

令和元年度環境省委託業務

令和元年度脱炭素社会を支える
プラスチック等資源循環システム構築実証事業
(バイオ由来素材を複合した再生樹脂の適用技術実証)
委託業務
成果報告書

令和2年3月

パナソニック株式会社

令和元年度脱炭素社会を支えるプラスチック等資源循環システム構築実証事業
(バイオ由来素材を複合した再生樹脂の適用技術実証) 委託業務
成果報告書概要

1. 業務の目的

家電製品の多くは、主に3種類(PS, ABS, PP)の樹脂で構成されているために、解体時に十分な選別ができず低価値の部材に再生され、家電製品への再利用が促進されない。

そこで、本事業では、強度等の物性が低下した使用済み廃家電回収リサイクル樹脂に、バイオ由来素材のセルロースファイバー(CeF)等を複合させることで物性を回復させ、家電部品等に適用することを目的とした。これにより、バイオ由来資源の活用拡大と化石資源由来のバージン樹脂の削減を両立させ、二酸化炭素(CO₂)排出量の削減と樹脂リサイクルの拡大・加速化を実現するのが狙いである。さらに、製品の構成材料の単一樹脂種構成化を図ることで、高効率リサイクルの実現も目指している。

また、CeF複合樹脂が家電製品に適用された場合を想定し、既存の資源循環システムに対して、どのような影響があるのかを事前に検討することは極めて重要である。そこで、既存のリサイクルシステムへの影響評価も実施した。

2. 業務の内容

(1)CeF と家電リサイクル樹脂の複合工程の開発

使用済み廃家電由来の廃プラスチック(再生 PP、再生 PS)を原料とし、CeFとの複合による再生樹脂物性の挙動を確認した。CeFの複合比率は、主に15%程度を中心とし、混練条件、添加剤などの各種条件を変化させ、家電に適用できる複合プロセスの確立を行った。再生 PS用の相溶化剤、分散剤単体の効用度の把握を完了し、再生 PPについては良好な複合条件を導出した。

(2)選別工程の開発および資源循環システムへの影響評価

(i)選別工程の開発

CeF15%程度複合樹脂を、回収率60%以上、純度80%以上で選別できる選別工法の確立を目指し、今年度は、近赤外線分光器で選別性の基礎評価を実施した。CeF複合バージン樹脂を判別データベースに追加することで、異なるCeF含有濃度の違いを判定できることを確認した。一方で、再生材を母材とするCeF複合樹脂を正しく判定するには、データベースの拡張が必要であることが

分かった。

(ii)CeF 複合樹脂の資源循環システムへの影響評価

CeF 複合樹脂が家電に適応された場合の資源循環システムの影響評価を実施した。従来の選別技術では、CeF 複合/非複合を選別することは難しく、再生時に CeF 複合樹脂が混入し、意図せず低濃度 CeF 複合樹脂が生成される可能性があることから、その選別技術の確立が重要であることを示した。

(3)LCA の検証・評価

シナリオベースの LCA 評価を実施し、CO₂ 排出量削減効果の算定を実施した。機能単位は、家電製品(空調機器等)に使用する樹脂材料とし、ベースラインを ABS、評価対象を CeF 複合再生 PS とした。CO₂ 削減効果は、0.57 kg-CO₂/kg となった。

3. 来年度の取組

複合工程の開発では、抽出した課題の解決に向け、再生樹脂の作成条件出しと最適化を実施し、再生樹脂の物性を踏まえた適応商品・部品の検討を行う。選別工程の開発では、バージン材および再生材+CeF の判別データベースの構築による CeF 複合樹脂の判別技術を確立した後、搬送速度 3m/s での高速選別工法の確立に取り組む。また、資源循環システムへの影響評価、LCA 評価については、今年度の基礎検討成果を踏まえ、詳細検討を実施する。

**2019 Verification Project for Building a Resource Recycling System for
Plastics and other Materials to Support a Carbon-free Society
(Verification of Application Technology for Recycled Bio-derived Composite
Resin)**

Summary of Result

1. Project objective

The majority of current home appliances are constructed primarily from three types of resins (PS, ABS, PP), which cannot be effectively sorted after disassembling and as such, these resins are recycled as low value materials. This prevents active application of recycled materials to home appliances.

Therefore, for this project, we recovered the deteriorated physical properties (strength, etc.) of resin that had been collected and recycled from used home appliances by combining it with bio-derived cellulose fibers (CeF) to create a composite material with sufficient recovered physical properties so that such a material can be applied for use as parts of home appliances. By doing this, we aim at reducing the amount of carbon dioxide (CO₂) emissions and also aim at expanding and accelerating resin recycling by expanding the applicable use of bio-derived resources while reducing the use of virgin resin from fossil resources. Further, we aim at realizing highly efficient recycling by proposing the use of a single resin material as the construction material of products.

Furthermore, as we contemplate the application of CeF composite resin to home appliances, it is extremely important to discuss what kind of influence it would have on the existing resource recycling system. Therefore, we also evaluated the influence on the existing recycling system.

2. Project details

(1) Development of Composite Processing of CeF and Resin Recycled from Home Appliances

Using waste plastic derived from used and discarded home appliances (recycled PP, recycled PS) as the raw material, we created recycled resin by combining it with CeF and confirmed the behaviors of its physical properties. The composite resin contains approximately 15% of CeF. By

changing various conditions such as the mixing conditions and additives, we attempted to establish a composite process that can be applied to home appliances. We completed our understanding of the efficacy level of using a compatibilizer for recycled PS or of only using dispersant and derived favorable composite conditions for recycled PP.

(2)Development of the Sorting Process and Evaluation of the Influence on the Resource Recycling System

(i)Development of the Sorting Process

Aiming to establish a sorting method for composite resin that contains approximately 15% of CeF with an over 60% recovery rate and an over 80% purity rate, this year, we conducted a basic evaluation using a near-infrared spectrometer. By adding CeF composite virgin resin to the discrimination database, we confirmed that we can determine different CeF concentration levels. On the other hand, we also discovered the need for database expansion in order to accurately determine CeF composite material that is made from recycled material.

(ii)Evaluation of CeF composite resin's influence on the resource recycling system

We evaluated CeF composite resin's influence on the resource recycling systems when such resin is applied to home appliances. With the existing sorting technology, it is difficult to separate CeF composite material from non-CeF composite material. Therefore, CeF composite resin may be mixed when recycling the material, unintentionally generating recycled material with a low concentration of CeF composite resin. As such, we demonstrated the importance of establishing a more efficient sorting system.

(3)Verification and Evaluation of LCA

We evaluated LCA based on the pre-established scenario and calculated the CO₂ emissions reduction effect. We used resin materials used for home appliances (air conditioners, etc.) as the functional unit while taking ABS as the baseline and using CeF composite recycled PS as the subject of evaluation. The CO₂ emissions reduction effect was 0.57 kg-CO₂/kg.

3. Activities for Next Year

In order to solve the problems we have identified for developing the composite process, we will determine and optimize the conditions for making recycled resin and discuss products and parts that are suitable for the application while considering the physical properties of the recycled resin. For developing the sorting process, we will first establish the skills to identify CeF composite resin by creating a database for sorting virgin material from recycled material with CeF, and then, attempt to establish a high-speed sorting method at a transport velocity of 3m/s. For evaluating the influence on the resource recycling system and LCA, we will conduct detailed discussions based on the results of the basic discussions from this year.

目次

成果報告書概要	1
Summary of Result	3
1. 業務の目的	7
2. 業務の内容	8
2.1. セルロースファイバーと家電リサイクル樹脂の複合工程の開発	8
2.1.1. 緒言	8
2.1.2. アプローチ	9
2.1.3. 取組結果	18
2.1.4. 結言	54
2.2. 選別工程の開発	55
2.2.1. 緒言	55
2.2.2. アプローチ	57
2.2.3. 取組み結果	61
2.2.4. 結言	72
2.3. セルロースファイバー複合樹脂の資源循環システムへの影響評価	73
2.3.1. 緒言	73
2.3.2. アプローチ	73
2.3.3. 取組結果	73
2.3.4. 結言	78
2.4. LCA の検証・評価	79
2.4.1. 緒言	79
2.4.2. アプローチ	79
2.4.3. 取組結果	85
2.4.4. 結言	86
3. 来年度の取組	91
【参考文献】	92

1. 業務の目的

家電製品の多くは、主に3種類(PS, ABS, PP)の樹脂で構成されているために、解体時に十分な選別ができず低価値の部材に再生され、家電製品への再利用が促進されない。

そこで、本事業では、強度等の物性が低下した使用済み廃家電回収リサイクル樹脂に、バイオ由来素材のセルロースファイバー(CeF)等を複合させることで物性を回復させ、家電部品等に適用することを目的とした。これにより、バイオ由来資源の活用拡大と化石資源由来のバージン樹脂の削減を両立させ、CO2排出量の削減と樹脂リサイクルの拡大・加速化を実現するのが狙いである。さらに、製品の構成材料の単一樹脂種構成化を図ることで、高効率リサイクルの実現も目指している。図1-1は、家電製品(空調機器等)におけるABS樹脂代替化の概要イメージ図であり、強度設計上の要因により、PS樹脂とABS樹脂で構成されている家電製品への適用事例を示している。本事業成果の適用前では、化石由来資源を使ったバージン樹脂が、2種類の樹脂で構成されているために、解体時に十分な選別ができず低価値の部材に再生され、家電製品の再生樹脂としての再利用拡大が促進されない。本事業成果の適用後は、再生による樹脂物性低下をCeF等で補い、低コストで性能を向上させることにより、家電製品への適用拡大が可能となる。なお、本事例では、ABS樹脂をPS樹脂にて代替しているが、PP樹脂で代替する場合もある。

また、CeF複合樹脂が家電製品に適用された場合を想定し、既存の資源循環システムに対して、どのような影響があるのかを事前に検討することは極めて重要である。そこで、既存のリサイクルシステムへの影響評価も実施した。

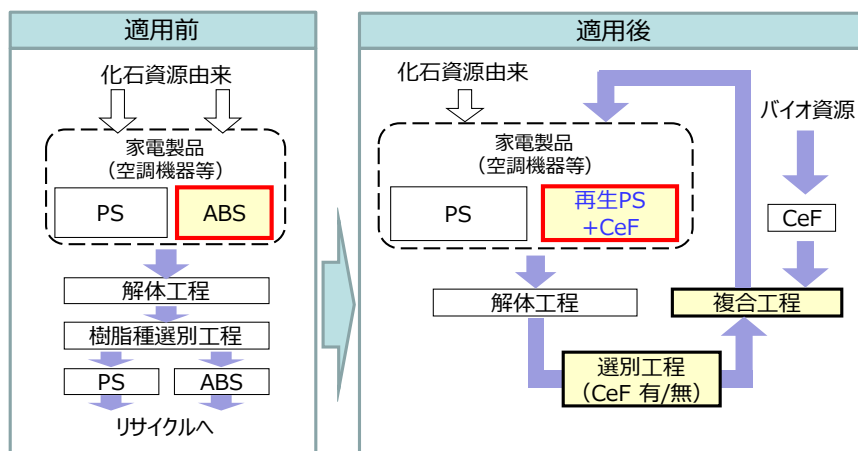


図 1-1 家電製品(空調機器等)におけるABS樹脂代替化の概要イメージ

2. 業務の内容

2.1. セルロースファイバーと家電リサイクル樹脂の複合工程の開発

2.1.1. 緒言

使用済み廃家電等から得られるリサイクル樹脂は、バージン樹脂に比べ、経年劣化や回収時の異物混入が原因となって、特に機械的強度等の性能が低下する。また、その特性はリサイクル樹脂そのものの品質面のバラつきが大きく影響している。製品が必要とする性能にまで、性能を向上させ安定させるためには、バイオ由来材料を効果的に複合させる技術が必要となる。製品に求められる特性に合致するセルロースファイバー(CeF)の均一分散のための開繊や混練などの工法条件の確立が課題と考える。その実施には、CeFと樹脂との性状や特性を把握した上で、添加剤を含む、原材料間の最適な選定・調合・組み合わせを行う必要がある。また、原材料に対して、適正な加熱・混練の基本プロセス条件を見出し、製品に要求される特性や耐久性を十分に満たす量産プロセスの確立、最適化を行わなければならない。

家電リサイクル法で回収する4家電のうち、冷蔵庫及び洗濯機の射出成形樹脂部品はPP樹脂が最も多く活用されており、エアコン室内機の射出成形樹脂部品はPS樹脂及びABS樹脂が最も多く使用されている。エアコンに使用されるPS樹脂は、一般にハイインパクトPS樹脂(HIPS樹脂)と呼ばれるもので、透明な汎用PS樹脂(GPPS)とは異なる。本報告書では、以降HIPS樹脂をPS樹脂と表し、CeFを複合化したHIPS樹脂をCeF+PS樹脂と表すことにする。

廃家電由来PP樹脂については、従来、リサイクル樹脂として広く活用されているが、バイオ由来素材としてのCeFを複合化させることにより、リサイクル材としての絶対量を増量させることができ、尚且つ強化材としての効能として物性向上が期待されるため、その活用技術開発は非常に重要であると考えられる。

一方、PS樹脂については、リサイクル樹脂の活用拡大だけでなく、PS樹脂より高価なスチレン系樹脂(例えばABS樹脂)への代替を実現することにより化石資源由来樹脂の削減並びに樹脂コストの削減を図ることが可能となる。

本取組では、家電リサイクル法により回収した廃家電由来の樹脂部品から選別・回収したPP樹脂、PS樹脂に対しCeFを複合化して物性を向上させることを最終ターゲットとする。なお、樹脂に複合化させるCeFの形態については、繊維径1~10 μ m程度の繊維状のものや、粒子径1~40 μ m程度の粉末状のもの

を検証しているが、総じてセルロースファイバー：CeF と称することにする。

2.1.2. アプローチ

本開発・検証においては、廃家電由来の汎用樹脂活用拡大とそのための物性維持・向上に向けて、下記の検証を実施した。

2.1.2.1. PP樹脂へのCeF複合化

廃家電由来 PP樹脂については、バイオ資源であるCeFを複合化し再生資源として活用することにより化石資源由来樹脂の新規使用の削減とCeF複合化PP樹脂(CeF+PP樹脂)の物性維持向上を目的として、CeFとPP樹脂の混練・複合化プロセスについて試作検証を実施した。

冷蔵庫、洗濯機に使用されるバージンPP樹脂と廃家電由来PP樹脂へのCeF複合化適用検証評価、複合化工程の条件は下記の通りである。

- ・ CeF含有濃度：0、1～20%
- ・ 混練機(試作機)：2軸混練押出
- ・ 混練機(量産機)：2軸混練押出
- ・ ベース樹脂：バージンPP樹脂3種
廃家電由来PP樹脂2種(冷蔵庫由来：RF、洗濯機由来：WM)
- ・ 相溶化・分散剤：1種(PP-MAH(無水マレイン酸変性PP))
- ・ CeF：現行のものを含む6種

2.1.2.2. PS樹脂へのCeFの高濃度複合化

廃家電由来PS樹脂については、PS樹脂よりも比較的高価なABS樹脂への代替を目指して、物性の向上を図るための処方・工法・工程の開発検証を実施した。

最初に、ベースのPS樹脂中へのCeFの分散性・相溶化性を検証した。下記条件により、PS樹脂への高濃度(55%)含有のCeF複合化マスターバッチを製した。

共通実験条件¹⁾

- ・ PS樹脂：PS H9152
- ・ CeF：針葉樹由来パルプの解砕品(現行品)
- ・ 混練機：オープンロール型混練機

- ・添加剤：PP-MAH(無水マレイン酸変性 PP)

PS 樹脂への相溶化剤、分散剤としては下記 3 種を検証した。

- ① 水素添加スチレン系熱可塑性エラストマー(SEBS)
- ② 水素添加スチレン系熱可塑性エラストマー(SBBS)
- ③ フィラー分散剤(低分子量ポリスチレン)

ベース PS 樹脂への添加剤及び①または②の配合率(A)は、100:5:10 とし、ベース樹脂への添加剤及び③の配合率(B)は、100:5:20 とした。これらの配合物に対し、(A)または(B):CeF が 45:55%となるように CeF 複合化 PS 樹脂のマスターバッチを作製した。

その後、射出成形用として、バージン PS 樹脂とドライブレンドにより CeF 含有濃度 15%、30%、45%の投入材料を作製し各種物性等のための試験片を作製した。

作製試験片は下記の通りである。

- ・機械物性等試験片：JIS K7139 タイプ A1 多目的試験片(t=4mm)
- ・面衝撃試験片 : 100×100×2mmt プレート

今回の機械物性、物理物性、熱特性等の特性評価として下記の物性値を測定した。

- ・引張降伏応力(引張強さ),引張降伏ひずみ、引張破壊応力,引張破壊ひずみ
- ・曲げ強さ、曲げ弾性率
- ・シャルピー衝撃強さ
- ・MFR(メルトフローレート)
- ・荷重たわみ温度(熱変形温度)
- ・ビカット軟化温度
- ・面衝撃強度

これら機械物性、物理的物性、衝撃特性を試験測定し、上記の CeF 含有濃度 3 水準と添加剤 3 種の違いによる特性を評価した。物理的特性としての MFR(メルトフローレート)は、流れ性、成形性の判断基準として評価されるが、樹脂の分子鎖切断で分子量低下を生じ流れ性が増加することから、樹脂分子の劣化度合としても評価の対象と考えられる。

表 2-1 から表 2-7 に、各試験条件、測定条件を示す。

表 2-1 引張試験項目および条件

試験方法	JIS K 7161-2 (ISO 527-2)準拠
測定項目	引張強さ、引張伸び
試験片形状	JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片(L=175)
試験条件	試験速度 ; 20mm/min(強さ・伸び)※ ※自動伸び計 AUTO-X 使用 チャック間距離 ; 115mm 標線間距離 ; 75mm 測定数 ; n=5
試験環境	(23±2)℃、 (50±5)%RH
測定装置	万能材料試験機 5966 型(インストロン社製)
測定機関	(株)DJK

表 2-2 曲げ試験項目および条件

試験方法	JIS K 7171 (ISO 178)準拠、3点曲げ試験
測定項目	曲げ強さ、曲げ弾性率
試験片形状	JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片(L=175)
試験条件	試験速度 ; 2mm/min 支点間距離 ; 64mm 圧子及び支持台半径 : 5mm 測定数 ; n=5
試験環境	(23±2)℃、 (50±5)%RH
測定装置	万能材料試験機 5966 型(インストロン社製)
測定機関	(株)DJK

表 2-3 シャルピー衝撃試験項目および条件

試験方法	JIS K 7111-1(ISO 179-1) 準拠
測定項目	シャルピー衝撃強さ(ノッチ付)
試験片形状	JIS K 7111-1(ISO 179-1)/1eA(エッジワイズ) ※多目的試験片平行部から試験片(ノッチングツールによるノッチ付)を作製
試験条件	持ち上げ角度 ; 150 度 公称振り子エネルギー ; 0.5J 測定数 ; n=5
試験環境	(23±2)°C、 (50±5)%RH
測定装置	デジタル衝撃試験機 DG-UB 型((株)東洋精機製作所製)
測定機関	(株)DJK

表 2-4 荷重たわみ温度測定条件

試験方法	JIS K 7191-2 (ISO 75-2) 準拠
試験片寸法	80×10×t4 (mm)
試験条件	試験片方向 ; フラットワイズ 曲げ応力 : 1.80MPa 支点間距離 : 64mm 昇温速度 : 120°C/h 規定たわみ : 0.34mm 熱媒体 : シリコーンオイル 測定数 : n=2
測定装置	HDT テスター 3M-2V ((株)東洋精機製作所製)
測定機関	(株)DJK

表 2-5 ビカット軟化温度測定条件

試験方法	JIS K 7206 (ISO 306) 準拠
試験片寸法	多目的試験片掴み部 t4mm
試験条件	B50 法(試験荷重 50N, 昇温速度 50°C/h) 試験開始温度 : 30°C 規定侵入深さ : 1mm 測定数 : n=2
測定装置	HDT テスター 3M-2V ((株)東洋精機製作所製)
測定機関	(株)DJK

表 2-6 MFR 測定条件

試験方法	JIS K 7210-1(ISO 1133-1) 準拠 A 法
乾燥	80°C×12h
試験条件	予熱時間 ; 5分 試験温度 ; 200°C 荷重 ; 5kg 測定数 ; n=3
測定装置	メルトインデクサー F-F01 ((株)東洋精機製作所製)
測定機関	(株)DJK

表 2-7 パンクチャー衝撃試験項目および条件

試験方法	JIS K 7211-2 準拠
測定項目	パンクチャーエネルギー、衝撃力
試験片寸法	100×100×t2 (mm)
試験条件	支持台内径 : 40mm ストライカ直径 : 20mm 衝撃速度 : 1.4 m/s 試験温度 : 常温 測定数 : n=5
測定装置	高速衝撃試験機 島津 HYDRO SHOT HITS-P10((株)島津製作所製)

2.1.2.3. エアコンに使用されるバージン PS 樹脂と廃家電由来 PS 樹脂への CeF 複合化適用検証評価

PS 樹脂に対しては、CeF の複合化の処方・工法や相溶化・分散剤が未だ確立されていない。2.1.2.2 の未使用(バージン)PS 樹脂に対して CeF を複合化するための処方・工法についての試作実験と併せて、廃家電エアコンの手解体 PS 樹脂に対して CeF を複合化する処方・工法検証を実施し、その物性を検証した。また、CeF の配合比率(含有濃度)に対しても物性の保持度合いとの相関性を検証した。

- ・ 混練機(試作機) : 2 軸混練押出
- ・ 混練機(量産機) : 2 軸混練押出
- ・ ベース樹脂 : バージン PS 樹脂、廃家電由来エアコンの手解体 PS 樹脂
- ・ 添加剤 : PP-MAH(無水マレイン酸変性 PP)
- ・ CeF : 現行のものを含む 6 種
- ・ CeF 含有濃度 : 0, 1~20%
- ・ 相溶化剤・分散剤 : SEBS、他 3 種

相溶化剤・分散剤については 2.1.2.2 のものを含め 5 種について検討した。

CeF の濃度、添加剤添加率、相溶化剤・分散剤添加率をパラメータとして 49 水準での試作を実施した。JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片を作製し、2.1.2.2 と同様に、各種物性試験を実施した。

2.1.2.4. 技術調査

樹脂と CNF との複合化に関する課題と課題解決の取組みについて、文献調査およびセミナー・展示会等にての専門家へのヒアリングを実施し、現状を把握した。また、PP、PS と CNF との複合化の実施事例の有無についても確認を行った。

2.1.2.5. 使用設備

1) 粉砕機

外観を図 2-1 に示す。

メーカー：(株)ホーライ、品番：P-1314

再生材の加工前はフレーク形状であるため、押出機に供給可能なサイズに粉砕する必要がある。混練押出機の事前に小さく粉砕することで安定した再生材の供給ができる。

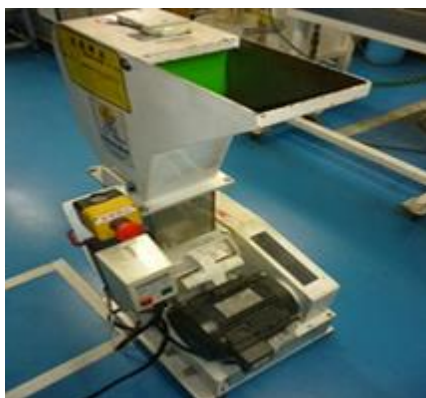


図 2-1 粉砕機

2) 混練押出機(試作用・量産用)

試作用の外観を図 2-2 に示す。

メーカー：(株)テクノベル、品番：KZW15TW-45

少量多種の加工に効率が良く、混練性能の高い 2 軸押出機を使用した。



図 2-2 試作 2 軸混練押出機

量産用 2 軸混練押出機の外観を図 2-3 に示す。

メーカー：東芝機械、品番:TEM-58SSG

量産用 2 軸混練押出機を使用して、量産複合条件の確認を行う。



図 2-3 量産 2 軸混練押出機

3) 成形機(試験片ダンベル成形用)

射出成型機の外観を図 2-4 に示す。

メーカー：東洋機械金属(株)、品番 : SI-50V

金型は ISO 金型タイプ A を使用して、多目的試験片を成形する。



図 2-4 射出成型機

4) 機械物性

表 2-8 の測定方法に従い評価した。

表 2-8 評価項目の測定方法

評価項目	測定方法	
MFR	JIS K 7210	
引張強さ	降伏応力	JIS K 7161
	破壊呼びひずみ	JIS K 7162
曲げ強さ	曲げ強さ	JIS K 7171
	弾性率	
シャルピー衝撃強さ(ノッチ付)	JIS K 7111	
荷重たわみ温度	JIS K 7191	
パンクチャー衝撃	JIS K 7211	

測定装置の外観を図 2-5 に示す。



図 2-5 物性測定装置

2.1.3. 取組結果

2.1.3.1. PP樹脂へのCeF複合化

1) CeFの選定1（小型試作用2軸混練押出機による評価）

表 2-9 に示す素材と表 2-10 に示す CeF の組合せを混練し、素材に適した CeF を機械物性で評価した。評価は、素材物性値に対する改善率を把握することとした。材料入手の関係から、最初に現在量産で使用している工業グレードの CeF-2 と各素材の混練パターンを確認後、入手できた食品添加グレード 2 品番と現在量産で使用している PP-2 との混練パターンを追加した。PP-1 は、冷蔵庫で使用されているバージン材料である。PP-2 及び PP-3 は、洗濯機で使用されているバージン材料である。

表 2-9 素材一覧

項目	メーカ (リサイクルプラント)	品番 (由来)	代表物性値					
			引張り 強さ	曲げ 強さ	曲げ 弾性率	シャルピー 衝撃値	荷重たわ み温度	MFR
PP-1	プライムポリマー	J6083	27.4MPa	38.6MPa	1471	5.8kJ/m ²	95℃	58g/10分
PP-2	日本ポリプロ	BC03C	33.7MPa	47.9MPa	1892	4.6kJ/m ²	110℃	29g/10分
PP-3	住友化学	AZ564	28.7MPa	37.8MPa	1399	7.2kJ/m ²	97℃	32g/10分
再生-1	パナソニック エコテクノロ ジーセンター	冷蔵庫	28.0MPa	39.0MPa	1525	6.2kJ/m ²	99℃	46g/10分
再生-2		洗濯機	27.7MPa	37.3MPa	1459	7.5kJ/m ²	94℃	20g/10分

