

令和3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

(セルロースファイバーによる化石資源由来プラスチック使用量の削減)

委託業務

成果報告書

令和4年2月

トクラス株式会社

要旨

近年、射出成形製品で、軽量化や環境対応の観点から、木粉等セルロースフィラー（以下 CF）添加ポリプロピレン（以下 PP）部品が注目されており、自動車や家電部品の一部で利用されているが、普及拡大には至っていない。化石資源由来プラスチックの一部を CF に置き換え、化石資源使用量の削減を更に促す為には、以下の技術的課題を解決する必要がある。

- CF の添加量が多くなるほど、流動性が低下し、既存のプラスチック生産設備で製造できなくなる。
- 求める用途性能に対し、適応する CF の形状、添加量等が解明されていない。
- CF を工業製品として供給する為の品質評価手法が確立されていない。
- 家電・OA 機器等のプラスチック製品では難燃性が求められるが、CF 添加量が多くなるほど難燃性の確保が困難となる。
- CF を樹脂に添加することによって耐衝撃性能が低下する。

本事業ではこれらの課題を解決することで、プラスチック産業界へ CF 添加 PP の導入を促し、化石資源由来プラスチック使用量を削減することを目的に以下の取り組みを実施した。

（１）成型流動性を確保する CF の開発

化石資源由来プラスチック使用量の削減には、CF 添加量を増やすことが有効である反面、添加量の増大にともない流動性が低下し、成形が困難となる。本事業では CF の樹脂添加において流動性改善効果のある圧縮処理を用いて、CF の製造条件とその有効性について検証した。圧縮処理は CF 種類を変更した場合においても成型流動性の目標値 MFR 3g/10min 以上を達成した。また、目標コストである CF 価格 100 円/kg 以下を達成する製造条件にて CF 並びに CF 添加 PP の量産時の性能安定性を確認した。これらの取組により、流動性改善に寄与する CF 処理技術を確立することができた。

（２）難燃性を有する複合化技術の開発

CF とポリリン酸アンモニウム（APP）の相乗効果を利用した難燃化は有効であるが、CF40%以上、APP20%以上が必要となり、その多量なフィラーは製品外観に不具合を及ぼす原因となる。この課題に対して、圧縮処理木粉の利用、相容化剤の増量、PP 系ワックスの添加、射出速度の影響を検証することによって、成形外観と難燃性（肉厚 3.2mm：V-0、1.6mm：V-2）を両立する難燃化 CF 添加 PP の処方を確立した。また量産テストにより、その各種性能について確認した。

（３）耐衝撃性能の改善

PP に CF を添加することは、強度・弾性率は上昇する反面、耐衝撃性能は低下する。既

存 PP 製品においても耐衝撃性能を求められることは多く、CF 添加 PP の耐衝撃性を改善することは製品化を進めるにおいて必要な技術である。本事業で確立した α オレフィンコポリマーを添加する耐衝撃処方を圧縮処理された様々な CF に適用した結果、いずれの CF 種類においても耐衝撃性能を改善することができた。また、量産テストにより各種性能について確認した。

（４）CF 性状とその添加量別機械特性評価

CF は種類によってフィラーサイズや形状、木質成分に違いがあり、CF 添加 PP 製品はその CF 性状により様々な機械特性が付与される。本事業では、各種 CF 性状とその添加量（20%~50%）別の機械特性を取得し、データベース化した。得られたデータをもとに CF 性状と機械特性の関係について PLS 解析を行い、CF 特性因子毎の寄与度を抽出し、CF 添加量、嵩比重と近赤外分光分析によって CF 添加 PP の機械特性予測を実施した。その結果、CF 品質の簡易評価項目として嵩比重測定と近赤外分光分析が有効であることを見出した。

（５）製品検証の実施

社会実装に向けた CF 添加 PP の製品検証を行った。輸送包装部材（サイドプロテクター）、複合機用部材（トナーカートリッジ）を対象として成形試作、製品性能の評価を実施し、実製品への適用について評価した結果、いずれの部材においても設計変更を行うことで製品化可能である検証を得ることができた。また、マテリアルリサイクルを想定した多回リサイクル試験を実施し、機械特性に及ぼす影響を調査した結果、難燃処方においては強度面で若干の性能低下が認められたが、それ以外の処方の性能低下は見られず、マテリアルリサイクルが可能である見解を得た。

（６）LCA の検証・評価

圧縮処理された CF を用いた CF 添加 PP のライフサイクルでの CO₂ 排出量を算出し、PP 製品との比較を実施した。原料調達から CF 製造、CF 添加 PP の製造、廃棄（埋立・焼却）までの工程における CO₂ 排出量を試算した結果、CF 添加 PP は PP 製品よりも CO₂ 排出量が少なく、CF 添加量が増加するにつれて CO₂ 排出量が削減することが示された。本事業で目標とした、0.4kg-CO₂e/kg 以上の削減効果は CF20%以上の添加で達成できることが試算された。また、CF 添加による補強効果を加味した薄肉化にて実製品単位で試算した結果、肉厚を 2.0mm から 1.5mm に薄肉化することで約 28%の CO₂ 排出量を削減することが試算された。

以上の取り組みにより、CF 添加 PP をプラスチック産業界に導入するための性能課題を解決することができ、CF 添加 PP を既存プラスチック市場へ展開することによって、本事業の目的である「CF による化石資源由来プラスチック使用量の削減」を達成することが可能であると考ええる。

Summary

Recently, injection molding materials made of cellulosic filler (CF) such as wood flour and polypropylene (PP) composite are being paid attention from the perspective of reducing weight or compatibility with the environment. They are applied in automobile parts or home appliances, but are not yet widely expanded. To reduce the usage of fossil-based plastic by using CF, there are several technical problems to be solved.

- Conventional production facilities are not able to apply for the production of CF-PP composites since increasing CF ratio decreases fluidity of CF-PP composites.
- Optimal CF shapes and addition ratio for various applications are not clarified.
- Quality control methods for industrial application of CF have not been established.
- CF-rich PP composites do not have sufficient fire-retardant property required for home appliances and OA equipment.
- CF addition reduces the impact resistant properties.

The objective of this project is to overcome these problems to promote the use of CF-PP composite in the plastic market and result in the reduction of fossil-based plastic usage.

(1) Development of CF with high fluidity during injection

Increasing CF addition ratio in PP composites is effective for the reduction of fossil-based plastic consumption. However, increasing the CF addition ratio also reduces the fluidity, which results in the difficulty of the molding process. In this project, compression treatment of CF was investigated to enhance the fluidity. Over 3 g/10 min. of MFR was achieved by compression treatment for any CF types. Stability for both CF characteristics and performance of CF-PP composites were confirmed under mass production of CF with the production cost less than 100 JPY/kg. CF processing technique to enhance the fluidity was developed.

(2) Development of technique for producing composite material with fire-retardant property

Although addition of over 40% of CF and 20 % of ammonium polyphosphate (APP) on the PP composites increases the fire-retardant property, such an excessive amount of filler causes the negative effect on the appearance. To achieve both fire-retardant property and acceptable appearance, use of compressed CF, increasing amount of compatibilizer, addition of PP based wax and the effect of injection speed were investigated. Optimal manufacturing conditions for producing CF-PP composites with 3.2 mm thickness/V-0 or 1.6 mm thickness/V-2 were developed. Both appearance and fire-retardant properties of composites were tested through mass production trials.

(3) Improvement of impact resistant properties

Addition of CF on PP increases the tensile strength of modulus, whereas decreases the impact resistant properties. Generally PP-based materials require a certain level of impact resistance,

therefore it is important to improve impact resistant properties of CF-PP composites. In this project, improvement of impact resistant properties of CF-PP composites by the addition of α -olefin copolymer was developed. This method improved the impact resistant property of various compressed CF added PP composites. Other mechanical performances were also evaluated through mass production trials.

(4) Evaluation of mechanical properties with different CF characteristics and addition ratio

Size, shape and chemical composition vary with CF types. Mechanical properties of CF-added PP composites are affected by these CF characteristics. In this project, the relationships among CF characteristics, addition ratio (20-50%) and their mechanical properties of composites were databased. Partial least squares regression analysis was performed to predict mechanical properties. CF characteristics which relate the mechanical properties were investigated based on the regression coefficient. Also mechanical properties of CF-PP composites were predicted by CF addition ratio, bulk density and NIR spectra of CF. It is found that NIR spectroscopy and bulk density are useful for simple evaluation of CF.

(5) Verification of the products

CF-PP composite products were verified for social implementation. A transport packaging material (side protector) and a toner cartridge for the printer were produced and their performance were evaluated. Commercialization would be possible by the modification of design. Influence of multiple recycling on the mechanical properties were also investigated. Although strength properties of fire-retardant products slightly decreased by multiple recycling, that of other products did not decrease.

(6) LCA investigation

CO₂ emission during the life cycle of compressed CF added PP composites was compared with that of neat PP products. CO₂ emission at every process from the procurement of raw materials to production of CF, production of CF-PP composites and landfill or incinerate were estimated. As a result, CF-PP composites emit lower CO₂ than neat PP. Also increasing the CF addition ratio decreased CO₂ emission. A targeted reduction of CO₂ emission (0.4kg-CO₂e/kg) is achieved by using over 20% of CF addition. Mechanical reinforcement by CF addition enabled the thinning of the product. The reduction of the thickness from 2.0 mm to 1.5 mm resulted in the 28% reduction of CO₂ emission.

Technical problems regarding the installation of CF-PP composites into plastic markets were solved by the above -mentioned investigation. It is concluded that the CF is able to reduce the use of fossil-based plastics.

目次

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	7
1.5. 業務の内容	8
1.5.1. 成型流動性を確保する CF の開発	8
1.5.2. 難燃性を有する複合化技術の開発	8
1.5.3. 耐衝撃性能の改善	8
1.5.4. CF 性状とその添加量別機械特性評価	9
1.5.5. 製品検証の実施	9
1.5.6. LCA の検証・評価	9
1.6. 本事業の目標設定	10
1.7. 事業実施体制	11
1.8. 情報共有及び検討会の開催	13
1.9. 実証事業後の波及効果	14
1.9.1. 実証事業終了後の普及計画	14
1.9.2. 実装技術の波及見込	14
2. 業務成果報告	16
2.1. 成型流動性を確保する CF の開発	16
2.1.1. CF 処理技術の検証	16
2.1.2. 圧縮処理 CF の量産テストの実施	40
2.1.3. 圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施	41
2.1.4. まとめ	43
2.2. 難燃性を有する複合化技術の開発	44
2.2.1. 難燃剤配合の検証	44
2.2.2. 難燃化 CF 添加 PP 量産試作の実施	73
2.2.3. まとめ	75
2.3. 耐衝撃性能の改善	76
2.3.1. 耐衝撃性能向上効果の検証	76
2.3.2. 耐衝撃処方 CF 添加 PP 量産試作の実施	84
2.3.3. まとめ	86
2.4. CF 性状とその添加量別機械特性評価	87
2.4.1. 機械的特性への影響評価	87
2.4.2. 耐久特性への影響評価	89
2.4.3. 各種 CF 特性との相関性検証	105
2.4.4. まとめ	134

2.5. 製品検証の実施	135
2.5.1. 輸送・包装部材検証	135
2.5.2. 複合機用部材検証	146
2.5.3. 多回リサイクル性の検証	155
2.5.4. まとめ	158
2.6. LCA の検証・評価	159
2.6.1. 目的	159
2.6.2. 評価方法	159
2.6.3. 評価結果	162
2.6.4. まとめ	174
3. 総括	175

1. 業務の概要

1.1. 業務テーマ

セルロースフィラーによる化石資源由来プラスチック使用量の削減

1.2. 業務の目的

近年、射出成形製品においては軽量化や環境対応の観点から、木粉等セルロースフィラー（以下 CF）添加ポリプロピレン（以下 PP）部品が注目されており、自動車や家電部品の一部で利用されているが、爆発的な普及には至っていない。CF は、サイズや形状、組成が様々で、これらが製品性能に影響を及ぼすことから、製品化の開発負荷は大きく、既存のプラスチック産業界において、積極的に導入検討されていない現状がある。

これら現状をとらえ、CF の添加量が高くなっても汎用のプラスチック生産設備で製造が可能であり、且つ CF のサイズや形状と製品性能の関係を明確化することで、既存プラスチック産業界での導入を促し、化石資源由来プラスチックの使用量の削減につなげることを目的とする。

1.3. 業務の期間

令和 3 年 4 月 1 日から令和 4 年 2 月 28 日

1.4. 本業務に至った背景

プラスチックにタルクや炭酸カルシウムのような無機系の充填剤（以下フィラー）を添加し、補強や増量（プラスチック使用量の削減）する素材は広く利用されているが、その充填量には限界がある。そうした中、CF（木粉等）を PP 等に添加したウッドプラスチックコンポジット（WPC）の需要がエクステリア用途を中心に拡大している。CF の特徴はフィラーの柔軟性が高いがゆえに添加率を高めることができ、WPC の既存国内流通製品はフィラー添加率が 50 %を超えている。

これはプラスチック使用量の削減にも繋がり、特に射出成形製品分野において軽量化や環境対応の視点からも CF 添加 PP への注目は高まっている。しかしながら、CF 添加 PP には、「CF の高充填に伴う流動性の低下」、「家電部品等で求められる難燃性の確保」、「CF 添加による耐衝撃性能の低下」、「CF 添加 PP の性能を把握する為の開発負荷」、「CF 品質管理手法・品質基準の確立」等の課題があり、爆発的な普及には至っていない。そこで本事業では「成型流動性を確保する CF の開発」、「難燃性を有する複合化技術の開発」、「耐衝撃性能の改善」、「CF 特性と機械特性の相関評価による品質基準の確立」及び「製品用途検証」を実施する。

これらの取組みにより CF 添加 PP の用途展開を促し、化石資源由来プラスチックの使用量を削減することにより脱炭素社会の実現に貢献する。

1.5. 業務の内容

1.5.1. 成型流動性を確保する CF の開発

CF 処理技術により、MFR = 3 g/10min 以上の流動性を確保する CF 製造技術を検証すること。

1.5.1.1. CF 処理技術の検証

令和 2 年度に得られた CF 圧縮処理技術を用い、CF の種類（ヒノキ、スギ、紙粉等）が流動性・機械特性に及ぼす影響を調査すること。

1.5.1.2. 圧縮処理 CF の量産テストの実施

圧縮処理 CF の量産テストを実施し、CF 価格 100 円/kg 以下を確保する製造条件について検証すること。

1.5.1.3. 圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施

1.5.1.2 にて製造した圧縮処理 CF と PP のコンパウンドについて、量産試作を実施し、流動性、機械特性を評価すること。必要に応じフィードバック検証すること。

1.5.2. 難燃性を有する複合化技術の開発

燃焼時に CF が炭化層となることで、難燃性が付与できる配合検証から V-0 性能と、成形性（流動性・成形品の外観）を両立する CF 添加 PP の製造条件を検証すること。

1.5.2.1. 難燃剤配合の検証

圧縮処理 CF を用い、V-0 性能と、成形性（流動性・成形品の外観）を両立する処方検証と機械特性について評価すること。また未処理 CF（木粉等）との比較検証を実施すること。

1.5.2.2. 難燃化 CF 添加 PP 量産試作の実施

難燃化 CF 添加 PP の量産試作を実施し、生産性、難燃性、機械特性を評価すること。必要に応じフィードバック検証すること。

1.5.3. 耐衝撃性能の改善

圧縮処理 CF が添加された PP の耐衝撃性を向上させる処方を検証すること。

1.5.3.1. 耐衝撃性能向上効果の検証

令和 2 年度に得られた耐衝撃性処方と圧縮処理 CF を用い、成形性や機械的特性に及ぼす影響を明らかにすること。また CF と樹脂混合後の圧縮処理について耐衝撃性能向上の有無を明らかにすること。

1.5.3.2. 耐衝撃処方 CF 添加 PP 量産試作の実施

耐衝撃処方 CF 添加 PP の量産試作を実施し、生産性、耐衝撃性等機械特性を評価すること。必要に応じフィードバック検証すること。

1.5.4. CF 性状とその添加量別機械特性評価

CF の形状×添加量（20%～50%）の組み合わせによる機械特性、耐久特性の関係を体系化し、各種性能に及ぼす影響を明らかにすること。

1.5.4.1. 機械的特性への影響評価

1.5.1 において作製した CF の種類が機械的特性に及ぼす影響を明らかにすること。

1.5.4.2. 耐久特性への影響評価

1.5.1 にて作製した CF が耐久特性に及ぼす影響を明らかにすること。

1.5.4.3. 各種 CF 特性との相関性検証

1.5.4.1 の評価結果について CF 性状と流動性、機械特性の相関評価を実施し、データベースとして整理すること。得られた結果を元に CF 性状の簡易評価項目を抽出すること。

1.5.5. 製品検証の実施

1.5.5.1. 輸送・包装部材検証

昭和プロダクツの輸送包装部材（プロテクター等）について、従来材料と CF 添加 PP の機械特性比較や部材の成型試作を実施し、用途適正の検証を行うこと。

1.5.5.2. 複合機用部材検証

コニカミノルタの複合機用部材（トナーカートリッジ等）について、従来材料と CF 添加 PP の機械特性比較や部材の成型試作を実施し、用途適正の検証を行うこと。

1.5.5.3. 多回リサイクル性の検証

圧縮処理を用いた CF 添加 PP について、多回リサイクルを想定した試験を行い機械特性へ及ぼす影響について評価すること。

1.5.6. LCA の検証・評価

1.5.6.1. 消費電力の測定

CF 添加 PP の量産テストにおける各工程の消費電力測定を行うこと。

1.5.6.2. CO2 排出量の算出

実測した消費電力データからライフサイクルでの CO2 排出量の算出と、ポリプロピレン樹脂に対する削減効果を算出すること。CO2 排出量の 0.4 kg-CO2/kg 以上を実現する条件を算出すること。

1.6. 本事業の目標設定

本実証事業の目標を表 1-1 に示す。CF 添加 PP は石油化学由来プラスチック使用量の削減に寄与するが、現状として普及には多くの課題がある。本事業では下記に示す課題を解決することで CF 添加 PP の普及を促進する。

表 1-1 本事業における課題と目標

	項 目	採択時の技術の状況	本年度の目標	最終目標
0	全体目標	CF は、サイズや形状、組成が様々で、これらが製品性能に影響を及ぼすことから、製品化の開発負荷は大きく、汎用設備で対応ができない課題がある。	CF 添加 PP の流動性・難燃性・耐衝撃性、バイオマス原料の品質評価等の課題解決に係る実証として、本年度は下記項目の内容を実施する。	汎用の生産設備で成型が可能であり、流動性・難燃性・耐衝撃性等の機能付加された CF 添加 PP の量産実証を実施する。また CF のサイズや形状と製品性能の関係を明確化する。
1	成型流動性を確保する CF の開発	流動性確保において、木質成分の影響、嵩比重の影響等が大きく、水熱処理、圧縮処理により流動性が改善した。流動性改善効果として水熱処理と比較し、圧縮処理が有効な結果を示した。	CF 圧縮処理を用い、流動性（MFR = 3 g/10min 以上）の確保と CF 価格 100 円/kg 以下を確保する製造条件の検証、並びに CF 添加 PP の量産テストを行う。	流動性（MFR = 3 g/10min 以上）を確保する CF の量産実証並びに CF 価格 100 円/kg 以下を確保する CF 量産技術を検証する。
2	難燃性を有する複合化技術の開発	CF40~50%難燃剤 20%添加にて、V-0 を確保する配合処方を検証した結果、成型品外観に課題がある。	V-0 の確保と成形性（流動性・成形品の外観）を両立する CF 添加 PP の難燃化配合処方を検証し、量産テストを行う。	実製品に利用可能な成形性と V-0 の難燃性を有する CF 添加 PP の量産技術を検証する。
3	耐衝撃性能の改善	CF 添加 PP の耐衝撃性について、CF 粒径のサイズダウンと α オレフィンコポリマーを添加することにより、耐衝撃性を改善する処方を見出した。	耐衝撃処方と圧縮処理 CF 添加 PP の材料検証を実施し、量産テストを行う。	従来 CF 添加 PP の 2 倍以上の耐衝撃性能を確保する CF 添加 PP の量産実証を行う。
4	CF 性状とその添加量別機械特性評価	各種 CF について、添加量 20%~50%のサンプルの機械特性評価を実施し、CF 形状と機械特性の相関性評価を実施した。	CF の特性因子（成分、形状）及び添加量と流動性、機械特性との関係をデータベースとして整理、相関評価を実施し、CF 性状の簡易評価項目を抽出する。	CF の特性因子（成分、形状）及び添加量と製品性能の関係を明確化する。バイオマスの種類、状態等簡易評価手法に基づく品質基準を策定する。
5	製品検証の実施	従来材料と CF 添加 PP の機械特性比較を実施し、用途検証として輸送包装部材、複合機部材について成型試作、用途検証を実施した。	CF 添加 PP の量産試作材料を用いて、製品試作を実施し、用途適正検証を実施する。また多回リサイクル性について評価する。	CF 添加 PP を用いた実製品の量産実証、用途適性の検証を行う。
6	LCA の検証・評価	水熱処理 CF 添加 PP についての CO ₂ 削減効果について試算を行い、課題抽出を行った。	量産テストにより得られたデータを元に汎用ポリプロピレン樹脂に対する 0.4kg-CO ₂ /kg 以上の削減効果を確保する条件を算出する。	量産実証により得られたデータを元に汎用ポリプロピレン樹脂に対する 0.4kg-CO ₂ /kg 以上の削減効果を確保する条件を明確化する。

1.7. 事業実施体制

本事業の実施体制図と各機関の役割分担表をそれぞれ図 1-1 及び表 1-2 に示す。トクラス株式会社を事業代表機関とし、CF の化学的な解析実績のある「産業技術総合研究所」、用途拡大に必要な難燃化技術を有する「同志社大学」、様々なプラスチック製品をすでに製造販売しており、汎用プラスチック射出成形品の高い生産技術力と市場知識の豊富な「昭和プロダクツ株式会社」および「コニカミノルタ株式会社」の 4 機関が共同実施機関として参画した。また、代表機関である「トクラス株式会社」は、これまでの WPC（ウッドプラスチックコンポジット）および CNF（セルロースナノファイバー）複合材料の製造及び開発経験によって培った技術と産学官を含めた幅広い連携を利用し事業を遂行することが可能である。

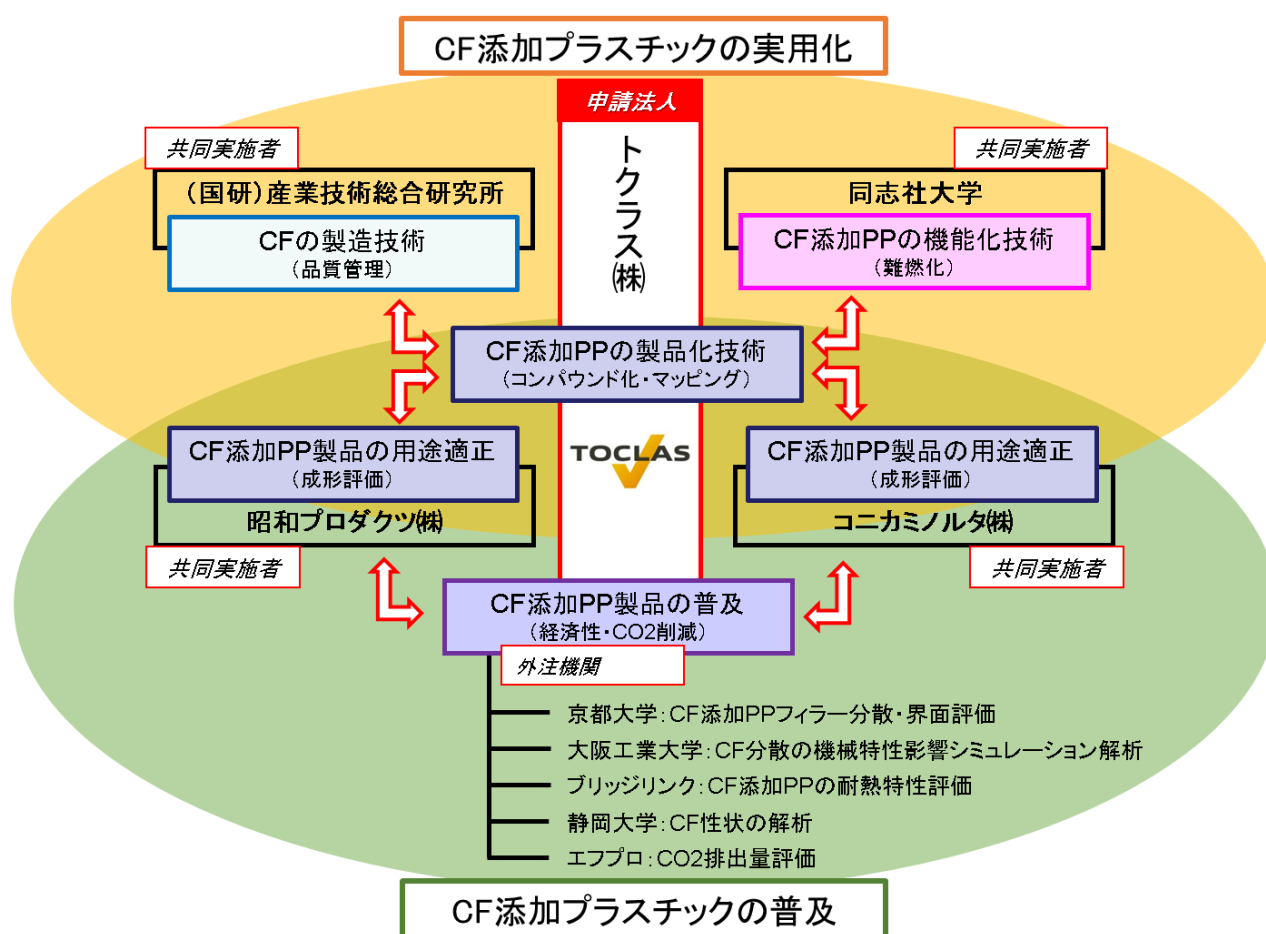


図 1-1 実施体制図

表 1-2 本年度実施テーマと担当実施機関

テーマ		担当機関
(1) 成型流動性を確保する CF の開発		
① CF 処理技術の検証		トクラス 産業技術総合研究所 昭和プロダクツ
② 圧縮処理 CF の量産テストの実施		トクラス
③ 圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施		トクラス
(2) 難燃性を有する複合化技術の開発		
① 難燃剤配合の検証		トクラス 同志社大学 ユニカミノルタ
② 難燃化 CF 添加 PP 量産試作の実施		トクラス
(3) 耐衝撃性能の改善		
① 耐衝撃性能向上効果の検証		トクラス 昭和プロダクツ
② 耐衝撃処方 CF 添加 PP 量産試作の実施		トクラス
(4) CF 性状とその添加量別機械特性評価		
① 機械的特性への影響評価		トクラス 同志社大学
② 耐久特性への影響評価		トクラス 同志社大学 昭和プロダクツ
③ 各種 CF 特性との相関性検証		トクラス 産業技術総合研究所
(5) 製品検証の実施		
① 輸送・包装部材検証		トクラス 昭和プロダクツ
② 複合機用部材検証		トクラス ユニカミノルタ
③ 多回リサイクル性の検証		トクラス 昭和プロダクツ ユニカミノルタ
(6) LCA の検証・評価		
① 消費電力の測定		トクラス
② CO2 排出量の算出		トクラス

1.8. 情報共有及び検討会の開催

本業務を円滑に遂行するにあたり、下記のスケジュールにて事業推進会議等を実施した。実施内容の詳細を表 1-3 に示す。

表 1-3 事業推進会議等の実施内容

開催日	場所	参加機関		主な議題
キックオフミーティング				
21/5/7	Web	トクラス	コニカミノルタ	● 事業概要説明 ● 仕様書、役割確認 ● スケジュール確認
21/5/11			昭和プロダクツ	
21/5/12			同志社大学	
21/5/12			産業技術総合研究所	
第 1 回進捗共有会議				
21/7/13	Web	トクラス	コニカミノルタ 同志社大学	● 試験打合せ
第 2 回進捗共有会議				
21/9/8	Web	トクラス	コニカミノルタ	● 進捗確認
21/9/8			昭和プロダクツ	
21/9/10			同志社大学	
第 3 回進捗共有会議				
21/10/1	Web	トクラス	昭和プロダクツ	● 試験打合せ
現地視察会及び検討会				
21/11/11	トクラス (現地/Web)	環境省		● 事業概要説明 ● 計画、進捗報告 ● トクラスの設備見学 ● その他
		監査法人トーマツ		
		トクラス		
		産業技術総合研究所		
		同志社大学		
		昭和プロダクツ		
コニカミノルタ				

1.9. 実証事業後の波及効果

1.9.1. 実証事業終了後の普及計画

図 1-2 には、実証事業終了後の普及計画を示す。2030 年には、想定規模の 70 %弱を目標とする。対象とする各産業分野においては、評価等の製品化までに要する期間が違いため、実用化の時期が異なっている。また、分野において、PP 製品生産側の製造規模、利用側の用途により、使用量が違いため、増加率も分野により異なってくる。本事業参画および連携メンバーによる実績を作成するとともに、本事業成果で得られたデータベースを活用し、あえて競合を参入させることで市場拡大を図る。

		22年	23年	24年	25年		30年
想定事業規模	販売量	1.0千t/年	7.5千t/年	24千t/年	53千t/年		580千t/年
	シェア	0.1%	0.9%	2.8%	6.2%		68.4%
事業の マイルストーン	全体	実績作り=本事業参画機関および関連企業で実施				業界団体の設立	目標市場シェア30%
	商品展開	★CFおよびCFコンパウンドのサンプルワーク開始(⇒中小メーカー成形中心) ★参画および協力機関の自社販売製品を中心に展開 ↳輸送容器⇒家庭用品・家具⇒建設・産業資材⇒電気・電子機械⇒自動車の順に立上げ ↳差別化技術(ノウハウ)の蓄積				競合参入	相乗効果による市場拡大
						★同業他社へのOEM展開	自社製品拡大

図 1-2 事業終了後の普及計画

1.9.2. 実装技術の波及見込

PP 製品が代替できていないプラスチック分野として、ABS (AS) 樹脂と塩ビ樹脂製品が挙げられる。ABS (AS) 樹脂を使用する製品では、強度と加工性（接着、塗装等）が求められるケースが多く、これらの特性を有していない PP 製品では代替できない。CF 添加 PP 製品は、CF の補強効果により、高強度化が実現でき、かつ、CF 添加量が多くなるほど、接着や塗装の加工性も向上する。これら加工特性が付与されることで、ABS (AS) 樹脂製品代替の可能性が見込める。また、ABS (AS) 製品は、PP 製品 (CF 添加 PP 製品) と同じ成形加工方法であるため、求める製品のスペックが合致すれば、現場での導入は容易である。実際に、家電部品では、ABS 代替として CF 添加 PP 製品が用いられた実績がある。加えて、ABS (AS) 樹脂製品は、PP 製品に比べ、コストが高いため、仕様が合致すれば、コスト面からも普及拡大が期待できる。

塩ビ樹脂製品は、耐候性や難燃性が付与でき、これらの特性を有していない PP 製品では代替できない。本事業では、難燃性付与も目標の一つであり、この用途に関しては、代替できる可能性は高い。耐候性面でも、エクステリア用途のウッドデッキで CF 添加 PP 製品が利用されており、実績もある。しかしながら、塩ビ製品の成形加工方法は、PP 製品 (CF 添加 PP 製品) と異なるため、現場に導入するためには、塩ビ加工方法へ対応できる配合、条件等を検証する必要がある。したがって、普及拡大には、この課題解決は必須となる。また、特定分野ではあるが、ABS (AS) 樹脂、塩ビ樹脂製品共通の特徴として、木質感の意匠が求められる分野に利用されている（住宅用の手すり、取手等）。CF 添加 PP 製品は高

い木質感を有しており、代替利用においては、この分野への展開が最も早いと考えられる。

以上の背景をもとに、表 1-4 に、代替が見込まれる数量を示す。総量でおよそ 155 千 t 年程度と予想される。ABS (AS) 樹脂に関しては、コスト的なメリットもあるので、比率を高くしている。しかしながら、PP 製品に比べると、代替率は低い。これは、中小を中心に樹脂製品メーカーの多くが樹脂の種類ごとに分業されているために、樹脂変更に対する抵抗感も強いと想定されることが理由となる。したがって、普及には、ABS (AS)、塩ビユーザーニーズの高まりが重要で、PP 製品への普及がそのトリガーとなると予想される。

表 1-4 ABS 樹脂及び塩ビ樹脂への波及見込

代替対象材	想定規模	ターゲット	代替率	代替量
ABS(AS)樹脂	437 千 t/年	ほとんどの製品をターゲットと想定	30 %	131 千 t/年
塩ビ樹脂	121 千 t/年	ターゲットは、建材用途が中心	20%	24 千 t/年

2. 業務成果報告

2.1. 成型流動性を確保する CF の開発

化石資源由来プラスチック使用量の削減には、CF 添加量を多くすることが有効であるが、反面、添加量の増大にともない流動性が低下し、成形が困難となる。本事業では CF の樹脂添加において流動性改善効果のある圧縮処理を用いて、その有効性について検証した。樹種違いとしてヒノキ、スギ、産業廃材として発生する紙廃材（紙粉）のいずれの材料においても、圧縮処理は成型流動性の目標値 MFR 3g/10min 以上を達成することができる有効な処理方法であることを確認した。また、目標コストである CF 価格 100 円/kg 以下を達成する CF 製造条件並びに圧縮処理 CF を用いた CF 添加 PP について量産安定性を確認した。これらの取り組みにより、成型流動性と目標価格を達成できる CF の製造技術を確立した。

2.1.1. CF 処理技術の検証

2.1.1.1. 圧縮処理技術の検証

2.1.1.1.1. 目的

これまでの検証によって、CF 添加 PP に成型流動性を付与する方法として、CF の圧縮処理による意図的な嵩比重の制御についての有効性を確認し、最適な条件を見出した。そこで、今年度は CF の種類が異なる場合における圧縮処理の効果について検証した。

2.1.1.1.2. 原材料

令和 2 年度まで使用したヒノキチップに加え、スギチップと紙廃材（紙管由来）を用いた。スギは樹種の違いにおける影響を調査し、紙廃材は CF の種類の適用範囲の拡大可能性の検証のために選択した。



ヒノキチップ



スギチップ



紙廃材ブリケット（紙粉用）

図 2-1-1-1 各種原料の写真

2.1.1.1.3. 試験方法

CF の作製方法概要

圧縮処理 CF の概要を図 2-1-1-2 に示す。衝撃式粉砕機または粗粉砕機で粉砕した CF を後述のディスクペレッター（図 2-1-1-3）にて圧縮処理した。ディスクペレッターは、原料粉体を乾式で圧縮し、ペレット状に加工するための「乾式押出造粒機」である。原料を上部から自然落下で供給し、ローラーにて加圧しながら細孔のあるディスクダイを通過することで圧縮ペレットを作製する。本工程を用いて、CF を圧縮ペレット化し、マスコロイダー（増幸産業社製）にて解繊することで圧縮処理 CF を得た。本項で用いた各種 CF の作成条件を表 2-1-1-1 に示す。



図 2-1-1-2 圧縮処理 CF の概要図

表 2-1-1-1 CF の作製条件

Name	粉砕工程		ペレッター ダイス孔径 [mm]	マスコロイダー クリアランス [μm]
	衝撃式粉砕	粗粉砕		
	メッシュサイズ	スクリーン径		
未処理ヒノキ	φ0.5	-	-	-
圧縮ヒノキ	φ0.5	-	φ4	200
未処理スギ	φ0.5	-	-	-
圧縮スギ	φ0.5	-	φ4	200
未処理紙粉	-	φ8	-	200
圧縮紙粉	-	φ8	φ4	200

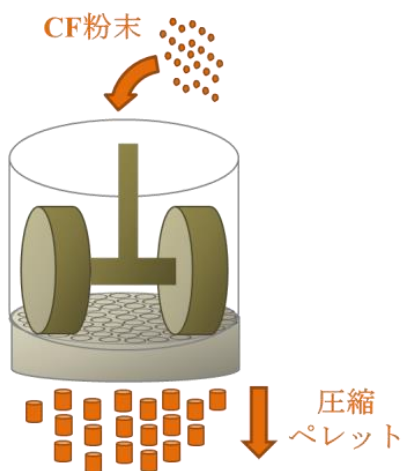


図 2-1-1-3 ディスクペレッター（左）とその処理概要（右）

CF 添加 PP の作製方法

表 2-1-1-2 に示す配合条件に従い、ヒノキ、スギ、紙粉についてそれぞれ未処理品と圧縮処理品を用いて、PP（MFR = 30 g/10min）及び無水マレイン酸変性ポリプロピレン（以下 MaPP）と配合し、二軸押出機（TEX28、JSW 社製）にてペレット状のコンパウンドを得た。図 2-1-1-4 に CF 添加 PP 作製の概要と作製されたコンパウンドの一例を示す。



図 2-1-1-4 CF 添加 PP 作製の概要とサンプル例

表 2-1-1-2 配合条件

	CF [%]	PP [%]	MaPP [%]
CF 添加 20%品	20.0	79.2	0.8
CF 添加 30%品	30.0	68.8	1.2
CF 添加 40%品	40.0	58.4	1.6
CF 添加 50%品	50.0	48.0	2.0

2.1.1.1.4. 試験結果

圧縮処理による CF の特性

CF の種類の異なる場合における圧縮処理の効果について評価した。図 2-1-1-5 には、各種 CF に圧縮処理を施した際の嵩比重の変化について示す。今回使用したヒノキ、スギおよび紙粉の未処理時の嵩比重は 0.11~0.13 であったが、いずれの CF も圧縮処理によって嵩比重は 2 倍以上に変化した。よって、圧縮処理は CF の嵩比重を制御する方法として有効であり、CF の種類を問わずに使用できる手法であることが確認できた。

また、各 CF の粒度分布を図 2-1-1-6 に、平均粒子径を図 2-1-1-7(左)に示す。未処理 CF では 200 μm 以上の大きな粒子が多く含まれているが、圧縮処理と解繊によって粒子が微細化する傾向にあることが確認された。紙粉についてはヒノキやスギと比較して未処理品と圧縮処理品の粒度分布が似ているが、これは最終工程である解繊工程が同じであるためと考えられる。その場合においても、圧縮処理により、200 μm 以上の粒子が減少し、100~200 μm の粒子が増加していることが確認できた。よって、紙粉においても圧縮処理による粒子の変化が生じていることが言える。そこで、圧縮処理による粒子径状の変化を走査電子顕微鏡 (SEM) にて観察した (図 2-1-1-8)。未処理 CF では、CF の種類にかかわらず繊維状でアスペクト比の大きい形状物が確認できた。圧縮処理はそれらを押し固めて、粒状に変化させていることがわかる。この粒状への変化によって、充填した際の空隙率が小さくなることにより、比表面積 (図 2-1-1-7(右)) が減少し、嵩比重が大きくなったことが推察される。

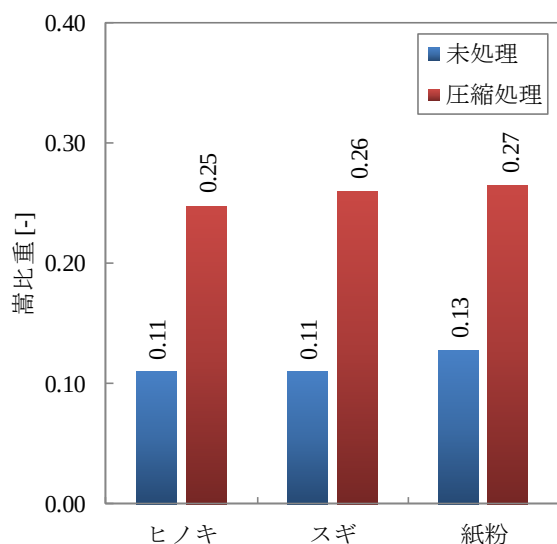


図 2-1-1-5 圧縮処理による嵩比重変化 (左) と圧縮前後での嵩比較写真(右)

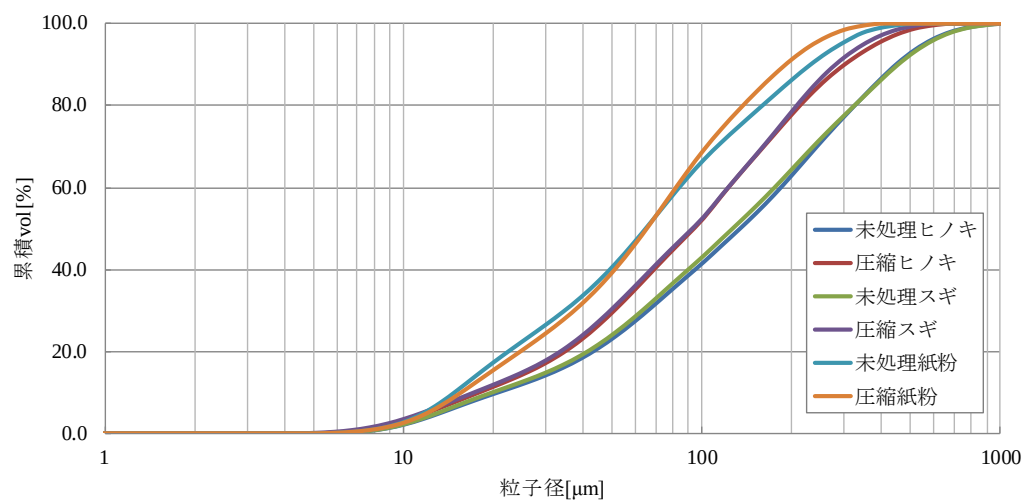


図 2-1-1-6 各種 CF の粒度分布結果

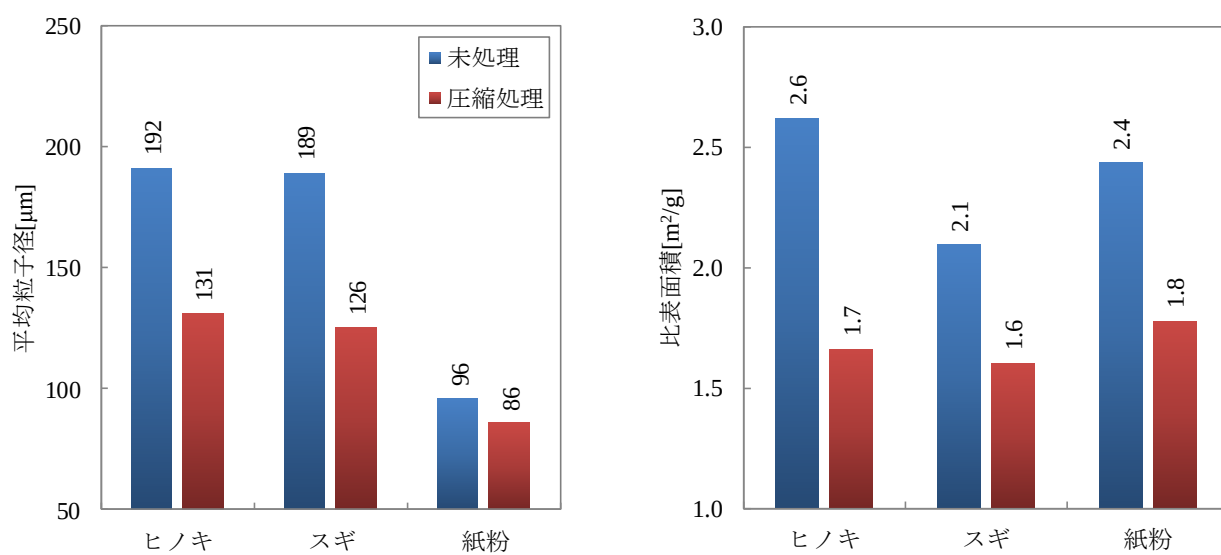
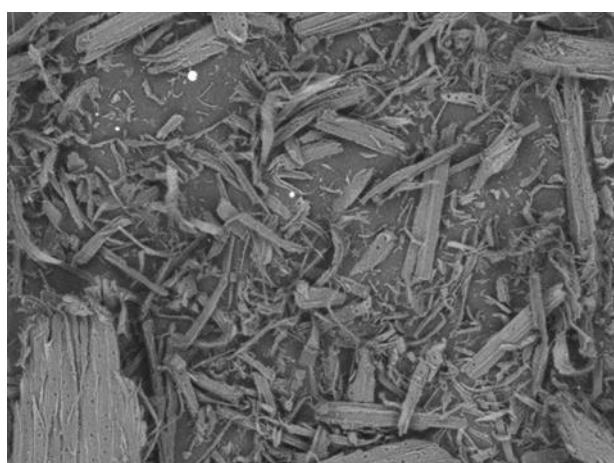
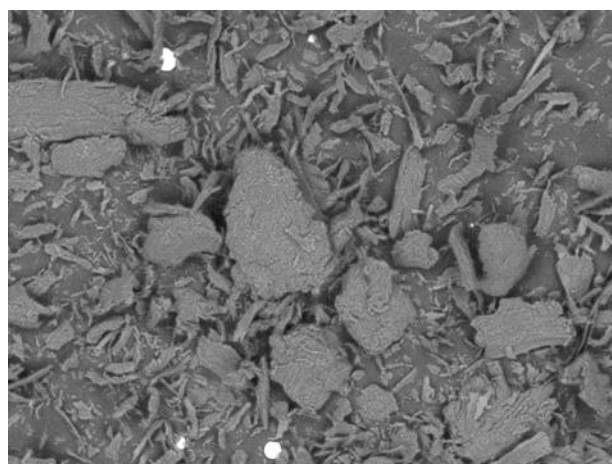


図 2-1-1-7 圧縮処理による平均粒子径（左）、比表面積（右）への影響



-- 未処理ヒノキ

HL D9.1 x150 500 μm



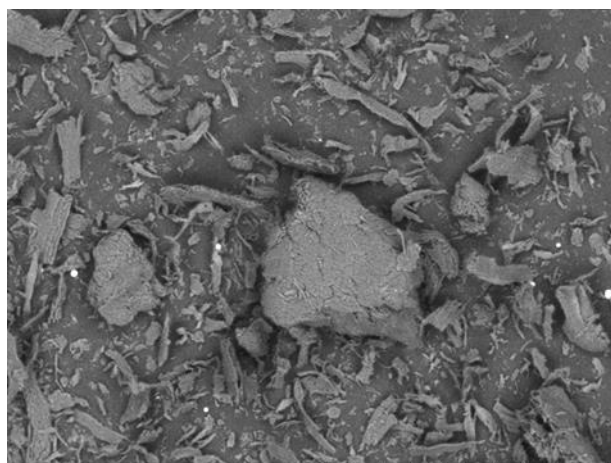
-- 圧縮処理ヒノキ

HL D8.8 x150 500 μm



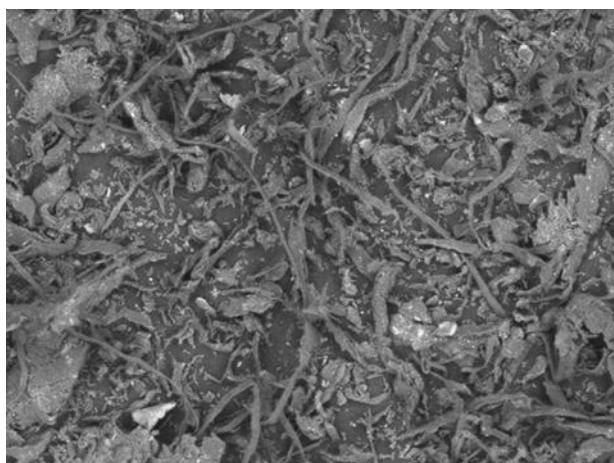
-- 未処理スギ

HL D9.0 x150 500 μm



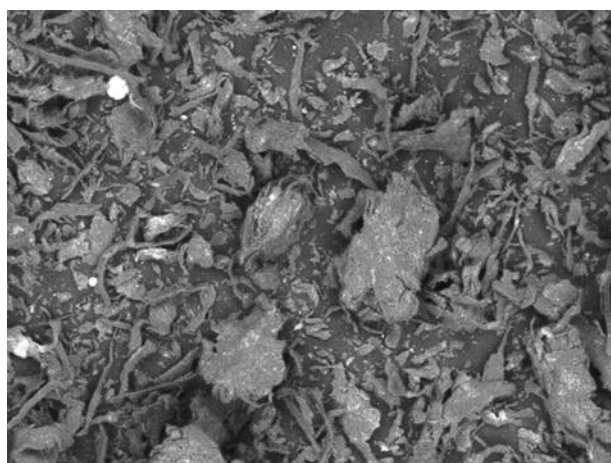
-- 圧縮処理スギ

HL D8.7 x150 500 μm



-- 未処理紙粉

HL D9.0 x150 500 μm



-- 圧縮処理紙粉

HL D8.9 x150 500 μm

図 2-1-1-8 各種 CF の SEM 画像

続いて、CF 形状以外の特性について、圧縮処理による影響を評価した。図 2-1-1-9 には、各種 CF の圧縮処理前後における CF の木質成分を示す。この結果より、圧縮処理は CF の成分には影響を及ぼさないことが確認された。

また、図 2-1-1-10 には各種 CF の安息角を示す。圧縮処理によって全 CF の安息角が小さくなる傾向が見られた。これは、SEM 画像で見られたように、繊維状から粒状へ変化したことによる粒子同士の絡み合いの軽減によって、粉体流動性が改善された結果と考えられる。後述する圧縮処理による CF 添加 PP の流動性改善効果は、安息角の変化で見られた CF 自身の流動性も寄与している可能性が示唆された。

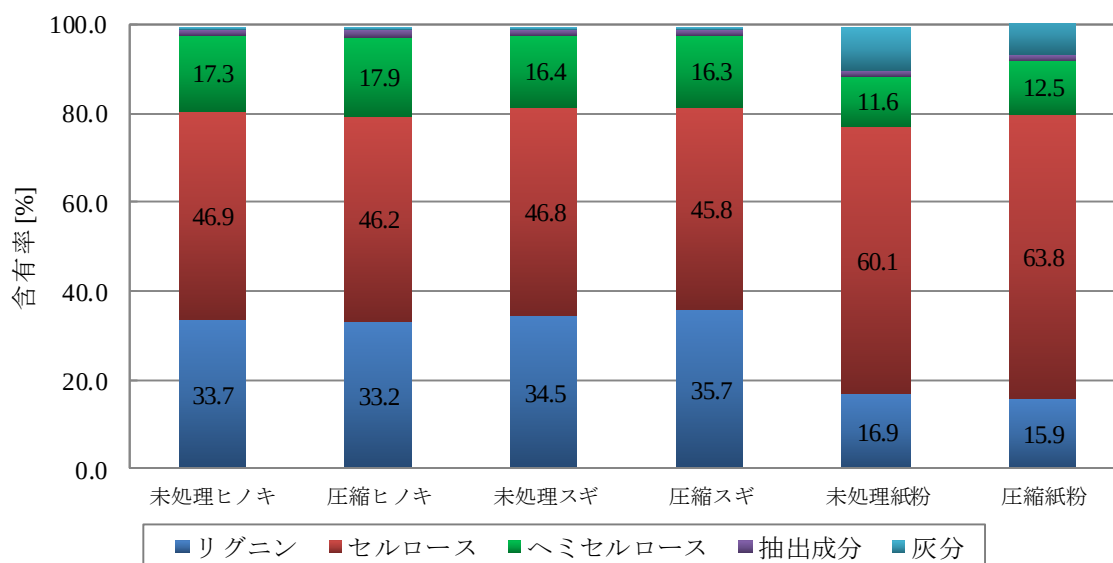


図 2-1-1-9 圧縮処理前後における各種 CF の木質成分比較

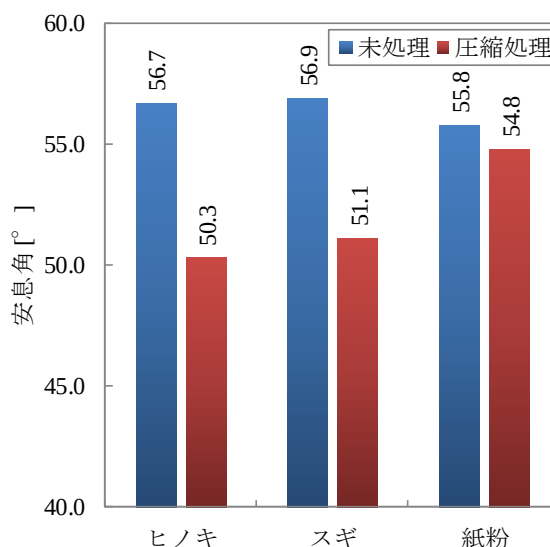


図 2-1-1-10 各種 CF の安息角

圧縮処理による CF 添加 PP の流動性への影響評価

前項で作製した CF を PP と複合し、CF 添加 PP として流動性を評価した。令和 2 年度の結果では、圧縮処理ヒノキによって CF 添加量が 50% の場合においても数値目標である MFR=3 g/10min 以上を達成できることを確認している。

今年度は、CF の種類が異なる場合においても、同様に 50%CF 添加 PP における MFR=3 g/10min 以上の達成を目指した。以下にその結果を示す(図 2-1-1-11)。どの CF においても未処理では目標値に到達しなかったが、圧縮処理によって全ての CF の種類において流動性の目標値を達成した。また、圧縮処理によって変化した嵩比重と流動性には正の相関が見られた。この結果、CF 添加 PP の流動性を改善する方法として、圧縮処理は有効であり、測定の簡易な嵩比重で流動性を制御できる可能性が示唆された。

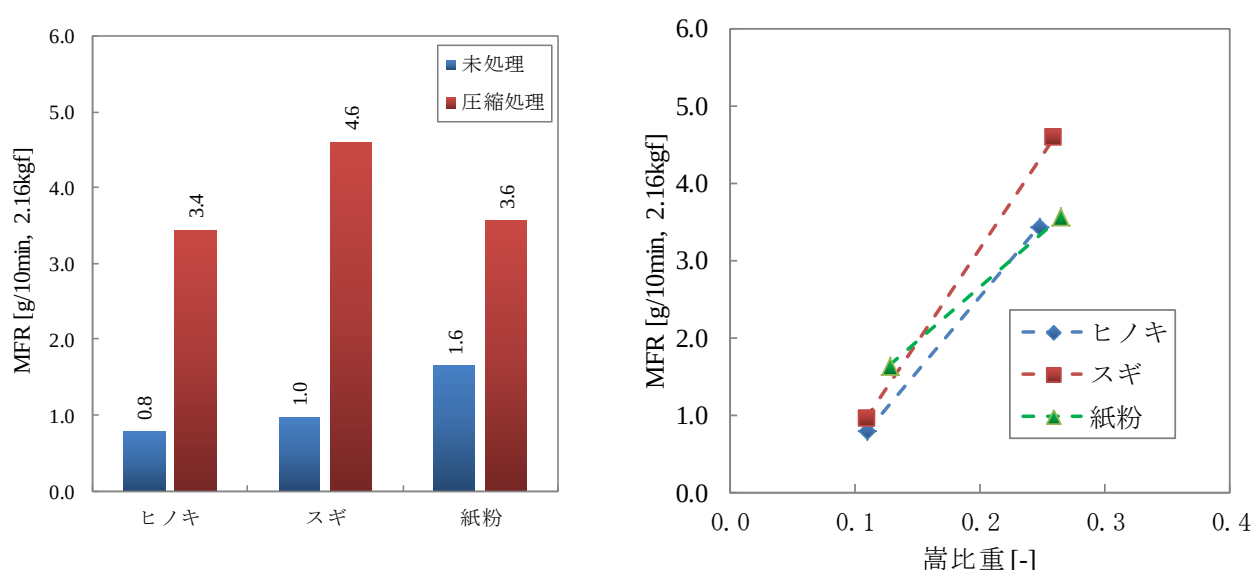


図 2-1-1-11 各種 CF の流動性

圧縮処理による CF 添加 PP の機械的特性への影響評価

前述の結果より、圧縮処理 CF は嵩比重をはじめとする CF 形状を変化させ、それにより CF 添加 PP における流動性を改善することが確認できた。一方で、令和 2 年度までの結果において、嵩比重の変化は各種機械的特性への影響を及ぼすことも分かっている。そこで、本項では各種 CF の圧縮処理に伴う CF 添加 PP の機械的特性への影響について調査した。図 2-1-1-12 では、各種 CF における曲げ強度、引張強度および衝撃強度について圧縮処理の有無による比較を実施した。その結果、圧縮処理によって機械的特性は低下する傾向が確認された。曲げ強度及び引張強度における低下は、CF 形状が繊維状から粒状に変化したことにより、補強効果が減少したことに起因すると推察される。一方、衝撃強度は圧縮処理による低下が確認されたものの、他と比べて変化は小さかった。これにより、衝撃強度に効く因子として、フィラー形状の変化よりもマトリクス樹脂とフィラーとの界面接着性などの別因子の影響が大きいことが示唆された。

