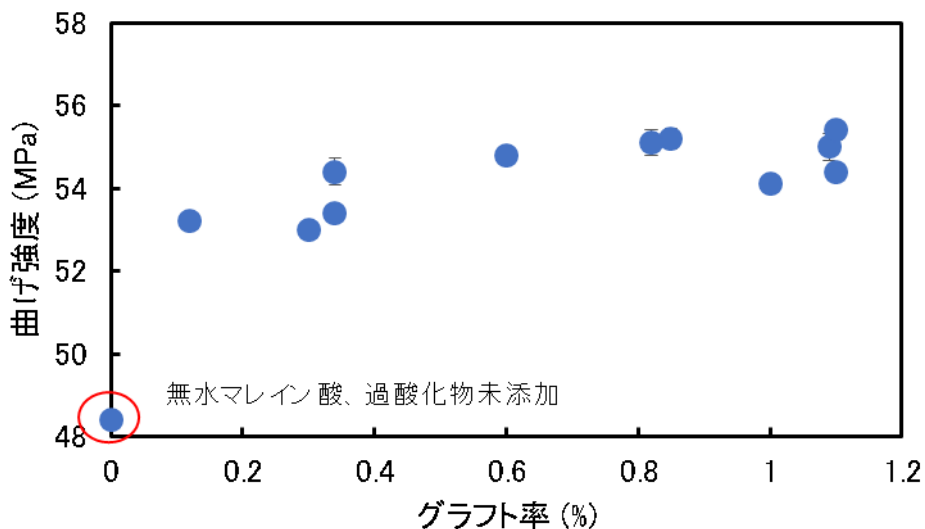


図2-88 酸変性樹脂のグラフト率と曲げ強度

グラフト率0%のプロットは酸変性処理を行っていない（無水マレイン酸と有機過酸化剤未添加の）CNF複合材廃材モデル樹脂（bCNF）を用いた条件である。酸変性処理を行うことにより、曲げ強度が向上していることがわかる。これは、「2.1.3.1 酸変性樹脂化レシピの検証」で記述したように、CNF複合材廃材モデル中のPPと無水マレイン酸がグラフト反応により、無水マレイン酸変性PPが生成したことによるものである。本来、炭酸カルシウムとポリプロピレンは極性と無極性であり、いわば、「水と油」の関係であるため馴染まない。しかし、無水マレイン酸変性PPはPPにグラフトした無水マレイン酸部分が極性であり、ここでは炭酸カルシウムと水素結合等の結合を形成する。これにより、炭酸カルシウムとPPの界面を馴染ませる効果が発現したと考える。ここで、グラフト率と曲げ強度の関係をみると、グラフト率が高くなるにしたがって上昇する傾向があるが、約0.6~0.8%以上では横ばいとなっている。

CNF複合材廃材酸変性樹脂のグラフト率とノッチ付アイゾット衝撃強度の関係を図2-89に示す。

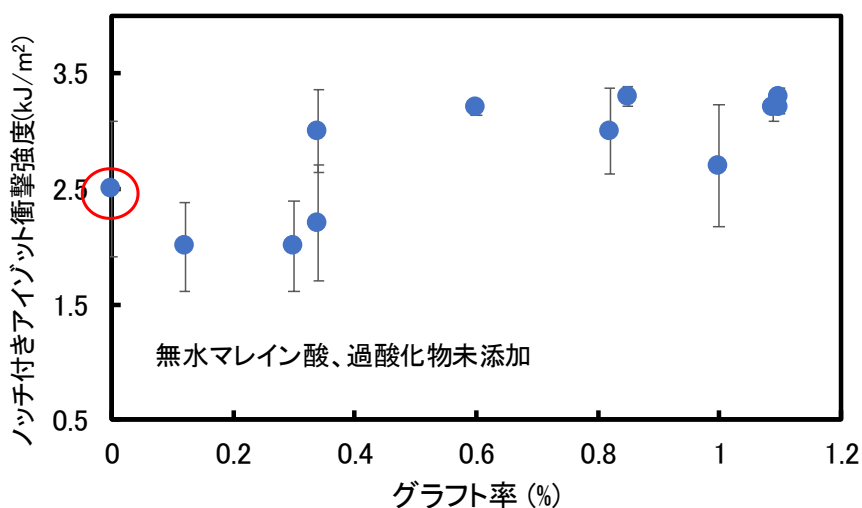


図2-89 酸変性樹脂のグラフト率とノッチ付アイゾット衝撃強度

曲げ強度と同様に0%は無水マレイン酸と有機過酸化剤未添加の条件である。グラフト率が0.6~0.8%の範囲にて酸変性処理を行っていないCNF複合材廃材を混ぜたサンプルよりも大幅に耐衝撃性が向上したことから、明らかにCNF複合材廃材モデルの酸変性処理が衝撃強度向上に効果があるということが証明された。一方、グラフト率が0.4%までは耐衝撃性が徐々に低下傾向がみられる。酸変性樹脂のグラフト率と分子量はトレードオフの関係であるため、耐衝撃性の向上には適切な範囲があることが示唆された。

2.1.3.2.3.2.2 CNF 複合材廃材モデル樹脂種類の影響

CNF複合材廃材モデル樹脂（bCNF）およびLCNF複合材廃材モデル樹脂（cCNF）の効果を比較した。CNF複合材廃材モデル樹脂の種類以外は同一条件で作製した酸変性樹脂を用いた炭酸カルシウム充填プラスチックC4、C14の曲げ強度およびノッチ付きアイゾット衝撃試験結果を図2-90に示した。曲げ強度はCNF複合材モデルの種類によらず、同程度の値であった。ノッチ付アイゾット衝撃強度はC4（bCNF使用品）のほうがC14（cCNF使用品）よりも

高強度となったが、有意な差はみられなかった。よって、酸変性樹脂は同様の作り方ならば、CNF複合材廃材モデル樹脂の種類がフィラー充填プラスチックの強度へ与える影響は小さいと考えられる。

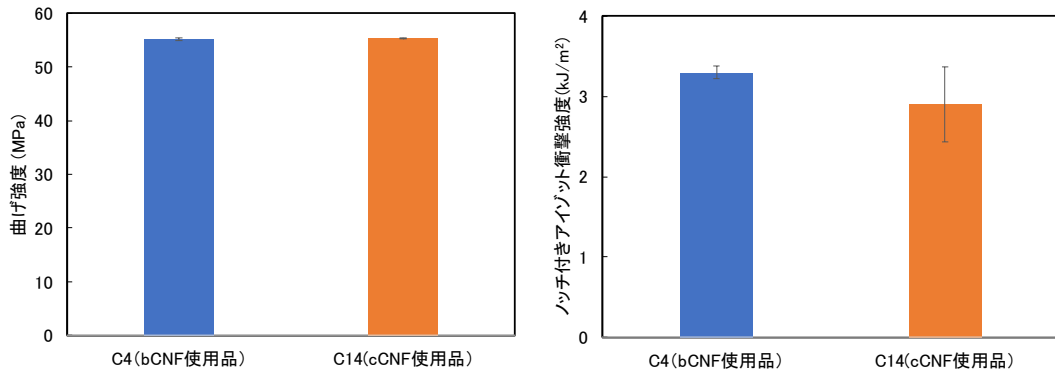


図 2 - 9 0 CNF複合材廃材モデル樹脂の種類による物性比較

2.1.3.2.3.2.2.3 フィラーの分散状態観察

フィラーの分散状態をX線CTスキャンにて確認した。酸変性処理を行っていないCNF複合材廃材を混ぜたサンプル、酸変性処理を行ったCNF複合材廃材モデル樹脂を混ぜたサンプル、酸変性処理を行ったLCNF複合材廃材モデル樹脂を混ぜたサンプルの観察結果を図 2 - 9 1 ~ 9 3 に示す。炭カルはX線を吸収しやすいため白色に、樹脂はX線を透過しやすいため灰色で表示される。いずれの試験体においても50 μ m以上のものが観察されないため炭酸カルシウムは酸変性樹脂により均一に分散していると考えられる。

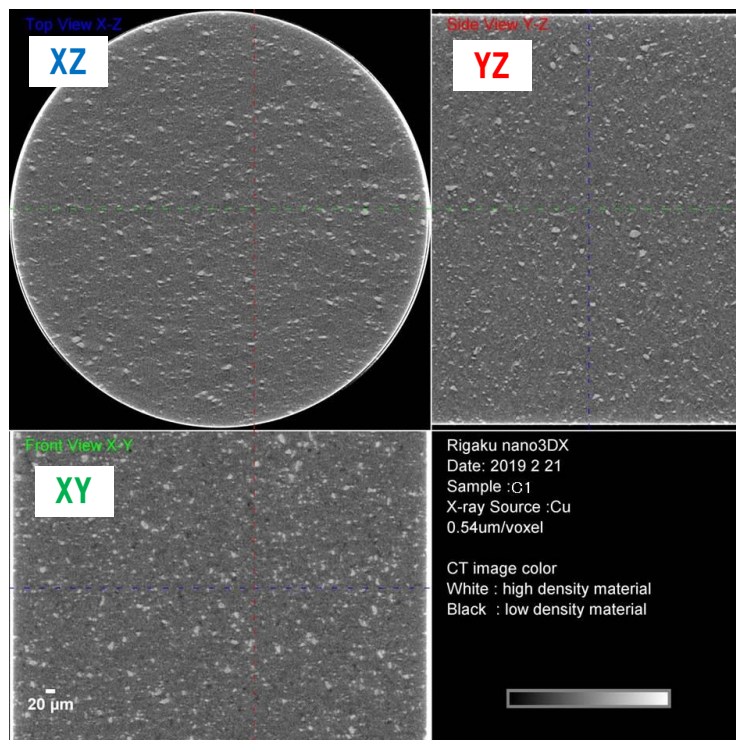


図 2 - 9 1 試験体No. C1のX線CT画像

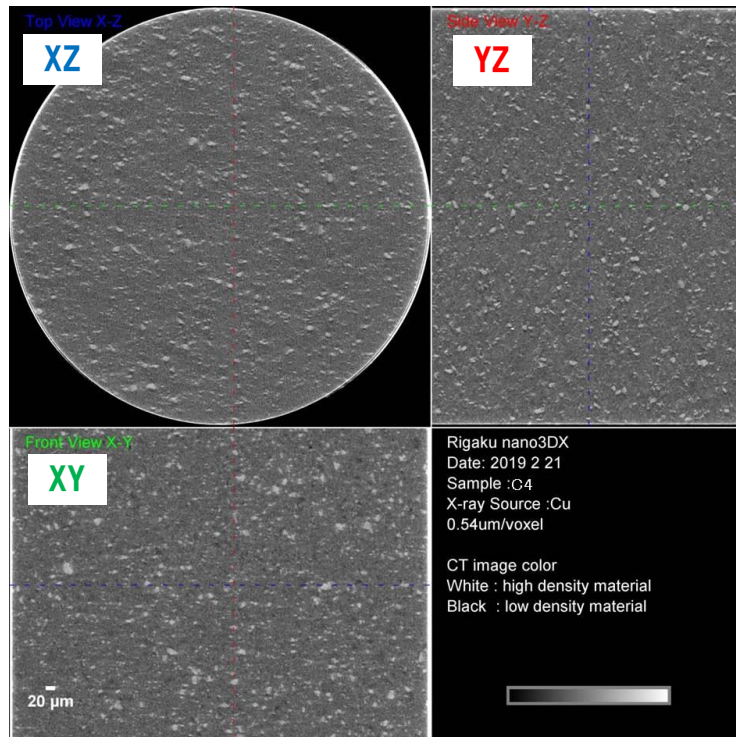


図 2 - 9 2 試験体No. C4のX線CT画像

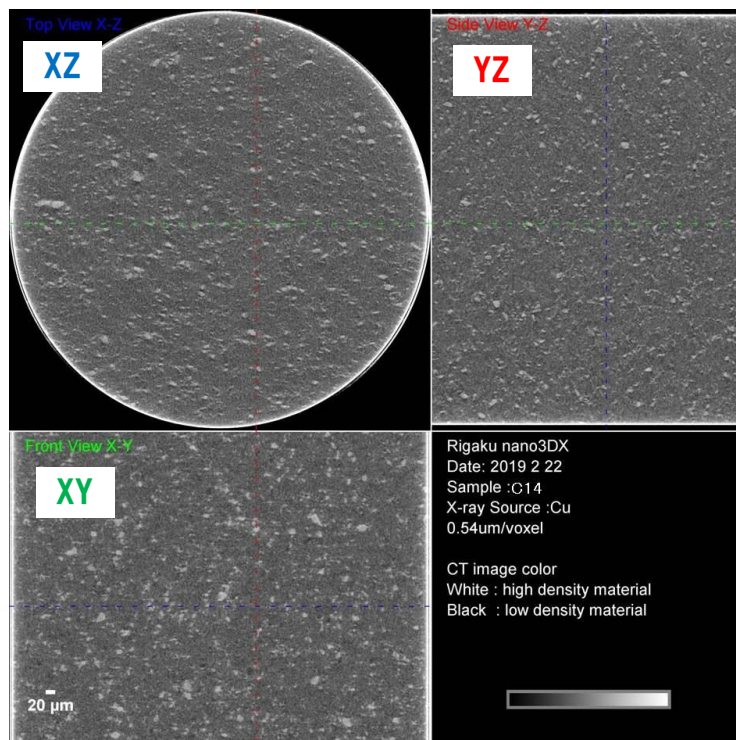


図 2 - 9 3 試験体No. C14のX線CT画像

2.1.3.2.3.2.2.4 透過型電子顕微鏡 (TEM) によるフィラー界面の観察

フィラー界面の状態をTEMにて確認した。特徴的な配合の試験体を図2-94~96に示す。四酸化ルテニウム染色によって、PPの海（濃い灰色）に炭酸カルシウムの島（黒色および白色）が分散する海島構造が観察された。CNFは配合組成全体から比べると非常に少ないため、観察視野内では確認できていない。全試料ともに、炭酸カルシウムの分散に方向性は見られず、また、炭酸カルシウムの分散径（大きさ）はサブ μm ~十数 μm であり、試料間で大きな差異は確認されなかった。高倍率（ $\times 100,000$ ）の観察では、炭酸カルシウムとPPの界面にラメラ晶の存在が確認される。C1には酸変性樹脂は添加されていないが、C4、C14にはCNF複合材廃材酸変性樹脂が添加されている。高倍率観察における炭酸カルシウム界面に着目すると、CNF複合材廃材酸変性樹脂を添加した系では、一部黒味がかった薄い界面が確認される。この部分が酸変性樹脂の存在であると推察する。これにより、極性の炭酸カルシウムと無極性のPPが馴染み、炭酸カルシウムのフィラーとしての強度を発現させている。



図2-94 試験体No. C1の染色TEM画像(左 $\times 5000$, 右 $\times 100000$)

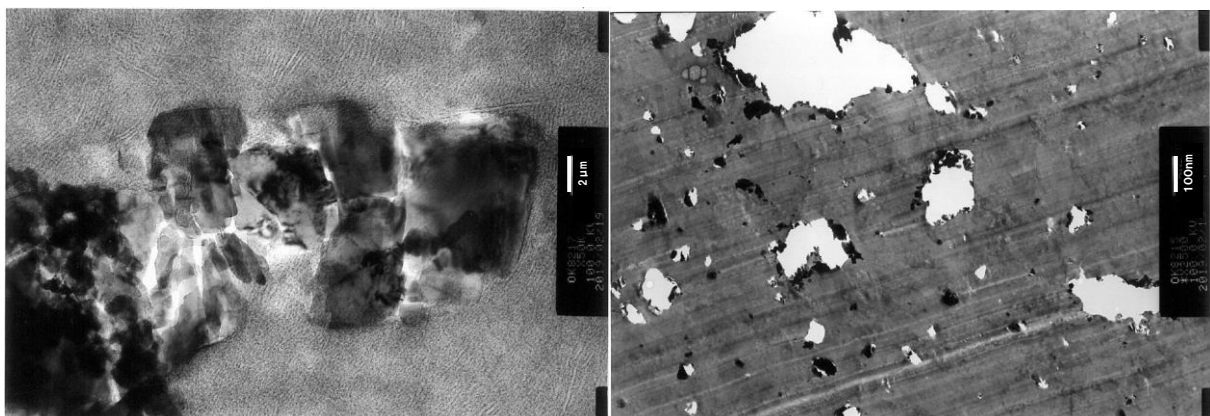


図2-95 試験体No. C4の染色TEM画像(左 $\times 5000$, 右 $\times 100000$)

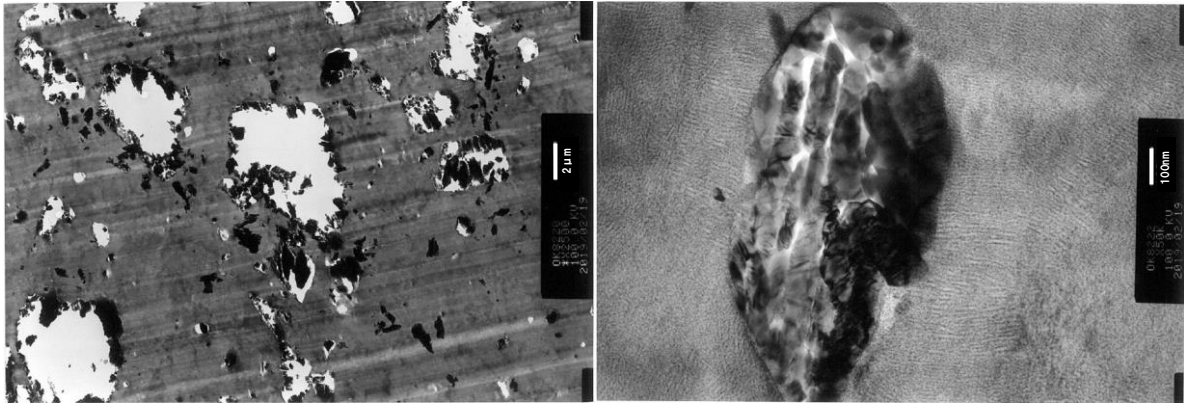


図 2 - 9 6 試験体No. C14の染色TEM画像(左×5000, 右×100000)

2. 1. 3. 2. 3. 2. 3 炭酸カルシウム充填プラスチックのまとめ

連続処理となる押出機を用いて、酸変性樹脂を用いた炭酸カルシウム充填プラスチックの物性を評価した。酸変性樹脂を用いることで、ラボ設備（バッチ処理）で試作した条件と同様に曲げ強度および衝撃強度が向上することを確認した。

2.1.3.2.3.3 タルク充填プラスチック

2.1.3.2.3.3.1 試験方法

2.1.3.2.3.3.1.1 原材料

原材料は「2.1.3.2.2 ラボ設備を用いたフィラー充填プラスチックの性能評価」に用いた材料と同様のタルク (Talc)、ポリプロピレン (PP) を用いた。

2.1.3.2.3.3.1.2 配合条件

試料の配合表を表 2-35 に示す。

表 2-35 配合表

| No. | 配合 (重量ベース) |
|-----|---------------------------------|
| T1 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-BL 2% |
| T2 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-1 2% |
| T3 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-2 2% |
| T4 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-3 2% |
| T5 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-4 2% |
| T6 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-5 2% |
| T7 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-6 2% |
| T8 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-7 2% |
| T9 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-8 2% |
| T10 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-9 2% |
| T11 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-10 2% |
| T12 | PP 73% Talc 25% bCNF-g-MA-11 2% |
| T13 | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-BL 2% |
| T14 | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-1 2% |
| T15 | PP 73% Talc 25% cCNF-g-MA-2 2% |

2.1.3.2.3.3.1.3 作製方法

CNF複合材廃材酸変性樹脂とPP、タルクを所定の配合比でドライブレンドした。混練は30mm二軸押出機 (型式TEX30 α -52.5BW-11V:日本製鋼所製) を用い、混練条件は、設定温度は、ダイス側より220°C/200°C/180°C/200°C/180°C/150°C、スクリー回転数: 300rpmとした。装置を図2-97に示す。



図 2 - 9 7 30mm二軸押出機 (型式TEX30 α -52.5BW-11V: 日本製鋼所製)

また、得られたコンパウンドを射出成形にて試験片に成形した。射出成形は炭酸カルシウム充填プラスチックと同様にFE80S12ASE (日精樹脂工業製) を用い、ISOに準拠した多目的のタイプAを作製した。表 2 - 3 6 に射出成形条件を示す。

表 2 - 3 6 射出成形条件

| | |
|----------|-------------------------|
| 熔融樹脂温度 | 200°C |
| シリンダ設定温度 | 195°C/195°C/195°C/175°C |
| 金型温度 | 40°C |
| 平均射出速度 | 200±20(mm/s) |
| 保圧時間 | 40(s) |
| 冷却時間 | 10(s) |
| 一次圧設定時 | 107(MPa) |
| 保圧設定値 | 72(MPa) |
| スクリー回転数 | 100(rpm) |

2. 1. 3. 2. 3. 3. 1. 4 物性試験

射出成形にて作製した試験片を用い、引張試験、曲げ試験、アイゾット衝撃試験、荷重たわみ温度 (HDT) 測定を行った。試験条件は炭酸カルシウム充填プラスチックと同様である。