表 2-10 CeF 一覧

セルロース	参考平均粒径[μm]	備考
CeF-1	37	食品添加グレード
CeF-2	35	工業グレード
CeF-3	24	食品添加グレード

評価結果をグラフに示す。

図 2-6 に見られるように素材違いによる引張強さの差はない。また、3 種の CeF 違いによる引張強さにも差はみられない。

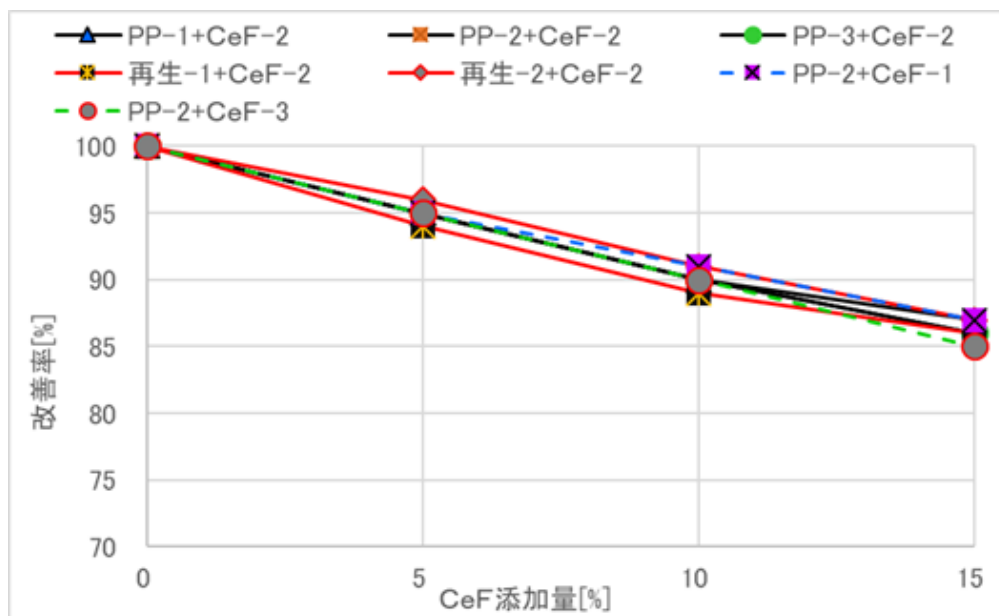


図 2-6 引張強さ

図 2-7 に見られるように曲げ強さについては、PP-3 の CeF10%、15%添加したパターンで少し改善が見られる。

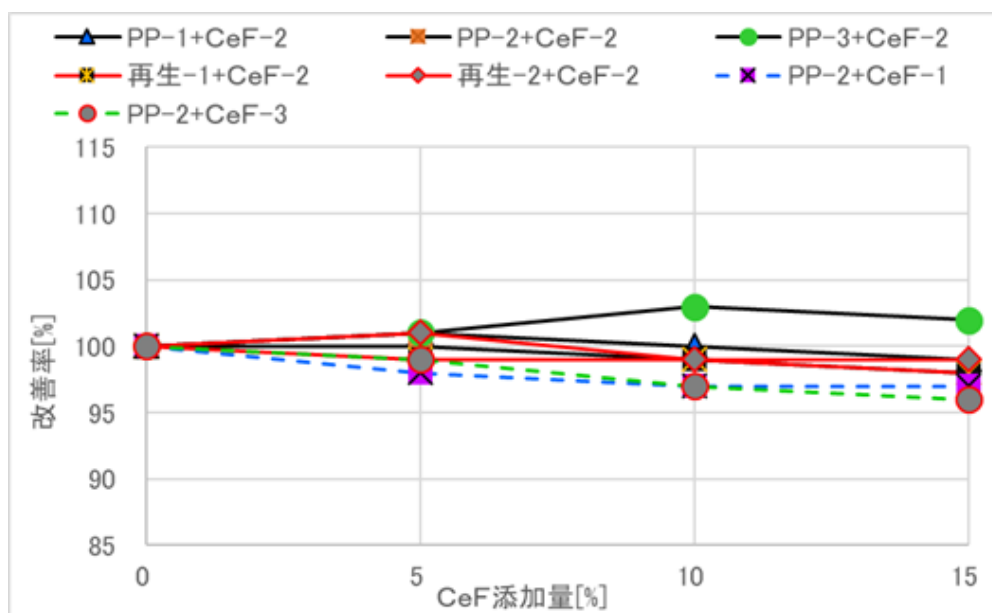


図 2-7 曲げ強さ

図 2-8 に見られるように曲げ弾性率も、PP-3 の CeF10%、15%添加したパターンで少し改善が見られるが、全パターンで素材に対して改善効果を確認した。

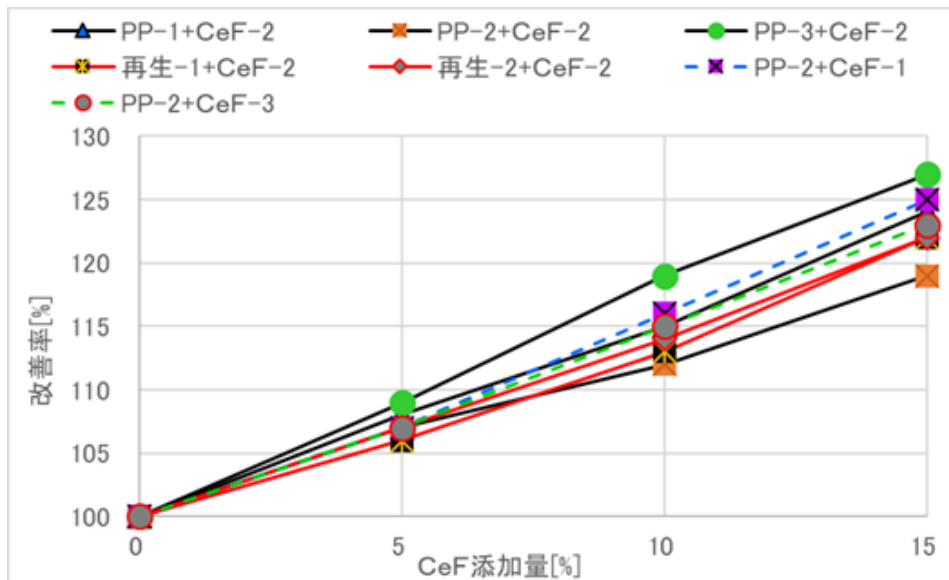


図 2-8 曲げ弾性率

図 2-9 に見られるようにシャルピー衝撃値は、素材に比べ全パターンで悪くなることを確認した。

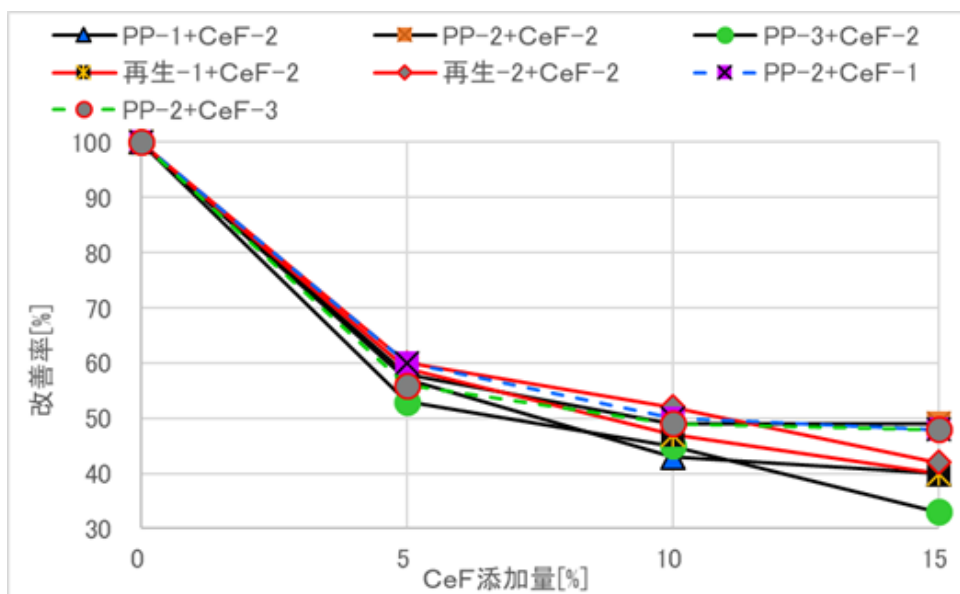


図 2-9 シャルピー衝撃値

図 2-10 に見られるように荷重たわみ温度は、全パターンで素材に対して改善効果を確認した。

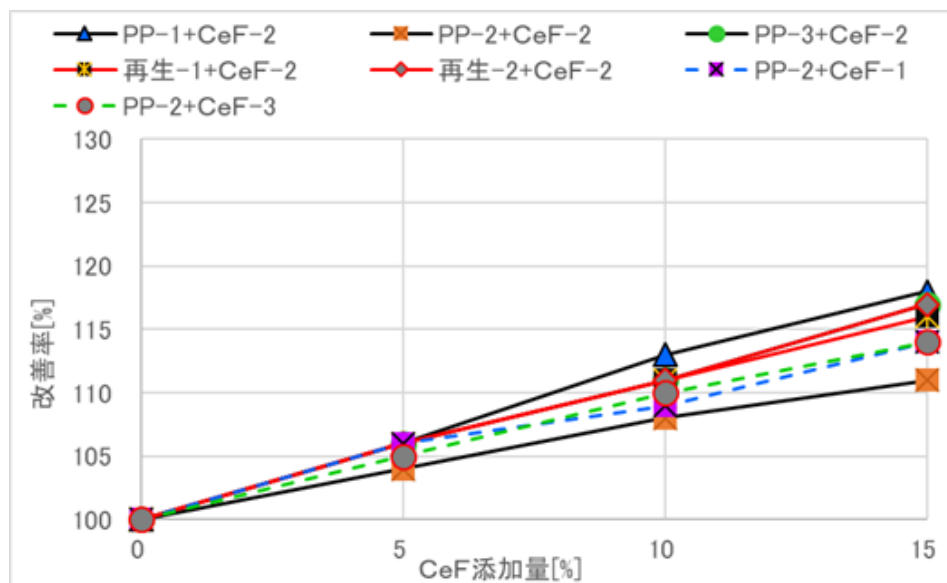


図 2-10 荷重たわみ温度

図 2-11 に見られるように MFR は、全パターンで素材に対して流動性が悪くなることを確認した。

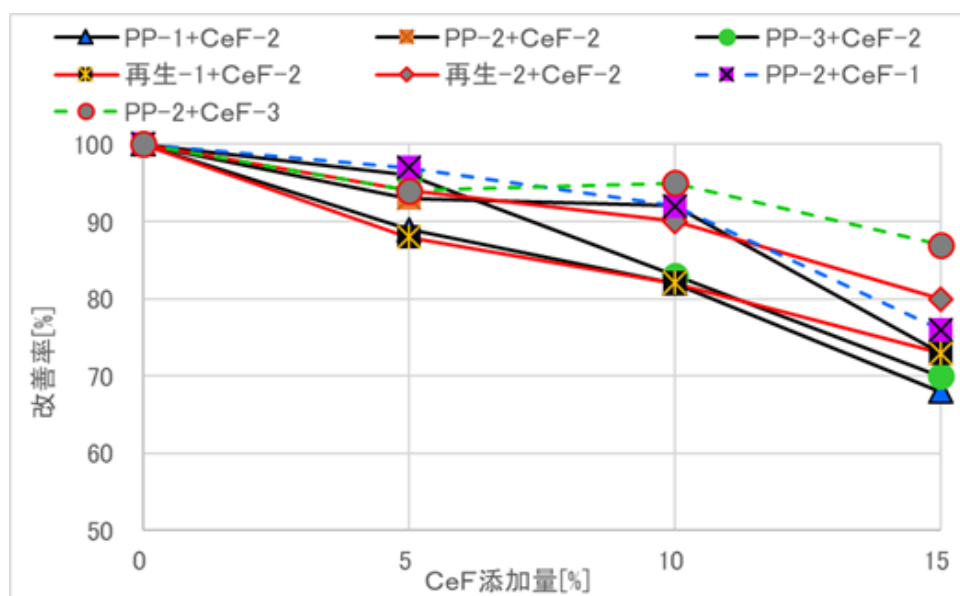


図 2-11 MFR

2) セルロースの選定2（量産2軸混練押出機による評価）

量産2軸混練押出機を使用して、表2-11に示す素材と表2-12に示すCeFの粒径違いによる機械物性への影響を把握した。

表 2-11 素材一覧

項目	メーカー (リサイクルプラント)	品番 (由来)	代表物性値					
			引張り 強さ	曲げ 強さ	曲げ 弾性率	シャルピー 衝撃値	荷重たわ み温度	MFR
PP-2	日本ポリプロ	BC03C	33.7MPa	47.9MPa	1892	4.6kJ/m ²	110℃	29g/10分
再生-1	パナソニック エコテクノロ ジーセンター	冷蔵庫	28.0MPa	39.0MPa	1525	6.2kJ/m ²	99℃	46g/10分
再生-2		洗濯機	27.7MPa	37.3MPa	1459	7.5kJ/m ²	94℃	20g/10分

表 2-12 CeF 一覧

セルロース	参考平均粒径[μ m]	備考
CeF-1	37	食品添加グレード
CeF-3	24	食品添加グレード
CeF-4	32	食品添加グレード
CeF-5	28	食品添加グレード

図 2-12 に見られるように引張強さは、粒径を大きくすることによる改善率のアップを確認した。

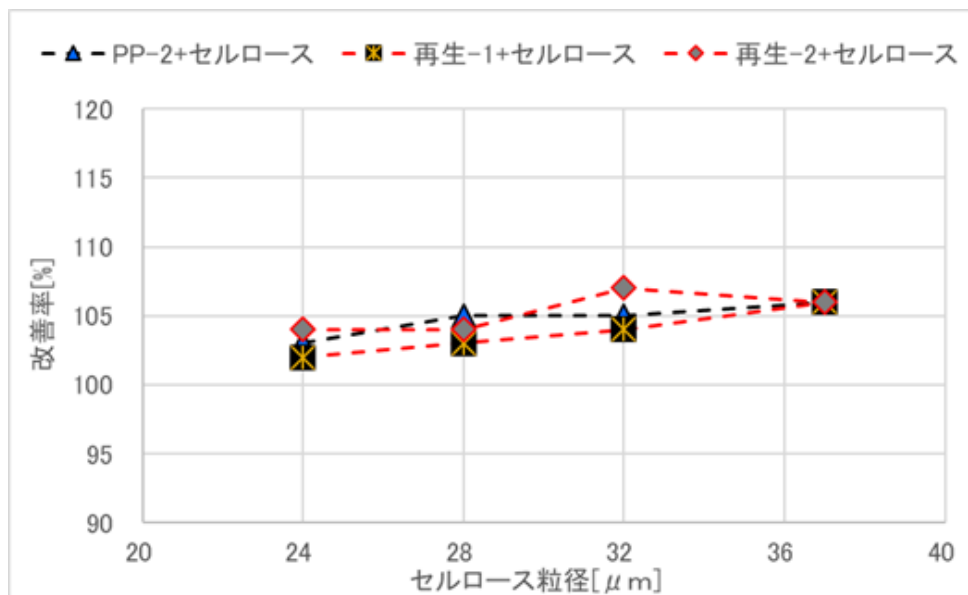


図 2-12 引張強さ

図 2-13 に見られるように曲げ強さも、粒径が大きくなることによる改善率のアップを確認した。但し、再生-1+セルロース 37 μm では改善がみられない結果であった。

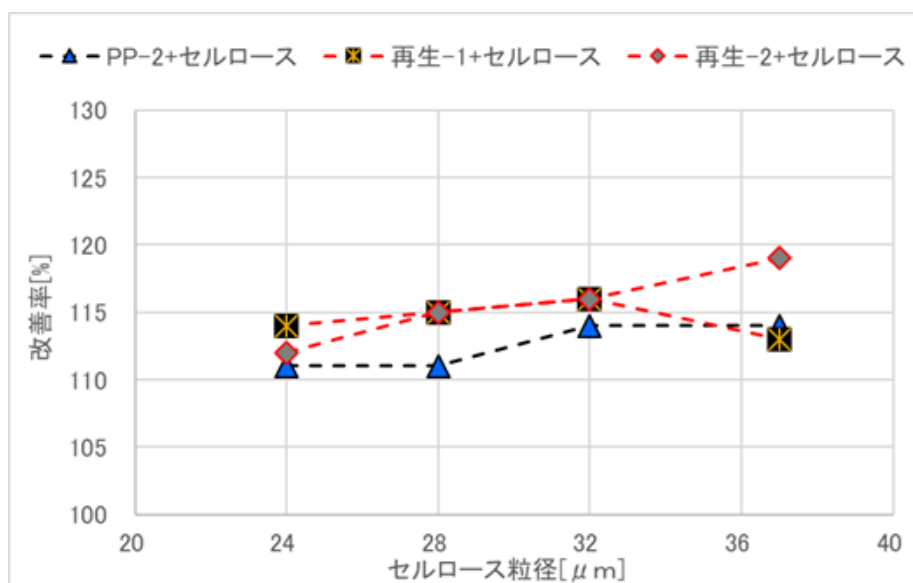


図 2-13 曲げ強さ

図 2-14 に見られるように曲げ弾性率も粒径が大きくなることによる改善率のアップを確認した。但し、再生-1 については、+セルローズ 24 μm で改善がみられる結果であった。

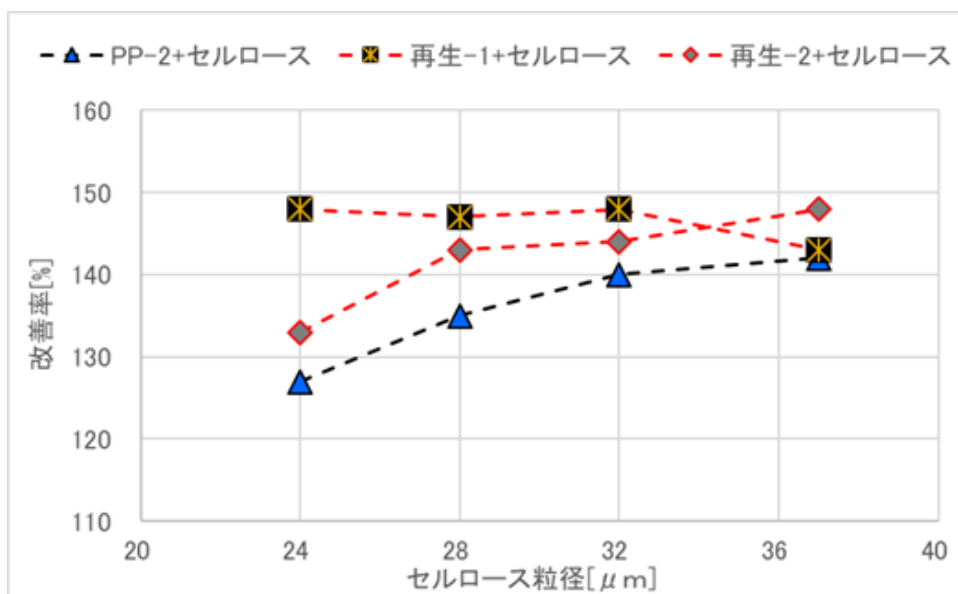


図 2-14 曲げ弾性率

図 2-15 に見られるようにシャルピー衝撃値は、粒径による影響がないことを確認した。

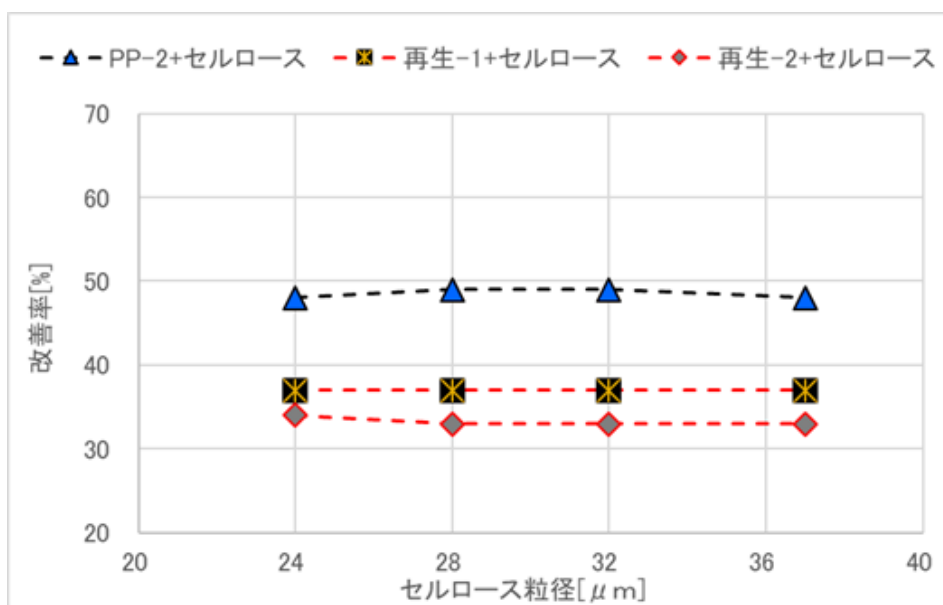


図 2-15 シャルピー衝撃値

図 2-16 に見られるように荷重たわみ温度も粒径を大きくすることによる改善率のアップを確認した。

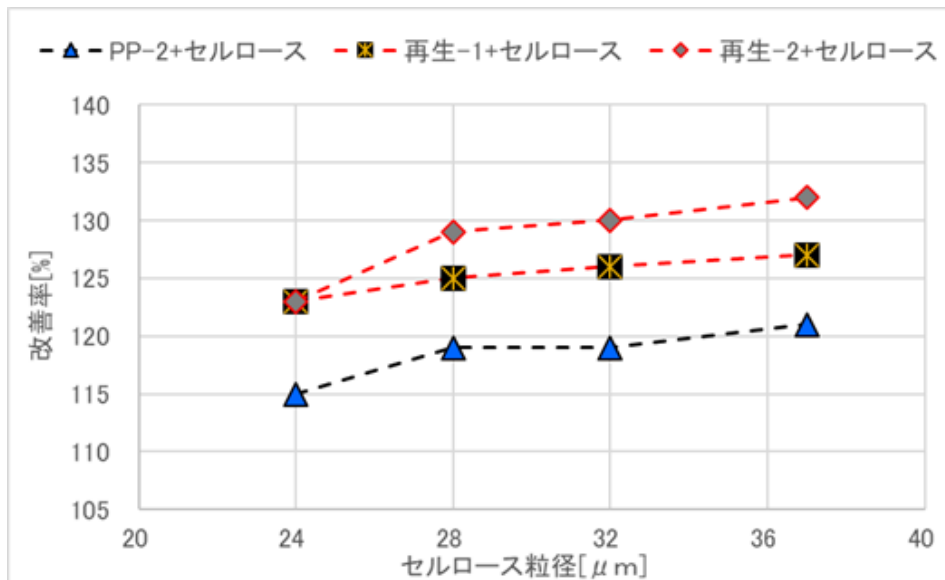


図 2-16 荷重たわみ温度

図 2-17 に見られるように MFR は、粒径を大きくすることで流動性が悪くなることを確認した。

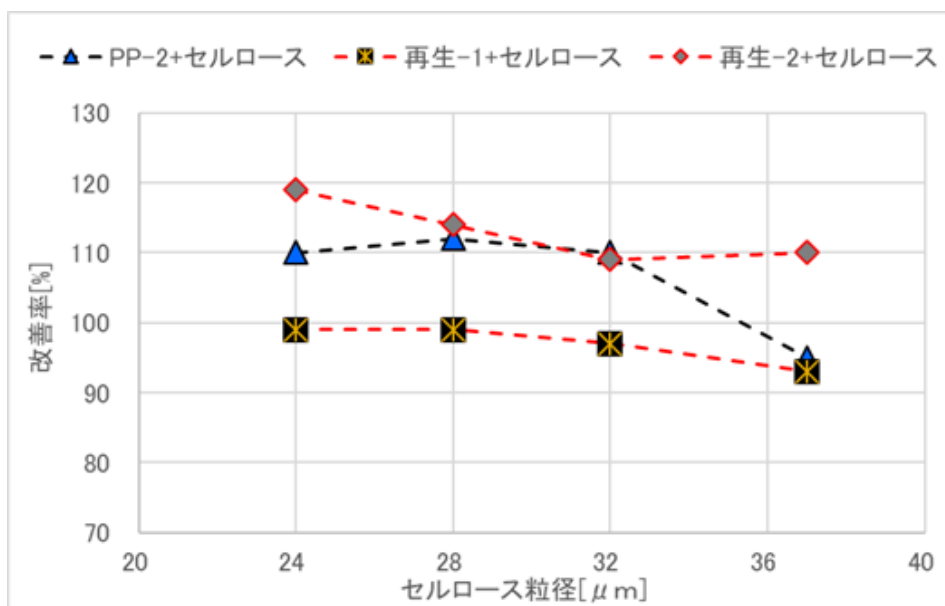


図 2-17 MFR

3) 分散剤の影響確認 (小型試作用2軸混練押出機による評価)