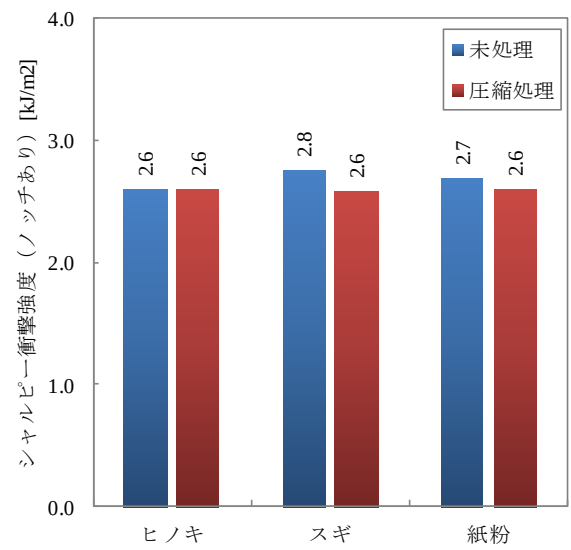
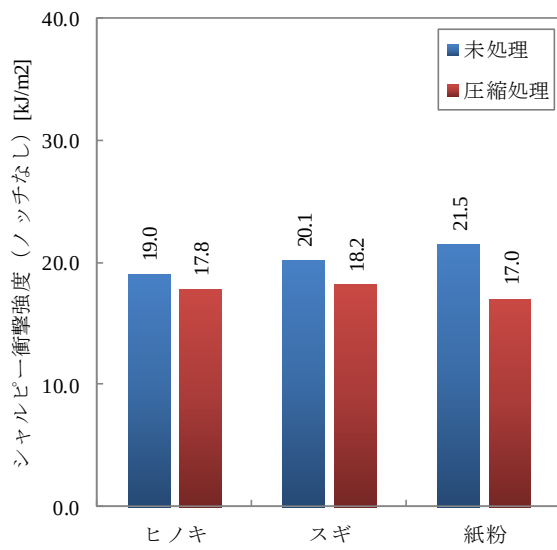
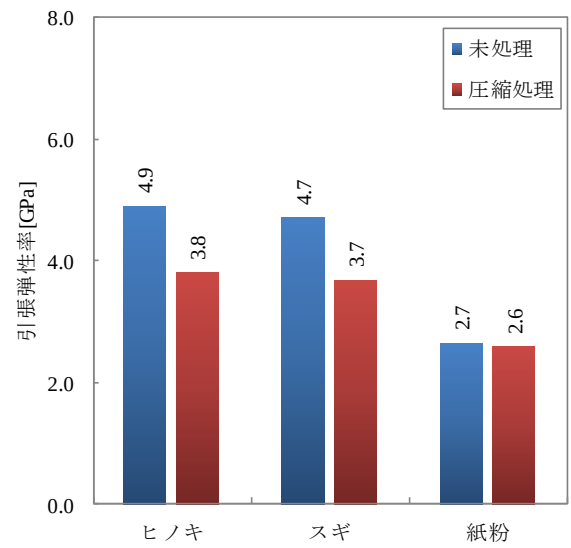
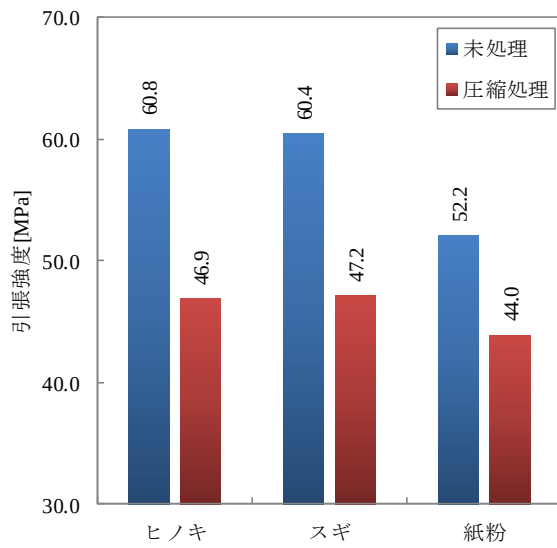
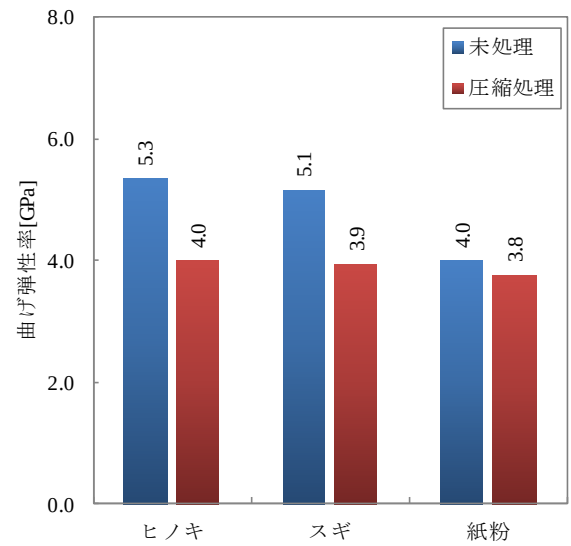
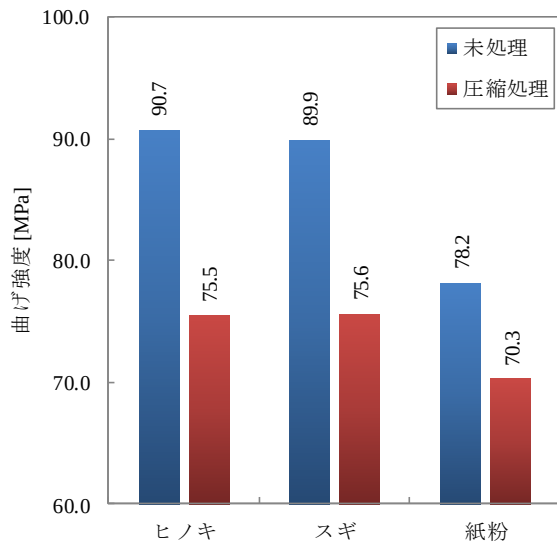
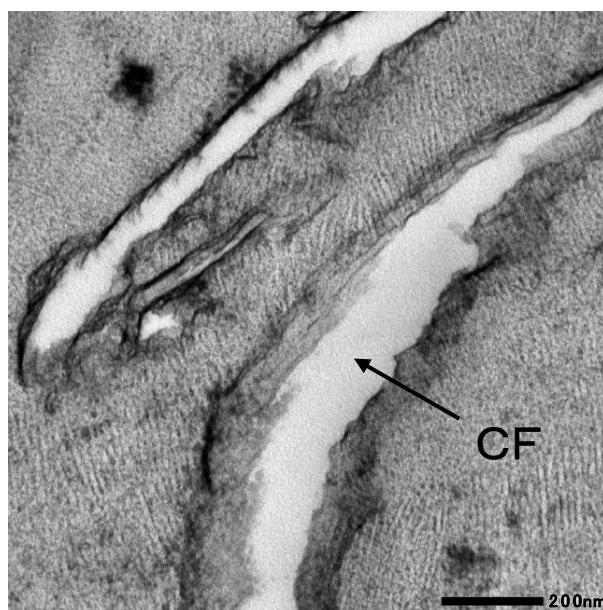


図 2-1-1-12 各 CF を用いた 50%CF 添加 PP の機械特性

2.1.1.2. 分散性評価

CF 添加 PP のような複合材においては、樹脂とフィラーの界面や、フィラーの分散状況が機械特性に大きく影響する。CF と樹脂との界面を観察した結果（図 2-1-1-13）から、界面には隙間が無いことが確認できおり、本項では CF の分散性について評価を実施した。未処理あるいは圧縮したヒノキ、スギ、および紙粉をフィラー、無水マレイン酸変性ポリプロピレン（MaPP）を相容化剤とした CF 添加 PP の射出成形体について、平滑な断面をダイヤモンドワイヤーソーにより切り出した。切断面におけるセルロース成分を、Calcofluor White で蛍光標識し、蛍光顕微鏡観察を行った。得られた蛍光画像について、蛍光染色部位を CF と考えて、CF の平均粒子径（断面積）を求めた。 $n = 5$ で平均粒子径の平均（ave）、標準偏差（SD）、およびそれらの比の変動率（ $CV (= SD/ave)$ ）を求めた。ave は、あらかじめ圧縮した CF の複合体中での凝集を示している様子だった。ただし $p < 0.05$ で有意差はなかった。複合体中での平均粒子径のバラつきを示す SD と CV は、CF の圧縮によって小さくなった（紙粉では顕著ではなかった）。これは圧縮によって CF の粒子径が画一化されたことを意味するようであった。次いで、CV の物性値との相関を回帰分析した。強度と弾性率への影響は強かった一方、伸び率や衝撃強度への影響は有意でなかった。



※PP（濃灰色）の海に CF（薄灰色）が分散する海島構造

図 2-1-1-13 透過電子顕微鏡（TEM）による CF と樹脂の界面観察結果
【圧縮処理ヒノキを利用した CF50%添加 PP 倍率：×100,000】

2.1.1.2.1. 試験方法

試料

CF としてヒノキ、スギ、紙粉（未処理および圧縮処理）を用いた CF 添加 PP の射出成形体を試料として使用した。サンプルコードと配合表を表 2-1-1-3 および表 2-1-1-4 に示す。

表 2-1-1-3 未処理試料のサンプルコードと配合表

サンプル コード	未処理 ヒノキ	未処理 スギ	未処理 紙粉	PP	MaPP
ヒノキ 20%	20%			79.2%	0.8%
ヒノキ 30%	30%			68.8%	1.2%
ヒノキ 40%	40%			58.4%	1.6%
ヒノキ 50%	50%			48.0%	2.0%
スギ 20%		20%		79.2%	0.8%
スギ 30%		30%		68.8%	1.2%
スギ 40%		40%		58.4%	1.6%
スギ 50%		50%		48.0%	2.0%
紙粉 20%			20%	79.2%	0.8%
紙粉 30%			30%	68.8%	1.2%
紙粉 40%			40%	58.4%	1.6%
紙粉 50%			50%	48.0%	2.0%

表 2-1-1-4 圧縮試料のサンプルコードと配合表

サンプル コード	圧縮 ヒノキ	圧縮 スギ	圧縮 紙粉	PP	MaPP
圧縮ヒノキ 20%	20%			79.2%	0.8%
圧縮ヒノキ 30%	30%			68.8%	1.2%
圧縮ヒノキ 40%	40%			58.4%	1.6%
圧縮ヒノキ 50%	50%			48.0%	2.0%
圧縮スギ 20%		20%		79.2%	0.8%
圧縮スギ 30%		30%		68.8%	1.2%
圧縮スギ 40%		40%		58.4%	1.6%
圧縮スギ 50%		50%		48.0%	2.0%
圧縮紙粉 20%			20%	79.2%	0.8%
圧縮紙粉 30%			30%	68.8%	1.2%
圧縮紙粉 40%			40%	58.4%	1.6%
圧縮紙粉 50%			50%	48.0%	2.0%

複合体の短冊状射出成形物の断面の蛍光顕微鏡観察

短冊状射出成形物（縦 60 mm×横 10 mm×厚さ 3 mm）を、メイワフォーシス（株）製 DWS 3400／横型ダイヤモンドワイヤーソーによって切断した。ダイヤモンドワイヤーの直径は 170 μm 、切断スピードは設定 6 で行った。各試料の切断面を 5 つ得た。

得られた切断面に対して、多糖類と特異的に結合する蛍光試薬 Calcofluor White（Becton, Dickinson and Company）を用いて蛍光標識を行った。この蛍光試薬は、0.05%の水溶液として 0.5 mL 容器のアンプルに詰められた状態で市販されている。この Calcofluor White 水溶液をシャーレ上に展開し、切断面を 10 分以上浸漬した。試料表面の液体をキムタオルで拭いた。この蛍光標識を行った試料を、蛍光顕微鏡（オールインワン蛍光顕微鏡 BZ-X710、キーエンス製）によって観察した。フィルターは DAPI（励起波長：340–360 nm、吸収波長 450–460 nm）を用いた。観察時の対物レンズの倍率は 4 倍とし、15 枚程度のオリジナル画像の連結像として、切断面全体の蛍光像を取得した。露出時間は 1/15 秒とした。

蛍光像による CF の分散性評価

切断面のエッジを含めず、96 dpi の解像度で $\sim 3000 \times \sim 1000$ ピクセルの矩形画像を得た。矩形の蛍光像各 5 枚を、蛍光顕微鏡のソフト BZ-X Analyzer のハイブリッドセルカウント機能の輝度抽出によって二値化した。蛍光像の蛍光の輝度（明るさ：255 段階）のしきい値を指定することで、しきい値以上の輝度をもつ蛍光を抽出した。しきい値は全ての系で 5–15 の範囲内で設定した。しきい値の決定基準は、試料中の CF 添加率を勘案して、蛍光部の面積の矩形蛍光像全体の面積に対する割合が CF 添加率と同等となるようにした。そうして得られた二値化像について、BZ-X Analyzer ソフトで、蛍光粒子の平均面積を算出した。画像 1 枚当たり、2000 個以上の粒子をカウントした。

統計解析

統計解析には R (version 4.1.0)を使用した。

2.1.1.2.2. 試験結果

切断面の外観

ダイヤモンドワイヤーソーを使用して断面を切り出した。ダイヤモンドワイヤーソーはドライカットが行えるため、水中でカットする場合に懸念される親水性試料の膨潤が起らない。断面粗さは公称 5 μm 以内とされており、ダイヤモンドバンドソー、ダイヤモンドホイールソーなどの精密切断装置と比べて断面精度が高いことが知られている。

未処理のヒノキ、スギ、および紙粉を 20%含む CF 添加 PP 射出成形体の切断面をスキャナで撮影した画像を図 2-1-1-14 に示す。目視では、切断面に明らかな凹凸は確認できなかった。概して切断面全体が白化することはなく、目視観察レベルでの平滑性は確保されていることが示唆された。未処理/圧縮 CF の違いも明瞭ではなかった。

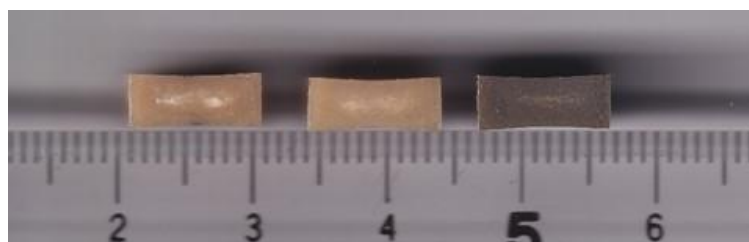


図 2-1-1-14 左から、未処理のヒノキ、スギ、および紙粉を 20%含有する CF 添加 PP 射出成形体をダイヤモンドワイヤーソーで切り出した断面のスキャン画像

切断面の蛍光顕微鏡観察

切断面を Calcofluor White 水溶液（濃度 0.05%）に 10 分以上浸漬し、蛍光顕微鏡で観察した。異なるフィラーを含む各複合体の切断面の蛍光像の例とその二値化像を図 2-1-1-15 から図 2-1-1-18 に示す。すべての系において、Calcofluor White で染色できるセルロースを含むフィラーの存在している部分を可視化することができた。

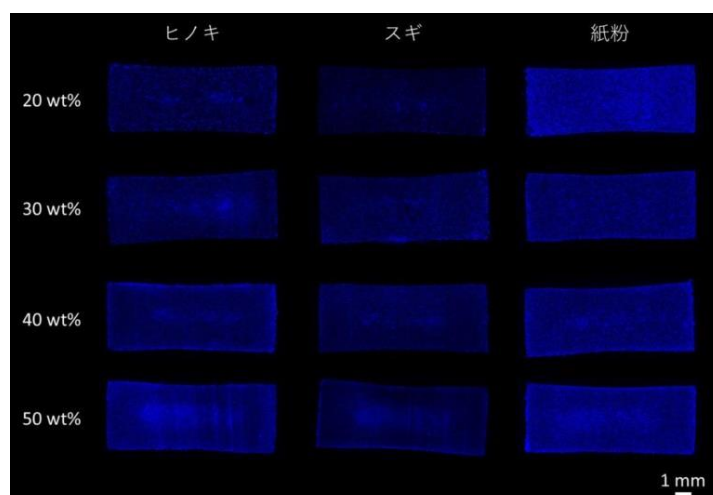


図 2-1-1-15 未処理 CF 添加 PP 射出成形体の断面の蛍光像の例

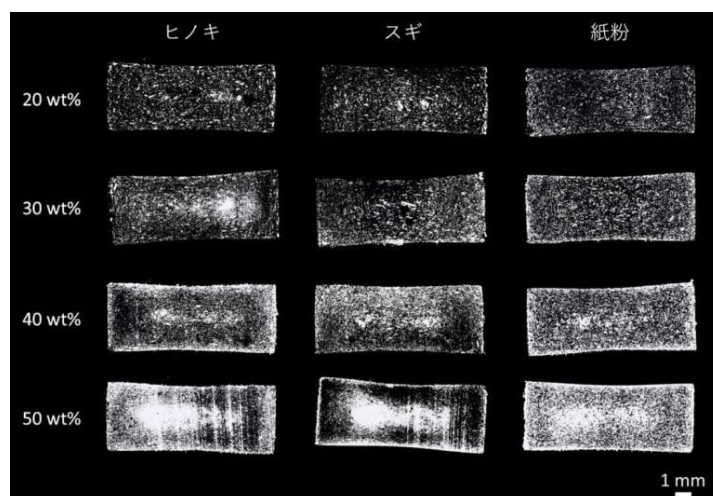


図 2-1-1-16 図 2-1-1-15 の二値化像

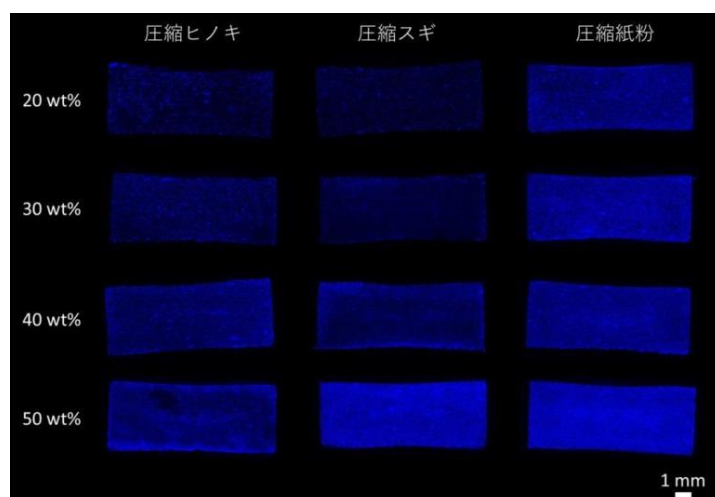


図 2-1-1-17 圧縮 CF 添加 PP 射出成形体の断面の蛍光像の例

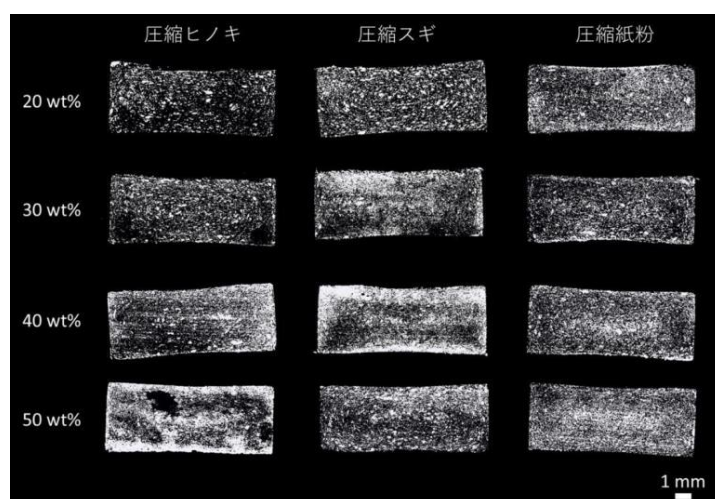


図 2-1-1-18 図 2-1-1-17 の二値化像

画像解析

図 2-1-1-16 や図 2-1-1-18 のような断面の蛍光画像の二値化像を、圧縮ヒノキ、スギ、および紙粉の添加量別で 5 枚ずつ取得した ($n = 5$)。エッジの部分を除いて矩形に切り出し、蛍光部として現れる部分を CF 粒子として、各画像においてその平均面積を求めた。

図 2-1-1-19 から図 2-1-1-22 には、添加量別で各画像の平均粒子面積の平均 ($n = 5$) を箱ひげ図として示した。各図には、それぞれ平均粒子面積の平均値 (ave) を示してある。

平均粒子面積は、いずれの CF 添加 PP においても、CF 添加量が増加するにつれて増加する傾向にあった。これは、CF 添加量が増えると複合体中で凝集する可能性があることと、画像解析時に単独の粒子を分離しにくいことの影響が混在していると考えられる。

未処理/圧縮処理 CF を比較すると、平均粒子面積の平均値 ave は、特にヒノキとスギが 20%と 30%と低添加率の場合、圧縮後に増加する傾向にあった。紙粉ではその様子は顕著ではなかった。

平均粒子面積について、一元配置分散分析を次のように行った。CF 添加率 20、30、40、および 50 wt% の CF 添加 PP について、圧縮ヒノキ群、未処理ヒノキ群、圧縮スギ群、未処理スギ群、圧縮紙粉群、未処理紙粉群（いずれも $n = 5$ ）の 6 群に分け、CF の圧縮前後で蛍光粒子の平均面積に差があるかの検定を行った。まず、Shapiro-Wilk 検定により全群が正規分布していることを確認した。次に、Levene の検定によって全群が等分散していることを確認した。さらに、1 元配置分散分析を適用し、CF ごとに圧縮前後の群で差があるかを Tukey の多重比較法で検定した。すべての検定の有意水準を $p = 0.05$ としたところ、いずれの CF ・ 添加率においても、圧縮前後で有意差があるとはいえなかった。これは、平均粒子面積の値のバラつきが大きいいため、差があるかどうかははっきりとはわからない、と解釈した。

平均粒子面積のバラつきに着目するために、その標準偏差 SD と変動係数 CV (= SD/ave) も図 2-1-1-19 から図 2-1-1-22 に示した。ヒノキとスギの系では、総じて圧縮後に SD および CV が小さくなる傾向がみられた。圧縮前後での CV の変化は紙粉の系では顕著でなかった。

画像解析の結果を総合すると、以下のように解釈できる。

- 平均粒子面積の平均値 ave は、同じ種類・添加量の CF の系に対しては、CF の凝集の程度を示す指標となっていて、圧縮後の CF の平均値は総じて大きくなるように見える ($p < 0.05$ での統計的有意性はない)。
- 平均粒子面積の SD は、圧縮によって CF 粒子径が画一化されることによって小さくなるようだった。それに加えて、CF が複合体中でランダムに配向していることを考慮すると、凝集した CF はアスペクト比が小さくなって、その断面積が画一化されることも SD の低下に寄与しているのではないかと考える。
- ave も SD も、CF 添加率が高くなると大きくなるが、SD と ave の比をとった変動係数 CV (= SD/ave) は粒子面積の大きさの影響がキャンセルされた値と見なせることから、試料間で比較できるバラつきの指標としてより適しているものと考ええる。

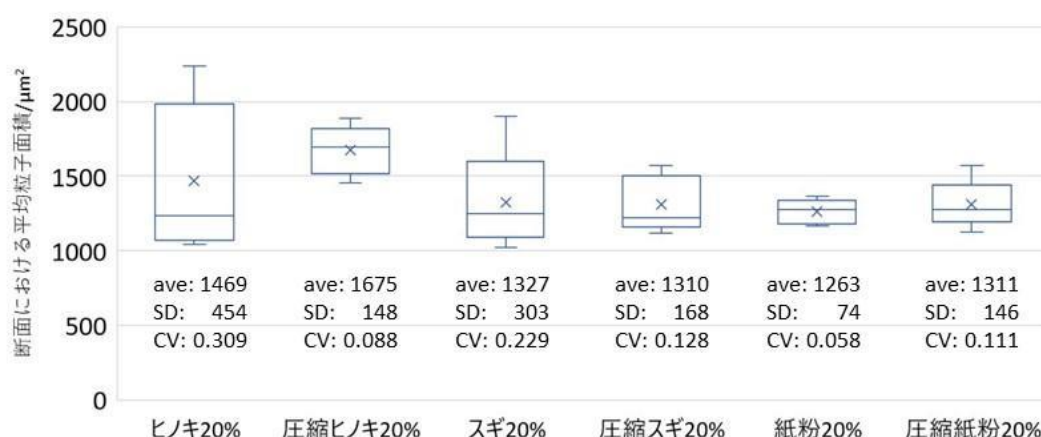


図 2-1-1-19 CF を 20%含む系の断面における平均粒子面積の箱ひげ図

5 枚の画像でそれぞれ平均値を求めた。図中の ave の数値は、5 枚の蛍光像における平均粒子面積の平均を意味する。SD は平均粒子面積の標準偏差である。CV は変動係数で、SD/ave より求めた。

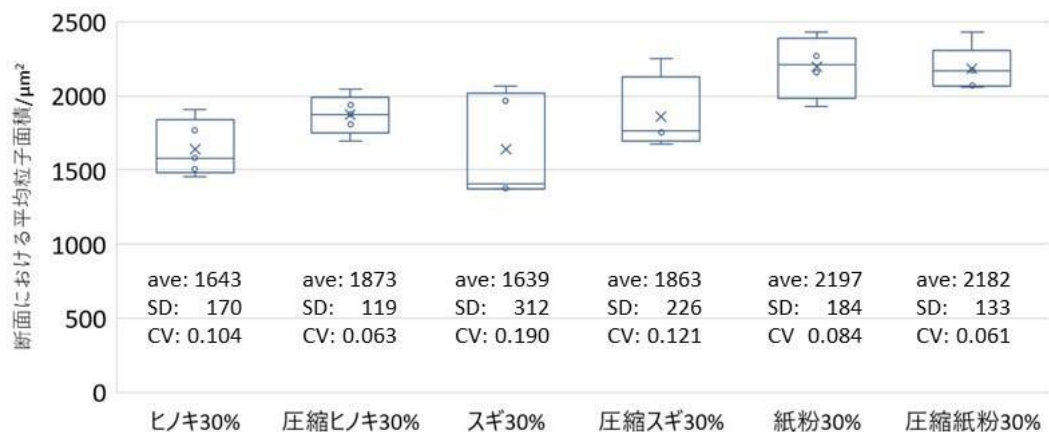


図 2-1-1-20 CF を 30%含む系の断面における平均粒子面積の箱ひげ図

5 枚の画像でそれぞれ平均値を求めた。図中の ave の数値は、5 枚の蛍光像における平均粒子面積の平均を意味する。SD は平均粒子面積の標準偏差である。CV は変動係数で、SD/ave より求めた。

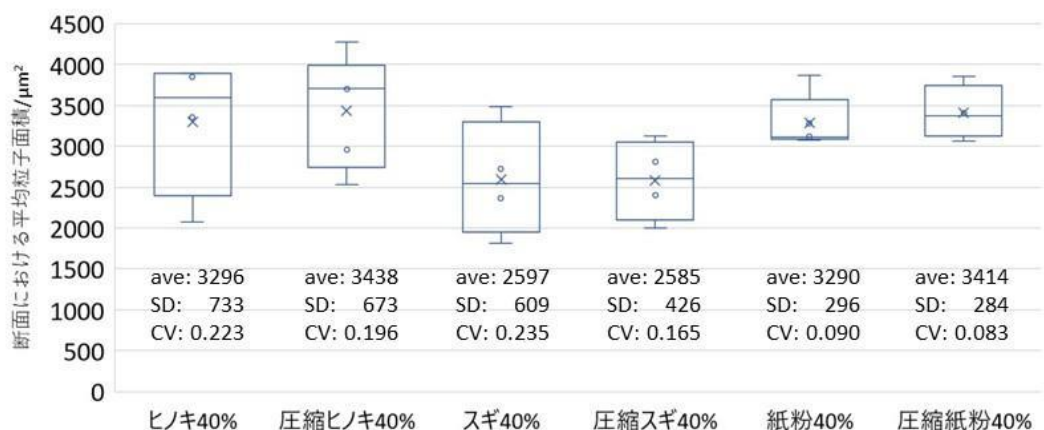


図 2-1-1-21 CF を 40%含む系の断面における平均粒子面積の箱ひげ図

5 枚の画像でそれぞれ平均値を求めた。図中の ave の数値は、5 枚の蛍光像における平均粒子面積の平均を意味する。SD は平均粒子面積の標準偏差である。CV は変動係数で、SD/ave より求めた。

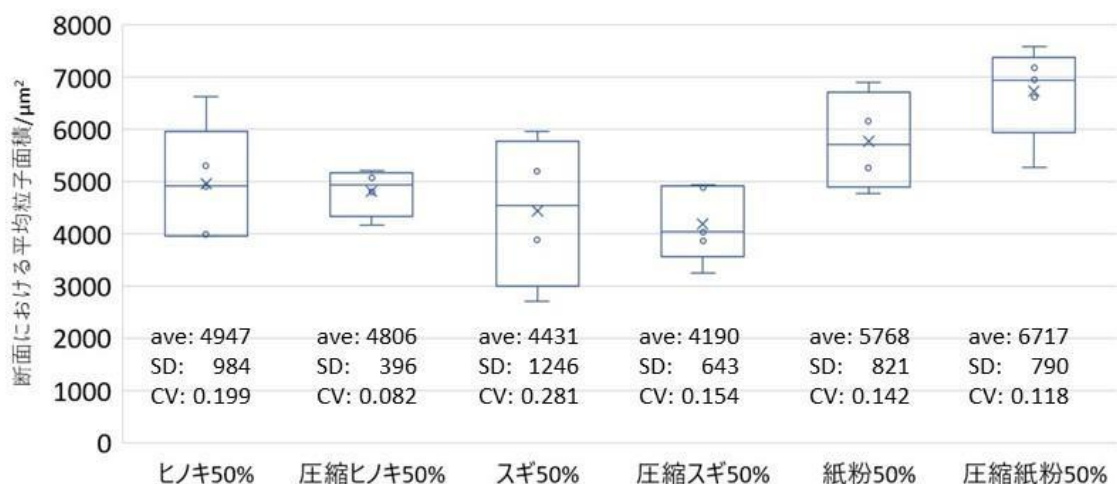


図 2-1-1-22 CF を 50%含む系の断面における平均粒子面積の箱ひげ図

5 枚の画像でそれぞれ平均値を求めた。図中の ave の数値は、5 枚の蛍光像における平均粒子面積の平均を意味する。SD は平均粒子面積の標準偏差である。CV は変動係数で、SD/ave より求めた。

CF の分散性と物性の相関

CF の分散性が物性にどのように影響したかを統計的に調べた。評価するにあたり、分散性のパラメータとして何が適切かを考えた。まず、ave は、CF 添加率が高くなると大きくなる値であった。SD は ave のバラつきを示すが、これも CF 添加率が高ければ ave につられて絶対値は大きくなる値であった。SD/ave である変動係数 CV は、CF 添加率による数値への影響を排除した値と解釈できる。そのため、CV が及ぼす物性への影響を、回帰分析により評価した。CV がどの程度物性値に影響しているかを相互比較するために、変数を標準化して、標準回帰係数とその有意性を求めた。回帰分析の結果を表 2-1-1-5 に示す。

表 2-1-1-5 変動係数 CV に対する各物性値の回帰分析の結果

	曲げ試験		引張試験				MFR (g/10 min)	シャルピー衝撃試験 at 23°C	
	強度 (MPa)	弾性率 (GPa)	強度 (MPa)	最大点 伸び率 (%)	破断点 伸び率 (%)	弾性率 (GPa)		ノッチ なし (kJ/m ²)	ノッチ あり (kJ/m ²)
標準回帰係数	0.524	0.479	0.576			0.5912			0.3573
<i>p</i>	**	*	**	NS	NS	**	NS	NS	.
決定係数 <i>R</i> ²	0.2749	0.2293	0.3315			0.3495			0.1277

分散分析：**, $p < 0.01$; *, $p < 0.05$; ., $p < 0.1$; NS, 有意差なし

回帰分析の結果、強度と弾性率に対しては、CF の平均粒子径の変動係数 CV の影響は有意で、標準回帰係数が 0.4 を超えることから強い影響があると評価された。これは、断面における CF の平均粒子径がバラついているほど、これらの物性値が大きくなっていること (= 圧縮によってフィラーの平均粒子径は画一化され、これらの物性値は低下すること) を意味する。CV の、伸び、MFR、衝撃強度への影響は、総じて有意性が低かった。

2.1.1.2.3. 分散性評価のまとめ

- 蛍光標識法により、CF 添加 PP 射出成形体の CF の分散性を、平均粒子径の平均 ave とその標準偏差 SD とで分離評価することができた。
- ave 自体は CF 添加率とともに増加する傾向にある値であるが、SD との比をとった変動係数 CV は、バラつきの指標として妥当であると考えた。
- CV は、圧縮による CF の凝集を反映しているものと考えられる。
- CV は、強度と弾性率への影響が有意に観られた。

2.1.1.3. CF 特性の違いによる機械的特性への影響シミュレーション

CF 添加 PP の機械的特性に及ぼす CF の圧縮処理の影響を明らかにすることを目的とし、マルチスケール有限要素解析を実施した。均質化理論を採用し、外部負荷を受けるマクロ構造と母材に CF が分散した周期的なマイクロ構造を連成した。レーザ回折および SEM 観察から得た CF の性状に基づいてマイクロ構造モデルを生成した。リファレンスとした未処理材のほか、マスコロイダーのクリアランスが異なる 3 種類の圧縮処理材を対象とし、単軸引張負荷時の非線形挙動を解析した。その結果、未処理材と比較し、圧縮処理によって機械的特性が低下することが数値解析においても検証でき、実験結果とよく一致した。圧縮処理に伴って CF の繊維長が減少し、アスペクト比が小さくなるため、機械的特性が低下することが明らかになった。なお、解析結果と比較し、実験結果では負荷ひずみが 1.5% を超えると、接線剛性が小さくなる傾向が見られ、特に未処理材において顕著な差が生じた。CF 添加 PP 内の微視的な損傷、CF 流動性変化に応じた配向分布の影響、CF の非線形特性が考慮すべき因子であることを見出した。

2.1.1.3.1. 解析方法

スケール連成に均質化法を採用し、強化繊維と母材樹脂から成る不均質構造をマイクロ構造として均質化特性を算出する。また、均質化特性を有するマクロ構造に外部負荷が作用した場合の力学的応答を解析する。ここでは、後述の解析結果を議論するため、弾性問題に対するマルチスケール定式化の概要を示す。

図 2-1-1-23 に示すように、マクロ構造 Ω およびマイクロ構造 Y における座標をそれぞれ $\mathbf{x}$ および $\mathbf{y}$ で定義し、両構造の積空間とする全体構造を考える。全体構造の変位 u_i^λ をマクロ変位 $u_i^0(\mathbf{x})$ とマイクロ擾乱変位 $u_i^1(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ の漸近展開式として表す。

$$u_i^\lambda = u_i^0(\mathbf{x}) + \lambda u_i^1(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (1)$$

ここで、 λ はスケール比であり、マクロおよびマイクロ構造の代表長さの比により定義される。マイクロ擾乱変位は、次式のようにマクロひずみ $\varepsilon_{mn}^0(\mathbf{x})$ に比例すると仮定する。

$$u_i^1(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = -\chi_i^{mn}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \varepsilon_{mn}^0(\mathbf{x}) \quad (2)$$

ここで、 $\chi_i^{mn}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ は比例定数であり、次のマイクロ方程式の解として得られる。

$$\int_Y {}^{micro}C_{ijkl} \frac{\partial \chi_k^{mn}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial y_l} \frac{\partial \delta u_i^1(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial y_j} dY = \int_Y {}^{micro}C_{ijmn} \frac{\partial \delta u_i^1(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial y_j} dY \quad (3)$$

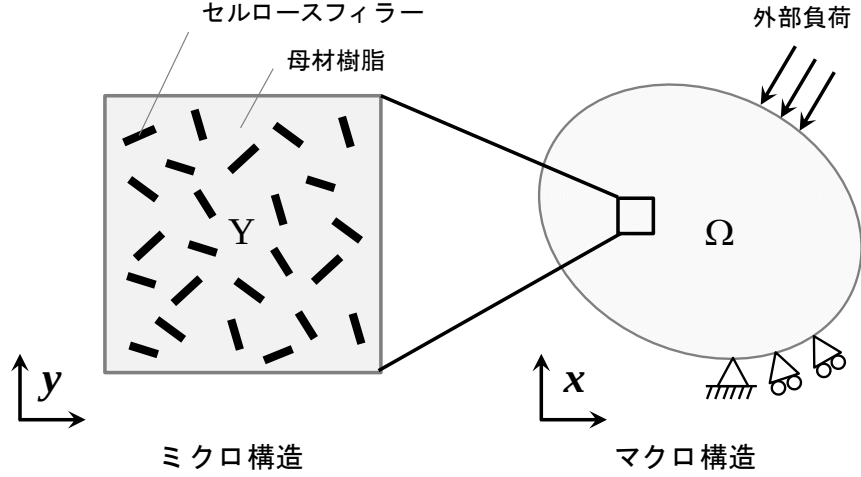


図 2-1-1-23 CF 添加 PP のマルチスケールモデリング

$^{micro}C_{ijkl}$ は、ミクロ不均質構造を構成する各材料の弾性係数である。ミクロ方程式から得た $\chi_i^{mn}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ から、マクロ構造に対する均質化した弾性係数 $^{macro}C_{ijkl}$ は、次式のように算出できる。

$$^{macro}C_{ijkl} = \frac{1}{|Y|} \int_Y \left(^{micro}C_{ijkl} + ^{micro}C_{ijmn} \frac{\partial \chi_m^{kl}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial y_n} \right) dY \quad (4)$$

外部負荷に対する力学的応答は、次のマクロ方程式により評価される。

$$\int_{\Omega} ^{macro}C_{ijkl} \frac{\partial u_k^0(\mathbf{x})}{\partial x_l} \frac{\partial \delta u_i^0(\mathbf{x})}{\partial x_j} d\Omega = \int_{\Gamma} t_i \delta u_i^0(\mathbf{x}) d\Gamma \quad (5)$$

得られた解 $u_i^0(\mathbf{x})$ より、マクロ構造の変位 $^{macro}u_i(\mathbf{x})$ 、ひずみ $^{macro}\varepsilon_{ij}(\mathbf{x})$ 、応力 $^{macro}\sigma_{ij}(\mathbf{x})$ は次式に従って評価される。

$$^{macro}u_i(\mathbf{x}) = u_i^0(\mathbf{x}) \quad (6)$$

$$^{macro}\varepsilon_{ij}(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial ^{macro}u_i(\mathbf{x})}{\partial x_j} + \frac{\partial ^{macro}u_j(\mathbf{x})}{\partial x_i} \right) \quad (7)$$

$$^{macro}\sigma_{ij}(\mathbf{x}) = ^{macro}C_{ijkl} \varepsilon_{kl}(\mathbf{x}) \quad (8)$$

外部負荷に対する非線形応答を解析する場合には、材料非線形を区間線形近似し、上記を増分形式化して各区間に適用する。本解析では、繊維は弾性体とし、母材には実験により得た材料非線形モデルを導入した。また、FEM ソルバーには ANSYS、均質化法によるスケール連成には Multiscale.Sim を採用した。

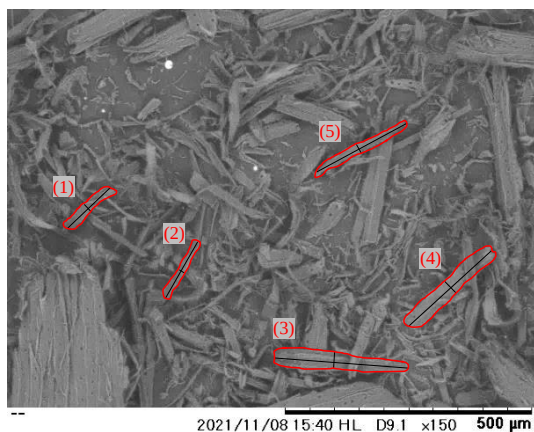
2.1.1.3.2. 解析モデル

解析対象とした未処理 CF および圧縮処理 CF の性状を表 2-1-1-6 に比較する。マスコロイダーのクリアランスを 300 μm 、200 μm 、100 μm と変化させ、未処理材を含む全 4 条件を対象とした。平均粒径は、湿式レーザ回折による計測値を示す。平均粒径は未処理材と比べて圧縮処理によって減少し、マスコロイダーのクリアランスが減少するに伴って減少した。

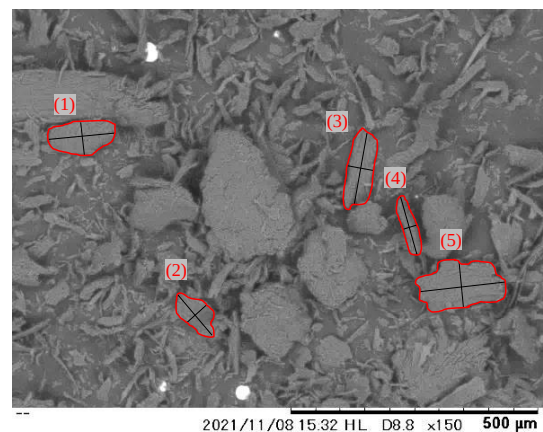
表 2-1-1-6 レーザ回折による未処理材および圧縮処理材の CF 平均粒径

	未処理材	圧縮材 300	圧縮材 200	圧縮材 100
マスコロイダーの クリアランス (μm) ※解繊の度合い	—	300	200	100
レーザ回折による 平均粒径の計測値 (μm)	197	169	142	116

SEM により観察した未処理材および圧縮処理材の外観を図 2-1-1-24 に示す。(a)に未処理材、(b)に一例として圧縮材 100 の SEM 写真を示す。また、未処理材および圧縮材 100 について、SEM 写真から抽出した適当な 5 つの CF に関する長辺長さ、短辺長さ、アスペクト比をそれぞれ表 2-1-1-7 および表 2-1-1-8 にまとめる。SEM 写真では未処理材のアスペクト比は高く、10 を超える CF も確認される。一方、圧縮材 100 のアスペクト比は高い粒もあるが、おおむね 2.0 程度であった。



(a) 未処理材



(b) 圧縮材 100

図 2-1-1-24 未処理材および圧縮材 100 の SEM 写真

表 2-1-1-7 SEM 写真から得た未処理材の CF 性状

	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
長辺長さ (μm)	119.6	130.4	266.3	228.3	206.5
短辺長さ (μm)	21.74	10.87	29.89	32.61	19.02
アスペクト比	5.50	12.0	8.91	7.00	10.9

表 2-1-1-8 SEM 写真から得た圧縮材 100 の CF 性状

	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
長辺長さ (μm)	135.9	108.7	119.6	146.7	171.2
短辺長さ (μm)	67.93	51.63	27.17	16.46	86.96
アスペクト比	2.00	2.11	4.40	8.91	1.97

レーザ回折および SEM 写真による CF の性状分析に基づいて、CF 添加 PP に分散する CF を表 2-1-1-9 のように設定した。成形された CF 添加 PP の比重に対して、母材とするポリプロピレン (PP) の比重を用いて内在する CF の比重を算出した。CF の比重は、未処理材で 1.387 と小さく、圧縮処理材はいずれも 1.4 以上となり、圧縮効果により大きくなる結果を得た。CF 添加 PP の CF 添加率はいずれも 20wt%とし、算出した CF の比重を用いて体積含有率に換算した。CF 体積含有率は、未処理材で最も大きく、圧縮材 100 で最も小さい。CF のアスペクト比は SEM 写真に基づいて設定した。アスペクト比は未処理材で 10.0、圧縮材 100 で 2.24 とし、レーザ回折により計測された粒径を有する球体の体積と等しくなるよう長辺および短辺長さを設定した。

表 2-1-1-9 に基づいて作成したランダム分散 CF 添加 PP のマイクロ構造モデルを図 2-1-1-25 に示す。これらのモデルは、Random Sequential Adsorption (RSA)に基づいて生成した。すなわち、乱数を用いて CF の配向と位置を設定し、セル内に 1 個ずつ配置する。既設の CF と干渉した場合は、新たに追加する CF の配向と位置を干渉が解消するまで変更し、CF を追加する。本解析では、CF の個数を 50 とし、表 2-1-1-9 に示した CF 体積含有率になるようセルサイズを決定した。モデル生成において乱数を使用し、CF の個数を制約された状況で計算するため、得られる解析値はばらつきを有する。本解析では各条件に対して 3 つのモデルを生成し、3 モデル×3 方向=9 ケースの平均値として機械的特性を評価した。

表 2-1-1-9 CF 添加 PP に分散する CF の添加率およびアスペクト比

	未処理材	圧縮材 300	圧縮材 200	圧縮材 100
CF 添加 PP の比重	0.968	0.971	0.970	0.975
CF の比重	1.387	1.422	1.411	1.466
CF の質量添加率 (wt%)	20	20	20	20
CF の体積添加率 (vol%)	13.96	13.66	13.75	13.30
CF のアスペクト比	10.0	3.34	3.29	2.24

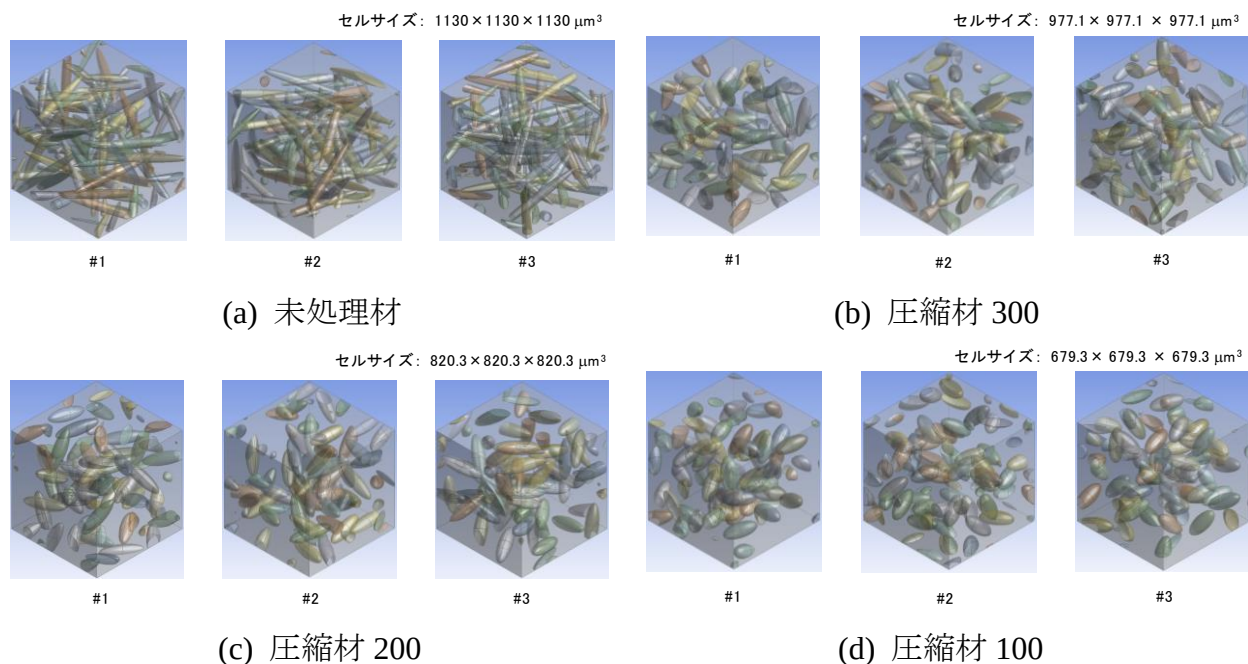


図 2-1-1-25 ランダム分散 CF 添加 PP のマイクロ構造モデル

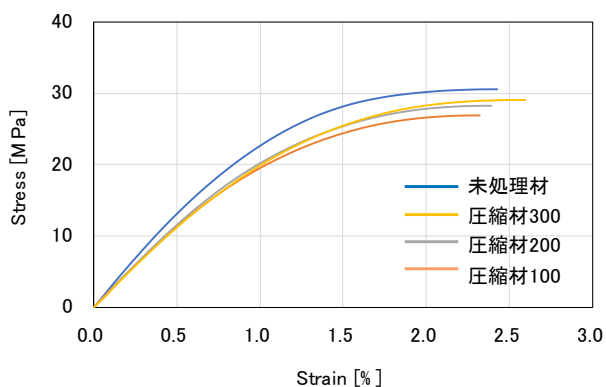
2.1.1.3.3. 解析結果

解析から得られた応力ひずみ曲線を実験結果と比較して図 2-1-1-26 に示す。実験結果において、未処理材が弾性係数および引張強度のいずれも最も優れた特性を示し、解繊の度合いが強くなるに伴って機械的特性が低下する傾向が確認できる。一方、解析結果も未処理材が最も優れ、圧縮処理により特性が低下する傾向を示し、定性的に両結果は合致した。実験結果では、解繊の度合いに応じて応力ひずみ曲線にある程度の差が見られるが、解析結果ではその差は小さい。この原因として、CF の配向分布が影響すると考えられる。すなわち、解析では CF をいずれの方向も等頻度であるランダム配向としたが、圧縮処理によって CF の流動性が変化することで、射出成形に起因して特定の方向に配向頻度が高くなる可能性がある。CF 添加 PP 内の配向分布を計測し、それらの性状をマイクロ構造モデルに反映できれば、解繊度合いの影響をさらに詳しく把握できると考える。

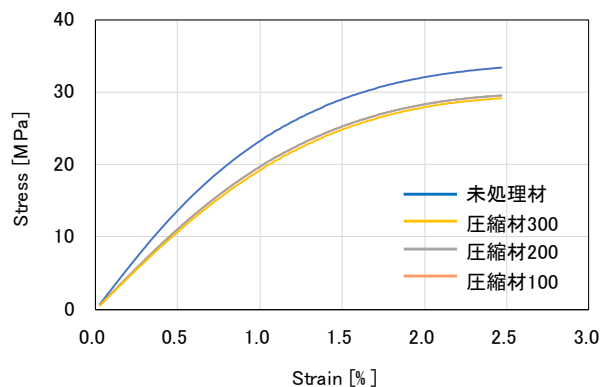
次に、未処理材と圧縮材 300 に対する実験結果と解析結果を図 2-1-1-27 に比較し、定量的に両結果を検証する。これから、圧縮材 300 において実験結果と解析結果はおおむねよく一致している。一方、未処理材については、ひずみが 1.3%程度から実験結果と解析結果の差から大きくなり始め、1.5%以降で顕著な差が確認できる。これは、解析では考慮していないが、実験では複合材料内部において微視的な損傷が発生していると考えられる。また、解析において CF は弾性体として扱っているが、実際には CF も非線形性を有すると考えられ、圧縮処理材よりも未処理材の方がその影響は強いと推察される。

続いて、応力ひずみ曲線から得た初期弾性係数を図 2-1-1-28 に比較する。数%の誤差を有するが、解析結果は実験結果とよく一致している。また、損傷発生がなく非線形挙動を追従できる範囲として、ひずみ 1.5%における応力を図 2-1-1-29 に比較する。弾性係数と同様に解析結果と実験結果のよい一致が確認できる。なお、未処理材と圧縮材 300 の実験結

果において、解析結果よりもやや小さくなる傾向があるが、その要因の一つとして前述した CF の非線形性が関係すると思われる。



(a) 実験結果



(b) 解析結果

図 2-1-1-26 単軸引張試験より得た CF 添加 PP の応力ひずみ曲線の比較

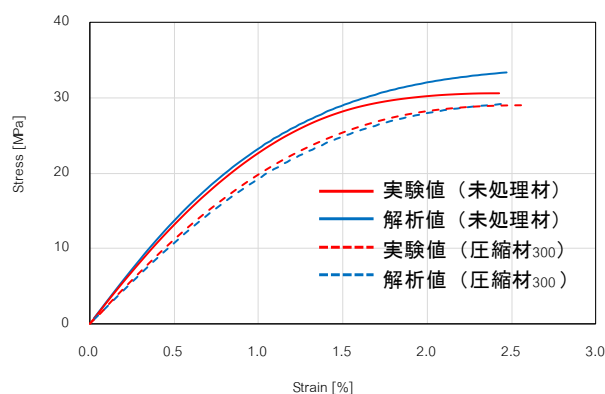
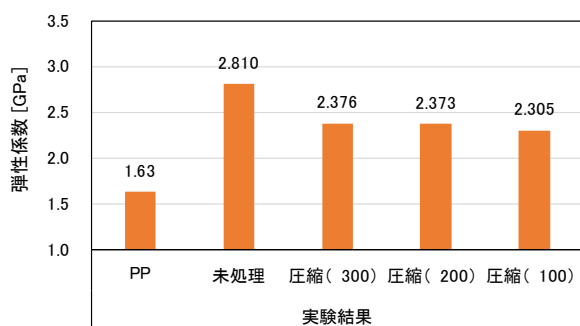
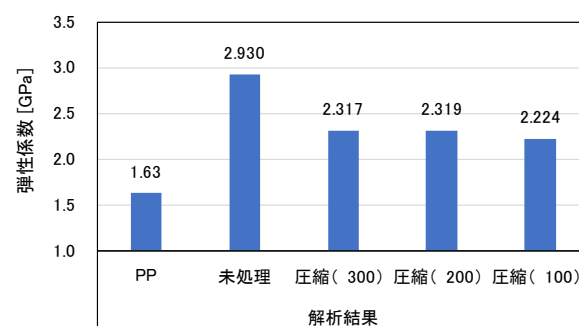


図 2-1-1-27 CF 添加 PP の応力ひずみ曲線に対する実験と解析結果の比較

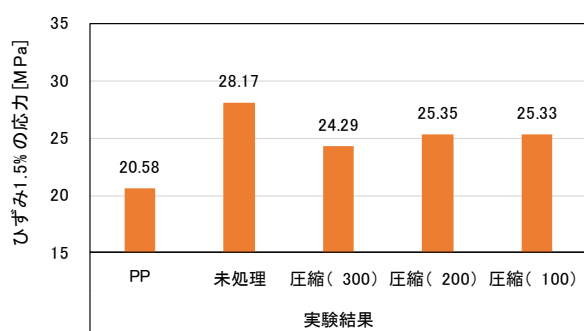


(a) 実験結果

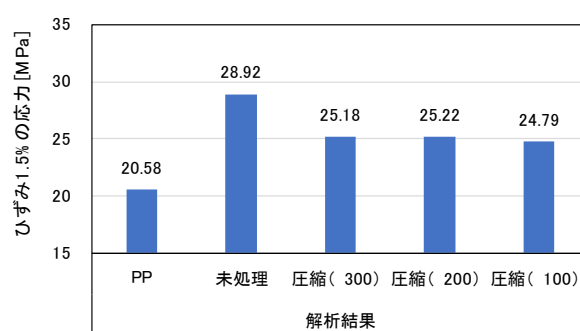


(b) 解析結果

図 2-1-1-28 単軸引張試験より得た CF 添加 PP の初期弾性係数の比較



(a) 実験結果



(b) 解析結果

図 2-1-1-29 単軸引張試験より得た CF 添加 PP のひずみ 1.5%における応力の比較

2.1.1.3.4. まとめ

CF 添加 PP にマルチスケール有限要素解析を導入し、引張負荷に対する非線形応答に及ぼす CF 圧縮処理の影響を調査した。その結果、SEM 観察による CF 性状分析から、圧縮処理に伴って CF アスペクト比が減少すること、圧縮処理に伴う機械的特性の低下は CF アスペクト比により再現できたこと、解析結果は実験結果によく一致することが明らかになった。今後の課題として、CF 添加 PP 内の微視的な損傷、CF 流動性変化に応じた配向分布の影響、CF の非線形特性が考慮すべき因子であることを見出した。