2.1.3.2.3.3.2 結果と考察

2.1.3.2.3.3.2.1 物性試験結果

表2-37に試験結果一覧を示す。

表2-37 試験結果一覧

| | 酸変性樹脂 | | 引張試験 | | | 曲げ試験 | | | ノッチ付アイゾット衝撃値 (23°C) (kJ/m ²) | 荷重たわみ温度 (0.45MPa) (°C) |
|-----|--------------|-----------|------------|------------|-----------|----------|-----------|---------|------------------------------------------|------------------------|
| | 名称 | グラフト率 (%) | 降伏応力 (MPa) | 破壊応力 (MPa) | 破壊ひずみ (%) | 強度 (MPa) | 弾性率 (MPa) | ひずみ (%) | | |
| T1 | bCNF-g-MA-BL | — | 36.5 | 32.7 | 9.9 | 58.0 | 3270 | 5.0 | 1.9 | 128 |
| T2 | bCNF-g-MA-1 | 0.34 | 37.8 | 35.1 | 8.5 | 59.1 | 3230 | 5.0 | 1.9 | 129 |
| T3 | bCNF-g-MA-2 | 0.34 | 38.3 | 37.2 | 5.6 | 60.2 | 3260 | 5.1 | 1.9 | 128 |
| T4 | bCNF-g-MA-3 | 0.85 | 38.6 | 36.2 | 8.6 | 60.7 | 3250 | 5.1 | 1.9 | 129 |
| T5 | bCNF-g-MA-4 | 1.10 | 38.4 | 36.2 | 7.8 | 60.6 | 3250 | 5.1 | 1.9 | 128 |
| T6 | bCNF-g-MA-5 | 0.60 | 38.5 | 37.1 | 6.6 | 60.6 | 3280 | 5.1 | 1.9 | 129 |
| T7 | bCNF-g-MA-6 | 0.82 | 38.6 | 36.8 | 7.2 | 60.6 | 3230 | 5.2 | 1.9 | 128 |
| T8 | bCNF-g-MA-7 | 1.00 | 38.6 | 35.7 | 8.4 | 60.7 | 3240 | 5.2 | 1.9 | 127 |
| T9 | bCNF-g-MA-8 | 0.30 | 38.3 | 36.6 | 7.1 | 60.5 | 3260 | 5.1 | 1.9 | 128 |
| T10 | bCNF-g-MA-9 | 0.12 | 38.4 | 35.6 | 8.6 | 60.6 | 3270 | 5.0 | 2.1 | 129 |
| T11 | bCNF-g-MA-10 | 1.09 | 38.6 | 36.2 | 8.4 | 61.0 | 3270 | 5.1 | 1.9 | 128 |
| T12 | bCNF-g-MA-11 | 1.10 | 38.7 | 36.9 | 6.6 | 61.3 | 3270 | 5.2 | 2.0 | 129 |
| T13 | cCNF-g-MA-BL | — | 36.3 | 32.6 | 10 | 58.5 | 3270 | 5.0 | 1.9 | 128 |
| T14 | cCNF-g-MA-1 | 0.83 | 38.4 | 36.8 | 6.8 | 61.0 | 3260 | 5.1 | 2.0 | 129 |
| T15 | cCNF-g-MA-2 | 1.40 | 38.7 | 36.5 | 7.6 | 61.4 | 3260 | 5.2 | 1.9 | 129 |

CNF複合廃材酸変性樹脂のグラフト率と曲げ強度の関係を図2-98に示す。

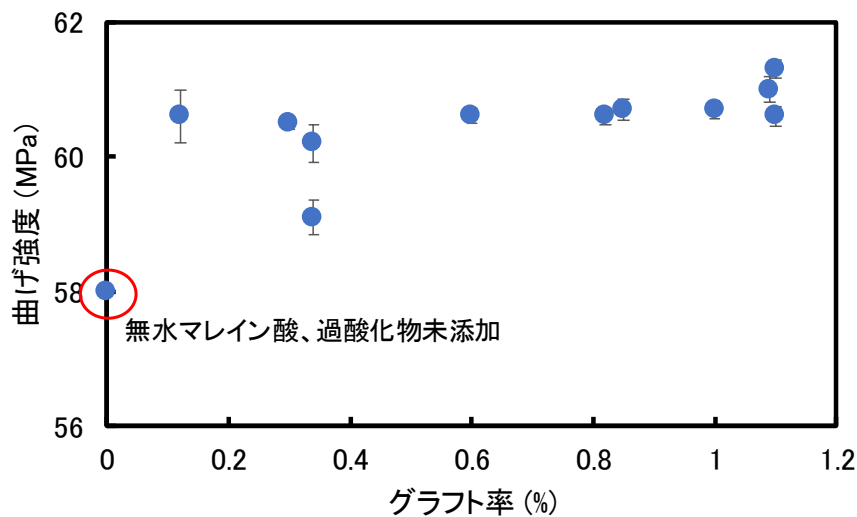


図2-98 酸変性樹脂のグラフト率と曲げ強度

前項炭酸カルシウム充填プラスチック同様、グラフト率0%は無水マレイン酸と有機過酸化剤未添加の条件である。炭酸カルシウムと同様にタルクにおいても、酸変性処理を行う事により曲げ強度が向上していることがわかる。また、グラフト率と曲げ強度の関係をみると、グラフト率が高くなるにしたがって曲げ強度は上昇する傾向があるが、約0.4%以上

では横ばいとなっている。

続いて、酸変性樹脂のグラフト率とノッチ付アイゾット衝撃強度の関係を図2-99に示す。

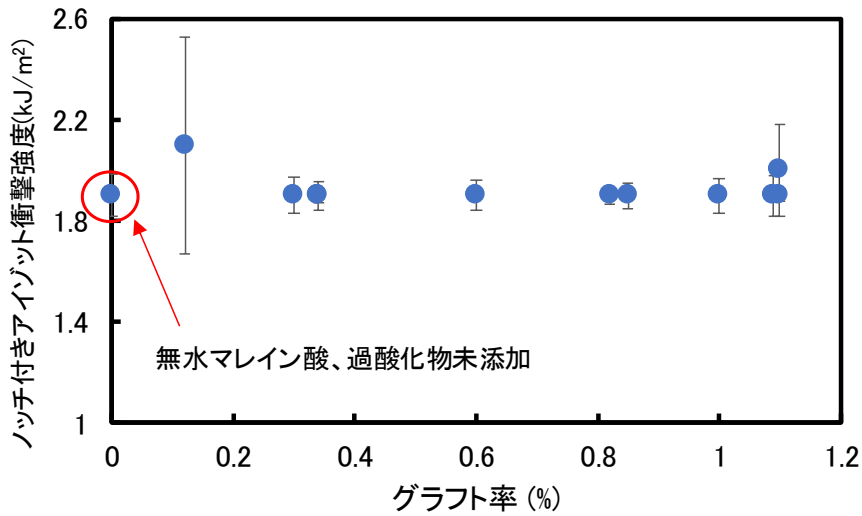


図2-99 酸変性樹脂のグラフト率とアイゾット衝撃強度

グラフト率0%の表記は上記曲げ強度と同様である。炭酸カルシウムの場合と異なり、タルクではノッチ付アイゾット衝撃強度はグラフト率に関係なく一定の値を示した。タルクはポリプロピレンの結晶化を促進することが知られている。ポリプロピレンの結晶化度が高い場合、弾性率が向上し耐衝撃性が低下する。この効果が生じていることは炭酸カルシウム充填プラスチックと比較してノッチ付アイゾット衝撃強度の絶対値が低いことから明らかである。結晶化の進行による衝撃強度低下により、酸変性処理による効果が打ち消され、強度向上が生じなかったと考えられる。

2.1.3.2.3.3.2.2 CNF 複合材廃材モデル樹脂種類の影響

CNF複合材廃材モデル樹脂 (bCNF) およびLCNF複合材廃材モデル樹脂 (cCNF) の効果を比較した。CNF複合材廃材モデル樹脂の種類以外は同一条件で作製した酸変性樹脂を用いたタルク充填プラスチックT4、T14の曲げ強度およびノッチ付きアイゾット衝撃試験結果を図2-100に示した。曲げ強度、ノッチ付きアイゾット衝撃強度ともに、CNF複合材廃材モデルの種類によらず、同程度の値であった。これは炭酸カルシウム充填プラスチックと同様の結果であり、CNF複合材廃材モデル樹脂に用いるCNFの種類が無機フィラー充填プラスチックの物性に与える影響は小さいことが示された。

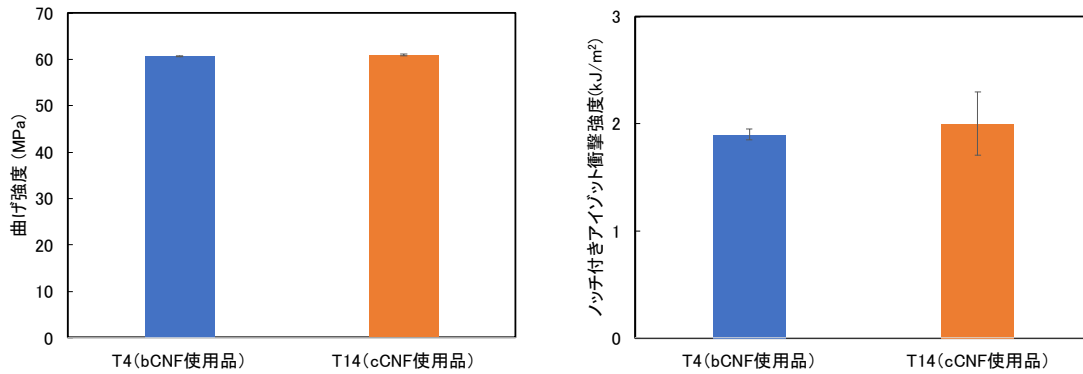


図 2-100 CNF複合材廃材モデル樹脂の種類による物性比較

2.1.3.2.3.3.2.3 フィラーの分散状態観察

フィラーの分散状態をX線CTスキャンにて確認した。酸変性処理を行っていないCNF複合材廃材モデル樹脂を混ぜたサンプル、酸変性処理を行ったCNF複合材廃材モデル樹脂を混ぜたサンプル、酸変性処理を行ったLCNF複合材廃材を混ぜたサンプルの観察結果を図2-101～103に示す。タルクはX線を吸収しやすいため白色に、樹脂はX線を透過しやすいため灰色で表示される。いずれの試験体においても測定方向によりタルクの特徴を示す鱗片形状の粒子が分散していることが確認された、また鱗片ではない50 μ m以上の塊は観察されないためタルクの凝集はなく均一に分散していると考えられる。

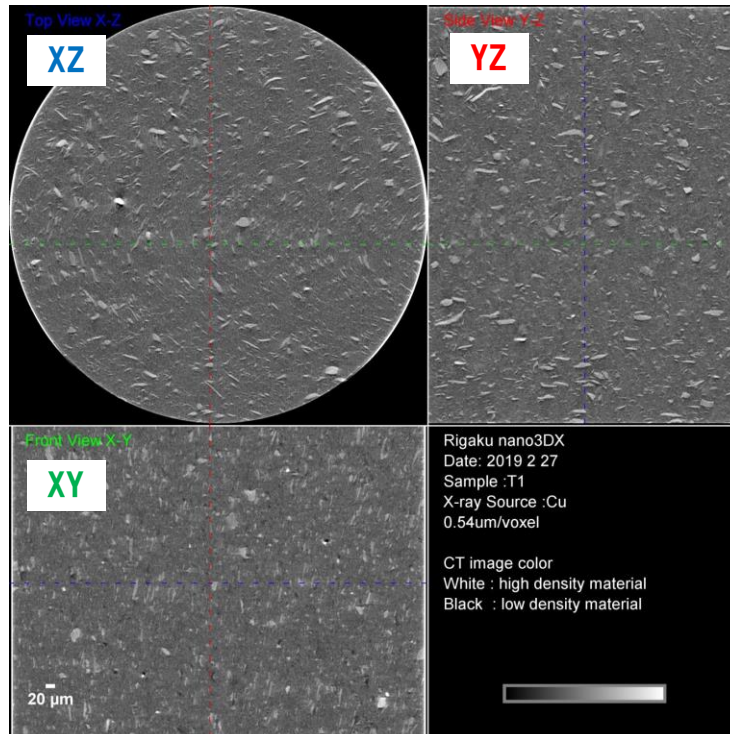


図 2-101 試験体No. T1のX線CT画像

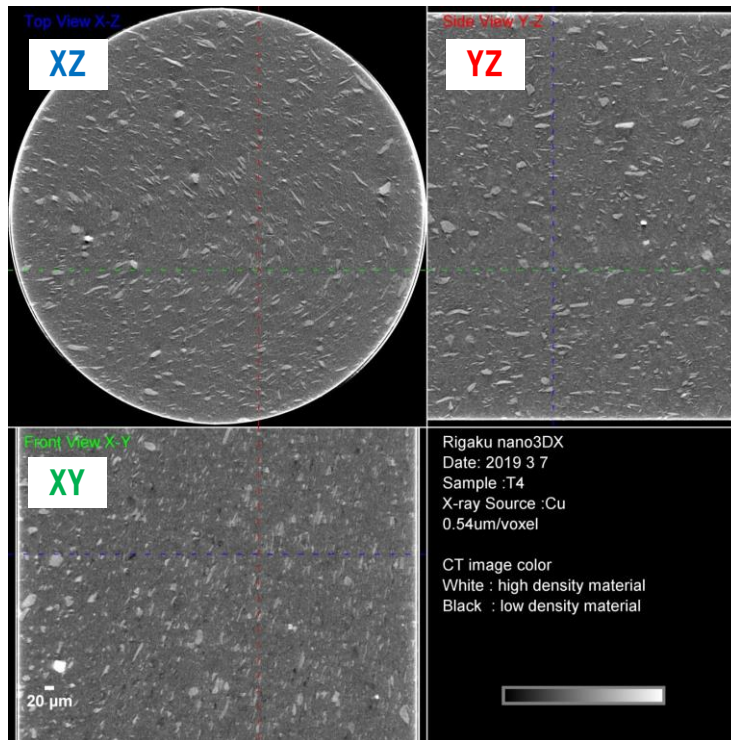


図 2 - 1 0 2 試験体No. T4のX線CT画像

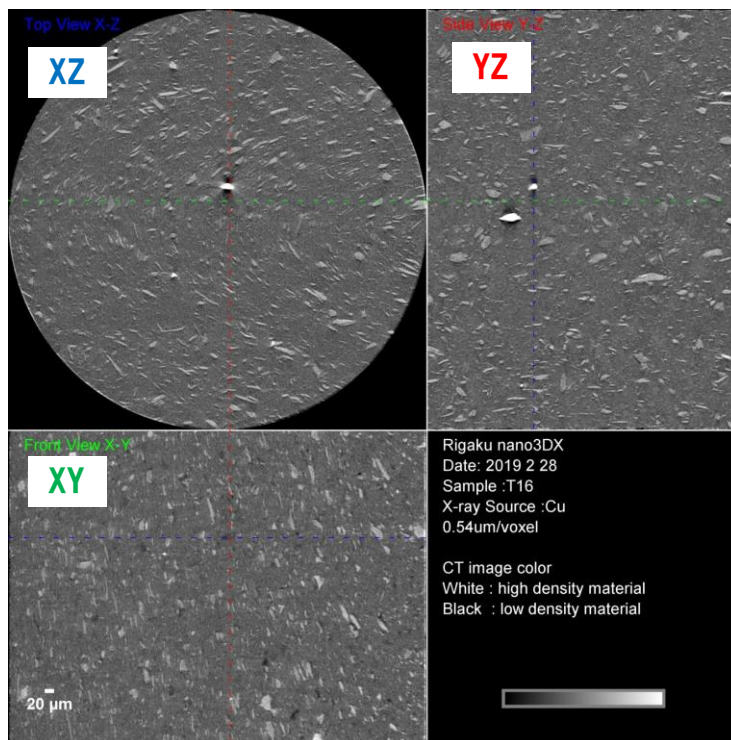


図 2 - 1 0 3 試験体No. T14のX線CT画像

2.1.3.2.3.3.2.4 透過電子顕微鏡(TEM)によるフィラー界面の観察

フィラー界面の状態を透過電子顕微鏡(TEM)にて確認した。特徴的な配合の試験体を図2-104~106に示す。四酸化ルテニウム染色によって、PPの海(濃い灰色)にタルクの島(黒色および白色)が分散する海島構造が観察された。CNFは配合組成全体から比べると非常に少ないため、観察視野内では確認できていない。全試料ともに、タルクの分散に方向性は見られず、また、タルクの分散径(大きさ)は数 μm ~数十 μm であり、試料間で大きな差異は確認されなかった。高倍率($\times 100,000$)の観察では、タルクとPPの界面にラメラ晶の存在が確認される。T1には酸変性樹脂は添加されていないが、T4、T14にはCNF複合材廃材酸変性樹脂が添加されている。高倍率観察におけるタルク界面に着目すると、CNF複合材廃材酸変性樹脂を添加した系では、一部黒味がかった薄い界面が確認される。この部分が酸変性樹脂の存在であると推察する。これにより、極性のタルクと無極性のPPが馴染み、タルクのフィラーとしての強度を発現させる。



図2-104 試験体No. T1の染色TEM画像(左 $\times 5000$, 右 $\times 100000$)



図2-105 試験体No. T4の染色TEM画像(左 $\times 5000$, 右 $\times 100000$)

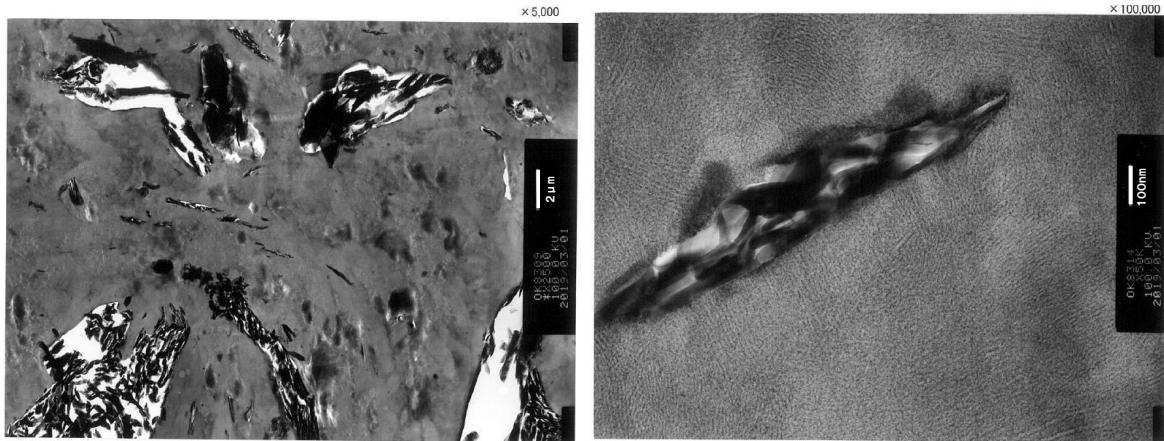


図 2 - 1 0 6 試験体No. T14の染色TEM画像(左×5000, 右×100000)

2.1.3.2.3.3.3 タルク充填プラスチックのまとめ

連続処理となる押出機を用いて、酸変性樹脂を用いたタルク充填プラスチックの物性を評価した。酸変性樹脂を用いることで、曲げ強度の向上を確認することができた。衝撃強度に関しては絶対値が小さいため酸変性樹脂の効果を確認することができなかった。

2.1.3.2.3.4 まとめ

連続処理となる押出機を用いて、酸変性樹脂を用いた炭酸カルシウムおよびタルク充填プラスチックの物性を評価した。炭酸カルシウムに関しては酸変性樹脂を用いることで、曲げ強度および衝撃強度が向上することを確認した。タルクに関しては曲げ強度の向上が見られた。

2.1.3.2.4 物性向上に向けたラボ設備試作の追加検討

2.1.3.2.4.1 曲げ特性向上の方法確立

2.1.3.2.4.1.1 概要

前述の結果において更なる強度を引き出すために、「リアクティブプロセス」について検討した。酸変性とフィラー充填マスターバッチ作製を同時に実施するリアクティブプロセスにより、強固な化学的結合と力学的エネルギーによるフィラー分散を期待した。結果として、リアクティブプロセスを用いることで曲げ強度を20%向上させた。詳細の試験内容を以下に示す。

2.1.3.2.4.1.2 配合条件

追加サンプルの配合表を表2-38に示す。

表2-38 リアクティブプロセスを利用したタルクマスターバッチ配合

| 試作品名 | タルク [phr] | CNF [phr] | MA [phr] | |
|------------------------|-----------|----------------------------|----------|------------|
| | SSS | CNF 複合材廃材 酸変性樹脂 bCNF | 無水マレイン酸 | トリゴノックス101 |
| bCNF-g-MA-12(reactive) | 80 | 20 | 4 | 1 |

この原料を用いて、表2-39に示す配合表に従いサンプルを作製した。高濃度な酸変性処理であるbCNF-g-MA-12を希釈することでタルク充填量が25%となるように調整した。

表2-39 タルク充填プラスチック配合表

| No. | 配合 |
|--------------|---------------------------------------|
| PP-TA-bMA-12 | J107G 69% bCNF-g-MA-12(reactive) 31%* |

* Talc 25%となるように充填率を調整した。

2.1.3.2.4.1.3 サンプル作製及び試験方法

リアクティブプロセスではフィラーと樹脂との熔融混合と酸変性処理を同時に行う。

図2-107にリアクティブプロセスによるサンプル作製方法と評価について示す。

PP-TA-bMA-12ではラボプラストミルにbCNFとタルクを混ぜた後、無水マレイン酸と有機過酸化物を添加するリアクティブプロセスを採用した。(14~15ページを参照)

有機過酸化物添加開始より10分間の混練をした後、サンプルを回収し、このプロセスにより作製されたタルクマスターバッチであるbCNF-g-MA-12(reactive)を再度ラボプラストミルに投入し、PPで希釈した。

混練時間は10分間とした。得られたタルク充填プラスチックを射出成形して各種評価に用いる試験片を得た。

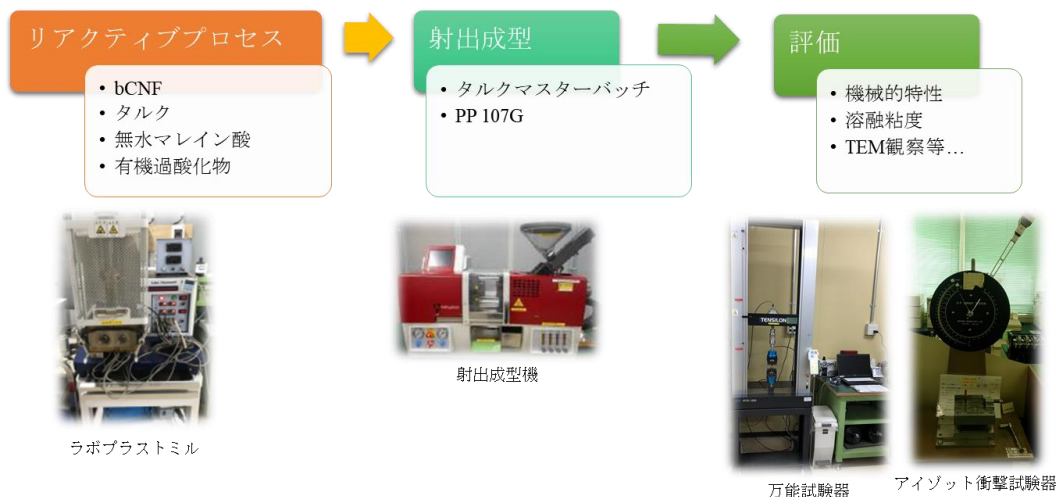


図 2-107 リアクティブプロセスによるサンプル作製方法と評価

2.1.3.2.4.1.4 無機フィラー界面における CNF 効果による補強効果のシミュレーション解析法

本結果における CNF 効果のメカニズムを解明するために、数値解析シミュレーションを実施した。ここでは「均質化法に基づいたマルチスケール有限要素解析シミュレーション手法」を用いて、フィラー充填プラスチックの非線形挙動に及ぼす界面の結合状態の影響を調査した。本解析における着眼点は、「フィラーを覆う界面層の表面積と機械特性の関係」及び「界面の結合力と機械特性の関係」とした。