表 2-9 に示す素材と表 2-10 に示すセルローズに分散剤を添加し影響を確認した。

図 2-18 に示すように引張強さは、図 2-6 に比べ改善を確認した。

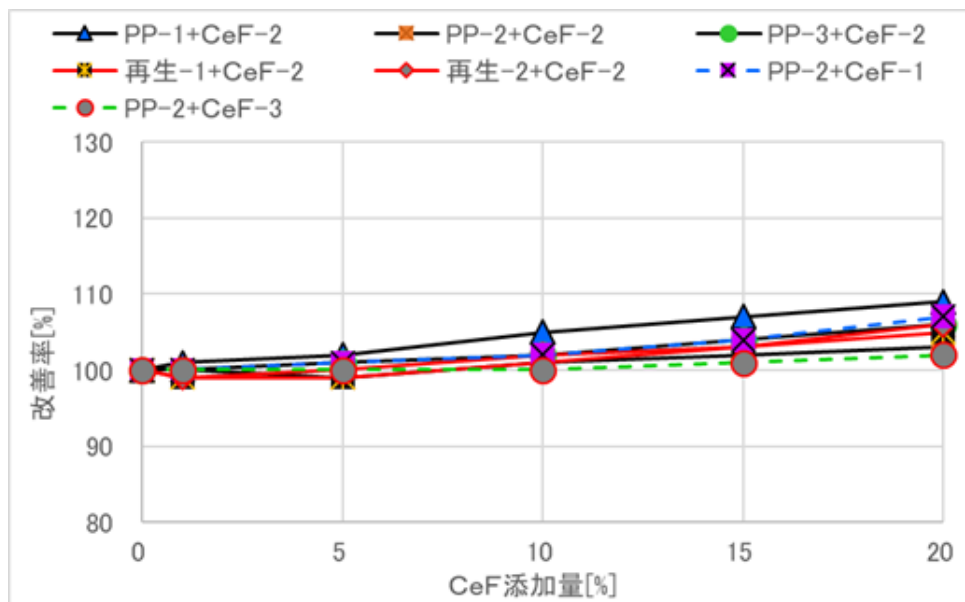


図 2-18 引張強さ

図 2-19 に示すように曲げ強さも、図 2-7 に比べ改善を確認した。

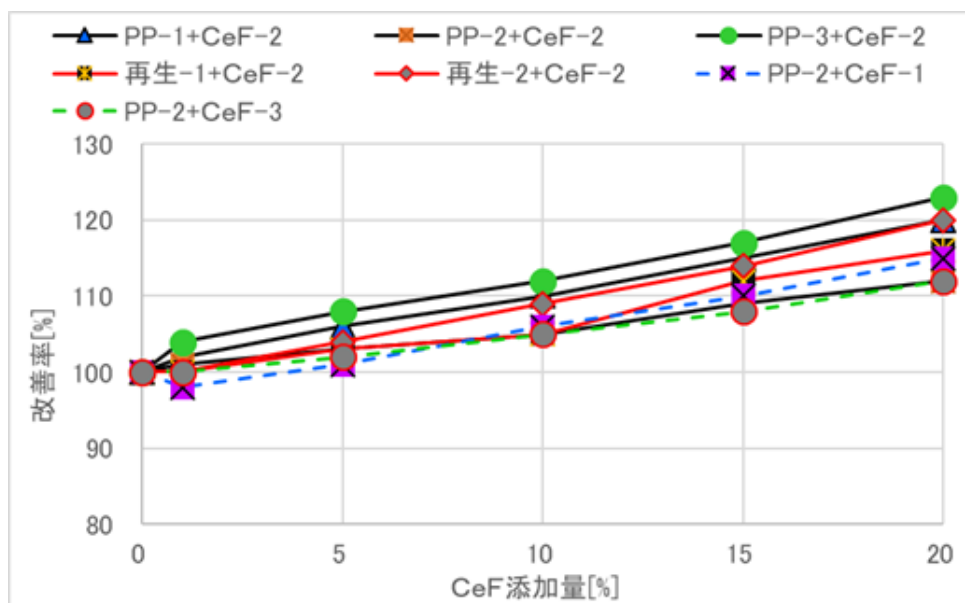


図 2-19 曲げ強さ

図 2-20 に示すように曲げ弾性率も、図 2-8 に比べ改善を確認した。

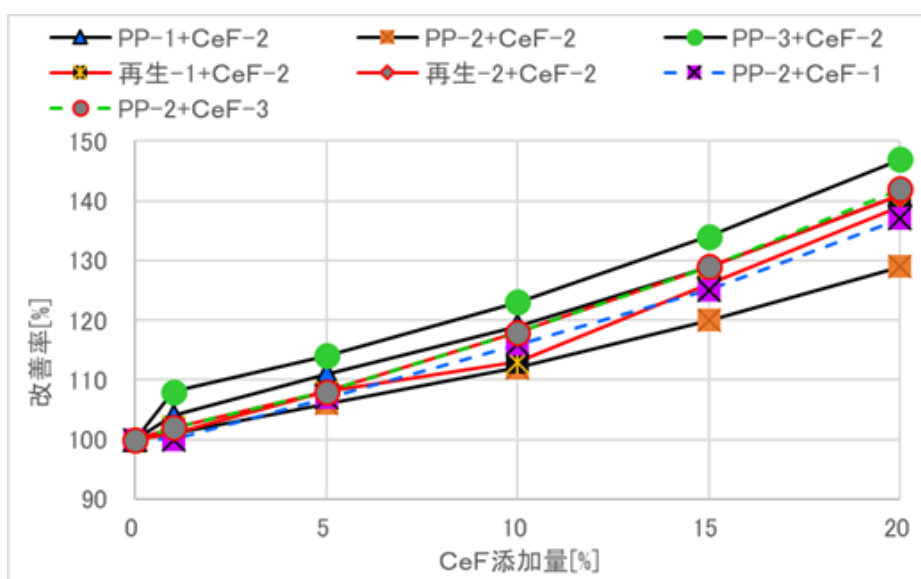


図 2-20 曲げ弾性率

図 2-21 に示すようにシャルピー衝撃値は、図 2-9 と差がないことを確認した。

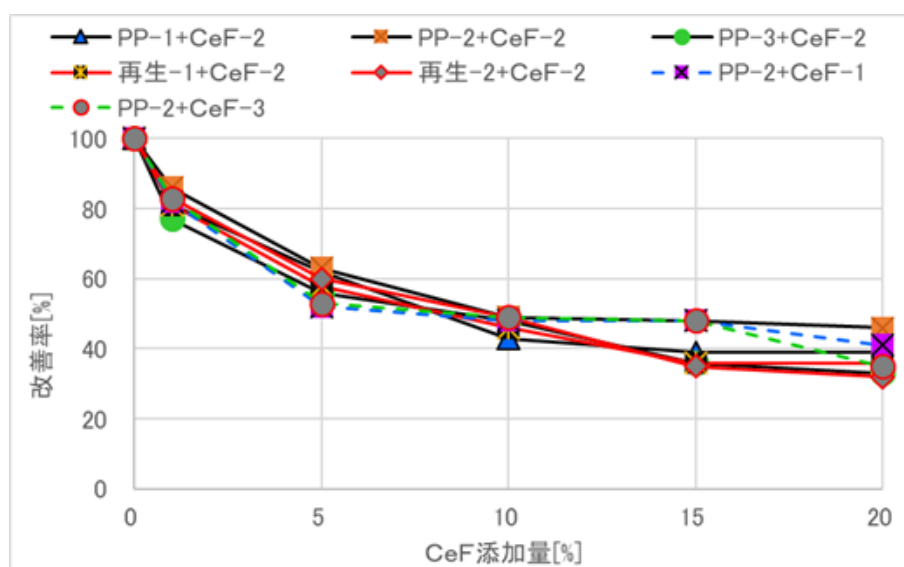


図 2-21 シャルピー衝撃値

図 2-22 に示すように荷重たわみ温度は、図 2-10 に比べ改善を確認した。

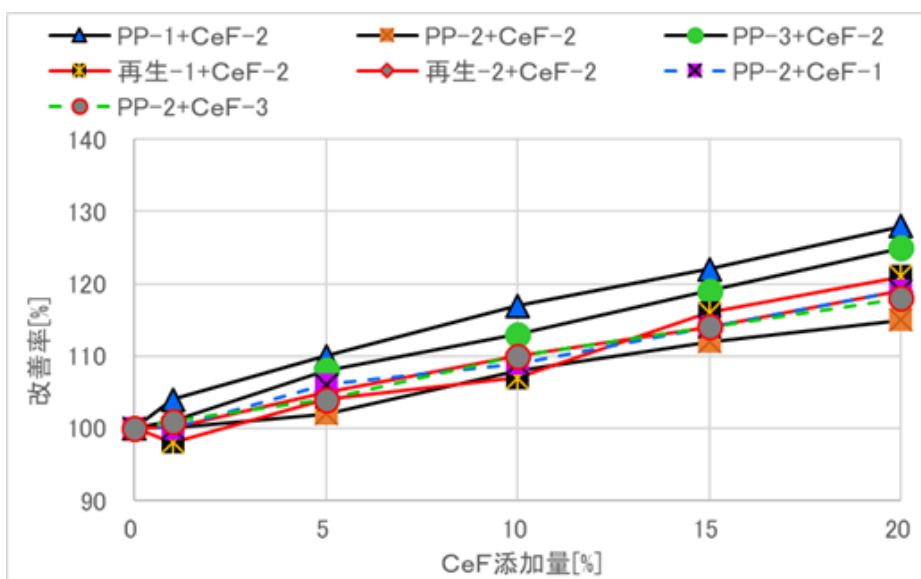


図 2-22 荷重たわみ温度

図 2-23 に示すように MFR も、図 2-11 に比べ改善を確認した

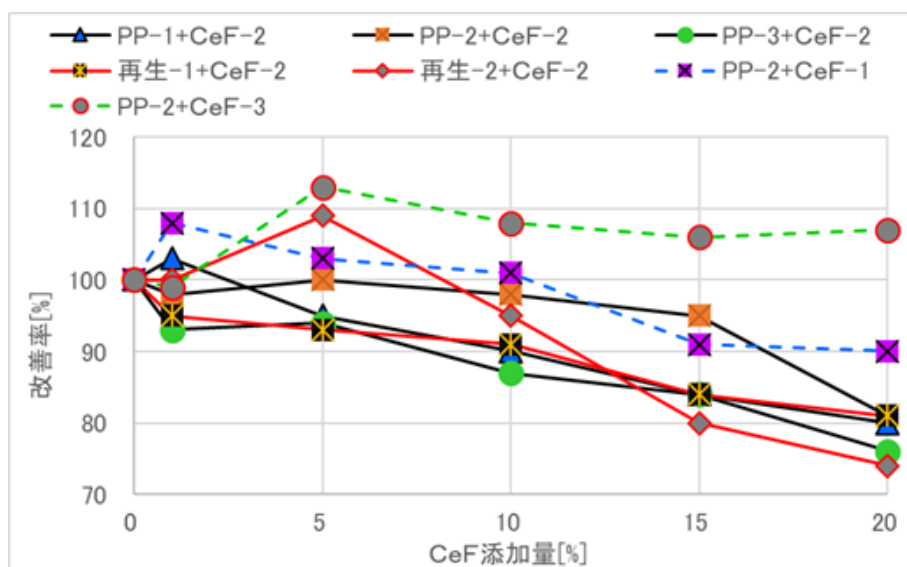


図 2-23 MFR

4) 量産混練条件の設定 (量産2軸混練押出機による評価)

表 2-13 に CeF の粒径違いによる混練条件を確認した結果を示す。

また、現状の CeF 供給装置で 13.5%添加の量産を行う場合は、CeF-3 のみが供給可能であった。

なお、CeF-3 以外(24 μ m 以外の粒径)を量産する場合、供給装置の改造が必要である。

表 2-13 混練条件の設定結果

項目	量産条件	CeF-1 (37 μ m)	CeF-2 (35 μ m)	CeF-3 (24 μ m)	CeF-4 (32 μ m)	CeF-5 (28 μ m)
CeF添加量	13.5%	×	×	○	×	×
モータ回転数	< a rpm	未確認	未確認	○	未確認	未確認
モータトルク	< b N·m	未確認	未確認	○	未確認	未確認
材料投入量	> c kg/h	×	×	○	×	×
樹脂温度	< d °C	未確認	未確認	○	未確認	未確認
ストランド状態	> e h	未確認	未確認	○	未確認	未確認

5) 量産複合条件の設定

素材については、量産 2 軸混練押出機を稼働させる為に必要な量確保が可能な PP-2 及び再生-1 を使用した。CeF は、CeF-3 を使用して、表 2-14 に示す混練条件で設定した。

表 2-14 混練条件

混練条件	PP-2	再生-1	CeF-3	エラストマ+相溶化・分散剤
条件-1	82.0%	—	9.0%	9.0%
条件-2	79.0%	—	10.5%	10.5%
条件-3	76.0%	—	12.0%	12.0%
条件-4	73.0%	—	13.5%	13.5%
条件-5	—	73.0%	13.5%	13.5%

図 2-24 に確認結果を示す。素材 PP-2(BC03C)と再生-1(冷蔵庫由来)で現セルロス供給限界 13.5%までの量産が可能であることを確認した。

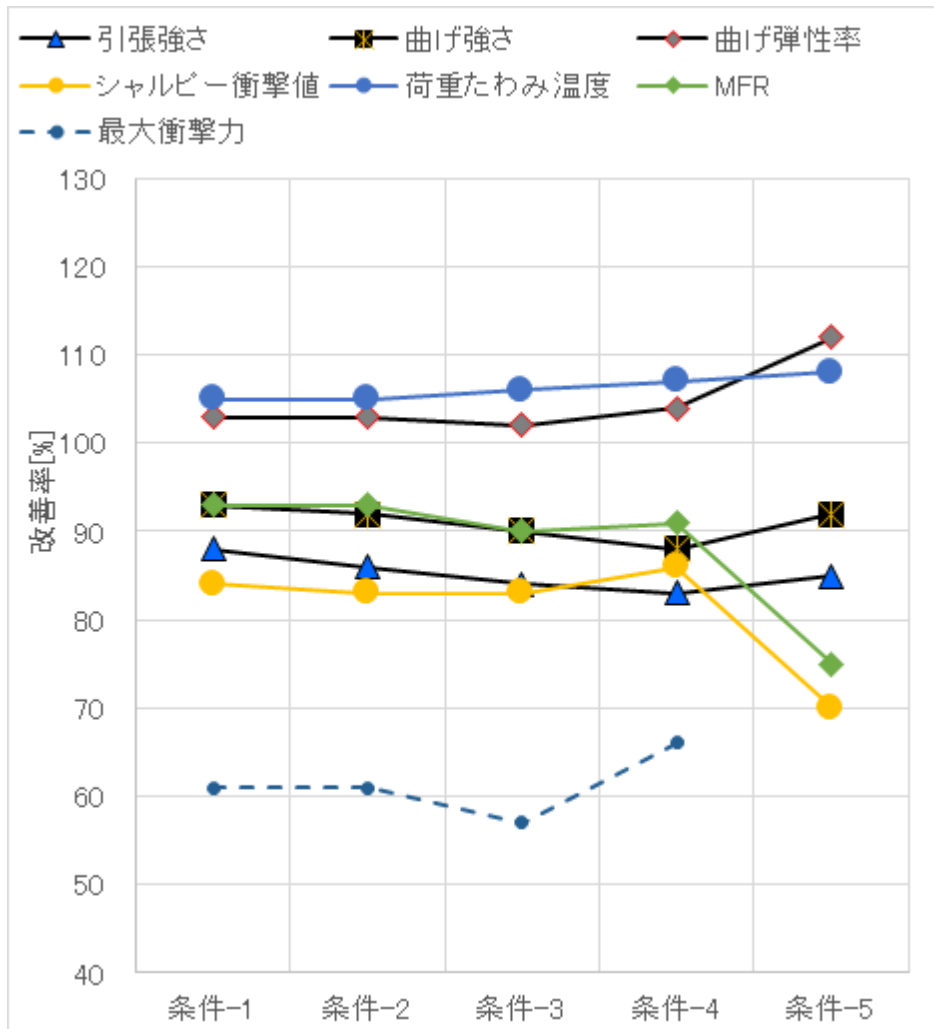


図 2-24 量産複合条件確認結果

6) 耐久確認

条件-4 の試験片ダンベルを 150℃恒温槽で加速確認した。

図 2-25 に確認結果を示す。一般家電で使用しても耐久的に問題ないことを確認した。

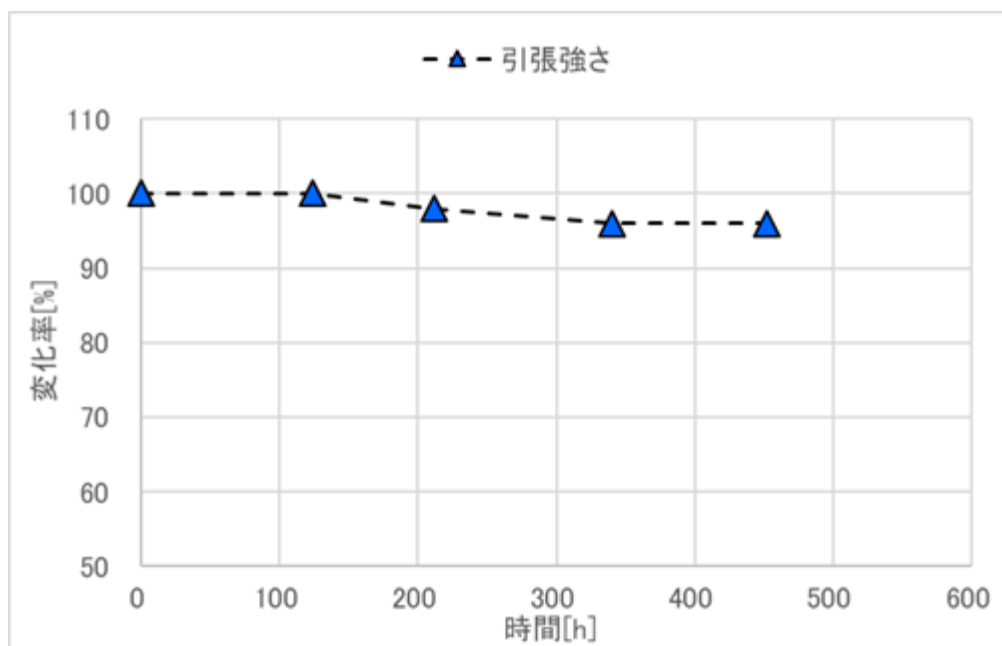


図 2-25 耐久結果

2.1.3.2. PS樹脂へのCeF複合化

(1) 高濃度CeF複合化PS樹脂の物性試験結果一覧

2.1.2.2項に記載した①～③の添加剤に対し、CeF含有濃度を15%,30%,45%にした機械物性、物理物性、熱特性等の特性評価の結果一覧を表2-15に示す。

ここで改めて、添加剤①～③は以下である。

- ① 水素添加スチレン系熱可塑性エラストマー(SEBS)
- ② 水素添加スチレン系熱可塑性エラストマー(SBBS)
- ③ フィラー分散剤(低分子量ポリスチレン)

表 2-15 物性試験結果一覧

測定項目	試験条件	単位	添加剤種とCNF含有率								
			①-15%	①-30%	①-45%	②-15%	②-30%	②-45%	③-15%	③-30%	③-45%
引張降伏応力	23℃	MPa	26.5	27.3	(28.9)※	26.6	27.2	(28.0)※	25	23.5	22.8
引張降伏ひずみ		%	1.4	1.4	(1.4)※	1.3	1.4	(1.3)※	1.2	1.1	0.85
引張破壊応力		MPa	24	26.8	28.9	23.9	26.7	28.0	20.8	20.5	21.6
引張破壊ひずみ		%	3.3	2.1	1.4	3.4	1.9	1.3	9.6	3.9	1.5
引張破壊呼びひずみ		%	2.8	1.9	1.4	2.8	1.7	1.3	7.4	3.2	1.3
曲げ強さ	23℃	MPa	51.6	53.3	55.7	50.9	52.5	51.2	47.8	45.7	43.1
曲げ弾性率		MPa	2450	3010	3530	2540	3010	3580	2810	3400	4270
シャルピー衝撃強さ	23℃	kJ/m ²	2.7	2.4	2.1	2.6	2.1	1.8	2.7	1.7	1.3
荷重たわみ温度	1.80 MPa	℃	75	77	79	74	76	78	75	75	78
ピカット軟化温度	50 N	℃	91	92	92	90	91	92	89	89	89
MFR	200℃×5.0 kg	g/10 min	5.67	4.43	3.07	6.31	4.76	3.01	12.7	11	8.08
パンクチャーエネルギー	23℃	J	1.14	1.00	0.86	0.98	0.96	0.84	0.86	0.74	0.62
パンクチャー最大衝撃力		N	401	367	350	356	353	326	333	303	271

(※:降伏点を示す前に破断)

(2) 機械的特性試験結果

力学特性である機械的特性試験の結果を、添加剤の種別と複合化 CeF 比率の違いによる比較を、縦軸に各試験物性値、横軸に CeF 含有濃度 [%] としてグラフ化した。

それぞれ、図 2-26 引張強さの添加剤及び CeF 濃度による変化

図 2-27 曲げ強度の添加剤及び CeF 濃度による変化

図 2-28 曲げ弾性率の添加剤及び CeF 濃度による変化

を示す。

引張強さ、曲げ強度に対しては、相溶化剤①②の方が、若干効果がある一方、いずれの添加剤でも CeF 濃度の影響は少ない。

また、曲げ弾性率に対しては、分散剤③の方が、若干効果がある一方、CeF 濃度が増加するに伴い、いずれの添加剤でも曲げ弾性率も増加している。

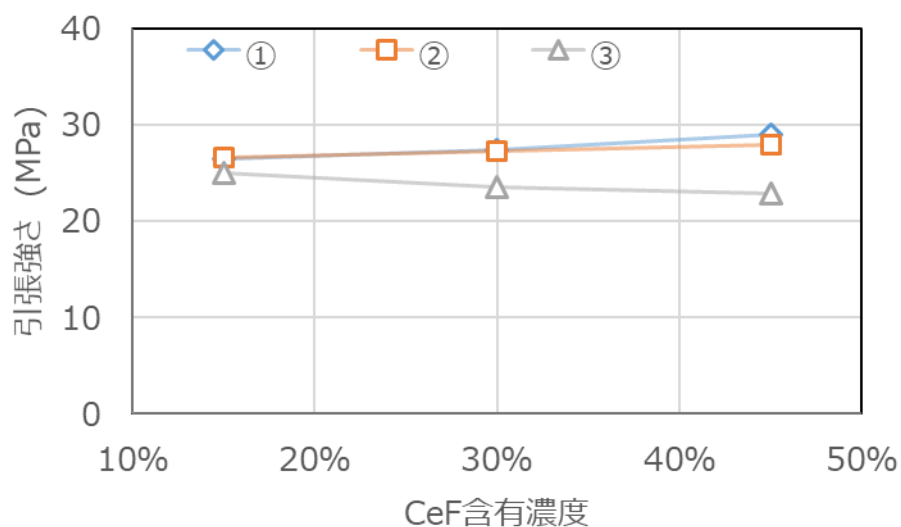


図 2-26 引張強さ(引張降伏)の変化

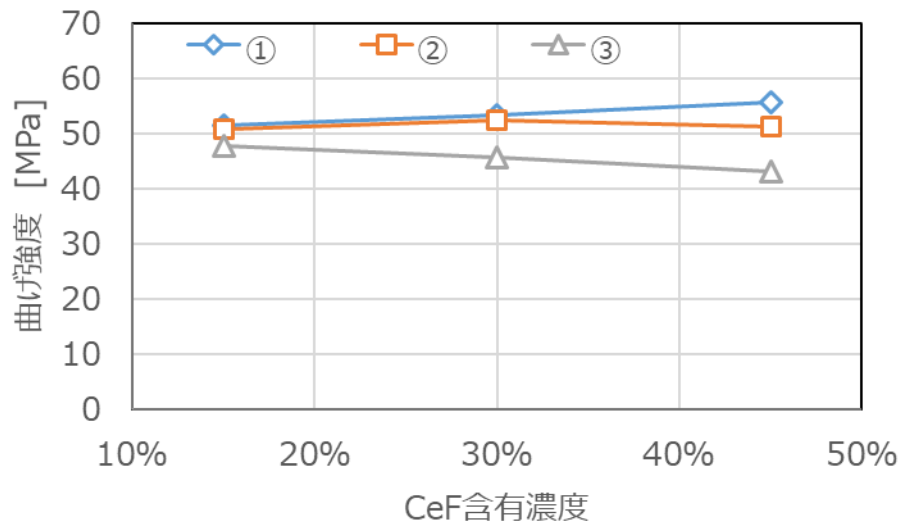


図 2-27 曲げ強度の変化

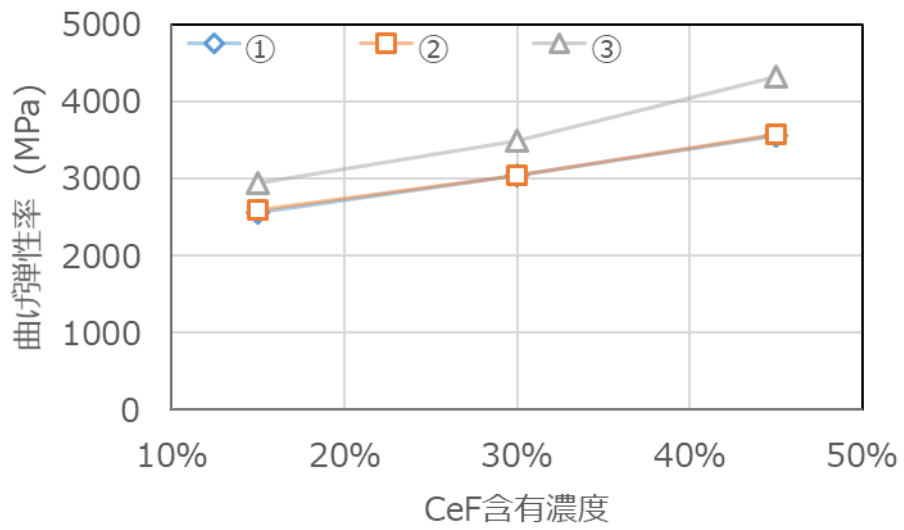


図 2-28 曲げ弾性率の変化

2.1.3.3. PS樹脂及び再生PS樹脂へのCeF複合化

廃家電エアコン室内機を手解体したPS樹脂に対して、2軸混練押出機(量産機)にて、CeFを5%及び15%複合化したペレットにより試験片を作製し、物性試験を実施した結果例について以下の図に示す。