2.1.2. 圧縮処理 CF の量産テストの実施

圧縮処理 CF の製造工程を基にコスト算出した結果を表 2-1-2-1 に示す。木材チップの粉碎設備 1 ラインと圧縮処理に必要な設備 2 ライン分の設備投資金額並びに、その生産能力として 100 kg/h (50t/月) にて試算した。この試算結果から、CF 価格 100 円/kg の場合、損益分岐点生産量が 33.3 t/月であるため、設備稼働率が 67%以上となる需要量を確保すれば、目標とする「CF 価格 100 円/kg 以下」を達成することが試算されている。

そこで、本年度は同製造工程において量産試作を実施し、圧縮処理 CF の品質安定性について評価した。連続生産中に 10 点のサンプルを採集し、嵩比重と平均粒子径を測定した。

表 2-1-2-1 圧縮処理 CF 製造コスト試算結果

項目		単価	金額(千円/月)	備考
変動費	原材料(木材チップ)	14.5 円/kg	15 千円	国産針葉樹チップ市場価格(絶乾重量)
	電力	16.5 円/kg	825 千円	1.031KWH/kg×16円/kWh
	副資材	5.0 円/kg	250 千円	フレコン等梱包資材
	計	36.0 円/kg	1,089 千円	
固定費	人件費	24.0 円/kg	1,200 千円	400千円×3人
	減価償却費	13.5 円/kg	677 千円	8年償却:均等割、設備投資金額65百万円
	保全費用	1.4 円/kg	68 千円	償却費の10%
	管理費その他	3.8 円/kg	188 千円	人件費の10%+償却費の10%
	計	42.7 円/kg	2,133 千円	
製造原価		78.6 円/kg	3,222 千円	

2.1.2.1. 試験結果

図 2-1-2-1 及び図 2-1-2-2 にて、測定サンプルの平均粒子径と嵩比重の推移を示す。また、表 2-1-2-2 にはそれぞれのバラつきデータをまとめた。本結果より、平均粒子径及び嵩比重においてバラつきは小さく、生産中の品質は安定していると考えられる。

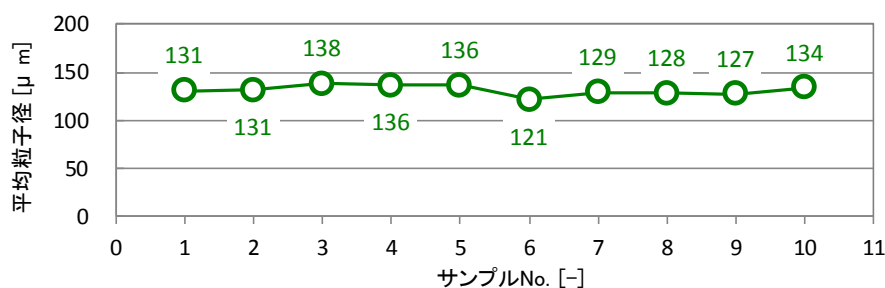


図 2-1-2-1 量産テストにおける平均粒子径の推移

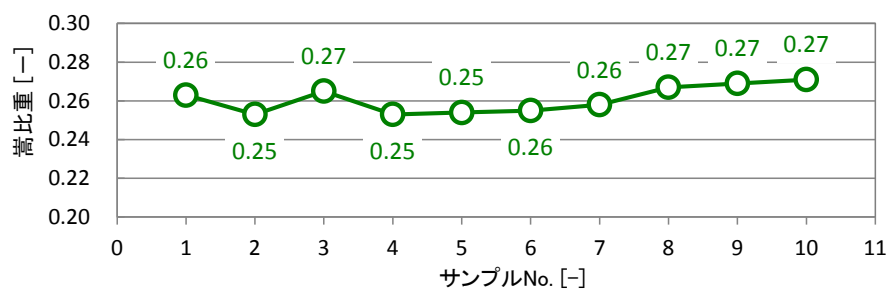


図 2-1-2-2 量産テストにおける嵩比重の推移

表 2-1-2-2 量産テストの 10 サンプルングにおけるバラつきデータ

		平均値	標準偏差 (σ)
平均粒子径	[μm]	131.3	5.1
嵩比重	[-]	0.261	0.007

2.1.3. 圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施

「2.1.2.圧縮処理 CF の量産テストの実施」において作製された圧縮処理 CF と PP のコンパウンドについて、 $\phi 70\text{mm}$ 同方向二軸押出機（東芝機械製 TEM70BH）を用い、CF 添加 PP の量産試作を実施し、連続生産中に 5 点のサンプルを採集し、流動性、機械特性を評価した。コンパウンドに用いた設備を図 2-1-3-1 に示す。尚、量産テストに用いた PP は「2.4.CF 性状とその添加量別機械特性評価」で使用した MFR=100g/10min を用いた。



図 2-1-3-1 量産テストに用いたコンパウンド設備

2.1.3.1. 試験結果

図 2-1-3-2～図 2-1-2-7 にて、測定サンプルの流動性と各種機械特性の推移を示す。また、表 2-1-3-1 にはそれぞれのバラつきデータをまとめた。本結果より、MFR（流動性）、曲げ強度、弾性率、引張強度、シャルピー衝撃強度（ノッチなし、あり）においてバラつきは小さく、機械特性は安定していると考える。

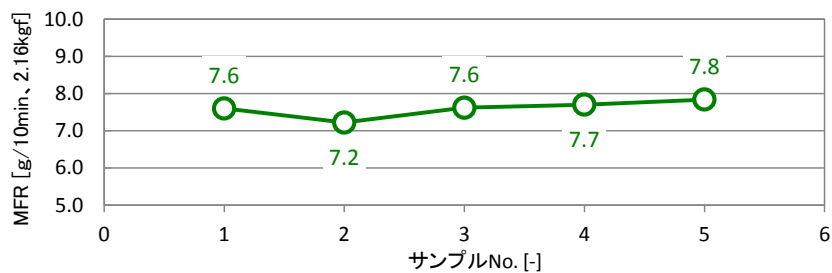


図 2-1-3-2 量産テストにおける MFR（流動性）の推移

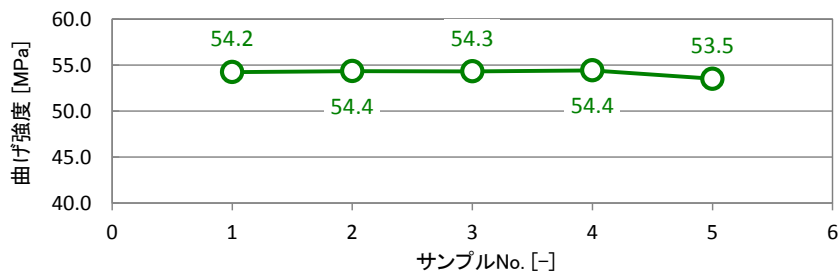


図 2-1-3-3 量産テストにおける曲げ強度の推移

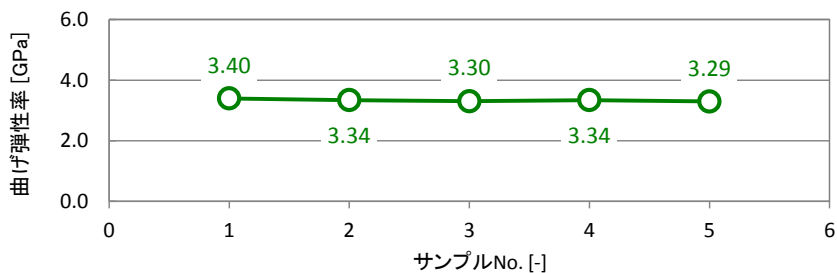


図 2-1-3-4 量産テストにおける曲げ弾性率の推移

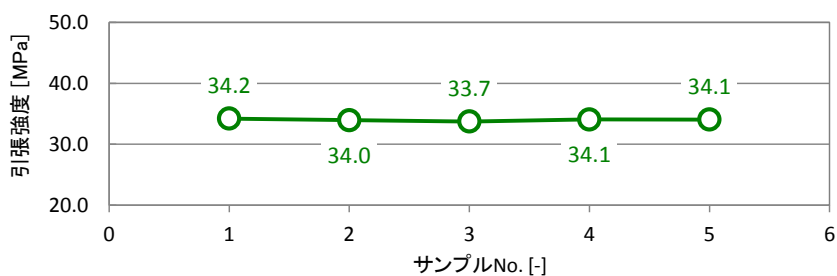


図 2-1-3-5 量産テストにおける引張強度の推移

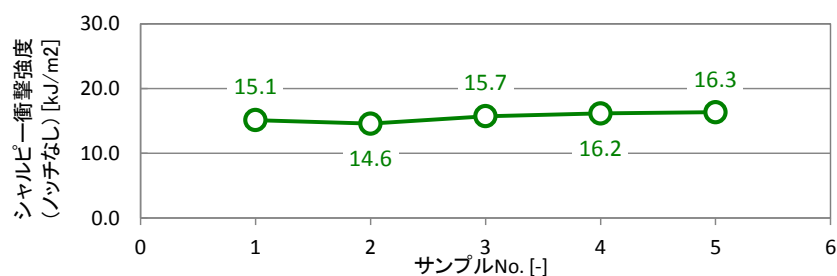


図 2-1-3-6 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチなし）の推移

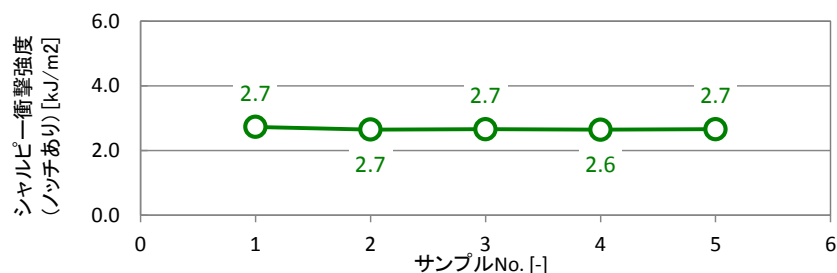


図 2-1-3-7 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチあり）の推移

表 2-1-3-1 量産テストの 5 サンプルングにおけるバラつきデータ

		平均値	標準偏差 (σ)
MFR(流動性)	[g/10min]	7.60	0.23
曲げ強度	[MPa]	54.2	0.37
曲げ弾性率	[GPa]	3.34	0.04
引張強度	[MPa]	34.0	0.18
シャルピー衝撃強度(ノッチなし)	[kJ/m²]	15.6	0.74
シャルピー衝撃強度(ノッチあり)	[kJ/m²]	2.6	0.03

2.1.4. まとめ

本項では CF 添加 PP の流動性改善を目的とした圧縮処理方法について、製造条件の確立とその汎用性について検証した。圧縮処理によってヒノキ木粉、スギ木粉、紙粉のいずれも嵩比重の上昇と PP 添加時の流動性改善効果を確認した。また、CF 製造コスト 100 円/kg 以下を満たす製造工程にて量産テストを実施し、その品質安定性を確認することができた。これらの取組により、流動性改善に寄与する CF の処理条件を確立することができた。

2.2. 難燃性を有する複合化技術の開発

プラスチック製品では、電気、電子系機器を中心に難燃性を求める用途も多い。しかし、CF は可燃性の素材であり、添加することで難燃性にプラス方向には働かない。さらに、プラスチックの難燃化には、大量の難燃剤添加（一般的には 30%以上）が不可欠であり、CF 添加量が多くなるほど、難燃化は困難となる。そこで、本事業では、CF とポリリン酸アンモニウム（APP）の相乗効果により、燃焼時に CF が炭化層となることで難燃性が付与できる技術を利用した。令和 2 年度までの結果から難燃性を付与するには CF40%以上、APP20%以上が必要となり、その多量なフィラーは製品外観に不具合を及ぼす原因となることがわかった。この課題に対して、本項では圧縮処理 CF の利用、相容化剤の増量、PP 系ワックスの添加、射出速度の影響を検証することによって、成形外観と難燃性（肉厚 3.2mm : V-0、1.6mm : V-2）を両立する難燃化 CF 添加 PP の処方確立した。また量産テストにより、その各種性能についても確認した。

2.2.1. 難燃剤配合の検証

2.2.1.1. 難燃性を有する配合の検証

2.2.1.1.1. 目的

本項では CF 添加 PP の難燃性を付与する条件として、令和 2 年度の検証結果を踏まえ、CF 添加量を 40%、難燃剤 APP 添加量を 20%に固定し、CF 種類の影響、流動性向上に寄与する圧縮処理の影響、材料強度の向上に寄与する相溶化剤 MaPP 添加量の影響について難燃性評価を実施した。

2.2.1.1.2. サンプル条件

CF 添加 PP に難燃性を付与するために表 2-2-1-1 に示した配合にて、難燃性評価サンプルを作成した。ここでは CF 種類の影響の調査のため、CF としてヒノキ、スギ、紙粉を用いた。PP は MFR = 100 g/10min を使用した。また、相容化剤として MaPP を用い、難燃剤として APP を使用して検証を行った。

表 2-2-1-1 配合条件

No.	未処理 ヒノキ [%]	圧縮 処理 ヒノキ [%]	未処理 スギ [%]	圧縮 処理 スギ [%]	未処理 紙粉 [%]	圧縮 処理 紙粉 [%]	PP [%]	APP [%]	MaPP [%]	<備考> MaPP 添加量 1.6%を基準と した場合の 添加倍数
DC-FR75	40.0						40.0	20.0		なし
DC-FR76	40.0						38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR77	40.0						36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR78	40.0						35.2	20.0	4.8	3 倍量
DC-FR79		40.0					40.0	20.0		なし
DC-FR80		40.0					38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR81		40.0					36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR82		40.0					35.2	20.0	4.8	3 倍量
DC-FR83			40.0				40.0	20.0		なし
DC-FR84			40.0				38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR85			40.0				36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR86			40.0				35.2	20.0	4.8	3 倍量
DC-FR87				40.0			40.0	20.0		なし
DC-FR88				40.0			38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR89				40.0			36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR90				40.0			35.2	20.0	4.8	3 倍量
DC-FR91					40.0		40.0	20.0		なし
DC-FR92					40.0		38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR93					40.0		36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR94					40.0		35.2	20.0	4.8	3 倍量
DC-FR95						40.0	40.0	20.0		なし
DC-FR96						40.0	38.4	20.0	1.6	1 倍量
DC-FR97						40.0	36.8	20.0	3.2	2 倍量
DC-FR98						40.0	35.2	20.0	4.8	3 倍量

2.2.1.1.3. 試験方法

2.2.1.1.3.1. 水平燃焼試験

表 2-2-1-1 で示した 24 条件すべてで UL94 規格に基づき水平燃焼試験を実施した。幅 13 mm、長さ 125 mm、厚さ 1.6 mm と幅 13 mm、長さ 125 mm、厚さ 3.2 mm の 2 種類の試験片を射出成形機にて成形し、燃焼試験に用いた。図 2-2-1-1 に示すように、試験片の自由端から 25 mm 及び 100 mm の箇所に標線をつけた。すべての試験片にて試験前に熱風乾燥機で 80℃×24 時間以上の熱風乾燥を行った。試験片の本数は各条件に付き 3 本とし、HB

評価の判定基準に関して、3本のうち1本のみ不合格の場合はさらに3回試験を行い、すべてが合格の場合、適合とした。

試験装置を図 2-2-1-2 に示す。試験片の長さ方向は水平に、幅方向は水平に対して 45° の角度で保持し、滴下の影響を防ぐために試験片の下に金網を設置した。炎の高さを約 20 mm、試験片端とガストーチバーナー口との距離を 10 mm、接炎角度を 45° として試験を行った。接炎は 30 秒間もしくは火が試験片の自由端 25 mm の標線箇所に達するまで行った。点火には可燃性ガスを燃料とするガストーチバーナーを使用した。試験は空気の流れを感じない室内で行った。

水平燃焼試験では、25 mm ~ 100 mm 間の燃焼時間から燃焼速度を算出し、燃焼特性の評価に用いた。また、自己消火性の有無も確認した。

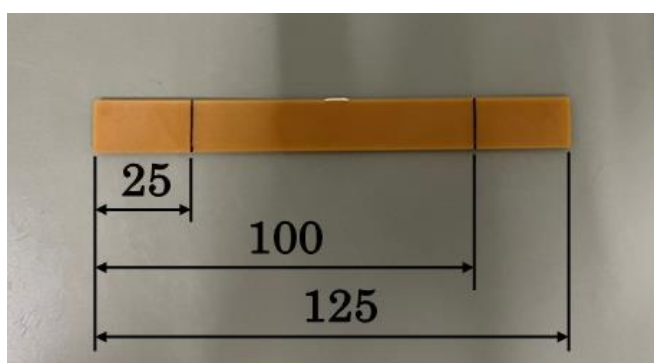


図 2-2-1-1 水平燃焼試験片（寸法単位：mm）

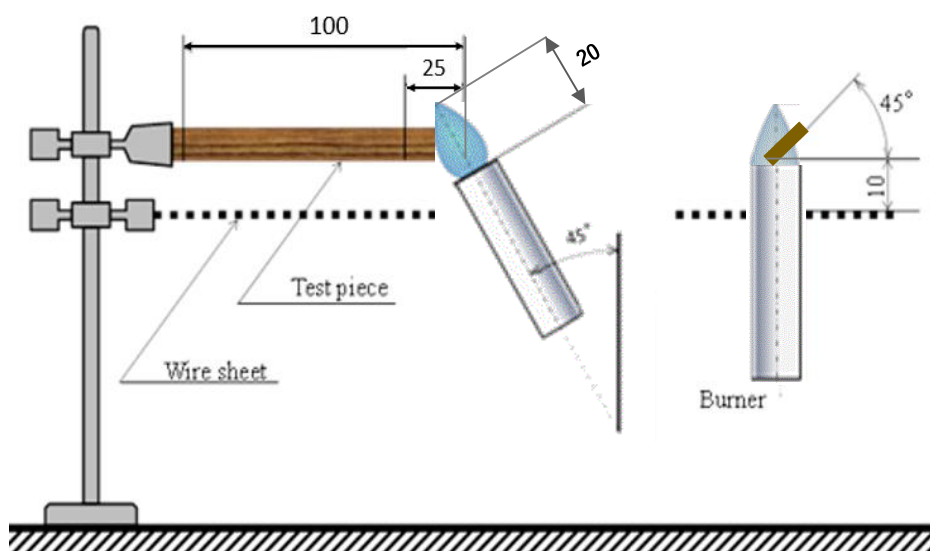


図 2-2-1-2 UL94 水平燃焼試験（寸法単位：mm）

2.2.1.1.3.2. 垂直燃焼試験

水平燃焼試験において自己消火性を示した試料のみに対して、UL94 規格に基づき垂直燃焼試験を実施した。水平燃焼試験と同様の 2 種類の試験片を試験に用いた。すべての試験片に関して試験前に熱風乾燥機で $80^{\circ}\text{C}\times 24$ 時間以上の熱風乾燥を行った。試験片の本数は各試料につき 5 本とした。ただし、5 本のうち 1 本のみ不合格の場合はさらに 5 回試験を行い、すべてが合格の場合、適合とした。

試験装置を図 2-2-1-3 に示す。試験片を垂直に固定し、水平燃焼試験と同様のバーナーを用いて試験を行った。また、試験は空気の流れを感じない室内で行った。炎の高さを約 20 mm、試験片下端とガストーチバーナー口との距離を 10 mm として、試験片の真下から接炎を行った。1 度目の接炎を 10 秒間行い、その後 30 秒以内に燃焼が終了した場合は 2 度目の接炎を 10 秒間行い、燃焼時間を記録、燃焼の合計時間を求めた。

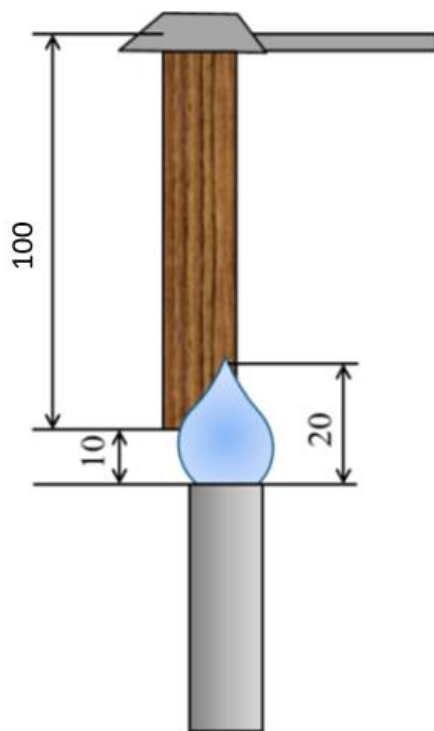


図 2-2-1-3 UL94 垂直燃焼試験（寸法単位：mm）

2.2.1.1.4. 結果

2.2.1.1.4.1. 水平燃焼試験

今回の実験においてはすべての試験片で自己消火性がみられたため、燃焼速度については省略する。一例として、DC-FR79～82 の水平燃焼試験の様子を図 2-2-1-4 から図 2-2-1-7 に示す。ここで図中の T は接炎開始からの時間であり、T = 60 sec の様子と自己消火した瞬間の様子を示している。



図 2-2-1-4 水平燃焼試験(DC-FR79)



図 2-2-1-5 水平燃焼試験(DC-FR80)



図 2-2-1-6 水平燃焼試験(DC-FR81)



図 2-2-1-7 水平燃焼試験(DC-FR82)

2.2.1.1.4.2. 垂直燃焼試験

水平燃焼試験にて自己消火性を示した試験片に対して、垂直燃焼試験を行った。垂直燃焼試験における自己消火性の有無や1回目と2回目の接炎から自己消火するまでの燃焼時間、滴下物やクランプ部までの燃焼等の観察結果から UL94 規格に基づいて難燃性を評価した結果を表 2-2-1-2 に示す。結果に関しては2種類の厚みそれぞれについて難燃性を評価し、最終的にそれらの結果をまとめた。また、一例として、DC-FR79~82 の試験の様子を図 2-2-1-8~図 2-2-1-11 に示す。図中 T_1 、 T_2 はそれぞれ1回目、2回目接炎からの経過時間を示している。

まず、材料の難燃性に対する圧縮処理の効果について、DC-FR75~78 と DC-FR79~82、DC-FR83~86 と DC-FR87~90、DC-FR91~94 と DC-FR95~98 の試験結果を比較するとわかるように、圧縮処理の有無によって大きく難燃性が変化するという結果は得られなかった。しかし、そのような中でも CF としてスギを用いた材料 (DC-FR83~90) に関しては圧縮処理による難燃性の向上が観察され、3 種類の CF の中で最も優れた難燃性を示した。一方、3 種類の CF の中で最も難燃効果が乏しかったのが紙粉で、紙粉を CF として使用した際には試験片の厚みが薄くなると十分な難燃効果が得られなかった。よって、紙廃材を用いた材料による難燃化を考える際には、CF および難燃剤の添加量を今回の実験と同じとする場合、成形品の厚みを十分に考慮する必要がある。また、今回の実験において、混練時に相容化剤である MaPP を添加した材料は MaPP を添加しなかった材料に比べて良好な難燃性を示した。また、MaPP を添加しなかった材料の試験片は添加した材料の試験片に比べて黒ずんでいた。これは試験片中のセルロースが炭化しているためであると考えられる。MaPP を添加した材料の混練・成形時の炭化が抑制された要因として、MaPP の添加によってセルロースの OH 基と MaPP の間で結合がなされ脱水が抑制されたことが考えられる。以上から、成形時に炭化が進行し燃焼時に試験片表面に炭化層を形成しにくかったことや MaPP による CF の分散性向上による反応性の向上といったことが、MaPP の添加の有無により生じる難燃性の差であると考えられる。

表 2-2-1-2 垂直燃焼試験結果

No.	厚み t [mm]		まとめ
	1.6	3.2	
DC-FR75	HB	V-0	HB
DC-FR76	V-0	V-0	V-0
DC-FR77	V-0	V-0	V-0
DC-FR78	V-0	V-0	V-0
DC-FR79	HB	V-0	HB
DC-FR80	V-0	V-0	V-0
DC-FR81	V-0	V-0	V-0
DC-FR82	HB	V-0	HB
DC-FR83	HB	V-0	HB
DC-FR84	V-0	V-0	V-0
DC-FR85	V-0	V-0	V-0
DC-FR86	V-0	V-0	V-0
DC-FR87	V-0	V-0	V-0
DC-FR88	V-0	V-0	V-0
DC-FR89	V-0	V-0	V-0
DC-FR90	V-0	V-0	V-0
DC-FR91	HB	HB	HB
DC-FR92	HB	V-0	HB
DC-FR93	HB	V-0	HB
DC-FR94	HB	V-0	HB
DC-FR95	HB	HB	HB
DC-FR96	HB	V-0	HB
DC-FR97	HB	V-0	HB
DC-FR98	HB	V-0	HB

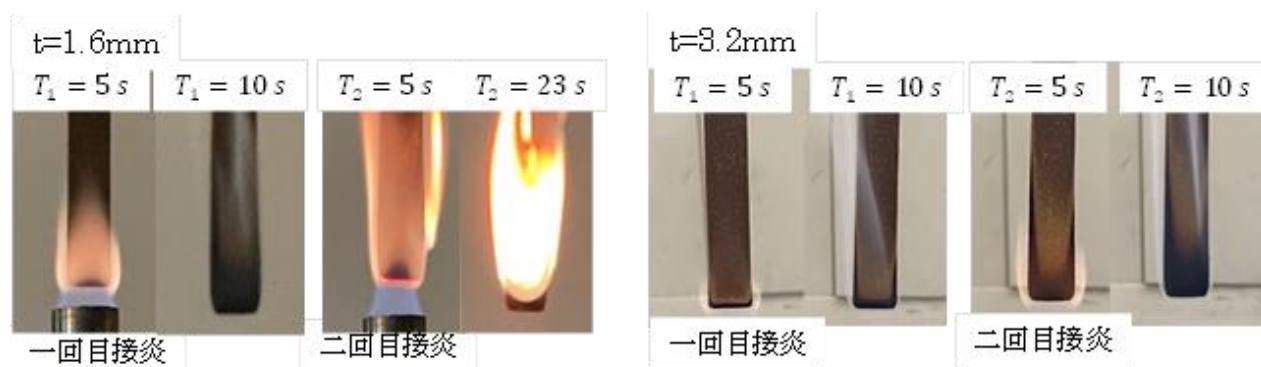


図 2-2-1-8 垂直燃焼試験(DC-FR79)

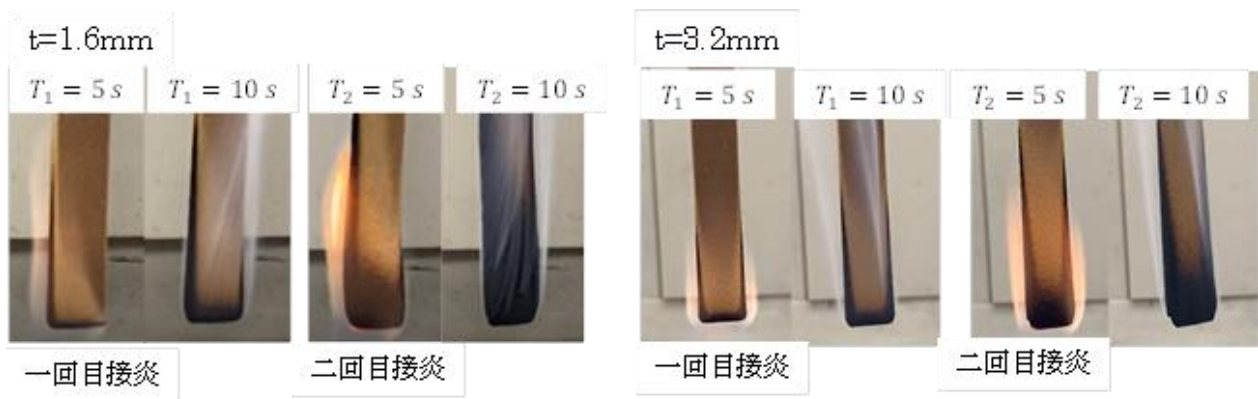


図 2-2-1-9 垂直燃焼試験(DC-FR80)

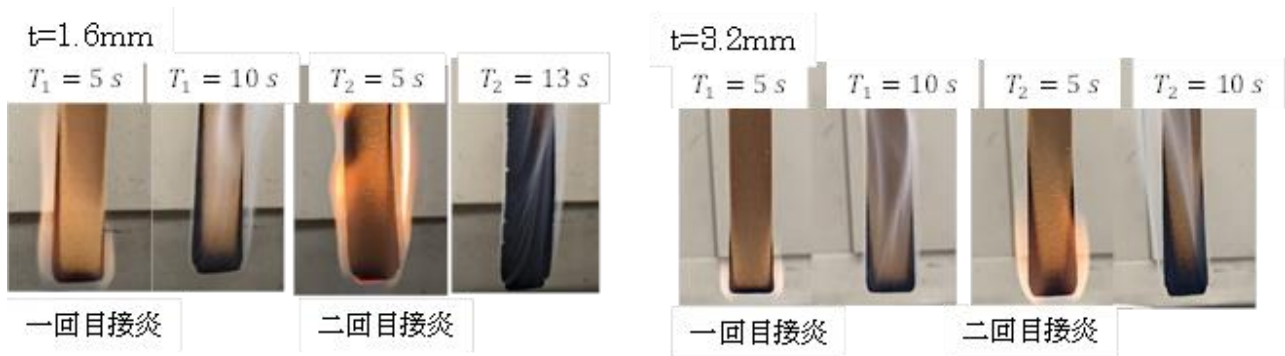


図 2-2-1-10 垂直燃焼試験(DC-FR81)

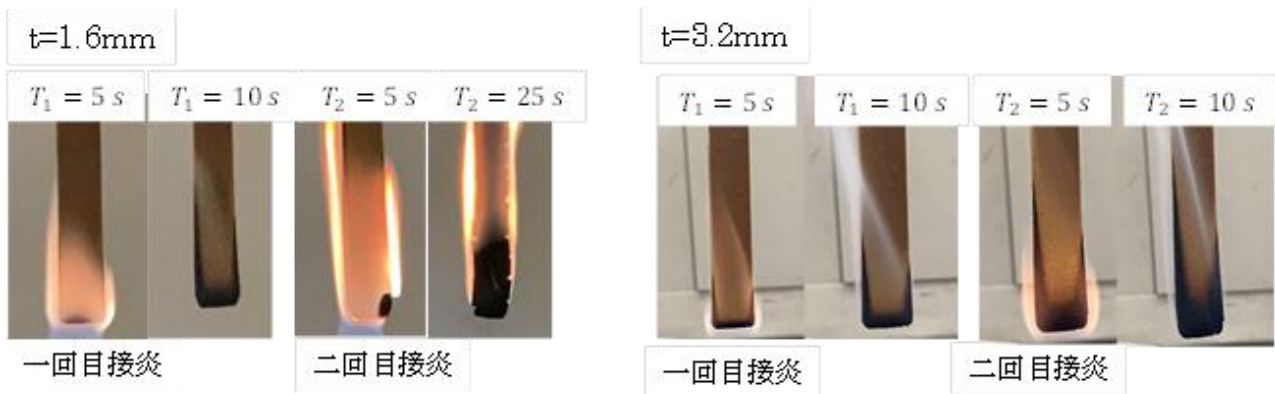


図 2-2-1-11 垂直燃焼試験(DC-FR82)

2.2.1.2. 難燃配合における各種成形体特性

2.2.1.2.1. 試験内容

前項で検証した評価サンプルを用い、CF 種類、圧縮処理の有無、並びに MaPP 添加量について、曲げ・引張特性、衝撃特性等の基礎的な物性の他、制振特性、トライボロジー特性と機械加工特性などの様々な性能への影響を調査した。

2.2.1.2.1.1. 基礎試験方法

基礎物性評価用試験片の作製

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機にて乾燥した後、小型射出成形機（babyplast 6/10、Rambaldi 製）を用いて、成形温度 200 °C、射出圧 50 bar にて短冊試験片及びダンベル試験片にそれぞれ成形した。短冊試験片は厚さ 4 mm、幅 10 mm、長さ 80 mm、一方、ダンベル試験片は平行部の厚さ 2 mm、幅 5 mm、長さ 30 mm、つかみ部幅 10 mm、全長 80 mm を作製した。

基礎物性試験

上記で作製した試験片を用いて実施した基礎物性試験（曲げ試験、引張試験、衝撃試験）は、いずれも温度 23 ± 1 °C、湿度 50 ± 5 %RH の実験環境の下で行った。

（曲げ試験）

試験には万能試験機（TENSILON RTG-1250、エー・アンド・デイ社製）を用い、スパン 48 mm、中央集中荷重からなる 3 点曲げ試験を試験速度 2 mm/min の速度一定制御で行った。弾性率の解析は自動で行い、曲げ強度（ σ_f ）、曲げ弾性率（ E_f ）を下記式（9）、（10）より算出した。

$$\sigma_f = (3F_f L_f)/(2bh^2) \text{ [MPa]} \quad (9)$$

$$E_f = (L_f^3 m_f)/(4bh^3) \times 10^{-3} \text{ [GPa]} \quad (10)$$

ここで、 F_f は曲げ試験時の最大荷重、 L_f は支点間距離、 b は試験片の幅、 h は厚さ、 m_f は弾性域の傾きで、解析開始点を 0.05 %GL、終了点を 0.25 %GL とした荷重—変位線図上平均傾きである。

（引張試験）

ダンベル型試験片を用いて万能試験機（TENSILON RTG-1250、エー・アンド・デイ社製）を用い、試験速度 20 mm/min 一定の速度制御で行った。弾性率の解析は自動で行い、解析開始点 0.05 %GL、終了点 0.25 %GL とし、標線間距離（GL）16 mm とした。また、伸びの算出にはチャック間変位を用い、初期チャック間距離 30 mm とした。引張強度（ σ_t ）は下記式（11）より算出した。

$$\sigma_t = F_t/A_0 \text{ [MPa]} \quad (11)$$

※ F_t は引張試験時の最大荷重、 A_0 は初期断面積

(衝撃試験)

衝撃試験には容量 2 J のシャルピー衝撃試験機 (U-F インパクトテスター、上島製作所) を用い、ノッチなし試験片とノッチ付き試験片について試験した。式 (12) により算出されたシャルピー衝撃強さをそれぞれ $I.V_N$ 、 $I.V$ とした。

$$I.V_N \text{ or } I.V = W/bh \times 10^3 \text{ [kJ/m}^2\text{]} \quad (12)$$

※ W : 衝撃試験時の吸収エネルギー、 b : 試験片の幅、 h : 厚さ

(流動性)

流動性の評価指標として、MFR を用いた。メルトインデクサー (Melt Indexer G-01、東洋精機製作所製) を用いて、荷重 2.16 kgf、測定温度 230℃ の条件にて測定した。

2.2.1.2.1.2. 試験結果

図 2-2-1-12～図 2-2-1-16 にて、各種機械特性の評価結果を示す。これまでの結果と同様に圧縮処理の有無にて各強度を比較すると、圧縮処理を加えることによって強度の低下がみられた。圧縮の有無による影響をヒノキやスギと比較すると、紙粉は各種強度の低下率は小さい結果となった。MaPP の添加は曲げ、引張、衝撃ともに強度の向上効果が大いことがわかる。また、MaPP 添加量の影響は各試験結果から総合的に判断すると相容化剤 2 倍量 (3.2%) が適していると考ええる。

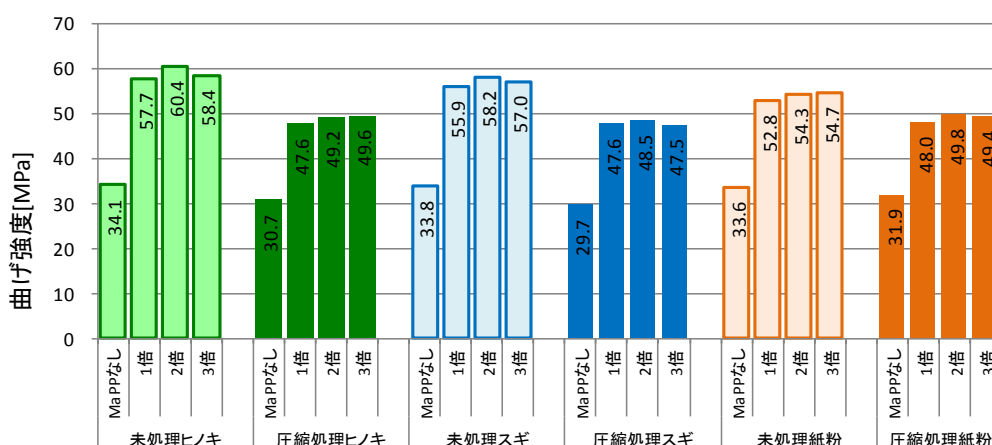


図 2-2-1-12 CF 種類と MaPP 添加量が曲げ強度に及ぼす影響

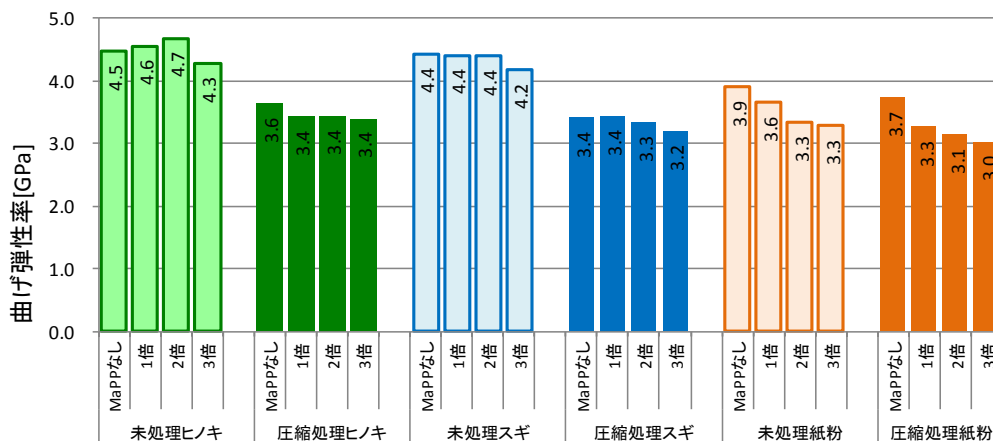


図 2-2-1-13 CF 種類と MaPP 添加量が曲げ弾性率に及ぼす影響

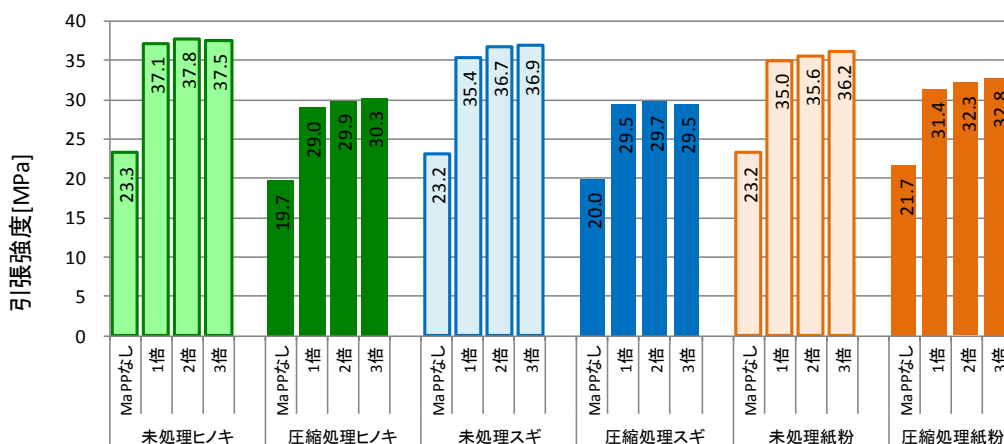


図 2-2-1-14 CF 種類と MaPP 添加量が引張強度に及ぼす影響

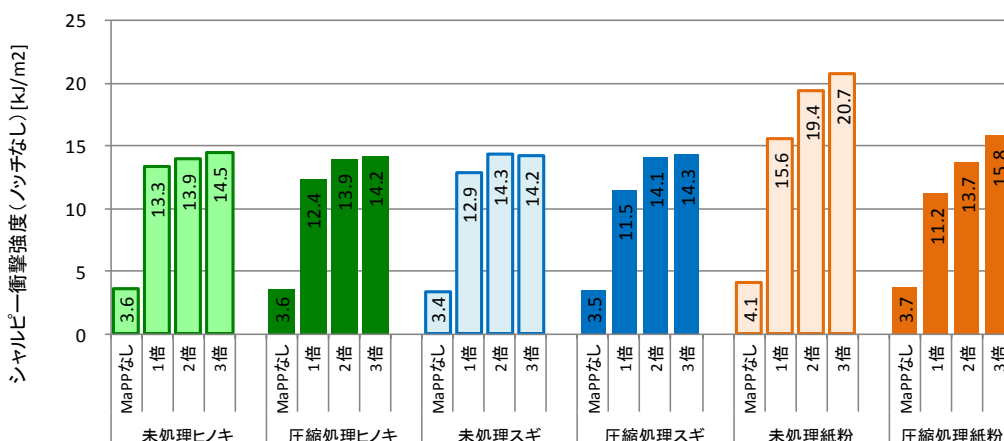


図 2-2-1-15 CF 種類と MaPP 添加量がシャルピー衝撃強度（ノッチなし）に及ぼす影響

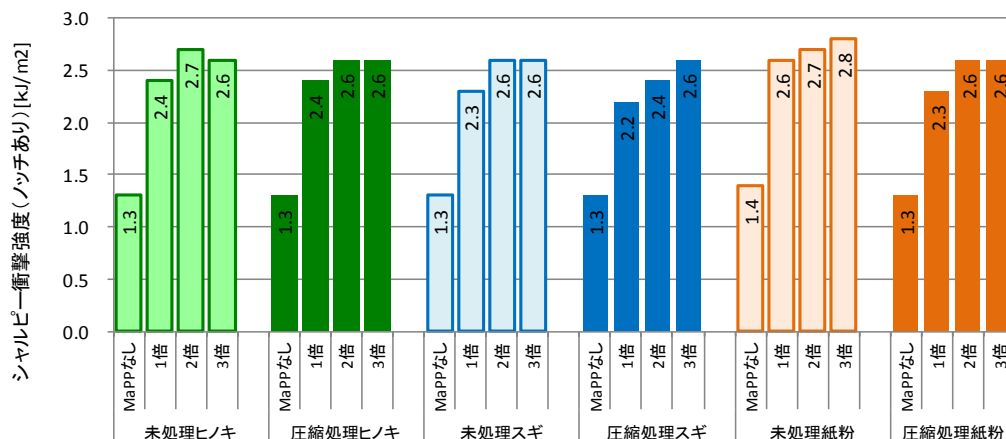


図 2-2-1-16 CF 種類と MaPP 添加量がシャルピー衝撃強度（ノッチあり）に及ぼす影響

2.2.1.2.2. 制振性評価

2.2.1.2.2.1. 目的

表 2-2-1-1 の配合条件にて成形したダンベル試験片を用い、制振性評価を行った。CF 添加 PP の具体的な適用範囲として電子系機器、建材利用を考えた場合、難燃性や耐衝撃性といった性能以外にも、部品によっては制振性能が求められる場合がある。CF は可燃性の素材であるため、難燃剤の複合化が必要不可欠である。CF、MaPP、難燃剤が機械的特性に影響を与えることがわかっているものの、特に制振性能に与える影響について詳細な調査は進んでいない。本項ではダンベル試験片の振動試験から制振性能の評価値である構造減衰係数を算出し、各配合条件における制振性評価を行う。なお、本項では振動試験より弾性率を推定し考察するが、通常の引張試験の結果とは観察しているひずみの大きさが異なり、非常に小さい変形領域であることに注意が必要である。

2.2.1.2.2.2. 中央加振法

試験片サイズが小さく、軽いことで境界条件の影響を受けやすくなることから、実験手法として中央加振法を用いる。中央加振法とは、JIS G0602 として規格化されている制振材を含めた梁構造の振動減衰を評価する試験のことである。図 2-2-1-17 に示すように試験片中央を加振機の先端で支えた状態で加振し、加振点における応答を計測する。応答は中央部のインピーダンスヘッド、試験片にとりつけた加速度計から加速度応答を取得する。入力情報はインピーダンスヘッドから力を計測する。振動試験から得られるデータは周波数応答関数となり、各共振ピークにおいて損失係数を同定することで、減衰特性を評価する。室温(20℃)、周波数分解能 0.125 Hz、対象は 1 次曲げモード、平均回数を 1000 回とした。なお、図 2-2-1-17 ではダンベル形状試験片となっているが、短冊形状でなくても減衰特性評価に影響は与えない。本試験から図 2-2-1-18 のような周波数応答関数 (FRF) を得ることができる。試験本数は 3 本であり、N は試験片のサンプル番号を意味している。FRF の比較から試験片の個体差は小さいことがわかる。この FRF から構造減衰係数を同定するが、配合条件による影響を捉えるためには、高精度な同定が必要である。

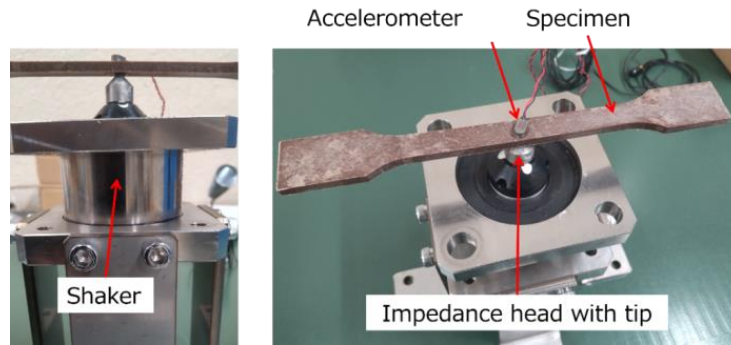
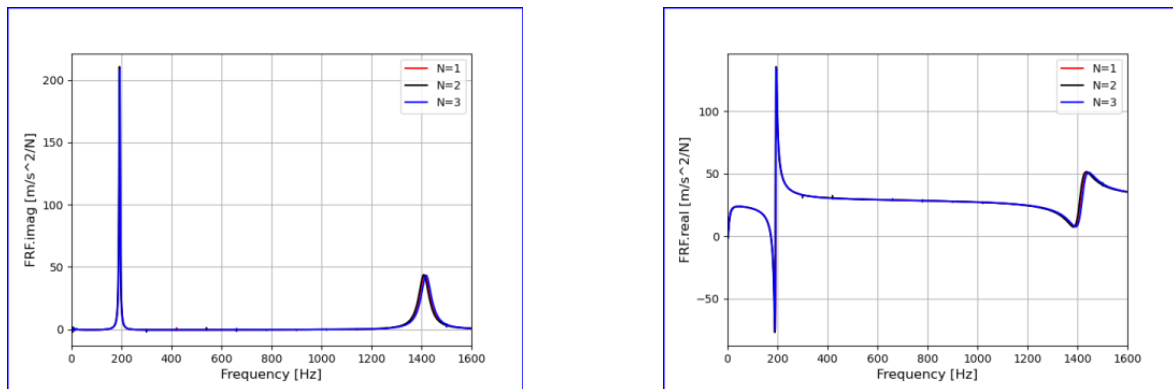


図 2-2-1-17 中央加振実験概略図



(a) Real part

(b) Imaginary part

図 2-2-1-18 周波数応答関数の例

2.2.1.2.2.3. 実験モード解析

対象物の振動試験の結果から固有振動数、減衰、モード形状で表されるモード特性を同定することを実験モード解析とよぶ。本項では数ある実験モード解析法のうち、直線フィット法を利用する。この方法は周波数応答関数の虚部と実部を連立させ、固有振動数と減衰特性を未知数とする方程式を導出し、複数の測定周波数における方程式をまとめることで、最小二乗法によって固有振動数と減衰特性を同定する方法である。本法は1つの共振データを対象に解析する手法で、非常に簡便かつ高精度である。この方法は比例粘性減衰系と構造減衰系にも容易に適用できる。通常、高分子材料などの減衰特性評価では損失係数が利用されるが、振動工学における構造減衰モデルがそれに相当する。そこで、構造減衰モデルによる実験モード解析を実施する。

N 自由度系の振動系を対象として、入力点は e 点の1点であるとし、参照点を r とした場合の FRF を $H_{r,e}$ とし、コンプライアンスを対象として考える。 p 次のモードの q 自由度成分を $\phi_{q,p}$ とすると、 n 次モードまで採用したときの任意の周波数 f に対する $H_{r,e}$ は次のように与えられる。

$$H_{r,e}(f) = \sum_{p=1}^n \frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{(1 + j\eta_p)k_p - m_p(2\pi f)^2} = \sum_{p=1}^n \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p}}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right) + j\eta_p} \quad (13)$$

なお、 m_p 、 k_p は p 次のモード質量、モード剛性を表す。このときモード特性のパラメータは p 次の固有振動数 f_{np} 、構造減衰係数 η_p 、固有モードのパラメータを含む項 $(\phi_{r,p} \phi_{e,p})/k_p$ （以下、留数とする）となる。なお、FRF に対して f_{np} 、 η_p は非線形項であり、 $(\phi_{r,p} \phi_{e,p})/k_p$ は線形項である。FRF の虚部と実部の連立を利用したモード特性同定法の利点を説明するため、 p 次のデータのみの1自由度系を対象としてモード特性のパラメータを同定する。なお p 次のみのFRF は次のようになる。

$$H_{r,e}^{(p)}(f) = \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p}}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right) + j\eta_p} = \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p} \left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)^2 + \eta_p^2} + j \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p} (-\eta_p)}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)^2 + \eta_p^2} \quad (14)$$

1 自由度系におけるモード特性の同定理論について述べる。式(14)を実部 H_R と虚部 H_I の項に分離し、表現すると次のようになる。

$$H_R(f) = \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p} \left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)^2 + \eta_p^2}, \quad H_I(f) = \frac{\frac{\phi_{r,p} \phi_{e,p}}{k_p} (-\eta_p)}{\left(1 - \frac{f^2}{f_{np}^2}\right)^2 + \eta_p^2} \quad (15)$$

ここで、実部と虚部の比を求め整理すると、次のようになる。

$$\frac{H_I(f)}{H_R(f)} = \frac{1}{f_{np}^2} \frac{H_I(f)}{H_R(f)} f^2 - \eta_p \quad \text{あるいは} \quad H_I(f) f^2 \frac{1}{f_{np}^2} - H_R(f) \eta_p = H_I(f) \quad (16)$$

式(16)は任意の周波数に対して成立することから、実験より得られたFRF から H_I/H_R を縦軸、 $H_I f^2 / H_R$ を横軸にとり直線近似式を求めれば、その傾きから固有振動数 f_{np} 、切片から構造減衰係数 η_p を求めることができる。周波数応答関数の虚部と実部の連立を用いる方法の利点は、共振ピークの頂点が不明であっても近傍のデータがあれば同定できる点、コヒーレンス関数などを基にした重み付け同定も容易である点が挙げられる。多自由度系であるFRF に対して1 自由度系の適用を考えた場合、目的外のモード成分が含まれているため、同定誤差が発生する。この条件は各モードの固有振動数間の距離が近い場合や減衰特性が大きい場合によく当てはまる。目的外のモード成分が剰余質量 S 、剰余剛性 Z で近似できるものとする、実部と虚部を連立して得られる方程式は次式で表される。

$$H_I(f) f^2 \frac{1}{f_{np}^2} - H_R(f) \eta_p + \frac{\eta_p}{S} - f^2 \frac{\eta_p}{Z} = H_I(f) \quad (17)$$

なお、コンプライアンスを対象に式(16)と式(17)を導出したが、モビリティ、アクセラランスでも式(16)と式(17)は成立する。中央加振法においてはインピーダンスヘッドや加速度計の質量が振動計測のデータに加算される。そのため、式(17)を用いて構造減衰係数を同定する。

2.2.1.2.2.4. 実験結果

得られた同定結果を図 2-2-1-19 に固有振動数の比較を示す。図 2-2-1-19 より、固有振動数は質量および剛性に依存するため、配合条件によって差異がみられるが構造減衰係数を評価する周波数帯域は概ね一定であることがわかる。なお、各試験片の重量分布を図 2-2-1-20 に示す。密度が大きく異ならないことから、固有振動数の大きさと弾性率の大きさには相関があることがわかる。特にヒノキとスギは圧縮処理されることで、固有振動数が低下すなわち弾性率が低下していることがわかる。通常、介在物の存在する複合材の弾性率増加は介在物の応力によって成立する。未処理から圧縮処理されることによって接地面積の減少およびアンカー効果の減少が起こったと考えられる。一方、紙粉についてはその影響がヒノキ、スギに比べて小さいことがわかる。

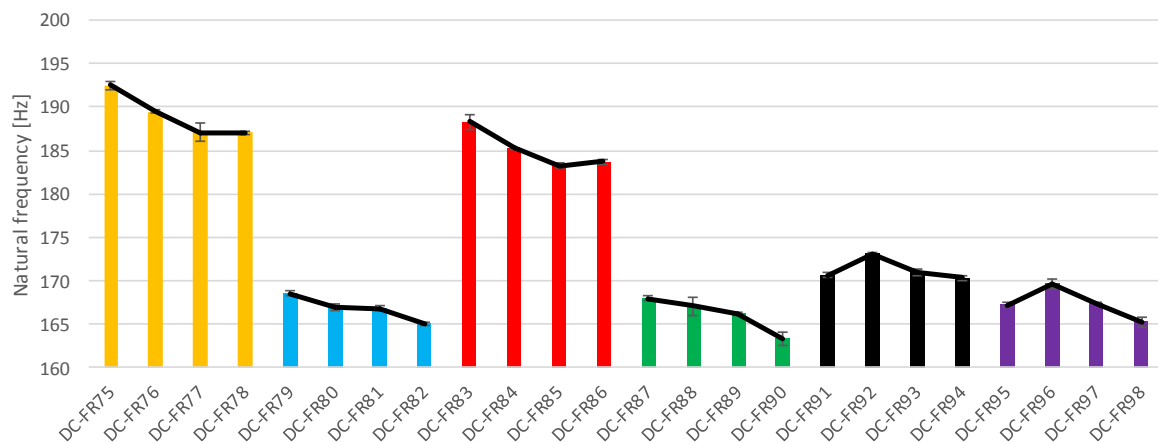


図 2-2-1-19 固有振動数の比較

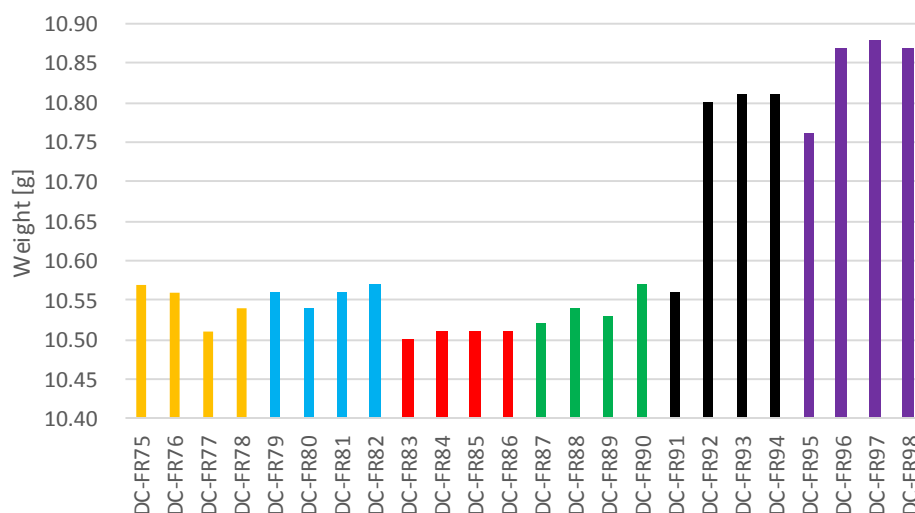


図 2-2-1-20 重量データ

次に図 2-2-1-21 に構造減衰係数の比較を示す。未処理ヒノキ、圧縮ヒノキ、未処理スギ、圧縮スギ、未処理紙粉、圧縮紙粉の順に大きくなっており、MaPP の配合比率が増加するとともに、増加傾向にあることがわかる。まず、圧縮処理による効果としては上述のように接地面積の減少およびアンカー効果の減少が考えられるが、接地面積の減少は介在物の界面で発生する摩擦散逸エネルギーの減少に繋がる。そのため、圧縮処理による接地面積の減少は構造減衰係数の増加に寄与しない。よって、アンカー効果の減少により応力伝搬の連続性が失われ、固着領域からすべり領域の発生領域が増えたことが主因であると考えられる。また、MaPP は相容化機能を果たしていることがわかる。