下記表 2-40 では、解析に使用したモデル材の各種物性を示す。本材料をベースに、短軸引張試験より得た応力-ひずみ関係を直線近似し、有限要素解析に入力した。この時の試験片は長さ 50mm、幅 4mm、厚さ 2mm で、試験はひずみ速度を 2.0mm/min として実施した。

表 2-40 解析に使用した材料物性値

| Material | Young's modulus [GPa] | Poisson's ratio [-] | Strength [MPa] |
|------------------------|-----------------------|---------------------|----------------|
| Filler (Talc) | 1.24 | 0.3 | 20.4 |
| Weak interface layer | 0.0235 | 0.3 | 0.37 |
| Strong interface layer | | | 11.1 |
| Matrix (PP) | 0.81 | 0.3 | 31.9 |

2.1.3.2.4.2 試験結果

2.1.3.2.4.2.1 リアクティブプロセスによる物性改善

リアクティブプロセスを用いることで機械特性の改善を目指した。それぞれの機械特性を向上させるためには如何にマトリックス樹脂とフィラーを相溶させることができるかが重要となる。その意味で、フィラーと相溶化剤のマスターバッチを作製するリアクティブプロセスは通常複合化プロセスと比べて、フィラーに酸変性樹脂を集めることができる。また、CNFを含む酸変性樹脂を高濃度でサンプル中に使用することができるため、フィラー表面に酸変性樹脂を集中させることができる。また、CNFによる補強効果も期待できる。図2-108～110にタルク25%配合におけるリアクティブプロセス試作サンプル（PP-TA-bMA-12）と酸変性樹脂未添加品（BLANK-TALC）、酸変性CNF複合材廃材添加品（PP-TA-bMA-BL、PP-TA-bMA-3）の曲げ、衝撃、引張強度の比較結果を示す。なお、本試験における配合はBLANK-TALC、PP-TA-bMA-BL、PP-TA-bMA-3の配合条件は表2-21（60ページ）、表2-24を参照（69ページ）PP-TA-bMA-12は表2-39（96ページ）に示す。

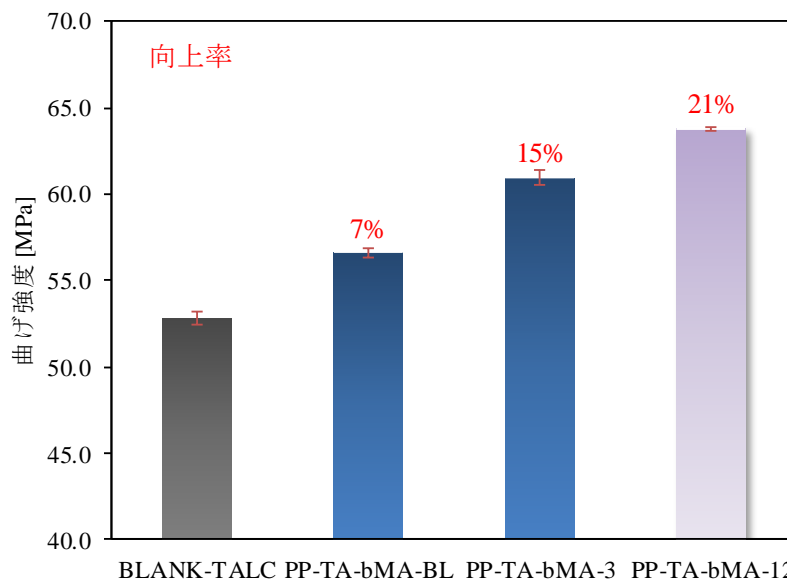


図2-108 リアクティブプロセス試作サンプルの曲げ強度

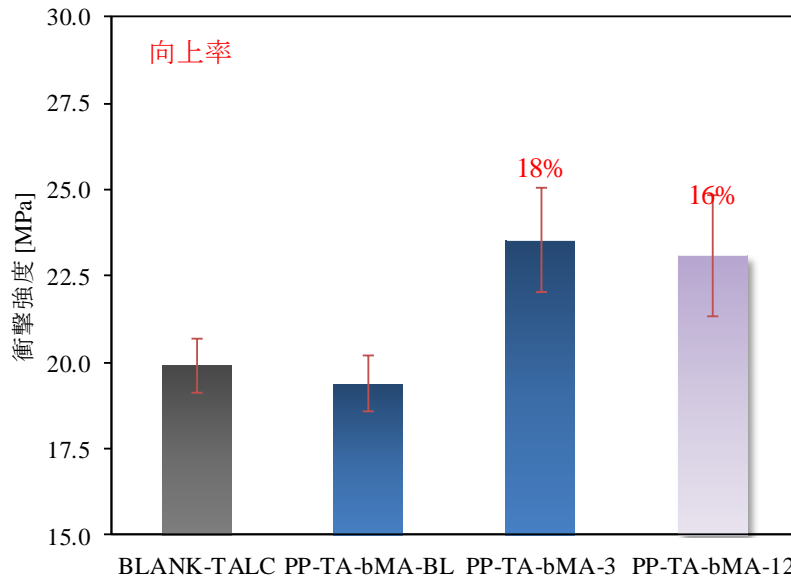


図 2 - 1 0 9 リアクティブプロセス試作サンプルの衝撃強度

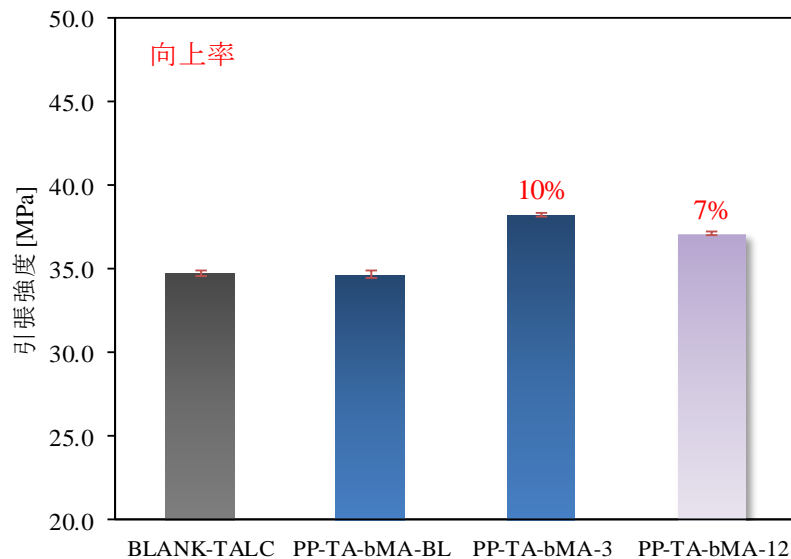


図 2 - 1 1 0 リアクティブプロセス試作サンプルの引張強度

結果として、リアクティブプロセスにより、曲げ強度の更なる改善に成功し、ブランク材と比較し、向上率が 20% を達成した。衝撃強度等についても同様に目標値を大きく達成していることから、曲げ強度と衝撃強度の向上には本手法が最適であった。

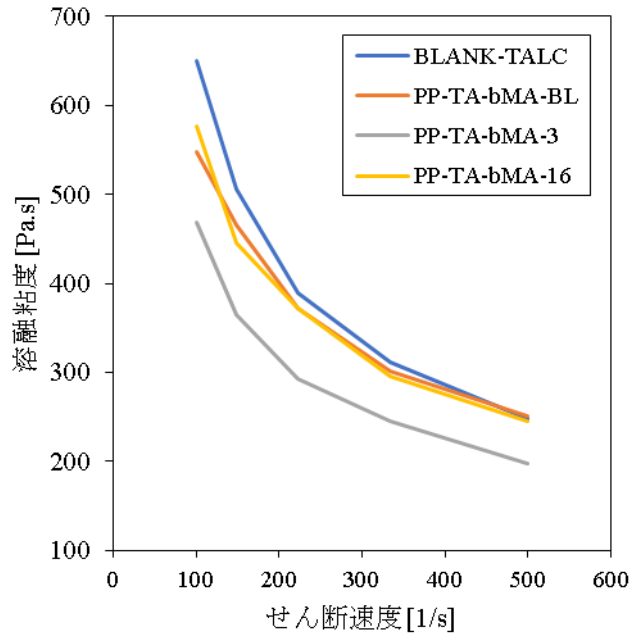


図 2-1-1-1 タルク充填プラスチックにおけるせん断速度と溶融粘度の関係

図 2-1-1-1 では、せん断速度と溶融粘度の関係を示す。酸変性樹脂として複合化した PP-TA-bMA-3 では酸変性未処理品と比べて、非常に低い溶融粘度を示した。これは分子量の低い酸変性樹脂がマトリックス中に分散することにより、樹脂全体の分子量バランスが低下したことによると示唆される。一方で同程度の分子量を持つリアクティブプロセスで酸変性処理した PP-TA-bMA-12 では溶融粘度が未処理品と同程度まで増加した。これはリアクティブプロセス処理時よる酸変性樹脂がフィラーに集中分散し、マトリックス中に逃げなかったことが影響していると考えられる。また、図 2-1-1-2 の TEM による観察結果より、リアクティブプロセスではタルクが凝集することなく細かく分散していることが確認できた。

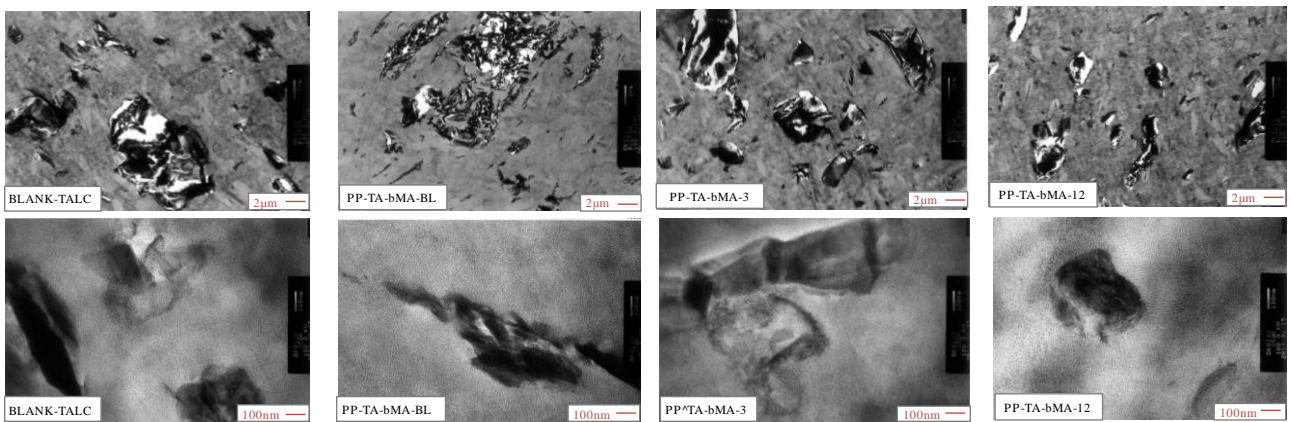


図 2-1-1-2 各サンプルの TEM 画像(上: 5,000 倍、下: 100,000 倍)

これにより溶融粘度が増加するだけでなく、曲げ特性が向上したことが考えられる。

2.1.3.2.4.2.2 無機フィラー界面における CNF による補強効果のシミュレーション

まずタルク充填プラスチックにおいて酸変性樹脂の被覆状態について検証した。図 2-1-1-3 に示すように被覆状態の差を検証する上で、「完全被覆」、「1/2 被覆」、「1/4 被覆」について定義した。これにより、タルク表面に存在する CNF 複合材廃材酸変性樹脂の被覆状態と機械的強度の関係性について定義することができる。

以下、考察に用いたサンプル PP-TA-bMA-BL、PP-TA-bMA-3 の配合条件は表 2-2-1 (60 ページ)、表 2-2-4 (69 ページ)、PP-TA-bMA-12 は表 2-3-9 (96 ページ) に示す。

上記条件をもとに、図 2-1-1-2 下段に示す TEM による 100,000 倍拡大時した時の界面状態を観察した。BLANK-TALC ではフィラー界面に相溶性が見られず、マトリクス樹脂である PP とフィラーにおける界面は分かれている。PP-TA-bMA-BL においては CNF を観察できていないため、CNF の存在領域を定義することは難しいが、図 2-1-0-8 に示す曲げ強度の結果より、CNF 添加による曲げ強度の向上が確認できたことから、複合材中において CNF による補強効果があると判断できる。

一方で、酸変性樹脂を添加した PP-TA-bMA-3 及び PP-TA-bMA-12 ではフィラー表面に酸変性樹脂の非結晶性成分があるため、PP/フィラー界面が明白に分かれていない。よって、酸変性処理をすることでフィラーとの相溶性が高まっていることが示唆される。リアクティブプロセスでは酸変性とフィラーとの高純度複合化を同時に実施する。それにより、通常の酸変性樹脂添加方法と比べ、CNF 複合材廃材酸変性樹脂はフィラー表面に最も多く存在することとなる。この複合化プロセスの違いにより、PP-TA-bMA-3 は 1/2 被覆状態、PP-TA-bMA-12 は完全被覆状態と仮定した。

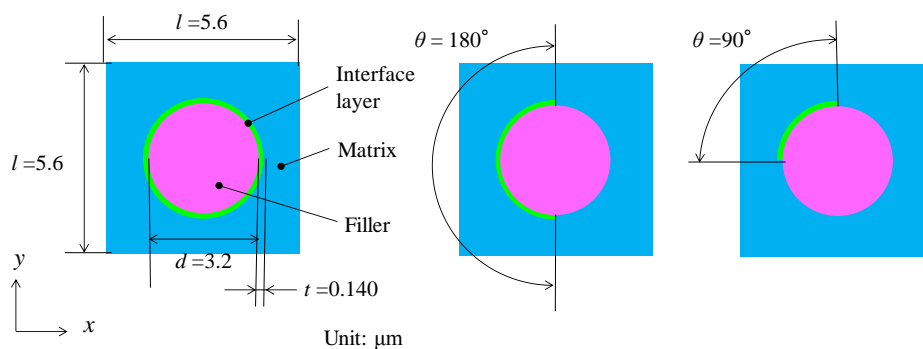


図 2-1-1-3 フィラー断面における界面の形状
(左：完全被覆、中：1/2 被覆、右：1/4 被覆)

そこで、界面強度を高めるため酸変性処理した CNF 複合材廃材を用いた場合について検証する。ここでは 1/2 被覆状態である PP-TA-bMA-3 において図 2-1-1-4 と同様に引張応力とひずみの関係について、「フィラーを覆う界面層の表面積」の視点から検証した。図 2-1-1-4 より、被覆面積が 180° の場合において初期損傷は負荷応力 0.87MPa、負荷ひずみ 0.12% で発生した。一方で被覆面積が 90° の場合、初期損傷は負荷応力 1.1MPa、負荷ひずみ 0.14% で発生した。これは CNF 複合材廃材酸変性樹脂の被覆した面積が小さいことで、

被覆されていない部分からトルクが直接的に応力を受けることになる。これにより、被覆面積が大きいほどトルクの界面強度が向上し、機械的特性が向上することが考えられる。よって、界面被覆の有無で考えた場合、界面被覆面積の小さいPP-TA-bMA-BLと比べ、被覆面積の大きいPP-TA-bMA-3の方が機械物性の向上に影響が大きいと言える。これにより、CNF 複合材廃材を酸変性処理することの意義を確認できた。

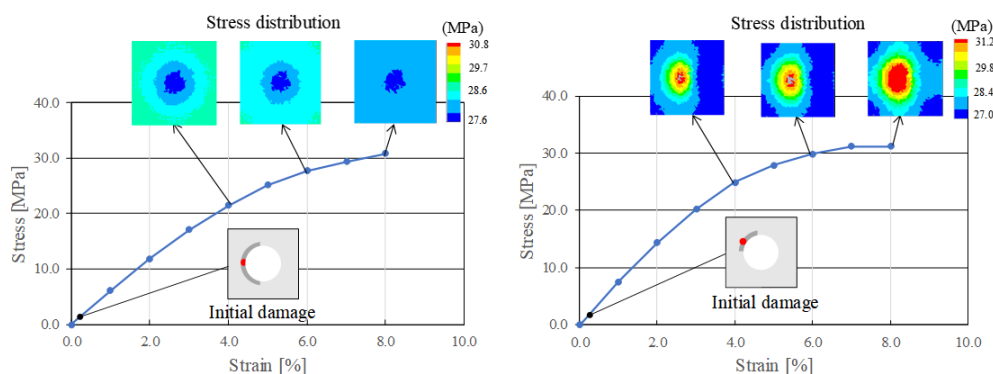


図 2-1-14 界面強度が低いモデルにおける不完全被覆状態のマクロ応力-ひずみ関係
(左: 1/2 被覆、右: 1/4 被覆)

ここで完全被覆状態と仮定して界面強度による影響について検証することとした。その結果を図 2-1-15 に示す。界面強度が低い場合、初期損傷は負荷応力 1.1MPa、負荷ひずみが 0.16% のときに発生しているが、高い場合では負荷応力 26MPa、負荷ひずみ 6.1% の非線形が高まる高ストレス状態で発生することが確認できた。これにより、界面層によって複合材の強度を引き出していることになる。よって界面層の強度を高めることが重要である。

一方で完全被覆状態における界面強度が低い場合の初期損傷が発生する負荷応力は界面被覆面積の小さい 90° の時に類似する結果となった。この理由として、不完全被覆の場合では外部応力を界面層とフィラーが分散して受けるため、複合材の損傷が小さくなる。これにより、本解析から最も良い状態は不完全被覆で被覆面積が大きい状態と言える。

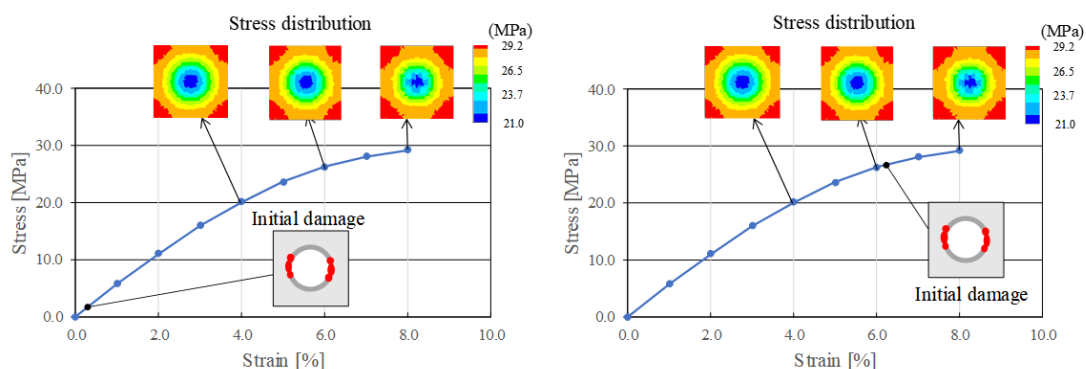


図 2-1-15 完全被覆状態のマクロ応力-ひずみ関係
(左: 界面強度が低い、右: 界面強度が高い)

上記解析結果と機械特性について合わせてみる。曲げ強度においては酸変性樹脂およびリアクティブプロセスを用いた PP-TA-bMA-12 が最良の結果となった。一方で、衝撃強度及び引張強度においてはリアクティブプロセスによって、通常の酸変性樹脂である PP-TA-bMA-3 を下回る結果となった。

曲げ強度ではフィラーの分散性が物性に影響することが推察され、酸変性樹脂の被覆面積が大きい PP-TA-bMA-12 において最良の結果を得ることができた。一方で、衝撃試験と引張試験においてはフィラー界面の強度が影響していることから、不完全被覆で界面面積の大きい PP-TA-bMA-3 の方がリアクティブプロセスよりも良い結果につながったと言える。それでもリアクティブプロセスはフィラーの分散作用による CNF 補強効果によって曲げ強度及び衝撃強度において目標を達成することができたため、本条件を最良とする。

2.1.3.2.4.3 タルク充填量による影響

2.1.3.2.4.3.1 目的

本項では、フィラー充填プラスチックの用途を拡大することを目的として、「タルク充填量の変更」について調査した。1 つ目のタルク充填量の変更では、用途によって変わるタルクの充填量に対応できるかの判断をするためにタルク充填量を 10～40%の複合材を作製した。結果として、タルクの充填量によって機械的特性は変動するものの本酸変性樹脂の使用は可能であると期待できる。詳細の結果を以下に示す。

2.1.3.2.4.3.2 配合表

本試験の配合表を表 2-41 に示す。PP-TA-bMA-3a～3d では酸変性樹脂として「bCNF-g-MA-3」（表 2-21：60 ページを参照）を使用した。酸変性樹脂の添加量はタルク充填量に比例して添加量を調整した。

表 2-41 タルク充填量変更時の配合表

| No. | 配合 | | |
|--------------|-------------|----------|------------------|
| PP-TA-bMA-3a | J107G 89.2% | Talc 10% | bCNF-g-MA-3 0.8% |
| PP-TA-bMA-3b | J107G 78.4% | Talc 20% | bCNF-g-MA-3 1.6% |
| PP-TA-bMA-3c | J107G 67.6% | Talc 30% | bCNF-g-MA-3 2.4% |
| PP-TA-bMA-3d | J107G 56.8% | Talc 40% | bCNF-g-MA-3 3.2% |

2.1.3.2.4.3.3 サンプル作製方法

本サンプルの作製方法は、前述の「2.1.3.2.2.2.3 タルク充填プラスチックの作製方法」で示す方法と同様である。

2.1.3.2.4.3.4 試験結果

フィラー充填プラスチックにおいてフィラーの量はその特性に直接的に影響する。そこで、本酸変性樹脂の用途拡大を目的としてフィラー充填量について評価した。その結果を図 2-116～118 に示す。