横軸にCeF含有濃度を、縦軸にはCeFを複合化しないPS樹脂のみの物性値を100%としたときの物性値保持率としている。

図 2-29 に、CeF 含有濃度の違いによる引張強さの変化を示す。CeF の増加にも関わらず引張強さは数%減少している。相溶化剤・分散剤の最適化が必要と考えられる。

図 2-30 に、引張伸びの変化を示す。これは、ガラス繊維強化樹脂等と同様の傾向で、強化による引張伸びの減少となっている。

図 2-31 に、曲げ強さの変化を示す。引張強さの変化と同じ傾向であり、相溶化剤・分散剤の最適化が必要である。

図 2-32 に、曲げ弾性率の変化を示す。この結果より、相溶化剤・分散剤の最適化によらず、CeF 含有率の増加により弾性率も向上している。一方では、相溶化剤・分散剤の最適化により更に向上させることが可能と考えられる。

図 2-33 に、シャルピー衝撃強さの変化を示す。これは、引張伸びの変化と同様に、繊維強化樹脂の傾向に合致する。

図 2-34 に、荷重たわみ温度の変化を示す。荷重たわみ温度は CeF の含有濃度に対して微増しているがほぼ変化はなかった。

図 2-35 に、MFR の変化を示す。CeF の濃度増加により流動性が低下することが分かる。

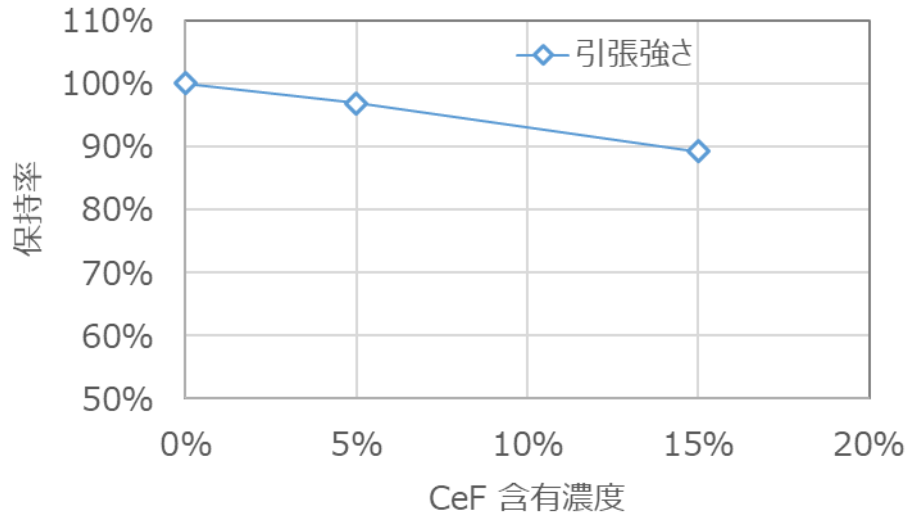


図 2-29 引張強さの変化

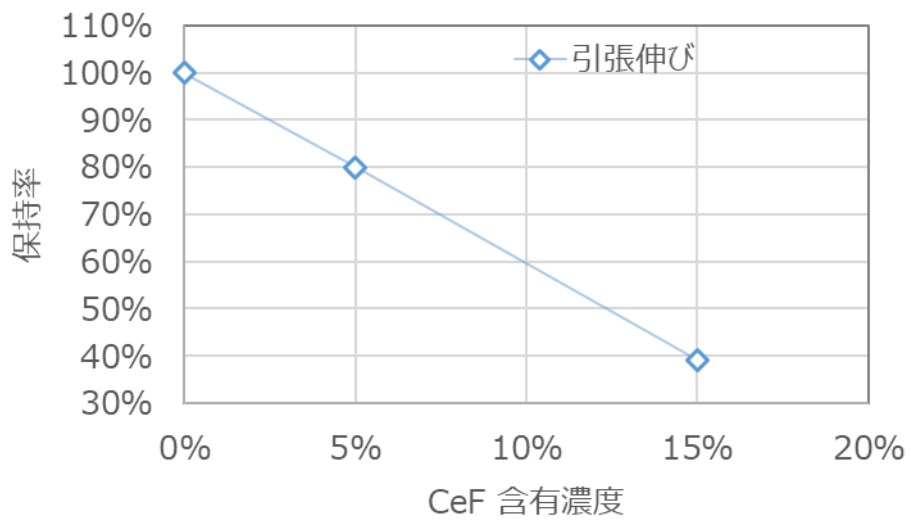


図 2-30 引張伸びの変化

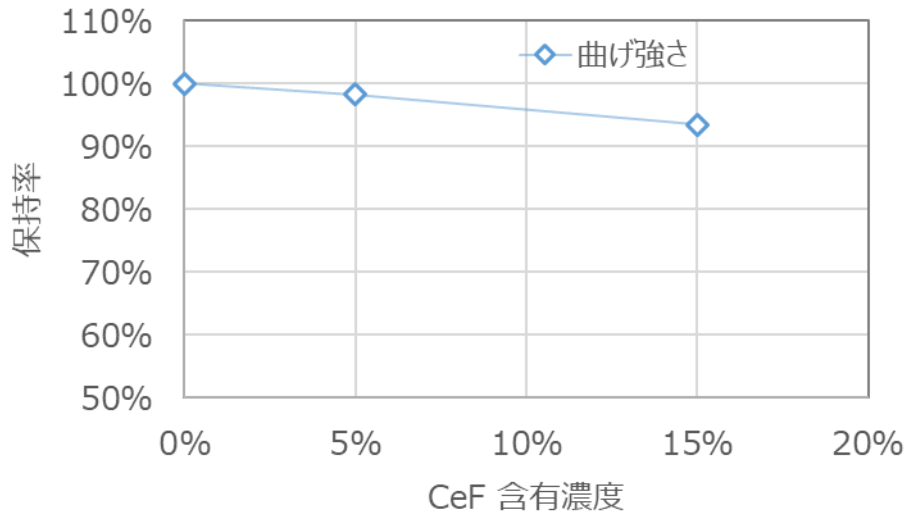


図 2-31 曲げ強さの変化

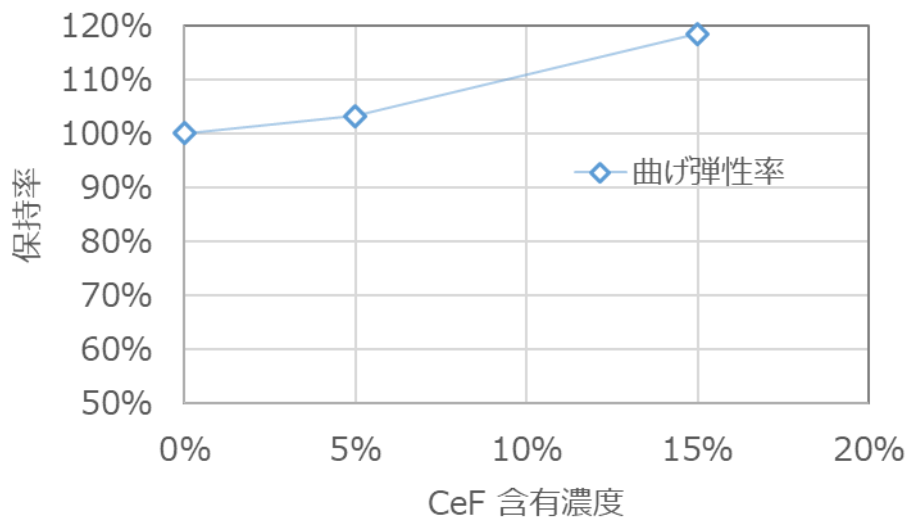


図 2-32 曲げ弾性率の変化

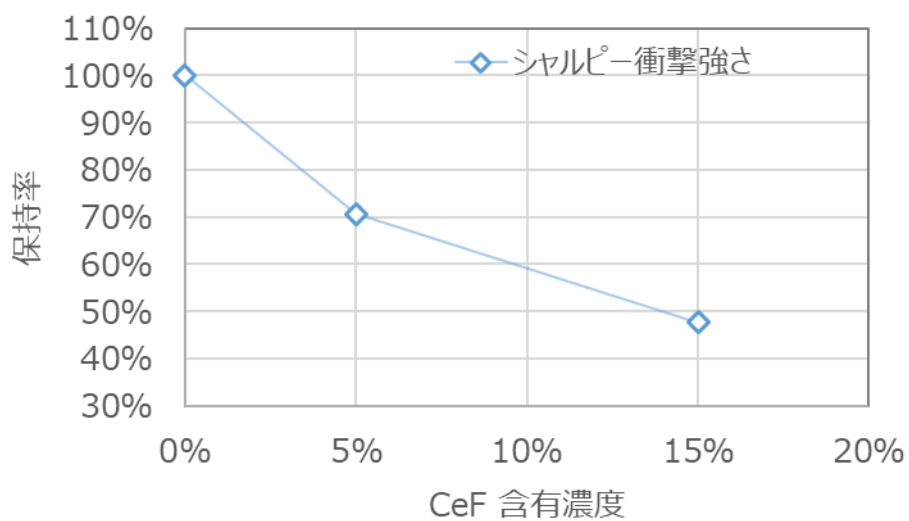


図 2-33 シャルピー衝撃強さの変化

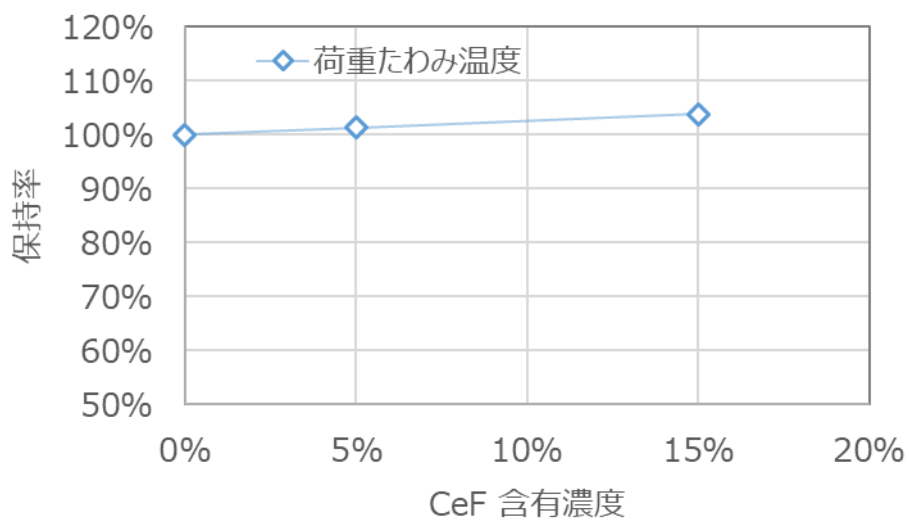


図 2-34 荷重たわみ温度の変化

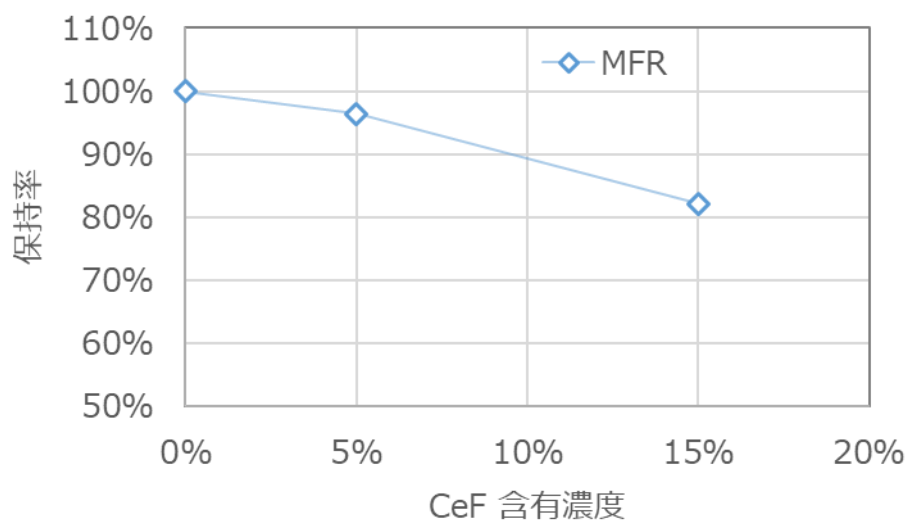


図 2-35 MFR の変化

次に、2.1.3.2 項の 15%以上の CeF 複合化率の物性測定結果と併せて、本稿の 15%以下の含有濃度での物性結果を整理した。複合化する樹脂がバージン材と廃家電材の違いと、相溶化剤・分散剤の違いはあるが、概ねの傾向を評価するために検証した。

ここで図 2-36～図 2-38 CeF 含有濃度ごとの各物性保持率の変化を示す。なお図中の添加剤④は①の低分子量版である。

図 2-36 と図 2-37 に、それぞれ CeF 含有濃度の違いによる引張強さと曲げ強さの保持率の変化を示す。2.1.3.2 でも述べたように、CeF の増加にも関わらず引張強さは数%減少しているため、相溶化剤・分散剤の最適化が必要である。曲げ強さに関しては、相溶化剤①②④・分散剤③の選定によりその増減の違いがあることがわかった。

図 2-38 に、曲げ弾性率の保持率の変化を示す。曲げ弾性率に関しては、CeF 濃度の増加により、増加しているが更なる増加を目指す相溶化剤・分散剤などの添加剤の処方が必要であると考ええる。

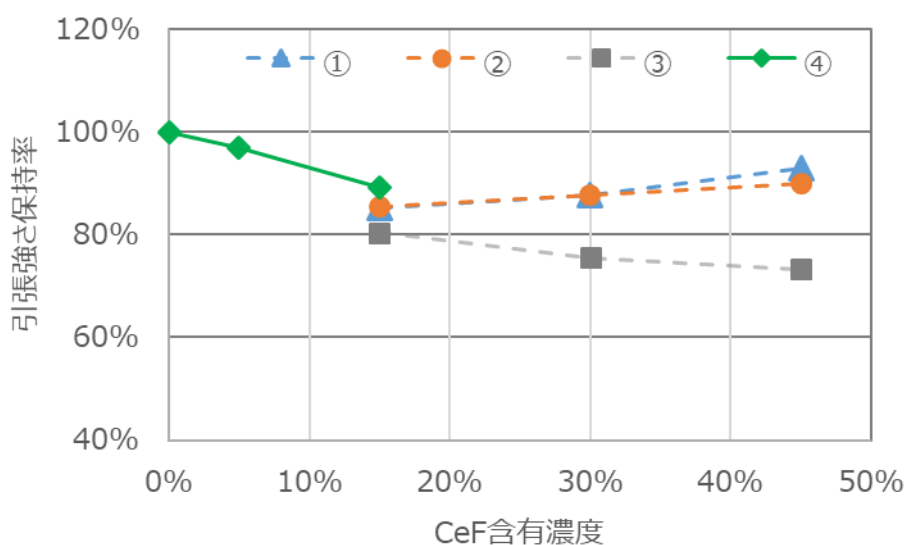


図 2-36 引張強さ保持率の変化

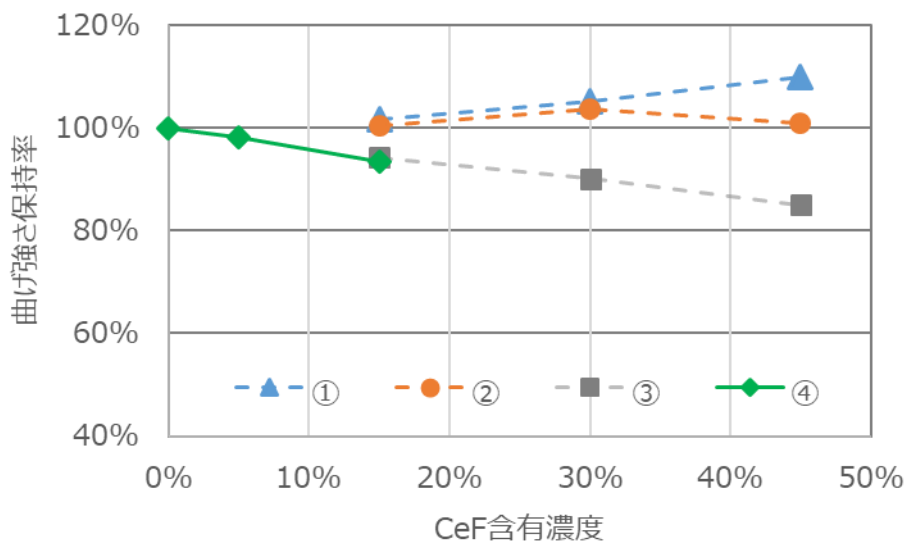


図 2-37 曲げ強さ保持率の変化

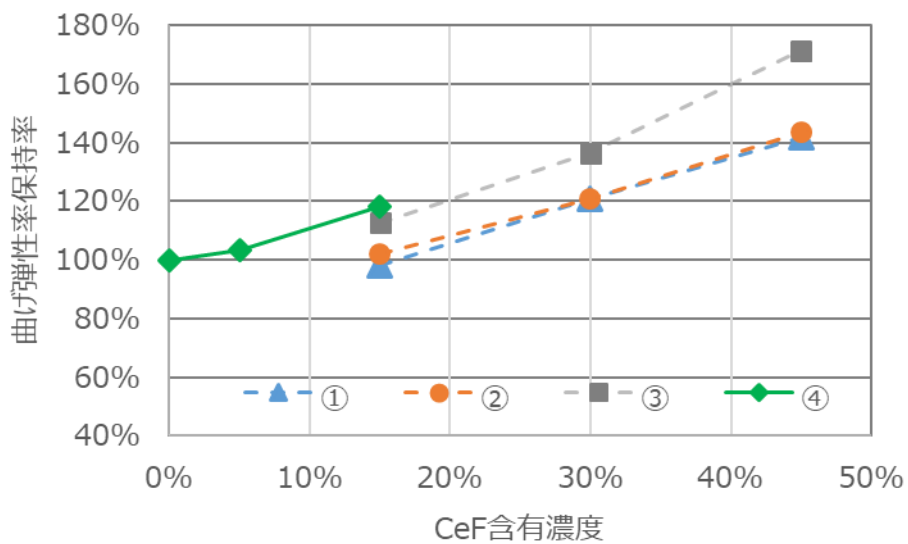


図 2-38 曲げ弾性率保持率の変化

2.1.3.4. 技術調査

1) 文献調査

CNFは優れた特徴を持つが、PP、PSのような熱可塑性樹脂との複合化に対して、

- ・セルロースの耐熱性
- ・(複合材料間の)相溶性

の2点が解決すべき重要課題となっている。この課題に対する(研究機関の)取組みについての調査結果は以下の通りである。

(i) セルロースの耐熱性

(課題)

セルロースの耐熱性が低いため 200℃を超えると熱劣化が始まる。その為、ほとんどの熱可塑性樹脂の加工温度は 200℃以上を必要とするため、熱可塑性樹脂への適用が難しい¹⁾。

(取組み)

京都市産業技術研究所の仙波らは、セルロースの水酸基(OH基)をアセチル基(COCH₃基)に化学変性し(図 2-39)、セルロース水酸基の置換度(DS:セルロース分子の繰り返し単位に含まれる3つの水酸基の置換度、最大 DS=3)を変化させ、CNF自体に耐熱性を持たす手法を開発し、改善を試みている³⁾。しかしながら、それ以外の耐熱性の改善については確認できなかった。

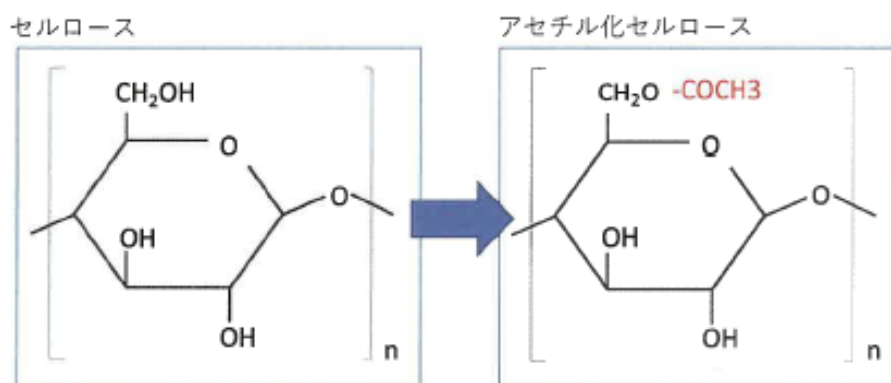


図 2-39 セルロース水酸基のアセチル化¹⁰⁾

(ii) 相溶性について

(課題)

セルロース(親水系)、樹脂(疎水系)の化学的特性由来からの相溶性の低さ(水と油の関係)より、単純に複合化するだけでは十分な性能がえられない³⁾。

(取組み)

相溶性を高める手法として、あらかじめ CNF のネットワークを固定化した後、樹脂を充填する手法、界面活性剤や相溶化剤の物理吸着を利用した手法、CNF の表面を化学修飾させる手法等が報告されている⁴⁾。詳細は以下の通りである。

CNF のネットワークを固定化した後、樹脂を重点する手法として、京都大学の矢野らは、ろ過により CNF シートを作製後、フェノール樹脂の含浸と熱圧性型により複合化する手法を報告している⁵⁾。

界面活性剤や相溶化剤の物理吸着を利用した手法では、セルロース繊維及び熱可塑性樹脂を含む混合物に、ポリオール、ヒマシ油水添物、リシノール酸誘導体などの界面活性剤を配合することで熱可塑性樹脂中にセルロース繊維を分散させることができると京都大学の榊原らが報告している⁴⁾。

CNF の表面を化学修飾させる手法については、京都市産業技術研究所の仙波らが、樹脂とセルロースの相溶性について、SP 値(solubility parameter : 大きいほど親水性が強い)に着目し、SP 値より相溶性の難易度レベルを理論化している(図 2-40 参照)。

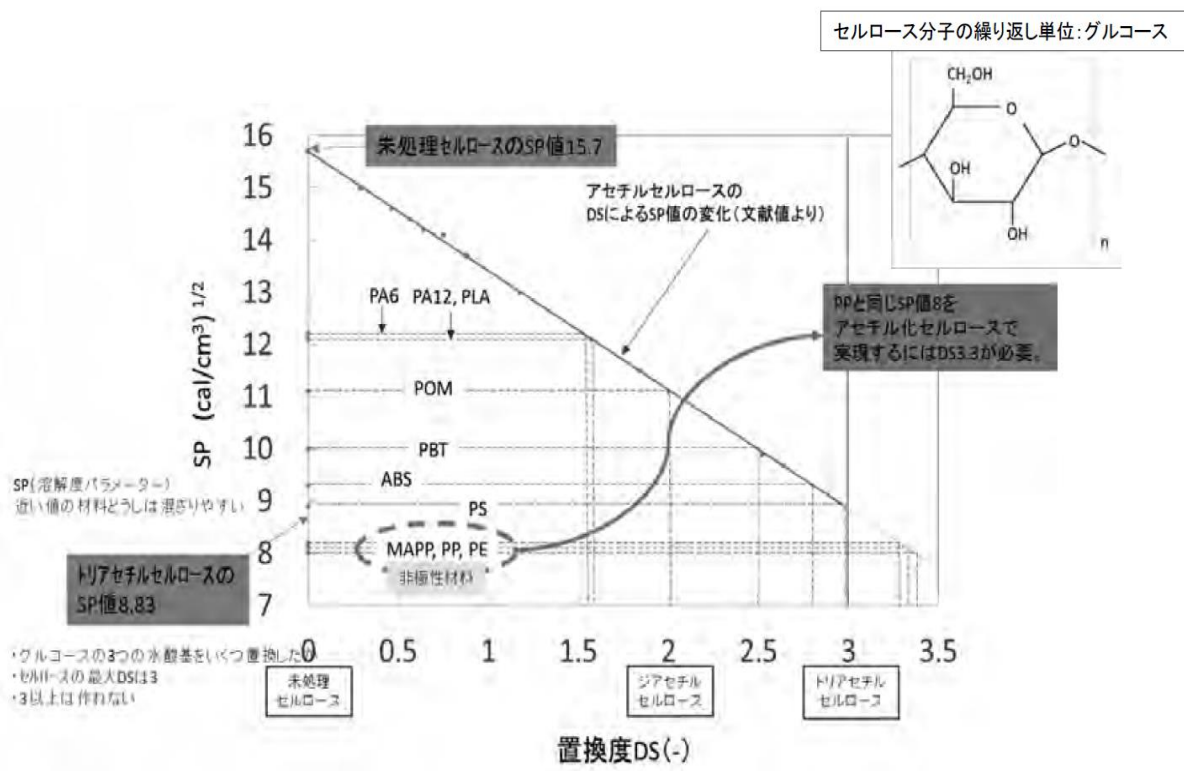


図 2-40 セルロースにアセチル基を導入することによる SP 値と DS 値の関係と代表的な熱可塑性樹脂の SP 値とそれに対応したアセチルセルロースの DS 値¹⁰⁾

彼らは、セルロースの水酸基(OH 基)をアセチル基(COCH₃ 基)に化学変性させることで、アセチル基を導入(以下 アセチルセルロース)し、DS を変化させることにより SP 値を変化させることでセルロースの樹脂内分散化と界面補強に効果が期待できると報告している。

図 2-41 に示すように、アセチルセルロースの SP 値は、置換度 DS(-)が増えると減少し(図 2-41 中の式 1)、疎水性側に変化する。アセチルセルロースの SP 値が樹脂の SP 値相当に変化できれば、セルロースの樹脂内分散化と界面補強に効果が期待できる。