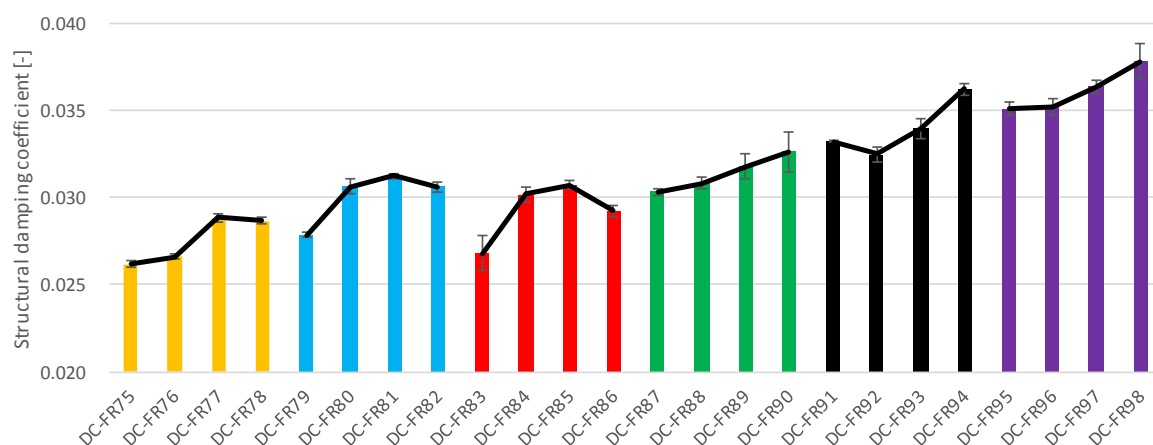


図 2-2-1-21 構造減衰係数の比較

2.2.1.2.3. トライボロジー特性

2.2.1.2.3.1. 目的

樹脂摺動部材は耐熱性、経済性、自己潤滑性と言った利点から、OA 機器の滑り軸受、歯車、分離爪、紙送りローラなどに用いられている。また、熱可塑性樹脂を使用することで成形品を粉砕して再利用が可能であることから、廃棄物処理問題や焼却処理時の CO₂ の排出問題といった環境問題の改善に繋がると考えられる。そこで、本項では熱可塑性樹脂である難燃性 CF 添加 PP における摺動部材への適用可能性を検討するためトライボロジー特性の調査を行った。

2.2.1.2.3.2. 実験方法

2.2.1.2.3.2.1. 摩擦摩耗試験

本実験では室温・乾式下で、材料の押出方向に垂直な断面に対して摩擦摩耗試験を行った。試験には Ball-on-disk 型摩擦摩耗試験機((株)レスカ、FPR2200)を使用し、φ4.76 mm (3/16 インチ) の SUJ2 ボールを用いて試験を実施した。摩擦係数の算出方法は、Ball-on-disk 試験中、ボールー試料間に発生するトルク T および垂直荷重 P を用いて、以下に示す式(18)を用いて摩擦係数 μ を算出した。ただし、 r はボールの回転半径である。試験条件を、表 2-2-1-3 に示す。摩擦摩耗試験開始後 1000~3000 秒の摩擦係数の平均値を試験中の動摩擦

係数と定義し、これを用いて摩擦係数を評価した。

$$\mu = \frac{T}{P \cdot r} \quad (18)$$

表 2-2-1-3 摩擦摩耗試験条件

Ball	SUJ-2、 ϕ 4.76 mm
Normal load	1[N]
Sliding time	3600[s]
Sliding speed	20[mm/s](Rotation speed: Approx. 64 min ⁻¹)
Rotation radius	3[mm]

2.2.1.2.3.2.2.摩耗量測定

摩耗特性を評価するため、形状解析レーザ顕微鏡(以下、レーザ顕微鏡、(株)キーエンス、VK-X210)を用いて、ラインプロファイル測定により測定した摩耗痕断面から摩耗量を算出した。

2.2.1.2.3.2.3.摩耗痕の断面観察

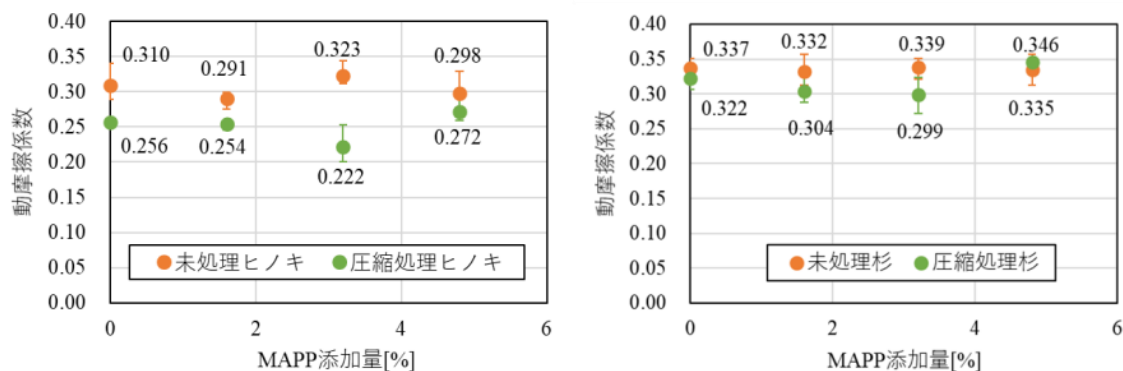
摩擦摩耗試験後の摩耗痕の断面を、走査型電子顕微鏡 ((株)日立ハイテク、TM3030Plus)を用いて観察した。なお摩耗痕の断面観察は、DC-FR75、DC-FR78、DC-FR79、DC-FR82の試料に対してのみ行った。

2.2.1.2.3.2.4.EDS 分析

走査型電子顕微鏡を用いて、EDS 分析を行った。なお EDS 分析は、前項における断面観察図に対して行った。観察倍率は 2000 倍で行った。検出元素は炭素 (C)、リン (P)、酸素 (O) とし、それぞれの元素の分布を調査した。C は主に PP、P は難燃剤、O は CF に起因すると考えた。

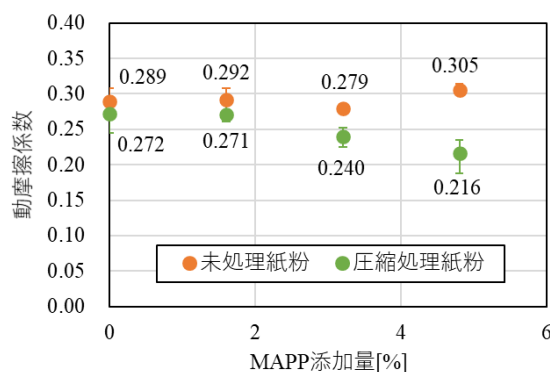
2.2.1.2.3.3. 結果と考察

各試料に対する摩擦摩耗試験開始後算出した動摩擦係数と MaPP 添加量の関係を図 2-2-1-22 に示す。図 2-2-1-22 より、各種 CF において MaPP 添加量と動摩擦係数に明確な関係性は認められなかった。また、各種 CF において圧縮処理 CF を添加した試料と未処理 CF を添加した試料の動摩擦係数を比較すると、圧縮処理 CF を添加したもののほうが小さいようであった。CF を主成分とする摩耗粉が試験片表面に生じ、ボール-試料間でころの役割を果たし転がることで潤滑作用が働いたと考えている。この潤滑作用の働きが圧縮処理 CF の方が未処理 CF と比較して大きかったため、圧縮処理 CF を添加したもののほうが動摩擦係数は小さかったと考えられる。



(a)ヒノキ

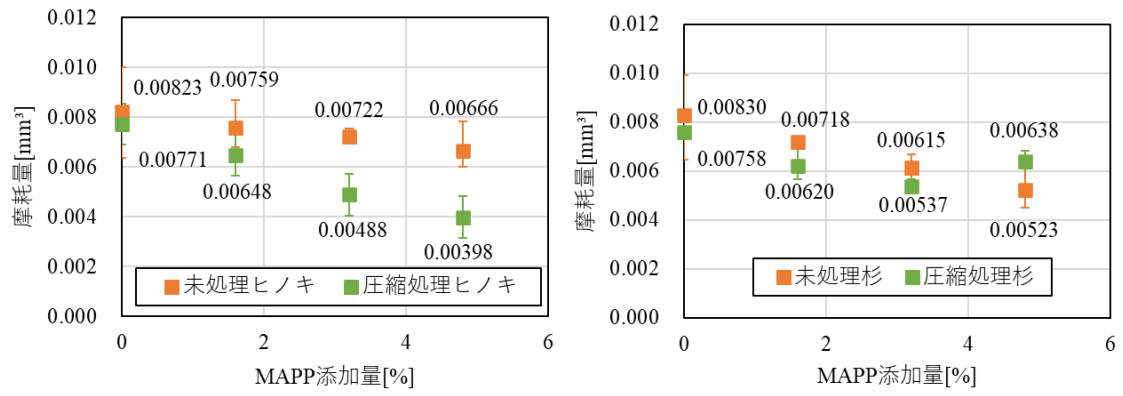
(b)杉



(c)紙粉

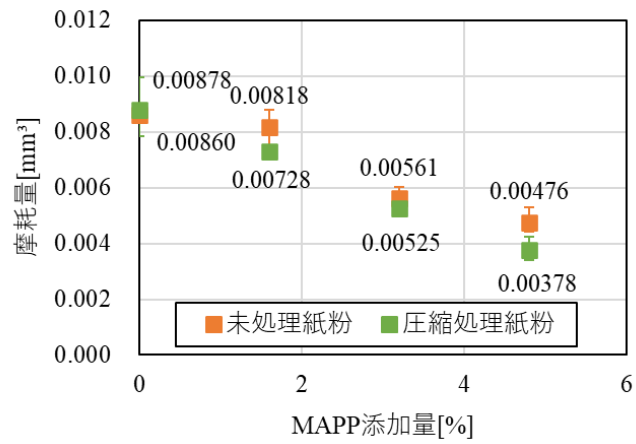
図 2-2-1-22 各種 CF における MaPP 添加量と動摩擦係数の関係

各試料における摩耗量と MaPP 添加量の関係を図 2-2-1-23 に示す。図 2-2-1-23 より、各 CF において MaPP 添加量の増加に伴い、摩耗量は低下する傾向が認められた。摩耗痕の断面の SEM 像とその断面に対する EDS 分析結果を図 2-2-1-24 に示す。図 2-2-1-24 より、き裂が主に CF の凝集部、CF と PP の界面で生じていることが確認できる。CF の凝集部に垂直荷重と摩擦力が繰り返し作用することによって CF の凝集部、CF と PP の界面にき裂が生じ材料表面に進展し、CF が脱落することで摩耗粉が発生し摩耗量増加に繋がったと考えられる。また、MaPP 添加量が少ない場合、CF の周辺には難燃剤の凝集が確認できた。このことから、難燃剤の添加が CF と PP の密着性を低下させたため摩耗が促進したと考えられる。一方、MaPP の添加は難燃剤の分散性や CF と PP の密着性向上に寄与したと考えられ摩耗量の低減に繋がったと考えている。



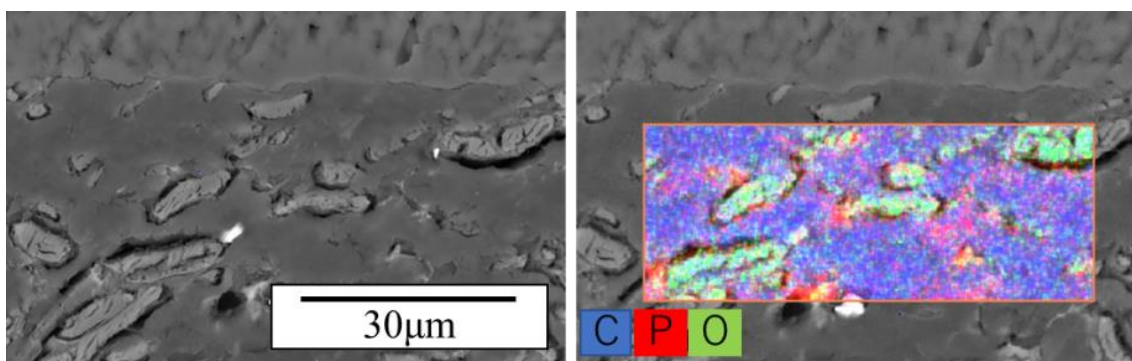
(a)ヒノキ

(b)杉

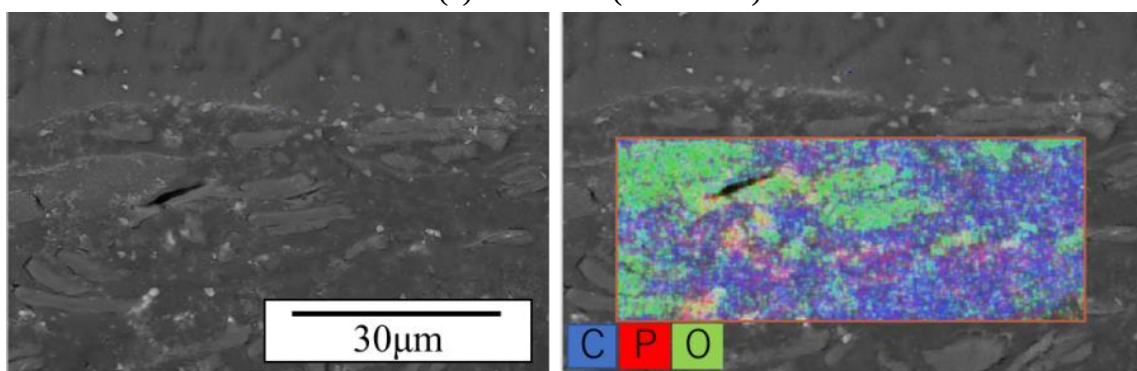


(c)紙粉

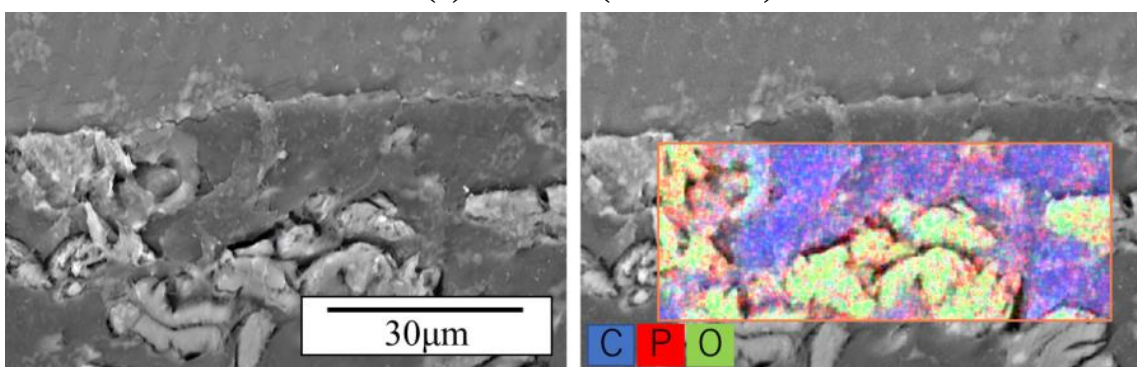
図 2-2-1-23 各種 CF における MaPP 添加量と摩耗量の関係



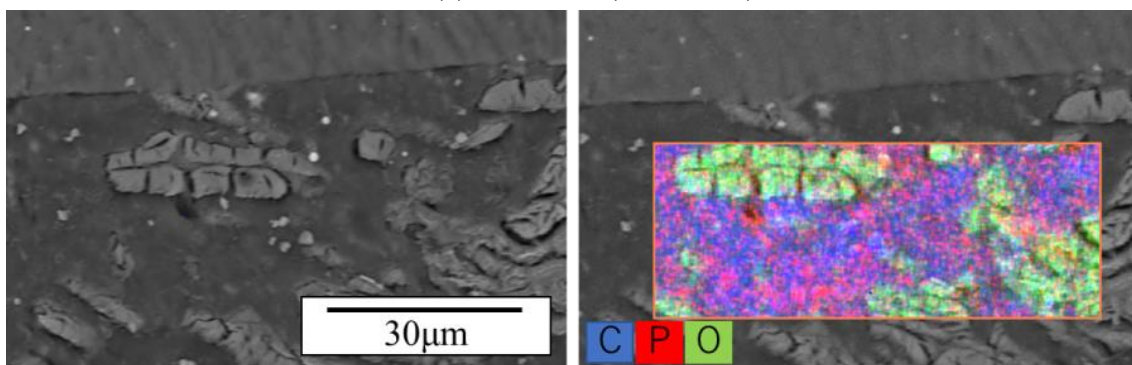
(a) DC-FR75(MaPP 0%)



(b) DC-FR78(MaPP 4.8%)



(c) DC-FR79(MaPP 0%)



(d) DC-FR82(MaPP 4.8%)

図 2-2-1-24 摩耗痕の断面 SEM 像（左）と EDS 分析結果（右）

2.2.1.2.4. 機械加工特性

2.2.1.2.4.1. 目的

機械加工（切削加工）は代表的な加工方法の一つであり、高い汎用性を有する。機械加工を CF 添加 PP の 2 次加工として用いることが出来れば、応用展開できる形状を大幅に広げることができ、これら複合材の普及にあたり重要な役割を担うと考える。令和 2 年度は単一条件での切削によって、複合材の機械加工特性を調査した。本年度はさらに複数条件での切削によって、複合材の機械加工特性を調査した結果を報告する。

2.2.1.2.4.2. 実験装置・方法

図 2-2-1-25 に実験概要を示す。種々の配合率（表 2-2-1-1）で成形した CF 添加 PP（被削材）をエンドミルによって側面切削したときに生じた切削抵抗を測定した。切削抵抗は工作機械のテーブルに取り付けた 3 軸動力計によって計測した。工作機械には Accumill 4000（DMG 森精機株式会社製）、エンドミルには 2 枚刃の樹脂用エンドミル CPS2060（ユニオンツール株式会社）を用いた。なお、昨年度の調査によって切削温度は切削抵抗に伴って変動することが確かめられたため、本項では切削抵抗のみから、CF 添加 PP の切削特性を評価した。切削条件を表 2-2-1-4 に示す。主軸回転数 S （5 水準）、一刃あたりの工具送り量 f_t （5 水準）、半径方向の切込み量 R_d （3 水準）をそれぞれ変化させた合計 75 条件の切削条件で各 CF 添加 PP を切削することで、切削特性を調査した。

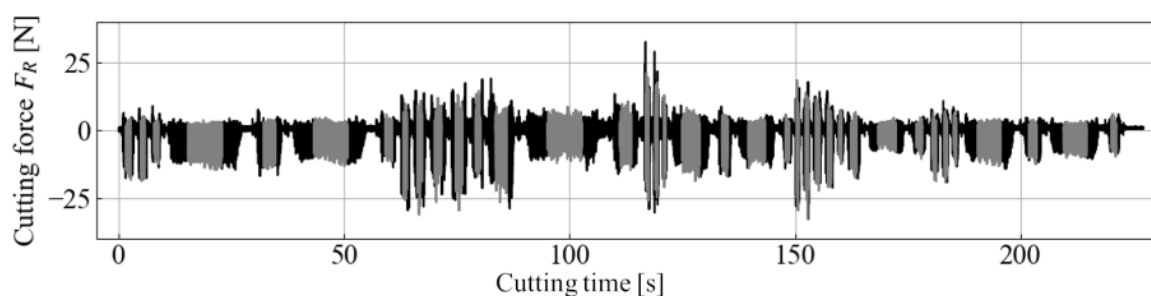
表 2-2-1-4 切削条件

Spindle speed S [min^{-1}]	4000, 5000, 6000, 7000, 8000
Tool feed f_t [mm/tooth]	0.01, 0.03, 0.05, 0.07, 0.09
Radial depth of cut R_d [mm]	0.25, 0.50, 0.75
Axial depth of cut A_d [mm]	4
Tool diameter D [mm]	6

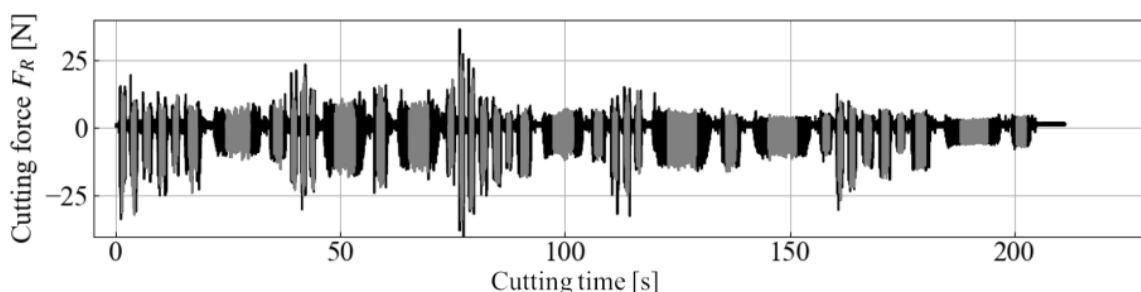


図 2-2-1-25 切削実験の概要

切削実験で得られた切削抵抗の時系列データの一例を図 2-2-1-26 に示す。加工プログラムによって、切削条件を変えながら切削を繰り返すことで、各 CF 添加 PP に対して 75 条件の切削を試行した。ただし試験片の形状と全条件の切削量の関係から、一つの試験片では全条件を切削しきれなかったため、切削は 2 回分の加工プログラムに分けておこなった。各条件の切削抵抗は、加工プログラムを基準に、試験片の中央 10 mm 付近を切削していると推定される時刻の時系列データを評価対象とした。図 2-2-1-26 には、実際に評価した区間を各条件で色分けして表示している。また、評価区間の一部をさらに拡大した切削抵抗の時系列データを図 2-2-1-27 に示す。時系列データには切削時と非切削時を示す波形が見られ、エンドミルの断続切削をよく捉えていることがわかる。一方で時系列データには振動やノイズとみられる成分も含まれていることが、特に非切削時の波形からわかる。本報ではこの切削抵抗以外の成分の影響を低減するために、図 2-2-1-27 のように時系列データを断続切削周期ごと切り出し、各周期の時系列データを全て足し合わせることで、断続切削（一刀あたりの切削）ごとの平均的な切削抵抗の波形を求めた。



(a) 前半の切削条件



(b) 後半の切削条件

図 2-2-1-26 DC-FR75 の X 方向の切削抵抗

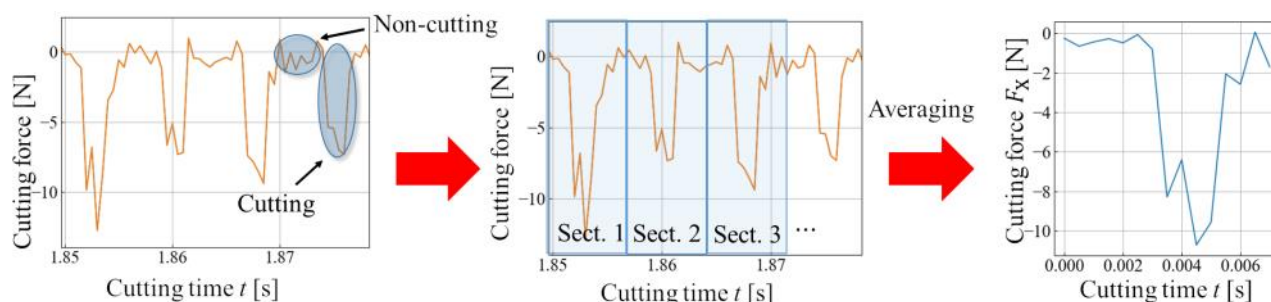


図 2-2-1-27 断続切削ごとの平均的な切削抵抗の波形の求め方

本実験では3軸の動力計を使用し、切削抵抗の時系列データはX、Y、Z方向にそれぞれ得られたため、上記の方法によって平均的な切削抵抗の波形 $F_X[t]$ 、 $F_Y[t]$ 、 $F_Z[t]$ を各方向で求めた。さらに、各方向の平均的な切削抵抗 $F_X[t]$ 、 $F_Y[t]$ 、 $F_Z[t]$ の総量を次式によって計算し、各切削条件の一刃あたりの切削にかかる切削抵抗の総量 F_R として評価した。

$$F_R = \sum_t \sqrt{F_X^2[t] + F_Y^2[t] + F_Z^2[t]} \quad (19)$$

2.2.1.2.4.3. 実験結果および考察

2.2.1.2.4.3.1. CF 添加 PP の機械加工特性

本節では DC-FR75 を例として、CF 添加 PP の機械加工特性を考察する。図 2-2-1-28 に、前節の方法で得られた一刃あたりの切削にかかる切削抵抗の総量 F_R と切削条件の関係を示す。図 2-2-1-28 より主軸回転数 S が減少、一刃あたりの工具送り量 f_t および半径方向切り込み R_d が増大するほど切削抵抗の総量 F_R は増大する傾向にあることがわかる。また主軸回転数 S よりも一刃あたりの工具送り量 f_t および半径方向切り込み R_d の方が切削抵抗 F_R の変動に与える影響が大きいことがわかる。ここで図 2-2-1-29 に示すように、切削条件の中でも、主軸回転数 S は切削速度、一刃あたりの工具送り量 f_t および半径方向切り込み R_d は各刃が一回で切削する領域の面積と形状に関与することがわかる。このことから、一刃あたりの切削にかかる切削抵抗の総量 F_R は各刃が切削する領域の面積および形状に大きく影響されることが予想される。図 2-2-1-29 に切削抵抗の総量 F_R と各刃が切削する領域の面積および形状の関係を示す。ここで、切削領域の面積 A は図 2-2-1-29 の幾何学的関係から計算することができる。また、切削領域の概形を表す指標として、工具送り量 f_t と半径方向切り込み R_d のアスペクト比 f_t / R_d を導入した。工具送り量 f_t が大きくなると、各刃が切削する領域が厚くなり、半径方向切り込み R_d が大きくなると、切削する領域が長くなることが図 2-2-1-29 からわかる。したがって、アスペクト比 f_t / R_d は、大きくなるほど切削領域が厚く短くなり、小さくなるほど切削領域が薄く長くなることを概ね表す指標として用いることができると考える。図 2-2-1-30 より切削抵抗の総量 F_R はアスペクト比 f_t / R_d にほとんど影響されず、各刃が切削する領域の面積に強く影響されることがわかる。

次に CF 添加 PP の機械加工特性を統計量から推定する。図 2-2-1-28、図 2-2-1-30 に示すグラフの傾向から、切削抵抗の総量 F_R と各切削条件の関係は、本実験条件の範囲内において、次式の線形和で概ね表すことができると考える。

$$F_R = \alpha S + \beta A + \gamma f_t / R_d + \delta \quad (20)$$

ここで、 S は主軸回転数、 A は各刃が切削する領域の面積、 f_t / R_d は各刃が切削する領域の概形を表すアスペクト比である。式(20)を基に重回帰分析によって、切削抵抗の総量 F_R と各切削条件の統計的関係を解析した結果を表 2-2-1-5 に示す。表 2-2-1-5 の t 、 p 値から、切削抵抗の総量 F_R は主軸回転数 S 、切削面積 A と強い線形関係にあることがわかった。さらに標準偏回帰係数から、主軸回転数 S を小さく、切削面積 A を大きくするほど、切削抵抗

の総量 F_R は大きくなり、切削面積 A が結果に最も強く影響を与えることもわかった。これらの特性はいずれも、図 2-2-1-28、図 2-2-1-30 のグラフの傾向から得られた特性と一致しており、それぞれ結果の妥当性が確かめられた。以上から実験条件範囲内では主軸回転数 S を大きくし切削面積 A を小さくするほど加工時に切削抵抗の総量 F_R を小さくできることがわかった。また、本節では例として DC-FR75 の機械加工特性を示したが、他の CF 添加 PP についても同様の傾向を示していた。

表 2-2-1-5 切削抵抗の総量 F_R と切削条件の統計的關係

	Partial regression coefficient	Standardized partial regression coefficient	t-ratio	p-value
α	-0.0044	-0.365	-9.55	2.25×10^{-14}
β	807	0.898	22.5	5.02×10^{-34}
γ	6.84	0.038	0.985	0.328
δ	39.7	-5.55×10^{-17}	13.0	2.22×10^{-20}

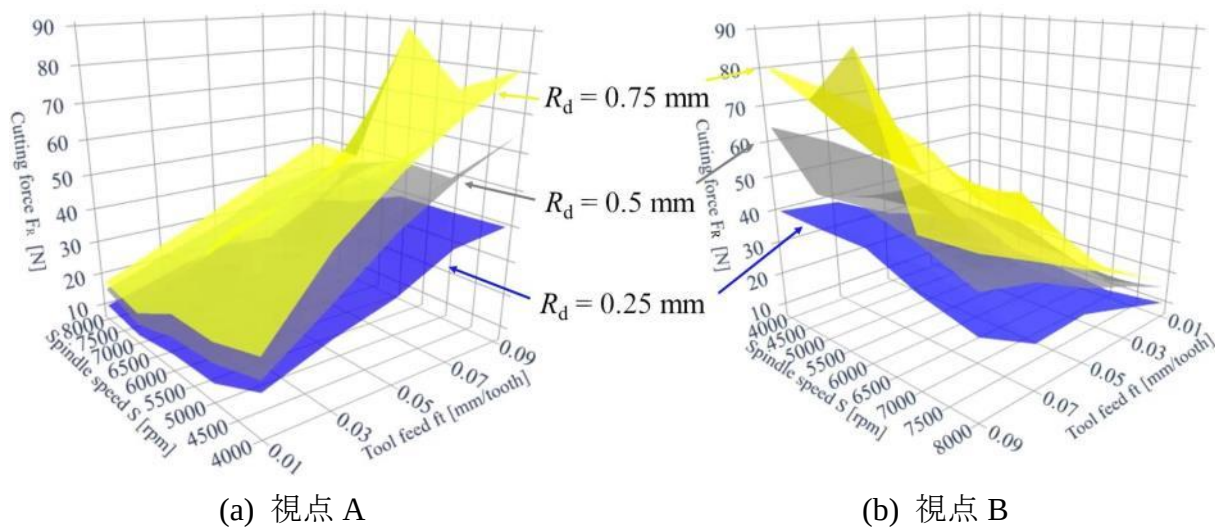


図 2-2-1-28 切削抵抗の総量 F_R と切削条件の關係

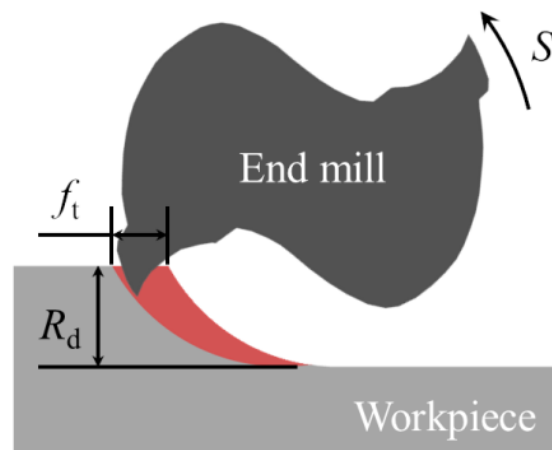


図 2-2-1-29 エンドミルによる切削プロセスの概略図

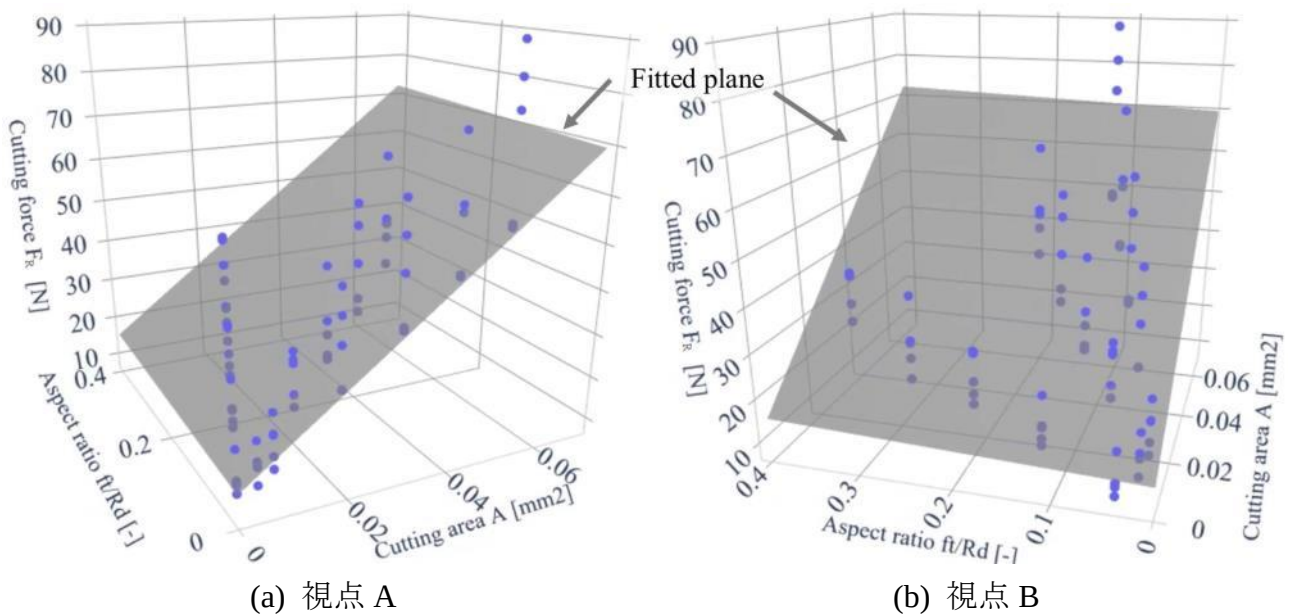


図 2-2-1-30 切削抵抗の総量 F_R と各刃が切削する領域の面積 A , アスペクト比 f_t/R_d の関係

2.2.1.2.4.3.2.各種 CF における MaPP 添加量と機械加工特性の関係

本項では CF 添加 PP に用いる各種 CF における MaPP 添加量と機械加工特性の関係について考察する。式(20)の係数 β は切削抵抗の総量 F_R と切削面積 A の比例関係を表す係数であり、比切削抵抗に近い役割を持つと考える。すなわち係数 β は各 CF 添加 PP の切削のし難さを表すと考える。これを基に、各 CF 添加 PP の係数 β を重回帰分析によってそれぞれ求め、比較した結果を図 2-2-1-31 に示す。図 2-2-1-31 より、全体を通して MaPP の配合率が 0 % の CF 添加 PP には比切削抵抗に僅かな減少が見られ、紙粉を配合した試験片の比切削抵抗は総じてスギ、ヒノキより高い傾向にあることがわかった。

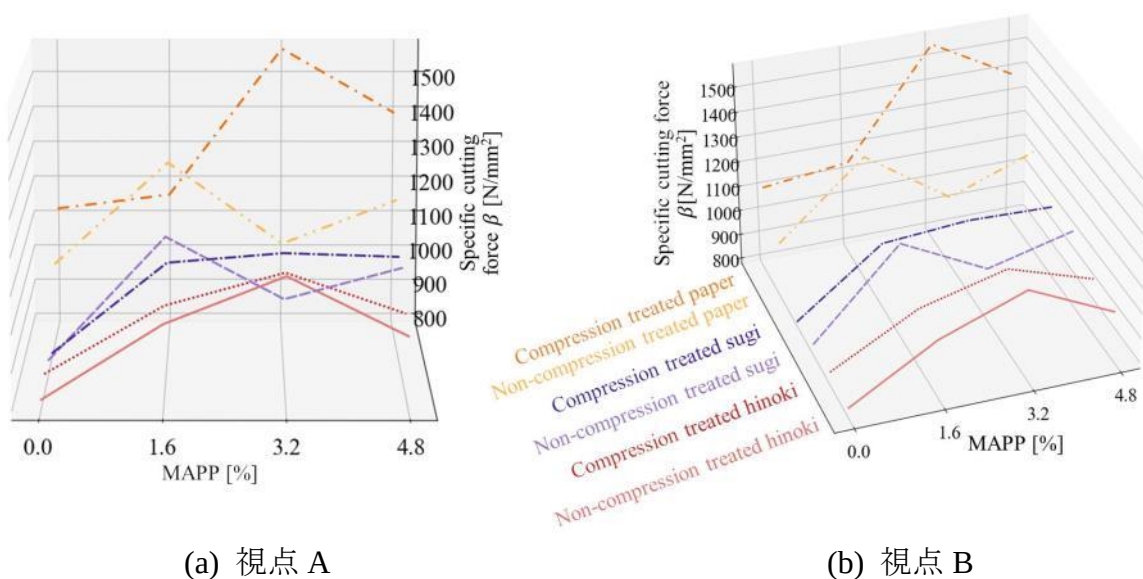


図 2-2-1-31 各種 CF における MaPP の配合率と機械加工特性の関係

2.2.1.3. 難燃性と成形外観を両立する配合の検証

令和2年度の製品成形テストにおいて、図2-2-1-32に示すような、外観不良が発生した。難燃処方ではCFが40%、APPが20%と多量のフィラーを添加している為、発生しやすい状況にあることから、成形外観の向上について検討を行った。



図 2-2-1-32 令和2年度試作品（CF45%+APP20%）

2.2.1.3.1. 成形外観向上手法の検証

このような外観不良が生成する要因は金型内での不安定流動によるもので、金型に熔融樹脂を充填する際、スキン（表面）層の生成途中で熔融せん断破壊が発生し、部分的に金型表面とスキン層がスリップする現象が発生することによるものと考えられる。特にCFやAPPの添加は、PP単体に比べ冷却固化に必要な熱量が減少することから、PP単体に比べスキン層の形成速度は速く、スキン層のスリップが発生しやすいものと考えられる。対策としては熔融母材の自己凝集力の向上、充填速度（射出速度）のアップもしくは結晶化速度の遅延が考えられる。熔融母材の自己凝集力向上については、相容化剤（MaPP）の添加が効果的であり「2.2.1.1.難燃性を有する配合の検証」「2.2.1.2.難燃配合における各種成形体特性」にて得られた結果から、相容化剤2倍量（3.2%）を採用し、本項では表2-2-1-6に示した配合にて射出速度による影響、PPワックスの添加による難燃処方の成形外観の向上の検証を実施した。

表 2-2-1-6 成形外観評価に用いた難燃性配合

No.	圧縮処理 ヒノキ[%]	PP [%]	APP [%]	MaPP [%]	PPワックス [%]
DC-FR81	40.0	36.8	20.0	3.2	
DC-FR108	40.0	31.8	20.0	3.2	5.0

2.2.1.3.1.1. 射出速度による影響

スキン層形成速度は金型表面と接触時間に比例することから、射出速度に依存すると言える。このことから射出速度による影響を調査した結果を図2-2-1-33に示す。この結果から射出速度が速くなるにつれて外観が良好になる結果が得られた。



遅い → 速い
射出速度

図 2-2-1-33 射出速度の影響 (DC-FR81)

2.2.1.3.1.2. PP ワックス添加による成形外観

「2.2.1.3.1.1.射出速度による影響」から成形外観は射出速度に依存していることがわかった。このことから材料の結晶化を遅延することが、成形外観には有効であることから、結晶性の低い PP ワックスを添加することによる成形外観向上を図った。難燃性処方に PP ワックスを 5 % 添加した際の結晶化の遅延効果について示差走査熱量計 (DSC) を用い、冷却固化時の熱移動量を計測した結果を図 2-2-1-34 に示す。この結果から結晶化ピークまでの時間がシフトしており、PP ワックス添加により結晶化速度 (冷却固化速度) の遅延効果が発現していると考ええる。また、図 2-2-1-35 に PP ワックスを添加した際の射出速度別外観を示したとおり、成形外観を改善できる結果を得ることができた。

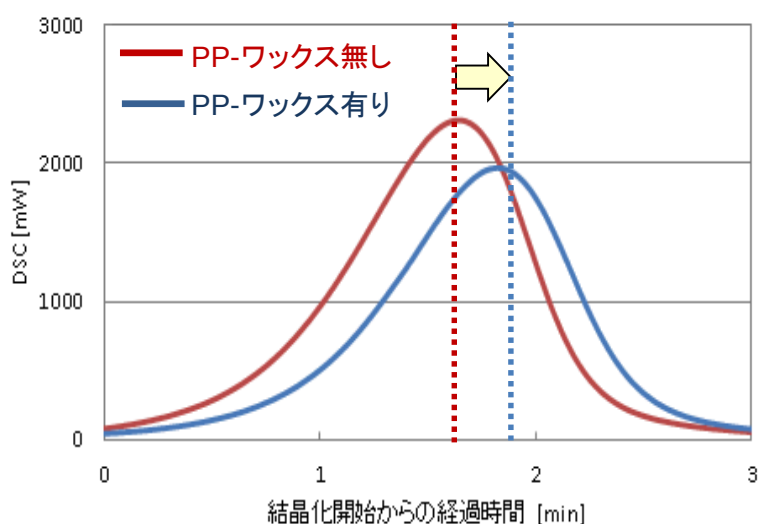


図 2-2-1-34 結晶化遅延の効果 (DC-FR81 と DC-FR108 の比較)



遅い → 速い
射出速度

図 2-2-1-35 射出速度の影響 (DC-FR108)

2.2.1.3.1.3. PP ワックス添加が難燃性に及ぼす影響

「2.2.1.3.1.2.PP ワックス添加による成形外観」にて得られた配合の難燃性評価結果を表 2-2-1-7 に示す。3.2mm 厚においては V-0 を得ることができた。一方、1.6mm 厚においては PP ワックス添加により、2 回目接炎時の燃焼時間が長く、熔融粘度の低下からドリップが発生した為、V-2 の判定となった。PP ワックスが熔融粘度の低下に寄与した為と考えられるが、後述する「2.5.3.多回りサイクル性の検証」の結果では、コンパウンド条件によっては V-0 の性能を発現できる可能性がある。

表 2-2-1-7 PP ワックスの有無による難燃性能に及ぼす影響

DC-FR81					DC-FR108				
	t=1.6[mm]		t=3.2[mm]			t=1.6[mm]		t=3.2[mm]	
No.	残炎時間 [s]		残炎時間 [s]		No.	残炎時間 [s]		残炎時間 [s]	
	①	②	①	②		①	②	①	②
1	0.9	2.3	0.8	0.9	1	4.2	13.6	1.2	1.3
2	1.1	2.2	0.9	1.8	2	0.9	13.5	3.9	0.7
3	0.9	4.8	0.8	1.3	3	1.1	13.2	8.4	1.2
4	0.9	4.9	0.9	1.0	4	1.0	14.4	0.9	0.6
5	0.8	2.4	1.1	0.8	5	1.7	13.6	1.5	0.8
判定	V-0		V-0		判定	V-2※		V-0	

※t=1.6mm にてドリップが発生

2.2.1.3.1.4. 外観改善処方における機械特性評価結果

前項で示した外観改善処方における機械特性結果を表 2-2-1-8 に示す。PP ワックスを添加したことで、MFR の上昇とノッチ無し衝撃強度の向上がみられる一方、曲げ強度・弾性率及び引張強度については、若干の強度低下がみられた。

表 2-2-1-8 外観改善処方における機械特性評価結果

No.	MFR [g/10min]	曲げ強度 [MPa]	曲げ弾性率 [GPa]	引張強度 [MPa]	シャルピー衝撃強度[kJ/m ²]	
					ノッチなし	ノッチあり
DC-FR81	9.2	49.2	3.4	29.9	13.9	2.6
DC-FR108	11.3	44.6	2.9	28.2	15.3	2.6

2.2.1.3.1.5. まとめ

これまでの結果から得られた配合、条件をもとに、製品検証に用いるトナーカートリッジに類似する金型にて成形試作した結果、図 2-2-1-36 に示すとおり、外観については大きく改善する結果が得ることができた。難燃性能については、製品肉厚に依存するものの、3.2mm においては V-0 を達成しており、成形外観と難燃性を両立することができた。

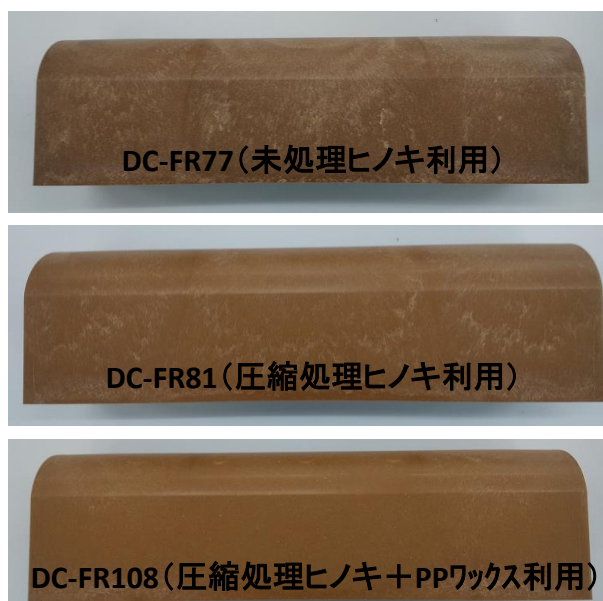


図 2-2-1-36 製品形状における外観評価結果

2.2.2. 難燃化 CF 添加 PP 量産試作の実施

「2.1.3.圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施」と同様に、難燃性 CF 添加 PP の量産試作を実施し、連続生産中に 5 点のサンプルを採集し、流動性、機械特性を評価した。また量産試作品についての難燃性評価を実施した。量産テストに用いた配合は DC-FR108 に顔料マスターバッチ (MB) を 1% 添加したもの (表 2-2-2-1) を用いた。

表 2-2-2-1 難燃化 CF 添加 PP の量産テストに用いた配合

	圧縮処理 ヒノキ[%]	PP [%]	APP [%]	MaPP [%]	PP ワックス [%]	顔料 MB [%]
DC-FR113	40.0	30.8	20.0	3.2	5.0	1.0

2.2.2.1. 試験結果

図 2-2-2-1～図 2-2-2-6 にて、測定サンプルの流動性と各種機械特性の推移を示す。また、表 2-2-2-2 にはそれぞれのバラつきデータをまとめた。本結果より、MFR (流動性) 曲げ強度、曲げ弾性率、引張強度、シャルピー衝撃強度 (ノッチなし、あり) においてバラつきは小さく、生産中の品質は安定していると考えられる。難燃性評価結果は表 2-2-2-3 に示した。量産テスト品においても「2.2.1.3.1.3.PP ワックス添加が難燃性に及ぼす影響」で示した結果と同様の難燃性能を得ることができた。

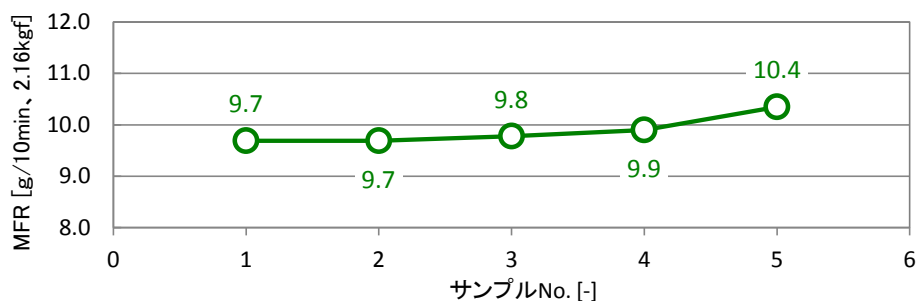


図 2-2-2-1 量産テストにおける MFR (流動性) の推移

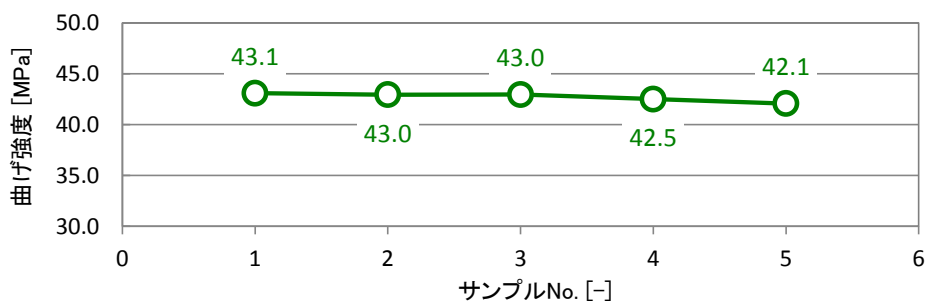


図 2-2-2-2 量産テストにおける曲げ強度の推移

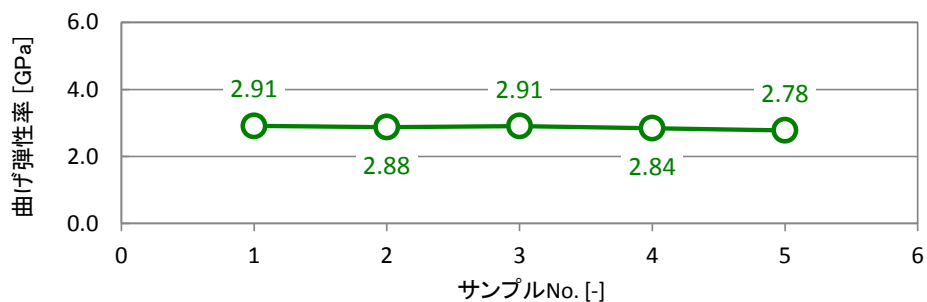


図 2-2-2-3 量産テストにおける曲げ弾性率の推移

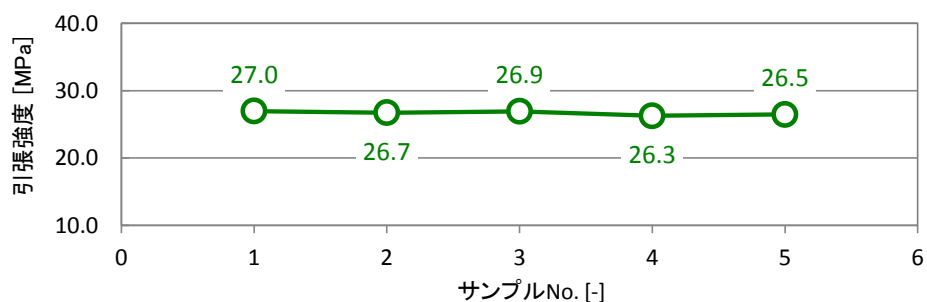


図 2-2-2-4 量産テストにおける引張強度の推移

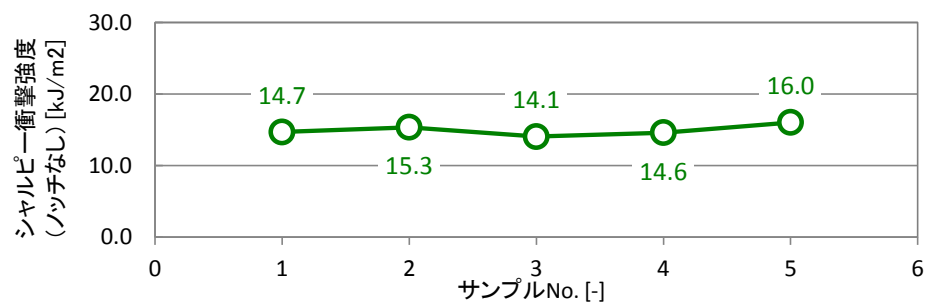


図 2-2-2-5 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチなし）の推移

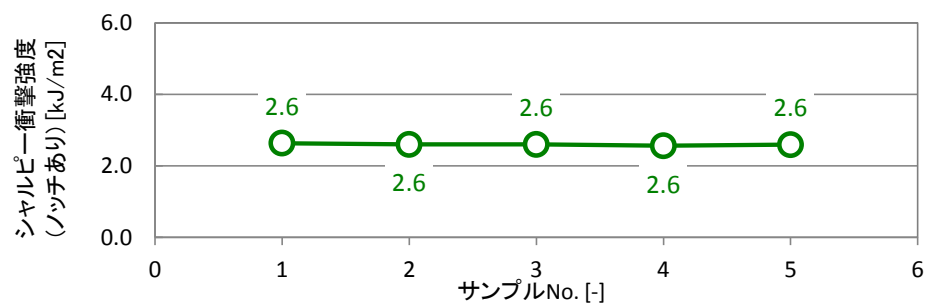


図 2-2-2-6 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチあり）の推移

表 2-2-2-2 量産テストの 5 サンプルングにおけるバラつきデータ

		平均値	標準偏差 (σ)
MFR(流動性)	[g/10min]	9.88	0.28
曲げ強度	[MPa]	42.7	0.42
曲げ弾性率	[GPa]	2.86	0.06
引張強度	[MPa]	26.7	0.30
シャルピー衝撃強度(ノッチなし)	[kJ/m ²]	14.9	0.76
シャルピー衝撃強度(ノッチあり)	[kJ/m ²]	2.60	0.03

表 2-2-2-3 量産テスト品の難燃性評価結果

量産テスト品 (DC-FR113)				
	t=1.6[mm]		t=3.2[mm]	
No.	残炎時間 [s]		残炎時間 [s]	
	①	②	①	②
1	1.1	2.5	1.4	1.4
2	1.0	3.8	1.1	2.3
3	1.4	4.2	0.9	1.6
4	0.9	16.5	1.2	3.4
5	1.0	8.3	1.5	0.9
判定	V-2※		V-0	

※t=1.6mm にてドリップが発生

2.2.3. まとめ

本項では難燃性能を有する処方において課題であった成形外観の不良に対して、圧縮処理木粉の利用、相容化剤の増量による難燃性評価、各種機械特性評価を実施し、相容化剤の添加量として従来添加量の 2 倍量 (3.2%) を採用した。更に PP 系ワックスの添加、射出速度の影響を検証することによって、成形外観と難燃性 (肉厚 3.2mm : V-0、1.6mm : V-2) を両立する難燃化 CF 添加 PP 処方を確立した。また量産テストにより、その各種性能について、生産安定性を確認することができた。

2.3. 耐衝撃性能の改善

CF 添加 PP は曲げ強度や弾性率、引張強度等において、PP 製品に比べ、性能向上するものの、耐衝撃性能が低下することがわかっている。これに対して、令和 2 年度に α オレフィンコポリマーを添加する処方によって、CF 添加 PP の耐衝撃性能の改善方法を確立した。令和 3 年度は圧縮処理された各種 CF を使用し、耐衝撃性能の改善を検証した。その結果、いずれの圧縮処理 CF の場合においても、耐衝撃性能は大きく改善する傾向にあった。また、CF 添加量が多くなるほど、耐衝撃性能が向上しており、これはプラスチック配合量を削減するほど耐衝撃性能が高く、圧縮処理された CF と α オレフィンコポリマーを利用することで流動性の確保と耐衝撃性の両立が可能であることを確認できた。また量産テストにより、その各種性能についても確認した。