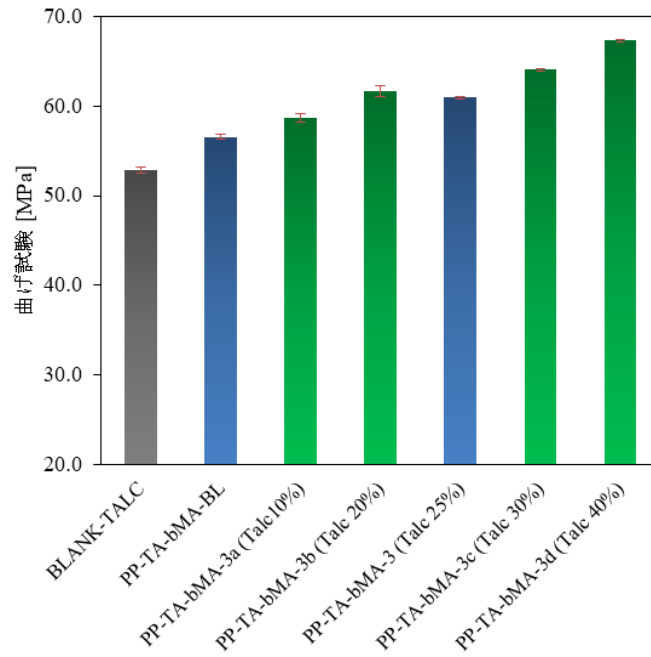


図 2-1-16 タルク充填量と曲げ強度

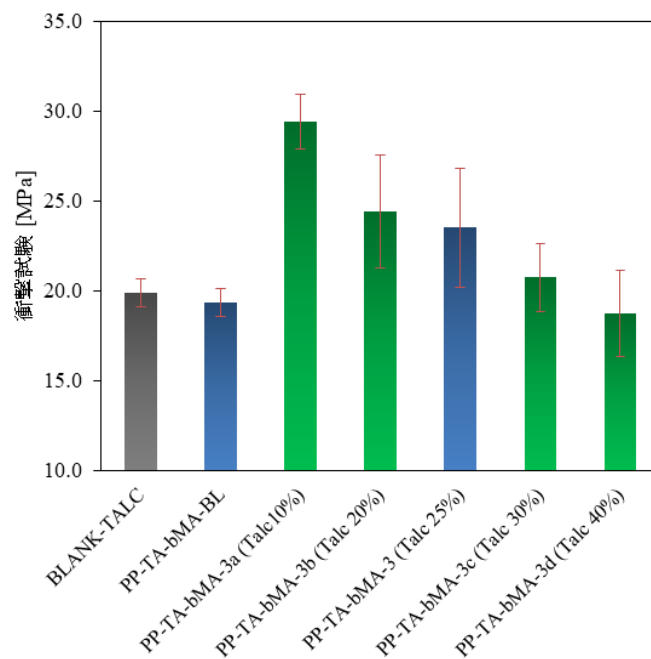


図 2-1-17 タルク充填量と衝撃強度

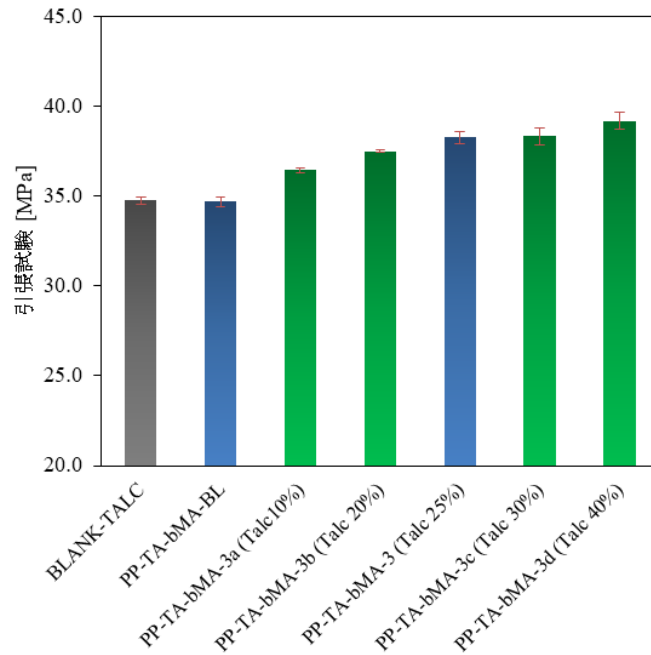


図 2 - 1 1 8 タルク充填量と引張強度

タルク充填量を増やしたことで、曲げ強度が向上した。これは酸変性樹脂によってタルクを十分に分散させることができていること、タルクの持つ機械特性を十分に発現できていることが示唆される。引張強度においても同様の傾向が確認された。一方で、衝撃強度においてはタルクの添加量増大に伴い、低下した。衝撃強度においてはPPの粘度と高弾性が影響するため、タルク充填量が多いと衝撃に弱いフィラー界面の表面積が増えることが要因と示唆される。

2.1.3.2.4.4 まとめ

本項では、曲げ強度の更なる向上を目的として種々の施策を試した。結果として、リアクティブプロセスを導入することにより、衝撃強度を維持したまま、曲げ強度 20%向上を達成した。加えて、フィラー量変更が可能であることを確認できた。これにより、目標数値を達成するだけでなく、CNF 複合材廃材の利用用途の拡大にも貢献できるようになる。今回得られた結果を以下に示す。

- ・リアクティブプロセスにより、曲げ強度及び衝撃強度の両特性において数値目標を達成した。
- ・タルク充填量の変更にも本酸変性樹脂は対応可能である。

上記の内容により、目標性能である「 blanks材に対して曲げ強度 15%、衝撃強度 10%向上」を達成することができた。本提案の主なるリアクティブプロセスの有効性についても確認することができたため、今後はその量産条件等の検討により、実用化を目指す。

2.2 再生利用の仕組み検証

各種 CNF 複合材廃材の回収から利用において、発生量（回収量）とコストの関係を明らかにする。また、想定される各種 CNF 複合材廃材の分別、処理に関係する分析および評価する。そのため、本年度は以下の内容を実施した。

2.2.1 家電用途における CNF 複合材廃材の回収についての調査

2.2.1.1 家電プラスチック廃材の現状と課題

CNF 複合材料は、家庭電化製品等への使用が多くなることが期待される。ただし、この期待が現実のものとなるためには、いくつかの条件を満たす必要がある。

プラスチック素材は、すでに家庭電化製品に多く使われている。家電リサイクル法の対象品目であるエアコン、テレビ、洗濯機・衣類乾燥機、冷蔵庫・冷凍庫について見れば、リサイクルされた素材別比率において、31%をプラスチックが占めている。プラスチック素材が家庭電化製品に使用される理由は、およそ次のことが要因としてあげられる。

- プラスチックは物性をさまざまに調整でき、かつ、金属に比べて軽量である。
- プラスチックは、耐久性に優れる。
- プラスチックは、経済的である。
- 廃棄物処理の場面において、プラスチックは燃焼管理を正しく行えば、焼却残さもほとんど残らず埋立処分を回避することができる。
- プラスチックは、リサイクル（再資源化）が可能である。

CNF 複合材料とは、プラスチック素材に CNF を添加し、素材の物性を飛躍的に向上するものであるが、それを家庭電化製品に応用し普及するには、上の諸条件を満たすことが必要である。

なお、家庭電化製品は消費者製品であり、上のうち特に経済性が重要である。すなわち、CNF 複合材廃材を使用することによる家電製品の機能の増分が価格の増分に見合うこと、そして、そのことを消費者に納得させることができなければ、製造業者は CNF 複合材料を採用しないと考えられる。

次いで、リサイクル・廃棄コストである。家電リサイクル法は、使用済みのエアコン、テレビ、洗濯機・衣類乾燥機、冷蔵庫・冷凍庫について、その製造業者に引取りと再生利用の義務を課し、そのコスト負担を消費者に求めている。それゆえ、消費者が支払う家庭電化製品のライフ・サイクル・コストには、リサイクル・廃棄コストも含まれることになり、そのことが家庭電化製品の市場競争力に影響する。このことに対応するために、製造業者においては環境配慮設計（DfE: Design for the Environment）を進めている。DfE の目的は、より低コストで環境保全を達成することである。

以上をまとめると、今後の家庭電化製品への CNF 複合材料の普及のカギは、家庭電化製品の性能と、そのリサイクル・廃棄の両方について、妥当なコストパフォーマンスを達成することである。

2.2.1.1.1 家電リサイクル法

わが国では、廃棄物処理法（廃棄物の処理及び清掃に関する法律，昭和 45 年法律第 137 号）が 1970 年以來，再資源化を含む廃棄物処理を規定している。1990 年ごろから，政府の環境政策が整備されるようになり，それまで「処理と処分」が中心だった廃棄物処理の概念に，「排出抑制と再資源化」が加えられ，いくつかの廃棄物関連法が新たに整備され，また，廃棄物処理法もその後たびたび改正されるようになった。家電リサイクル法も，ここで整備された法律のひとつである。

家電リサイクル法（特定家庭用機器再商品化法，平成 10 年法律第 97 号）は，それまで使用済み家庭電化製品の処理に責任を負っていた自治体（市町村）の負担を軽減するために作られた法律である。家電リサイクル法以前は，使用済み家電は，市町村の一般廃棄物処理事業の中で処理されてきた。当時は市町村の受入れ容量，特定フロンや鉛など環境汚染源となる物質，などの問題があった。また，市町村の処理施設および技術は，家庭電化製品のリサイクルに対応する能力が低く，市町村も家庭電化製品の処理に苦慮していた。これらの問題を解決するために，拡大生産者責任（EPR: Extended Producers' Responsibility）の考えを適用する法律として，1998 年に家電リサイクル法が施行されることとなった。

家電リサイクル法は，使用済み家電製品の処理（再資源化）の枠組みを規定する。枠組みの全体構成は図 2-119 に示すとおりである。通常の家ごみの処理とは異なり，市町村の一切の関与なしに処理（再資源化）が完結するところに特徴がある。次に，家電リサイクル法における関係者の役割を表 2-42 に示す。廃棄物処理法は，廃棄物の引取りには廃棄物処理業の許可が必要と規定しているが，家電リサイクル法においては，特例的に家電小売業者に業の許可を不要としている。

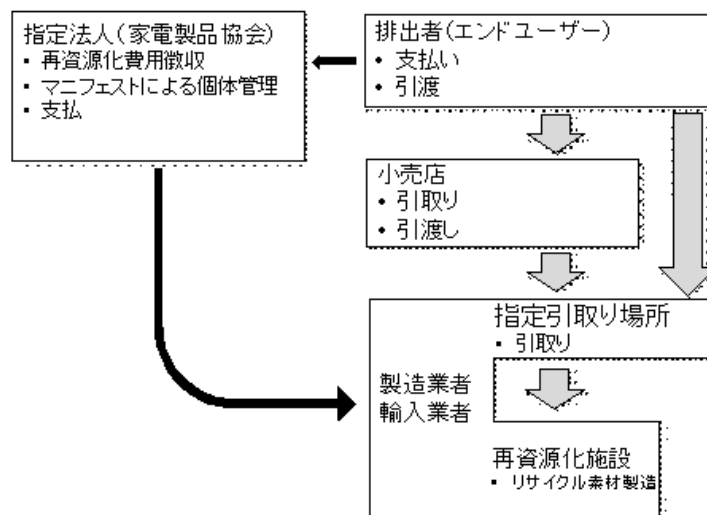


図 2-119 家電リサイクル法の枠組み

表 2-42 家電リサイクル法における関係者の役割

| |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 排出者(エンドユーザー) |
| <ul style="list-style-type: none"> ・ 使用済みの家庭電化製品（対象機器）を、小売業者等に引き渡すか、指定引取場所に持ち込むこと。 ・ 再資源化等に必要な費用を法律に定める方法によって支払うこと。 |
| 家庭電化製品等の小売業者 |
| <ul style="list-style-type: none"> ・ エンドユーザーの求めに応じて、使用済み家庭電化製品を引き取ること。 ・ 引き取った使用済み家庭電化製品を製造業者等に引き渡す（指定引取場所に搬入する）こと。 |
| 製造業者および輸入業者 |
| <ul style="list-style-type: none"> ・ 指定引取場所を適正に配置し、自らが製造もしくは輸入した使用済み家庭電化製品を引き取ること。 ・ 引き取った家庭電化製品について、基準を満たす再資源化を行うこと。 |

家電リサイクルの費用負担は、使用済み家庭電化製品を排出する者（通常は消費者）が負う。使用済み家庭電化製品を排出しようとする者は、販売店に有償でリサイクルを依頼することが可能である。もしくは、郵便局で家電リサイクル料金を支払い、その支払い証書（管理票：マニフェストと呼ばれる）を家庭電化製品に張り付けて指定引取場所に持ち込むことができる。支払われたリサイクル料金は、再資源化が終了するまで家庭電化製品ごとに個体管理される。なお、リサイクル料金の管理は、国が指定する法人が行う。現在の指定法人は、家庭電気製品製造業者が組織する「一般財団法人家電製品協会」である。

家電リサイクル法は、再商品化等の基準を規定する。具体的には、再資源化の対象とする家庭電化製品の品目（対象機器）と再商品化率である。対象機器を表 2-43 に示す。

表 2-43 家電リサイクル法の対象品目

| 対象品目 | 対象機器 | 対象外 |
|--------------------|----------------------------------------------|--------------------------------------|
| エアコン | セパレート型、ウインドウ型、など。室内機、室外機を含む。 | 業務用テレビ、天井埋込み型、パッケージ形など。 |
| テレビ (ブラウン管式) | チューナーを含み、テレビ放送を受信可能なもの。 | 業務用テレビ、パソコンモニターなど。 |
| テレビ (液晶式・プラズマ式) | いわゆる薄型テレビで、テレビ放送を受信可能なもの。 | 業務用テレビ、プロジェクションテレビ、パソコンモニターなど。 |
| 冷蔵庫・冷凍庫 | ワインセラーなどを含む。 | 業務用冷蔵庫・冷凍庫、店舗用冷蔵ショーケース、店舗用冷凍ストッカーなど。 |
| 洗濯機・衣類乾燥機 | 洗濯乾燥機、全自動洗濯機、2槽式洗濯機など。ドラム式電気衣類乾燥機、ガス衣類乾燥機など。 | 業務用洗濯機・乾燥機、衣類乾燥機能付きふとん乾燥機など。 |

家電リサイクル法は、使用済み家庭電化製品の処理の責任を負っていた市町村の負担を軽減するために作られた法律であるため、その対象は廃棄される個数が大きく、かつ、体積が大きいものが中心である。また、例えばエアコンという機器の品目であっても、主に業務用として使われるモデルは対象外である。それらは、産業廃棄物として処理されるべきであって、市町村の処理責任の範囲から外れるものである。家電リサイクル法は、以上のような家電品目のうち、さらに製造業者の側で受入れ態勢が整ったものに対して国が対象機器に指定する。法律では、対象機器は主務大臣の指定によって増やすことは可能であるが、現在の5品目に更に加えられる可能性はあまり考えられない。家電リサイクル法が設定する対象機器の品目ごとの再商品化率の基準に示す。この基準は、排出される使用済み家庭電化製品の状況やリサイクル技術の進展に合わせるべく、定期的に見直しと改定がなされている。

家電リサイクル法は、DfEを誘導する。製品の廃棄費用を消費者に負わせる法律の仕組みは、製品の市場競争力に影響する。それゆえ、製造業者は廃棄費用を最小化する努力に駆り立てられる。この努力のひとつが、DfEである。ちなみにもうひとつは、再資源化工程の技術改良である。DfE等の努力により、家電リサイクル法におけるリサイクル率は、年々向上してきている（表2-44）。また、再資源化工場の担当者への聴き取りにおいても、新しい製品ほど解体し易いような工夫がなされているという。家電リサイクル法は、廃棄物処理を規制する法体系を構成する法律のひとつであるが、行政による規制や取締でなく、経済的手法による適正処理の推進を目標としており、DfEは目標を達成するための重要な要素なのである。CNF強化プラスチックの家庭電化製品分野における普及のカギとして、DfEとの適合性を考えなければならないだろう。

表2-44 家電リサイクル法における再資源化基準

| | | 平成13年4月～ | 平成21年4月～ | 平成27年4月～ |
|-----------|-----------|----------|----------|----------|
| エアコン | | 60%以上 | 70%以上 | 80%以上 |
| テレビ | ブラウン管式 | 55%以上 | 55%以上 | 55%以上 |
| | 液晶式・プラズマ式 | — | 50%以上 | 74%以上 |
| 冷蔵庫・冷凍庫 | | 50%以上 | 60%以上 | 70%以上 |
| 洗濯機・衣類乾燥機 | | 50%以上 | 65%以上 | 82%以上 |

2.2.1.1.2 家電リサイクル法にもとづく家電製品の回収状況

家電製品協会が、家電リサイクル法による使用済み家庭電化製品の処理・資源化状況のとりまとめを行っている。それらを以下の図2-120、121に示す。

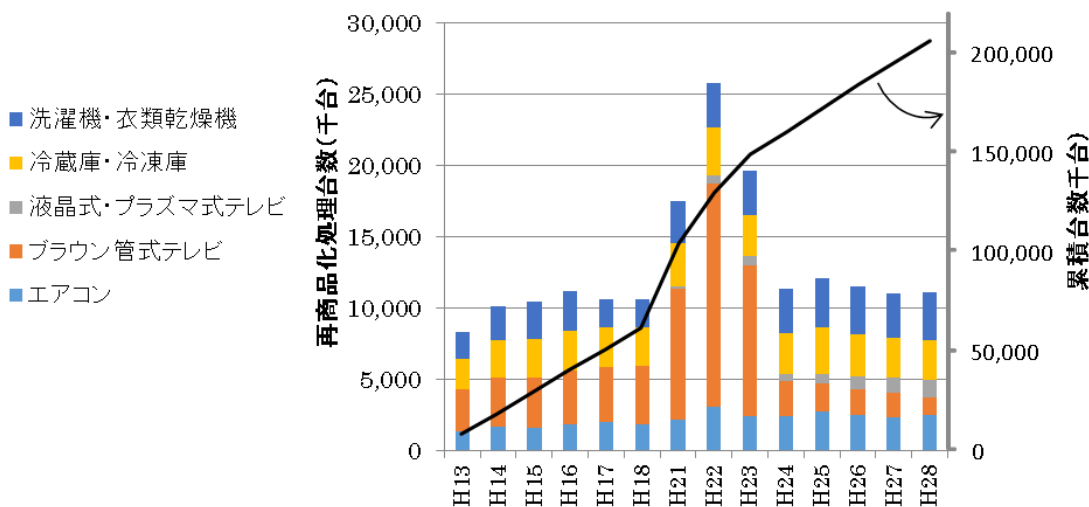


図2-120 家電リサイクル法における再商品化処理台数

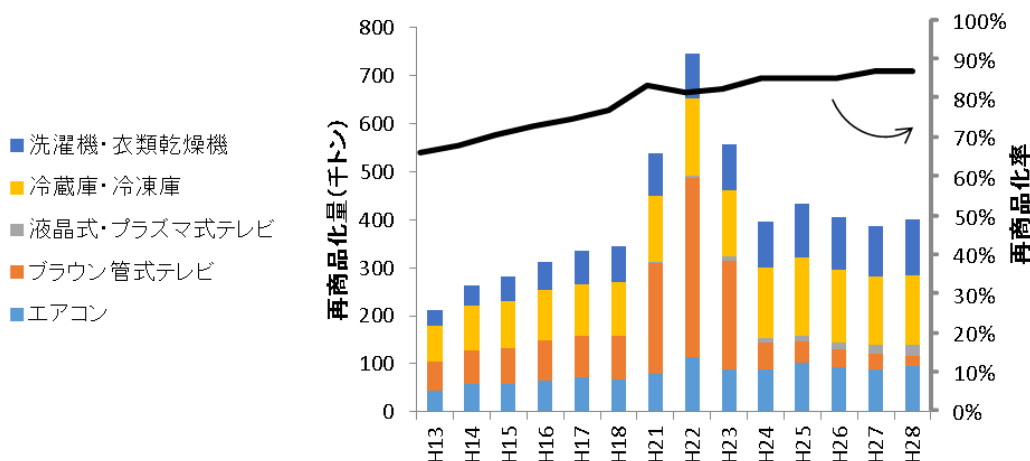


図2-121 家電リサイクル法における再商品化量（製品種類別）

図2-120は、家電リサイクル法にもとづいて家電製造業者が引取った使用済み家庭電化製品の台数である。平成22年度前後に大きな山があるのは、政府の景気対策として家庭電化製品の買替えに対する優遇があったからである。平成13年に法律が施行されてから平成28年度までに、累計にして2億台以上の家庭電化製品が法律の枠組みで処理・再資源化された。図2-121には、引取られた使用済み家庭電化製品から回収（再商品化）されたリサイクル資源の量をまとめている。また、全体の再商品化率は、年々向上している。平成13年では66%だったものが、平成28年度では87%を達成している。これは、再資源化施設における再資源化技術の向上と、DfEの成果であると理解できる。図2-122には、回収したリサイクル素材量をまとめている。凡例にある「その他有価物」とは、プラスチックのことを指す。

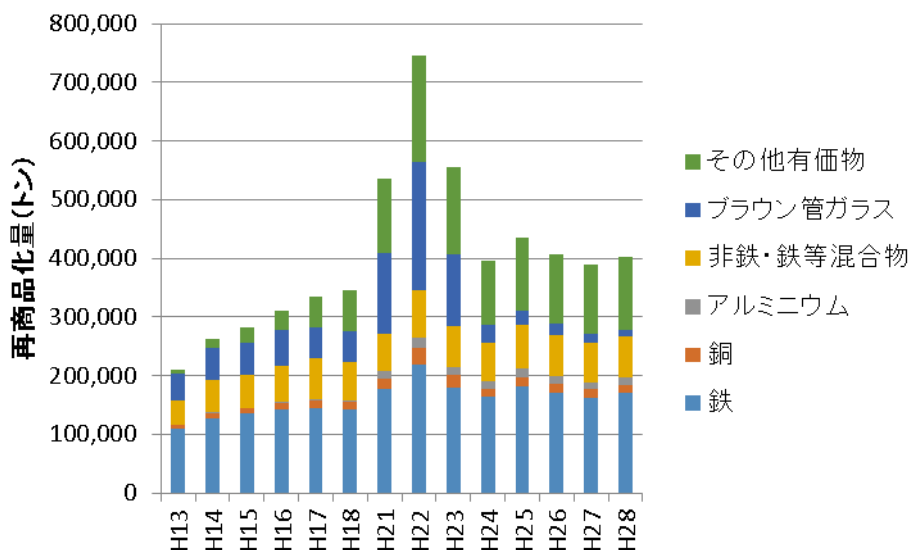


図 2-1-2-2 家電リサイクル法における再商品化量 (素材種類別)

2.2.1.2 家電リサイクル法にもとづく家電プラスチックの再商品化状況

家電製品協会の統計を見ると、使用済み家庭電化製品からのプラスチック類の再商品化量は、ここ数年は年間 12 万トン前後で推移している。このことを図 2-1-2-3 に示した。使用済み家庭電化製品からの再商品化物のうちにプラスチックの占める割合を見ると、平成 13 年度には重量比にして 3.5% だったものが、平成 28 年度には 31% にまで伸びている (図 2-1-2-4)。