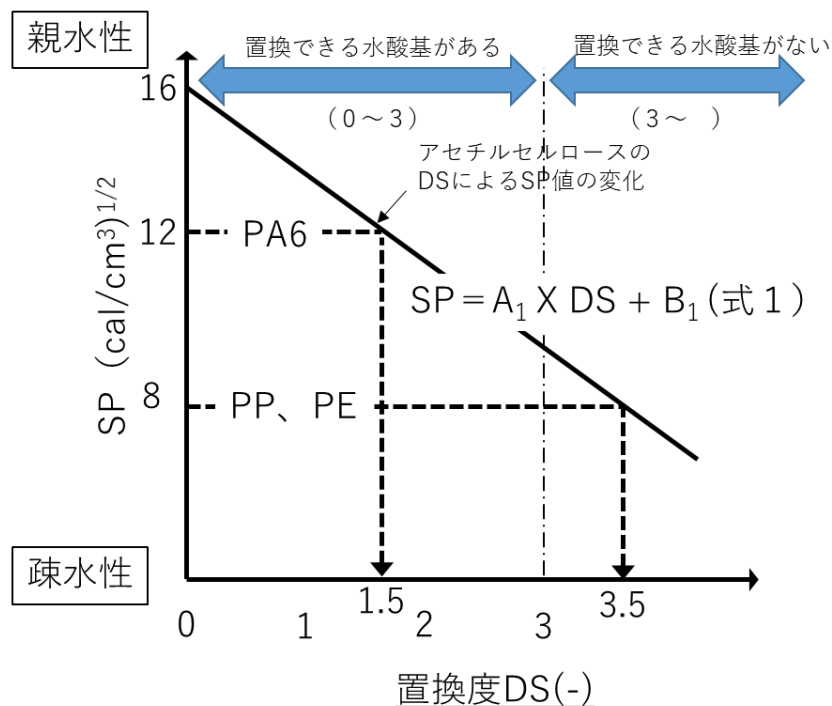


図 2-41 置換度 DS と SP 値の関係(その 1)(イメージ)

例えば、SP 値が 12 [cal/cm³]である PA6 との相溶性を上げるには、1.5 個分の水酸基をアセチル化すれば、PA6 の SP 値相当(SP 値：12)になり、良好な相溶性が期待できる。

しかしながら、アセチルセルロースを PP、PE の SP 値：8 [cal/cm³]相当へ変化させるには 3.5 個分の水酸基が必要となる。アセチル基に変換できるセルロース分子 1 個には水酸基が 3 つしかない為、PP、PE については実現不可能な置換度 3 以上の変性セルロースが必要となる。これらの樹脂と CNF の複合化は相溶性の点で困難であると彼らは報告している。

この課題解決には、変性方法を変え、低い DS で SP 値を下げられるセルロース繊維の開発(図 2-42)や樹脂側の工夫(図 2-43)により樹脂 SP 値を上昇させるなどの検討が必要である、と報告している⁶⁾。

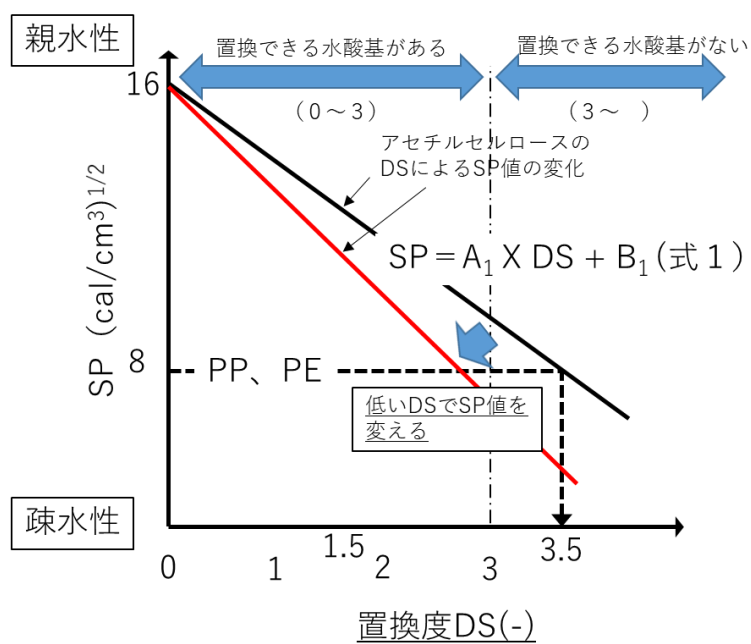


図 2-42 置換度 DS と SP 値の関係(その 2)(イメージ)

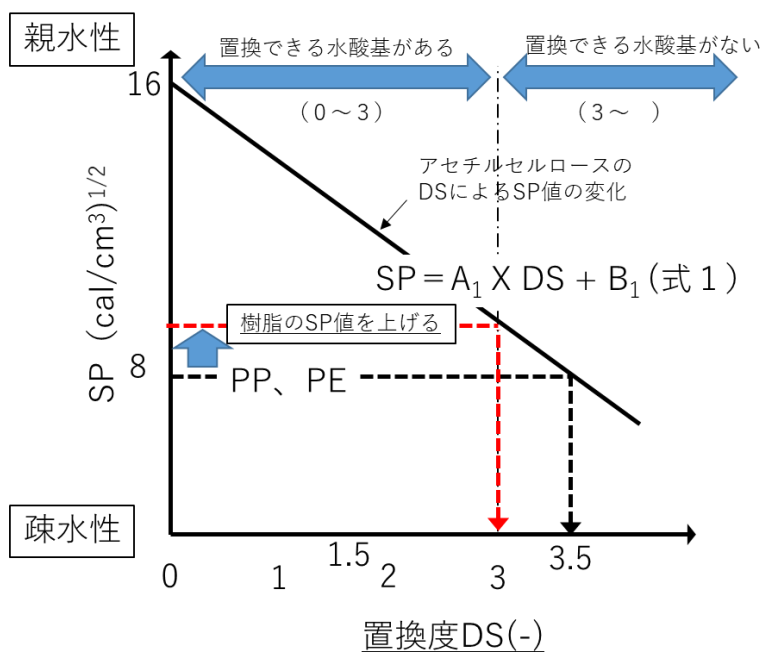


図 2-43 置換度 DS と SP 値の関係(その 3)(イメージ)

産業技術総合研究 中国センターの岩本らは、木材をそのまま湿式粉碎することで得られるリグノセルロースファイバー(LCNF)の表面にはリグニンが存在しており疎水的な表面性質を有するため、LCNFは樹脂との複合が容易であると推測している⁷⁾。また、遠藤らもLCNFが持つ疎水性のリグニンによる疎水性樹脂との界面接着性の向上効果が有り、LCNFはCNFと比較して凝集しにくいことを報告している⁸⁾。これらの報告は、低いDSでSP値をさげるセルロース繊維側からの取組みとして有益な知見であると考えられる。

樹脂側の工夫により樹脂SP値の上昇が期待できる、界面活性剤や分散剤等の相溶化剤と併せて今後、専門家へのヒアリングも含め今後情報調査を継続していく必要がある。

2) 専門家へのヒアリング(セミナー・展示会)

●ふじのくに CNF 総合展示会 (2019年11月19日)

CNF サンプル提供企業 10 社、CNF 用途開発企業 12 社、研究機関 6 機関等が出展する中、複合化に関してヒアリングを実施し、以下の知見を得た。

・ CNF が樹脂との複合化において、200℃以上の高温での熔融混練に耐えることができない(熱劣化)為、炭化が発生し、異臭が発生するため、熱可塑性樹脂との複合化は難しい。

(S 研究所 E グループ長)

・ 複合化材の製造に於いて、市販されている CNF については、メーカーごとに原料、製法、分散剤が異なる為に、複合化樹脂の物性に影響を与えるので試作評価時に CNF の物性を把握して行う必要が在る。

(M 社 Y 室長)

・ 粒子径がナノレベルよりも、マイクロレベルでのセルロースで樹脂と混練した方が混練時のセルロースの凝縮を回避できる可能性が高い。

(S 研究所 E グループ長)

・ 植物繊維などのセルロース材料をあらかじめナノ化するのではなく、疎水性に変性した変性セルロースと熱可塑性樹脂を熔融混練する際に「ナノ分散」と「ナノ解繊」を同時に行うプロセスを採用し⁹⁾、CNF 配合樹脂として、PP 樹脂ペレット、PE 樹脂ペレットを商品化されており、CNF と PP、PE との複合化樹脂が実用化されていることが確認できた。

(S 社 O 氏)

●高機能プラスチック展 (2019年12月4日)

接着メーカー：3 社(D 社、K 社、T 社)へヒアリングを実施したが、プラスチックとセルロースとの複合において相溶性(プラスチック：疎水性 /セルロース：親水性)を高められる界面活性剤、解繊助剤、分散剤について PP、PS 複合化に関する明確な情報・知見は得られなかった。

3) まとめ

樹脂と CNF との複合化に関する課題として、セルロースの耐熱性、相溶性について調査を実施したが、試作に反映できる知見については得ることができなかった。しかしながら、アセチル基を導入し、DS を変化させることにより SP 値を変化させることでセルロースの樹脂内分散化と界面補強に効果が期待できるとの京都市産業技術研究所の仙波らの報告等より、樹脂とセルロース側の相溶性を制御できる知見が得られた。

今後、CNF 専門研究開発者(図 2-44 参照)へのアプローチとヒアリングを行い、本取組みでの試作結果に基づき(PS 樹脂への CeF の複合化開発検証結果)、PS 樹脂と CNF との複合化に関する材料・プロセス等の情報も含めて解決手段を抽出し、課題解決を図る。

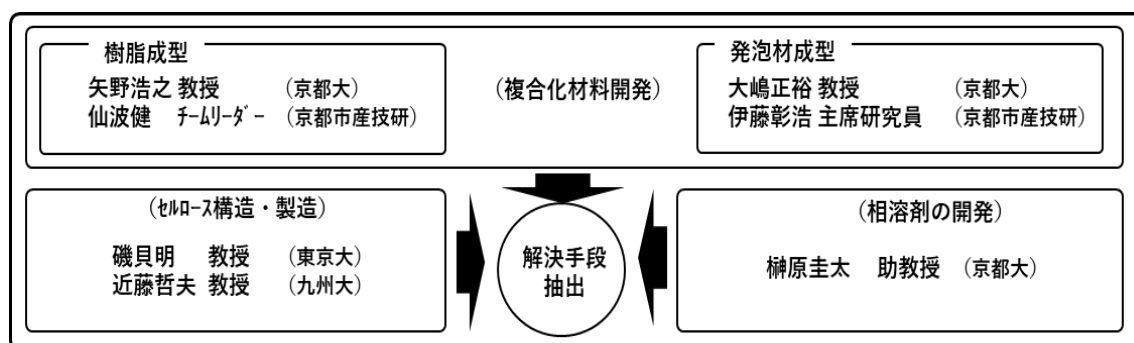


図 2-44 CNF 専門研究開発者について

2.1.3.5. 特許調査

CeF 材料を複合した再生樹脂材料の開発の新規性を確認するため、特許調査を実施した。検索エンジンには、PatentSQUARE を用い、1983 年 1 月～2020 年 1 月の日本出願特許を対象とした。キーワード、特許分類を基本に、表 2-16 に示す検索式を構築し特許検索を行い、233 件の特許公報を抽出した。

表 2-16 検索式

No.	検索項目		条件式	登録件数
S001	特許分類	IPC	B?	4,971,554
S002	キーワード	全文	?セルロース?	807,955
S003	キーワード	全文	?再生樹脂?	2,088
S004	理論式	論理式	S001*S002*S003	127
S005	特許分類	IPC	C?	2,477,821
S006	論理式	-	S005*S002*S003	124
S007	論理式	-	S002*S003	233
S008	論理式	-	S004+S006+S007	233
抽出特許公報件数 233 件				

抽出した 233 件に対し表 2-17 に示すように本テーマに対する重要度について 6 つのランク別に分類を行った。

表 2-17 抽出特許(233 件)の重要度ランク別分類

ランク		件数(件)
A	特許内容がほぼ合致している。	0
B	内容を要精査すべき。	2
C	開発には致命的でない。	5
D	静観。	2
△	今後、開発に参考にできる。	20
X	開発には関係が無い。	205

「重要度ランク B：内容を要精査すべき」に分類された特許公報 2 件に関する特許情報を表 2-18 に示す。

表 2-18 重要度ランク B に関する特許

No	出願番号	出願日	公開・公表番号	登録番号	出願人	発明名称
1	特願 2005-170474	2005.06.10	特開 2006-342275	特許第 4532353 号	鈴与商事 株式会社	再生合成樹脂 組成物及び再生 合成樹脂組成物 の製造方法
2	特願 2015-198480	2015.10.06	特開 2017-71676	—	花王株式 会社	樹脂組成物

内容を精査した結果、いずれの特許も当社取組と合致していなかった。しかしながら、これらの特許では、セルロース材料に対して、繊維長さおよび相対結晶化度、セルロース表面改質処理(改質セルロース繊維)等の特徴とし、ステアリン酸亜鉛、極性基とポリオレフィンを有する化合物、無水マレイン酸変性ポリオレフィン等の相溶化剤、分散剤を添加することで、(複合材料間の)相溶性を高める工夫が必要であることを確認できた(図 2-45、図 2-46 参照)。

得られた知見について、今後の試作検討等で参考にしていく。

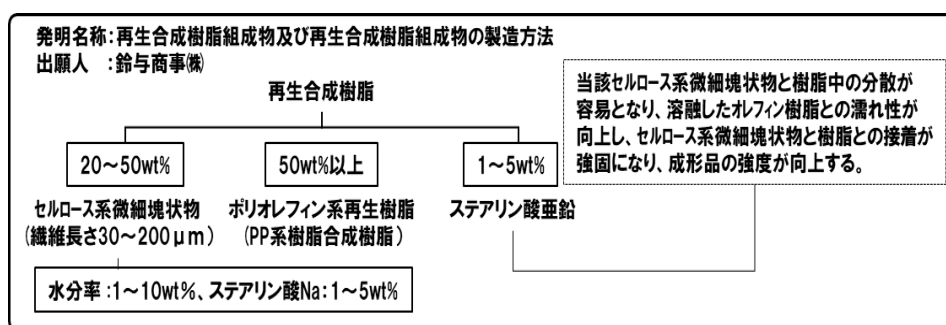


図 2-45 再生合成樹脂組成物(特許第 4532353 号)の配合

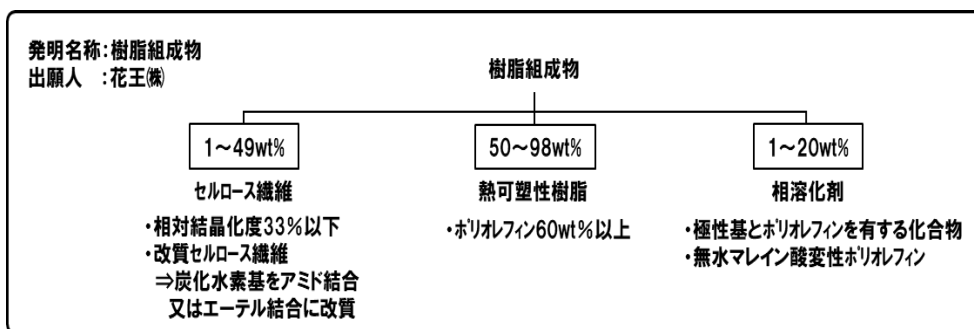


図 2-46 樹脂組成物(特開 2017-71676)の配合

特許調査により、抽出した 233 件の出願特許において、本テーマに関する特許が 2 件と少なく、また、内容の合致がなかったことより、CeF 材料を複合した再生樹脂材料の開発は新規性があるテーマであることを認識した。

2.1.4. 結言

家電製品に用いられる PP 樹脂、PS 樹脂に対してバイオ由来素材の CeF の複合化について、CeF・相溶化剤・分散剤を主なパラメータとし、混練工法を用いて成形用ペレットを作製し、射出成形試験片の各種機械物性を評価した。

再生 PP 樹脂に対しては、家電製品に適用可能な機械的強度の向上を確認した。CeF 含有濃度 15%で、曲げ弾性率向上 30%となった。その効果を実現する複合条件を見出した。

今後の取組みは、

- ・洗濯機由来 PP 樹脂分別選別回収材に対する CeF 複合化処方 の 確 立
 - ・上記の PP 回収再生材の量産設備による複合化の連続稼働工法の実証
- である。更にコストターゲットも実現する取組みを推進する。

PS 樹脂、再生 PS 樹脂に対しては本年度の取組みにより個々の相溶化剤・分散剤単体での複合化への効果度合とその違いを把握できた。

一般的にも、技術的にも PS 樹脂に対する複合化工法や相溶化剤・分散剤処方が確立されていないため、今後は、相溶化剤・分散剤などの添加剤だけでなく、CeF 材の選定や、それらの組合せによる複合化条件の検証・確立と最適化を継続実施し、物理物性や機械的物性を改善していくことが課題である。

2.2. 選別工程の開発

2.2.1. 緒言

CeFを複合した樹脂の普及が進み、利用量の拡大にともない、現在の資源循環システムへ影響を与えないかが大きな課題となる。特に家電4品目を対象とした家電リサイクル法¹⁾に則ったシステムでの対策が必要である。

一般的に使用済みとなった廃家電は回収され、家電リサイクル工場にて、「解体～破碎～選別～加工」の流れでリサイクルされる。破碎工程にて破碎し、粉々になった家電から、次工程である選別工程の上流で磁力選別や渦電流選別などでまず金属を回収する。その結果、図 2-47 に示すように、家電に多く用いられている樹脂であるポリプロピレン(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)などの複数の樹脂種が混在したミックスプラスチックが発生する。ミックスプラスチックをリサイクルし、再び原材料として活用するには同じく選別工程で、単一の樹脂種別に選別することが必要である。



図 2-47 ミックスプラスチック

現在、リサイクル工場における樹脂の選別工法においては、比重選別と近赤外線選別の大きく 2 つの選別工法が主流となっている。比重選別においては、主に水(比重 1.0)を媒体して水に浮く PP(比重：約 0.9)を回収し、水に沈んだ PS(比重：約 1.04)と ABS(比重：約 1.05-1.07)を比重調整した塩水でさら分離回収する工法である。また、近赤外線選別においては、樹脂の分子構造の差異

によって生じる波長帯域ごとの光吸収強度から樹脂種を判別し、樹脂種毎にエアジェットで吹き落として回収する工法である。CeF 複合樹脂においては、CeF(比重：約 1.3-1.5)の含有濃度によって比重が大きく変動することが予想される。そのため、CeF 複合樹脂の選別工法としては、原理的可能性から近赤外線選別が期待される。図 2-48 に、現在家電リサイクル工場稼働している、近赤外線樹脂選別機の外観を示す。



図 2-48 近赤外線樹脂選別機外観写真

本実証では家電へ適用を考えている現時点での CeF 想定含有濃度である 15%程度の複合再生樹脂について、選別装置の量産に必要な生産性を確保するため、3m/s の高速搬送下において、回収率 60%以上、純度 80%以上を目標に取り組む。

本節では CeF 複合樹脂の近赤外線選別工法開発のための本実証における取り組みについて説明する。

2.2.2. アプローチ

2.2.2.1. アプローチ(全体)

本実証では 1 章に示す通り、家電製品(空調機器等)の中で、機能性が高い ABS 樹脂の代替化をターゲットに、CeF を複合した再生 PP もしくは再生 PS の選別工法の開発に取り組む。

CeF は事前実験より 1.9 μm および 2.1 μm 付近に吸光ピークを持つことがわかっている。そのためそれら波長を包含する波長帯域を持つ近赤外線センサ、具体的にはハイパースペクトルカメラ(以下、HSC)を用いることで母材である樹脂特有の吸光ピークと、CeF 特有の吸光ピークを測定し、樹脂種および CeF の含有有無の選別を想定している。

また本実証では図 1-1 のようにバージン材に CeF を複合させることに加え、再生樹脂に CeF を複合した CeF 複合再生樹脂や、CeF 複合樹脂を再生する再生 CeF 複合樹脂の家電適用を目論んでいる。

そのために本実証では、3m/s の高速搬送下において、回収率 60%以上、純度 80%以上の選別性能を目標にすることに加え以下の 3 点について検証する。

- A) CeF の含有濃度ごとに正しく判別されるか
- B) 母材が再生材の場合でも正しく判別されるか
- C) 分散剤を添加しても正しく判別されるか

A)は CeF 複合樹脂が普及した際に、各メーカーや製品種、部品ごとに CeF の含有濃度が異なることが想定される。CeF の含有濃度を選別し管理することで、リサイクル時に物性を確保しやすくすることを狙いとする。

B)は再生材を母材とした CeF 複合樹脂が流通し、回収された場合に、バージン材が母材の複合樹脂と同様に選別が可能になることで、再度リサイクルに回すことを狙いとする。

C)は、2.1.1 項に記載の通り、CeF を樹脂に複合するには分散剤の添加が必要となる。どのような分散剤が添加されていたとしても、選別できることを狙いとする。

以上の点について実証していくための、各年度の大まかな予定は下記のとおりである。

令和元年度：CeF を複合した樹脂サンプル片を近赤外線分光器で測定し、選別性の基礎評価を実施する。

令和 2 年度：バージン材に CeF を複合したサンプルに加え、再生材に CeF を複合したサンプルの判別用データベースを構築し、判別評価を実施する。加えて HSC を用いることで、3m/s での高速搬送下での判別工法を開発する。

令和 3 年度：CeF を 15%程度複合した再生樹脂の選別工法の開発および実証による目標達成
(搬送速度 3m/s、回収率 60%以上、純度 80%以上)

2.2.2.2. アプローチ(令和元年度)

本年度は、CeF 複合樹脂の選別性の基礎評価を実施するために、分析器である近赤外線分光器を使用し、原理的に選別が可能であるか検証を実施した。検証に用いた近赤外線分光器および測定の様子を図 2-49 に示す。

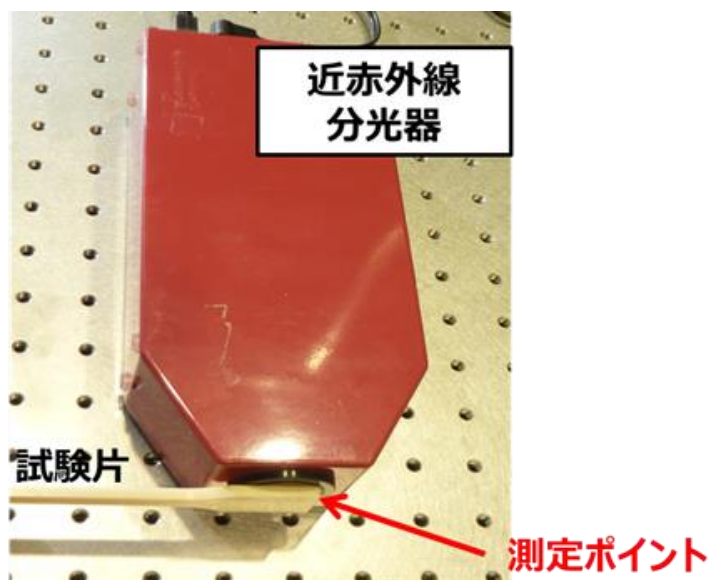


図 2-49 近赤外線分光器

なお本検証で用いた近赤外線分光器は以下の通りである。

- 近赤外線分光器
機器名：近赤外線分光光度計(NIRSCAN-MKII)
メーカー：株式会社 システムズエンジニアリング
分光方式：AOTF(Acousto-Optic Tunable Filter 音響光学可変波長フィルタ)
測定波長範囲：1.6～2.4 μm
ソフトウェア：AOTF Analyzer(メーカー標準付属品)

本分光器を用い、2.1 節で作製した CeF 複合 PS および PP のダンベル試験片をサンプルとして、測定を行った。なお測定の際には図 2-49 に示す通り、分光器の測定ポイントにダンベル試験片を押し当てる形で測定を実施した。

本年度の検証は以下のステップで実施した。

STEP1. サンプルを分光器で測定

STEP2. 測定したデータを横軸：波長[μm]、縦軸：吸光度[-]でプロットし規格化したのち、波形を見比べ、差異を定性的に確認

STEP3. 分光器のデータベースに、バージン樹脂に CeF を複合したサンプルのデータを判別データベース登録

STEP4. 各サンプルを再度測定し、該当するデータベースに判別されるか検証

STEP3 については、バージン樹脂からできた PS と PP に、CeF をそれぞれ含有濃度 0%、5%、10%、15%複合したものを測定したデータをデータベースとして登録した。

STEP4 については、**STEP3** にて登録したデータベースに、改めて測定したサンプルが判別されるか否か、もしくは誤判定し何に判別されるかを検証した。その際の判別には分光器の標準ソフトウェアである **AOTF Analyzer** にある下記の機能を用いた。

機能：SNV 判別

閾値：0.7

SNV 判別により、測定サンプルと各データベースとの一致度がスコア値として表示され、最も高いスコア値かつ閾値を超えたものを判別結果とする。

なおデータベースにはあらかじめ、当社で過去から蓄積した樹脂データを登録したデータベースを使用しており、そのデータベースに今回新たに **STEP3** で作成したデータを追加した。

2.2.3. 取組み結果

分光器を用いて実施した、サンプルの測定および判別検証結果を以下に 2.2.2 項の STEP に沿って示す。

■STEP1. サンプルを分光器で測定

2.1 節で作製した CeF 複合 PS および PP のダンベル試験片をそれぞれ 58 検体 および 149 検体を測定した。

■STEP2. 測定したデータを横軸：波長[μm]、縦軸：吸光度[-]でプロットし規格化したのち、波形を見比べ、差異を定性的に確認

STEP1 にて測定した分光データを規格化し、グラフ化した。以下の図 2-50～図 2-57 に測定したグラフの一部を示す。

ここで図 2-50～図 2-57 の説明を記す。

図 2-50：バージン材 PS に対し、CeF を含有濃度 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルの分光グラフ

図 2-51：再生材 PS に対し、CeF を含有濃度 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルの分光グラフ

図 2-52：CeF を含有濃度 15%で複合したバージン材 PS に対し、分散剤を添加率 2%、4%、5%、6%、8%で添加したサンプルの分光グラフ

図 2-53：CeF を含有濃度 15%で複合したバージン材 PS および再生材 PS サンプル(エアコン(AC)の手解体品および破碎選別品)の分光グラフ

図 2-54：バージン材 PP に対し、CeF を含有濃度 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルの分光グラフ

図 2-55：再生材 PP に対し、CeF を含有濃度 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルの分光グラフ