2.3.1. 耐衝撃性能向上効果の検証

2.3.1.1. 圧縮処理 CF を用いた耐衝撃性処方の検証

2.3.1.1.1. CF 作製方法および粒径

耐衝撃性処方の検証として、未処理ヒノキ、圧縮ヒノキ、圧縮スギ、圧縮紙粉および圧縮ヒノキ(微粉)の 5 種の CF を用いた。圧縮ヒノキ、圧縮スギ、圧縮紙粉に関しては、「2.1.1.1. 圧縮処理技術の検証」記載の方法により作製した。圧縮ヒノキ(微粉)に関しては、圧縮ヒノキと同様にディスクペレッターによる圧縮処理を施したのち、サイクロンミル(静岡プラント製)にて微細化し、圧縮ヒノキ(微粉)とした。サイクロンミルを図 2-3-1-1 に示す。検証に用いた各種 CF の粒径を表 2-3-1-1 に示す。



図 2-3-1-1 サイクロンミル

表 2-3-1-1 各種 CF の粒径	
	平均粒子径[μm]
未処理ヒノキ	192
圧縮ヒノキ	131
圧縮スギ	126
圧縮紙粉	86
圧縮ヒノキ(微粉)	43

2.3.1.1.2. 試験方法

CF 各種 20～50%および α オレフィンコポリマーを 0%、10%、20%加えたコンパウンド材料で試験片を作製した。成形性評価として MFR 測定を実施した。MFR=3 g/10min 以上であれば成形性に問題はないと判断した。機械的特性評価として衝撃試験および曲げ試験を実施した。

2.3.1.1.3. 試験結果

2.3.1.1.3.1. 圧縮処理と α オレフィンコポリマーの添加効果

圧縮処理と α オレフィンコポリマーの添加効果を明らかにするため、未処理ヒノキと圧縮ヒノキでの比較を行った。

成形性評価

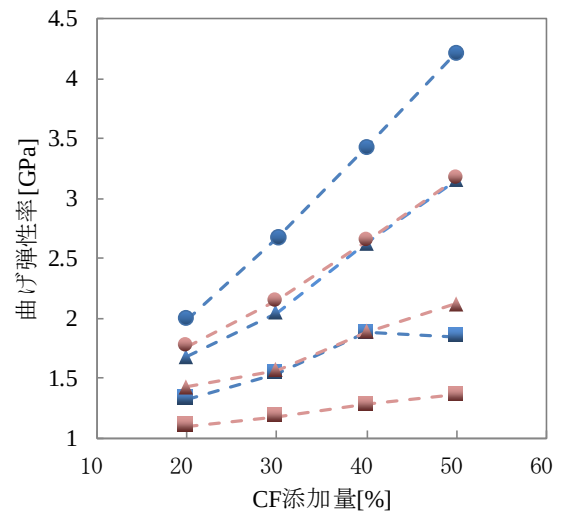
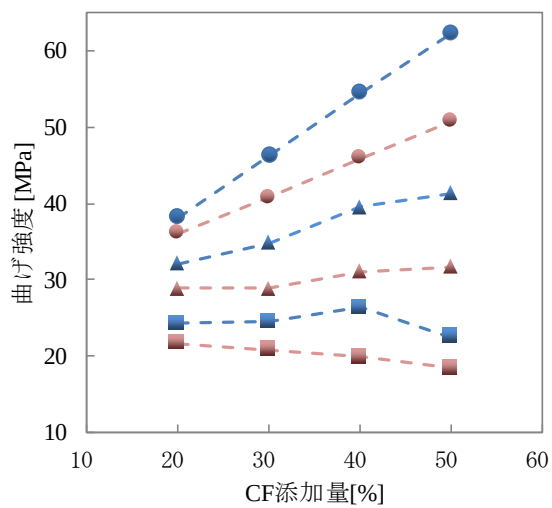
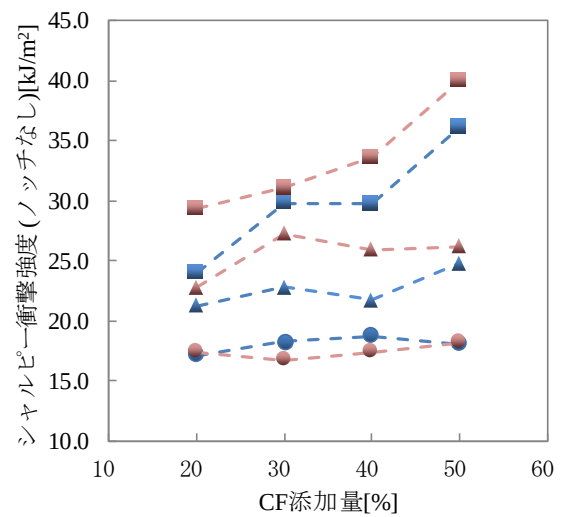
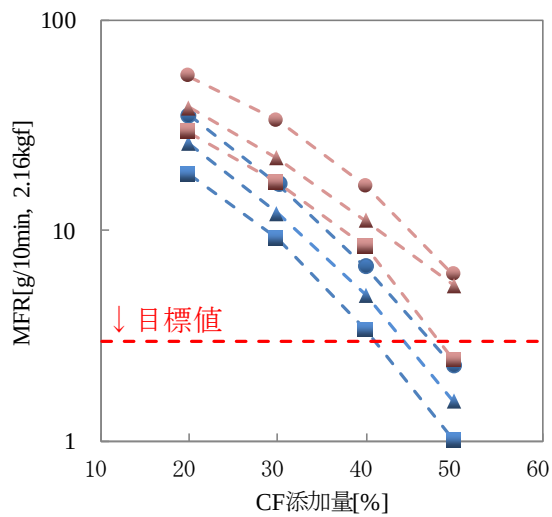
未処理ヒノキと圧縮ヒノキを用いた CF 添加 PP の MFR を図 2-3-1-2(左上)に示す。 α オレフィンコポリマーの添加により MFR は低下したが、未処理ヒノキに対して圧縮ヒノキは MFR が高いため、圧縮処理 CF を用いることで α オレフィンコポリマーを添加しても成形性が確保できることが確認できた。

機械的特性評価

未処理ヒノキと圧縮ヒノキを用いた CF 添加 PP の衝撃試験結果を図 2-3-1-2(右上)に、曲げ試験結果を図 2-3-1-2(下)に示す。

α オレフィンコポリマー添加なしでは、未処理ヒノキと圧縮ヒノキの衝撃強度に差は小さい。しかし、 α オレフィンコポリマーを添加した場合は、圧縮ヒノキの方が未処理ヒノキよりも衝撃強度が高くなった。また、 α オレフィンコポリマーを添加した場合は、CF 添加量が多くなるほど耐衝撃性が向上しており、これはプラスチック配合量を削減するほど耐衝撃性が高いという結果と言い換えられる。

曲げ強度および弾性率に関しては、 α オレフィンコポリマー添加なしでは CF 添加量にともない増加しているが、 α オレフィンコポリマーを 20%添加した場合は横ばいとなった。対象製品に求められる強度物性に合わせて α オレフィンコポリマーの添加量をコントロールする必要があると考える。



- | | |
|------------------------------------|-----------------------------------|
| ● - 未処理ヒノキ | ● - 圧縮ヒノキ |
| ▲ - 未処理ヒノキ+ α オレフィンコポリマー10% | ▲ - 圧縮ヒノキ+ α オレフィンコポリマー10% |
| ■ - 未処理ヒノキ+ α オレフィンコポリマー20% | ■ - 圧縮ヒノキ+ α オレフィンコポリマー20% |

図 2-3-1-2 未処理ヒノキと圧縮ヒノキの各種物性

2.3.1.1.3.2. 各種圧縮処理 CF における各種物性

圧縮ヒノキ、圧縮スギおよび圧縮紙粉それぞれに α オレフィンコポリマーを添加した際の物性変化を図 2-3-1-3 に示す。いずれも物性の変化はほぼ同様の結果となった。

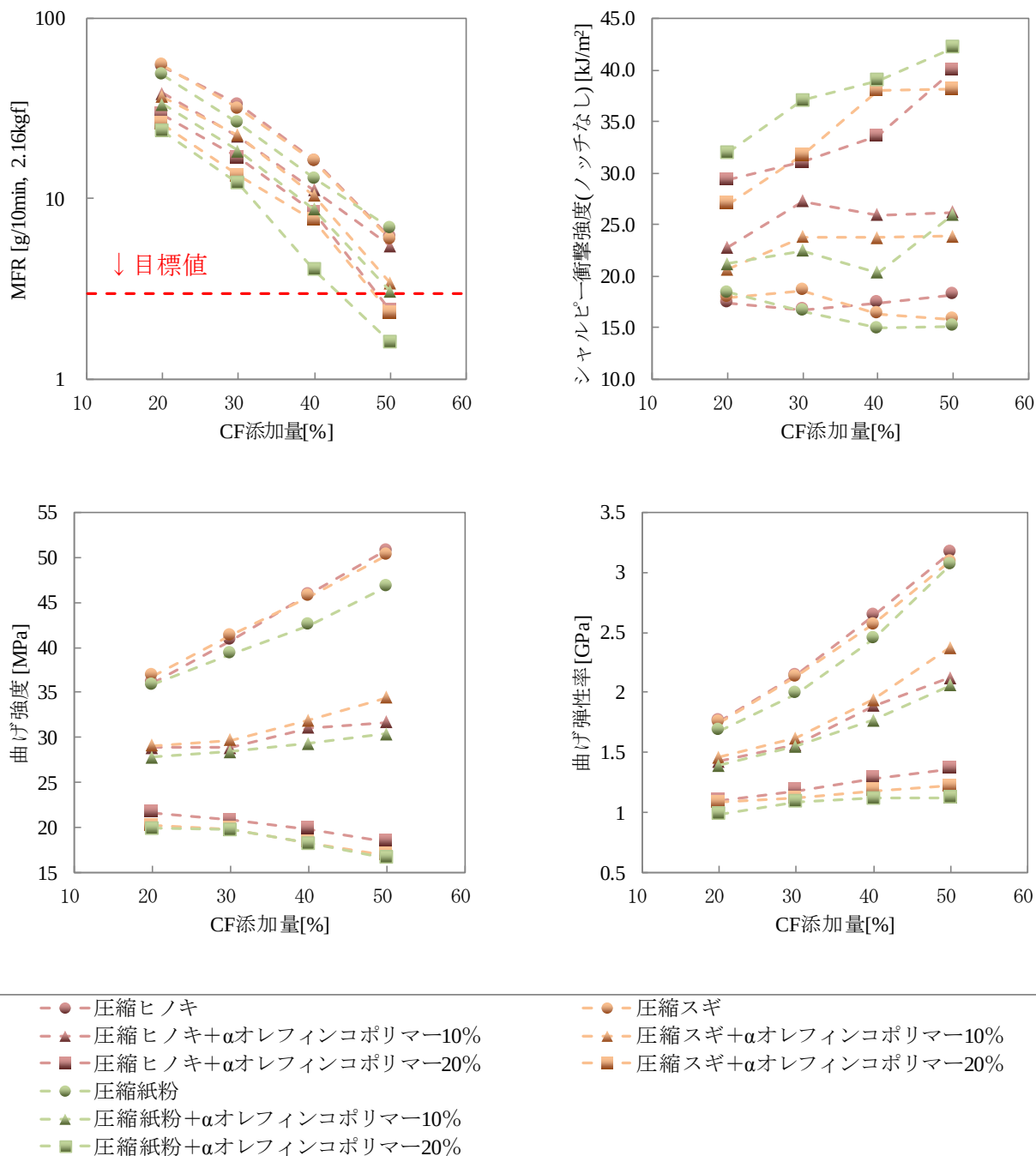


図 2-3-1-3 圧縮木粉（ヒノキ、スギ）と圧縮紙粉の各種物性

2.3.1.1.3.3. 圧縮ヒノキ（微粉）の検証

更なる耐衝撃性の向上のため圧縮ヒノキ（微粉）を検討した。圧縮ヒノキと圧縮ヒノキ（微粉）の物性を図 2-3-1-4 に示す。圧縮ヒノキを微粉化させることで、衝撃強度の大幅な向上が見られ、 α オレフィンコポリマー20%では No Break（NB）に達した。

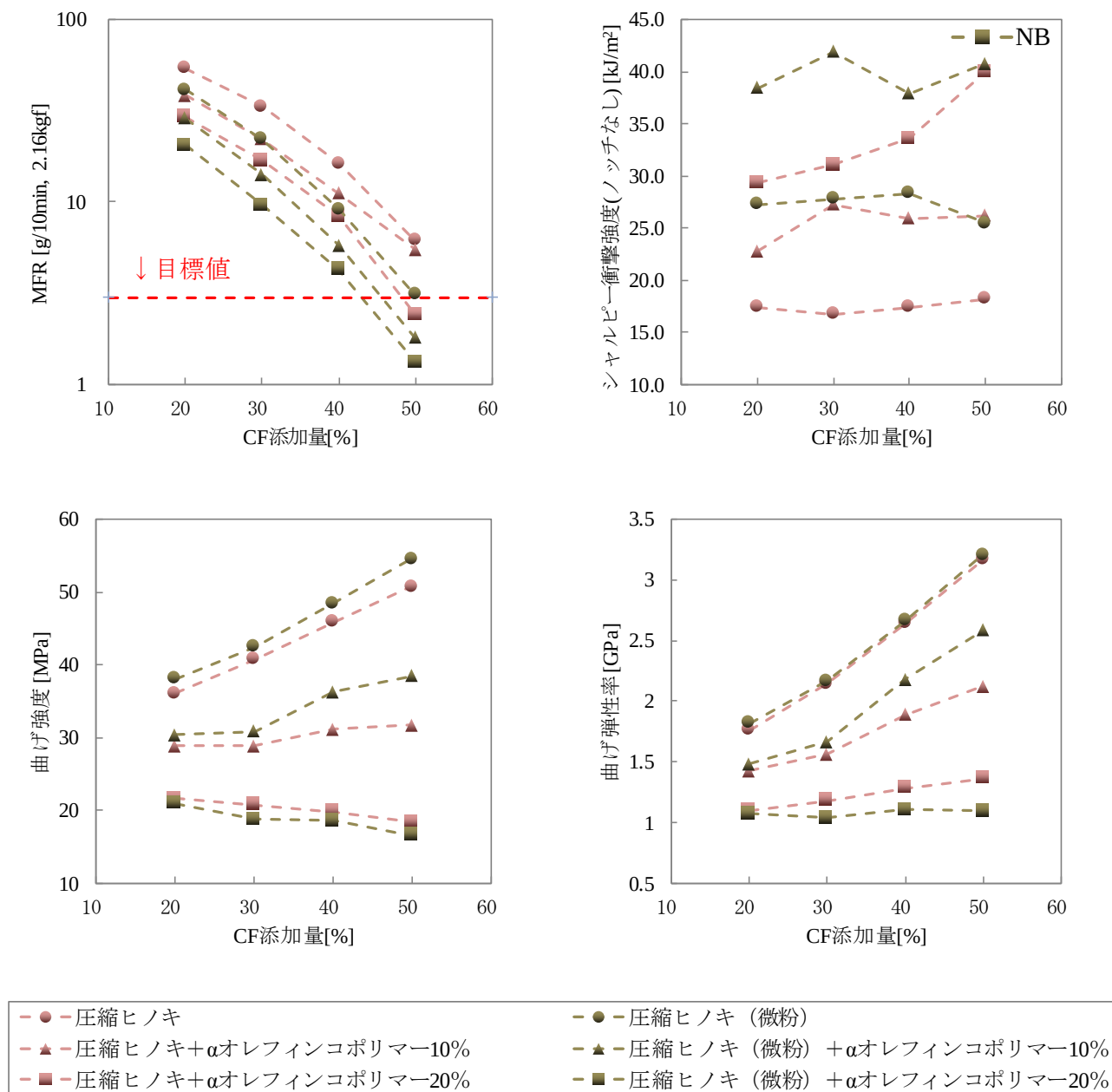


図 2-3-1-4 微粉化させた場合の各種物性

2.3.1.2. 樹脂混合後の圧縮処理による耐衝撃性能の改善検証

2.3.1.2.1. 目的

「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」の結果より、CF のみを圧縮処理し嵩比重を向上させることで、流動性の改善と機械的特性の低下が確認された。そこで、CF と PP を予備混合した状態で圧縮処理を実施することによる耐衝撃性能、流動性に及ぼす影響を調査した。

2.3.1.2.2. 試験方法

図 2-3-1-5 に示す高温高速攪拌ミキサーを用いて、CF と PP を加熱予備混合した。本工程では PP を熔融させながら攪拌することで、PP による CF の表面処理を施した状態となっている。表 2-3-1-2 に基づき、CF と PP をミキサーに投入し加熱混合を実施した。

また、作製された CF/PP 予備混合品は 2.1.1 で示す条件（ペレタイザーダイス径: $\phi 4$ ）にて圧縮処理を実施した。圧縮された CF/PP 予備混合品は PP で CF 添加量が 50% になるようにそれぞれ希釈しながらコンパウンド化を実施した。



図 2-3-1-5 高温高速攪拌ミキサーの写真

表 2-3-1-2 CF と PP の加熱予備混合条件

CF 添加量 [%]	PP 添加量 [%]	MaPP [%]
90.0	6.4	3.6
80.0	16.8	3.2
70.0	27.2	2.8
60.0	37.6	2.4
50.0	48.0	2.0

※PP は MFR=30g/10min のものを利用

2.3.1.2.3. 試験結果

今回はプラスチック削減量が最も大きい 50%CF 添加 PP の作製を前提とし、CF 濃度が 50%以上での予備混合を実施した。表 2-3-1-3 には予備混合後の圧縮処理ペレットの状況を示す。PP と予備混合した場合、CF 濃度が 80%になると、ペレット化（固化）しないことがわかった。CF の圧縮処理は、CF 表面の水素結合によってペレット状に固化していると考えられるが、CF 濃度が高い配合条件での予備混合では樹脂によって CF の水素結合を阻害している可能性が高いと言える。一方で更に CF 表面の水酸基量が少ない CF 濃度 70%以下でペレット化できた理由は、PP 成分が増加したことによる PP の自己融着性によるものと推察される。

表 2-3-1-3 加熱予備混合品の圧縮処理結果

CF 濃度 [%]	圧縮ペレット化状況
90%	ペレット化せず
80%	ペレット化せず
70%	ペレット作製可
60%	ペレット作製可
50%	ペレット作製可

上記結果より、予備混合品の圧縮は CF 濃度が 50%~70%の場合で実施可能であり、次工程ではペレット化できたサンプルを用いて 50%CF 添加 PP を作製し、各種特性を評価した。その結果を図 2-3-1-6 に示す。予備混合品では CF のみの圧縮処理と比較し、曲げ強度と引張強度の低下を抑えることができ、耐衝撃性能の低下は少ないが、流動性の改善効果が小さい結果となった。

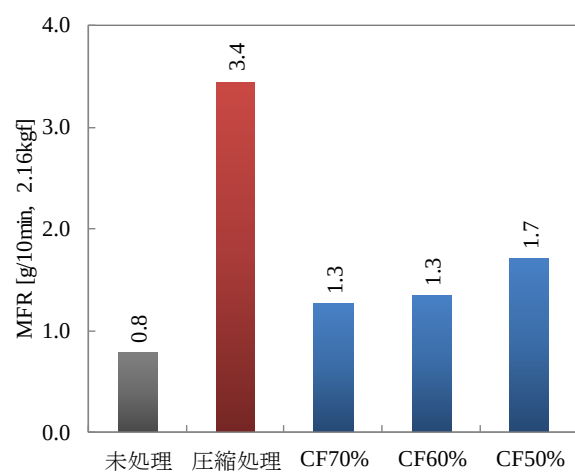
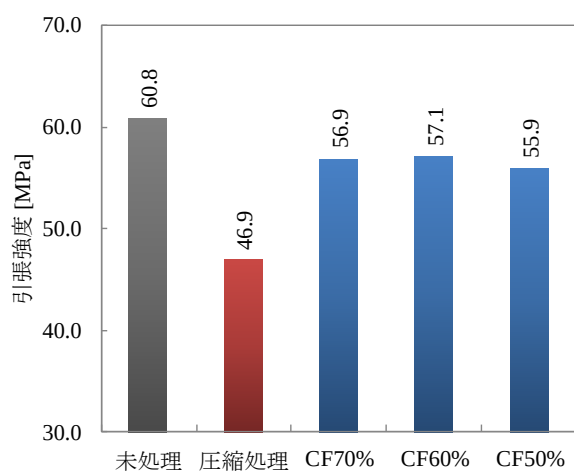
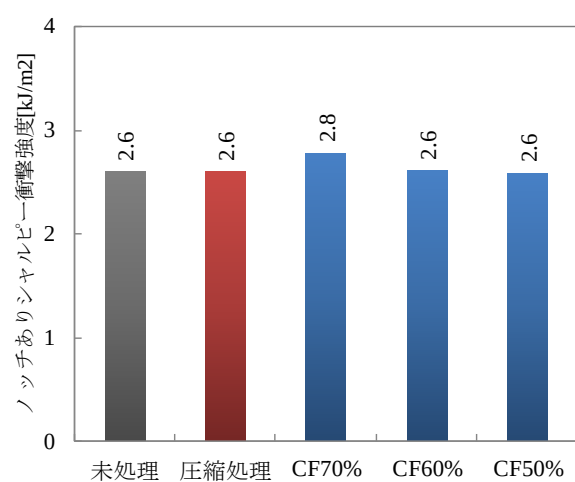
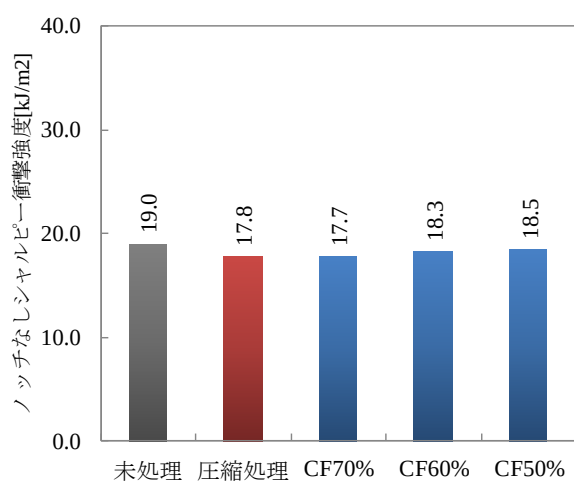
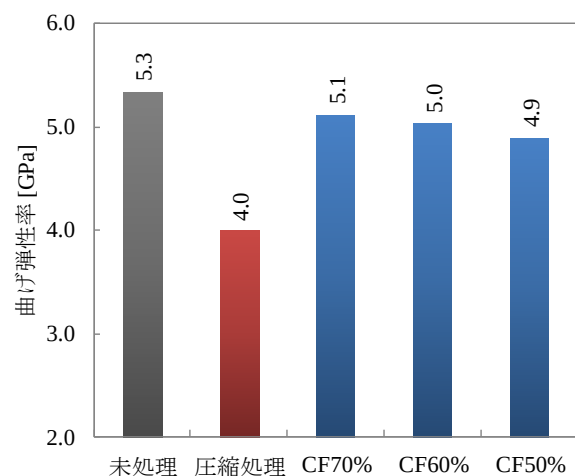
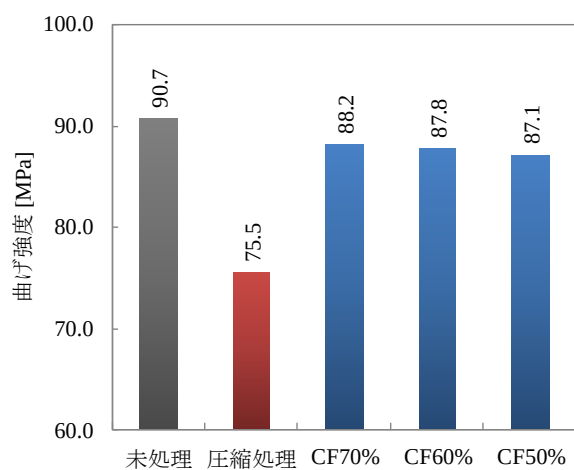


図 2-3-1-6 予備混合品を用いた 50%CF 添加 PP の特性一覧

2.3.2. 耐衝撃処方 CF 添加 PP 量産試作の実施

「2.1.3.圧縮処理 CF 添加 PP 量産テストの実施」と同様に、耐衝撃処方 CF 添加 PP の量産試作を実施した。連続生産中に 5 点のサンプルを採集し、流動性、機械特性を評価した。量産テストに用いた配合を表 2-3-2-1 に示す。

表 2-3-2-1 量産テストに用いた耐衝撃性配合

No.	圧縮処理 ヒノキ[%]	PP [%]	α オレフィン コポリマー [%]	MaPP [%]
DC-SRT49	40.0	48.4	10.0	1.6

2.3.2.1. 試験結果

図 2-3-2-1～図 2-3-2-6 にて、測定サンプルの流動性と各種機械特性の推移を示す。また、表 2-3-2-2 にはそれぞれのバラつきデータをまとめた。本結果より、MFR（流動性）、曲げ強度、弾性率、引張強度、シャルピー衝撃強度（ノッチなし、あり）においてバラつきは小さく、安定生産できていると考えられる。

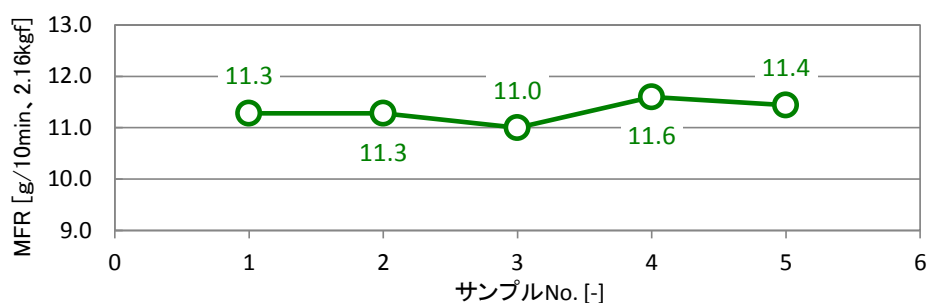


図 2-3-2-1 量産テストにおける MFR（流動性）の推移

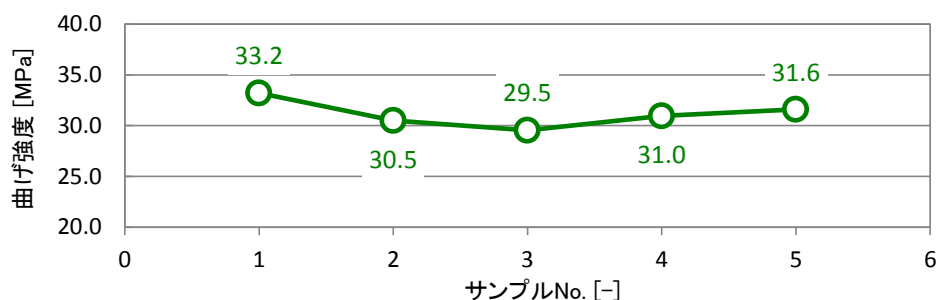


図 2-3-2-2 量産テストにおける曲げ強度の推移

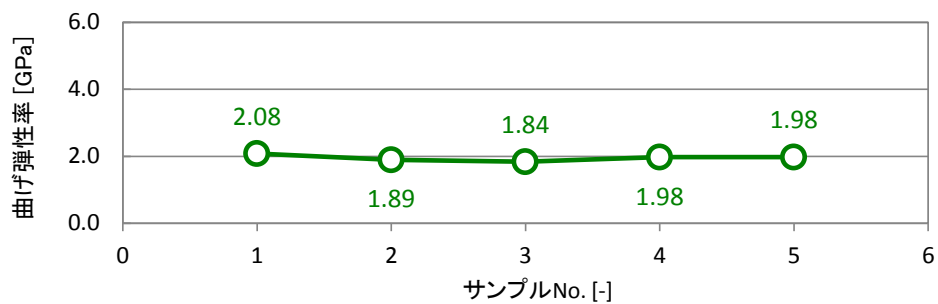


図 2-3-2-3 量産テストにおける曲げ弾性率の推移

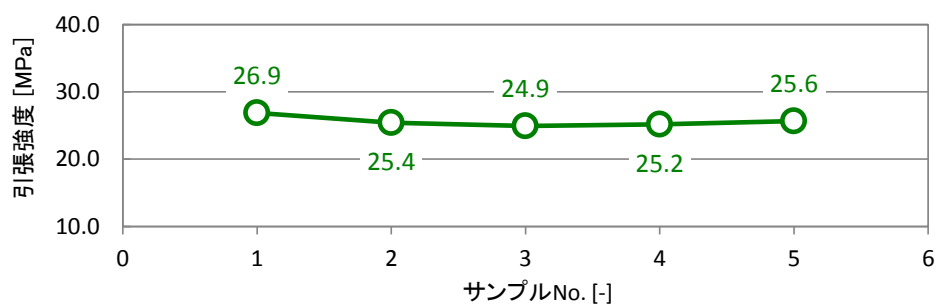


図 2-3-2-4 量産テストにおける引張強度の推移

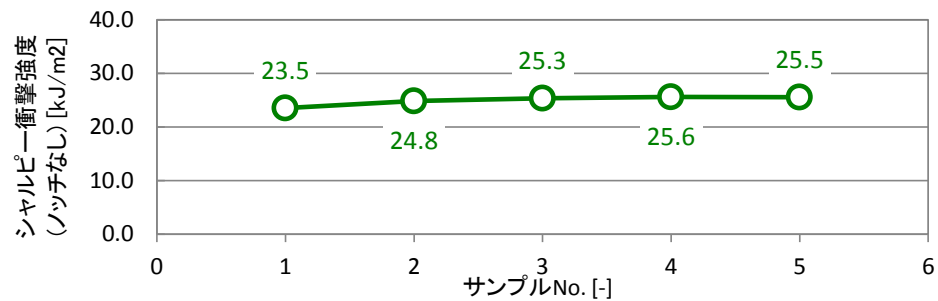


図 2-3-2-5 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチなし）の推移

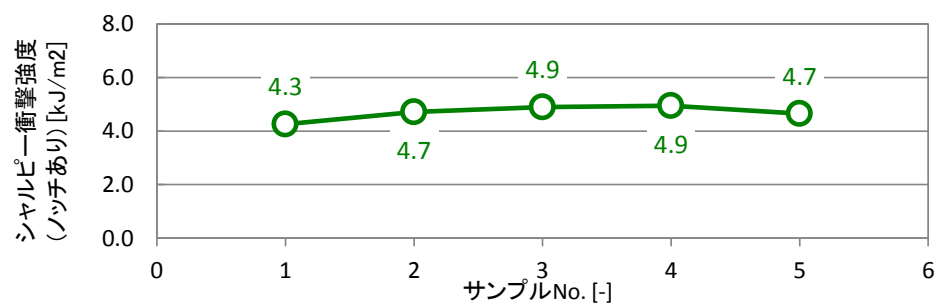


図 2-3-2-6 量産テストにおけるシャルピー衝撃強度（ノッチあり）の推移

表 2-3-2-2 量産テストの 5 サンプルングにおけるバラつきデータ

		平均値	標準偏差 (σ)
MFR(流動性)	[g/10min]	11.3	0.22
曲げ強度	[MPa]	31.2	1.36
曲げ弾性率	[GPa]	3.34	0.04
引張強度	[MPa]	25.6	0.76
シャルピー衝撃強度(ノッチなし)	[kJ/m ²]	24.9	0.87
シャルピー衝撃強度(ノッチあり)	[kJ/m ²]	4.69	0.27

2.3.3. まとめ

本項では圧縮処理 CF が添加された PP の耐衝撃性向上効果について検証を実施し、 α オレフィンコポリマーを添加する処方にて、成形性や機械特性の評価を実施し、耐衝撃性能が向上する事を確認した。CF と樹脂の溶融混合後の圧縮処理について調査した結果、CF のみの圧縮処理で見られた衝撃強度の低下は改善されたものの、流動性の改善効果は、CF のみの圧縮処理に比べ、小さい結果となった。また耐衝撃処方の量産テストにより、その各種性能について、生産安定性を確認することができた。

2.4. CF 性状とその添加量別機械特性評価

CF は、サイズや形状、木質成分が様々で、これらが CF 添加 PP の製品性能に影響を及ぼすことから、製品化への開発負荷は大きい。これが CF 添加 PP の普及を妨げる原因の一つであると考えられる。本項では、「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」にて作製した圧縮処理された各種 CF を用い機械特性評価、耐久特性評価を実施した。また、これまで得られたデータベースをもとに原料 CF の種々特性や添加量と CF 添加 PP の機械特性についてマッピングを実施し、CF の形状や添加量による各種成形体特性の関係を調査した。加えて、更なる相関性検証のため、統計解析手法（PLS 解析）を用いて、解析を実施した結果、機械特性に影響の大きい CF の性状は嵩比重とその添加量の寄与率が高いことが解明された。また、PLS 解析により、CF 添加量、嵩比重、近赤外分光分析により機械特性の予測手法を構築することができ、CF の簡易品質管理項目として嵩比重と近赤外分光分析が適しているとの見解を得た。

2.4.1. 機械的特性への影響評価

2.4.1.1. 試験概要

本項では、CF の形状と添加量の組み合わせによる機械的特性への影響を調査した。「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」にて、流動性を改善した圧縮処理 CF（ヒノキ、スギ、紙粉）を用いた。表 2-1-1-2 に従って、CF 添加量が 20%~50%の CF 添加 PP のコンパウンドを作製した。ここで使用した PP は MFR = 100 g/10min である。作製されたコンパウンドを babyplast 6/10 にて短冊試験片及びダンベル試験片に加工した。この試験片を用いて、曲げ強度、曲げ弾性率、引張強度、及び衝撃強度を評価した。

2.4.1.2. 試験結果

CF 添加量と各種機械的特性の関係について図 2-4-1-1 に示す。機械的特性においては、圧縮処理の有無にかかわらず、曲げ強度、曲げ弾性率、及び引張強度は添加量に比例して向上する傾向が確認されたが、これらの特性は未処理に比べ、圧縮処理 CF は低い結果が得られた。流動性は添加量の増加に伴い、低下した。一方で、圧縮処理 CF を用いた場合は、未処理品と比べて高い流動性を示した。シャルピー衝撃強度においては、ノッチありの場合では同様に CF 添加量が増加することで、向上する傾向が見られたが、ノッチなしの場合は CF 添加量による影響が小さいことが判明した。

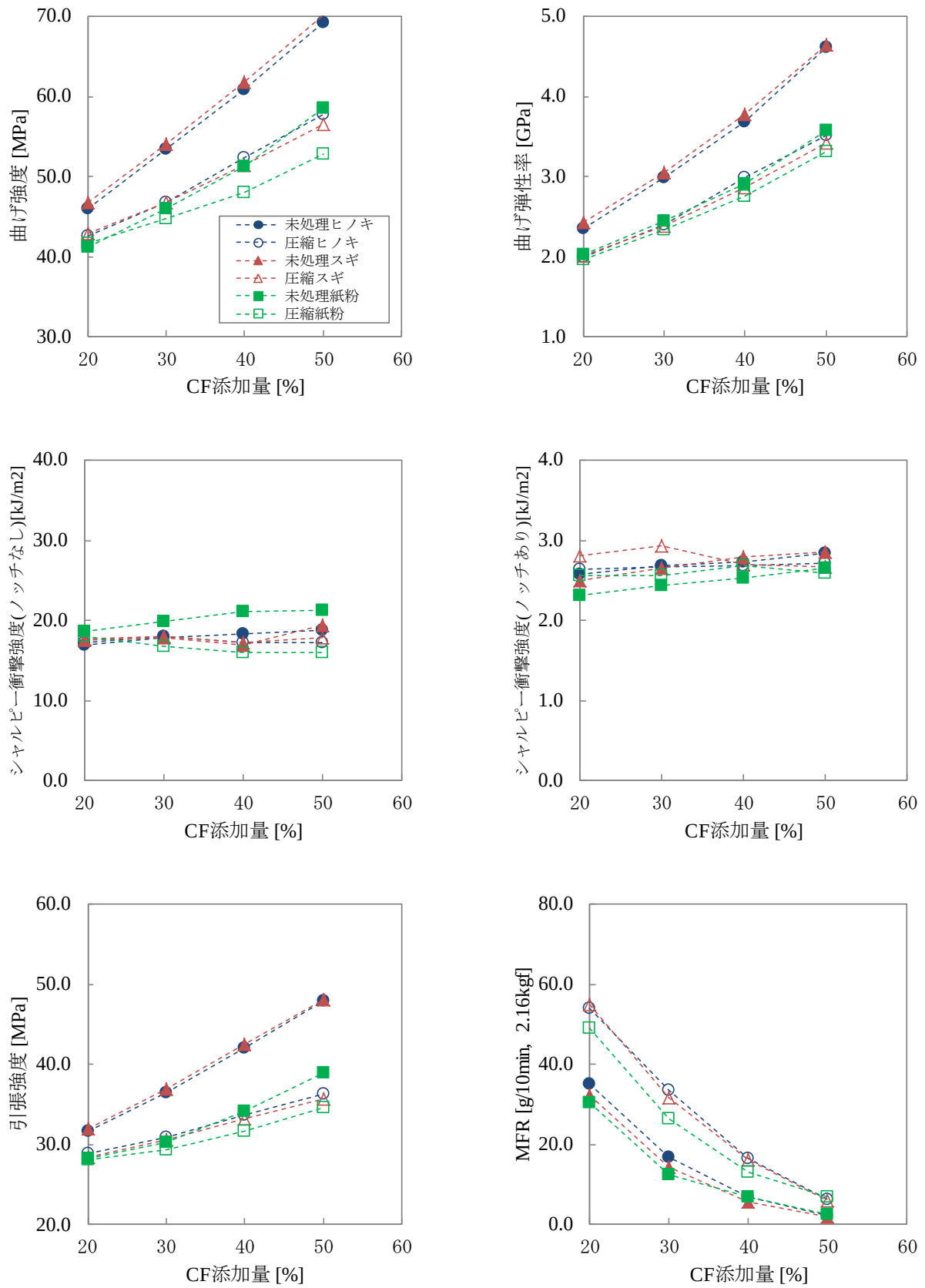


図 2-4-1-1 圧縮処理 CF の添加量と各種機械的特性の関係

2.4.2. 耐久特性への影響評価

2.4.2.1. 耐熱性への影響評価

2.4.2.1.1. 高温強度特性

実験に使用したサンプルの一覧表を表 2-4-2-1 に示す。酸化防止剤のみ添加した PP 材（以下（PP+AO）材）および CF 添加 PP の室温および 80℃における機械的性質に及ぼす CF の種類とその添加量の影響について引張試験と三点曲げ試験により調査した。その際、恒温槽を装備した万能試験機（AG-Xplus、島津製作所）を使用した。引張試験の条件は標点距離 80 mm、引張速度 1.0 mm/min、曲げ試験の条件は支点間距離 64 mm、試験速度 1.0 mm/min である。

表 2-4-2-1 サンプル一覧表

試験片 No.	CF				PP	相容化剤	酸化防止剤	
	未処理 ヒノキ	圧縮 ヒノキ	圧縮 スギ	圧縮 紙粉		MaPP	フェノール系	リン系
AO19					99.7%		0.1%	0.2%
AO20	20%				78.9%	0.8%	0.1%	0.2%
AO21	30%				68.5%	1.2%	0.1%	0.2%
AO22	40%				58.1%	1.6%	0.1%	0.2%
AO23	50%				47.7%	2.0%	0.1%	0.2%
AO24		20%			78.9%	0.8%	0.1%	0.2%
AO25		30%			68.5%	1.2%	0.1%	0.2%
AO26		40%			58.1%	1.6%	0.1%	0.2%
AO27		50%			47.7%	2.0%	0.1%	0.2%
AO28			20%		78.9%	0.8%	0.1%	0.2%
AO29			30%		68.5%	1.2%	0.1%	0.2%
AO30			40%		58.1%	1.6%	0.1%	0.2%
AO31			50%		47.7%	2.0%	0.1%	0.2%
AO32				20%	78.9%	0.8%	0.1%	0.2%
AO33				30%	68.5%	1.2%	0.1%	0.2%
AO34				40%	58.1%	1.6%	0.1%	0.2%
AO35				50%	47.7%	2.0%	0.1%	0.2%

2.4.2.1.1.1. 引張特性

室温および80℃における引張試験結果をそれぞれ図2-4-2-1、図2-4-2-2に示す。CFを添加した材料の室温と80℃における引張強度と弾性率は（PP+AO）材と比べて同等もしくは増大し、CF添加による強化が室温および80℃において発現していることがわかる。

試験温度の影響について検討すると、80℃における引張強度と弾性率の値は、室温の試験結果と比較して減少する一方で、破断ひずみは増大することがわかる。

CFの種類と添加量の影響に注目すると、試験温度によらずおおむね圧縮紙粉<圧縮スギ<圧縮ヒノキ<未処理ヒノキの順で引張強度と弾性率が大きくなり、CF添加量の増大に伴って強度特性は増大することがわかる。ただし、80℃ではCF種の違いによる強度特性への影響は小さくなる。

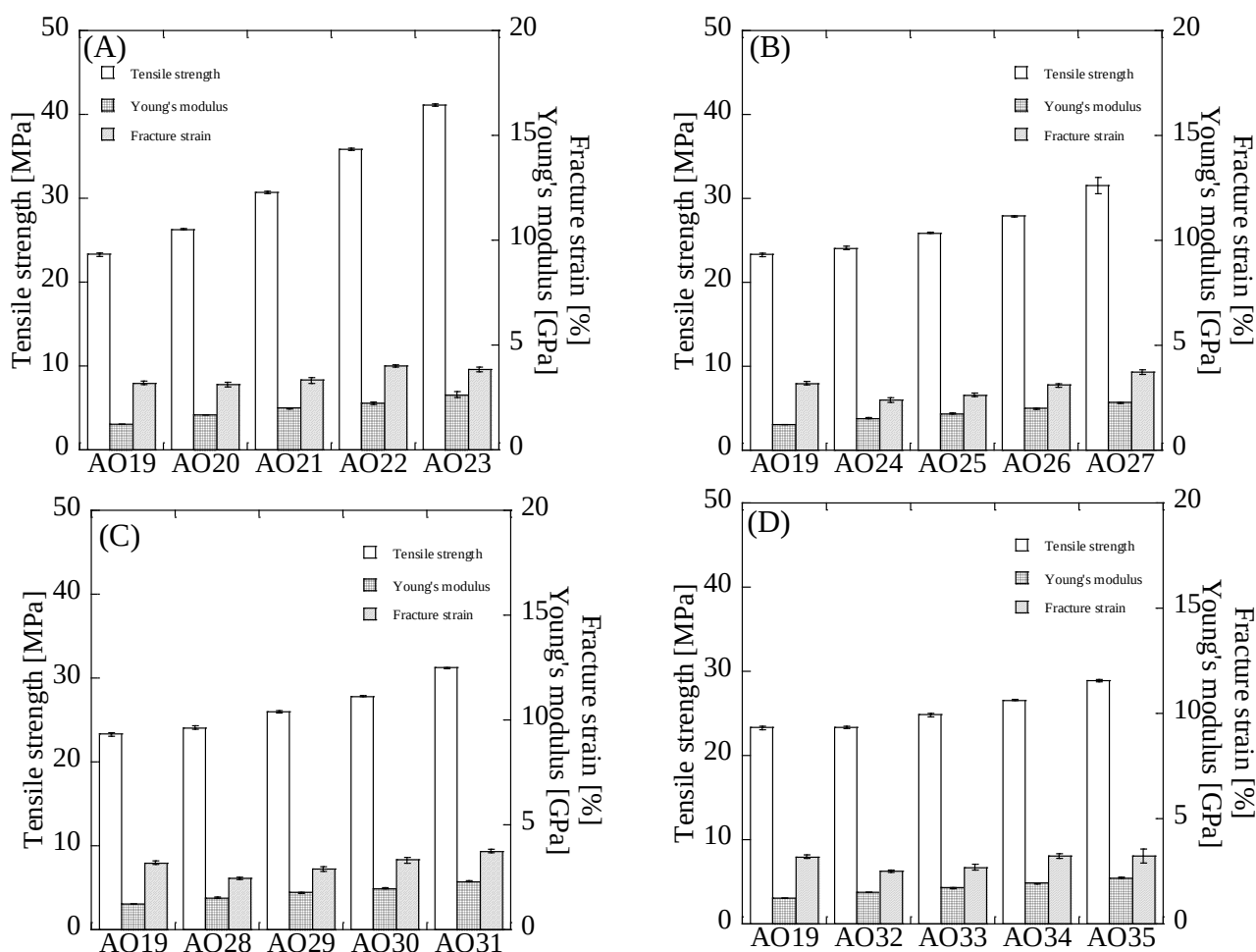


図 2-4-2-1 室温における引張特性に及ぼすフィラー種類と添加量の影響
(A) 未処理ヒノキ、(B) 圧縮ヒノキ、(C) 圧縮スギ、(D) 圧縮紙粉

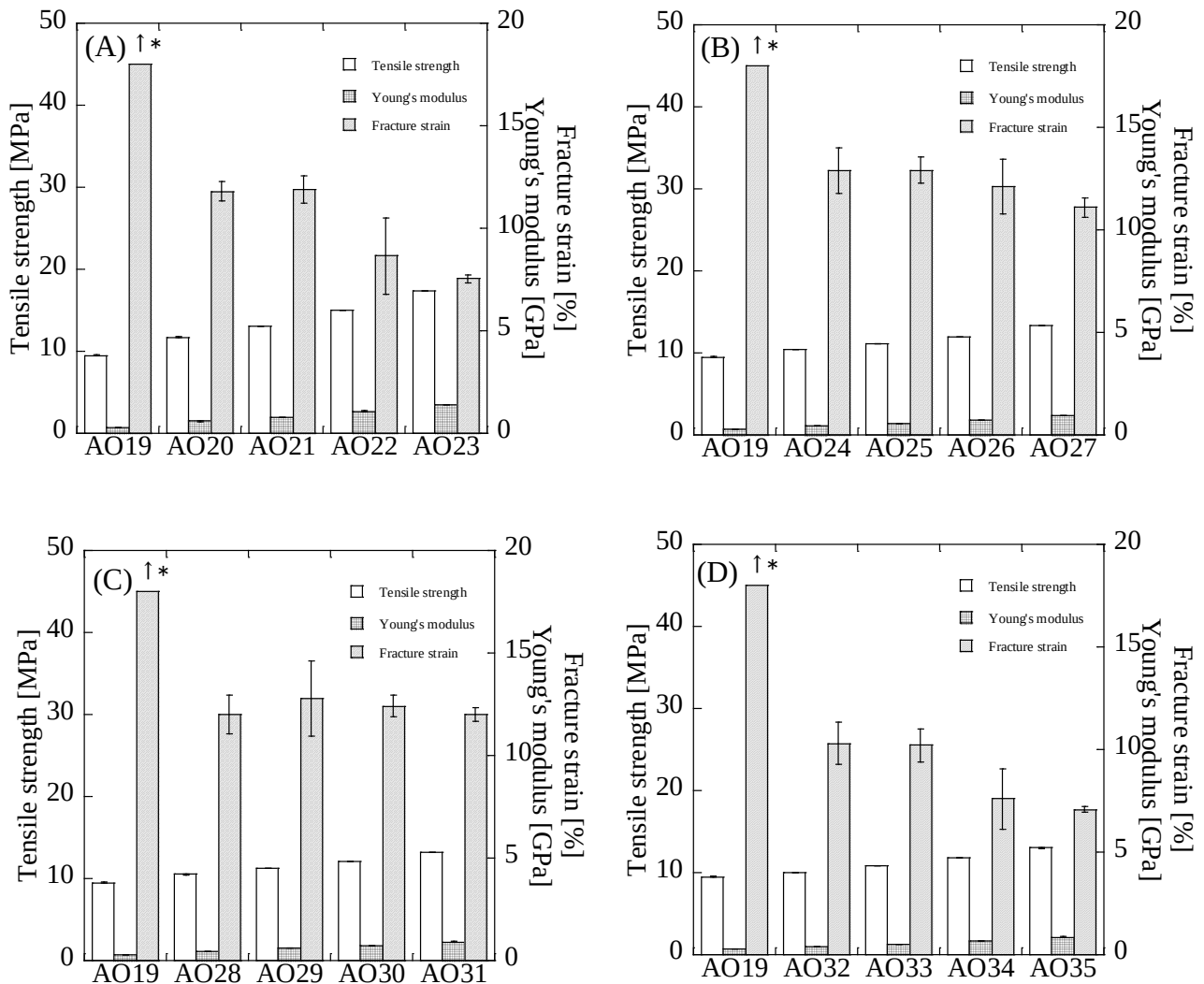


図 2-4-2-2 80℃における引張特性に及ぼすフィラー種類と添加量の影響 (* = 未破断)
(A) 未処理ヒノキ、(B) 圧縮ヒノキ、(C) 圧縮スギ、(D) 圧縮紙粉

2.4.2.1.1.2. 曲げ特性

室温および 80℃における曲げ試験結果をそれぞれ図 2-4-2-3、図 2-4-2-4 に示す。引張特性と同様に、CF 添加 PP の室温と 80℃における曲げ強度と曲げ弾性率は (PP+AO) 材と比較して同等もしくは増大しており、引張試験と同様に CF 添加による強度向上の効果が 80℃でも発現する。

曲げ特性に及ぼす試験温度の影響について検討すると、80℃における曲げ強度と曲げ弾性率の値は、室温の特性と比較して減少する一方で破断ひずみは増大することがわかる。

CF の種類と添加量の影響に注目すると、この場合も引張特性と同様に試験温度によらず圧縮紙粉、圧縮スギ、圧縮ヒノキ、未処理ヒノキの順で曲げ強度と曲げ弾性率が大きくなる。そして、CF の種類によらず CF 添加量の増大に伴ってこれらの強度特性が向上することがわかる。

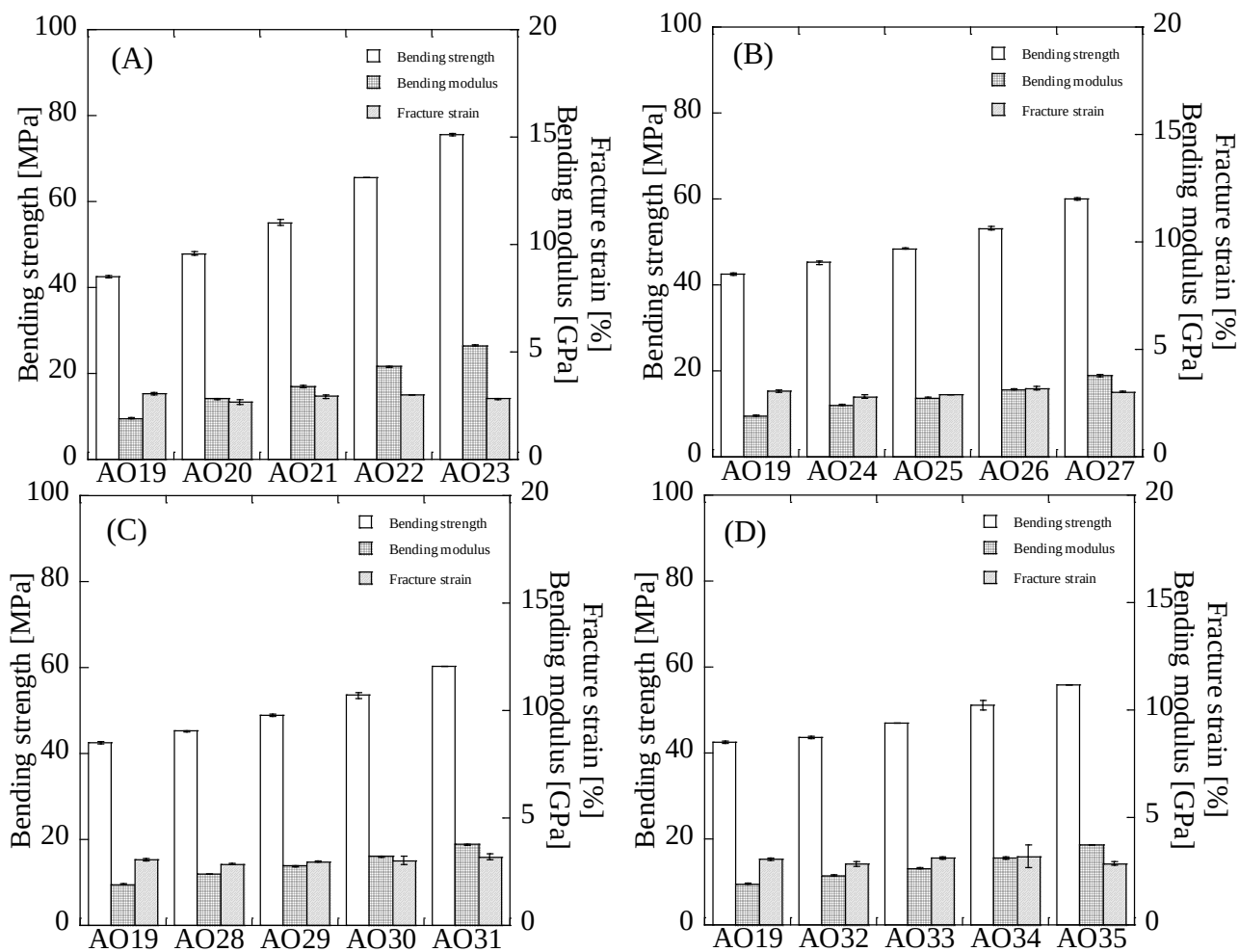


図 2-4-2-3 室温における曲げ特性に及ぼすフィラー種類と添加量の影響
(A) 未処理ヒノキ、(B) 圧縮ヒノキ、(C) 圧縮スギ、(D) 圧縮紙粉

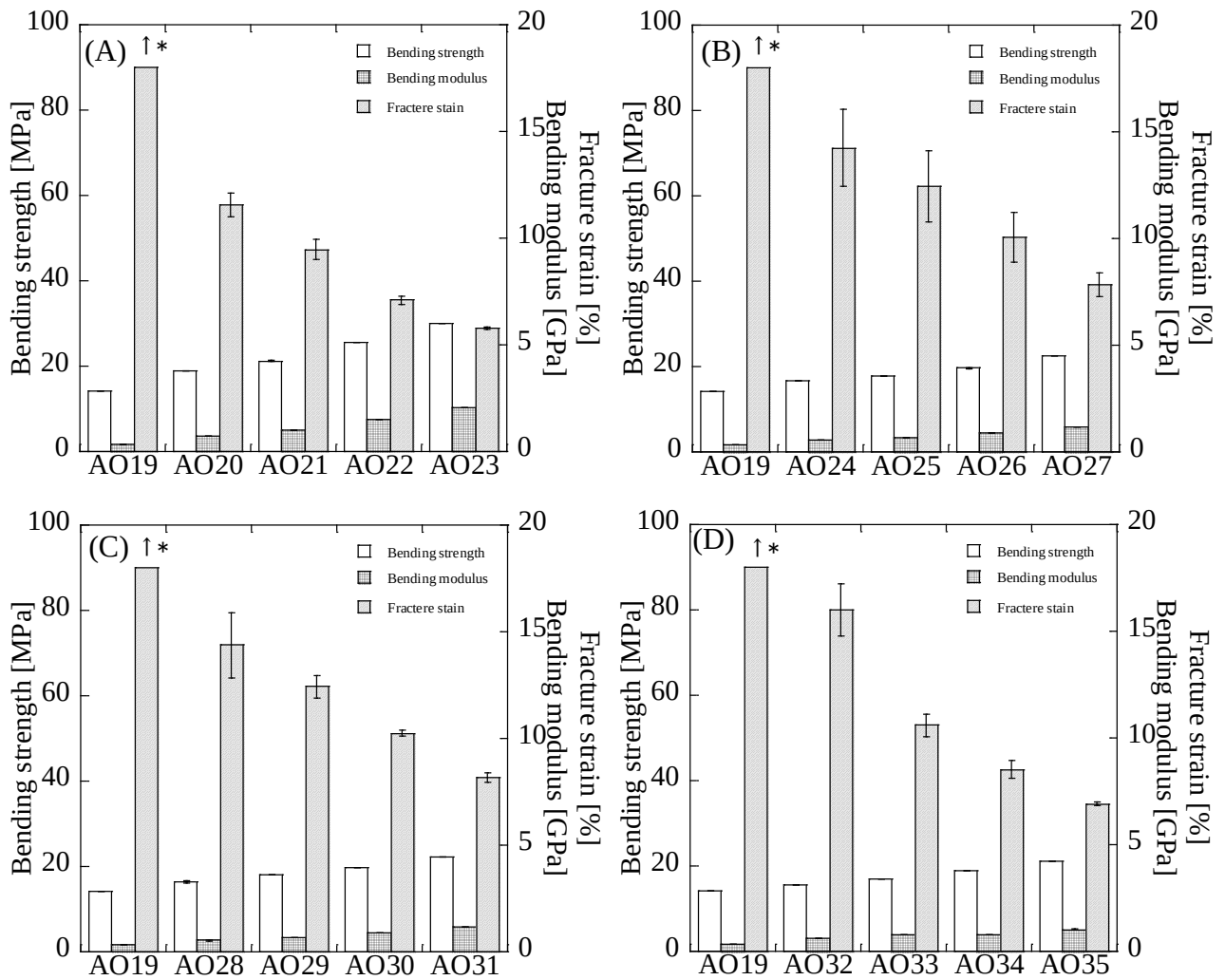


図 2-4-2-4 80°Cにおける曲げ特性に及ぼすフィラー種類と添加量の影響 (* = 未破断)
(A) 未処理ヒノキ、(B) 圧縮ヒノキ、(C) 圧縮スギ、(D) 圧縮紙粉