以上の統計は、製造業者の再資源化施設から出荷された再資源化プラスチック素材に関するものである。再資源化施設から出荷される状態は、対象機器から分離されたプラスチック製部品を粗く破砕した程度であるのが通常である。商品として出荷された再資源化プラスチック素材は、プラスチック原料業者においてさらに、異物除去；微破砕；洗浄；精選別；配合造粒等の工程を経て、はじめて射出成形の材料となる。

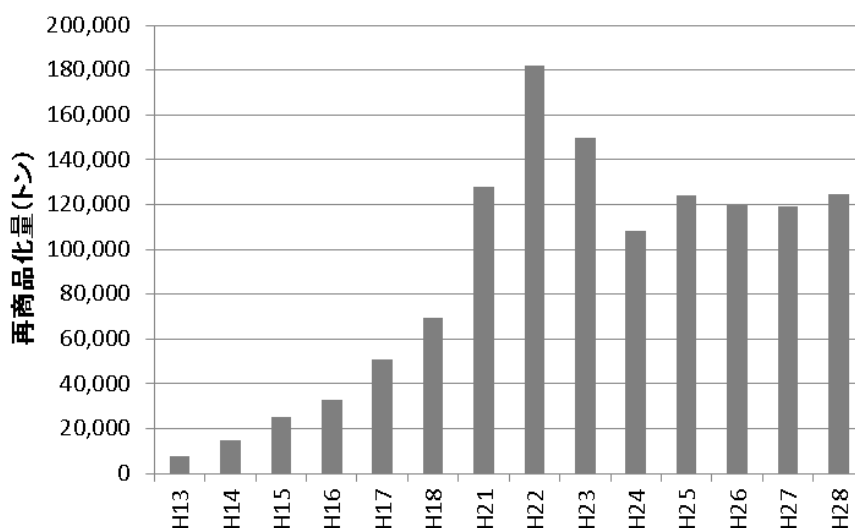


図 2-1-2-3 家電リサイクル法における再資源化プラスチックの生産量

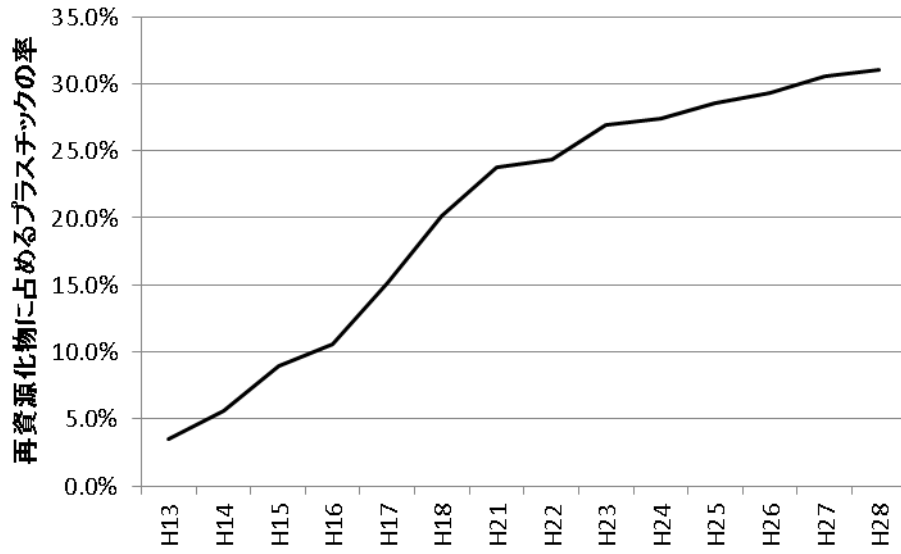


図 2 - 1 2 4 家電リサイクル法における再資源化に占めるプラスチックの率

2.2.1.3 家電プラスチックの再資源化に用いられる技術

家庭電化製品の再資源化に用いられる技術をおおよそ工程に沿って見て行く。なお、以下の記述は、施設見学および技術者との交流の機会を提供して頂いた製造業者の再資源化施設の例を中心とするものである。

2.2.1.3.1 分解・粗選別

家庭電化製品の再資源化工程の最初のステップであり、全行程の基本である。図2-122に示したように、使用済み家庭電化製品は、エンドユーザーの手を離れた時点からマニフェストでの管理が始まるが、製造業者の再資源化工場に搬入され、分解・粗選別工程に先立って、マニフェストの照合と秤量を受けるまでが個体管理の範囲となる。分解は自動化が難しく、熟練工員の手によって手際よく行われる。工員は、空圧工具を操ってネジをゆるめ、使用済み家庭電化製品から部品を外して行く。外した部品は、工員の判断によって選別して以降の工程に送られる。プラスチック部材には材質表示がされているが、選別作業においてはそれを見ることはあまりなく、工員の経験と知識によるところが大きいという。また、プラスチック用の光学識別装置を設置している再資源化施設もあるが、極くまれに搬入されてくる旧年式の家庭電化製品から外した部材の確認に使用する程度だという。

このように、解体工程の生産性に影響する要因は、工員の経験・知識である。また、DFEも重要である。再資源化工場の担当者に聞くところでは、新しい年式の製品ほど分解しやすいようになっており、着実にDFEが進んでいるとのことである。再資源化施設における各工程のうち、人手が集中的に投入されるのはこの工程だけであり、この後の工程にはなるべく人手を掛けずもっぱら機械力によって生産性を向上するよう工夫されている。この工程での選別の精度や歩留まりは、再生プラスチック材の売却先との交渉に応じて決定されるが、人件費という大きなコストを必要とする部分の合理化によって、交渉の自由度が増すのである。

2.2.1.3.2 破碎

分解・粗選別されたプラスチック部品は、破碎工程に送られる。用いられる破碎機は、1軸または2軸の剪断式もしくは衝撃式破碎機、あるいはそれらの組み合わせである。破碎機へのプラスチック部品の投入は、ベルトコンベヤー等の供給装置によってなされる。

冷蔵庫・冷凍庫以外の使用済み家庭電化製品については、手作業で分解されたプラスチック部品を材料種類ごとに破碎機に投入するが、冷蔵庫・冷凍庫では、手作業によって冷媒フロンを抜き取り、コンプレッサ機械部および内部の棚板などを取り外したあと、残りのボディを丸ごと専用の破碎機に投入する。これは、冷蔵庫全体を包んでいる断熱材のフロンを環境中に放散させることなく効率的に再資源化するためである。

破碎操作は、製造業者の再資源化施設のあとのプラスチック原料製造施設においても、更に微細化するために実施される。

2.2.1.3.3 選別

前述のように、製造業者の再資源化施設における廃プラスチックの選別は作業者の経験と知識によるものであるが、プラスチック原料製造施設においてはさらに精密な廃プラスチック選別技術が適用される。それらの例を次に示す。

2.2.1.3.3.1 風力選別

下から上に向かって空気を送るダクトの上部から、プラスチックを供給する。比重の大きいものや空気抵抗の小さいものは空気の流れに打ち勝って落下しダクトの下部で回収され、風に乗って浮上するものはダクト上部で捕捉される。

傾斜をつけて置いたデッキの網目状の底面から空気を送り込み、デッキ上のプラスチック粒子を持ち上げながらデッキを振動させることで、重いプラスチック粒子と軽いプラスチック粒子を分離する、エアテーブルも風力選別の原理の応用である。

2.2.1.3.3.2 浮沈分離

水や比重液にプラスチックを投入し、液の密度よりも大きいものは沈み、密度の小さいものは浮くことを利用した選別方法である。密度差の大きいプラスチック種類同士であって、かつ、粗大なものについて有効であるとされている。この方法は、排水処理が必要であり、また、分離後の再生プラスチックの洗浄が必要であるなどの煩雑さは免れない。

実用場面では、溶液に流れを与えながら浮沈分離を連続的に行い、選別されたプラスチックを溶液の流れとともに回収する装置が開発されている。浮沈分離は重力を利用した分離方法であるが、重力以上に強い力として遠心力を利用する方法が採用されることがある。

2.2.1.3.3.3 静電選別

種類の異なる廃プラスチックを擦り合わせると、一方は正に、もう一方は負に帯電する。この正もしくは負の帯電のし易さは、プラスチック種類や添加物によって異なることを利用した分離技術が静電選別である。

密度差が小さく浮沈選別等では選別が困難のものに対して有効であるとされている。家電プラスチックに関しては、混合プラスチックからの塩ビ除去に適用されている例がある。

対象物の乾燥を保つことや雰囲気湿度管理が必要であることが煩わしいが、排水処理の必要がないことが利点である。

2.2.1.3.3.4 浮選

浮沈分離が対象物の密度差を利用するのに対し、浮選は固体表面の液体に対する濡れ性の差を利用した選別方法である。廃プラスチック粒子を懸濁した水槽に空気を送り込んで泡を発生させると、水に濡れにくい粒子の表面に選択的に泡が付着しそのような粒子は浮上する。

すべてのプラスチック種類の選別に有効なわけではなく、あらかじめ特定のプラスチックの表面の濡れ性を変える必要がある場合がある。また、浮選は水を用いた処理であり、当然ながら水処理や選別後の再生プラスチック材の洗浄が必要になる場合がある。

2.2.1.3.3.5 光学識別法を用いる方法

X線・可視光線・近赤外線・中赤外線を用いた光学分析によってプラスチック粒子の種類を1/1000秒単位で識別し、高速開閉する電磁バルブから空気を吹き付けて選別する方法が実用化されてきている。

近赤外吸収法は、対象物の表面の反射からプラスチックの種類を知るもので、プラスチック再資源化における光学的識別法のなかでも最も一般的なものであり、高速かつ大量に処理できる装置が開発されている。表面が塗装されているプラスチック材や黒色プラスチックでは反射光が得られず、識別不可能である。

中赤外吸収では、黒色プラスチックの識別が可能である。識別の精度は高い一方でその速度が劣り、実用性の確認にはしばらく時間が必要と言われる。黒色プラスチックが多い自動車破碎残さへの適用が期待されるという。

2.2.1.3.3.6 ラマン散乱による識別

ラマン効果とは、物質に入射した光が散乱すると、散乱光には元の入射光と異なる波長の成分が含まれることである。この散乱光を調べることで、物質の分子構造や結晶構造を知るのが、ラマン分光法である。強力なレーザー光源が必要であり複雑なシステムになるが、識別時間3ナノ秒という高速で高精度な識別が実現できる。また、黒色プラスチックでもラマン散乱が検出できることも利点である。

2.2.1.3.3.7 X線による特定元素の検出

蛍光X線分析は、X線の照射を受けた元素が発する2次X線(蛍光X線)を分析することで、元素を定性および定量する方法である。プラスチックの難燃剤として使用されている臭素の検出に有効な方法で、すでに携帯型蛍光X線分析装置が、プラスチック再資源化の現場で使用されている。一方、透過型X線分析は、原子量の大きい元素はX線を吸収量が大きいため透視映像に影ができることを利用する方法で、蛍光X線法よりも高速な識別を可能とするとすることが出来、毎時1トン程度の廃プラスチック材から臭素含有プラを除去する装置が開発されている。

2.2.1.4 家電廃プラの再生利用に係る課題

再生利用において「におい・汚れの問題」、「熱硬化性樹脂材料の利用方法」が課題としてあげられる、ここでは CNF 複合材の再生利用にかかわる課題として、参考にすべき「識別表示」と「先行している先端技術材料」について記載する。

2.2.1.4.1 臭素難燃剤

家庭電化製品にはプラスチック部材が多く使われているが、プラスチックは可燃性の物質であり適切な対策をしないと火災の原因となり得る。家庭電化製品中のプラスチック材の発火を抑制し、また発火した場合に燃え広がるのを遅くするために、臭素系難燃剤がプラスチック材に加えられてきた。それ以前は塩素系のものが使用されていたが、有害物質発生の問題が指摘されて、臭素系のものに切り替えられたという経緯がある。

欧州連合 (EU) は、2003 年に家電電化製品中の有害物質に関する規制 (RoHS) を打ち出し、カドミウム・鉛・水銀・六価クロムと並んで臭素系難燃剤の使用を制限することとなった。わが国は臭素系難燃剤に特別な規制をしていないが、輸出を考慮せざるを得ない家電製造業者は、RoHS の規制以降プラスチックに添加する難燃剤をリン系およびシリコン系に切り替えたほか、リサイクルの輪廻から臭素系難燃剤を外すよう努力をしている。使用済み家庭電化製品として再資源化工程に乗るものには、いまだに 2003 年以前に製造されて臭素系難燃剤を含むものがある。また、古いものは臭素系難燃剤の識別表示がないので、選別を困難にしている。

2.2.1.4.2 炭素繊維強化樹脂

軽量でありながらも引張り強度など物理的特性がすぐれる炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は、高価ではあるものの近年その使用が増えている。また今後の使用の増加が予測されており、CNF の先行事例とも言える。

炭素繊維やその強化プラスチックの工程廃材や使用済み製品は、現在のところ大部分が直接埋立処分されていて、再資源化されることは希である。再資源化が進まない理由はいくつか挙げられるが、まず焼却が困難であることである。CFRP を焼却炉に投入した場合、未燃の炭素繊維がクリンカーを生成したり、電気集塵機 (EP) でスパークするなど多くのトラブルのもととなる。したがって、サーマルリサイクルに不適である。また、CFRP の多くは炭素繊維を熱硬化性樹脂と合わせて固めたものであるが、熱硬化性樹脂は様々な分解方法が試みられているものの実用的な方法の開発は未だであることは上述のとおりである。炭素繊維はきわめて高価な材料であるが、熱分解によって CFRP から取り出された炭素繊維の主な用途は、炭素繊維本来の物理的特性を活かす用途ではなく、研磨剤程度しかないという。

このような問題が解決されない限り、法律が再資源化基準を規定する家庭電化製品に CFRP が普及することはない。このことは、CNF 複合材料の家庭電化製品への応用を考える上でも参考になるはずである。

2.2.1.5 現状家電リサイクル回収状況調査の結果と CNF 複合材廃材の回収における課題

「2.2.1.1」～「2.2.1.4」において家電リサイクルにおける現状を調査した。家電リサイクル法は、使用済み家庭電化製品のうちの5品目だけを対象にするにすぎない。しかしそれら5品目は、寸法と重量そして排出個数において、市町村の廃棄物処理事業を脅かすほどに大きい。また、家電リサイクル法は、家庭電化製品の製造や販売に干渉はせず、使用済み製品の処理に関して、自治体に代わって製造業者が実施するメニューを規定するだけであるが、製造業者に DfE を促し、結果的に家電製品の製造・販売・消費にまで影響を及ぼす法律であることは、上述のとおりである。

このような家電リサイクル法体制下にある家庭電化製品に、CNF 複合材が素材として使用されることは意義が大きい。そのためには、上に見たような問題点をクリアして「環境に優しい高機能素材」のような、DfE に合致する商品コンセプトも打ち立てることが必要と考える。

『CNF 含有であることの識別表示』

『CNF 複合材利用初期段階から回収分別が容易な構造設計』

特に『CNF 複合材廃材を機械的に選別できる手法』

を普及段階までに構築しておく必要がある。

引用・参考資料

- 図 2-1-1-9 および表 2-4-2 は、家電リサイクル法、同施行令、施行規則をもとに作成した。
- 表 2-4-3、4-4 は、家電製品協会『家電リサイクル年次報告書 平成 28 年度版(第 16 期)』平成 29 年 12 月から引用した。
- 「2.2.1.1.2 家電リサイクル法にもとづく家電製品の回収状況」および、「2.2.1.2 家電リサイクル法にもとづく家電プラスチックの再商品化状況」の原データは、上記の家電製品協会資料にもとづく。
- 「2.2.1.3 家電プラスチックの再資源化に用いられる技術」については、河合『光学識別法を用いる次世代ソーティング機器の開発動向』廃棄物循環資源学会誌 vol.29, pp.125-132, 2018 および、伊藤ほか『廃プラスチック選別技術の動向』資源と素材 vol.122, pp142-149, 2006 を参考にした。また、再資源化施設の技術者からいただいた知識に負うところが大きい。
- 「2.2.1.4 家電廃プラの再生利用に係る課題」では、加茂『炭素繊維強化プラスチック(CFRP)のリサイクルの現状と課題』廃棄物資源循環学会誌 vol.29, no.2, pp.133-141, 2018, 斎藤ほか『プラスチックリサイクルが直面する課題と展望-二次原料としての使用済みプラスチックの価値とハロゲン対策-』同 pp.152-162 を参考にした。

2.2.2 家電用途における CNF 複合材廃材のリサイクルに向けた調査

2.2.2.1 概要

家電プラスチック廃材のリサイクル状況についての現状調査および CNF 複合材廃材をリサイクルする場合の経済性に関する調査を行った。以下にはその詳細を示す。

2.2.2.2 家電プラスチック廃材のリサイクル状況

現状の家電廃材リサイクル（解体・選別・再資源化）の状況について調査先として西日本家電リサイクル株式会社（以下 NKRC 社）様に協力頂いた。

◇廃家電のリサイクル工程

まず現状の各家電におけるリサイクル工程を図 2-125～128（NKRC 社 HP より抜粋）に示す。

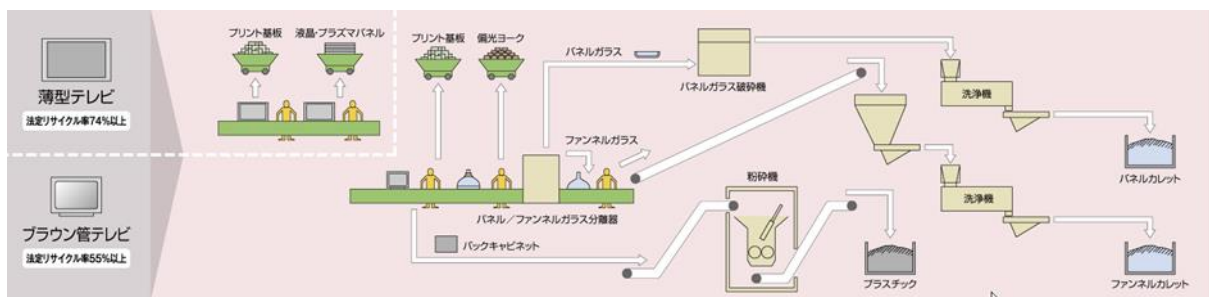


図 2-125 ブラウン管テレビ・薄型テレビ 資源回収フロー図

薄型テレビは液晶・プラズマパネル及び制御基板等を分離し回収する。ブラウン管テレビはバックキャビネットをはずし、制御基板・偏光ヨークを回収する。その後、ブラウン管を熱線により前面のパネルガラスと後側のファンネルガラスに分離し、パネルガラスとファンネルガラスは破砕・洗浄し、それぞれカレットとして回収する。バックキャビネットも別の破砕機で破砕・洗浄し、プラスチックとして回収する。

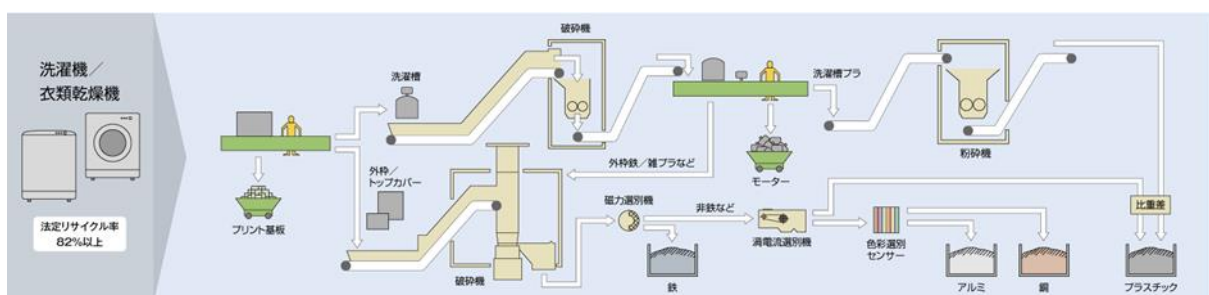


図 2-126 洗濯機・衣類乾燥機 資源回収フロー図

洗濯機の場合、プリント基板を回収。洗濯槽は破砕機で粗破砕し、モーターを回収する。洗濯槽プラは粉砕し、回収する。その他の洗濯槽破砕物と外枠・トップカバーは破砕機に投入し、磁力選別・渦電流選別・色彩選別により、鉄・銅・アルミニウム・プラスチック等として回収する。

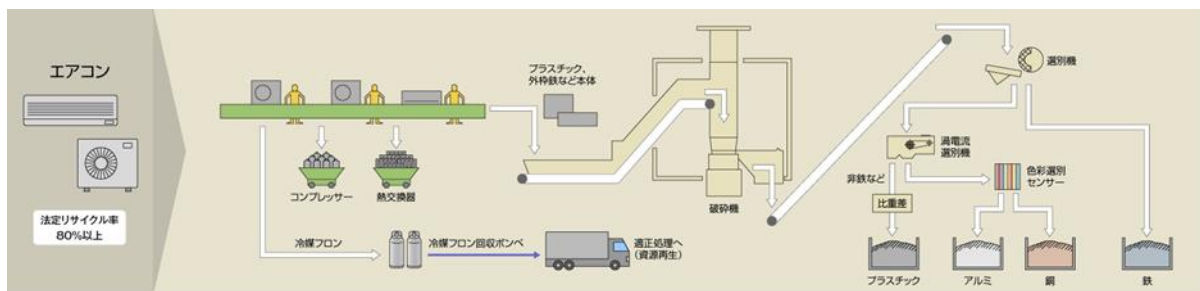


図 2-127 エアコン 資源回収フロー図

エアコンでは、最初にフロンガスを回収し、コンプレッサー及び熱交換器を回収する。解体された本体プラスチック・外枠鉄等は破砕機に投入し、磁力選別・渦電流選別・色彩選別により、鉄・銅・アルミニウム・プラスチック等として回収する。