図 2-56：CeF を含有濃度 15%で複合したバージン材 PP に対し、分散剤を添加率 3%、4%、6%、7%、8%で添加したサンプルの分光グラフ

図 2-57：CeF を含有濃度 15%で複合したバージン材 PP および再生材 PP サンプル(冷蔵庫手解体品および洗濯機水比重選別品)の分光グラフ

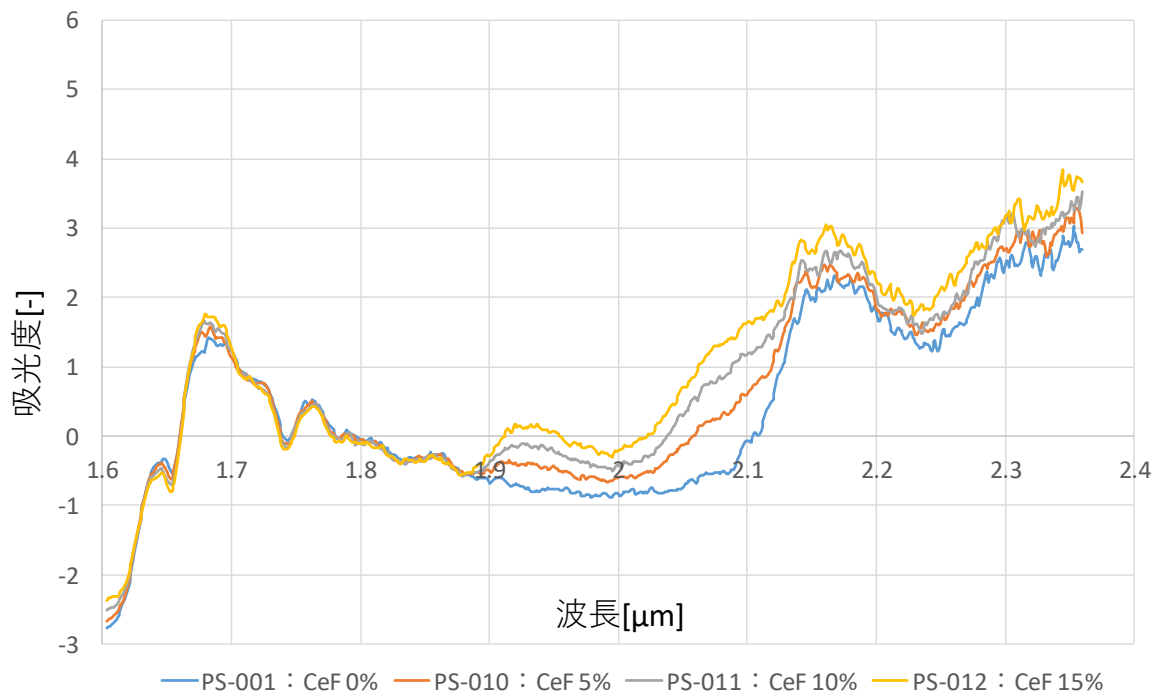


図 2-50 CeF 含有濃度別バージン材 PS サンプル分光グラフ

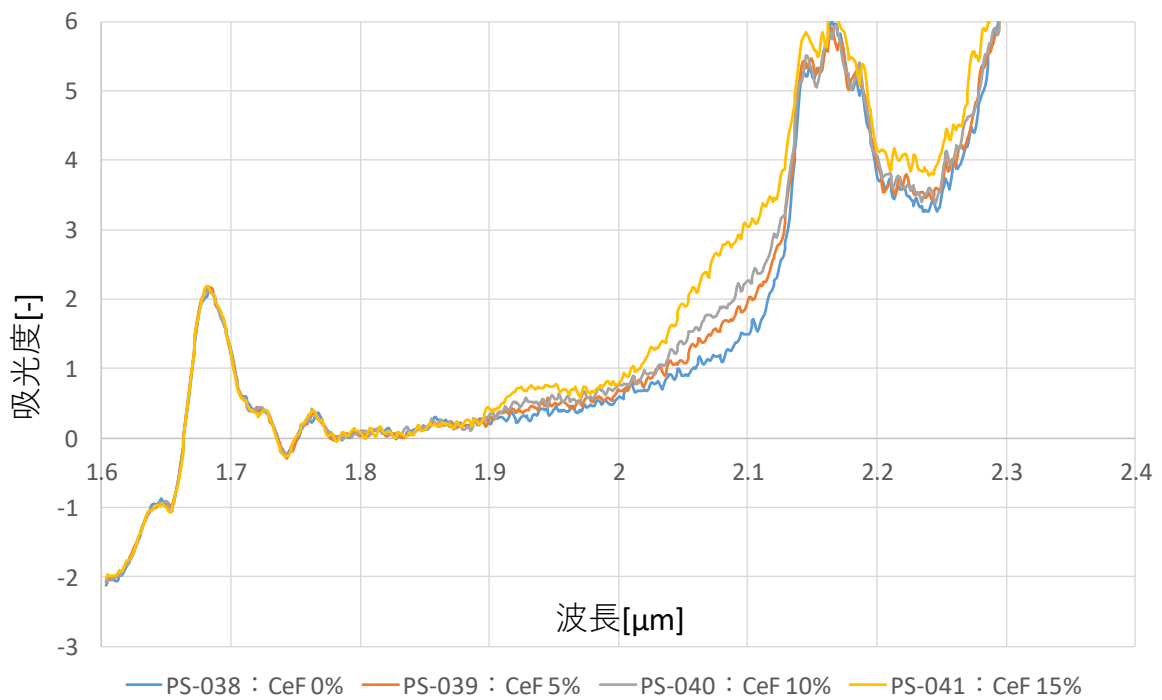


図 2-51 CeF 含有濃度別再生材 PS サンプル分光グラフ

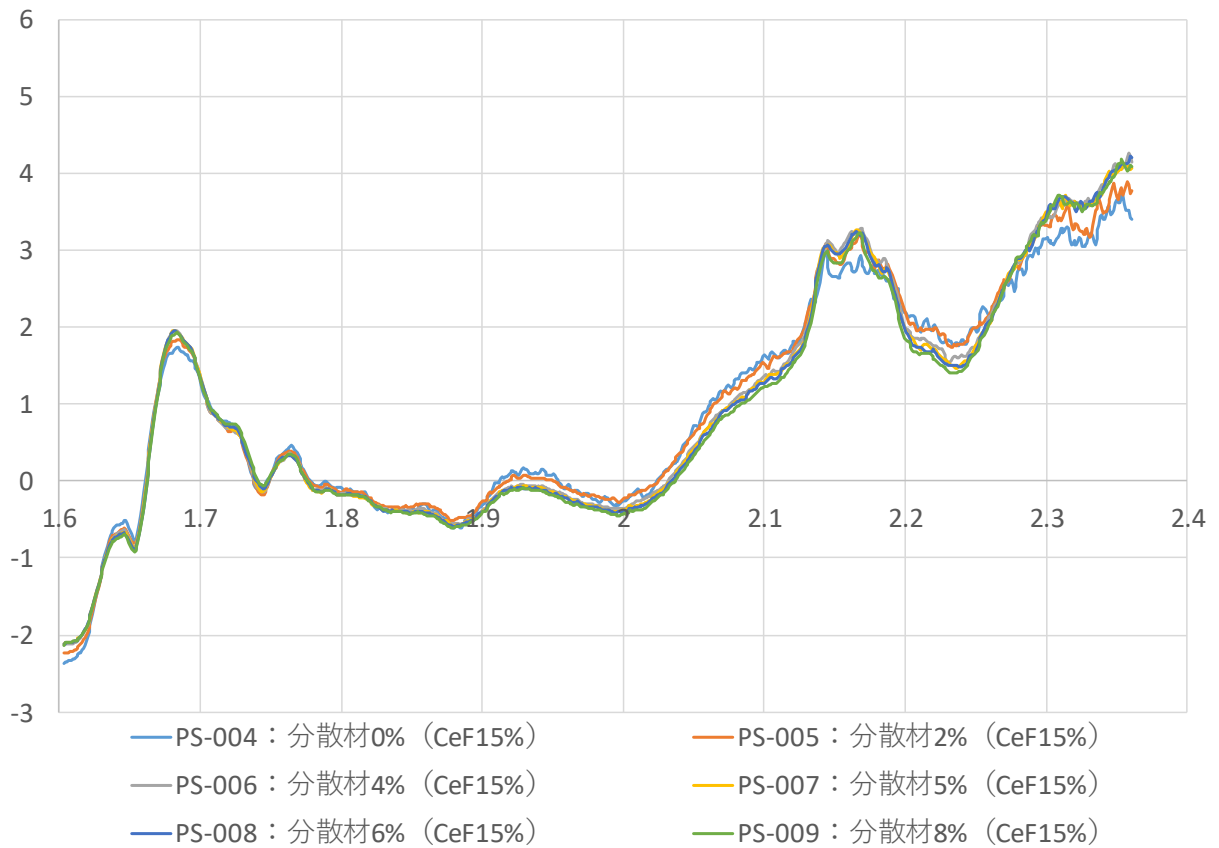


図 2-52 分散剤添加濃度別バージン材 PS サンプル(CeF15%)分光グラフ

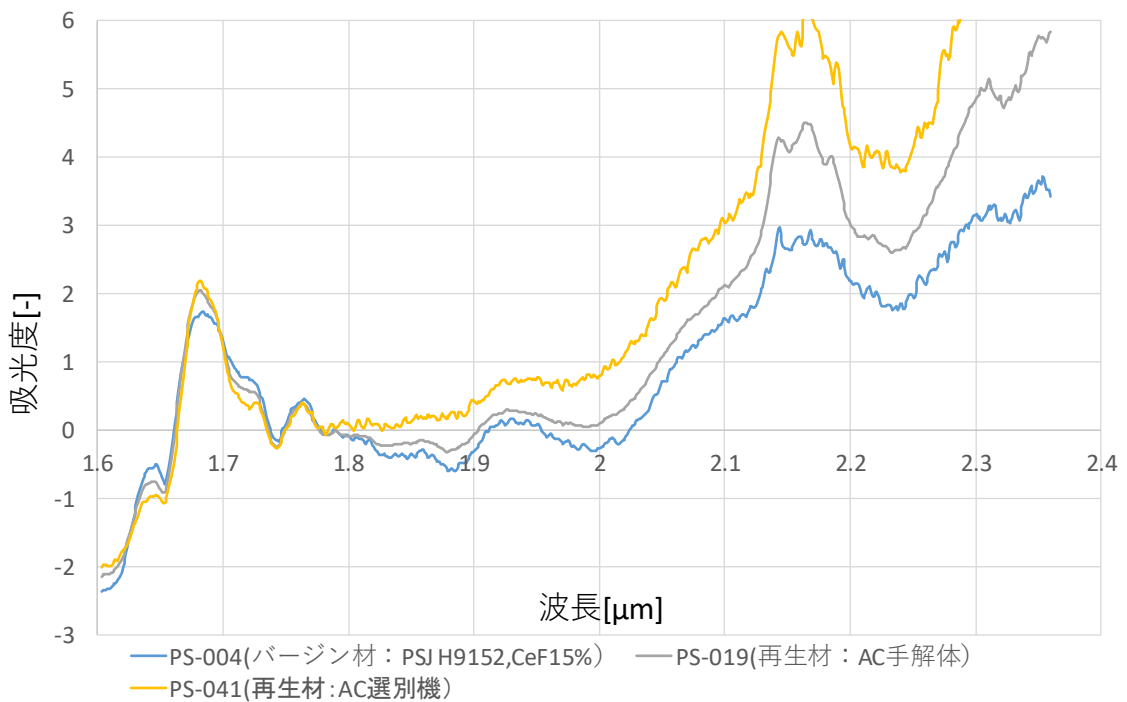


図 2-53 バージン材および再生材 PS サンプル(CeF15%)分光グラフ

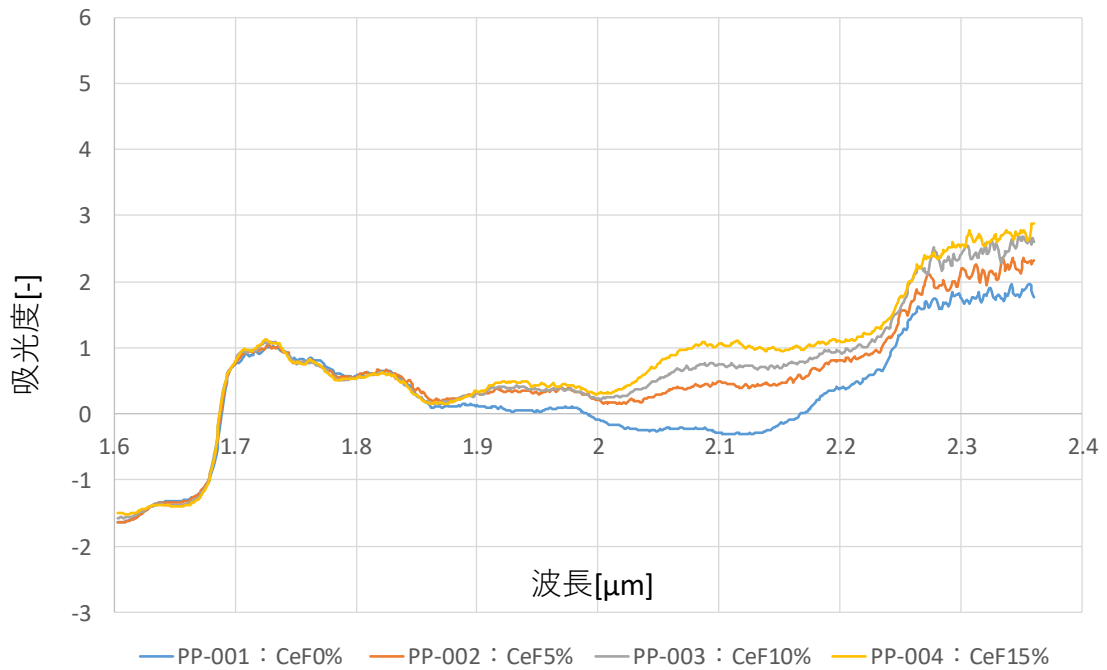


図 2-54 CeF 含有濃度別バージン材 PP サンプル分光グラフ

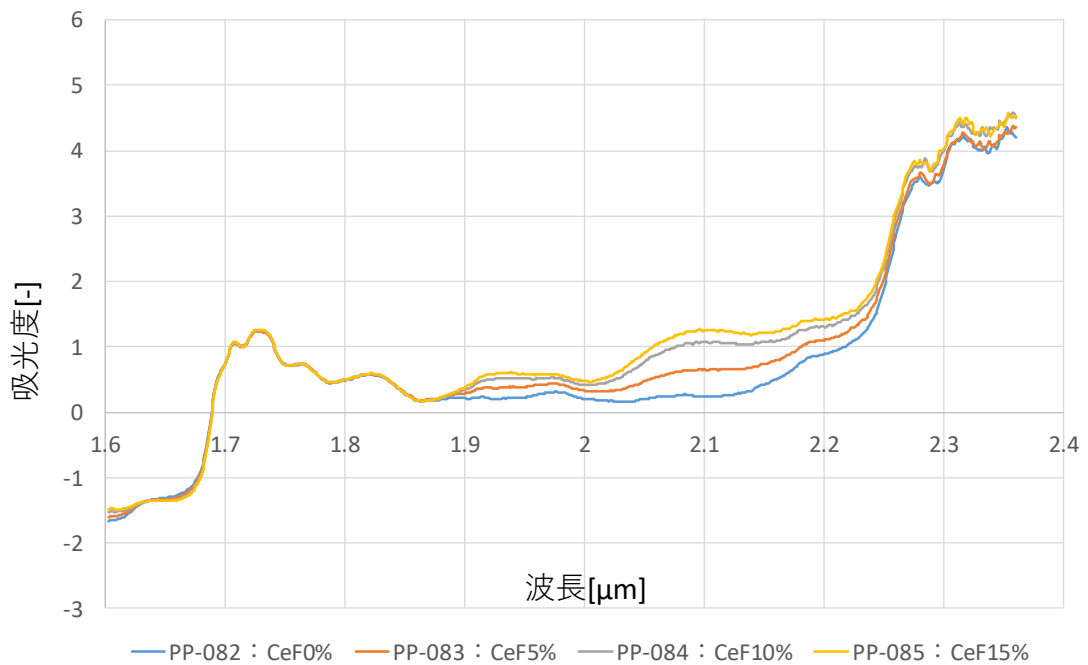


図 2-55 CeF 含有濃度別再生材 PP サンプル分光グラフ

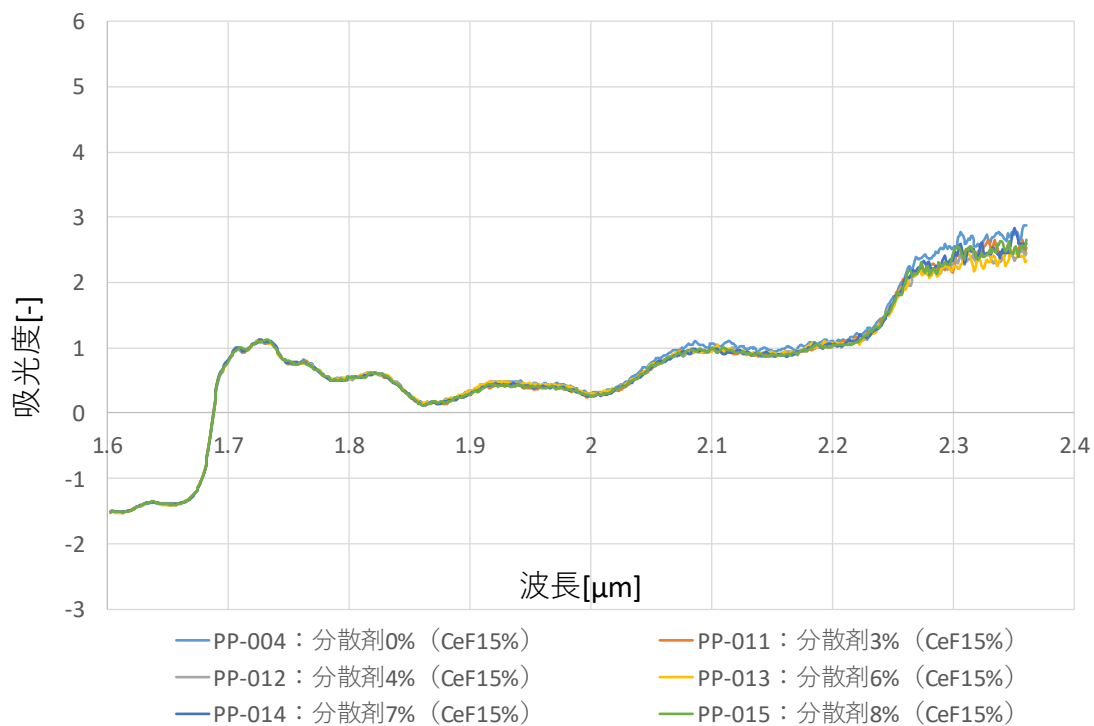


図 2-56 分散剤添加濃度別バージン材 PP サンプル(CeF15%)分光グラフ

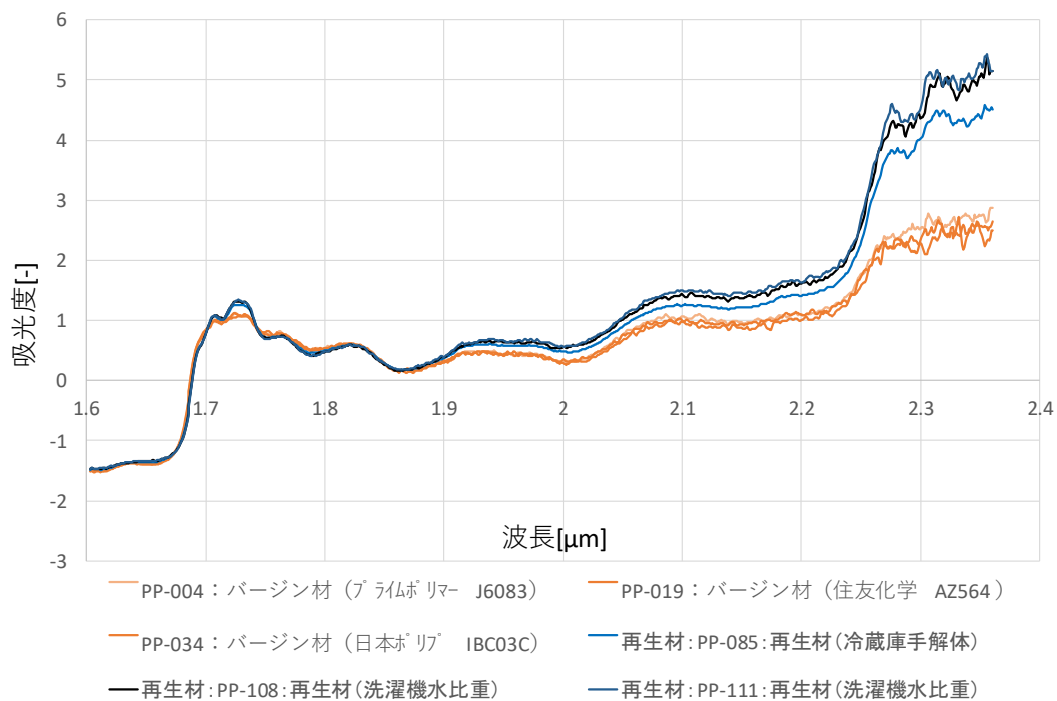


図 2-57 バージン材および再生材 PP サンプル(CeF15%)分光グラフ

以上の結果より、波形の差異を定性的に確認した。

まず図 2-50 について、 $1.9\mu\text{m}$ および $2.1\mu\text{m}$ 付近に CeF 特有のピークが見られ、かつ含有濃度が高くなるにつれ、ピークが高くなっている。このことから、母材がバージン PS の場合、CeF の含有濃度ごとに選別できる可能性があるといえる。

図 2-51 についてバージン材同様に $1.9\mu\text{m}$ および $2.1\mu\text{m}$ 付近に CeF 特有のピークが見られ、かつ含有濃度が高くなるにつれ、ピークが高くなっている。このことから、母材が再生 PS の場合でも、CeF の含有濃度ごとに選別できる可能性があるといえる。しかし $1.9\mu\text{m}$ 付近のピークはバージン材に比べ差が小さいため、判別可能な含有濃度の見極めが重要である。

図 2-52 について、分散剤添加濃度ごとの波形の差は極めて小さいため、分散剤の添加は判別の成否には影響がないといえる。

図 2-53 について、バージン材と再生材の波形を比較すると、高波長になるにつれて、波形の形状は変わらないが、吸光度の絶対値がシフトしている。バージン材と再生材を同じ樹脂として判別する際にはそれぞれのデータベースが必要である可能性があるといえる。

図 2-54 について、バージン PS 同様に CeF 特有のピークが含有濃度別に確認でき、母材がバージン PP の場合、CeF の含有濃度ごとに選別できる可能性があるといえる。

図 2-55 についても、再生 PS 同様に CeF 特有のピークが含有濃度別に確認できる。また再生 PS と比べ、 $1.9\mu\text{m}$ 付近のピーク差異が大きく出ている。

図 2-56 について、PS 同様に分散剤添加濃度ごとの波形の差は極めて小さいため、分散剤の添加は判別の成否には影響がないといえる。

図 2-57 について、PS 同様にバージン材と再生材の波形を比較すると、高波長になるにつれて、波形の形状は変わらないが、吸光度の絶対値がシフトしている。バージン材と再生材を同じ樹脂として判別する際にはそれぞれのデータ

ベースが必要である可能性があるといえる。

以上から 2.2.2.1 で示した検証すべき以下の 3 項目

- A) CeF の含有濃度ごとに正しく判別されるか
- B) 母材が再生材の場合でも正しく判別されるか
- C) 分散剤を添加しても正しく判別されるか

について、以下のように定性的に確認できた。

- A) CeF 含有濃度ごとにスペクトルのピークに差異が確認でき、含有濃度ごとに判別できる可能性がある
- B) 高波長になるにつれ、吸光度に差異が生まれており、バージン材・再生材それぞれのデータベースを構築しなければならない可能性がある
- C) 分散剤の添加は濃度によらず影響はない可能性がある

■ STEP3. 分光器のデータベースに、バージン樹脂に CeF を複合したサンプルのデータを判別データベース登録

STEP2 の結果をもとに、PS、PP それぞれバージン材を母材とした、CeF 複合樹脂(含有濃度 0%、5%、10%、15%)の測定データを新たにデータベースへ登録し、データベースの拡充を行った。具体的には図 2-50 と図 2-54 で示したサンプル 8 種類である。

■ STEP4. 各サンプルを再度測定し、該当するデータベースに判別されるか検証

STEP3 似て作成したデータベースを用いて、再度サンプルを測定し、分光器の機能を用いて、測定したサンプルがどのデータベースに判別されるか検証を行った。

検証したのは 2.2.2.1 で示した以下の 3 点である。

- A) CeF の含有濃度ごとに正しく判別されるか
- B) 母材が再生材の場合でも正しく判別されるか
- C) 分散剤を添加しても正しく判別されるか

この 3 点に対し、検証方法は以下のとおりである。

- A) 新たにデータベースに登録した CeF 含有濃度別のバージン材を母材とした複合樹脂を再度測定し、それぞれが正しく判別されるか、またどの異なるデータベースのスコア値が高くなるか(誤判別の恐れ)を検証した
- B) CeF 含有濃度別の再生材を母材とした複合樹脂を再度測定し、新たに登録したバージン材を母材としたデータベースに正しく判別されるかどうかを検証した
- C) 分散剤を添加したサンプルを再度測定し、新たに登録したデータベースに正しく判別されるかを検証した

以下表 2-19 表 2-20 に検証した結果を示す。

表 2-19 PS 母材における判別検証結果

【データベース】 バージンPS +CeF n%	A. CeF濃度の確認				B. バージン材/再生材の確認				C. 分散材の確認
	①バージンPS+CeF n%				②再生PS+CeF n%				③バージンPS+CeF +分散剤
					手解体		破碎選別		
	0%	5%	10%	15%	0%	15%	0%	15%	15%
CeF 0%	○								
CeF 5%		○							
CeF 10%			○			△			
CeF 15%			△	○		○			○
Other					PS		PS	×(ABS)	