2.4.2.1.2. 高温クリープ強度

2.4.2.1.2.1. 目的

本項では、成形加工性（流動性）の向上を目的とした CF への圧縮処理が複合材料の耐久性へ影響を及ぼすことが懸念される。ここでは、一定荷重下にて長期使用されることを想定し、80℃における CF 添加 PP のクリープ特性に着目し、CF への圧縮処理および CF（ヒノキ・スギ・紙粉）の添加率がクリープ特性へ及ぼす影響について検証を行った。

2.4.2.1.2.2. 引張クリープ試験方法

引張クリープ試験には、高分子用引張クリープ試験機（CREEP TESTER L100ER、株式会社東洋精機製作所）を用いた。JIS K7139 の規格に従う A1 型のダンベル型試験片を射出成形によって成形を行い、ダンベル型試験片を恒温槽内のチャックに取り付けた。恒温槽内の温度 80℃、標点距離 110 mm（チャック間）とし、図 2-4-2-2 に示した 80℃における各サンプルの引張強度に対して、60%、70%、80%の3水準にて一定応力下の条件で引張クリープ試験を行った。恒温槽中で高温引張試験を行う際、試験片の温度が設定した試験温度に達した後、さらに 60 分間保持した後にクリープ試験を開始した。

2.4.2.1.2.3. クリープ引張試験結果

ヒノキの圧縮処理の影響

負荷している応力値は、各サンプルの引張強度に対して 60-80%としているため、同じ応力下におけるクリープ曲線の比較ができない。ここでは、各サンプルに対してそれぞれの応力レベル下におけるクリープ曲線を比較した。未処理ヒノキ添加 PP のクリープ曲線については、図 2-4-2-5 に、圧縮処理ヒノキ添加 PP のクリープについては、図 2-4-2-6 に示す。凡例に示した値は、引張強度に対する応力の負荷レベルを示す。いずれのサンプルにおいても、応力レベルの増加に伴って、破断時間は減少し、破断ひずみも増加する傾向が得られた。また、圧縮処理の有無にかかわらず、破壊前には大きな変形を示し、第 3 クリープ域が見られた。また、初期変形における初期ひずみについては、ヒノキの添加量の増加に伴い低下する傾向が見られ、PP の変形を抑制していることが分かった。

これらの材料を実用部材に展開するには、負荷応力に対する破断時間を知ることが重要となる。そこで、各サンプルにおいて、負荷した応力値に対する破断時間の関係をまとめた結果を図 2-4-2-7 に示す。また、参考に PP のデータも示した。圧縮処理の有無に依らず、ヒノキの添加量の増加に伴い、直線は上方にシフトし、クリープ寿命が改善されていることが分かった。

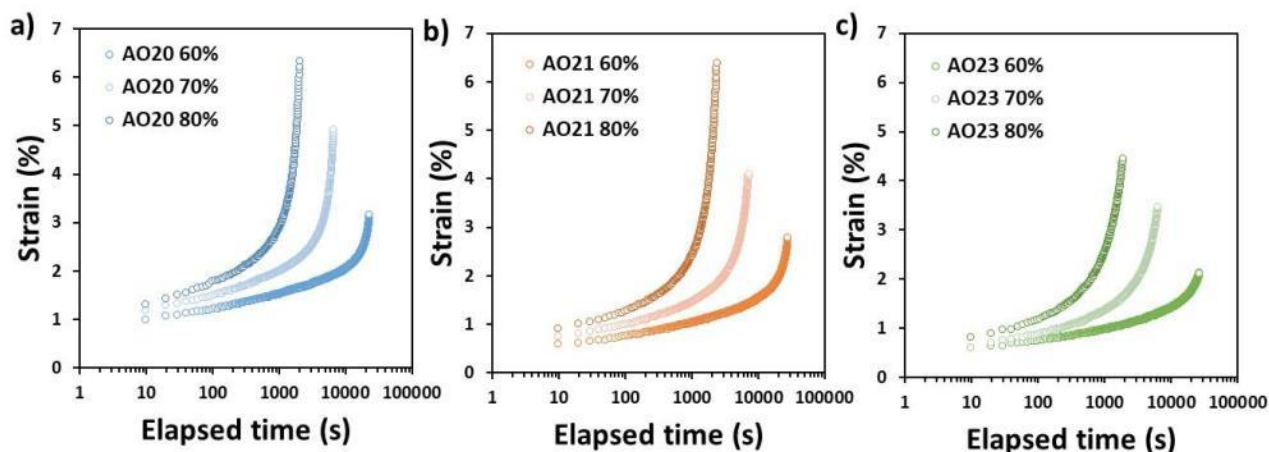


図 2-4-2-5 未処理ヒノキ添加 PP のクリープ曲線
[ヒノキ添加率 (a) 20wt%、(b) 30 wt%、(c) 50wt%]

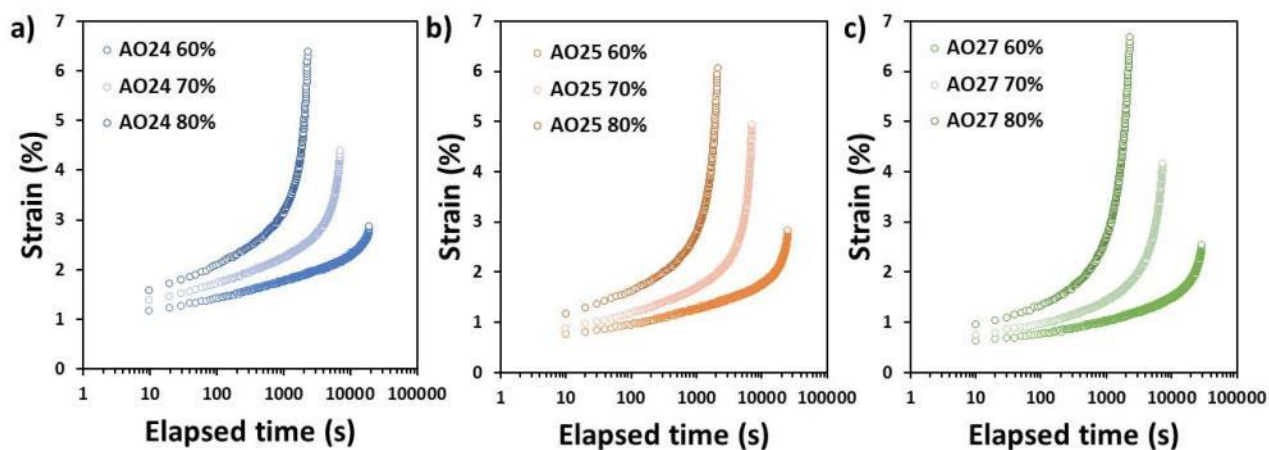


図 2-4-2-6 圧縮処理ヒノキ添加 PP のクリープ曲線
[ヒノキ添加率 (a) 20wt%、(b) 30 wt%、(c) 50wt%]

また、圧縮処理及び充填量に依存せず、両対数グラフにおいて応力と破断時間は線形関係が得られることが分かった。この関係性は、高密度 PE においても報告されている。ここで、負荷した応力を σ 、破断時間 t とし、べき乗則に従うとして次式を仮定する。

$$\sigma = kt^{-a} \quad (21)$$

ここで、両辺対数を取ると、以下の式で表すことができる。

$$\log \sigma = \log k - a \log t \quad (22)$$

ここで、 k 及び a は定数であり、 k は $t=1$ h における切片を表し、 a はグラフの傾きを表す。よって、式(21)を用いて、負荷応力に対して破断時間を予測することが可能である。そこ

で、式(21)を用いて最小二乗法によるフィッティングを行い、 k 値及び a 値をそれぞれ求めた。その結果を図 2-4-2-8 に示す。なお、クリープ寿命に対して、 k 値が高く、 a 値が小さくなれば寿命が長くなるという事が言える。

得られた結果より、圧縮処理の有無にかかわらず CF 添加量の増加に伴い、 k 値は増加し、 a 値は減少していることが分かった。つまり、CF 添加量の増加に伴い、PP のクリープ寿命は改善されていることが分かった。ヒノキの圧縮処理の影響については、 a 値には大きな影響を与えないことが分かった。一方で、 k 値においては大きな差が見られ、圧縮処理を施すことで、クリープ寿命が低下してしまうことが分かった。

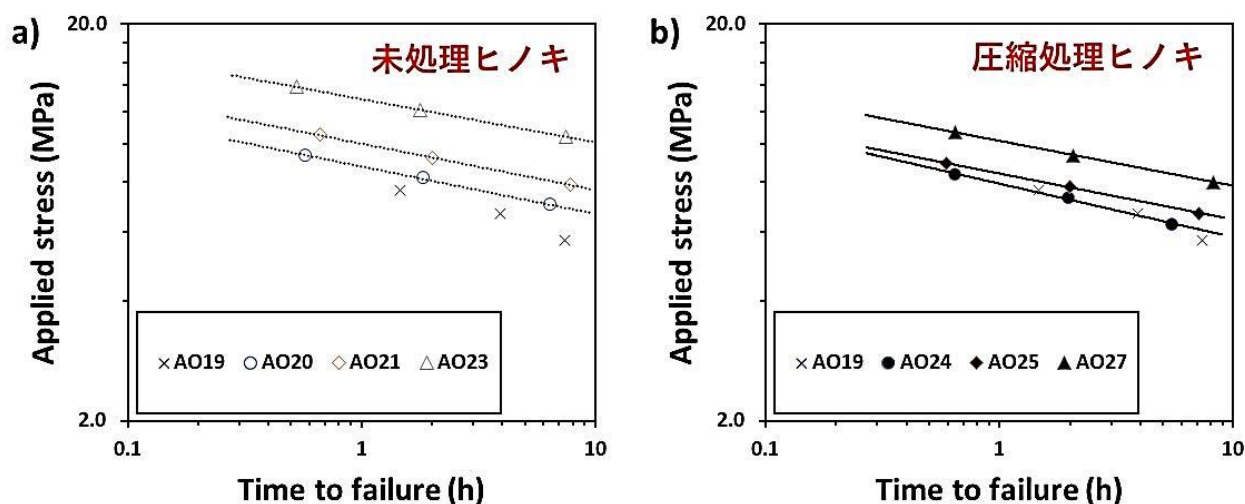


図 2-4-2-7 クリープ寿命曲線 [(a)未処理ヒノキ添加 PP、(b)圧縮処理ヒノキ添加 PP]

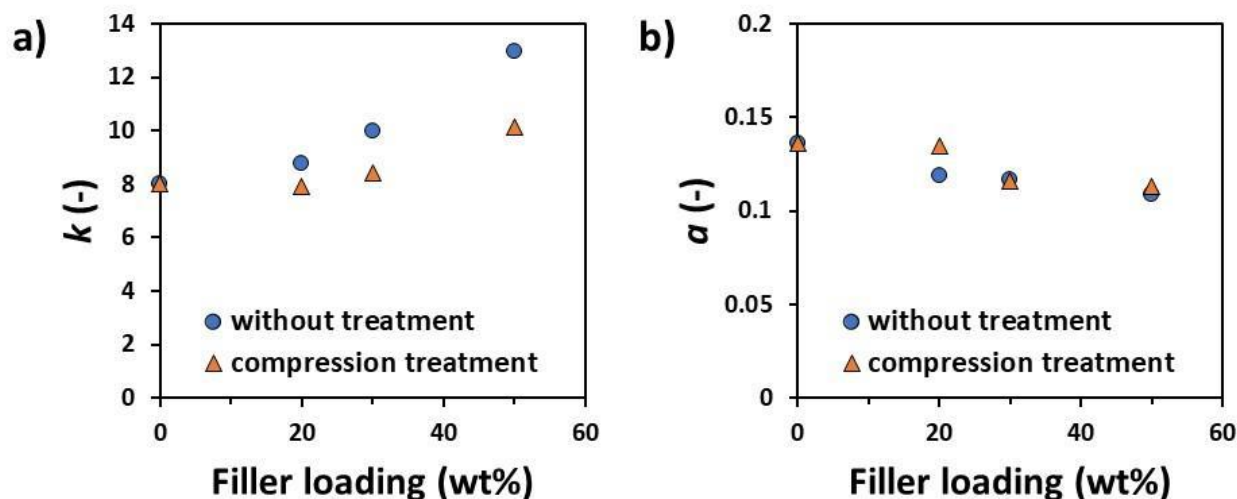


図 2-4-2-8 クリープ寿命曲線におけるべき乗則によるフィッティング結果 (ヒノキの圧縮処理の影響) [(a) k 値、(b) a 値]

圧縮処理を行ったヒノキ・スギ・紙粉間の比較

圧縮処理を行ったヒノキ (Cypress)・スギ (Cedar) および紙粉 (Paper powder) 添加 PP の負荷応力と破断時間の関係を図 2-4-2-9 に示す。CF の種類に依らず CF の添加率の増加に伴い、直線は上側にシフトし、クリープ寿命が改善されていることが分かった。そこで、さらに詳細に比較するために、式(21)を用いてフィッティングを行い、 k 値及び a 値をそれぞれ求めた。各パラメータの比較を行った結果を図 2-4-2-10 に示す。この結果より、CF の種類に依らず、添加量の増加に伴い k 値は増加し、 a 値は低下する傾向が見られ、PP のクリープ寿命が改善されていることが分かった。一方で、CF の種類間では k 値及び a 値に大きな差は見られず、有意な差は見られないと考えられる。

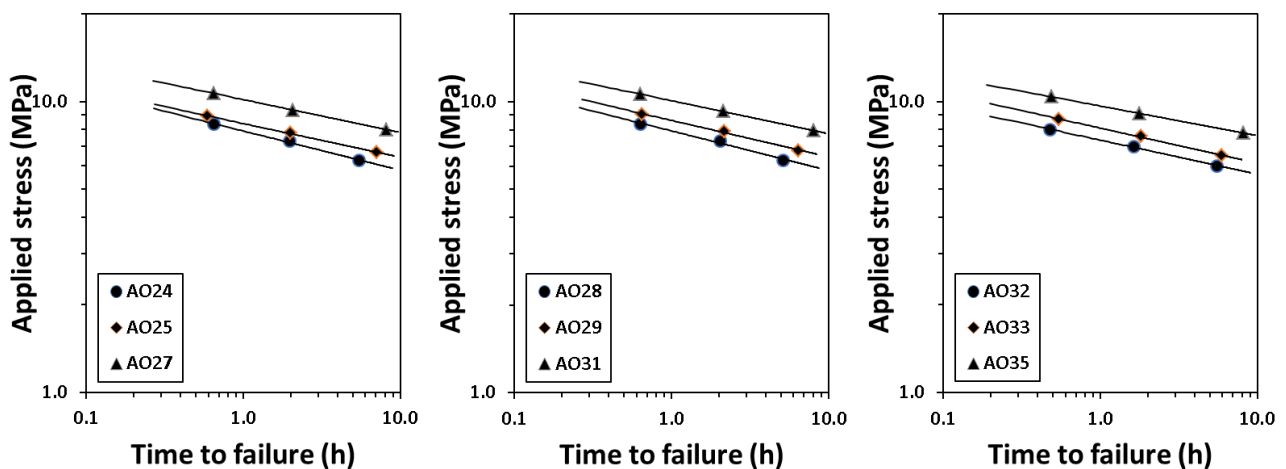


図 2-4-2-9 クリープ寿命曲線

[(a)圧縮ヒノキ添加 PP、(b)圧縮スギ添加 PP、(c)圧縮紙粉添加 PP]

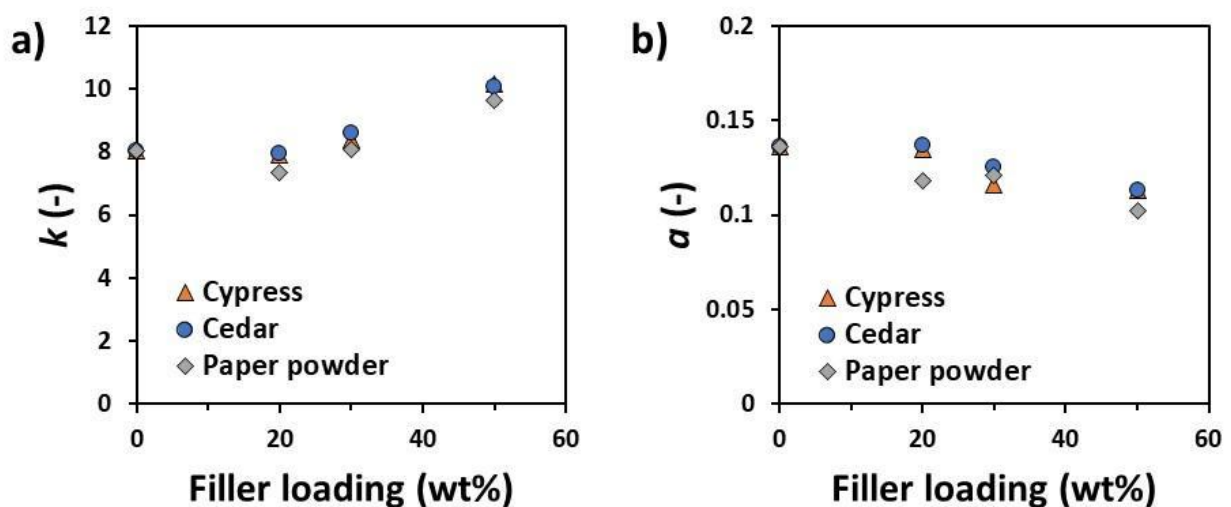


図 2-4-2-10 クリープ寿命曲線におけるべき乗則によるフィッティング結果
(異なる CF 間の比較) [(a) k 値、(b) a 値]

2.4.2.1.3. 耐熱老化性評価

本項では、CF 添加 PP 材の高温（150℃）下における機械的特性の変化を調べ、耐熱老化特性を評価する。CF 添加 PP に一定量の酸化防止剤を添加した材料について、高温雰囲気下に保持された時間経過に伴う強度特性の劣化挙動として「CF を圧縮処理したことによる影響」および「圧縮処理 CF の種類による挙動の相違」について調査した。

2.4.2.1.3.1. 試験方法

供試材

試験に供したサンプルは、PP に未圧縮ヒノキおよび圧縮処理されたヒノキ、スギ、紙粉の 4 種類の CF を添加した。それぞれの CF 添加率を 20、30、40、50%とし、CF の添加量にあわせて一定比率で相容化剤として MaPP を 0.8、1.2、1.6、2.0 %添加した。また、すべてのサンプルに対して、酸化防止剤としてヒンダードフェノール系酸化防止剤を 0.1%およびホスファイト系酸化防止剤を 0.2 %それぞれ添加した。以下、ベース PP にこれらの酸化防止剤（AO）を添加した材料をベース材あるいは（PP+AO）と呼ぶ。サンプルの形状は平行部の厚さ 2 mm、幅 5 mm、長さ 30 mm、つかみ部幅 10 mm、全長 80 mm のタイプ A12 ダンベル試験片（JIS K 7139）を用いた。

試験方法

熱風乾燥機を用いて温度 150℃、保持時間 0、100、300、500 時間、1×4 の 4 水準からなる所定の熱負荷をそれぞれ与え、サンプルの重量変化を測定した。その後、引張試験によりサンプルの機械的特性値の変化を調べ、耐熱老化性を評価した。

引張試験はインストロン万能試験機（59R5582 型、Instron Japan Co.Ltd）に 1kN ロードセルを搭載し、ひずみ計測には非接触型ビデオ伸び計（AVE2）を用いて実施した。サンプルが 1/2 片と小さいこと、サンプルにわずかながら成形反りが認められ負荷初期の荷重—ひずみ挙動が不安定であること、また、光学的変位計により破壊ひずみを推定することを考慮して、変位速度を 0.5 mm/min とした。

2.4.2.1.3.2. 耐熱老化性試験結果

ヒノキの圧縮処理の影響

図 2-4-2-11 は 20～50%CF 添加 PP について、一定温度（150℃）下に保持されたサンプルの時間経過に伴う機械的特性劣化の推移を調べた結果をまとめて示す。同図の左の 2 列の図よりヒノキの圧縮処理の影響を検討する。熱負荷前（保持時間=0）の弾性率および引張強度の初期特性は、圧縮処理の有無によらず、ベース材（PP+AO）の特性を上回り、また、CF 添加率の増加に伴いさらに向上を示す複合効果が見られた。詳細な比較では、未処理ヒノキ添加 PP の特性値が圧縮ヒノキ添加 PP に比べ優れた CF 添加効果を示した。とりわけ、熱負荷前の 50%未処理ヒノキ添加 PP では引張強度でベース材の 180%、弾性率では 230%の値を示した。これらの値は熱負荷時間の経過とともに漸減するが、おおむね 300 時間程度まで維持された。しかしながら、それ以上の保持時間ではさらに減少速度を速め、20、30%の低添加率については 500 時間保持後にはベース材の特性より低下した。一方、圧縮処理ヒノキ添加 PP では、CF 添加により改善された引張強度は保持時間の経過とともに漸減し、その添加効果の差も小さくなった。また、300 時間保持あたりからベース材の強度と逆転が進行し、500 時間経過では 20～50%添加からなるすべての圧縮処理ヒノキ添加材の特性がベース材より低下した。このような引張強度に見られた CF 添加材とベース材逆転現象は、圧縮処理の有無によらず、弾性率には見られなかった。

破断ひずみについては、CF の圧縮処理の有無による差は見られなかった。いずれの CF 添加 PP についても、CF 添加率の高いものでは熱負荷前（保持時間=0）の破断ひずみはベース材より改善された。しかし、100 時間保持では、いずれの CF 添加 PP の破断ひずみのベース材より低下し、それ以降の保持時間ではさらに漸減し、添加率の差は減少した。

上に述べた両者の初期特性が熱負荷時間により劣化する過程を比較して、20%、30%添加の破断ひずみ特性に差が認められるが、おおむねヒノキの圧縮処理の有無による劣化特性の差はないことが分かった。

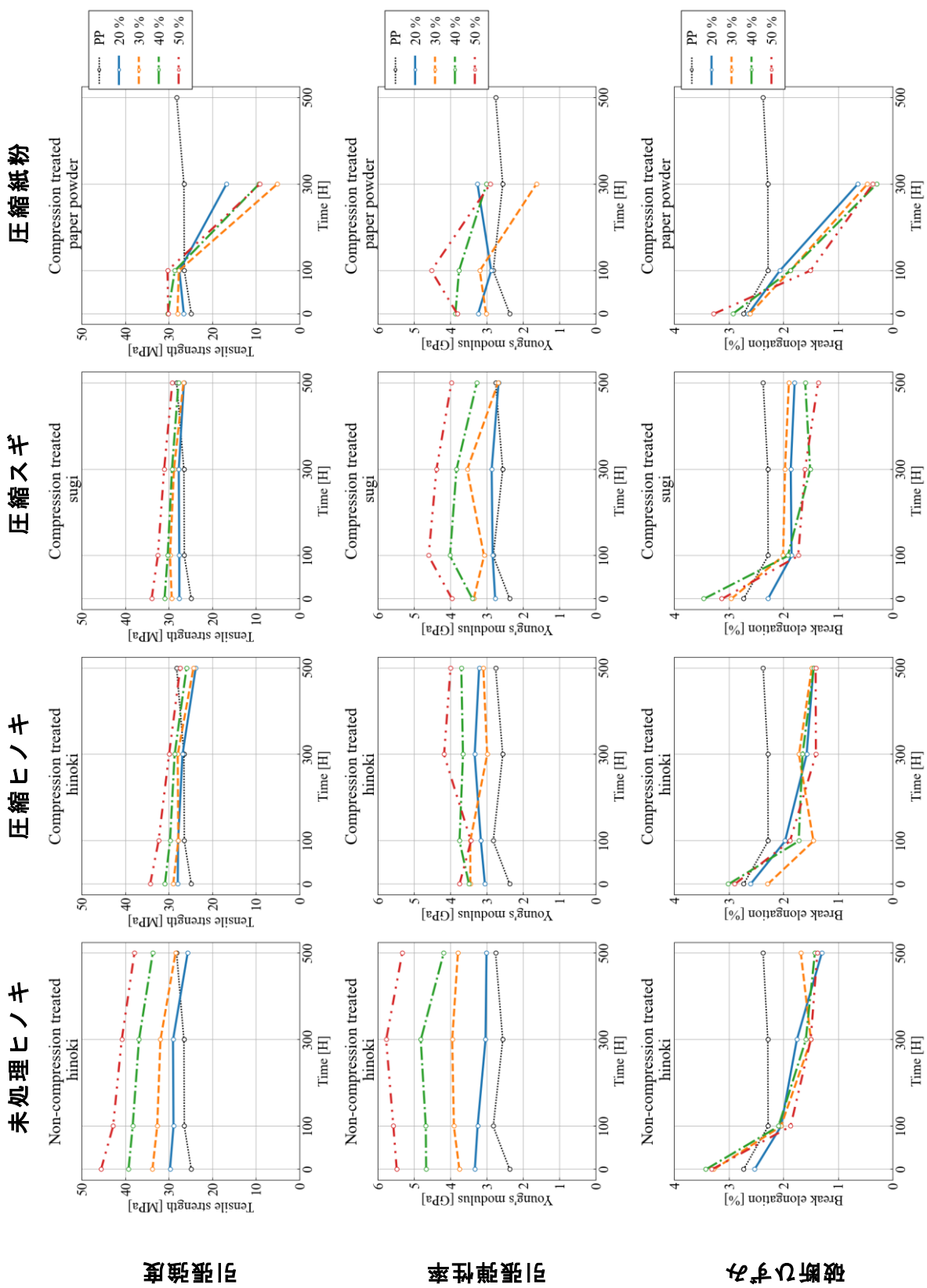


図 2-4-2-11 さまざまな CF 添加 PP の熱負荷試験における機械特性への保持時間の影響

圧縮処理 CF 添加 PP における CF 種による熱劣化への影響

図 2-4-2-11 の右 3 列の図より圧縮処理 CF 添加 PP における CF 種による熱劣化への影響を検討する。熱負荷前の弾性率および引張強度は、いずれの CF 添加 PP においてもベース材 (PP+AO) より改善された特性を示した。また、CF 添加率の増加に伴いさらに向上を示す複合効果がみられた。その傾向は、圧縮されたヒノキ・スギ・紙粉の添加においてほぼ同様な傾向を示した。一方、破断ひずみについては、40%以上の CF 添加 PP ではベース材の特性よりも向上したが、20~30%添加では CF 種によらずベース材の特性より低下した。

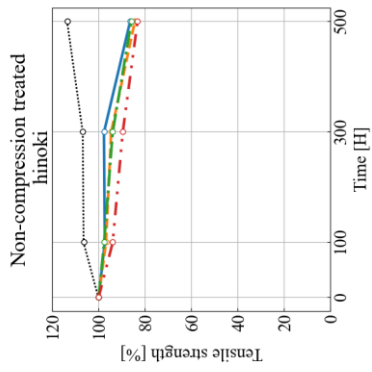
これらの初期特性の劣化挙動については、木粉 (ヒノキ、スギ) と紙粉で異なった。前者では、100 時間以上の保持時間では緩やかに劣化が進行するが、後者では、熱劣化の影響が早期に現れ、保持時間が 100 時間で破断ひずみが 20~50%程度減少するのが認められた。さらに、100 時間以上では急激な劣化が進行するのが分かった。特に 500 時間保持したサンプルでは引張試験が困難になった。また、引張強度や破断ひずみの劣化の様相は CF 添加率が高いほど顕著であった。

機械的特性の熱劣化と重量変化の関係

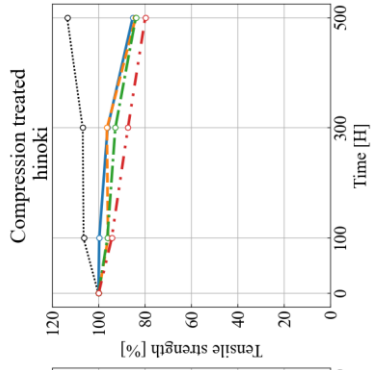
機械的特性の劣化挙動をサンプルの重量変化 (図 2-4-2-12) より検討する。図中に示されたベース材の重量変化では 100 時間保持で 1%程度の減少が見られるが、それ以降の保持時間では変化が観察されなかった。このことは、負荷された 150℃が PP の熱分解温度に比べ十分低いことを示している。

これに比べ、CF 添加 PP の重量—熱負荷保持時間の関係は上に述べた機械的特性の劣化挙動に比べ鈍感であるが、ほぼ引張強度の劣化挙動に近い様相を示した。また、劣化の度合いは CF 添加率が若干の影響を示し、いずれの CF 添加 PP でも添加率が増えるほど減少速度が早くなる傾向を示した。木粉・紙粉ともに 100 時間保持による重量減少にはほとんど差異がないが、それ以上の保持時間において紙粉が急激な重量減少を呈し、両者に大きな差が認められた。一方、木粉では未処理ヒノキ、圧縮ヒノキ、圧縮スギの順に重量減少速度が速くなったが、その差は小さかった。木粉および紙粉に観察された微小な重量減少や急激な減少は恒温加熱効果によるヘミセルロースやセルロースの熱分解を示していると考えられる。

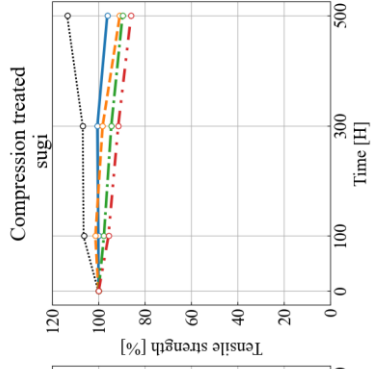
未処理ヒノキ



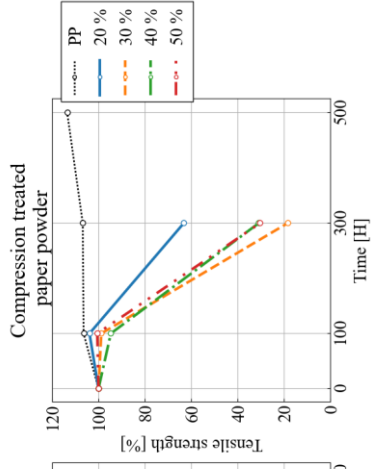
圧縮ヒノキ



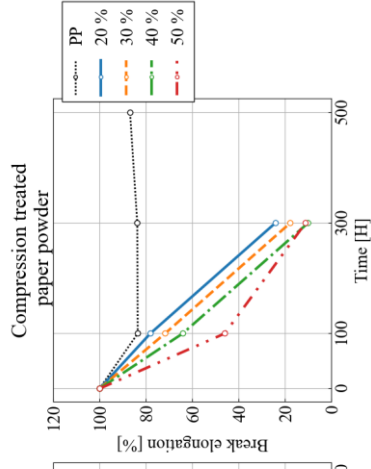
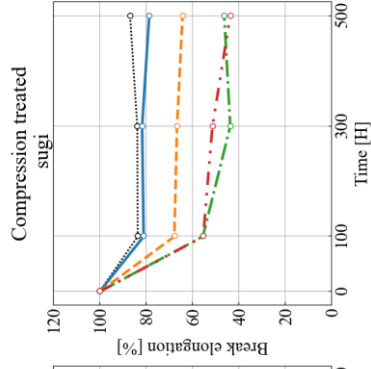
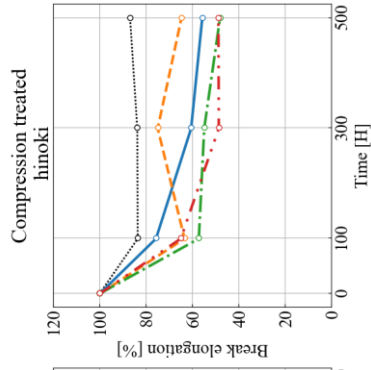
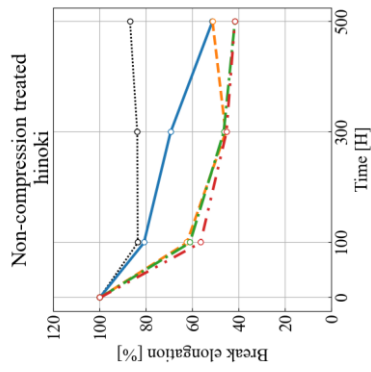
圧縮スギ



圧縮紙粉



破断ひずみ



重量

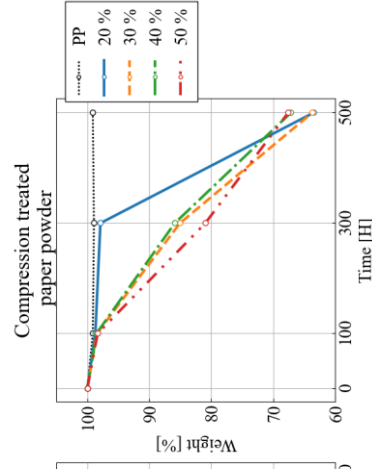
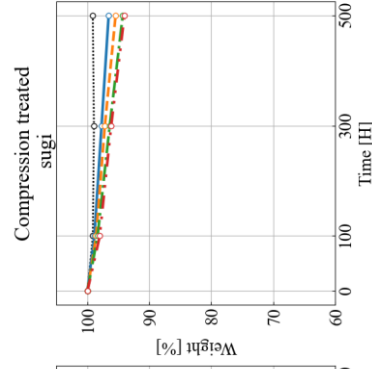
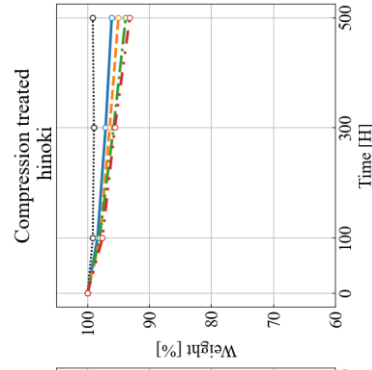
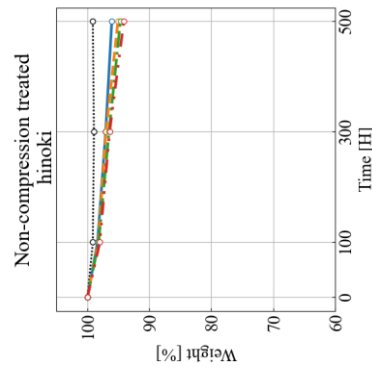


図 2-4-2-12 ささまざまな CF 添加 PP の機械的特性値に見られる熱劣化挙動

2.4.2.1.4. 耐候性への影響評価

2.4.2.1.4.1. 試験概要

本項では、CF の添加量における耐候性への影響を調査した。「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」にて、流動性を改善した圧縮処理 CF(ヒノキ)を用いた。表 2-1-1-2 に従って、圧縮処理 CF の添加量が 20～50%の CF 添加 PP のコンパウンドを作製した。ここで使用した PP は MFR = 100 g/10min である。作製されたコンパウンドを babyplast 6/10 にてダンベル試験片に加工した。ダンベル試験片をキセノン促進耐候性試験機(Q-SUN Xe-1-S、Q-Lab Corporation 社製)にて促進試験を実施した。試験条件は、JIS K 7350-2「プラスチック—実験室光源による暴露試験方法— 第 2 部:キセノンアークランプ」に準じ、暴露時間は 0、100、300 および 500 時間とした。この試験片を用いて、外観及び引張強度を評価した。

表 2-4-2-2 促進耐候性試験の試験条件

A法—デイライトフィルタを通した暴露					
暴露サイクル	放射照度		ブラック パネル 温度 ℃	槽内 温度 ℃	相対 湿度 %
	広帯域 (300 nm～400 nm) W/m ²	狭帯域 (340 nm) W/(m ² ・nm)			
102分照射後、 18分照射及び 水噴霧	60±2	0.51±0.02	63±3	制御なし	制御なし
	60±2	0.51±0.02	—	—	—

2.4.2.1.4.2. 試験結果

圧縮処理 CF の添加量と促進耐候性試験後の外観の関係

まず、促進耐候性試験後の外観を図 2-4-2-13 に示す。圧縮処理 CF の添加量が多いほど、促進耐候性試験の暴露時間が長いほど白化する傾向にあった。木材もまた屋外暴露により白化することが広く知られている。メカニズムとしては、木の成分であるリグニンが紫外線を吸収することで低分子化し、分解生成物である水溶性の有機酸、バニリン、シリンガアルデヒドなどが雨水により流出し、白化する。CF 添加 PP においても同様であると推察する。

圧縮処理 CF の添加量と促進耐候性試験後の機械的特性の関係

続いて、図 2-4-2-14 では圧縮処理 CF の添加量と促進耐候性試験後の機械的特性の関係について示す。PP は促進耐候性試験により引張強度、引張破断伸び率ともに大幅に低下するが、CF 添加 PP は引張強度、引張破断伸び率の低下が抑えられた。

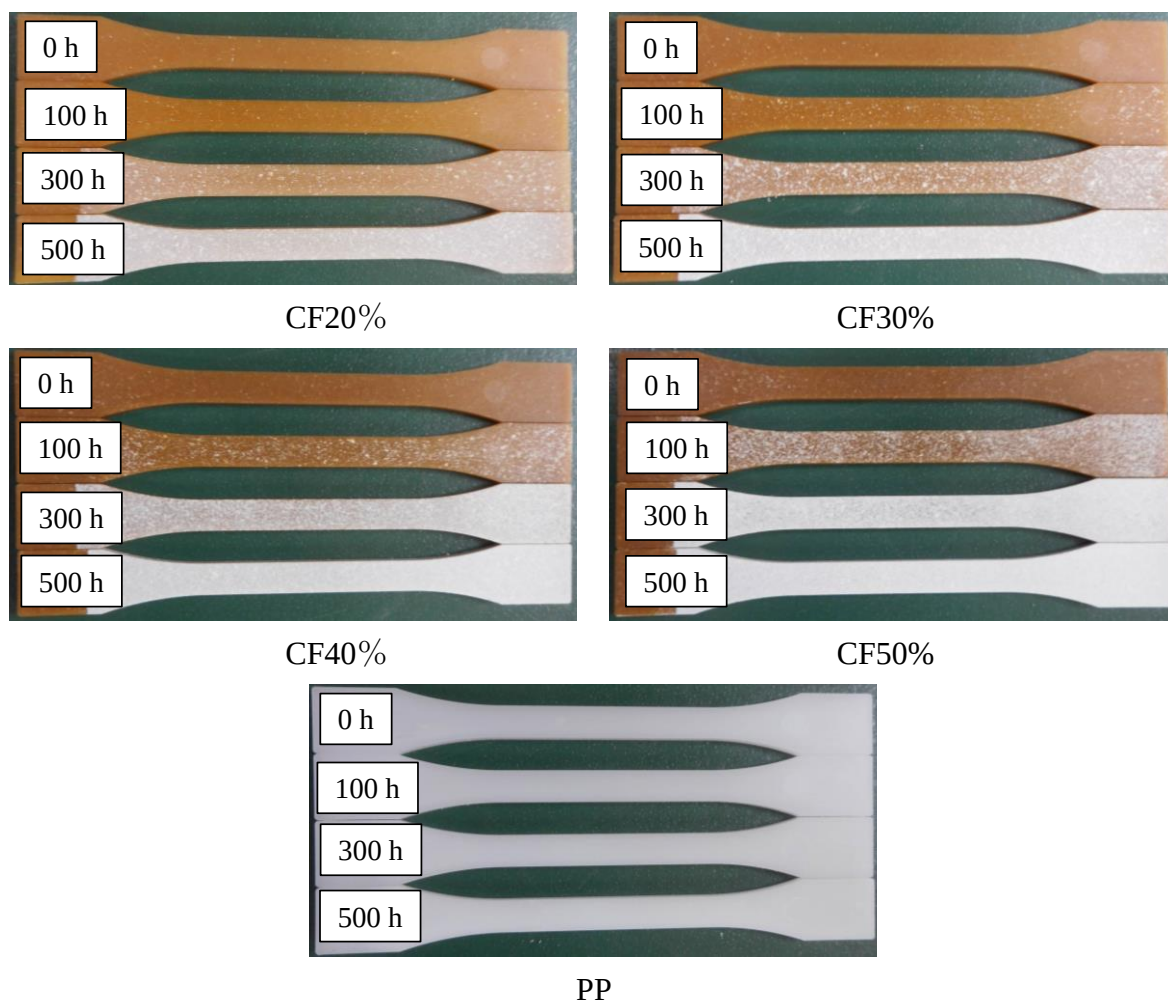


図 2-4-2-13 促進耐候性試験後の外観

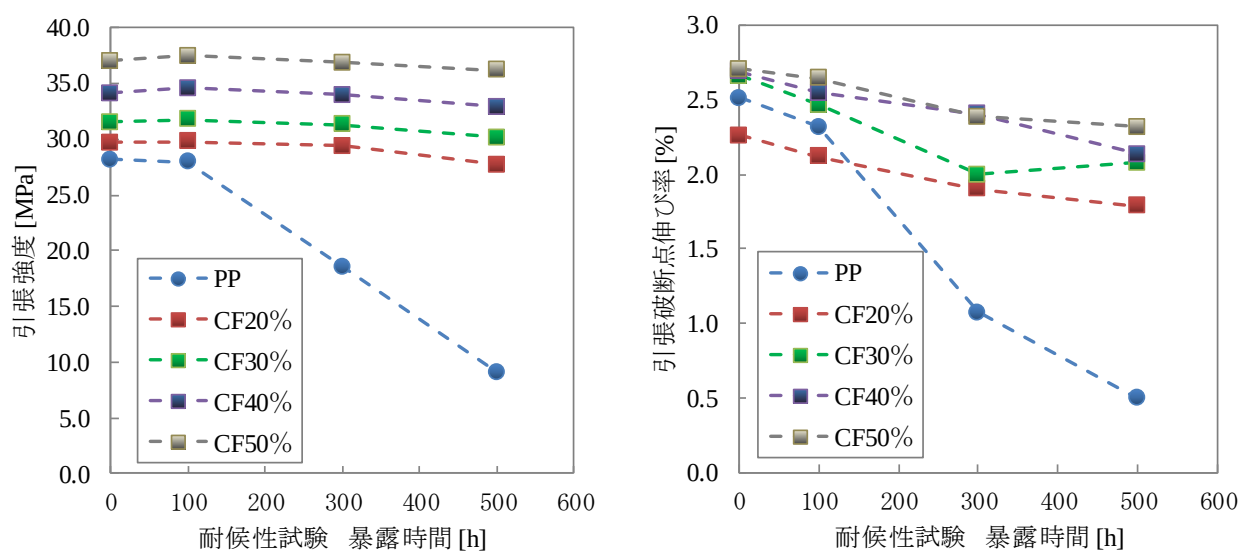


図 2-4-2-14 圧縮処理 CF の添加量と促進耐候性試験後の機械的特性

2.4.3. 各種 CF 特性との相関性検証

2.4.3.1. 各種 CF の特性と CF 添加 PP の機械的特性の関連評価

本項ではこれまでのデータを統合し、各種 CF の性状と複合後の CF 添加 PP の成形体特性についての関係性を調査した。今年度は各種圧縮処理 CF を追加することでデータの蓄積を実施した。得られたデータベースを表 2-4-3-1~表 2-4-3-5 に示す。本項で用いた CF は、水熱処理 CF や圧縮処理 CF 及びセルロースを含む市販の CF を利用しており、様々な CF サンプルを用いて解析することによって、多角的なデータを蓄積した。以下にて、各種 CF 特性と CF 添加 PP の機械的特性の関連性評価について説明する。

図 2-4-3-1~図 2-4-3-7 では、各種 CF の基礎特性とコンパウンド後である CF 添加 PP の機械的特性についての関係をプロットした。横軸については、今年度は CF の物理的性質だけではなく、化学的性質や粉体特性等も加え、CF が持つフィラーとしての特性を総合的に評価することとした。本結果より、CF 添加量は全ての機械的特性に対して相関性を示していることが確認された。添加量によって、各種特性は一定の範囲内に収束することが判明した。この結果、CF 添加量を制御することで、用途に合わせたスペックの調整が容易になる可能性が高い。一方で、その他の CF 特性について着目すると、嵩比重は各種機械的特性の決定に寄与している可能性が高いことが確認されたものの、本グラフから簡易評価項目を抽出し、CF 特性から成形体物性を予測することは難しい。そこで、次項では、統計解析の手法を用いて、より精度の高い相関性検証を実施することとした。

表 2-4-3-1 各種 CF の性状データ一覧

	灰分[%]	抽出分[%]	ヘミセルロース[%]	セルロース[%]	リグニン[%]	比表面積[m ² /g]	沈降速度[%、光透過率]	結晶化度[%]	アスペクト比[-]	平均径[μm]	嵩比重[-]
ヒノキ(小)	0.3	1.5	27.5	37.3	33.4	1.9	14.3	33.8	2.4	157	0.11
ヒノキ(大)	0.1	0.8	23.2	47.5	28.4	1.5	79.5	60.6	2.1	384	0.17
スギ(小)	0.6	2.9	18.4	42.0	36.2	2.3	28.4	55.6	2.7	137	0.13
スギ(大)	0.6	2.2	24.3	33.9	38.9	2.0	35.6	53.3	2.6	251	0.17
アカマツ	0.6	6.1	27.2	34.1	31.9	1.0	71.7	56.9	3.5	255	0.12
トウヒ(小)	2.5	0.4	26.0	36.7	34.4	1.5	15.3	53.0	2.3	46	0.23
トウヒ(中)	0.4	3.0	23.1	42.0	31.5	1.2	37.5	51.7	3.1	112	0.20
トウヒ(大)	3.3	0.4	26.5	37.6	32.2	1.0	46.4	52.6	2.9	165	0.21
水熱ブランク(小)	0.3	0.9	19.0	43.5	36.0	2.2	12.3	43.2	3.3	145	0.13
水熱ブランク(中)	0.3	0.9	19.0	43.5	36.0	2.5	18.6	41.0	3.3	199	0.12
水熱ブランク(大)	0.3	0.9	19.0	43.5	36.0	1.4	69.4	50.3	3.1	676	0.11
水熱 170℃-20 分(小)	0.1	1.7	12.6	48.3	37.0	3.1	14.7	50.2	3.2	109	0.13
水熱 170℃-20 分(中)	0.1	1.7	12.6	48.3	37.0	2.5	12.2	51.3	3.2	177	0.13
水熱 170℃-20 分(大)	0.1	1.7	12.6	48.3	37.0	1.6	71.5	60.3	3.4	602	0.11
水熱 170℃-10 分(中)	0.1	1.9	15.2	46.9	35.5	3.0	9.4	48.6	3.9	187	0.12
水熱 170℃-30 分(中)	0.1	2.6	12.4	44.6	39.8	2.7	19.6	49.4	3.4	168	0.13
セルロース(小)	3.4	0.7	20.0	69.9	6.0	1.1	54.5	63.0	2.5	41	0.26
セルロース(中)	0.3	0.4	23.2	72.1	4.0	1.3	69.0	58.2	3.1	73	0.24
セルロース(大)/紙由来	13.5	0.1	13.5	53.1	19.8	0.9	31.6	68.4	3.7	115	0.16
圧縮ヒノキ(小)	0.3	1.3	26.1	36.9	35.5	1.8	16.7	36.9	2.3	103	0.26
圧縮ヒノキ(中)	0.3	1.5	27.5	37.3	33.4	1.9	14.3	33.8	2.4	133	0.30
圧縮ヒノキ(大)	0.3	1.4	26.3	37.4	34.7	1.4	34.4	35.6	2.1	155	0.34
量産ヒノキ-ブランク	0.2	1.1	17.3	46.9	33.7	2.6	24.3	51.2	3.5	192	0.11
量産ヒノキ-圧縮品	0.3	1.6	17.9	46.2	33.2	1.7	17.2	43.0	2.3	131	0.25
量産スギ-ブランク	0.2	1.1	16.4	46.8	34.5	2.1	25.8	47.7	3.6	189	0.11
量産スギ-圧縮品	0.2	1.1	16.3	45.8	35.7	1.6	25.5	39.9	2.6	126	0.27
量産紙粉-ブランク	9.5	1.3	11.6	60.1	16.9	2.4	20.9	50.2	1.9	96	0.13
量産紙粉-圧縮品	9.4	1.3	12.5	63.8	15.9	1.8	24.8	52.3	1.9	86	0.27

表 2-4-3-2 CF の種類と添加量別 CF 添加 PP の機械特性一覧①

	CF 添加量[%]	曲げ試験		引張試験				比重 [-]	MFR 230°C[g/10min]	シャルピー 衝撃強度	
		強度 [MPa]	弾性率 [GPa]	強度 [MPa]	最大点伸び率[%]	破断点伸び率[%]	弾性率 [GPa]			ノッチなし[kJ/m ²]	ノッチあり[kJ/m ²]
ヒノキ(小)	20	45.1	2.2	31.5	2.5	2.9	2.6	0.97	38.0	19.8	2.6
ヒノキ(小)	30	52.3	2.9	35.5	2.8	3.1	3.1	1.01	19.8	19.3	2.9
ヒノキ(小)	40	55.4	3.1	37.9	2.9	3.3	3.3	1.03	16.2	20.2	3.1
ヒノキ(小)	50	63.3	3.9	43.0	2.9	3.1	3.9	1.07	5.1	20.6	3.3
ヒノキ(大)	20	42.2	2.3	29.0	2.2	2.3	2.4	0.98	58.8	16.6	3.2
ヒノキ(大)	30	48.2	3.0	32.5	2.3	2.5	2.9	1.02	33.8	16.6	4.0
ヒノキ(大)	40	54.7	3.6	35.4	2.2	2.3	3.6	1.06	16.1	16.1	4.3
ヒノキ(大)	50	61.5	4.6	38.9	2.1	2.2	4.1	1.11	3.0	15.5	3.7
スギ(小)	20	45.0	2.2	30.3	2.5	2.9	2.4	0.97	38.4	21.5	3.1
スギ(小)	30	50.2	2.6	33.9	3.0	3.2	2.8	1.00	23.3	20.7	3.3
スギ(小)	40	56.9	3.2	38.3	3.2	3.4	3.2	1.04	11.6	22.1	3.3
スギ(小)	50	62.8	3.8	42.5	3.1	3.3	3.7	1.08	3.5	21.0	3.5
スギ(大)	20	43.8	2.2	29.9	2.3	2.5	2.4	0.97	46.5	16.1	3.1
スギ(大)	30	46.5	2.6	31.2	2.4	2.5	2.7	1.00	32.9	14.9	3.1
スギ(大)	40	54.5	3.2	36.0	2.5	2.6	3.2	1.05	13.7	18.3	3.3
スギ(大)	50	60.0	3.8	39.7	2.6	2.7	3.6	1.08	6.4	16.9	3.6
アカマツ	20	42.9	2.3	29.4	2.2	2.4	2.6	0.98	45.6	14.2	2.4
アカマツ	30	48.2	2.8	32.7	2.2	2.4	3.0	1.00	35.2	14.9	2.6
アカマツ	40	54.3	3.6	36.6	2.2	2.3	3.5	1.05	20.0	14.3	2.7
アカマツ	50	61.4	4.6	41.0	2.1	2.2	4.2	1.10	6.3	12.8	3.0
トウヒ(小)	20	45.2	2.2	29.2	2.3	3.3	2.4	0.97	59.1	28.4	2.7
トウヒ(小)	30	50.5	2.7	32.2	2.8	3.9	2.8	1.01	39.7	29.0	3.0
トウヒ(小)	40	53.0	2.9	33.8	3.3	4.2	3.0	1.03	25.5	29.5	3.0
トウヒ(小)	50	61.2	3.7	39.3	3.4	4.3	3.6	1.08	11.5	28.4	3.0
トウヒ(中)	20	45.2	2.3	30.1	2.5	3.1	2.5	0.97	50.5	21.5	3.2
トウヒ(中)	30	51.1	2.7	34.0	2.9	3.5	2.9	1.01	28.0	21.5	3.4
トウヒ(中)	40	58.5	3.6	38.8	3.0	3.5	3.5	1.04	15.4	21.5	3.0
トウヒ(中)	50	64.7	4.3	43.7	2.9	3.3	4.0	1.09	7.9	21.4	3.5