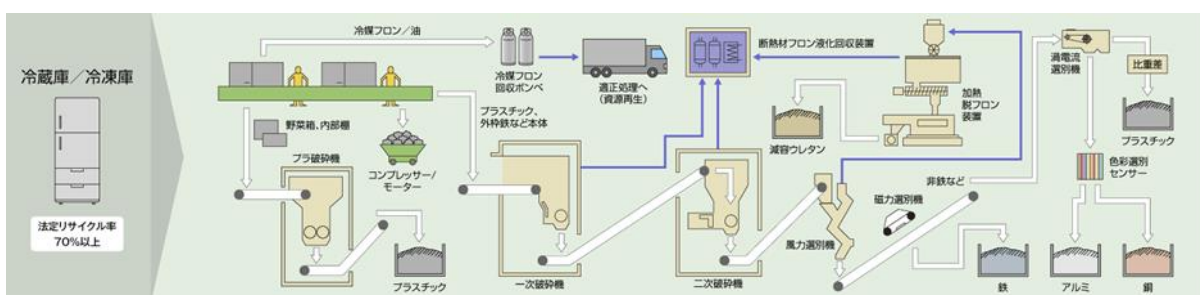


図 2-128 冷蔵庫/冷凍庫 資源回収フロー図

冷蔵庫/冷凍庫では、エアコン同様に最初にフロンガスを回収し、本体からコンプレッサー・モーターを分離し、本体と野菜箱・内部箱を破砕機に投入する。野菜箱・内部箱はプラスチックとして回収する。本体から断熱ウレタンを風力と加熱により減容ウレタンとして回収し、分離されたフロンガスも回収する。その他の本体破砕物は、磁力選別・色彩選別等により、鉄・銅・アルミニウム・プラスチック等として回収する。

上記の調査結果より、選別回収されるプラスチックの種類はPP、ポリスチレン (PS)、アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン (ABS)、ポリカーボネート (PC)、PC+ABS、ポリメタクリル酸メチル (PMMA)、軟質ポリ塩化ビニル (PVC) が選別回収されており、その他ミックスプラスチック (混合廃プラスチック) と呼ばれる混合廃プラスチックが再商品化用途で用いられている。この中で家電プラスチックに主に用いられるものがPP、PS、ABSである。家電リサイクルプラスチックにおいて、再商品化樹脂としてはPPが約40%、PSが約16%、ABSが約3%程度、その他の樹脂が少量であり、それ以外はミックスプラスチックとなっている。もちろんのことではあるが、CNF 複合材廃材が高付加価値リサイクル材料として利用するためには、この選別回収プロセスにおいて、ミックスプラスチックとしない、選別技術が必須である。

また、家電リサイクルメーカーでは主要部品を取り除くのみであり、プラスチック部品単体を手選別はしていない。プラスチックの選別には湿式比重選別、静電選別、近赤外線

選別等を用いている。このことから分別回収しやすい DfE にすることもさることながら、CNF 複合廃材の選別回収コストは再利用時の付加価値との比較が重要となる。

2.2.2.3 CNF 複合材想定廃材部品の分別（サイズ、手選別）経済性の検証

CNF 複合廃材の利用が想定された際における「CNF 複合材想定廃材部品のサイズと処理にかかる費用」「人的分別を実施した場合のコスト」について調査を行った。

2.2.2.3.1 家電プラスチック再生処理メーカーにおける、分別回収にかかる調査

現状の家電プラスチック再生処理メーカー（調査先：西日本家電リサイクル株式会社）における、分別回収にかかる調査を実施した。「2.2.2.2 家電プラスチック廃材のリサイクル状況」で調査した結果、手選別とされている工程は、資源回収工程の上流に配置されており、その作業工数は下記のようになっている。

| | |
|-------------|---------------------|
| エアコン室外機 | 1 ライン 14 名 (60 台/h) |
| エアコン室内機 | 1 ライン 6 名 (80 台/h) |
| テレビ | 1 ライン 5 名 (18 台/h) |
| 冷蔵庫 | 1 ライン 14 名 (70 台/h) |
| 洗濯機 | 1 ライン 13 名 (55 台/h) |
| 薄型 TV (液晶) | 1 ライン 9 名 (40 台/h) |
| 薄型 TV (PDP) | 1 ライン 9 名 (9 台/h) |

2.2.2.3.2 選別する部品サイズについて

手選別工程で選別できるプラスチックは、テレビにおけるバックキャビネットの部分と冷蔵庫/冷凍庫における野菜箱・内部箱のみの比較的大きな部品サイズに限られ、且つ分解しやすい部分に限定されており、それ以外の部品については手選別の工程での取出しは効率性の問題から実施されていない。小型部品等、分解が容易でない部品まで分別すると家電製品の構造が単一素材でないことも含めて、分別解体工数は数十倍以上となると推測される。また、粉砕機自体は大型の粉砕機を備えており、粉砕工程におけるサイズの大小によるコストの影響は無い。

2.2.2.3.3 手選別を想定とした選別コストについて

手選別コストの算出に冷蔵庫をモデルとして、コスト試算を行った。

- ・解体選別するモデルを 320L サイズの冷蔵庫とした場合、使用されているプラスチックの全量は約 17kg 程度（冷蔵庫全体重量の約 30%）。
- ・上記の解体作業工数から、5 台/（時間・人）を基準として算出。
- ・作業人員のコストは労務費 400 千円/月、勤務日数 20 日/月、勤務時間 8 時間/日とし、2,500 円/時間を時間単価とした。

手選別に係るコスト試算結果を表2-45に示す。横軸は作業時間、縦軸は手選別で回収可能な比率を10%、25%、50%、75%、100%とし、時間当たりの回収重量、重量当たりの労務コスト、CNF 複合材廃材等を従来プロセスを変更して、さらに手選別で解体回収することになった場合、作業時間倍率1をベンチマークとし、作業工数増分を分別に必要な増分コスト、すなわち、売価に追加が必要となるコストを示した。

実際にはこれに、CNF 複合材廃材が使われている比率を除算することで、CNF 複合材廃材取出しに係るコストとなる。また、CNF 複合材の普及率、部品への採用比率によって左右されることから、相当な付加価値が必要となり、手作業選別自体が現実的では無いと判断する。

表2-45 手選別工程追加による追加コスト試算（本事業による推計）

| 作業時間倍率 (従来作業時間比) | | 1 | 2 | 5 | 10 | 20 | 30 | 50 | |
|----------------------|--------------------------------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|--------|
| 作業台数 (台/[時間・人]) | | 5.00 | 2.50 | 1.00 | 0.50 | 0.25 | 0.17 | 0.10 | |
| 分解により回収可能な樹脂重量比率別の試算 | 回収重量 kg/時間 | 10% | 8.5 | 4.3 | 1.7 | 0.9 | 0.4 | 0.3 | 0.2 |
| | | 25% | 21.3 | 10.6 | 4.3 | 2.1 | 1.1 | 0.7 | 0.4 |
| | | 50% | 42.5 | 21.3 | 8.5 | 4.3 | 2.1 | 1.4 | 0.9 |
| | | 75% | 63.8 | 31.9 | 12.8 | 6.4 | 3.2 | 2.1 | 1.3 |
| | | 100% | 85.0 | 42.5 | 17.0 | 8.5 | 4.3 | 2.8 | 1.7 |
| | 労務コスト 円/kg | 10% | 294 | 588 | 1,471 | 2,941 | 5,882 | 8,824 | 14,706 |
| | | 25% | 118 | 235 | 588 | 1,176 | 2,353 | 3,529 | 5,882 |
| | | 50% | 59 | 118 | 294 | 588 | 1,176 | 1,765 | 2,941 |
| | | 75% | 39 | 78 | 196 | 392 | 784 | 1,176 | 1,961 |
| | | 100% | 29 | 59 | 147 | 294 | 588 | 882 | 1,471 |
| | 売価に追加 が必要となる コスト 円/kg | 10% | 0 | 294 | 1,176 | 2,647 | 5,588 | 8,529 | 14,412 |
| | | 25% | 0 | 118 | 471 | 1,059 | 2,235 | 3,412 | 5,765 |
| | | 50% | 0 | 59 | 235 | 529 | 1,118 | 1,706 | 2,882 |
| | | 75% | 0 | 39 | 157 | 353 | 745 | 1,137 | 1,922 |
| | | 100% | 0 | 29 | 118 | 265 | 559 | 853 | 1,441 |

2.2.2.4 選別技術の調査

上記の調査、試算結果を踏まえ、CNF 複合材廃材の機械選別方式として、既存の樹脂種類の選別装置として主流となりつつある、近赤外選別装置を用いた方法について検討を実施した。

2.2.2.4.1 CNF 複合材廃材の選別技術の調査

従来はプラスチックの選別においては、手解体で取り外しが可能な限定されたプラスチックは、再利用されていたが、解体の困難な材料については、5～25mm程度に小さく粉砕されミックスプラスチックとなりサーマルリサイクル等に利用されていた。近年は人不足、省力化の観点からプラスチックの種類を選別する方法としては、人作業が介在しない機械選別によるところが多い。装置としては種々の選別装置開発が進んでおり、近赤外選別装置を用いる例が増えてきている。

近赤外選別装置の仕組みは図2-129に示すように、①選別対象物を貯蔵し、ベルトコンベア上に均一に分散させる振動フィーダー、②搬送中の対象物に近赤外光を照射するハロゲンランプ、③対象物にあたり跳ね返った近赤外光をセンサでとらえスペクトル分光し、あらかじめ登録されたスペクトルと照合し、プラスチック材料を高速で識別する識別制御システム、④噴射エアノズルで構成される。あらかじめ登録されたスペクトル照合をとることで、選別可能であることからCNF 複合材廃材を選別できる既存設備としての可能性がもっとも高いと考え、モデル廃材を用いたCNF 複合材廃材の選別テストを実施した。

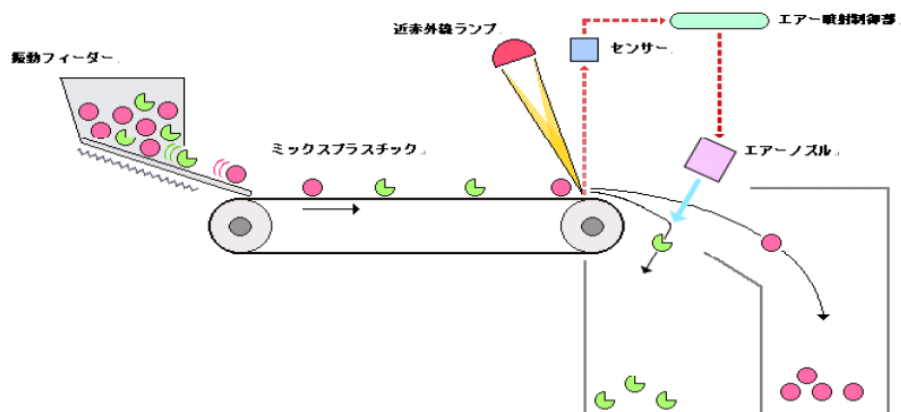


図2-129 近赤外選別装置のフロー図 (エアロソータⅢ：ダイオーエンジニアリング製)

2.2.2.4.2 近赤外選別テスト結果

近赤外選別テストについては、ダイオーエンジニアリング株式会社の協力のもと、同社製エアロソータⅢを用いて選別テストを行った。

CNF 複合材サンプルの中で CNF5%配合 PP 品、CNF10%配合 PP 品、CNF20%配合 PP 品及び PP 単体品を近赤外線を用いて、その反射波形データを取得、CNF5、10、20%配合 PP を「PP-CNF」、PP を「PP」という名称で設備に認識させて新たな識別プログラムを作製した。この識別プログラムを用い、エアロソータⅢを用いて識別テストを実施した。その結果を表 2-46 に、各材料の識別テスト結果を図 2-130 に示す。

識別テストに利用した供試体は、CNF5、10、20%配合 PP、LCNF5、10%配合 PP 並びに、現状家電プラスチック材料として利用されているとされる、PP、タルク配合 PP（タルク 20%PP）、PS、ABS を用いた。各材料については、着色による影響を排除するために、無着色（ナチュラル）材料を利用した。また、試験体寸法は幅 10 mm、長さ 60 mm、厚さ 3 mm のものを用いた。

表 2-46 識別テスト結果①（運転画面比率と識別結果）

| No. | 供試体 | 運転画面面積比率 | | | | エア-噴射(識別) | | | |
|-----|-------------|----------|--------|---------|--------|-----------|--------|----|-----|
| | | PP | PP-CNF | PS | ABS | PP | PP-CNF | PS | ABS |
| ① | CNF5%配合PP | 77.37% | 22.62% | 0.00% | 0.00% | ○ | | | |
| ② | CNF10%配合PP | 4.67% | 95.32% | 0.00% | 0.00% | | ○ | | |
| ③ | CNF20%配合PP | 0.20% | 99.67% | 0.00% | 0.00% | | ○ | | |
| ④ | LCNF5%配合PP | 85.47% | 14.52% | 0.00% | 0.00% | ○ | | | |
| ⑤ | LCNF10%配合PP | 4.32% | 95.67% | 0.00% | 0.00% | | ○ | | |
| ⑥ | PP | 96.54% | 3.45% | 0.00% | 0.00% | ○ | | | |
| ⑦ | タルク20%PP | 98.84% | 1.15% | 0.00% | 0.00% | ○ | | | |
| ⑧ | PS | 0.00% | 0.00% | 100.00% | 0.00% | | | ○ | |
| ⑨ | ABS | 0.00% | 0.00% | 3.79% | 96.20% | | | | ○ |

運転画面面積比率とは、識別装置が各サンプルを識別した感度を示しており、エア-噴射（識別）とは最終的に、装置の判断結果を示している。この結果からは CNF 複合材として確実に判断されるには CNF、LCNF とともに 10%以上も濃度が必要であることが分かった。図

① CNF50/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 77.37 | OFF |
| PPCNF | OFF | 22.62 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

② CNF10/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 4.67 | OFF |
| PPCNF | OFF | 95.32 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

③ CNF20/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 0.20 | OFF |
| PPCNF | OFF | 99.79 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

④ LCNF5/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 85.47 | OFF |
| PPCNF | OFF | 14.52 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

⑤ LCNF10/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 4.32 | OFF |
| PPCNF | OFF | 95.67 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

⑥ PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 96.54 | OFF |
| PPCNF | OFF | 3.45 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

⑦ 410720/PP

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 0.00 | OFF |
| PP | OFF | 98.84 | OFF |
| PPCNF | OFF | 1.15 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

⑧ PS

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 0.00 | OFF |
| PS | OFF | 100.00 | OFF |
| PP | OFF | 0.00 | OFF |
| PPCNF | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

⑨ ABS

| 材質 | 1次 | | 調射選択 |
|-------|------|---------------|------|
| | 調射選択 | 投入原料 割合[%] | |
| ABS | OFF | 96.20 | OFF |
| PS | OFF | 3.79 | OFF |
| PP | OFF | 0.00 | OFF |
| PPCNF | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |
| | OFF | 0.00 | OFF |

図2-130 各材料の識別結果

2.2.2.4.3 モデル材料による識別テスト結果

上記の結果を元に、実機を用いた搬送識別テストを実施した。搬送識別テストに用いたサンプルは、供試体No.①～⑨を各 100 個の試験サンプルを用意し、それらを混合したものをを用いて実験を行った。識別テストは、エアロソータⅢのもつ、1次選別機能と2次選別機能を用いて、2パスでの回収率を調査した。試験状況を図2-131～133に示す。



図2-131 エアロソータⅢ外観写真



図2-132 識別テストにおける搬送状況写真



図2-133 識別テスト結果（左：識別除外品、右：識別品）

表 2-47 に実機選別テスト結果を示す。

表 2-47 実機選別テスト結果

| No. | 供試体 | 選別結果 | | |
|-----|-------------|--------|-------|--------|
| | | 1次(%) | 2次(%) | 合計選別率 |
| ① | CNF5%配合PP | 52.5% | 21.0% | 73.5% |
| ② | CNF10%配合PP | 100.0% | 0.0% | 100.0% |
| ③ | CNF20%配合PP | 100.0% | 0.0% | 100.0% |
| ④ | LCNF5%配合PP | 10.0% | 7.5% | 17.5% |
| ⑤ | LCNF10%配合PP | 100.0% | 0.0% | 100.0% |
| ⑥ | PP | 2.0% | 3.5% | 5.5% |
| ⑦ | タルク20%PP | 0.0% | 0.0% | 0.0% |
| ⑧ | PS | 0.0% | 0.0% | 0.0% |
| ⑨ | ABS | 0.0% | 0.0% | 0.0% |

実機識別テストの結果、事前の識別テスト結果（表 2-46）と同様に、CNF、LCNF10%以上の配合品については1次識別段階で100%での回収が可能であった。CNF5%配合PPについては、1次、2次の合計選別率で73.5%、LCNF5%配合PPは17.5%の結果であった。LCNF5%配合PPについては課題が残るものの、CNF5%配合PPについては73.5%と比較的高い判別結果を得ており、パス回数を増やすことでの対応も可能であると判断している。

また、判別ミス品として、PP単体が数%含まれる結果となって居るが、CNF配合PPにとっては、非相容の形態材料では無い為、リサイクル利用時の問題にはならないと判断しており、近赤外選別装置の利用によりCNF複合材廃材の選別回収が有効であることが判断できた。

2.2.2.5 選別技術の高度化手法の調査

前項「2.2.2.4 選別技術の調査」近赤外分光分析により CNF 複合材料の検出の可能性があることが判明した。しかしながら、CNF 配合率 10%未満においては、更なる判別技術の向上が必要な状況である。今回は特に、フィラー充填率の低い (3.3-10%) 条件での検出およびフィラー充填率の推定を試みた。

2.2.2.5.1 実験方法

ポリプロピレン (PP) ベースの CNF 複合材の試験体を使用した。図 2-134 に試験体の外観を示す。試験体寸法は幅 10 mm、長さ 58 mm、厚さ 2 mm とし、フィラーの種類および充填率が異なる 6 条件の試験体を測定に供した。表 2-48 に試験体の概要を示す。試験体数は 1 条件につき 3 体、計 18 体とした。なお、ここでは CNF と PP の複合材料を CNF-PP、LCNF と PP の複合材料を LCNF-PP と呼称する。

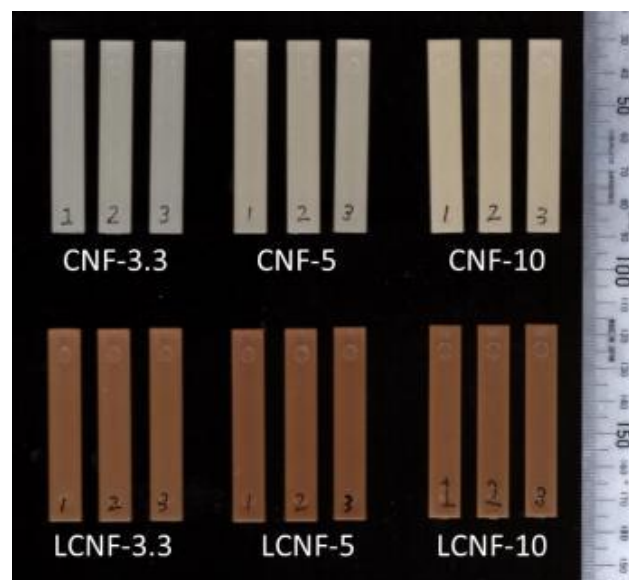


図 2-134 試験体の外観

表 2-48 試験体の概要

| 試験体名 | フィラーの種類 | フィラー充填率 (wt%) |
|----------|-------------------|------------------|
| CNF-3.3 | CNF (BinFis) | 3.3 |
| CNF-5 | | 5 |
| CNF-10 | | 10 |
| LCNF-3.3 | LCNF (セラフィム L) | 3.3 |
| LCNF-5 | | 5 |
| LCNF-10 | | 10 |

2.2.2.5.2 近赤外分光分析

紫外可視近赤外分光光度計 (UV-3600Plus、島津製作所) を用いて試験体の拡散反射スペクトルを測定した。測定波長は 1000~2200nm、測定波長間隔は 2nm とし、1 試験体につき 3 回測定し平均スペクトルを算出した。

2.2.2.5.3 データ解析

得られた拡散反射スペクトルを標準正規化 (Standard normal variate: SNV) した後、主成分分析 (Principal component analysis: PCA) および PLS 回帰分析に供した。PLS 回帰分析では前処理として Mean-Centering を行い、最大ファクター数を 3 に限定して Leave-one-out full cross validation により最適ファクター数を決定した。データ解析には Matlab R2016a (Mathworks. Inc) を使用した。

2.2.2.5.4 分析結果

・拡散反射スペクトルの比較

図 2-135 に各試料の近赤外拡散反射スペクトルを示す。すべての試験体に見られる 1200nm の吸収ピークは PP の CH₃ による吸収である (C-H 伸縮振動の第 2 倍音)。1700-1730nm 付近の最も大きな吸収も PP によるもので、1700nm 付近の CH₃ および 1730nm 付近の CH₂ による吸収が重畳していると考えられる (ともに CH 伸縮振動の第 1 倍音)。また、1386nm に認められる比較的大きなピークも PP の CH₂ による吸収である (C-H 伸縮振動と C-H 変角振動の結合音)。また、CNF-PP では 1926nm に微小な吸収が認められた。これは水分子の非対称伸縮振動と変角振動の結合音による吸収である。また、CNF-PP、LCNF-PP ともに 2110 nm にブロードな吸収帯が認められた。これはセルロースの OH 基変角振動と伸縮振動の結合音による吸収である。

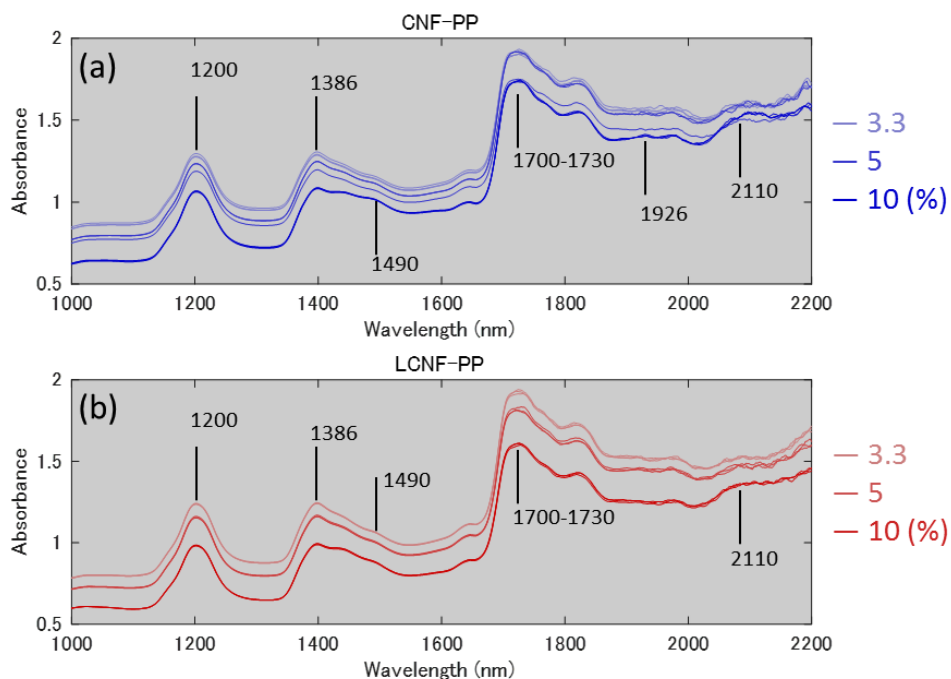


図 2-135 近赤外拡散反射スペクトル (a)CNF-PP (b)LCNF-PP

散乱による影響を SNV 処理によって除去した後のスペクトルを図 2-136 に示す。図 2-136 (a) (b) より、フィラーによる吸収が顕在化しただけでなく、PP による吸収 (1200、1386 および 1700-1730nm 付近) は、フィラー充填率の増加に伴って相対的に減少する傾向にあることが示された。また、CNF-10 では、1490nm のセルロース OH 基の分子間水素結合による吸収が確認できるようになった。