表 2-20 PP 母材における判別検証結果

【データベース】 バージンPP +CeF n%	A. CeF濃度の確認				B. バージン材/再生材の確認				C. 分散材の確認
	バージンPP+CeF n%				再生PP+CeF n%				バージンPP+CeF +分散剤
					手解体		破碎選別		
	0%	5%	10%	15%	0%	15%	0%	15%	15%
CeF 0%	○								
CeF 5%		○							
CeF 10%			○	△					
CeF 15%			△	○					○
Other					PP	×(PP)	PP	×(ABS)	

表について、縦軸には新たに登録したバージン材を母材とした、CeF の各含有濃度のデータベースを取っている。縦軸の”Other”は、当社で過去から蓄積した樹脂データを登録したデータベースに判別された場合に記載する行である。

横軸には、データベース登録後改めて測定したサンプルを取っている。

表中「○」は測定したサンプルが、該当するデータベースに正しく判別されている(スコア値が最も高く、閾値以上)ことを表し、「△」は判別結果第1位(スコア値が最も高い)にはならなかったが、スコア値の差が第1位と0.05以内であったことを表す。「×」は正しく判別されなかった(該当しないデータベースが最もスコア値が高い)ことを表す。表中に樹脂名が書かれている部分は、”Other”のデータベースの中から、どの樹脂のデータベースに判別されたかを表す。

まず表 2-19 の PS について、検証項目 A)~C)に沿って考察する。

A) 各 CeF 含有濃度の PS が正しく該当データベースに判別されている。このことから、CeF 含有濃度が 5%刻みであれば、今回の検証環境においては正しく判別されるということが分かった。しかし CeF 含有濃度 10%については 15%のデータベースとスコア値が近くなっており、今後量産を見据えた HSC での判別検証においては、分光器よりも波長分解能が劣るため、判別可能濃度の見極めが重要である。

B) 手解体再生樹脂の 0%、15%および破砕選別再生樹脂の 0%においては正しく判別された。

ここで「手解体」とは、回収された家電の部品を人手による解体で回収し、再生したものを指し、樹脂純度が高くなる。一方で「破砕選別」とは、破砕しミックスプラスチックになったものを、選別工程を経て再生したものであり、多種の樹脂や異物が混入しやすく、樹脂純度が手解体に比べ低くなる。

またそれぞれの再生樹脂の 0%において、”Other”の PS に判別されており、樹脂種としては正しく判別されている。

破砕選別再生樹脂の 15%については、ABS に誤判別されている。これは図 2-53 に示す通り、再生 PS とバージン PS の波形差異のためであり、再生 PS のデータベースを拡充することが必要である。

C) 分散剤を添加した場合でも、正しく判別されており、分散剤の添加有無は

影響がないといえる。

次に表 2-20 の PP について、検証項目 A)~C)に沿って考察する。

- A) 各 CeF 含有濃度の PP が正しく該当データベースに判別されている。このことから、CeF 含有濃度が 5%刻みであれば、今回の検証環境においては正しく判別されるということが分かった。しかし CeF 含有濃度 10%と 15%についてはお互いのデータベースとスコア値が近くなっており、今後量産を見据えた HSC での判別検証においては、分光器よりも波長分解能が劣るため、判別可能濃度の見極めが重要である。
- B) 手解体再生樹脂の 0%および破碎選別再生樹脂の 0%においては”Other”の PP に判別されており正しく判別された。
手解体再生樹脂の 15%については PP に、破碎選別再生樹脂の 15%については、ABS に誤判別されている。これは図 2-53 に示す通り、再生 PP とバージン PP の波形差異のためであり、再生 PP のデータベースを拡充することが必要である。
- C) 分散剤を添加した場合でも、正しく判別されており、分散剤の添加有無は影響がないといえる。

2.2.4. 結言

近赤外線分光器を用いて、再生材を含む CeF 複合樹脂を原理的に選別が可能であるか以下の 3 点について基礎検証を実施した。

- A) CeF の含有濃度ごとに正しく判別されるか
- B) 母材が再生材の場合でも正しく判別されるか
- C) 分散剤を添加しても正しく判別されるか

その結果、濃度ごとの判別の可能性を見出し、さらに分散剤の添加による影響が軽微であることを見出した。

また課題として、再生材の判別データベースの拡充が必要であることが分かった。さらに今後量産を見据えた HSC での判別検証においては、分光器よりも波長分解能が劣るため、判別可能濃度の見極めが重要であることがわかった。

今後としては CeF を複合した再生材の判別データベースの拡充および、HSC を用いた高速搬送下(3m/s)での判別工法の開発を実施する。

2.3. セルロースファイバー複合樹脂の資源循環システムへの影響評価

2.3.1. 緒言

CeF 複合樹脂を家電に適用することで、バイオ由来資源の活用拡大と化石由来資源のバージン樹脂の削減を両立できる可能性がある。しかし、4 家電に適用するには、家電リサイクル法への対応が必須であるため、CeF 複合樹脂が家電製品に適用された場合を想定し、既存の資源循環システムに対して、どのような影響があるのかを事前に検討することは極めて重要である。

家電製品の多くは、主に 3 種類(PS, ABS, PP)の樹脂で構成されており、その前提のもとに多くの家電リサイクル工場では、リサイクル工程が設計されている。家電リサイクル工場では、破碎された 3 種類の樹脂を、様々な選別方法を用いて単一樹脂に選別して廃家電由来再生材を生産した後に、再度、複合することで再利用している。そこで、CeF 複合樹脂が、家電に適用された場合の資源循環システムの影響を、(i)選別時の影響と、(ii)再生時の影響に分けて検討する。

2.3.2. アプローチ

まず、選別時の影響としては、一般的な樹脂選別のフローを調査した上で、CeF 複合樹脂が混入した場合に、従来通り混合樹脂から PP、PS、ABS への単一樹脂に選別できるかどうかの検討を行う。さらに、CeF 複合樹脂が家電に適用された後、再利用することを想定し、CeF 複合/非複合の選別性についても評価を行う。続いて、再生時の影響としては、意図せず CeF 複合樹脂が単一樹脂に混入してしまった場合を想定し、低濃度の CeF 複合樹脂が生成された場合の物性評価を実施することで、その影響を評価する。

2.3.3. 取組結果

(i) 選別時の影響評価

図 2-58 に、リサイクル工場で用いられる一般的な樹脂選別フローを示す。PP、PS、ABS の 3 種の樹脂を単一樹脂に選別する場合、2 段階の選別を行う選別工法が主流になっており、1 段階目には A.湿式比重選別が用いられ、2 段階目には、B.静電選別もしくは C.近赤外線選別が用いられるケースが多い。A.湿式比重選別は、主に水(比重 1.0)を媒体にして水に浮く PP(比重：約 0.9)を回収し、水に沈んだ PS(比重：約 1.04)と ABS(比重：約 1-1.6)を混合樹脂として選別する分離工法である。2 段階目に用いられる B.静電選別は、PS と ABS

の混合樹脂を擦り合わせて帯電させると、PSはマイナスにABSはプラスに帯電する特性を利用して、分離回収する工法である。2段階目に用いられる、もう1つの工法であるC.近赤外線選別は、樹脂種によって近赤外線の反射スペクトルが異なる特性を利用して分離回収する工法である。

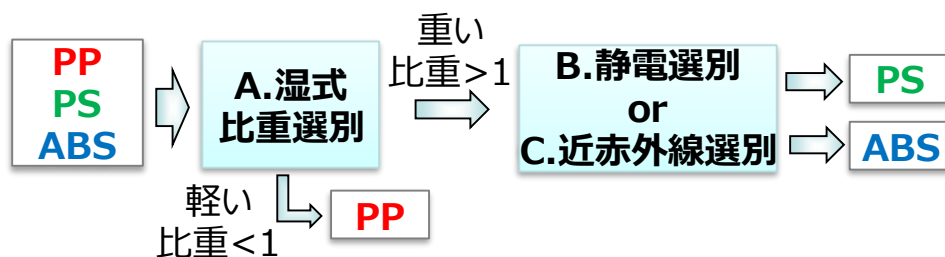


図 2-58 一般的な樹脂選別フロー

ここで、図 2-59 に、比重 - CeF 含有濃度の依存特性を示す。各樹脂種で、CeF 含有濃度が上昇するにつれて、比重が大きくなることが分かる。比重選別では、PP の比重が 1 より小さいことを利用して、PS、ABS と選別するため、CeF 複合 PP の比重も、1 より小さい必要がある。CeF の含有濃度が 20% を超えると、水との比重差が小さくなりすぎて、選別が難しくなるため、PP の CeF 含有率が 15% 以下の場合には、従来通り、選別が可能だと考えられる。

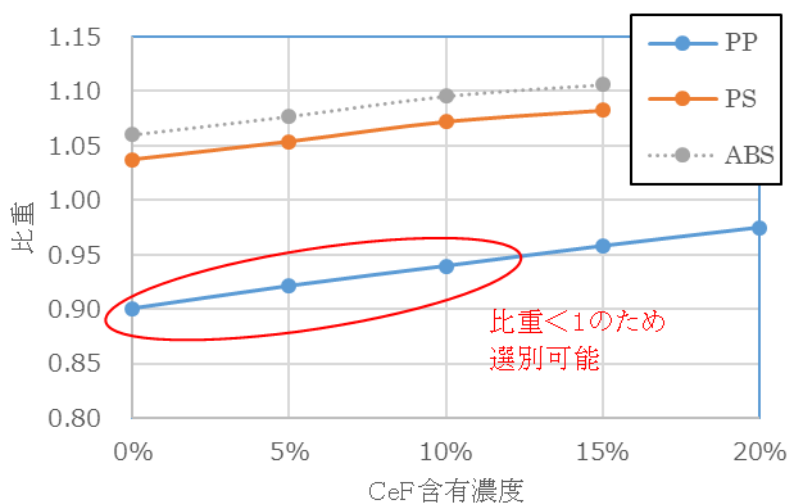


図 2-59 比重 - CeF 含有濃度の依存特性

次に、B.静電選別、C.近赤外線選別を考えた場合には、CeFが15%程度複合された場合には、静電気による帯電量や、近赤外線の反射スペクトルに対する影響は軽微のため、問題なく選別可能だと考えられる。

以上から、従来通りの3種の混合樹脂を単一樹脂に選別することは、CeF含有濃度が15%以下では問題なく可能である。

一方で、CeFが複合されているか、複合されていないかを、選別しようとすると、セルロースが15%程度複合された樹脂では、比重差が微小すぎるため比重選別は難しく、静電選別においても、帯電量は微小変化するが極性が変わるわけではないため、セルロース複合/非複合を選別することは難しくなっている。一方、2.2節で評価したように、近赤外線を用いた選別は、濃度も含めて見極めることができる。よって、CeFの複合/非複合を選別の実現に向けては、近赤外線を用いた手法の開発を進めて早期に実用化することが、非常に重要である。

(ii) 再生時の影響評価

続いて、再生時の影響を評価する。(i)選別時の影響評価で述べたように、一般的な家電リサイクル工場で用いられる樹脂選別フローでは、CeF複合/非複合を選別することは難しく、単一樹脂にCeF複合樹脂が混入してしまうことが想定される。結果として、極めて低濃度のCeF複合樹脂が意図せず生成されてしまう可能性があり、低濃度CeF複合樹脂の物性把握が重要となっている。

そこで、バージンPPに対してCeF含有濃度が1%の低濃度CeF複合樹脂の物性を評価した。結果を、図2-60に物性(引っ張り強さ、曲げ強さ、曲げ弾性率、荷重たわみ)-CeF含有濃度の依存性を、図2-61に物性(引張伸び、シャルピー衝撃値、メルトフロー率(MFR))-CeF含有濃度の依存性示す。値は、CeF非複合のバージンPPの物性で正規化している。

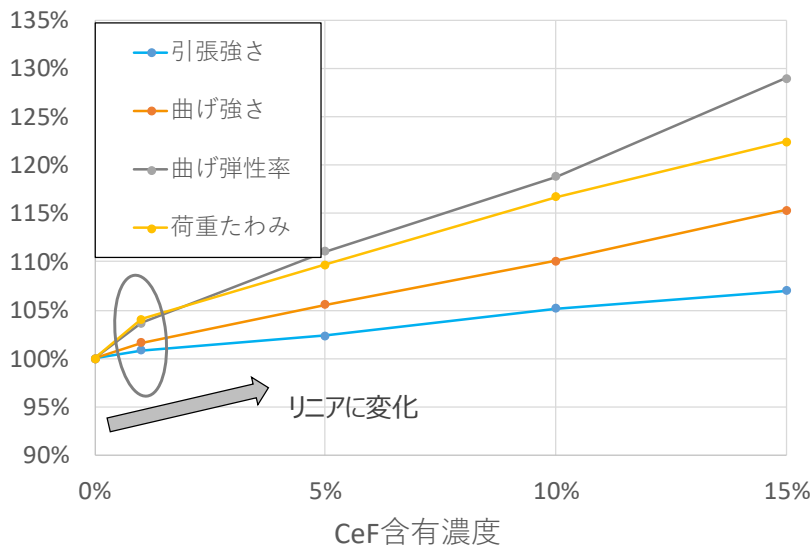


図 2-60 物性 - セルロース含有濃度の依存性 1

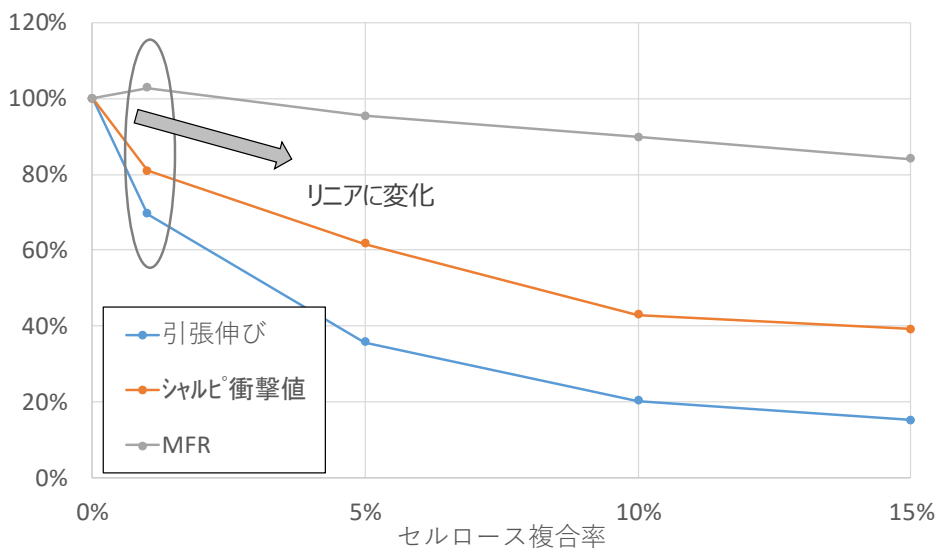


図 2-61 物性 - セルロース含有濃度の依存性 2

CeF 含有濃度を 1%、5%、10%、15%で変化させた場合の各種物性値を見てみると、1%の低濃度領域で、特異点を示すことはなく、CeF 含有濃度に概ね比例する形で物性値に変化が生じている。ここで注目すべきは、CeF を含有させることで物性値が良化する項目(引っ張り強さ、曲げ強さ、曲げ弾性率、荷重たわみ)の変化量に対して、悪化する項目((引張伸び、シャルピー衝撃値、メル

トフロー率)の変化量が大きい点である。CeFの混入が1%程度であっても、20%以上、物性値が下がってしまっている項目もあり、極めて微量のCeF混入では影響は限定的であるが、混入量が多くなると、その物性変化を無視できないことが示されている。以上の結果から、CeF複合樹脂が家電に広く適用されて、本格普及するまでに、CeF複合/非複合の選別工法(近赤外線選別が有力)を確立することが、極めて重要であることが示された。さらに、より高品位なリサイクルを行い、CeF複合樹脂を再生材として使いこなしていくには、その濃度管理が極めて重要である。よって、赤外線選別によるCeF複合/非複合の選別精度を上げるとともに、選別後のCeF含有濃度を算出できる工法が開発されることが期待される。

2.3.4. 結言

CeF 複合樹脂の家電への適用に向けて、一般的なりサイクル工場での家電由来樹脂の選別工法および複合工法を想定し、既存の資源循環システムへの影響を評価した。

- (i) 選別時の影響評価では、従来手法を用いることで CeF が複合された PP、PS、ABS の 3 種混合樹脂を単一樹脂に選別できることを示した。一方で、CeF 複合/非複合は、現状の選別工法で選別することは難しいことも示した。
- (ii) 再生時の影響評価では、従来手法では、CeF 複合/非複合は選別が難しいことから、単一樹脂に CeF が混入してしまうことを想定し、低濃度 CeF 複合樹脂が、意図せず生成される可能性があることを示した。また、その物理特性から、極めて微量の CeF 混入では影響は限定的であるが、混入量が多くなると、その物性変化を無視できないことが示した。

2.4. LCA の検証・評価

2.4.1. 緒言

本事業のバイオ素材複合再生樹脂による素材代替がライフサイクル(以下、LC)全体を通じて、環境的及び経済的に改善しているかを定量的に評価する必要がある。そこで、本実証のライフサイクルアセスメント(以下、LCA)を実施したので、本節で説明する。

2.4.2. アプローチ

2.4.2.1. アプローチ(全体)

日本 LCA 学会及び経産省が公表している LCA ガイドライン¹²⁾¹³⁾に基づき、バイオ素材複合再生樹脂による素材代替の LCA を実施する。具体的には、下記の 6 ステップで実施していく。

(i) 目的の設定

バイオ素材複合再生樹脂を家電製品(空調機器等)に適用した場合の環境及び経済効果を定量化する。

(ii) 定量化対象の設定

バイオ素材複合再生樹脂を定量化対象として設定する。その際の機能単位は、家電製品(空調機器等)に使用する樹脂材料とする。曲げ強度等の必要スペックについては、本事業を通じ明確化していく。注意点として、代替前の素材だとオーバースペックの場合があるため、代替前の素材スペックが必要とはならない場合がある。

(iii) ベースラインシナリオの設定

素材代替候補である製品もしくは部品に対し、本事業が適用されなかった場合の素材候補をベースラインシナリオとして設定する。

例えば、バイオ素材複合再生樹脂として CeF 複合再生 PS を検討する際、適用されなかった場合の素材候補として、ABS と CeF 複合 PS の 2 つが、ベースラインシナリオとして考えられる。

(iv) 定量化の範囲・内容の設定

本事業で対象とする温室効果ガスは、本事業が採択された募集要領¹⁴⁾で指定されたCO₂を対象とする。

また、評価範囲としては、適用される家電製品もしくは部品のLCフローを対象とする。ただし、評価対象であるバイオ素材複合再生樹脂とベースラインの素材で同一の工程と想定されるプロセスは評価対象外とする。

例えば、評価対象がCeF複合再生PSであり、素材代替前がPSとABSで構成される部品への適用検討の場合、評価範囲の簡略したLCフローを図2-62、図2-63と図2-64に示す。下記のLCフロー中で、緑背景で囲まれた範囲が評価範囲である。また、白地に紺背景のプロセスは、フォアグラウンドデータであり、黒字に白背景のプロセスは、バックグラウンドデータであることを示している。詳細のLCフローは、後述の図2-69、図2-70と図2-71に示している。

評価対象とベースラインのLCフローを比較すると、生産段階、流通段階と使用段階が同一のプロセスなので、評価対象外としている。また、原材料調達・生産段階でも、代替素材以外のPSについては、同一のプロセスになるため、評価対象外としている。

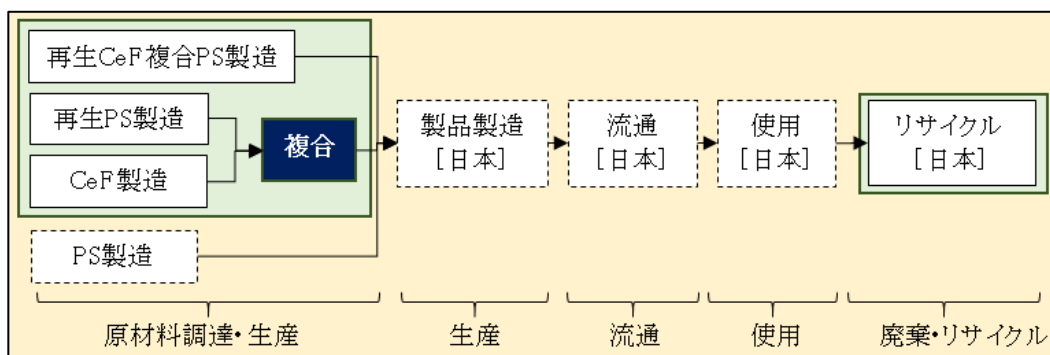


図 2-62 評価範囲の簡略例(本事業 CeF 複合再生 PS)

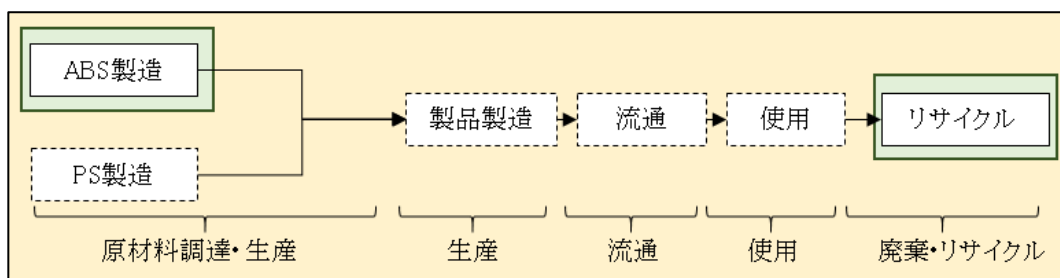


図 2-63 評価範囲の簡略例(ベースライン ABS)

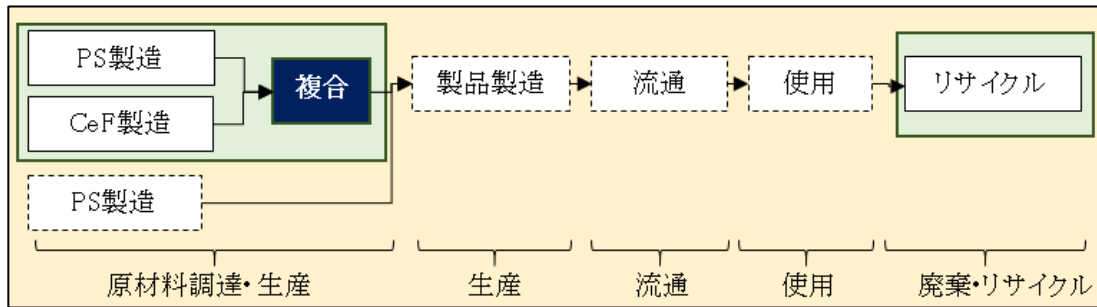


図 2-64 評価範囲の簡略例(ベースライン CeF 複合 PS)

(v) 削減貢献量の累積方法の決定

本実証は、素材代替であり、原材料調達・生産段階と廃棄・リサイクル段階での効果を評価するため、フローベースで評価を実施する。

(vi) 削減貢献量の定量化

上記(i)～(v)に基づき、CO₂ 排出量及びコストの定量評価を実施する。

ここでは、本事業の他開発項目に伴い適用製品の候補が特定されるため、他開発項目と連携しながら、LCA を推進していかなければならない。そのため、年度毎に、段階的に LCA を推進していく。各年度の大まかな予定は下記の通りである。

令和元年度：LC フローを明確化し、市販の LC インベントリデータベース¹⁵⁾に基づいて試算し、単純な素材代替の効果を把握する

令和 2 年度：特定の適用商品の普及を考慮した上で、素材代替の効果を把握する。また、複合工程での設備の稼働状況を測定し、反映する。

令和 3 年度：適用商品の数を増やし、最終的な普及量を考慮した状態での効果を試算する。

2.4.2.2. アプローチ(令和元年度)

本年度では、適用製品が定まっていないため、バイオ素材複合再生樹脂として、CeF 複合再生 PS(CeF 含有濃度 15%)1kg を評価対象として、LCA を実施した。

(i)' 目的の設定

CeF 複合再生 PS 1kg を代替することによる環境効果を評価した。
(経済効果については、適用製品候補が未決定のため、本年度は対象外)

(ii)' 定量化の設定

CeF 複合再生 PS(CeF 含有濃度 15%)1kg を定量化対象に設定した。

(iii)' ベースラインシナリオの設定

本実証が適用されなかった際の素材候補として、ABS と CeF 複合 PS の 2 種類を検討した。本年度は、強度変化による体積増減を考慮せずに、比重のみ考慮した。CeF 複合再生 PS の比重が 1.08 であり、ABS の比重は 1.06 である。そのため、CeF 複合再生 PS1kg と同体積の ABS は約 0.98kg となる。また、CeF 複合再生 PS と CeF 複合 PS の比重は、同一であると仮定した。よって、ベースラインシナリオとして、ABS0.94kg シナリオと CeF 複合 PS1kg シナリオの 2 シナリオを検討した。

(iv)' 定量化の範囲・内容の設定

2.4.2.1 の(iv)で述べた通り、本事業では、温室効果ガスの内 CO₂ を対象とした。また、本年度の評価範囲を図 2-65、図 2-66 と図 2-67 に示す。下記の LC フロー中で、緑背景で囲まれた範囲が評価範囲である。また、本年度は、市販のデータベースに基づく算出のため、バックグラウンドデータのみとなっている。詳細の LC フローについては、後述の図 2-72、図 2-73 と図 2-74 に示している。

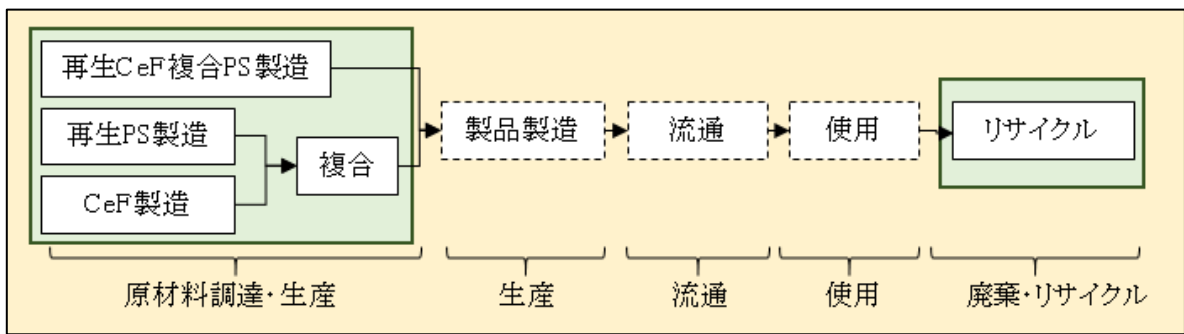


図 2-65 評価範囲の簡略図(本事業 CeF 複合再生 PS)