表 2-4-3-3 CF の種類と添加量別 CF 添加 PP の機械特性一覧②

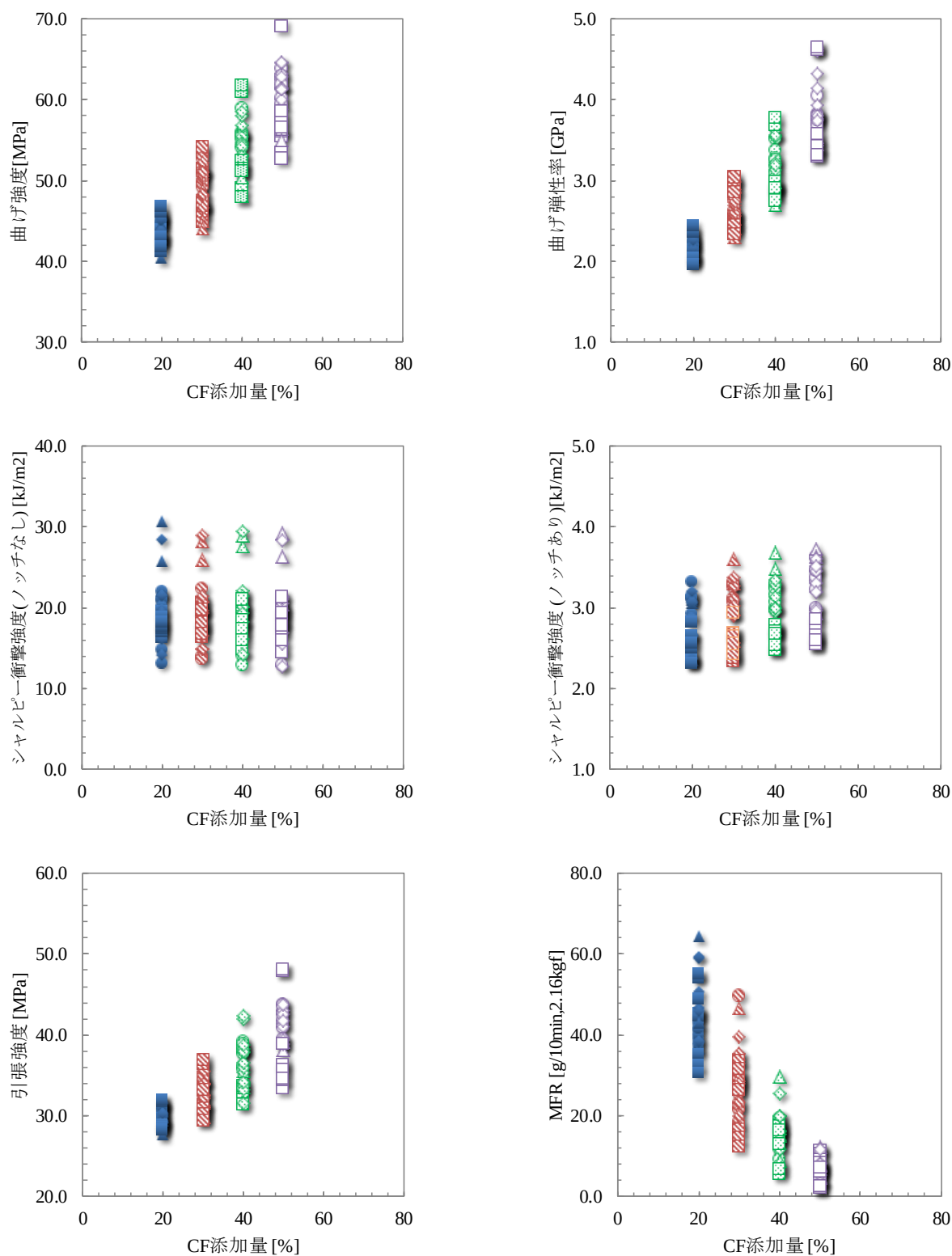
	CF 添加量[%]	曲げ試験		引張試験				比重 [-]	MFR 230°C[g/10min]	シャルピー 衝撃強度	
		強度 [MPa]	弾性率 [GPa]	応力 [MPa]	最大点伸び率[%]	破断点伸び率[%]	弾性率 [GPa]			ノッチなし[kJ/m ²]	ノッチあり[kJ/m ²]
トウヒ(大)	20	45.4	2.3	29.9	2.3	2.5	2.5	0.98	54.0	19.3	2.7
トウヒ(大)	30	51.1	2.9	33.8	2.5	2.9	3.0	1.01	35.4	19.7	2.9
トウヒ(大)	40	58.1	3.5	37.9	2.7	3.0	3.5	1.05	19.9	19.3	2.9
トウヒ(大)	50	64.5	4.1	41.9	2.8	3.0	3.9	1.09	8.2	21.4	3.2
セルロース(小)	20	42.4	2.1	29.8	2.3	2.8	2.3	0.98	64.5	25.8	2.3
セルロース(小)	30	45.0	2.4	31.7	2.5	3.3	2.7	1.01	46.6	25.9	2.6
セルロース(小)	40	50.4	2.8	34.9	3.3	3.9	3.1	1.05	29.9	27.7	2.8
セルロース(小)	50	56.4	3.4	39.1	3.7	4.3	3.6	1.11	12.2	26.4	2.9
セルロース(中)	20	44.6	2.1	29.3	2.6	3.3	2.3	0.98	42.9	30.7	3.1
セルロース(中)	30	44.2	2.3	29.8	3.0	3.9	2.5	1.02	30.2	28.2	3.6
セルロース(中)	40	48.0	2.7	33.5	3.6	4.1	2.9	1.06	15.0	29.0	3.7
セルロース(中)	50	59.6	3.5	39.2	3.9	4.0	3.5	1.11	7.7	29.3	3.6
セルロース(大)	20	40.5	2.0	27.7	2.5	3.3	2.3	0.99	36.6	22.0	3.0
セルロース(大)	30	48.9	2.5	31.8	3.5	4.0	2.6	1.02	18.2	21.5	3.3
セルロース(大)	40	53.7	3.0	35.6	3.8	4.0	3.1	1.06	9.0	20.9	3.5
セルロース(大)	50	55.0	3.5	38.1	3.7	4.0	3.4	1.13	4.5	20.4	3.7
水熱ブランク(小)	20	45.7	2.2	30.8	2.6	2.9	2.5	0.98	42.8	20.9	2.9
水熱ブランク(小)	30	49.6	2.6	32.9	2.9	3.2	2.7	1.00	26.8	22.3	3.0
水熱ブランク(小)	40	59.0	3.5	39.2	2.9	3.0	3.5	1.06	11.6	19.7	3.0
水熱ブランク(小)	50	62.5	3.8	41.3	2.9	3.1	3.7	1.08	6.1	19.5	3.3
水熱ブランク(中)	20	45.7	2.3	31.0	2.4	2.6	2.6	0.98	41.2	18.4	3.1
水熱ブランク(中)	30	51.1	2.8	34.3	2.7	2.8	2.9	1.01	25.6	19.3	3.3
水熱ブランク(中)	40	54.1	2.9	36.1	2.9	3.1	3.1	1.03	17.6	21.4	3.3
水熱ブランク(中)	50	60.3	3.7	41.8	2.7	2.9	3.8	1.08	7.3	19.9	3.4
水熱ブランク(大)	20	44.3	2.4	30.9	2.1	2.2	2.6	0.98	39.0	13.0	2.9
水熱ブランク(大)	30	50.6	2.9	34.3	2.1	2.2	3.1	1.02	21.4	14.0	3.3
水熱ブランク(大)	40	56.0	3.4	38.0	2.2	2.2	3.5	1.05	13.7	14.2	3.1
水熱ブランク(大)	50	63.9	4.1	42.8	2.0	2.1	4.3	1.10	3.1	14.4	3.4

表 2-4-3-4 CF の種類と添加量別 CF 添加 PP の機械特性一覧③

	CF 添加量[%]	曲げ試験		引張試験				比重 [-]	MFR 230°C[g/10min]	シャルピー 衝撃強度	
		応力 [MPa]	弾性率 [GPa]	応力 [MPa]	最大点伸び率[%]	破断点伸び率[%]	弾性率 [GPa]			ノッチなし[kJ/m ²]	ノッチあり[kJ/m ²]
水熱 170°C-20 分(小)	20	44.8	2.1	30.8	2.6	2.9	2.5	0.98	44.4	22.0	3.3
水熱 170°C-20 分(小)	30	49.2	2.6	34.1	2.8	3.1	2.9	1.00	26.8	20.7	3.1
水熱 170°C-20 分(小)	40	55.8	3.3	38.6	2.7	3.0	3.4	1.04	15.6	19.3	3.2
水熱 170°C-20 分(小)	50	61.5	3.8	42.5	2.8	2.9	3.8	1.08	7.4	17.8	3.2
水熱 170°C-20 分(中)	20	44.5	2.2	31.0	2.4	2.6	2.5	0.98	39.9	17.6	2.4
水熱 170°C-20 分(中)	30	52.7	3.0	36.1	2.6	2.7	3.2	1.03	18.4	17.4	2.6
水熱 170°C-20 分(中)	40	55.7	3.3	37.6	2.6	2.7	3.4	1.05	14.0	18.0	3.0
水熱 170°C-20 分(中)	50	59.5	3.7	40.8	2.5	2.6	3.7	1.07	7.5	17.9	3.0
水熱 170°C-20 分(大)	20	42.8	2.2	30.2	2.1	2.1	2.5	0.97	36.3	14.8	2.3
水熱 170°C-20 分(大)	30	46.9	2.6	32.5	2.2	2.3	2.9	1.01	49.6	13.7	2.5
水熱 170°C-20 分(大)	40	52.3	3.2	35.8	2.1	2.2	3.4	1.03	19.4	12.9	2.7
水熱 170°C-20 分(大)	50	57.5	3.8	39.4	2.1	2.2	3.8	1.06	10.8	12.8	3.0
水熱 170°C-10 分(中)	20	45.5	2.2	31.4	2.7	2.9	2.5	0.98	37.4	21.0	3.1
水熱 170°C-10 分(中)	30	50.8	2.6	35.2	2.9	3.2	2.9	1.01	21.8	19.7	3.1
水熱 170°C-10 分(中)	40	55.2	3.1	38.3	2.9	3.2	3.2	1.03	14.8	19.7	3.2
水熱 170°C-10 分(中)	50	63.0	3.8	43.8	2.8	2.9	3.8	1.08	5.0	20.0	3.5
水熱 170°C-30 分(中)	20	44.7	2.1	31.0	2.7	3.0	2.5	0.97	41.4	20.1	3.1
水熱 170°C-30 分(中)	30	49.7	2.6	34.7	2.9	3.0	2.8	1.00	23.1	19.3	3.3
水熱 170°C-30 分(中)	40	55.5	3.1	38.8	2.9	3.1	3.2	1.04	9.2	19.4	3.3
水熱 170°C-30 分(中)	50	61.9	3.7	43.6	2.8	3.0	3.8	1.07	4.7	18.9	3.6
圧縮処理ヒノキ(小)	20	43.8	2.1	29.6	2.3	2.6	2.4	0.98	44.6	19.6	2.3
圧縮処理ヒノキ(小)	30	47.2	2.5	31.2	2.5	2.9	2.7	1.02	28.6	20.5	2.4
圧縮処理ヒノキ(小)	40	51.2	2.9	33.7	3.0	3.4	3.1	1.07	17.3	20.2	2.5
圧縮処理ヒノキ(小)	50	56.0	3.4	36.1	3.1	3.3	3.4	1.10	8.3	19.6	2.6
圧縮処理ヒノキ(中)	20	42.8	2.0	29.1	2.2	2.6	2.3	0.97	44.6	19.0	2.4
圧縮処理ヒノキ(中)	30	46.9	2.4	30.5	2.4	3.0	2.6	1.02	29.0	19.7	2.4
圧縮処理ヒノキ(中)	40	51.1	2.9	32.9	2.8	3.0	3.0	1.06	17.4	18.5	2.5
圧縮処理ヒノキ(中)	50	55.5	3.3	34.4	3.1	3.4	3.2	1.09	10.3	18.4	2.5

表 2-4-3-5 CF の種類と添加量別 CF 添加 PP の機械特性一覧④

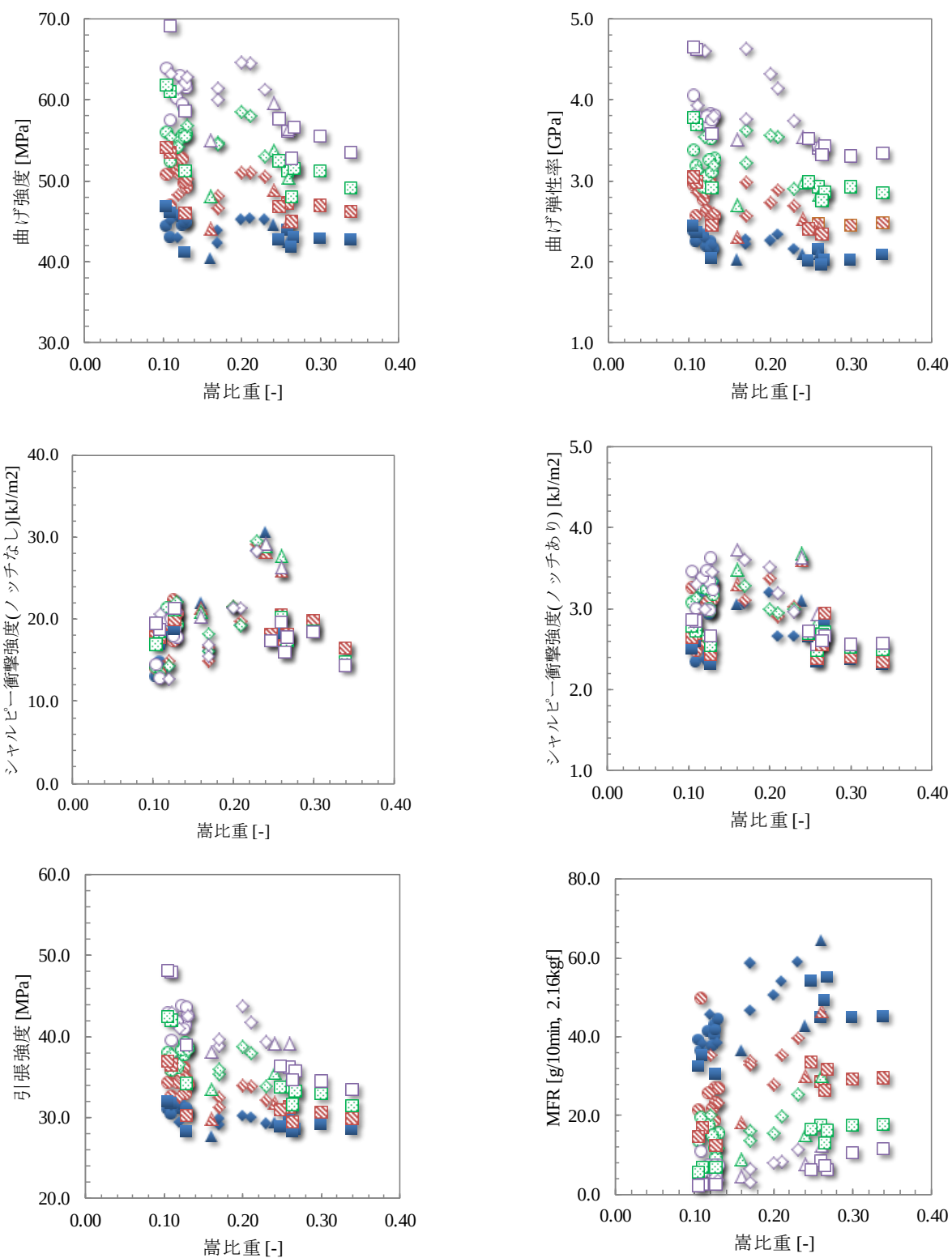
原料 CF 概要 (CF の粒子径)	CF 添加量[%]	曲げ試験		引張試験				比重 [-]	MFR 230°C[g/10min]	シャルピー 衝撃強度	
		強度 [MPa]	弾性率 [GPa]	応力 [MPa]	最大点伸び率[%]	破断点伸び率[%]	弾性率 [GPa]			ノッチなし[kJ/m ²]	ノッチあり[kJ/m ²]
圧縮処理ヒノキ(大)	20	42.6	2.1	28.4	2.2	2.4	2.3	0.98	45.0	16.3	2.3
圧縮処理ヒノキ(大)	30	46.1	2.5	29.8	2.4	2.8	2.6	1.03	29.4	16.4	2.3
圧縮処理ヒノキ(大)	40	49.0	2.8	31.4	2.6	2.8	2.9	1.07	17.5	14.8	2.5
圧縮処理ヒノキ(大)	50	53.4	3.3	33.4	2.8	2.9	3.2	1.11	11.4	14.4	2.6
量産ヒノキ-ブランク	20	46.0	2.3	31.6	2.4	2.6	2.7	0.97	35.1	16.9	2.6
量産ヒノキ-ブランク	30	53.5	3.0	36.4	2.7	2.9	3.2	1.01	16.6	17.8	2.7
量産ヒノキ-ブランク	40	60.9	3.7	42.0	2.8	2.9	3.8	1.05	6.7	18.4	2.7
量産ヒノキ-ブランク	50	69.2	4.6	47.9	2.7	2.7	4.4	1.09	2.3	18.7	2.8
量産ヒノキ-圧縮品	20	42.6	2.0	28.8	2.3	2.5	2.3	0.97	54.0	18.7	2.6
量産ヒノキ-圧縮品	30	46.7	2.4	30.9	2.6	2.9	2.7	1.01	33.4	18.0	2.7
量産ヒノキ-圧縮品	40	52.3	3.0	33.6	2.9	3.1	3.1	1.06	16.3	17.3	2.7
量産ヒノキ-圧縮品	50	57.7	3.5	36.3	2.8	3.0	3.4	1.11	6.1	17.3	2.7
量産スギ-ブランク	20	46.7	2.4	31.9	2.5	2.7	2.7	0.97	32.1	17.5	2.5
量産スギ-ブランク	30	54.1	3.0	36.9	2.7	2.9	3.2	1.01	14.4	17.9	2.6
量産スギ-ブランク	40	61.8	3.8	42.4	2.7	2.9	3.8	1.05	5.6	16.9	2.8
量産スギ-ブランク	50	70.2	4.6	48.0	2.7	2.8	4.5	1.09	2.0	19.4	2.9
量産スギ-圧縮品	20	42.9	2.0	28.4	2.3	2.5	2.3	0.97	54.9	17.6	2.8
量産スギ-圧縮品	30	46.8	2.4	30.6	2.6	2.9	2.6	1.02	31.6	18.0	2.9
量産スギ-圧縮品	40	51.4	2.9	33.2	2.7	2.9	3.0	1.06	16.2	17.3	2.7
量産スギ-圧縮品	50	56.5	3.4	35.6	2.7	2.8	3.4	1.11	6.0	17.8	2.7
量産紙粉-ブランク	20	41.1	2.0	28.2	2.4	2.9	1.4	0.98	30.5	18.7	2.3
量産紙粉-ブランク	30	46.0	2.4	30.2	3.0	3.7	1.6	1.03	12.4	19.8	2.4
量産紙粉-ブランク	40	51.2	2.9	34.1	3.6	4.0	2.0	1.08	6.8	21.0	2.5
量産紙粉-ブランク	50	58.5	3.6	38.9	3.8	3.9	2.5	1.13	2.4	21.3	2.7
量産紙粉-圧縮品	20	41.6	2.0	28.1	2.5	2.8	2.2	0.98	48.9	18.1	2.6
量産紙粉-圧縮品	30	44.8	2.3	29.4	2.4	2.9	2.5	1.03	26.3	16.8	2.6
量産紙粉-圧縮品	40	47.9	2.7	31.6	2.6	2.8	2.9	1.08	13.0	15.9	2.7
量産紙粉-圧縮品	50	52.8	3.3	34.6	2.7	2.8	3.4	1.13	6.9	15.9	2.6



● HT-20% ■ CP-20% ▲ CeF-20% ◆ WF-20% ● HT-30% ■ CP-30% ▲ CeF-30% ◆ WF-30%
 ⊕ HT-40% ⊞ CP-40% △ CeF-40% ◇ WF-40% ○ HT-50% □ CP-50% △ CeF-50% ◇ WF-50%

※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

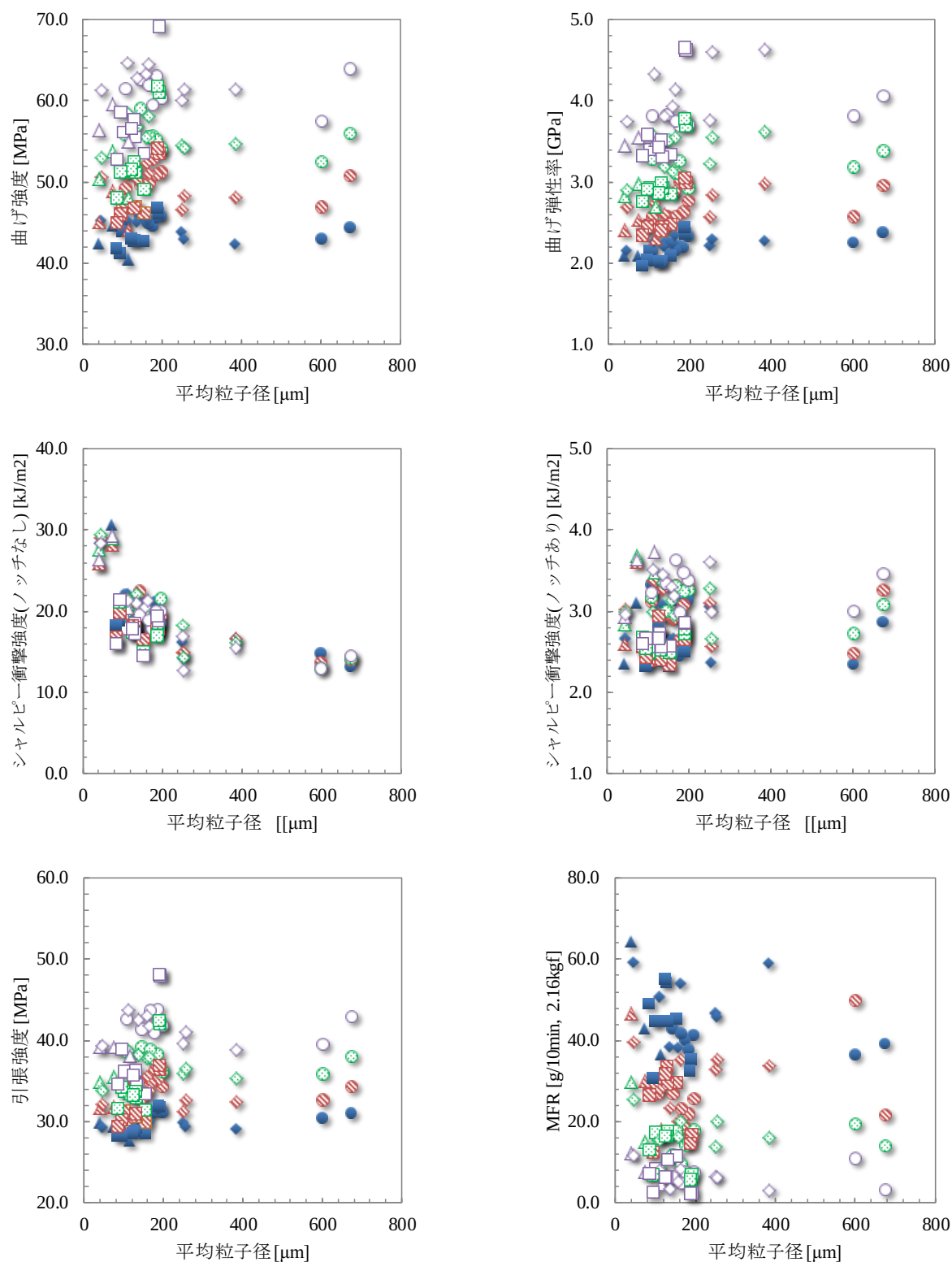
図 2-4-3-1 CF 添加量と CF 添加 PP の各種特性の関係



● HT-20% ■ CP-20% ▲ CeF-20% ◆ WF-20% ○ HT-30% □ CP-30% △ CeF-30% ◇ WF-30%
 ⊕ HT-40% ⊞ CP-40% ⊡ CeF-40% ⊠ WF-40% ○ HT-50% □ CP-50% △ CeF-50% ◇ WF-50%

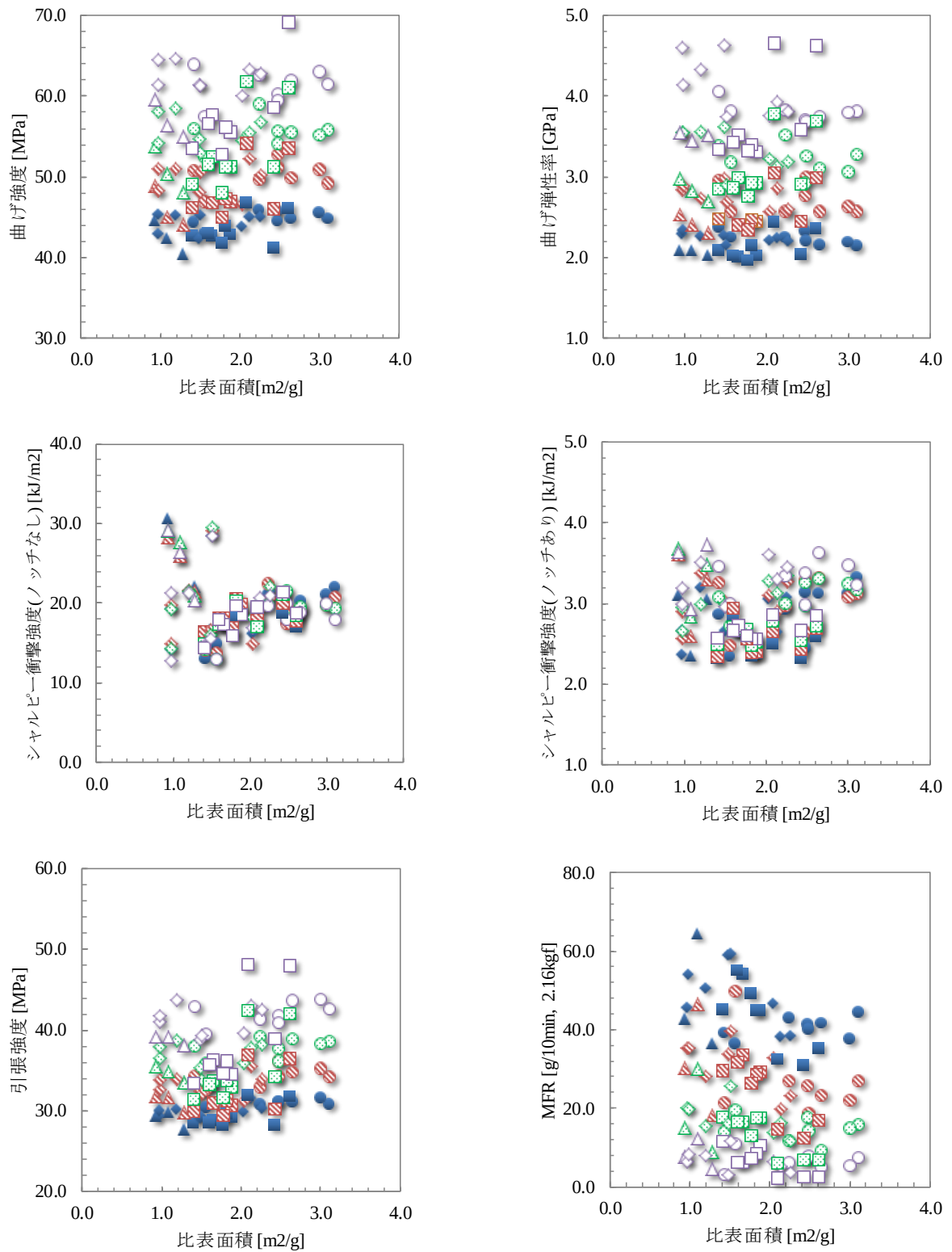
※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

図 2-4-3-2 CF の嵩比重と CF 添加 PP の各種特性の関係



※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルローズ

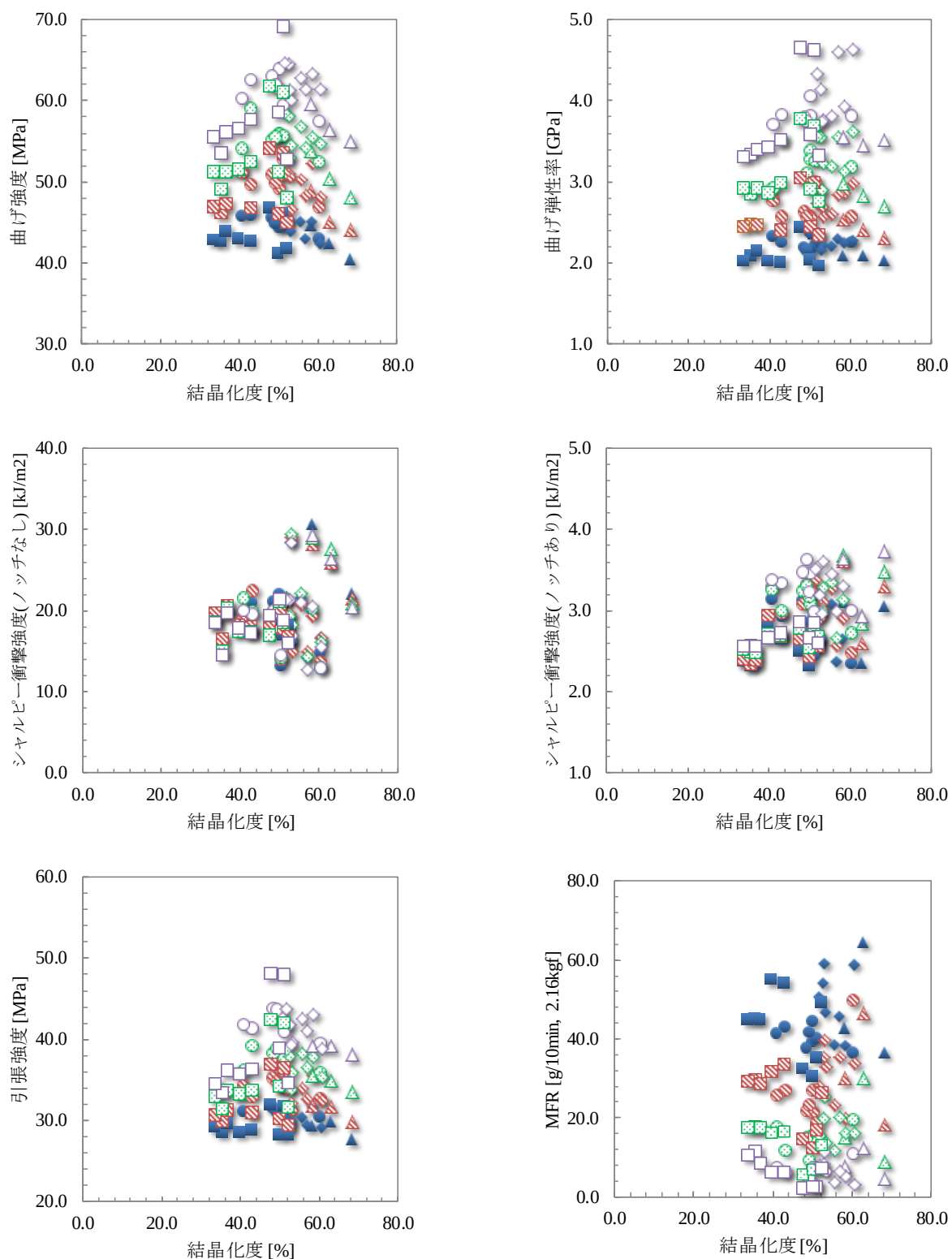
図 2-4-3-3 CF の平均粒子径と CF 添加 PP の各種特性の関係



● HT-20% ■ CP-20% ▲ CeF-20% ◆ WF-20% ○ HT-30% ■ CP-30% ▲ CeF-30% ◆ WF-30%
 ⊕ HT-40% ⊞ CP-40% △ CeF-40% ◇ WF-40% ○ HT-50% □ CP-50% △ CeF-50% ◇ WF-50%

※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

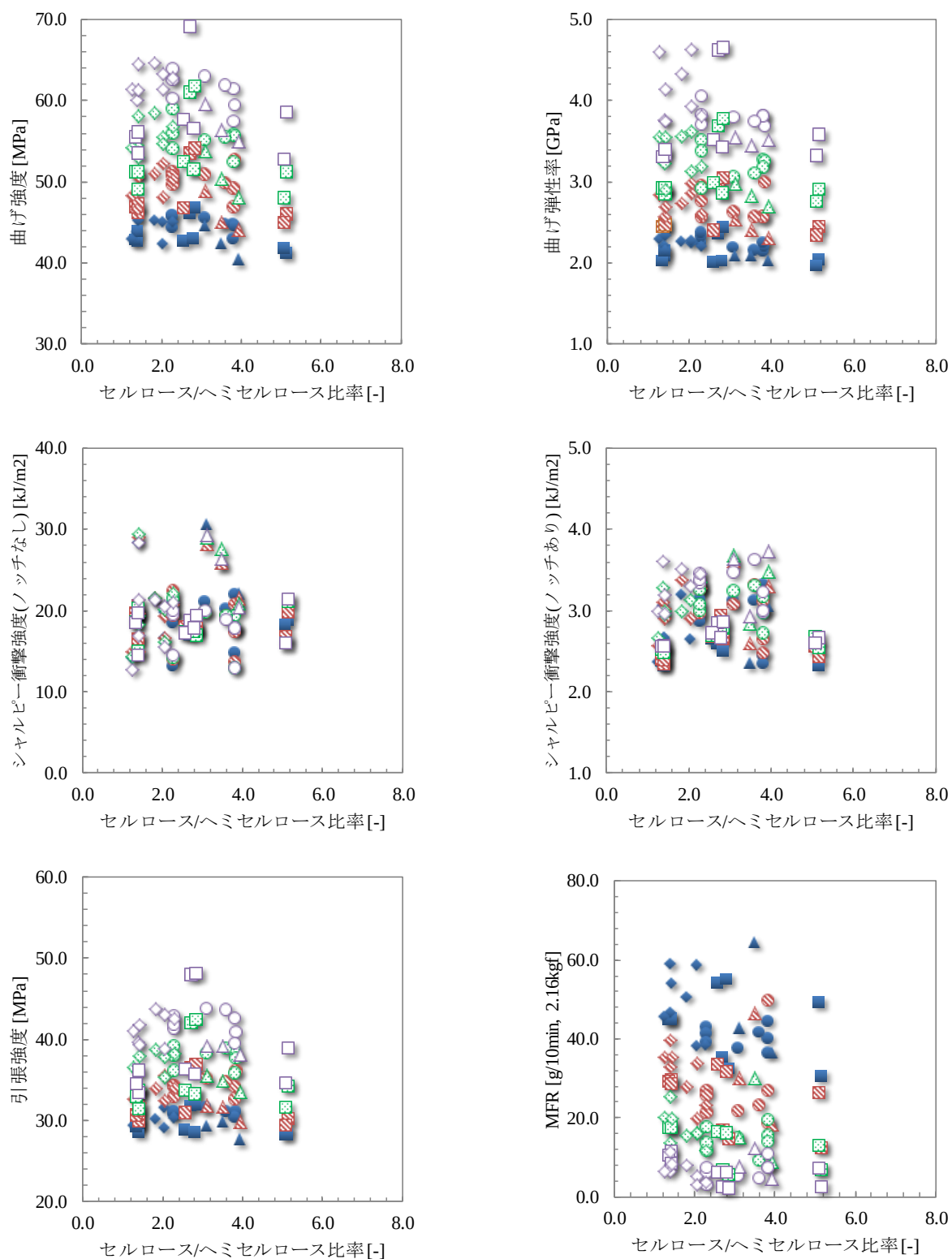
図 2-4-3-4 CF の比表面積と CF 添加 PP の各種特性の関係



● HT-20% ■ CP-20% ▲ CeF-20% ◆ WF-20% ○ HT-30% □ CP-30% △ CeF-30% ◇ WF-30%
 ⊕ HT-40% ⊞ CP-40% ⊡ CeF-40% ⊠ WF-40% ○ HT-50% □ CP-50% △ CeF-50% ◇ WF-50%

※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

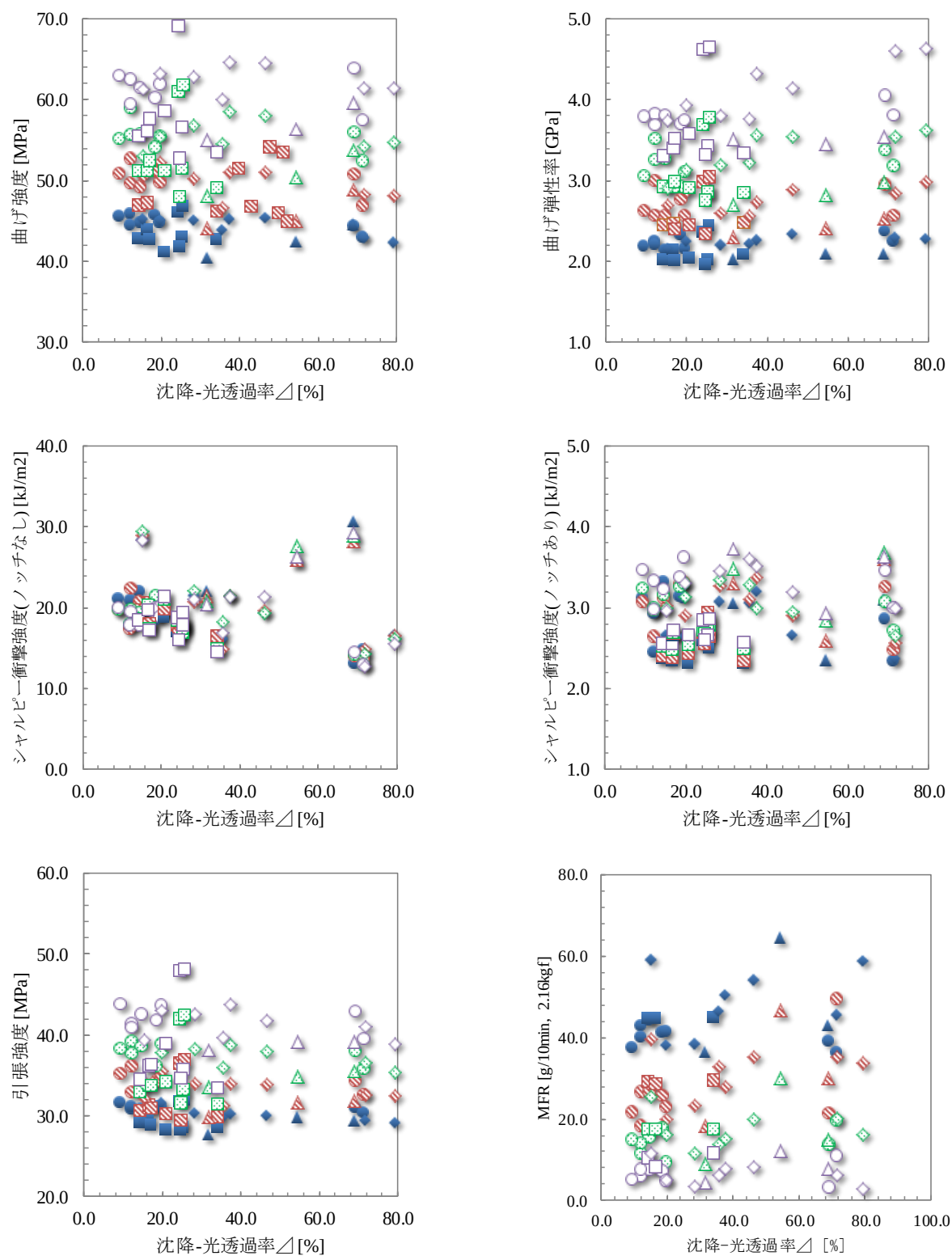
図 2-4-3-5 CF の結晶化度と CF 添加 PP の各種特性の関係



● HT-20% ■ CP-20% ▲ CeF-20% ◆ WF-20% ○ HT-30% □ CP-30% △ CeF-30% ◇ WF-30%
 ⊕ HT-40% ⊞ CP-40% ⊡ CeF-40% ⊢ WF-40% ○ HT-50% □ CP-50% △ CeF-50% ◇ WF-50%

※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

図 2-4-3-6 CF のセルロース／ヘミセルロース比率と CF 添加 PP の各種特性の関係



※HT：水熱処理 CF CP：圧縮処理 CF WF：木粉 CeF：セルロース

図 2-4-3-7 CF の沈降速度と CF 添加 PP の各種特性の関係

2.4.3.2. 統計解析による相関性検証と CF 性状の簡易評価項目の抽出

本事業で使用した 28 種類の CF の各種特徴について、統計解析による相関性を検証するとともに、CF の特徴を用いた成型品の物性の予測が可能か検証した。また、各種特徴の代わりに近赤外分光分析を用いて成型品の物性の予測が可能か検証し、以下の結果を得た。

- ・ CF の嵩比重、粒径、粒子の形態、沈降速度、化学成分に関する 23 個の特徴パラメータは、互いに独立した 5 つの主成分で全体の約 90% の情報を説明可能であった。
- ・ PLS 回帰分析により、CF の特徴パラメータから成型後の物性を予測することが可能であった。すべての物性に対して最も高く予測に寄与したパラメータは、CF 添加率で、次いで嵩比重、包絡度、アスペクト比、10% 分位径であった。
- ・ 近赤外分光スペクトル、嵩比重、CF 添加率を用いた場合でも CF の特徴パラメータを用いた場合と同等の予測精度で成型後の物性を予測することができ、CF の簡易評価指標として有効であることが示された。
- ・ 近赤外分光分析によって、CF の種類の識別が可能であることが示された。

2.4.3.2.1. CF の特性のデータ構造の解析

28 種類の CF の特性（嵩比重、粒度、粒子形状、化学成分）の各パラメータ間の関係を主成分分析により解析した。

2.4.3.2.1.1. 方法

今回は 23 個の特性パラメータを説明変数として、主成分分析を行いデータの構造を解析した。表 2-4-3-6 に解析に用いた CF の特徴パラメータの一覧を示す。主成分分析は多数の説明変数を少数の独立した主成分に圧縮することで、データ構造を解析する手法である。CF の種類が 28 種類、CF の特性パラメータが 23 項目あるとき、原データは 28 行 23 列の行列 X で表現できる（表 2-4-3-6 参照）。主成分分析では、これをスコア T （23 行 n 列）とローディングの転置 P^T （ n 行 23 列）および残渣 E （28 行 23 列）に分解する。各行列の関係は式（22）の通りとなる。

$$X = TP^T + E \quad (22)$$

ただし n は説明変数の数以下の自然数（今回は 23）である。 T における n 列目の値および P^T の n 行目の値はそれぞれ第 n 主成分スコアおよびローディングと呼ぶ。 P は各特性パラメータの重みづけ係数に相当し、 T は X を P で重みづけした線形結合、すなわち P への射影である。第 1 主成分ローディングは全データの分散が最大になるように決定され、第 2 主成分以降はそれまでに計算された主成分ローディングと直交する中でデータの分散が最大になるように順次決定される。

各主成分がデータ全体のどれだけの情報を表現できているかは寄与率 C を用いる。

$$C_i = \frac{V_i}{\sum V_n} \quad (23)$$

C_i は第*i*主成分の寄与率、 V_i は第*i*主成分スコアの分散、 $\sum V_n$ はデータの総分散である。
今回は各パラメータで単位が異なるため、前処理として各パラメータのオートスケーリングを行った。

表 2-4-3-6 CF の特性一覧

原料CF概要	嵩比重	粒度分布[μm]				アスペクト比	最大径 [μm]	最小径 [μm]	対角幅 [μm]	面積 [μm ²]	周囲長 [μm]	円相当径 [μm]	円形度	包絡度	結晶化度 [%]	沈降速度 [%光透過率]	比表面積 [m2/g]	成分分析					
		平均径	10%分位径	中央値	90%分位径													リグニン [%]	セルロース [%]	ヘミセルロース [%]	抽出分 [%]	灰分 [%]	セルロース/ヘミセル ロース比率
原料CF概要	0.11	157	18	127	338	2.4	286	123	140	31801	873	168	0.4	0.9	33.8	14.3	1.9	33.4	37.3	27.5	1.5	0.3	1.4
	0.17	384	218	369	569	2.1	591	312	376	129892	1975	400	0.4	0.8	60.6	79.5	1.5	28.4	47.5	23.2	0.8	0.1	2.0
	0.17	251	23	203	548	2.6	501	209	227	89258	1666	296	0.3	0.8	53.3	35.6	2.0	38.9	33.9	24.3	2.2	0.6	1.4
	0.13	137	17	107	297	2.7	344	143	158	39987	1058	194	0.4	0.9	55.6	28.4	2.3	36.2	42.0	18.4	2.9	0.6	2.3
	0.12	255	37	196	568	3.5	639	185	208	92435	2152	282	0.3	0.8	56.9	71.7	1.0	31.9	34.1	27.2	6.1	0.6	1.3
	0.21	165	27	131	351	2.9	305	124	134	36926	900	173	0.4	0.9	52.6	46.4	1.0	32.2	37.6	26.5	0.4	3.3	1.4
	0.23	46	12	36	92	2.3	87	40	43	2574	247	52	0.5	0.9	53.0	15.3	1.5	34.4	36.7	26.0	0.4	2.5	1.4
	0.20	112	17	80	253	3.1	274	96	107	21942	805	139	0.4	0.9	51.7	37.5	1.2	31.5	42.0	23.1	3.0	0.4	1.8
	0.13	145	15	97	344	3.3	464	152	171	59859	1335	237	0.3	0.9	43.2	12.3	2.2	36.0	43.5	19.0	0.9	0.3	2.3
	0.12	199	22	164	425	3.3	417	142	154	45550	1299	200	0.3	0.8	41.0	18.6	2.5	36.0	43.5	19.0	0.9	0.3	2.3
原料CF概要	0.11	676	113	571	1369	3.1	1292	475	524	460838	4545	707	0.3	0.7	50.3	69.4	1.4	36.0	43.5	19.0	0.9	0.3	2.3
	0.13	109	14	69	273	3.2	359	128	137	30758	1057	172	0.3	0.9	50.2	14.7	3.1	37.0	48.3	12.6	1.7	0.1	3.8
	0.13	177	20	113	430	3.2	565	203	223	80261	1845	281	0.3	0.8	51.3	12.2	2.5	37.0	48.3	12.6	1.7	0.1	3.8
	0.11	602	142	515	1161	3.4	1479	497	526	394848	4849	591	0.2	0.8	60.3	71.5	1.6	37.0	48.3	12.6	1.7	0.1	3.8
	0.12	187	17	121	453	3.9	477	148	166	62360	1414	224	0.3	0.9	48.6	9.4	3.0	35.5	46.9	15.2	1.9	0.1	3.1
	0.13	168	16	105	415	3.4	519	177	191	62868	1509	245	0.3	0.9	49.4	19.6	2.7	39.8	44.6	12.4	2.6	0.1	3.6
	0.26	41	15	31	78	2.5	79	33	36	1700	216	44	0.5	0.9	63.0	54.5	1.1	6.0	69.9	20.0	0.7	3.4	3.5
	0.24	73	18	55	154	3.1	138	49	53	4259	373	63	0.4	0.9	58.2	69.0	1.3	4.0	72.1	23.2	0.4	0.3	3.1
	0.16	115	21	91	244	3.7	206	67	72	5855	576	79	0.3	0.9	68.4	31.6	0.9	19.8	53.1	13.5	0.1	13.5	3.9
	0.26	103	13	73	242	2.28	224	107	116	20627	718	132	0.5	0.9	36.9	16.7	1.8	35.5	36.9	26.1	1.3	0.3	1.4
原料CF概要	0.30	133	16	99	299	2.44	286	123	140	31801	873	168	0.4	0.9	33.8	14.3	1.9	33.4	37.3	27.5	1.5	0.3	1.4
	0.34	155	19	112	355	2.15	275	136	148	34017	954	170	0.4	0.8	35.6	34.4	1.4	34.7	37.4	26.3	1.4	0.3	1.4
	0.11	192	21	134	447	3.5	634	187	199	97504	1998	308	0.3	0.8	51.2	24.3	2.6	33.7	46.9	17.3	1.1	0.2	2.7
	0.25	131	19	96	294	2.3	492	249	287	109458	1827	307	0.4	0.8	43.0	17.2	1.7	33.2	46.2	17.9	1.6	0.3	2.6
	0.11	189	20	127	454	3.6	486	163	177	63504	1644	233	0.3	0.8	47.7	25.8	2.1	34.5	46.8	16.4	1.1	0.2	2.9
	0.27	126	17	93	281	2.6	268	137	146	37597	956	167	0.4	0.8	39.9	25.5	1.6	35.7	45.8	16.3	1.1	0.2	2.8
	0.13	96	15	65	231	1.9	532	342	373	133925	3655	328	0.2	0.6	50.2	20.9	2.4	16.9	60.1	11.6	1.3	9.5	5.2
	0.27	86	16	65	191	1.9	469	279	302	83600	2897	270	0.1	0.5	52.3	24.8	1.8	15.9	63.8	12.5	1.3	9.4	5.1

2.4.3.2.1.2. 結果

図 2-4-3-8 に CF の特徴パラメータの主成分ローディングを示す。ローディング係数の絶対値が大きい特徴パラメータは、その主成分への寄与が大きいことを示す。また、特徴パラメータのローディング係数の傾向が似ているものは互いに相関が高いパラメータであると考えられる。図 2-4-3-8 より、第 1 主成分は平均粒径、10%分位径、中央径、90%分位径、最大径、最小径、対角幅、面積、周囲長、円相当径といった、粒径や粒子の形状に関するパラメータを表現していることが分かった。なお、第一主成分の寄与率は 43.5%であった。

第 2 主成分は結晶化度、セルロース、灰分、セルロース/ヘミセルロース比が大きな負の値を、リグニン、ヘミセルロースが大きな正の値を示した。このことから、第 2 主成分は主に CF の化学成分、特にセルロースとその他の比率に関連していると考えられた。第 2 主成分の寄与率は 18.6%であった。また、第 3 主成分は沈降速度、比表面積、リグニン、アスペクト比、嵩比重などの係数が大きかったことから、これらは表面の毛羽立ちや形状、それに伴う親水・疎水性に関連する変数であると考えられる。第 3 主成分の寄与率は 13.5%であった。

第 4 主成分は嵩比重、アスペクト比、包絡度、結晶化度が大きかった。これは繊維の形状、特に長さに関与する変数であると考えられる。第 4 主成分の寄与率は 8.0%であった。第 5 主成分は主に抽出成分に関連する変数で、その寄与率は 5.0%であった。

第 1～第 5 主成分までの累積寄与率は 88.5%と、独立した 5 つの主成分で全体の 90%近くを説明できることが明らかとなった。

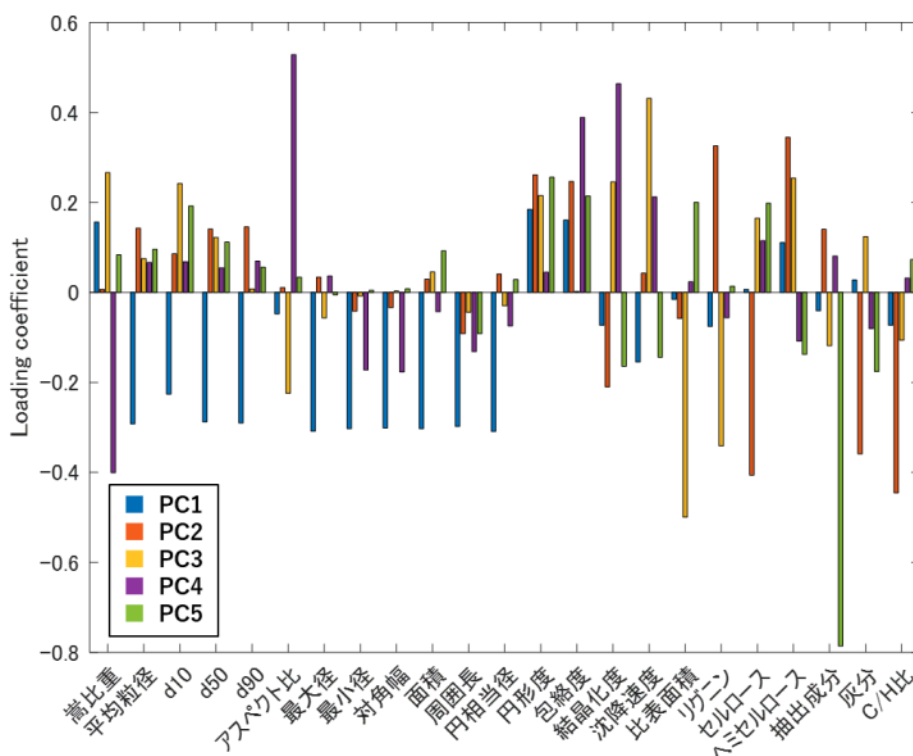


図 2-4-3-8 CF の特徴パラメータの主成分ローディング

2.4.3.2.2. CF の特性を用いた機械的特性の予測

2.4.3.2.2.1. 方法

次に部分最小二乗法（PLS 回帰分析）を使って CF の特性と添加量から成型物の物性の予測を試みた。表 2-4-3-7 に目的変数として使用した物性の概要を示す。

PLS 回帰分析では、主成分分析と同様に説明変数を少数の独立した潜在変数に圧縮する。ただし、主成分分析では説明変数の分散が最大になるようにローディングが決定されるのに対して、PLS 回帰分析では目的変数との相関が最大となるような方向にローディングが決定される。このようにして算出された潜在変数と目的変数の間で重回帰分析を行う。潜在変数の数は説明変数の数以下であれば任意の値を設定することが可能であるが、今回は、前項で 5 つの独立した主成分が CF の特徴パラメータの 90% 近くを表現できること、およびこれとは独立に CF 添加率を説明変数に加えていることから、最大の潜在変数を $5 + 1 = 6$ として予測モデルを計算した。なお、予測モデルの精度は、すべてのサンプルを用いて算出した予測値（Calibration）および一つ抜き交互検証法（Leave-one-out full cross validation）によって算出された予測値と実測値の誤差に基づき評価した。

表 2-4-3-7 目的変数の概要

目的変数	n	平均	最大	最小	標準偏差
曲げ強度 (MPa)	112	51.86	70.16	40.49	6.90
曲げ弾性率 (GPa)	112	2.95	4.65	1.95	0.68
引張強度 (MPa)	112	34.82	48.02	27.68	4.68
引張最大点伸び率 (%)	112	2.69	3.88	2.01	0.41
引張破断点伸び率 (%)	112	2.98	4.33	2.07	0.51
引張弾性率 (GPa)	112	3.03	4.46	1.40	0.58
比重 (-)	112	1.03	1.13	0.97	0.05
MFR (230°C) (g/10min.)	112	23.52	64.50	2.01	15.86
ノッチなしシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	19.39	30.67	12.76	3.87
ノッチありシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	2.95	4.26	2.31	0.41

2.4.3.2.2.2. 結果

表 2-4-3-8 に PLS 回帰分析の結果を示す。ここでは実測値と予測値の決定係数に加え、Calibration および Validation の標準誤差 (Standard Error of Calibration/Validation、SEC/SECV) を個々の予測精度の指標とした。また単位の異なる目的変数間の予測精度を比較するため、目的変数の標準偏差と SECV の比 (Ratio of Performance to Deviation, RPD) を用いてモデルを評価した。すべての中で最も精度よく予測できたのは比重であった。次いで曲げ強度、曲げ弾性率の予測精度が高く、引張強度、引張弾性率、MFR と続いた。引張特性については、強度および弾性率は精度よく予測ができたが、最大点および破断点伸び率の予測精度は高くなかった。衝撃強度も比較的予測精度が低かった。

表 2-4-3-8 PLS 回帰分析による予測モデルの精度（説明変数：CF の特徴＋添加率）

目的変数	n	潜在変数	R^2_c *1	R^2_v *2	SEC*3	SECV*4	RPD*5
曲げ強度 (MPa)	112	6	0.92	0.89	1.90	2.19	3.15
曲げ弾性率 (GPa)	112	6	0.93	0.90	0.18	0.20	3.33
引張強度 (MPa)	112	6	0.90	0.86	1.46	1.67	2.81
引張最大点伸び率 (%)	112	6	0.68	0.55	0.23	0.27	1.53
引張破断点伸び率 (%)	112	6	0.75	0.67	0.25	0.29	1.79
引張弾性率 (GPa)	112	6	0.90	0.86	0.18	0.21	2.77
比重 (-)	112	6	0.96	0.94	0.01	0.01	4.26
MFR (230°C) (g/10min.)	112	6	0.88	0.84	5.26	6.15	2.58
ノッチなしシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	6	0.84	0.79	1.48	1.71	2.26
ノッチありシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	6	0.63	0.51	0.24	0.28	1.47

*1 キャリブレーションの決定係数

*2 バリデーションの決定係数

*3 キャリブレーションの標準誤差

*4 バリデーションの標準誤差

*5 目的変量の標準誤差/SECV

図 2-4-3-9 に PLS 回帰モデルによる予測値と実測値の散布図を示す。精度の高いモデルでは実測値と予測値の誤差が小さいためプロットが $y = x$ の近くに収束する。表 2-4-3-8 より予測精度の高かった目的変数は、いずれも CF 添加率が主要な要因であることが分かった。予測精度の低い引張の伸び率や衝撃強度は、CF 添加率の大小にあまり影響を受けていないことが明らかとなった。

図 2-4-3-10 に PLS 回帰係数のマッピングを示す。PLS 回帰係数は説明変数から目的変数を予測する場合の重みづけであることから、目的変数の予測にどの説明変数が寄与しているのかを評価することができる。回帰係数が正の場合は説明変数の増加が目的変数の増加に寄与し、負の場合は説明変数が増加すると目的変数は低下することを意味する。図 2-4-3-10 の通り、引張の伸び率と衝撃強度以外は CF 添加率の影響が際立って大きいことが明らかであった。このことは図 2-4-3-9 の結果とも一致する。MFR を除き、CF 添加率の増加は成型物の物性に正の影響を及ぼしていることが明らかとなった。嵩比重も目的変数の推定に寄与していたが、ほとんどの場合において CF 添加率とは逆の影響を及ぼした。そのほかの特徴パラメータの影響は目的変数によって様々であった。