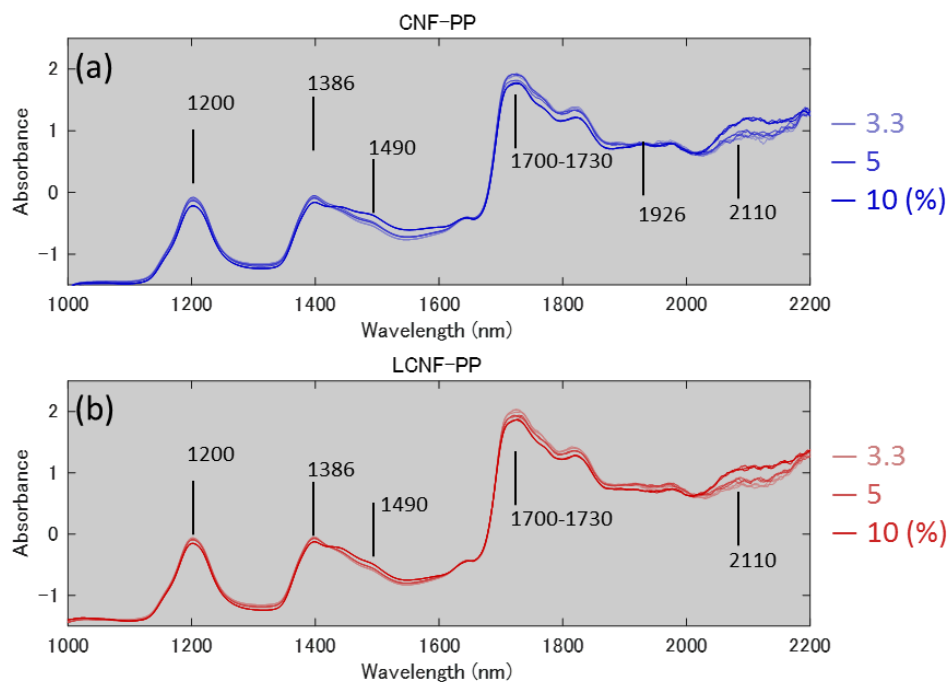


図 2-136 SNV 処理後の近赤外拡散反射スペクトル (a)CNF-PP (b)LCNF-PP

2.2.2.5.5 多変量解析

PCA は多変量データを少数の潜在変数に変換することで、スペクトル全体の変動を可視化することができる。今回は SNV スペクトルに対して PCA を行い、スペクトルの特徴を抽出した。SNV スペクトルの主成分スコアプロットを図 2-137 に示す。PC1 スコアはフィルター充填率の増加とともに増加した。同じフィルター充填率の CNF-PP と LCNF-PP を比較すると、CNF-PP の方が高い PC1 スコアを示した。PC2 スコアは LCNF-PP の方が CNF-PP よりも高い値を示し、10%の充填率の時に最も高い値を示した。一方 CNF-PP はフィルター充填率が変化しても PC2 スコアに大きな変化はなかった。

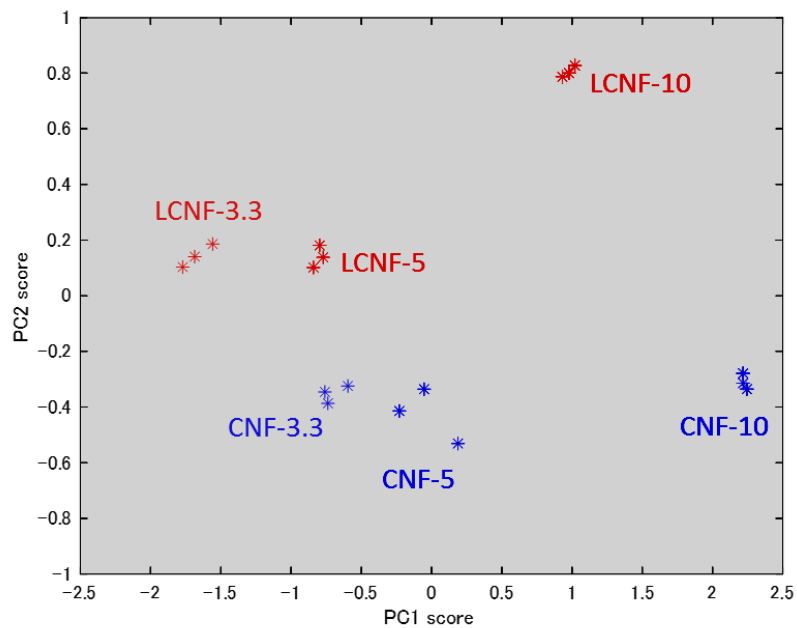


図 2-137 SNV スペクトルの主成分スコアプロット

図 2-138 に主成分ローディングプロットを示す。PC1 ローディングはいずれもセルロースによる吸収が存在する 1490nm 付近と 2110nm 付近で高い値を示した。このことから、PC1 スコアは主に材料中のセルロース量を反映していると考えられた。

一方、PC2 ローディングは 1580nm 付近と 1930nm 付近で大きな負の値を示した。1580nm はセルロース結晶領域における OH 伸縮振動の第一倍音に起因する吸収が存在する。また、1930nm は水分子による吸収が存在する 1926nm に極めて近い。このことから、PC2 スコアは主にセルロースの結晶化度や、それに付随する水分状態を反映していると考えられた。

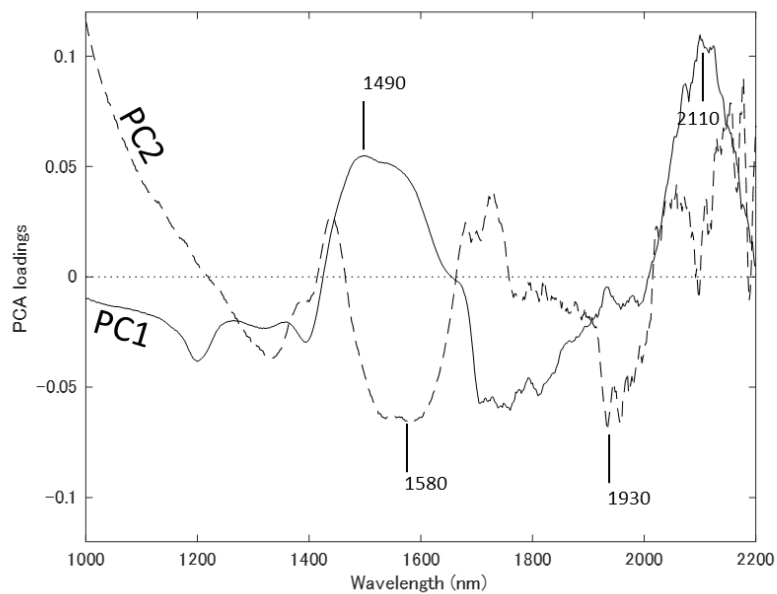


図 2-138 SNV スペクトルの主成分ローディングプロット

図2-139に PC1 スコアとフィラー充填率の関係を示す。PC1 スコアとフィラー充填率の間には線形の関係が認められた。なお、同じフィラー充填率において、CNF-PP の PC1 スコアが LCNF-PP よりも高いのは、PC1 が主にセルロースの含有量を反映しているためだと考えられる。

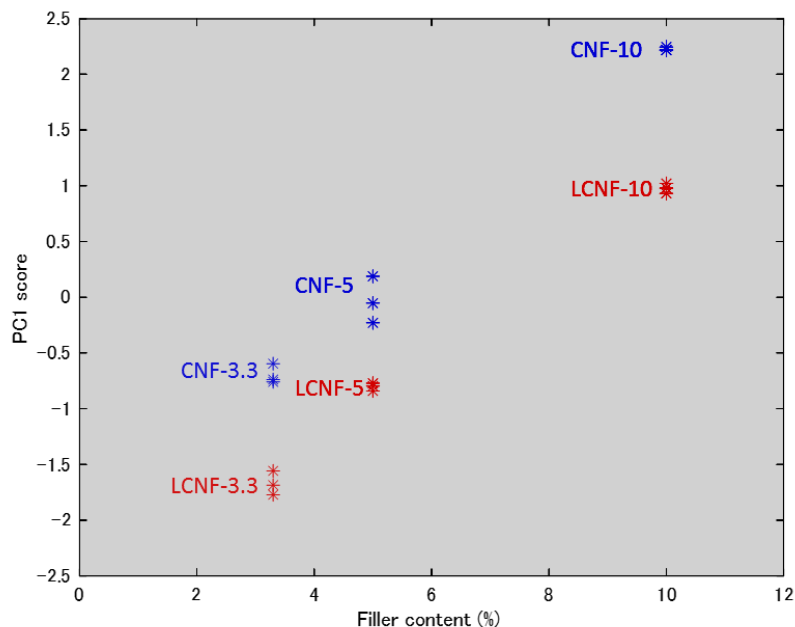


図2-139 PC1 スコアとフィラー充填率の関係

PC スコアはスペクトルの各波長の吸光度の線形結合である。PC スコアとフィラー充填率に線形な関係が認められたことから、線形回帰分析によってスペクトルからフィラー充填率を推定することが可能であると考え、PLS 回帰分析を行った。表2-49に PLS 回帰分析の結果を示す。検量線は CNF-PP と LCNF-PP で別々に作成した。CNF-PP、LCNF-PP それぞれのモデルにおける予測誤差はそれぞれ 0.21%、0.18%であり、両者ともに高い精度でフィラー充填率の推定が可能であることが示された。

表2-49 PLS 回帰分析の結果

| Data | LV ¹ | R2val ² | SECV ³ (%) | RPD ⁴ |
|---------|-----------------|--------------------|-----------------------|------------------|
| CNF-PP | 3 | 0.99 | 0.21 | 14.3 |
| LCNF-PP | 3 | 0.99 | 0.18 | 16.3 |

1. 最適ファクター数 2. 実測値と予測値の決定係数 3. 予測値の標準誤差 4. Ratio of Performance; SD/SECV

2.2.2.5.6 まとめ

近赤外スペクトルから CNF および LCNF 複合材料の判別は十分に可能であると考えられた。また、充填率が比較的低い場合 (3.3~10%) であっても、充填率推定の可能性があることが示された。

2.2.3 家電用途における CNF 複合材廃材の用途調査

2.2.3.1 概要

既存のリサイクルプラスチックの品質とコストから、CNF 複合材廃材が一般的リサイクルプラスチック用途に展開できる可能性を評価した。

また、「(1) ②」より得られた結果をもとに WPC 用途におけるコスト試算を行い、目標コストを達成するためのモデルを提案した。家電等汎用プラスチック用途を想定し、発生する CNF 複合材廃材の SCM モデルを作製し、WPC-MB にて、100 円/kg 以下となるモデルを構築した。以下には、その詳細を示す。

2.2.3.2 CNF 複合材廃材の用途展開についての評価

家電リサイクルプラスチックメーカーにて選別されたプラスチックのマテリアルリサイクル用途はについて、販売形態はプラスチック粉砕物の状況となっており、この材料をリサイクルペレットメーカーがコンパウンドして利用されている。様々な再商品化用途はあるが、最近では、医療廃棄物処理容器、ごみ箱、パレット等への利用となっており、選別によって純度を高めているとはいえ、ポストコンシューマーでは家電から家電等へのリサイクルループになるのは難しい現状があると考えられる。

CNF 複合材廃材の選別にはこれまでの利用用途から新たな選別工程が必要となり、手選別の場合、表 2-45 に示したように、解体工数によっては数百円レベルのコストが新たに発生する為、高付加価値用途でなくてはその選別コストを賄うに至らないことは明白である。

一方、すでに実用化されている近赤外選別の可能性があることから、本選別技術を利用できれば、実質のコストアップは、ほぼ無いと判断できる。

次に、機械特性について西日本家電リサイクル株式会社より入手した家電リサイクルプラスチック (PP) と「2.1.2 CNF 複合材廃材モデルの検討」で作製した CNF 複合材廃材 (CNF10%品) との物性値の比較結果を図 2-140 に示す。

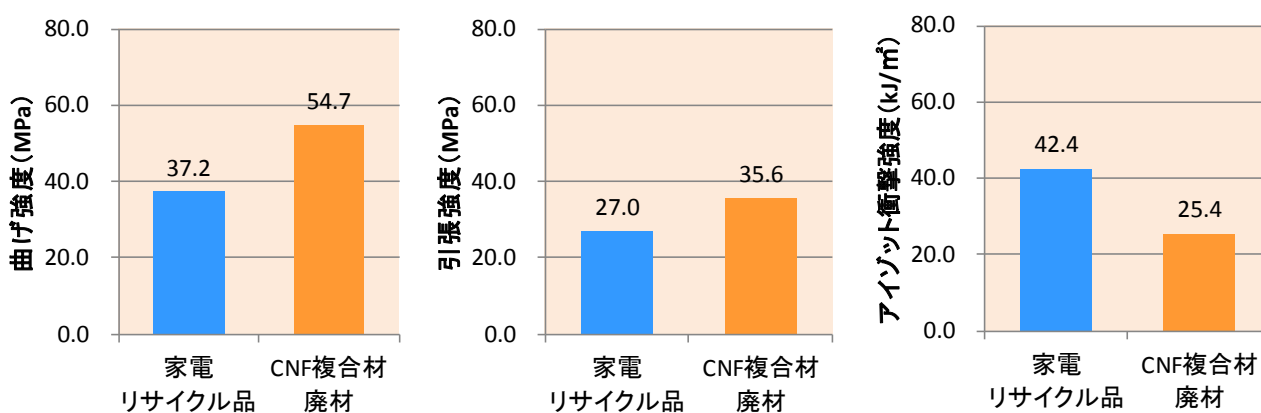


図 2-140 家電リサイクルプラスチックと CNF 複合材廃材モデルとの物性比較結果

CNF 複合材廃材は家電リサイクルプラスチックと比較し、曲げ強度、引張強度は高い結果が得られた。一方、衝撃強度についてはフィラー充填率の影響により、家電リサイクルプラスチックより低い結果となった。機械特性の結果からは特に家電リサイクルプラスチックに劣るとは言えない範囲と考える。CNF 複合材廃材をマテリアルリサイクルすることについては大きな問題とはなりえないとは考えるものの、現状の家電リサイクルプラスチックの用途に対してはCNF 複合材廃材としての付加価値が活かせないと考える。

本事業では酸変性化することで、付加価値アップが図れるとともに、CNF 複合材廃材の熱劣化のレベルのバラツキが、有機過酸化物を用いベース樹脂が低分子化することで平準化し、材料そのもののバラツキをも吸収でき、且つ付加価値を高める技術として有効であると考えられる。

2.2.3.3 WPC用途におけるコスト試算とモデル提案

「2.1.2 ウッドプラスチック(WPC)向けリサイクル技術の開発」より得られた結果をもとにWPC用途におけるコスト試算を実施した。試算した工程のプロセスを図2-141に、材料費の試算結果を表2-50に、リアクティブ処理木粉マスターバッチ(WPC-MB)の製造原価試算結果を表2-51に示す。

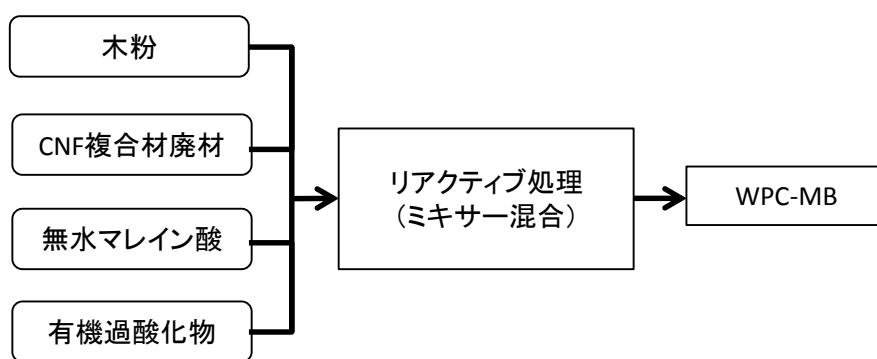


図2-141 CNF 複合材廃材を利用したリアクティブ処理木粉製造の工程

表2-50 リアクティブ処理木粉の材料費試算

| 材料費 | 単価 (円/kg) | 比率 | 単価×比率 比率合計 | 備考 |
|----------|--------------|-------|---------------|-----------------------------------------------------|
| CNF複合材廃材 | 60 | 20.0 | 11.7 | 単価は廃家電プラスチック高純度の粉碎品同等として設定 ((株)エコフィール購買実績による推計値) |
| 無水マレイン酸 | 154 | 2.0 | 3.0 | 2018年経済産業省 生産動態統計より |
| 有機過酸化物 | 2,500 | 0.5 | 12.2 | @市況単価(化薬アクゾ(株)) |
| 木粉 | 65 | 80.0 | 50.7 | @市況単価(トクラス(株)購買実績による推計値) |
| 材料計 | | 102.5 | 77.6 | 円/kg |

表 2-5 1 リアクティブ処理木粉の製造コスト試算

| 製造原価試算 | | 数量(t/月) | | 備考 |
|--------|-------|------------|----------|---------------------------------------------------------|
| | | 149.8 | | |
| | | 単価 円/kg | 金額 千円 | |
| | | | | 650Lミキサーを想定 390kg/h(1バッチ130kg×3回/h)×24h×0.8(稼働率)×20日 |
| 変動費 | 材料費 | 77.6 | 11,627 | |
| | 電力量 | 8.3 | 1,236 | 実験値(条件M1) 0.67kwh/kg 単価12.32円/kwh(関西電力夏季電力料金)で試算 |
| | 包装費 | 0.3 | 39 | リターンフレコンを想定(500kg/フレコン:リユース5回) |
| | 小計 | 86.2 | 12,902 | |
| 固定費 | 人件費 | 8.0 | 1,200 | 配置人員 3名 400千円/人 |
| | 減価償却費 | 4.5 | 677 | 投資総額 65,000千円/8年/12か月の定額償却として試算 |
| | 保守費用 | 0.5 | 68 | 減価償却費の10%で試算 |
| | 小計 | 13.0 | 1,945 | |
| 合計 | | 99.1 | 14,847 | |

変動費の内、CNF 複合材廃材の材料費単価は近赤外選別装置を用い、高純度に選別されたPPと同程度とし@60円/kgとした。無水マレイン酸、有機過酸化物、木粉については市況推計値を用いて材料費試算を行った。また、製造原価はリアクティブ処理木粉用に650Lタイプのヘンシェル型ミキサーを用いることを前提に、本事業での生産能力を加味して試算を行い、月産約150tの生産能力とした。この試算の結果、CNF複合材廃材を利用したリアクティブ処理木粉の製造コストは99.1円/kgとなった。製造コストの約50%を木粉の材料費が占めており、コスト低減のポイントは木粉にあると言える。本事業では木粉の製造については対象としていないが、林産地等での木粉製造まで含めた地域モデルを形成することができれば、酸変性処理木粉の製造原価を、更にコスト削減することが可能になると考えられる。

2.3 社会実装の検証

2.3.1 概要

量産に移行できる設備にて、WPC用途でのリアクティブシステムの実証した。また、量産設備にてCNF複合材廃材の酸変性処理の実証および作製された酸変性処理品を用いた複合材料の品質に関する検証のため、「2.1.2 ウッドプラスチック(WPC)向けリサイクル技術の開発」より得られた結果をもとにCO₂排出量の算出と製造エネルギー実測値をもとにしたCO₂排出量の算出を行った。CNF複合材廃材を利用したWPCのうち、最もCO₂排出量の少ない結果となった条件M1(1.917 kg-CO₂e/kg)では、従来法のBM①(2.425 kg-CO₂e/kg)と比較して、0.508kg-CO₂e/kg、約20.9%の削減となることが分かった。以下には、その詳細を示す。

2.3.2 CO₂排出量の検証

2.3.2.1 目的

CNFを含む家電プラスチック廃材を、WPCとしてマテリアルリサイクルする際のCO₂排出量を算出し、バージンのWPCと比較することによりCO₂削減効果を評価する。

2.3.2.2 方法

2.3.2.2.1 評価プロセス

- ・CNF複合材廃材を利用した、リアクティブ木粉表面処理
- ・バージンPPを利用したリアクティブ木粉表面処理
- ・市販MAPPを利用した、木粉表面処理
- ・未処理木粉利用

2.3.2.2.2 評価範囲と評価条件

2.3.2.2.2.1 CNF複合材廃材を利用した、リアクティブ木粉表面処理

評価範囲を図2-142に示す。

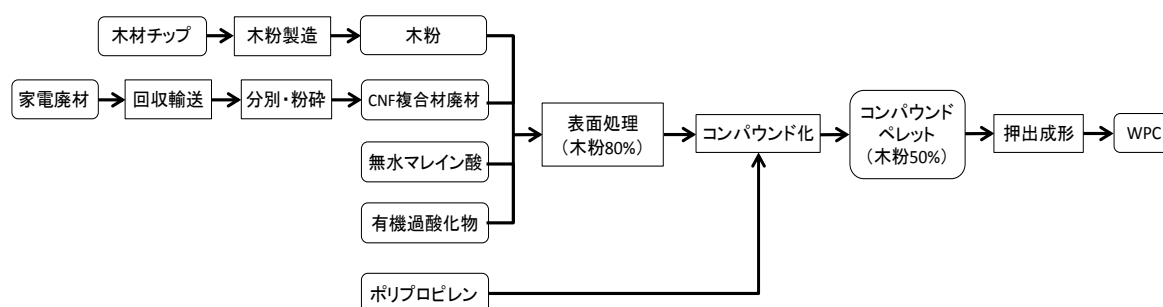


図2-142 CNF複合材廃材を利用したリアクティブ処理木粉を用いたWPCの評価フロー

CNF複合材活用の一例として、家電を回収し、分別・粉碎後に得られるCNF複合材廃材のマレイン酸変性と同時に木粉と熔融混合(木粉表面処理)し、コンパウンド化した上で、押出成形でデッキを製造するプロセスを評価した。