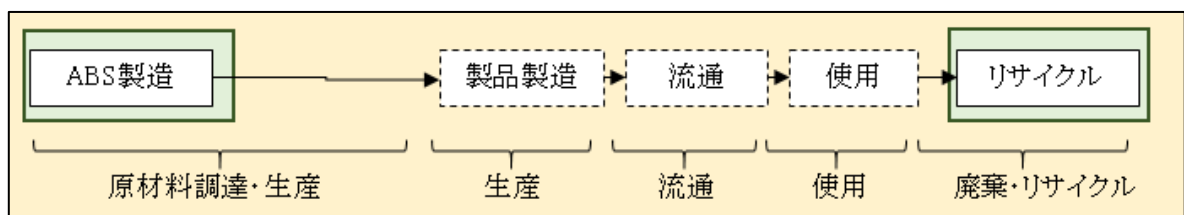


図 2-66 評価範囲の簡略図(ベースライン ABS)

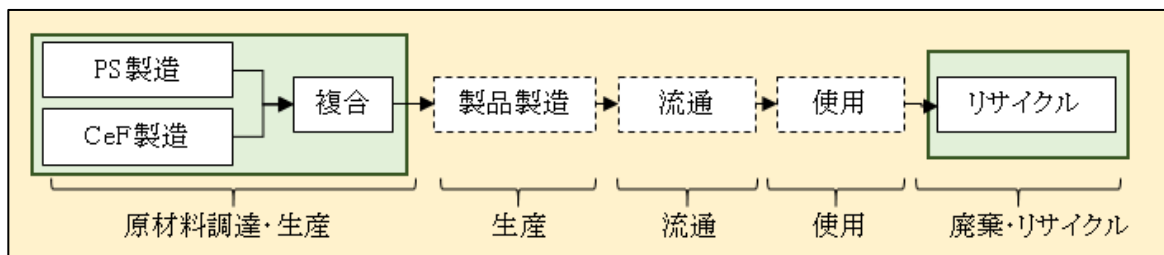


図 2-67 評価範囲の簡略図(ベースライン CeF 複合 PS)

(v)' 削減貢献量の累積方法の決定

2.4.2.1 の(v)で述べた通り、フローベースで評価を実施した。

(vi)' 削減貢献量の定量化

(i)'～(v)'に基づいて、CO₂ 排出量の定量化を実施した。具体的には、各シナリオの条件は、表 2-21 に示す通りに設定した。更に、各プロセスで投入されたエネルギーを市販データベースのインベントリデータから抽出し、データベースの原単位を積算することでエネルギー起源 CO₂ を算出した。

また、リサイクル控除として、再生した材料重量だけ、各再生材を生産するのに発生した CO₂ 量を控除した。更に、CeF は植物由来の素材であり、原料としての植物が成長する際に、光合成を行っている。光合成によって、大気中の CO₂ を吸収し、植物体内に糖等として炭素を蓄積する特性がある(以下、炭素固定)。炭素固定による CO₂ 削減は、市販データベースでは取り扱っていないため、今回炭素固定を追加検討した。先行文献¹⁶⁾¹⁷⁾を参考にし、炭素固定により 1.83 kg-CO₂/kg-CeF 減少する形で反映させた。

結果については、次項で述べる。

表 2-21 各シナリオの算出条件

工程	プロセス	本事業	ベースライン ABS	ベースライン CeF 複合 PS
原料調達・生産	原料調達	<ul style="list-style-type: none"> 再生 CeF 複合 PS 0.6kg 製造 再生 PS 0.34kg 製造 CeF 0.06kg 製造 	<ul style="list-style-type: none"> ABS 0.98kg 製造 	<ul style="list-style-type: none"> PS 0.85kg 製造 CeF 0.15kg 製造
	複合	<ul style="list-style-type: none"> CeF 複合再生 PS 0.4kg 複合 	なし	<ul style="list-style-type: none"> CeF 複合 PS 1.0kg 複合
リサイクル	中間処理	<ul style="list-style-type: none"> 回収率 60% 残り 40%は産業廃棄処理 		
	再生	<ul style="list-style-type: none"> 再生 CeF 複合 PS 0.6kg 再生 	<ul style="list-style-type: none"> 再生 ABS 0.6kg 再生 	<ul style="list-style-type: none"> 再生 CeF 複合 PS 0.6kg 再生

2.4.3. 取組結果

前項で記載したアプローチに則り、算出した LCA の比較結果を図 2-68 に示す。この結果から、ABS0.98kg から本事業の CeF 複合再生 PS1kg 代替することによって、エネルギー起源 CO₂ を 0.57 kg-CO₂ 分だけ削減できることが判明した。また、バージン PS を使用した CeF 複合 PS1kg に対しても、本事業が 0.13kg-CO₂ 分だけ削減できることを明確にした。これらの結果から、市販データベースを活用した場合だが、本事業の CO₂ 削減効果を明確化することに成功した。

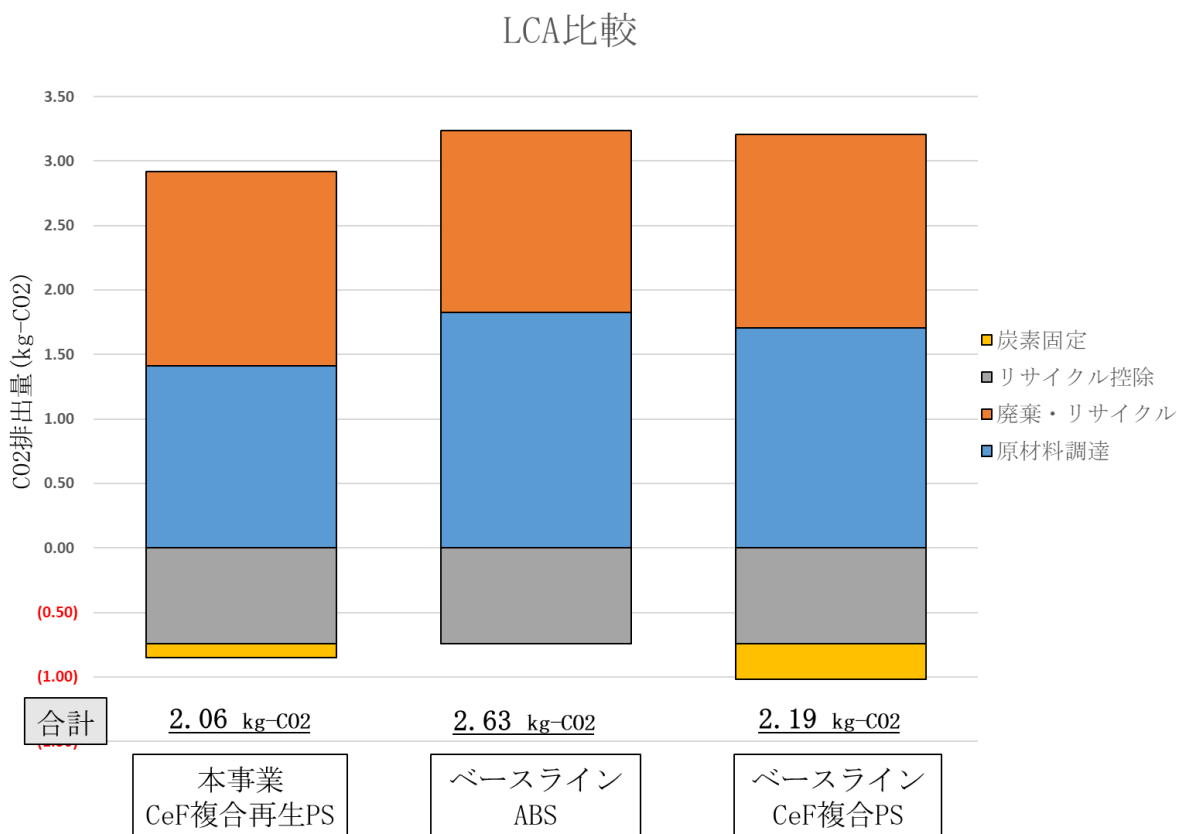


図 2-68 LCA 比較結果

2.4.4. 結言

市販データベースに基き本事業の LCA を算出した。この結果より、本事業の CO2 削減効果の優位性を明確化した。次年度以降は、適用商品の普及および複合設備の計測値を反映することで、より実態に則した LCA を実施していく。具体的な実証課題は、表 2-22 に示す通りである。また、中間報告会でご指摘頂いたセルロースのグレードや資源代替性についても、並行して反映していく。

表 2-22 次年度以降の実証課題

	実証課題
R2 年度	<ul style="list-style-type: none">・ 設備の測定値を考慮した LCA 算出(特に複合工程)・ 適用商品への普及を考慮した LCA 算出・ LCA の精査
R3 年度	<ul style="list-style-type: none">・ 適用商品への普及を考慮した LCA 算出・ LCA の精査

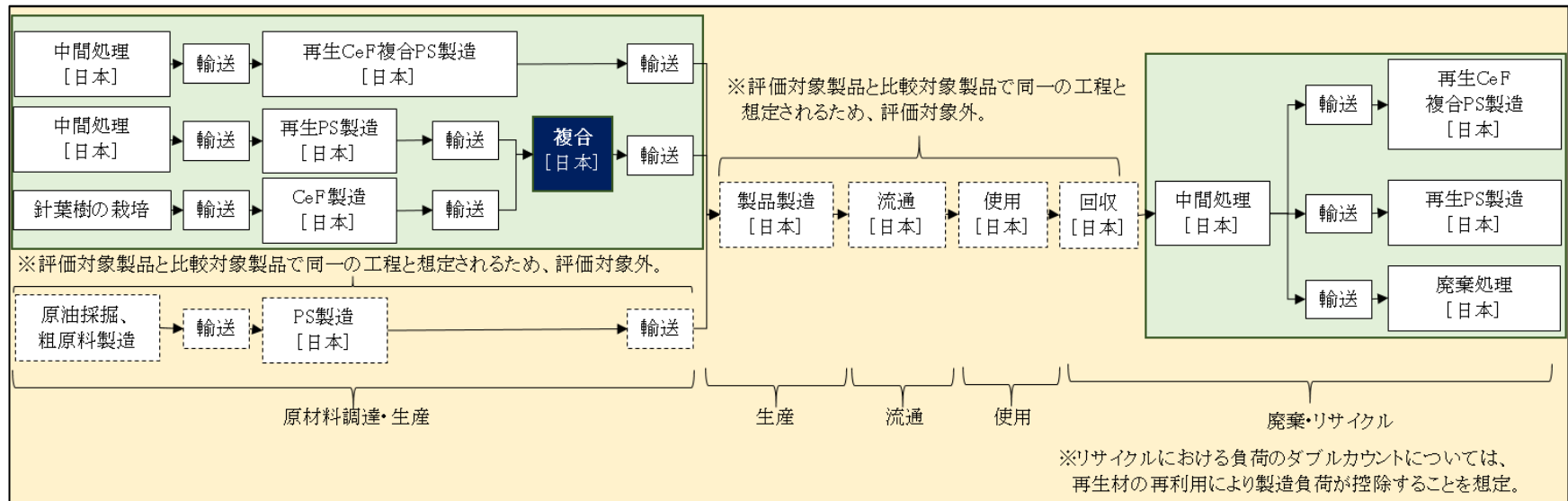


図 2-69 評価範囲の例(本事業 CeF 複合再生 PS)

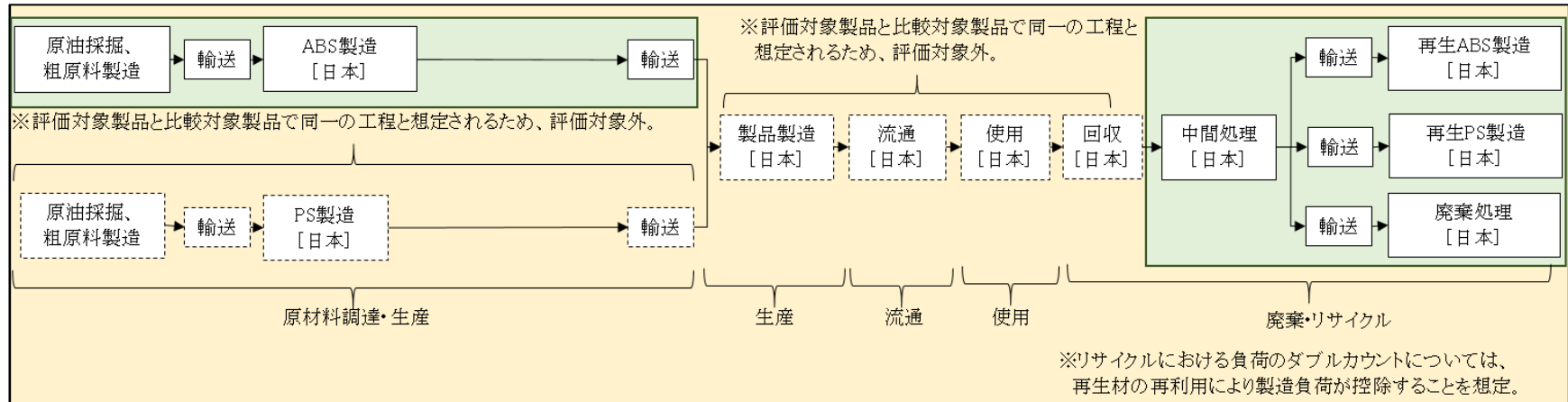


図 2-70 評価範囲の例(ベースライン ABS)

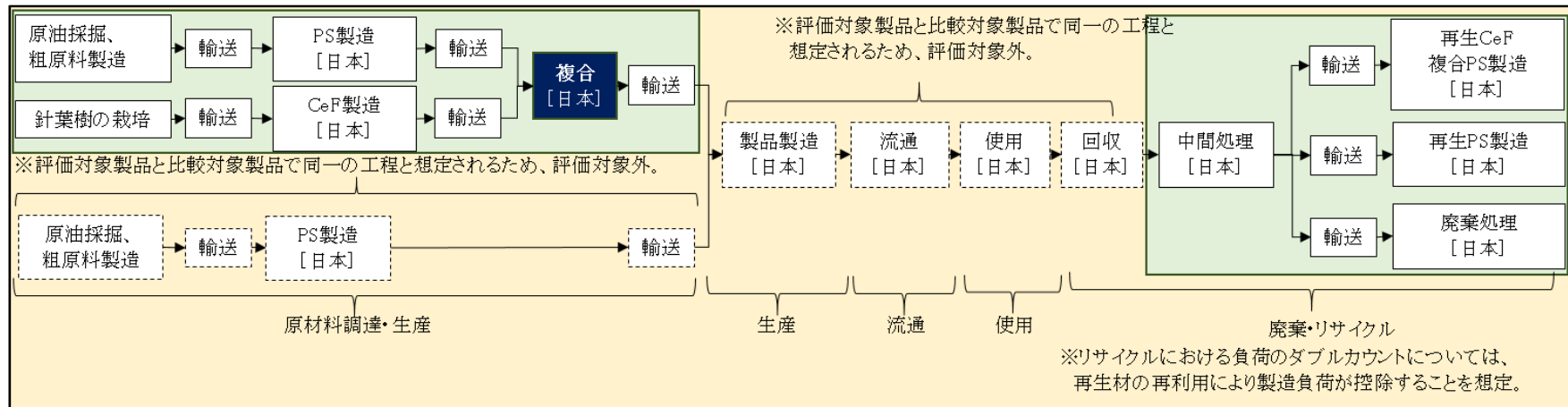


図 2-71 評価範囲の例(ベースライン CeF 複合 PS)

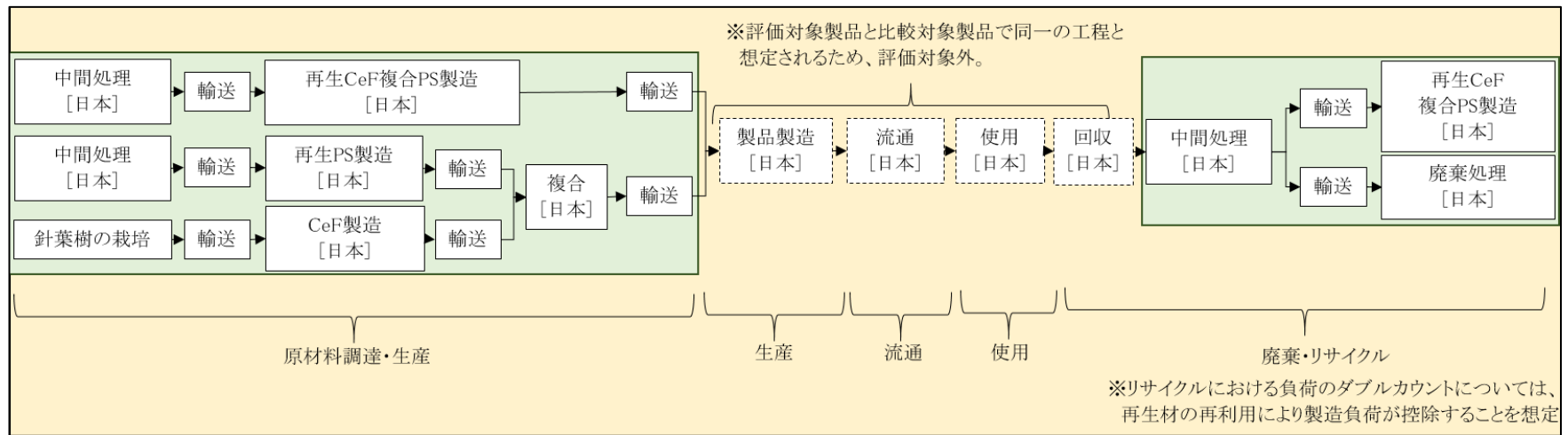


図 2-72 令和元年度の評価範囲(本事業 CeF 複合再生 PS)

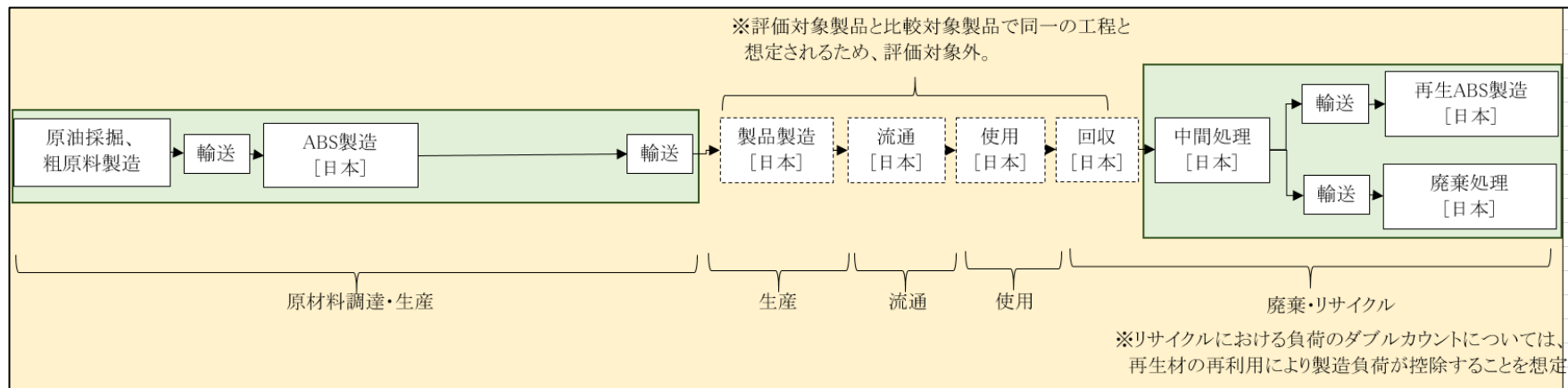


図 2-73 令和元年度の評価範囲(ベースライン ABS)

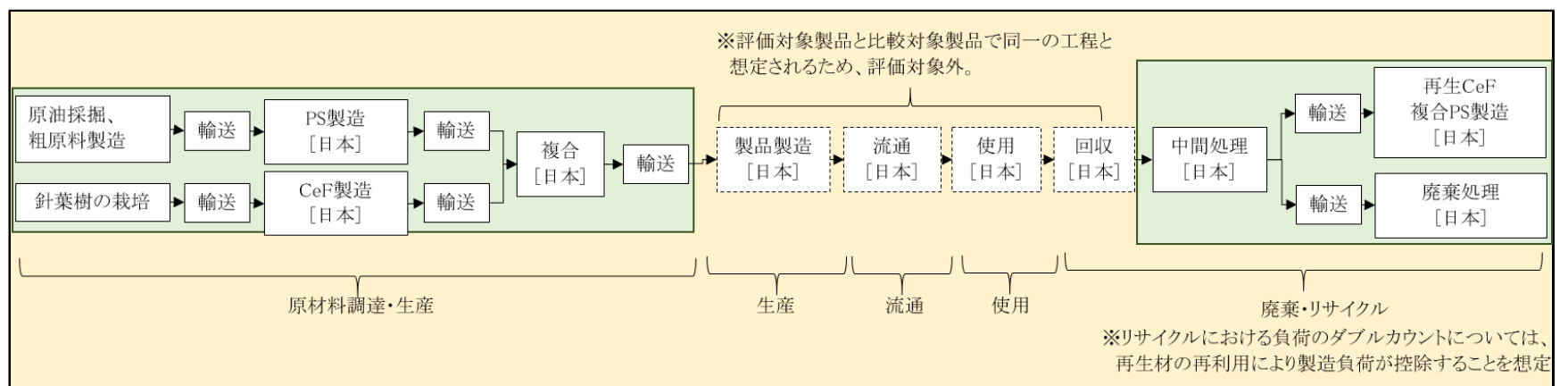


図 2-74 令和元年度の評価範囲(ベースライン CeF 複合 PS)

3. 来年度の取組

以下に、各項目の来年度の取組みを示す。

- 1) 複合工程の開発
 - (i) 抽出した課題の解決に向けた、再生樹脂作製条件出しと最適化
 - ・ CeF 複合再生 PS 樹脂については、添加剤、材料の再選定とその組合せによる条件出し及び最適化を継続して実施し、物理物性の改善を行う。
 - (ii) 再生樹脂の物性を踏まえた適応商品・部品の検討
 - ・ CeF 複合再生 PP 樹脂については、令和元年度で得られた特性をもとに、適用商品・対象部品の仕様検討、工程を確立し、具体商品への適応実現に向けた課題抽出を行う。
 - (iii) 冷蔵庫 PP を用いた CeF 複合再生 PP 樹脂の 500 円/kg の見極め
- 2) 選別工程の開発
 - (i) バージン材および再生材+CeF の判別データベースの構築による、CeF 含有樹脂の判別
 - (ii) ハイパースペクトルカメラを用いた高速判別工法の確立
 - 搬送速度： 3m/s
 - 回収率 60%以上、純度 80%以上
- 3) 資源循環システムへの影響評価
 - (i) 極低濃度のセルロース混入時の物理物性の詳細評価
 - 各種複合条件での物理特性評価
 - (セルロース混入を考慮せず成形した場合の影響評価(色味含む))
- 4) LCA の検証・評価
 - (i) 複合工程での設備の稼働状況の計測
 - (ii) 適用商品の普及を考慮した LCA 算出
 - (iii) CO₂ 排出の起源の切り分け調査(エネルギー起源 or 非エネルギー起源)

【参考文献】

- 1) 平成 27 年度セルロースナノファイバー製品製造工程の低炭素化対策の立案事業委託業務(セルロースナノファイバー製品製造工程における CO2 排出削減に関する技術開発)成果報告書(パナソニック株式会社)
- 2) 北川和男：日本ゴム協会，第 86 巻 第 2 号，19-24(2013)
- 3) 仙波健：繊維機械学会誌,Vol.70,No.4 (2017)
- 4) 榊原圭太：機能材料,Vol34,No.11,40-45(2014)
- 5) A.N.Nakagaito, H.Yano,Appl.Phys.A,78,547(2004)
- 6) 仙波健：工業材料,2017 年 8 月(Vol.65 No8),29-34
- 7) 岩本伸一郎：機能材料,Vol34,No.11,33-39
- 8) 遠藤貴士：工業材料,2017 年 8 月(Vol.65 No8),35-39
- 9) 佐藤明弘：工業材料,2017 年 8 月(Vol.65 No8),64-65
- 10) 京都大学生存研究所、地方独立行政法人京都市産業研究所：集中講義：京都発「構造用セルロースナノファイバー強化樹脂」、2019 年 11 月
- 11) 経済産業省.” 家電リサイクル法(特定家庭用機器再商品化法)”. 経済産業省.
https://www.meti.go.jp/policy/it_policy/kaden_recycle/index.html, (参照 2020.2.26)
- 12) 日本 LCA 学会「温室効果ガス排出削減貢献量算定ガイドライン」、2015 年 2 月
- 13) 経済産業省「温室効果ガス削減貢献定量化ガイドライン」、2018 年 3 月
- 14) 環境省「令和元年度脱炭素社会を支えるプラスチック等資源循環システム構築実証事業公募要領(二次公募)」、令和元年 7 月
- 15) 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 安全科学研究部門 社会と LCA 研究グループ、一般社団法人 産業環境管理協会「LCI データベース IDEA version 2.1.3」、2017 年 2 月
- 16) Sun, X.Z.; Moon, D.; Minowa, T. Evaluation of energy consumption and greenhouse gas emissions in preparation of cellulose nanofibers from woody biomass. Am. Soc. Agric. Biol. Eng. (ASABE)2013、56、1061-1067
- 17) Unwin, G.L; Kriedemann, P.E. PRINSIPLES AND PROCESSES OF CARBON SEQUESTRATION BY TREES. Research and Development Division: State Forests of New South Wales、Australia、2000

リサイクル適性の表示：印刷用の紙にリサイクルできます

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〕のみを用いて作製しています。