2.3.2.2.2.2 バージン PP を利用したリアクティブ木粉表面処理
 評価範囲を図 2-143 に示す。

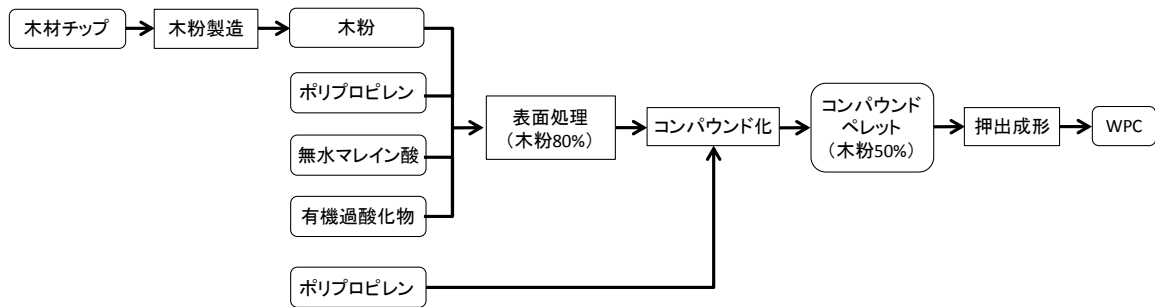


図 2-143 バージン PP を利用したリアクティブ木粉を用いた WPC の評価フロー

バージンのポリプロピレンをマレイン酸変性と同時に木粉を熔融混合（木粉表面処理）し、コンパウンド化した上で、押出成形でデッキを製造するプロセスを評価した。

2.3.2.2.2.3 市販 MAPP を利用した、木粉表面処理
 評価範囲を図 2-144 に示す。

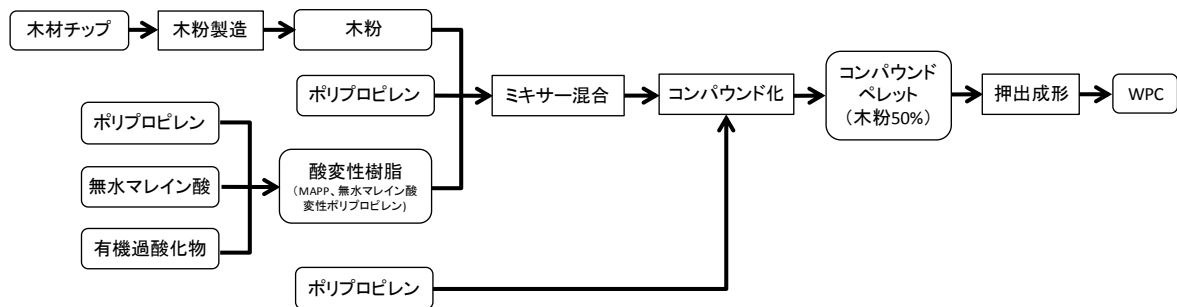


図 2-144 市販 MAPP を利用した表面処理木粉を用いた WPC の評価フロー

バージンのポリプロピレンをマレイン酸変性されたポリプロピレン（MAPP）と共に木粉と熔融混合（木粉表面処理）し、コンパウンド化した上で、押出成形でデッキを製造するプロセスを評価した。

2.3.2.2.2.4 未処理木粉利用
 評価範囲を図 2-145 に示す。

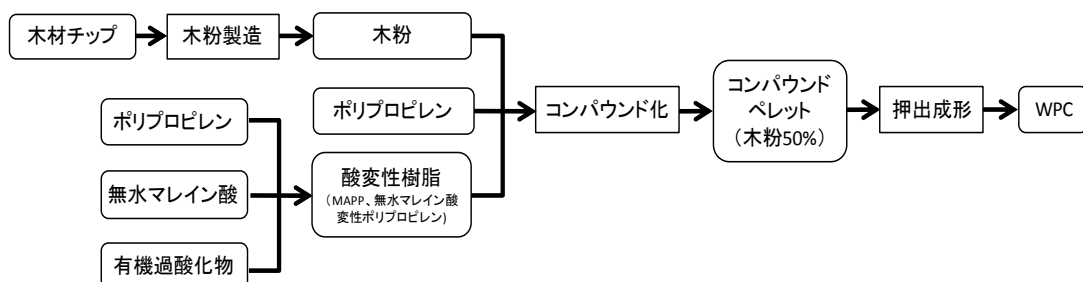


図 2-145 木粉未処理（一括混練） WPC の評価フロー

バージンのポリプロピレンをマレイン酸変性されたポリプロピレン (MAPP)、木粉と共にコンパウンド化し (未処理木粉)、押出成形でデッキを製造するプロセスを評価した。

廃家電の原材料としての負荷はゼロとし、回収および分別・粉碎工程の負荷を計上した。ロス分は原料として当該工程に戻されており、廃棄ロスは発生しないものとした。また、評価工程から副製品の製造は想定していない。

機能単位は、WPC デッキ 1kg あたりとした。バックグラウンドデータには、IDEAv2.2 (産業技術総合研究所、産業環境管理協会) を使用し、地球温暖化係数として IPCC2013, GWP100 年係数を用いて、各種温暖化ガスの影響を CO2 換算した GHG 排出量により評価した。なお、本報告書では、算出した GHG 排出量を「CO2 排出量」と記述する。

使用した原単位は以下の通りである。

- ・木材チップ
- ・無水マレイン酸
- ・その他の脂肪族系中間物
- ・ポリプロピレン
- ・使用済み家電の高度中間処理サービス (分解・解体～破碎・選別)
- ・トラック輸送サービス, 2 トン車, 積載率_平均
- ・電力, 一般電気事業者 10 社平均, 2015 年度

2.3.2.3 結果

2.3.2.3.1 CNF 複合材廃材を利用した、リアクティブ木粉表面処理

「2.1.2.2 量産設備によるリアクティブ処理木粉を用いた WPC 原料の試作」と同様、表 2-5 2 に示す M1~M7 の条件により、CNF 複合材廃材を利用したリアクティブ処理を行い、製造した WPC の 1kg あたりの CO2 排出量を評価した。

表 2-5 2 リアクティブ処理工程 (CNF 複合材廃材利用) 条件

| 番号 | 概要(処理完了温度は 190°C) |
|----|-----------------------------------------------|
| M1 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 初期添加 |
| M2 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 120°C時添加 |
| M3 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 140°C時添加 |
| M4 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 160°C時添加 |
| M5 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加 |
| M6 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加 添加後 180°C 5分キープ |
| M7 | 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加 添加後 180°C 20分キープ |

インベントリ分析結果 (M1~M7) を表 2-5 3 に、算出した CO2 排出量を図 2-1 4 6 に示した。

木粉、および CNF 複合材廃材は、原料の負荷が小さいため、全体に与える影響は小さい。表面処理工程の処理温度が変化しても、全体の CO2 排出量への影響はほとんどないが、高い処理温度でキープする時間が長くなると、負荷が大きくなる傾向が見られた。

表2-53 リアクティブ処理（CNF 複合材廃材利用）により製造した WPC の CO2 排出量

M1: 無水マレイン酸、有機過酸化物 初期添加

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.669 | kWh | 0.388 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.720 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.461 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.931 | kWh | 0.540 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.689 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.689 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 1.917 |

M2: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 120℃時添加

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.672 | kWh | 0.390 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.722 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.463 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.921 | kWh | 0.534 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.684 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.684 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 1.912 |

M3: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 140°C時添加

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.898 | kWh | 0.521 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.853 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.547 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.911 | kWh | 0.528 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.763 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.763 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 1.991 |

M4: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 160°C時添加

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.842 | kWh | 0.488 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.821 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.526 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.984 | kWh | 0.571 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.784 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.784 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.012 |

M5: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.727 | kWh | 0.422 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.754 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.483 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 1.012 | kWh | 0.587 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.757 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.757 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 1.986 |

M6: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加 添加後 180°C 5分キープ

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 1.045 | kWh | 0.606 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 0.938 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.601 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.985 | kWh | 0.571 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.860 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.860 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.089 |

M7: 無水マレイン酸、有機過酸化物 材料温度 180°C時添加 添加後 180°C 20分キープ

| 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 家電廃材 | 1.000 | kg | 0.000 |
| 回収輸送 | 0.050 | tkm | 0.024 |
| 分別・粉砕 | 1.000 | kg | 0.093 |
| CNF 複合材廃材製造 | 1.000 | kg | 0.118 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| CNF 複合材廃材 | 0.195 | kg | 0.023 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 1.905 | kWh | 1.105 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 1.437 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.921 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.837 | kWh | 0.486 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 2.094 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 2.094 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.322 |

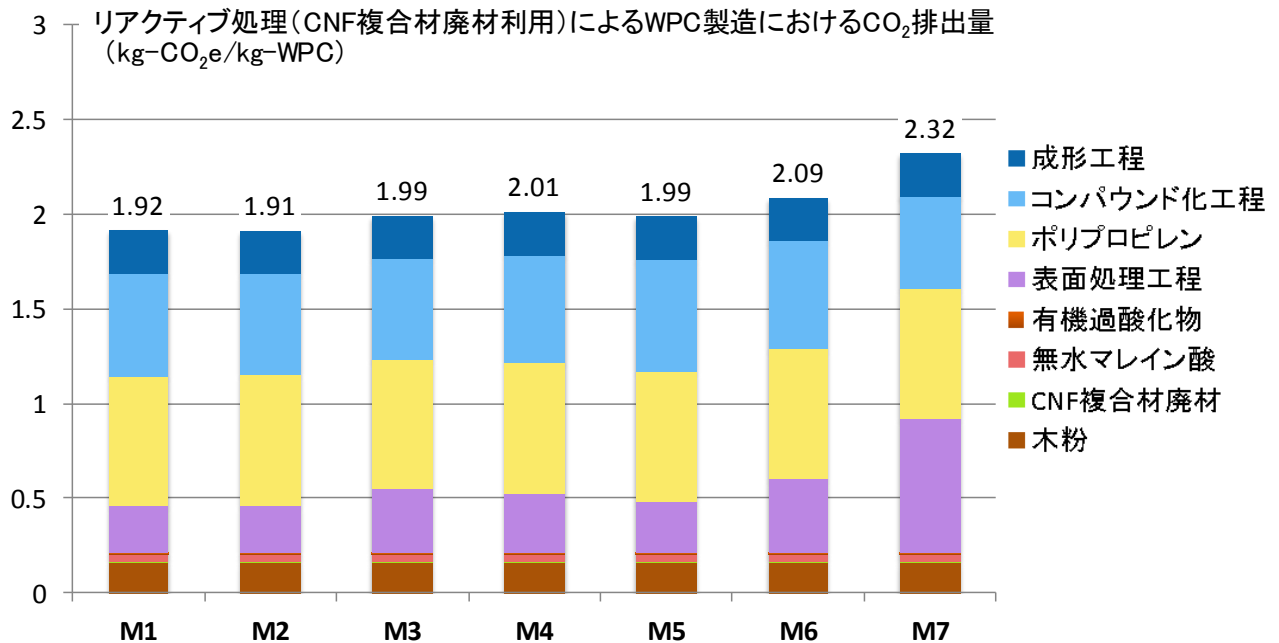


図 2-146 各プロセスにおける CO₂ 排出量

2.3.2.3.2 バージン PP を利用したリアクティブ木粉表面処理

バージン PP を利用したリアクティブ処理を行い、製造した WPC の 1kg あたりの CO₂ 排出量を評価した。結果を表 2-54 に示す。コンパウンド化、およびデッキへの成形工程は、CNF 廃材を利用した WPC の条件 M1 と同等の負荷と設定した。CNF 複合材廃材ではなくポリプロピレンが使用されるため、表面処理木粉の負荷が比較的大きいものとなった。

表 2-54 リアクティブ処理（バージン PP 利用）により製造した WPC の CO₂ 排出量

| (V-PP) 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|--------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| 木粉 | 0.780 | kg | 0.242 |
| ポリプロピレン | 0.195 | kg | 0.373 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | kg | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| 表面処理工程 | 0.669 | kWh | 0.388 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 1.070 |
| 表面処理木粉 | 0.641 | kg | 0.686 |
| ポリプロピレン | 0.359 | kg | 0.688 |
| コンパウンド化工程 | 0.931 | kWh | 0.540 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 1.913 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 1.913 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.141 |

2.3.2.3.3 市販 MAPP を利用した、木粉表面処理

市販の MAPP を利用した木粉表面処理を行い、製造した WPC の 1kg あたりの CO2 排出量を評価した。結果を表 2-55 に示す。デッキへの成形工程は、他の条件によるコンパウンドと同等の負荷と設定した。表面処理木粉の負荷は、ポリプロピレンの使用により、CNF 複合材廃材を利用したものよりは大きいものの、MAPP を利用することで、無水マレイン酸および有機過酸化物を使用したものよりは小さいものとなった。

表 2-55 木粉表面処理（市販 MAPP 利用）により製造した WPC の CO2 排出量

| (MAPP, 表面処理) 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|-----------------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| ポリプロピレン | 0.976 | kg | 1.867 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | tkm | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| MAPP 化工程 | 0.150 | kWh | 0.087 |
| MAPP 製造 | 1.000 | kg | 2.021 |
| 木粉 | 0.800 | kg | 0.248 |
| ポリプロピレン | 0.168 | kg | 0.321 |
| MAPP | 0.032 | kg | 0.065 |
| 表面処理工程 | 0.647 | kWh | 0.375 |
| 表面処理木粉製造 | 1.000 | kg | 1.009 |
| 表面処理木粉 | 0.625 | kg | 0.631 |
| ポリプロピレン | 0.375 | kg | 0.717 |
| コンパウンド化工程 | 1.149 | kWh | 0.666 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 2.015 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 2.015 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.243 |

2.3.2.3.4 未処理木粉利用

リアクティブ処理を行わずに、MAPP を用いて製造した WPC の 1kg あたりの CO₂ 排出量を評価した。結果を表 2-56 に示す。デッキへの成形工程は、他の条件によるコンパウンドと同等の負荷と設定した。表面処理の工程は削減されるが、コンパウンド化工程の負荷が、他条件の WPC と比較して大きいものとなった。

表 2-56 従来法（未処理）により製造した WPC の CO₂ 排出量

| (MAPP, 未処理) 製品・工程 | 投入量 | | GHG 排出量 (kg-CO ₂ e) |
|----------------------|-------|-----|--------------------------------|
| 木材チップ | 1.000 | kg | 0.071 |
| 木粉化工程 | 0.412 | kWh | 0.239 |
| 木粉製造 | 1.000 | kg | 0.310 |
| ポリプロピレン | 0.976 | kg | 1.867 |
| 無水マレイン酸 | 0.020 | tkm | 0.057 |
| 有機過酸化物 | 0.005 | kg | 0.010 |
| MAPP 化工程 | 0.150 | kWh | 0.087 |
| MAPP 製造 | 1.000 | kg | 2.021 |
| 木粉 | 0.500 | kg | 0.155 |
| ポリプロピレン | 0.480 | kg | 0.918 |
| MAPP | 0.020 | kg | 0.040 |
| コンパウンド化工程 | 1.868 | kWh | 1.083 |
| コンパウンド製造 | 1.000 | kg | 2.197 |
| コンパウンド | 1.000 | kg | 2.197 |
| 成形工程 | 0.394 | kWh | 0.228 |
| WPC デッキ製造 | 1.000 | kg | 2.425 |

2.3.2.4 まとめと今後

図2-147で、従来法により製造したWPC (BM①)、バージンPPと市販のMAPPを用いて表面処理を施した木粉により製造したWPC (BM②)、バージンPPを利用してリアクティブ処理を施した表面処理木粉により製造したWPC(リアクティブ処理(バージンPP利用))と、廃家電から得られるCNF複合材廃材を利用してリアクティブ処理を施した表面処理木粉により製造したWPC (条件M1、M7) とを比較した。

CNF複合材廃材を利用したWPCのうち、条件M1 (1.917 kg-CO₂e/kg) は、従来法のBM① (2.425 kg-CO₂e/kg) と比較して、0.508kg-CO₂e/kg、約20.9%の削減となることが分かった。今回検討した表面処理工程の各条件において、いずれも従来法よりCO₂排出量は削減される結果が得られた。

物性試験の結果(「2.1.2.2 量産設備によるリアクティブ処理木粉を用いたWPC原料の試作」と比較すると処理温度が高く、処理時間が長い条件M5~M7が比較的高い物性(曲げ強度、耐水性)を示すが、CO₂排出量も大きくなり、バージンPPを用いたWPCよりもCO₂排出量が増加する条件も見られた。このことから、物性とCO₂排出量を加味した場合、条件M1が比較的バランスのとれた条件と考える。

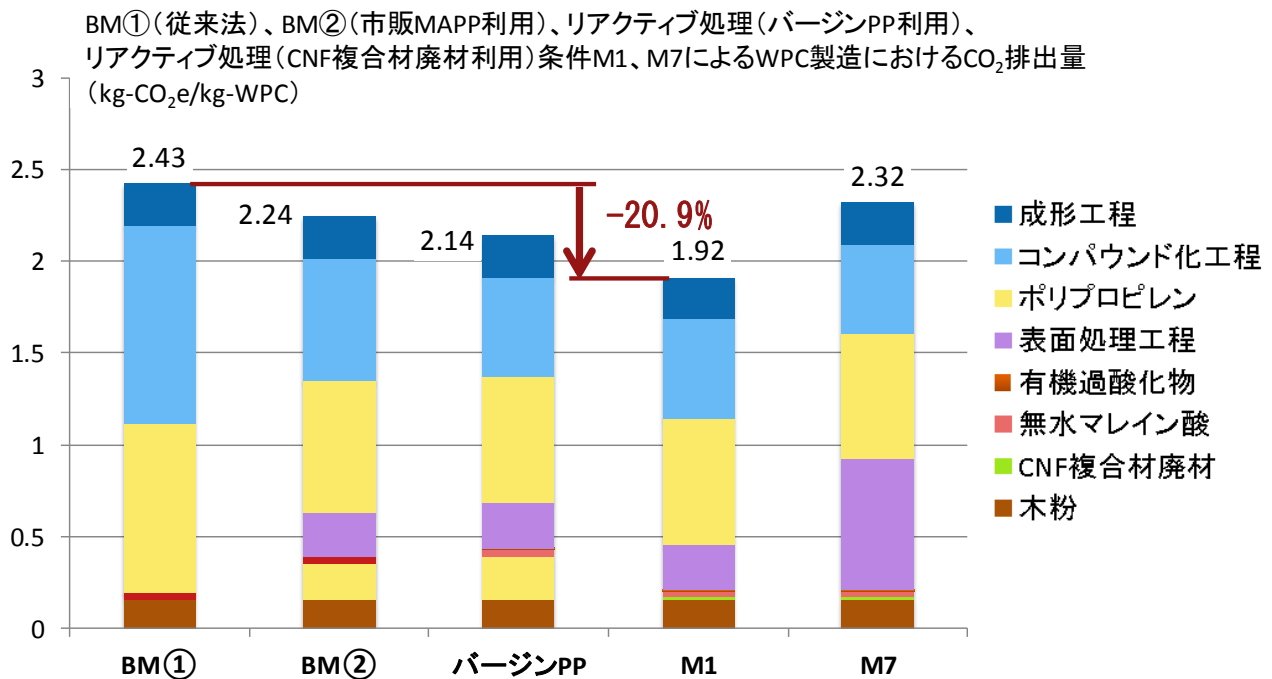


図2-147 各作製工程におけるCO₂排出量

3. 総括

本事業は平成 29 年度より環境省委託業務「セルロースナノファイバーリサイクルの性能評価等事業委託業務」として、近い将来、家電、建材、包装容器、自動車等の用途に普及が予想される CNF 複合材を対象とし、その普及に伴い発生する製造時の端材、製品寿命により廃棄される CNF 複合材廃材を活用した CO2 削減効果の実証に取り組んだ。主な成果は以下のとおりである。

(1) マテリアルリサイクル技術の実証

廃材モデルとして作製した CNF 複合材廃材をベース樹脂とし、無水マレイン酸、有機過酸化物によるリアクティブ処理木粉の技術確立を行い、「2. 1. 2. 2 量産設備によるリアクティブ処理木粉を用いた WPC 原料の試作」における条件「M1」は相溶化剤無添加品に対して、曲げ強度 54%、耐水性 35%（吸水量 35%低減）向上させることを可能にした。また無機フィラー用途においては、CNF 複合材廃材モデルを原料とし、表面処理剤としての酸変性処理条件を確立した。熔融粘度は MFR 1000g/10min 以上を達成し、表面処理剤に必要な流動性を確保した。また、酸変性処理された CNF 複合材廃材を相溶化剤として利用したタルク 25%充填プラスチックにおいて相溶化剤無添加品に対し、「2. 1. 3. 2 フィラー充填プラスチックにおける効果の検証」の条件「PP-TA-bMA-3」は曲げ強度が 15%、衝撃強度が 18% 向上した。更にリアクティブ処理により、「PP-TA-bMA-12」では曲げ強度 21%、衝撃強度 16%向上の結果を得ることができた。これらの技術確立により、本事業で掲げた性能目標を達成する技術開発ができた。

(2) 再生利用の仕組み検証

家電プラスチック廃材の回収について現状を調査し、CNF 複合材廃材に置き換わった場合において、選別回収技術に課題があった。比較的解体しやすい大型サイズの部品等は手選別により対応可能であるが、小さな部品については、解体に要する人的コストが高く、手選別は困難であると判断した。

その対応策として、既存の近赤外選別装置を用いた選別テストを行った結果、無着色であれば CNF10%配合 PP 品にて 100%、CNF5%配合 PP 品にて約 75%が回収可能であった。既存設備を前提とした選別回収方法の為、現状の選別コストで対応可能であると判断する。

上記の調査結果と（1）にて行った試作結果を元に WPC 用途におけるリアクティブシステム処理木粉（WPC-MB）のコスト試算を行った結果、99.1 円/kg の製造原価となった。これによって本事業で掲げた目標コストを達成するモデルを確立できた。

(3) 社会実装の検証

CNF 複合材廃材を用いリアクティブシステムを導入したウッドデッキ製品製造工程における CO2 排出量削減効果について検証し、従来プロセス比 ▲20.9%の CO2 排出量削減となる生産プロセスを確立した。

以上、本事業における研究開発により、CNF 複合材廃材のマテリアルリサイクル用途の開発と CO2 排出量削減に対する基盤技術を開発することに成功した。

この印刷物は、グリーン購入法に基づく基本方針における「印刷」に係る判断の基準にしたがい、印刷用の紙へのリサイクルに適した材料[Aランク]のみを用いて作成しています。