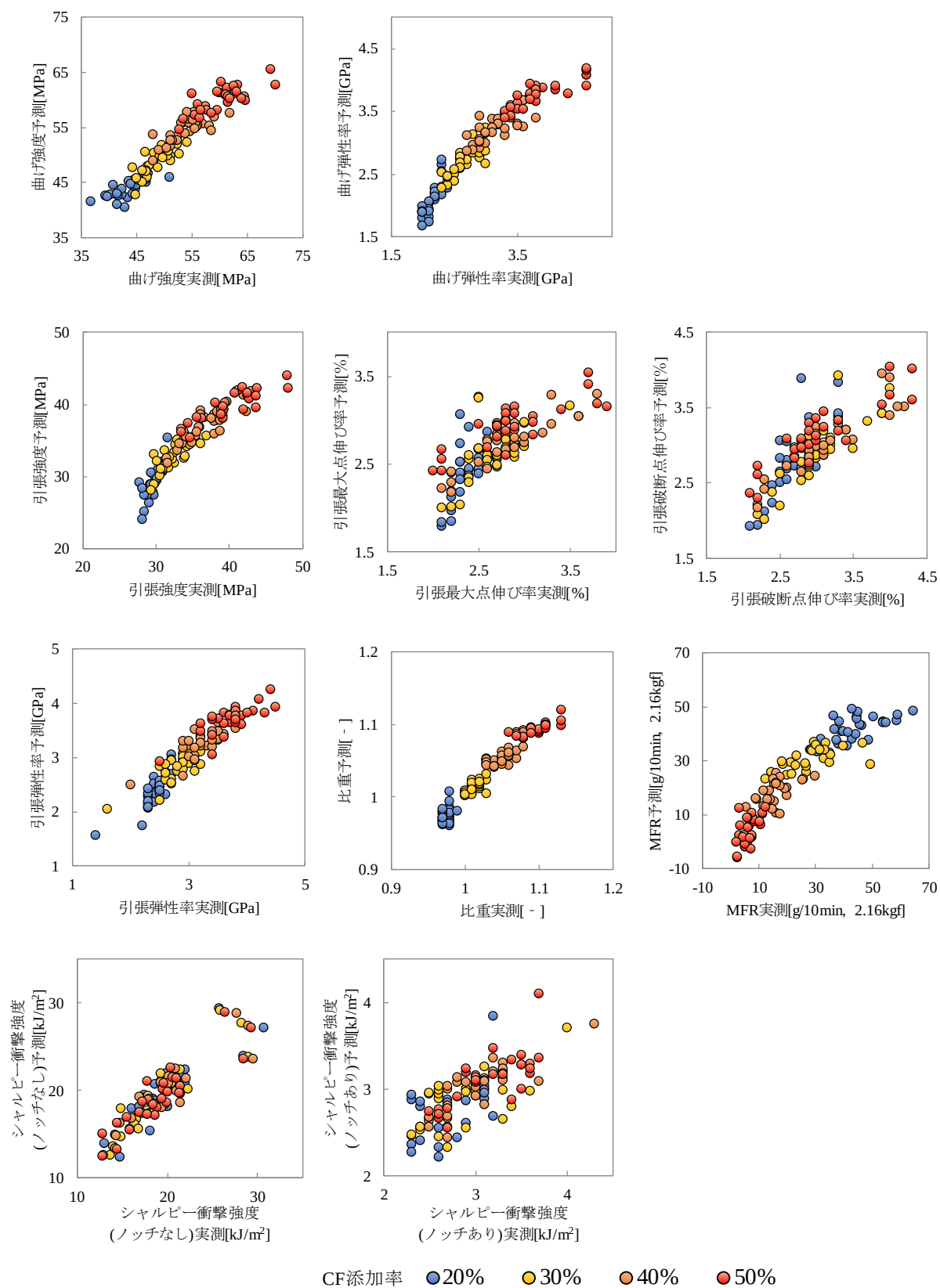


図 2-4-3-9 PLS 回帰分析による予測値と実測値の関係
(説明変数：CF の特徴＋添加率)

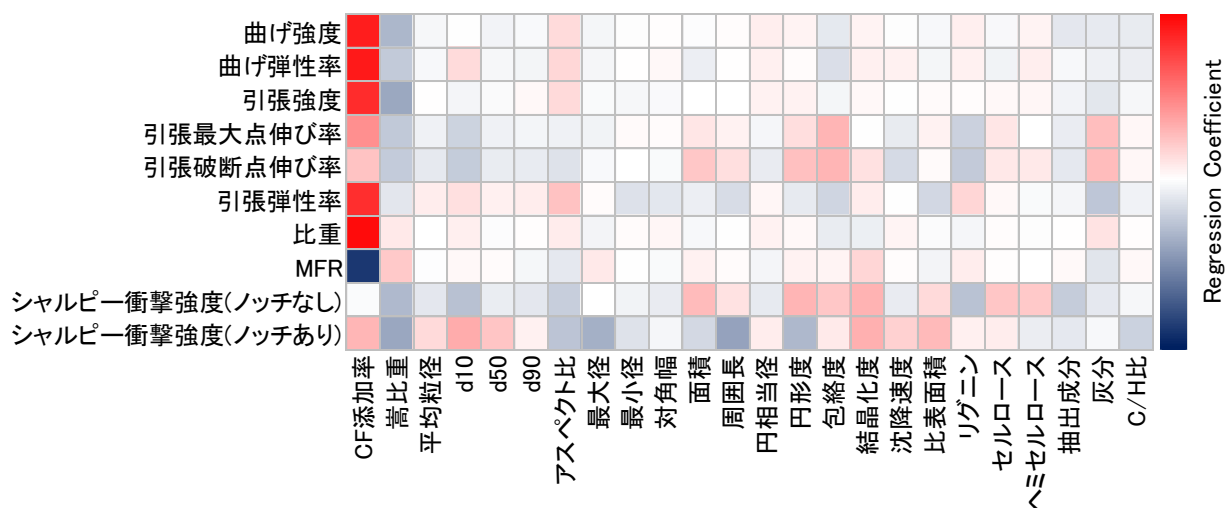


図 2-4-3-10 各目的変数における PLS 回帰係数のマッピング

これらのパラメータの影響を総合的に評価するため、式 (24) を用いて各特徴パラメータの重みづけ根二乗平均回帰係数 r_c を算出した。

$$r_c = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n R_{vi}^2 r_{ci}^2}{n}} \quad (24)$$

n は目的変数の数 (10)、 R_{vi}^2 は i 番目の目的変数における PLS モデルの決定係数、 r_{ci}^2 は i 番目の目的変数における c 番目の説明変数の回帰係数の二乗である。

図 2-4-3-11 に重みづけ根二乗平均回帰係数の一覧を示す。すべての目的変数の予測に最も寄与していたのは CF 添加率で、次いで嵩比重、包絡度、アスペクト比、10%分位径の順に全体に寄与していることが示された。

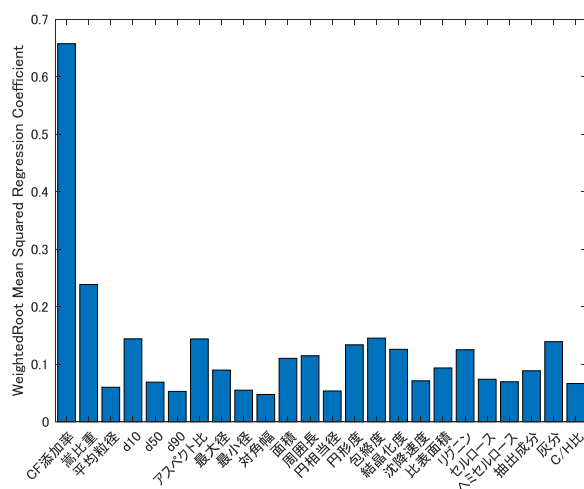


図 2-4-3-11 重みづけ根二乗平均回帰係数

2.4.3.2.3. 近赤外分光分析を用いた機械的特性の予測

前項で CF の特徴パラメータから成型物の物性を予測できることが示された。このことは、CF の特徴パラメータが成型後の品質を管理する上で重要なパラメータであることを示している。しかしながら、これらのパラメータは粒度分布測定、画像測定、沈降試験、化学分析と様々な工程が必要なため、現場における品質管理手法としては現実的ではない。そこで、これらの項目を近赤外分光分析で代替可能であるか検討した。

2.4.3.2.3.1. 方法

28 種類の CF の拡散反射スペクトルを波長分散型分光光度計（SHIMADZU UV-3600Plus, 島津製作所）で測定した。試料をあらかじめ 20 °C、65% RH で 3 週間以上調湿してから、φ27 mm × 4 mm の試料ホルダに充填（0.4 – 1.0 g）し、ガラス板で表面を覆って測定した。測定波長範囲は 1000 – 2500 nm、波長間隔は 1 nm 間隔とし、1 試験体につき 3 回測定して平均スペクトルを得た。

測定したスペクトルは標準正規化（Standard Normal Variate, SNV）した。このスペクトルデータと CF 添加率、嵩比重を説明変数とし、成型物の物性を目的変数として PLS 回帰分析を行った。なお、前処理として説明変数のオートスケールリングを行った。

2.4.3.2.3.2. 結果

図 2-4-3-12 に CF の近赤外拡散反射スペクトル（SNV 処理後）と吸収バンドの帰属¹⁾を示す。SNV 処理は一般にスペクトルのベースラインを除去する。量産紙粉以外は SNV 処理によってベースラインのばらつきが概ね除去された。1450 nm 付近および 1930 nm の大きな 2 つの山はいずれも OH によるもので、1450 nm 付近は水を含む複数の OH 伸縮振動の第 1 倍音、1930 nm は水の OH 非対称伸縮振動と変角振動の結合音による吸収である。CF のスペクトルにおいて 2100-2140 nm 付近に大きなピークが認められるが、セルロースおよび量産紙粉ではやや低波長側にシャープなピークがあるのに対し、その他ではブロードなピークになっている。これは木粉において、ヘミセルロースの CH 伸縮振動と CC 伸縮振動の結合音がセルロースの OH 伸縮振動と変角振動の結合音に重畳しているためであると考えられる。

参考文献

1) Schwanninger M, Rodrigues JC, Fackler K. A Review of Band Assignments in near Infrared Spectra of Wood and Wood Components. *Journal of Near Infrared Spectroscopy*. 2011;19(5):287-308.

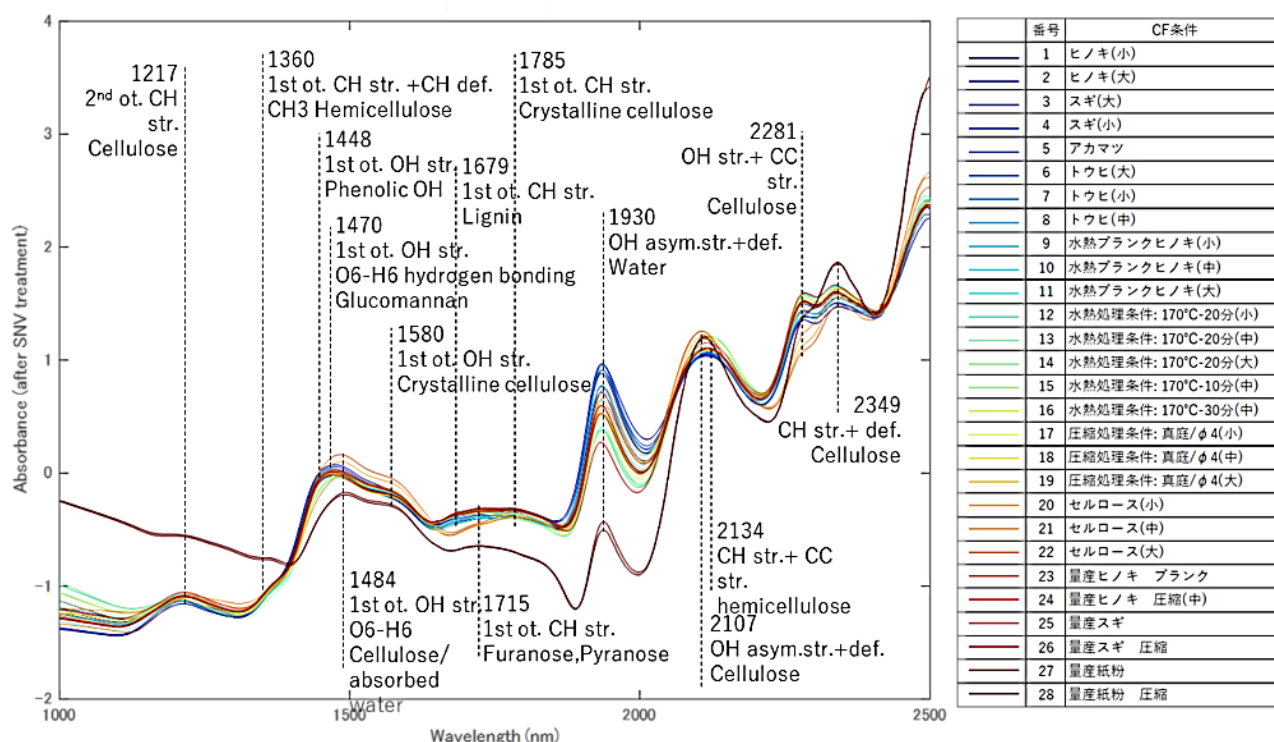


図 2-4-3-12 CF の近赤外拡散反射スペクトル (SNV 処理)

表 2-4-3-9 に近赤外スペクトル、嵩比重および CF 添加率を説明変数に用いた PLS 回帰モデルの予測精度を示す。近赤外スペクトルを使用しても、CF の特性値を用いた場合とほぼ同等の推定精度が得られた。

表 2-4-3-9 PLS 回帰分析による予測モデルの精度
(説明変数：スペクトル＋嵩比重＋添加率)

目的変数	n	潜在変数	R^2_c *1	R^2_v *2	SEC*3	SECV*4	RPD*5
曲げ強度 (MPa)	112	8	0.92	0.90	1.82	2.12	3.26
曲げ弾性率 (GPa)	112	8	0.93	0.90	0.18	0.20	3.34
引張強度 (MPa)	112	8	0.90	0.88	1.39	1.58	2.96
引張最大点伸び率 (%)	112	8	0.65	0.51	0.23	0.28	1.49
引張破断点伸び率 (%)	112	8	0.77	0.68	0.24	0.28	1.84
引張弾性率 (GPa)	112	8	0.93	0.90	0.15	0.18	3.30
比重 (-)	112	8	0.96	0.94	0.01	0.01	4.42
MFR (230°C) (g/10min.)	112	8	0.89	0.85	5.07	5.89	2.69
ノッチなしシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	8	0.84	0.78	1.49	1.74	2.22
ノッチありシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	112	8	0.62	0.48	0.24	0.28	1.45

*1 キャリブレーションの決定係数

*2 バリデーションの決定係数

*3 キャリブレーションの標準誤差

*4 バリデーションの標準誤差

*5 目的変量の標準誤差/SECV

図 2-4-3-13 に PLS 回帰モデルによる予測値と実測値の散布図を示す。CF の特徴パラメータを説明変数に用いたモデル（図 2-4-3-9）とおおむね同様の結果となった。ここで、同じ散布図を CF の種類（ヒノキ、スギ、アカマツ、セルロース、紙粉）で塗り分けたものを図 2-4-3-14 に示す。ここでは同じ種類の CF について、粒径や圧縮、水熱処理の有無などを区別していないことに注意されたい。図 2-4-3-14 より、引張最大点伸び率や破断点伸び率においては、アカマツとセルロースで予測ができていないことが明らかとなった。また引張弾性率では量産紙粉のプロットが上下 2 グループに分かれているように見える。これは圧縮の有無によるものであり、量産紙粉圧縮品の引張弾性率は実測値に比べ低く予測された。量産紙粉の引張弾性率は、同じ添加率の非圧縮紙粉に比べて高かったが、SNV 処理によって 2 つのスペクトルにほとんど違いがなくなってしまったことが原因と考えられた。

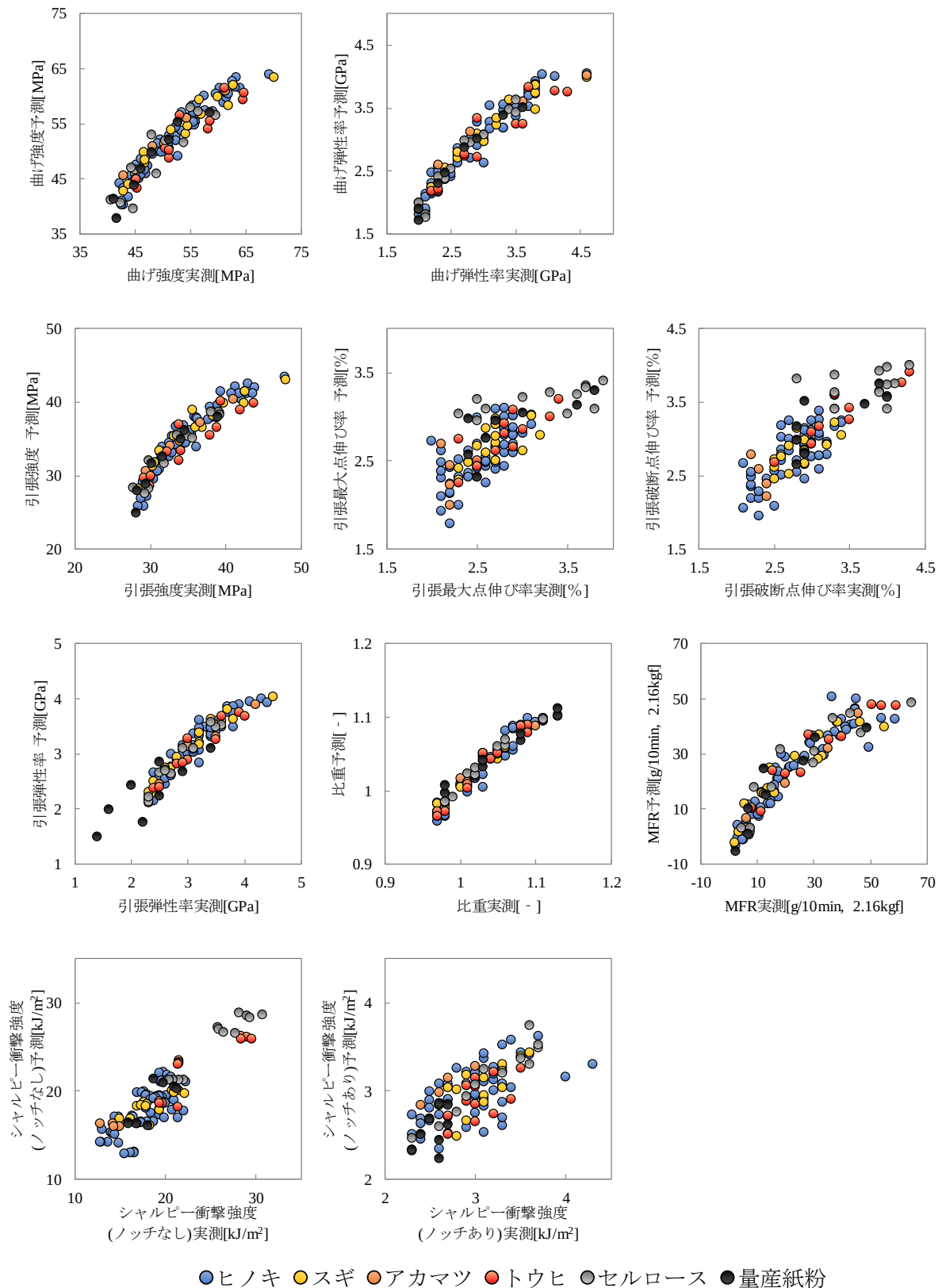


図 2-4-3-14 PLS 回帰分析による予測値と実測値の関係【樹種の違い】
(説明変数：スペクトル＋嵩比重＋添加率)

前述の通り、曲げや引張に代表される多くの物性は、CF 添加率に大きく影響される。そこで、PLS 回帰において、CF 添加率、嵩比重と近赤外スペクトルがそれぞれどの程度予測に寄与しているのかを評価するため、回帰係数における CF 添加率、嵩比重と近赤外スペクトルそれぞれのノルムを算出した（表 2-4-3-10）。予測精度の高い曲げ性能や引張強度・弾性率、比重、MFR では CF 添加率の寄与が非常に高く、次いで近赤外スペクトル、嵩比重の順であった。前述の通り、曲げや引張強度、比重等に最も大きな影響を及ぼすのは CF 添加率であるが、同一添加率内における変動を説明するためには、嵩比重と近赤外スペクトルが重要であることが示された。予測において近赤外スペクトルの寄与が大きかったのは引張の各種伸び率および衝撃強度であったが、いずれも予測精度は高くなかった。PLS 回帰分析では、説明変数（潜在変数）と目的変数の間に線形の関係が存在することが前提である。引張の伸び率や衝撃強度は、CF 添加率だけでなく、スペクトルの変動に対しても線形ではなかったことが考えられる。

表 2-4-3-10 PLS 回帰ベクトルのノルム

目的変数	CF添加率	嵩比重	近赤外スペクトル
曲げ強度 (MPa)	0.898	0.051 (0.057)	0.181 (0.202)
曲げ弾性率 (GPa)	0.907	0.019 (0.021)	0.117 (0.129)
引張強度 (MPa)	0.843	0.075 (0.089)	0.229 (0.271)
引張最大点伸び率 (%)	0.512	0.103 (0.201)	0.505 (0.985)
引張破断点伸び率 (%)	0.308	0.056 (0.182)	0.662 (2.149)
引張弾性率 (GPa)	0.847	0.006 (0.007)	0.286 (0.337)
比重 (-)	0.960	0.023 (0.024)	0.079 (0.083)
MFR (230℃) (g/10min.)	0.905	0.106 (0.117)	0.226 (0.250)
ノッチなしシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	0.032	0.016 (0.485)	0.750 (23.248)
ノッチありシャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	0.465	0.229 (0.493)	0.659 (1.417)

()内はCF添加率のノルムに対する比

2.4.3.2.4. 近赤外分光分析による CF フィラーの識別の可能性

前項の検証にて、CF の特徴パラメータの代わりに近赤外スペクトル、嵩比重、CF 添加率を用いることで成型後の物性が予測できることが明らかとなった。これは近赤外スペクトル測定によって、CF の種類に関わらず成型物の簡易評価が可能なことを示している。一方で、単一の CF、製造条件であれば、成型後の物性は CF 添加率にのみ依存するはずである。CF ごとに添加率と各種物性の関係が分かっているのであれば、近赤外スペクトルを物性予測に用いるのではなく、CF の識別に利用することも品質管理の手法として有用である。そこで、分光スペクトルイメージを用いた CF の識別の可能性について検討した。

2.4.3.2.4.1. 方法

近赤外ハイパースペクトルカメラ (SIS-SWIR、エバ・ジャパン) で CF の近赤外分光画像を測定した。測定波長範囲は 1250 – 2500 nm、波長間隔は約 11 nm である。CF は φ20 mm×深さ 10 mm 程度のガラス容器に充填して撮影した (図 2-4-3-15 参照)。得られたハイパー

スペクトルデータは 2500 nm の分光反射画像を用いて背景と試料部位を除去した。抽出された CF の領域から、CF ごとの平均スペクトルを計算し、28 本の平均スペクトルを説明変数として主成分分析を行った。得られたローディングベクトルをハイパースペクトルデータの各 픽セルに適用し、スコア画像を算出した。

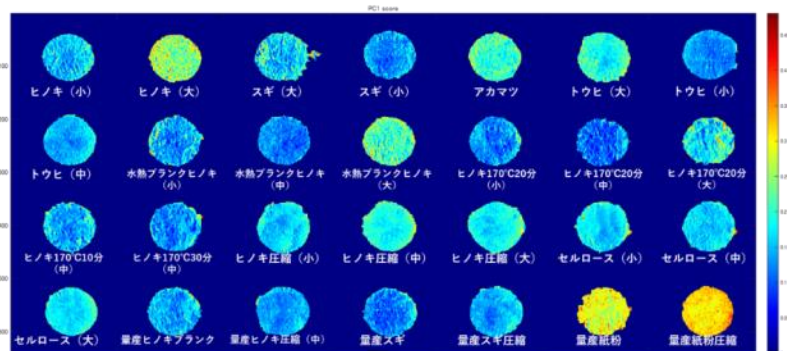


図 2-4-3-15 分光画像測定に供した CF のカラー画像

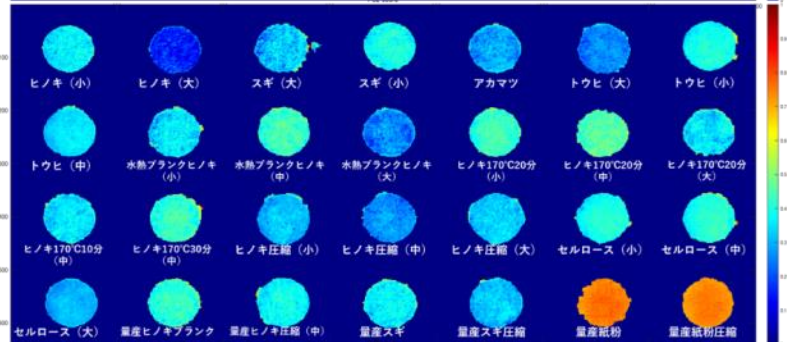
2.4.3.2.4.2. 結果

図 2-4-3-16 に第 1 – 第 5 主成分までのスコア画像を示す。なお、スコアは最大が 1、最小が 0 になるよう規格化し、最小値を青、最大値を赤で表示した。第 1 主成分スコアは量産紙粉と粒径の大きなものが高い値を示した。第 2 主成分スコアも量産紙粉で高い値を示し、第 3 主成分スコアでは粒径の大きなヒノキとアカマツが高い値を示した。第 4 主成分スコアは水熱処理条件とセルロースが高くなっていることから、水溶性成分の有無等が反映されていると考えられる。第 5 主成分では水熱処理条件が高く、セルロースは低い値を示した。なお、それぞれの主成分の寄与率は第 1 主成分から順に 81.4、14.9、2.15、0.94、0.40%であった。

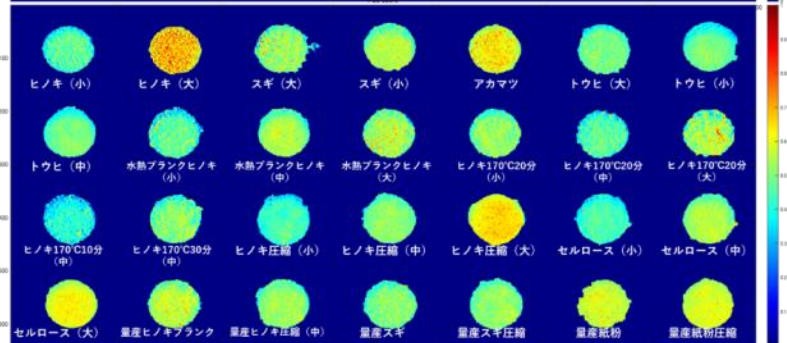
第1主成分



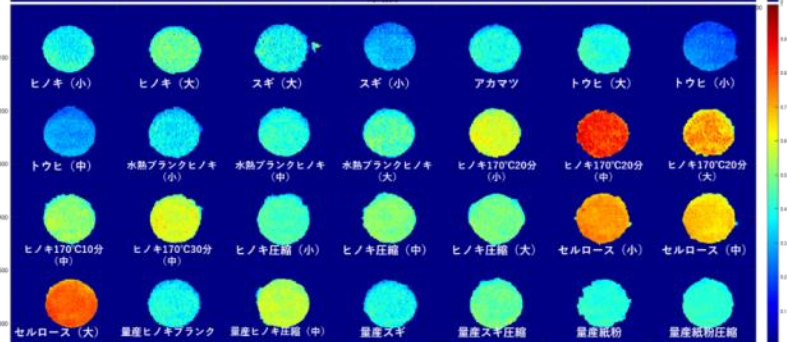
第2主成分



第3主成分



第4主成分



第5主成分

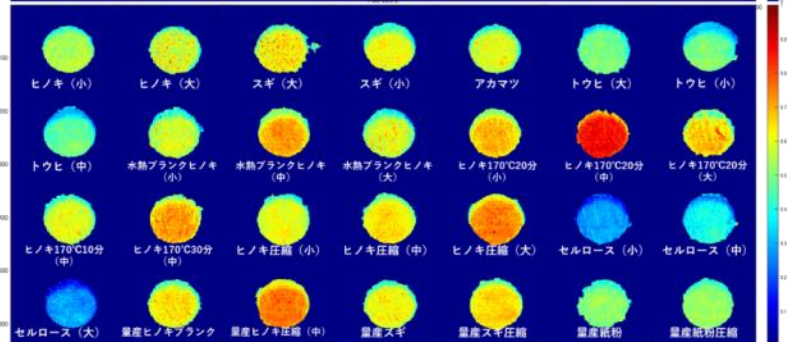


図 2-4-3-16 CF の主成分スコア画像

各々の主成分スコア画像単体からすべての CF を識別することは困難であるが、複数のスコア値を組み合わせることで、より詳細に CF の識別が可能になると考えられる。ところでフルカラーデジタル画像は、R、G、B の 3 チャンネルの画像の重ね合わせで表現される。そこで、RGB の各チャンネルに主成分スコアを当てはめてカラー画像を構築した。図 2-4-3-17 にその一例を示す。この画像は R に第 5 主成分、G に第 4 主成分、B に第 2 主成分スコア画像を当てはめたものである。スギ（小）とトウヒ（小）、トウヒ（中）などのようにこの組み合わせでは識別できないものがあるが、セルロース、紙粉、木粉だけでなく、圧縮、水熱処理の有無が異なる色で表現された。以上より、近赤外分光分析によって CF の識別が可能であることが示された。



図 2-4-3-17 主成分スコアによるカラー画像
(R:第 5 主成分、G:第 4 主成分、B:第 2 主成分)

2.4.3.2.5. 統計解析による相関性検証のまとめ

本事業で使用した 28 種類の CF の各種特徴について、統計解析による相関性を検証した結果、CF の嵩比重、粒径、粒子の形態、沈降速度、化学成分に関する 23 個の特徴パラメータと CF 添加率から成型後の物性を予測することができた。また予測に大きく寄与するのは CF 添加率で、次いで嵩比重、包絡度、アスペクト比、10%分位径であった。また、これらの CF の特徴パラメータを近赤外分光スペクトルで代替した場合でも、同等の精度で成型の物性を予測することができた。さらに、近赤外分光分析によって、CF の種類の識別が可能であることが示された。以上より、CF およびこれを用いた成型品の品質管理手法として近赤外分光分析が有効であることが示された。

2.4.4. まとめ

本項では、CF 添加 PP の開発負荷軽減を目的に原料 CF の性状と CF 添加 PP の各種機械特性の相関性について調査した。まず、「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」で作製した圧縮処理 CF において、各種機械特性への影響を調査並びに耐久性評価として熱特性、耐候性に関する調査を実施した。また、これまで得られた各種 CF の性状と CF 添加 PP の各種機械特性をマッピングすることによって CF 性状と CF 添加 PP の機械特性の傾向を確認し、更に相関性検証として PLS 解析による統計解析手法を用いた。その結果、CF 添加 PP の機械特性に影響の大きい CF の性状を抽出し、簡易評価項目として嵩比重測定、近赤外分光分析を抽出することができた。これにより、原料 CF の莫大な情報の中から測定が容易かつ機械特性に影響度が高い特性を絞ることができた。

2.5. 製品検証の実施

2.5.1. 輸送・包装部材検証

これまで CF とその PP 複合材に関して種々のデータベース構築を進めてきた。その最終的な目的は、プラスチック市場での CF 利用を促進することにある。そこで、CF 添加 PP の用途適応を検証することによって、現状のプラスチック用途への CF 添加 PP の使用可能性について検証することとした。本項では、輸送包装部材であるサイドプロテクターへの用途適正について検証した。CF 添加 PP は、PP に対して強度、弾性率に優れるため、サイドプロテクターを薄肉化できる可能性がある。薄肉化をすることで、コストおよび使用樹脂量の削減を期待できる。そこで、サイドプロテクターの肉厚を現行の 2.00mm から 1.50mm と 1.25mm に薄くした場合の、圧縮強度を想定した解析と実際の圧縮試験、落下試験を実施した。また、容器包装材としての適用性検証として、衛生容器に係る溶出試験及びカビ抵抗性試験を実施した。



図 2-5-1-1 サイドプロテクター
高機能フィルムや医薬包装、食品用フィルムの
側面保護や中吊り（宙吊り）梱包で使用される。

2.5.1.1. 製品評価

2.5.1.1.1. 配合仕様とその機械特性比較

今回の試験した配合仕様を表 2-5-1-1 に示す。CF は、「2.3.1.耐衝撃性能向上効果の検証」にて用いた、圧縮ヒノキ、圧縮紙粉、圧縮ヒノキ（微粉）の 3 種類を検討した。耐衝撃性向上を目的として、 α オレフィンコポリマーを 0、10、20% 添加した。なお、昨年度の結果及び今年度の物性評価から、CF 配合量は 40% に統一した。従来材料との機械特性比較結果を表 2-5-1-2 に示す。また、本配合を用いて成形したサイドプロテクターの重量を表 2-5-1-3 に示す。CF 添加 PP は比重が重いため、肉厚が 2.00mm の際は PP（現行品）よりも重くなるが、CF が 40% 含まれるため使用樹脂量としては減少する。薄肉化することで、肉厚が 2.00mm の現行品よりも軽量化が可能であった。

表 2-5-1-1 配合仕様

CF		α オレフィン コポリマー	サイドプロテクター肉厚[mm]		
種類	配合量[%]	添加量[%]	2.00	1.50	1.25
PP (現行品)	-	-	○	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	-	○	○
	40	10	○	○	○
	40	20	○	○	○
圧縮紙粉	40	0	-	○	○
	40	10	○	○	○
	40	20	○	○	○
圧縮ヒノキ(微粉)	40	0	-	○	○
	40	10	○	○	○
	40	20	○	○	○

表 2-5-1-2 現行材料との機械特性比較

		現行材料	圧縮ヒノキ40%			圧縮紙粉40%			圧縮ヒノキ(微粉)40%		
			α オレフィン コポリマー0%	α オレフィン コポリマー10%	α オレフィン コポリマー20%	α オレフィン コポリマー0%	α オレフィン コポリマー10%	α オレフィン コポリマー20%	α オレフィン コポリマー0%	α オレフィン コポリマー10%	α オレフィン コポリマー20%
曲げ強度	MPa	28.1	45.9	31.1	19.8	42.5	29.3	18.2	48.5	36.3	18.6
曲げ弾性率	GPa	1.00	2.64	1.89	1.28	2.45	1.77	1.12	2.66	2.18	1.10
引張強度	MPa	25.7	34.9	26.5	18.9	33.5	25.7	18.7	37.3	29.7	16.9
シャルピー衝撃強度 (ノッチなし)	kJ/m ²	NB	17.4	25.9	33.6	14.9	20.3	39.0	28.3	37.9	NB
シャルピー衝撃強度 (ノッチ付き)	kJ/m ²	11.2	2.1	4.6	9.1	2.0	4.5	9.0	2.2	3.6	9.2

表 2-5-1-3 サイドプロテクター製品重量

CF		α オレフィン コポリマー	製品重量 [g]		
			サイドプロテクター肉厚[mm]		
種類	配合量[%]	添加量[%]	2.00	1.50	1.25
PP (現行品)	-	-	136	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	-	125	113
	40	10	162	126	112
	40	20	165	128	114
圧縮紙粉	40	0	-	128	114
	40	10	165	128	114
	40	20	165	128	114
圧縮ヒノキ(微粉)	40	0	-	125	112
	40	10	162	126	112
	40	20	162	125	113

2.5.1.1.2. 薄肉化シミュレーション

2.5.1.1.2.1. 試験方法

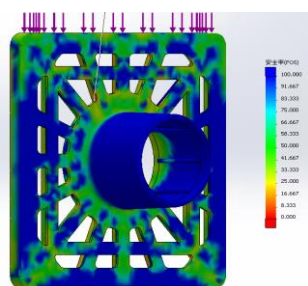
肉厚 2.00 mm、1.50 mm、1.25 mm それぞれでサイドプロテクターの上辺に均等に荷重をかけた際の変位量と変位の分布をシミュレーションし可視化した。また、荷重と変形量から安全率を算出し、現行品に近い仕様を検討した。

2.5.1.1.2.2. 試験結果

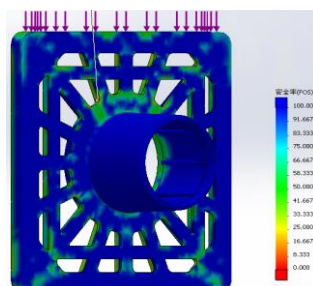
試験結果を表 2-5-1-4 および図 2-5-1-2 に示す。 α オレフィンコポリマーの添加量が少ない配合では、肉厚を薄くしても現行品よりも安全率が高い事が確認できた。

表 2-5-1-4 薄肉化シミュレーション結果

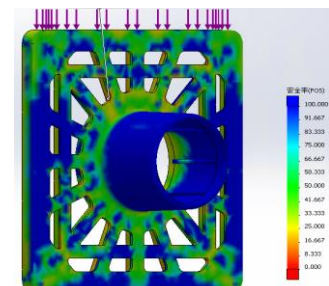
CF		α オレフィン コポリマー	サイドプロテクター肉厚 [mm]					
			2.00		1.50		1.25	
種類	配合量[%]	添加量[%]	変位置量	安全率	変位置量	安全率	変位置量	安全率
PP（現行品）	-	-	0.61	8.3	-	-	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	-	-	0.36	13.3	0.44	10.0
	40	10	0.29	12.2	0.50	9.0	0.62	6.8
	40	20	0.42	7.8	0.74	5.7	0.92	4.5
圧縮紙粉	40	0	-	-	0.39	12.3	0.48	9.2
	40	10	0.31	11.5	0.54	8.5	0.66	6.4
	40	20	0.49	7.1	0.85	5.3	1.04	4.0
圧縮ヒノキ (微粉)	40	0	-	-	0.36	14.1	0.46	10.5
	40	10	0.25	14.2	0.44	10.5	0.53	7.9
	40	20	0.49	7.3	0.86	5.4	1.06	4.0



PP（現行品）
肉厚：2.00mm



圧縮ヒノキ（微粉）40%
 α オレフィンコポリマー10%
肉厚：2.00mm



圧縮ヒノキ（微粉）40%
 α オレフィンコポリマー20%
肉厚：2.00mm

図 2-5-1-2 薄肉化シミュレーション結果(一部)

2.5.1.1.3. 圧縮試験

2.5.1.1.3.1. 試験方法

サイドプロテクターを立てた状態で、上部より圧縮させ、その際の耐荷重と割れについて確認を行った。



図 2-5-1-3 圧縮試験時の様子

2.5.1.1.3.2. 試験結果

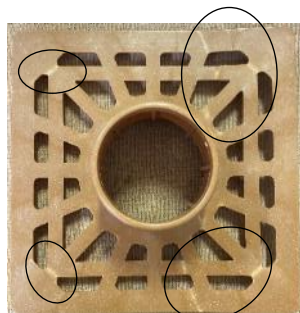
圧縮試験結果を表 2-5-1-5 に示す。

表 2-5-1-5 圧縮試験結果

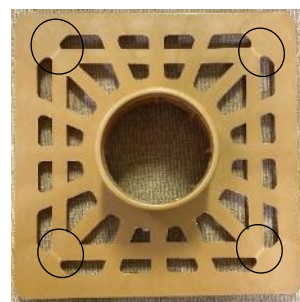
CF		α オレフィン コポリマー	サイドプロテクター肉厚 [mm]					
			2.00		1.50		1.25	
種類	配合量 [%]	添加量 [%]	最大荷重 [N]	状態	最大荷重 [N]	状態	最大荷重 [N]	状態
PP(現行品)	-	-	2439	-	-	-	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	-	-	3685	破壊	2914	白化、割れ
	40	10	3244	白化	2590	白化、割れ	1955	白化
	40	20	1910	白化	1439	白化	1117	白化
圧縮紙粉	40	0	-	-	3552	破壊	2613	白化、割れ
	40	10	2950	白化	2413	白化	1814	白化
	40	20	1806	白化	1448	白化	1078	白化
圧縮ヒノキ (微粉)	40	0	-	-	3589	白化、割れ	2900	白化、割れ
	40	10	3411	白化、割れ	2549	白化	1993	白化
	40	20	2163	白化	1589	白化	1237	白化



破壊



白化、割れあり



白化あり

図 2-5-1-4 試験後のサイドプロテクターの状態例

α オレフィンコポリマー添加なしでは、破壊もしくは割れが発生しており、破壊の場合は破片が巻取りのフィルムへ混入する可能性があるため、サイドプロテクターとしての機能を果たされていない。しかし、 α オレフィンコポリマーを添加することによって、最大荷重は低くなるが、白化や割れで収まっており、破片混入のリスクが低くなっている。

シミュレーションでは変位量と安全率が向上していても、耐荷重を超えた後の状態（割れが発生するかどうか）までは予測できておらず、一方向からの圧縮のみでは、耐衝撃性が反映されていない。圧縮試験では、 α オレフィンコポリマーの添加によって肉厚を薄くしても白化で留まっており、落下試験に耐えうる可能性がある。

2.5.1.1.4. 落下試験

2.5.1.1.4.1. 試験方法

各配合仕様で成型試作したサイドプロテクターをテスト用のロールに取り付け、梱包する（図 2-5-1-5）。落下試験機（図 2-5-1-6）にて、落下高さを 30 cm から 10 cm 毎に上げて落下していき、落下後のサイドプロテクターの状態を確認した。サイドプロテクターの状態について表 2-5-1-6 に示すように 6 段階に分け、目視にて判断した。



ロール重量：約 12 kg
 段ボール仕様：W フルート
 両サイドの隙間を埋めるため、W フルートの板段ボールを挿入

図 2-5-1-5 落下試験 梱包方法

表 2-5-1-6 落下後のサイドプロテクターの状態と数値による分類

評点	サイドプロテクターの状態
1	白化なし
2	白化あり
3	クラック小
4	クラック大
5	角部変形
6	破壊



図 2-5-1-6 落下試験機



白化



クラック大



角部変形



破壊

図 2-5-1-7 落下試験後のサイドプロテクターの状態

2.5.1.1.4.2. 試験結果

落下試験の結果を表 2-5-1-7～2-5-1-9 に示す。

肉厚 2.0 mm では、圧縮ヒノキ（微粉）で落下高さ 80 cm でも破壊しておらず、 α オレフィンコポリマーの添加効果がみられる。70 cm 落下で破壊した圧縮ヒノキにおいては、梱包形態や巻取りフィルムの大きさ（重量）によっては破壊しない可能性もある。

表 2-5-1-7 肉厚 2.0 mm での落下試験結果

CF		α オレフィン コポリマー	落下高さ [cm]					
種類	配合量[%]	添加量[%]	30	40	50	60	70	80
PP (現行品)	-	-	1	2	4	5	5	5
圧縮ヒノキ	40	0	-	-	-	-	-	-
	40	10	1	2	2	4	6	-
	40	20	1	5	5	5	6	-
圧縮紙粉	40	0	-	-	-	-	-	-
	40	10	2	5	5	6	-	-
	40	20	1	2	2	6	-	-
圧縮ヒノキ(微粉)	40	0	-	-	-	-	-	-
	40	10	2	5	5	5	5	5
	40	20	2	2	2	2	5	5

肉厚を 1.5 mm にすると、圧縮ヒノキ（微粉）の α オレフィンコポリマー20%添加で落下高さ 80 cm まで到達しているが、破壊が起きており、薄肉による強度低下によると考えられる。

表 2-5-1-8 肉厚 1.5 mm での落下試験結果

CF		α オレフィン コポリマー	落下高さ [cm]					
種類	配合量[%]	添加量[%]	30	40	50	60	70	80
PP (現行品)	-	-	-	-	-	-	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	6	-	-	-	-	-
	40	10	1	6	-	-	-	-
	40	20	5	5	5	6	-	-
圧縮紙粉	40	0	6	-	-	-	-	-
	40	10	2	2	5	5	6	-
	40	20	5	6	-	-	-	-
圧縮ヒノキ(微粉)	40	0	1	5	6	-	-	-
	40	10	2	2	5	6	-	-
	40	20	1	1	2	5	5	6

肉厚 1.25 mm では、全体的に破壊までの落下高さが低くなっているが、圧縮ヒノキ（微粉）+ α オレフィンコポリマー20%添加では、70 cm 高さでの破壊であるため、梱包形態や巻取りフィルムの大きさ（重量）によっては耐えうる可能性がある。

表 2-5-1-9 肉厚 1.25 mm での落下試験結果

CF		αオレフィン コポリマー	落下高さ [cm]					
種類	配合量[%]	添加量[%]	30	40	50	60	70	80
PP (現行品)	-	-	-	-	-	-	-	-
圧縮ヒノキ	40	0	6	-	-	-	-	-
	40	10	5	5	6	-	-	-
	40	20	2	5	6	-	-	-
圧縮紙粉	40	0	1	6	-	-	-	-
	40	10	5	5	6	-	-	-
	40	20	1	5	5	6	-	-
圧縮ヒノキ(微粉)	40	0	6	-	-	-	-	-
	40	10	1	2	6	-	-	-
	40	20	2	5	5	5	6	-

2.5.1.1.5. 製品評価まとめ

シミュレーション、圧縮試験、落下試験での結果をまとめると、表 2-5-1-10 のようになる。なお、シミュレーションは変形量と安全率が現行品と同等以上で○、どちらか一方が同等以上で△、圧縮試験では白化のみで○、白化や割れまでは△、落下試験は 80 cm 落下に耐えうるものを○（白化や割れは可）、80 cm 落下で破壊は△、70 cm 落下で破壊は△×としている。

表 2-5-1-10 製品評価における試験結果一覧
(シミュレーションは解析と表示)

CF		αオレフィン コポリマー	サイドプロテクター肉厚 [mm]								
種類	配合量 [%]	添加量 [%]	2.00			1.50			1.25		
			解析	圧縮	落下	解析	圧縮	落下	解析	圧縮	落下
PP(現行品)	-	-	—	—	—	—	—	—	—	—	—
圧縮ヒノキ	40	0	—	—	—	○	×	×	○	△	×
	40	10	○	○	△×	○	△	×	×	○	×
	40	20	△	○	△×	×	○	×	×	○	×
圧縮紙粉	40	0	—	—	—	○	×	×	○	△	×
	40	10	○	○	×	○	○	△×	×	○	×
	40	20	△	○	×	×	○	×	×	○	×
圧縮ヒノキ (微粉)	40	0	—	—	—	○	△	×	○	△	×
	40	10	○	△	○	○	○	×	△	○	×
	40	20	△	○	○	×	○	△	×	○	△×

輸送包装材では強度も必要であるが、耐衝撃性の重要度は非常に高い。CF 添加によって強度向上、 α オレフィンコポリマー添加によって耐衝撃性が向上した。このことで、薄肉化の検証を行ったところ、CF：圧縮ヒノキ（微粉）、CF 配合量：40%、 α オレフィンコポリマー添加量：20%の仕様は薄肉化が可能であると考えられる。 α オレフィンコポリマー添加の他の仕様においても、梱包形態や中の商品（フィルムの巻取り）の仕様によっては対応可能となり得る。

2.5.1.2. その他容器包装に関する評価試験

2.5.1.2.1. 器具及び容器包装の衛生試験

本事業では添加材として CF を利用していることから、器具及び容器包装の規格試験として圧縮処理 CF（ヒノキ）を用いた CF 添加 PP の確認試験を実施した。尚、本規格試験では合成樹脂の主成分が PP として、「合成樹脂一般規格試験」と個別規格である「ポリエチレン・ポリプロピレン規格試験」を実施した。その結果を表 2-5-1-11、表 2-5-1-12 に示す。また、CF 添加量 50%については、主成分の PP と CF 量が同量であり、「ポリエチレン・ポリプロピレン規格試験」の適用外であり、木・竹・紙製品には、食品衛生法第 18 条に基づく規格が無い為、表 2-5-1-13、表 2-5-1-14 の試験結果に示した溶出試験にて確認を実施した。「ポリエチレン・ポリプロピレン規格試験」の結果から、使用温度 100℃以下ではすべての基準をクリアする結果が得られたが、使用温度が 100℃を超える試験においては、CF40%、CF50%において過マンガン酸カリウム消費量の基準を上回る結果となった。また、木製品としての各溶出試験においては、いずれの溶出物も検出されない結果が得られた。これらの結果から、100℃以下の使用温度については、CF20%～50%の添加量、100℃以下の使用温度については、CF20%、30%の添加量であれば使用可能と考えられる結果が得られた。ただし、実際の製品利用の際には、顔料等他の添加剤も加えられることもある為、実製品の配合毎に確認が必要であると考ええる。

表 2-5-1-11 合成樹脂製の器具又は容器包装の規格試験結果（使用温度 100℃以下）

使用 温度	CF 添加量	一般規格				個別規格(ポリプロピレン)			
		材質試験		溶出試験		溶出試験			
		カドミウム	鉛	重金属	過マンガン酸 カリウム消費量	蒸発残留物 (ヘブタン)	蒸発残留物 (20%エタノール)	蒸発残留物 (水)	蒸発残留物 (4%酢酸)
				2ml/cm2 60℃、30 分	2ml/cm2 60℃、30 分	2ml/cm2 25℃、1 時間	2ml/cm2 60℃、30 分	2ml/cm2 60℃、30 分	2ml/cm2 60℃、30 分
		100 μ g/g 以下	100 μ g/g 以下	1 μ g/ml 以下	10 μ g/ml 以下	150 μ g/ml 以下	30 μ g/ml 以下	30 μ g/ml 以下	30 μ g/ml 以下
100℃ 以下	20%	○	○	○	1.1	9	<5	<5	<5
	30%	○	○	○	1.5	8	<5	<5	<5
	40%	○	○	○	2.4	9	<5	<5	<5
	50%	N.D.	N.D.	N.D.	3.2	11	<5	<5	<5

表 2-5-1-12 合成樹脂製の器具又は容器包装の規格試験結果（使用温度 100℃以上）

使用温度	CF 添加量	一般規格				個別規格(ポリプロピレン)			
		材質試験		溶出試験		溶出試験			
		カドミウム	鉛	重金属	過マンガン酸 カリウム消費量	蒸発残留物 (ヘブタン)	蒸発残留物 (20%エタノール)	蒸発残留物 (水)	蒸発残留物 (4%酢酸)
				2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 25℃,1 時間	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分
		100 μg/g 以下	100 μg/g 以下	1 μg/ml 以下	10 μg/ml 以下	150 μg/ml 以下	30 μg/ml 以下	30 μg/ml 以下	30 μg/ml 以下
100℃ 以上	20%	○	○	○	5.9	9	<5	<5	<5
	30%	○	○	○	8.6	8	<5	<5	<5
	40%	○	○	○	12	9	<5	<5	<5
	50%	N.D.	N.D.	N.D.	16	11	<5	<5	6

表 2-5-1-13 木製品としての溶出試験結果一覧（使用温度 100℃以下）

使用温度	CF 添加量	木製品としての試験							
		溶出試験							
		ヒ素	重金属	フェノール 類	ホルム アルデヒド	着色料 (4%酢酸)	着色料 (水)	着色料 (20%エタノール)	着色料 (ヘブタン)
		2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 25℃,1 時間
100℃ 以下	20%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	30%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	40%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	50%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

表 2-5-1-14 木製品としての溶出試験結果一覧（使用温度 100℃以上）

使用温度	CF 添加量	木製品としての試験							
		溶出試験							
		ヒ素	重金属	フェノール 類	ホルム アルデヒド	着色料 (4%酢酸)	着色料 (水)	着色料 (20%エタノール)	着色料 (ヘブタン)
		2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 95℃,30 分	2ml/cm2 60℃,30 分	2ml/cm2 25℃,1 時間
100℃ 以上	20%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	30%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	40%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
	50%	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

2.5.1.2.2. カビ抵抗性試験

CF 添加 PP のカビに対する抵抗性を調査した。試験には圧縮処理されたヒノキ木粉を用いた CF 添加 PP にて CF 添加量 20～50%のものをを用いた。試験方法は JIS Z 2911 : 2018 プラスチック製品の試験にて実施した。試験カビには、*Aspergillus niger*、*Penicillium pinophilum*、*Paecilomyces variotii*、*Gliricium virens*、*Chaetomium globosum* を用いた。試験胞子液は、各試験カビをポテトデキストロール寒天培地に接種し、24℃±1℃で、*Chaetomium globosum* は 14 日間、その他は 10 日間培養した。培養後、無機塩溶液を用いて、それぞれ法指数が 10⁶/mL になるように胞子液を調整し、等量ずつ混合したものとした。試験胞子液の接種及び培養は、表 2-5-1-15 に示す試験区分とした。試験の判定基準を表 2-5-1-16 に、試験結果を表 2-5-1-17 に示す。試験の結果から試料区分 I にて試料全面積の 25%未満の菌糸発育が観察された。PP 単体でもの表面に寒天培養基が与えられ

れば、菌糸の発育は観測されることが一般的に知られており、また、CF 添加量によらず菌糸発育は同程度であることから、CF 添加によりカビ抵抗性が著しく低下することは無いものと考えられる。

表 2-5-1-15 試験胞子液の接種及び培養の試験区分

試料区分 I	試験資料を無機塩寒天培地中央に置き、試験胞子液を噴霧接種して、 $24 \pm 1^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 95%以上の条件で 4 週間培養した。
試料区分 S	試験試料を無機塩寒天培地中央に置き、70%エタノールを噴霧して、 $24 \pm 1^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 95%以上の条件で 4 週間培養した。
試料区分 O	試験試料をそのまま実験室にて保存した。

表 2-5-1-16 試験結果の判定基準

菌糸の発育	結果の表示
肉眼及び顕微鏡下でカビの発育は認められない	0
肉眼ではカビの発育が認められないが、顕微鏡下で確認する	1
菌糸発育が肉眼で認めらるが、試料全面積の 25%未満	2
菌糸発育が肉眼で認めらるが、試料全面積の 25%以上 50%未満	3
菌糸発育が肉眼で認められ、試料全面積の 50%以上	4
菌糸発育は激しく、試料全面を覆っている	5

表 2-5-1-17 カビ抵抗性試験成績

CF 添加量	試料区分	培養期間	
		2 週間	4 週間
20%	I	2	2
	S	0	0
	O	0	0
30%	I	2	2
	S	0	0
	O	0	0
40%	I	2	2
	S	0	0
	O	0	0
50%	I	2	2
	S	0	0
	O	0	0

2.5.2. 複合機用部材検証

複合機（図 2-5-2-1）の内装は多様な樹脂を用いた数多くの部品から成り立ち、CF 添加 PP を用いることで化石資源由来樹脂を代替できる可能性がある。複合機向けの樹脂製内装部品において、CF 添加 PP での材料代替の可能性について検討した。検討内容としては「内装部品に求められる個別機能の検証」「複合機用部材における成形加工性の検証」「部品（トナーカートリッジ）としての検証」を実施した。テストに用いた配合を表 2-5-2-1、従来材料との機械特性比較を表 2-5-2-2 に示す。



図 2-5-2-1 複合機の例

表 2-5-2-1 成形テストに用いた配合

	圧縮ヒノキ [%]	トウヒ小※ [%]	PP [%]	APP [%]	MaPP [%]	PP ワックス [%]	顔料 MB [%]
DC-FR23		40.0	38.4	20.0	1.6		
DC-FR71	40.0		30.2	20.0	4.8	5.0	
DC-FR113	40.0		30.8	20.0	3.2	5.0	1.0

※令和 2 年度に使用した CF（平均粒子径: 45 μm ）

表 2-5-2-2 従来材料（PS）と成形テストに用いた材料の機械特性比較

		従来材料 PS	DC-FR23	DC-FR71	DC-FR113
曲げ強度	MPa	51.8	55.2	45.6	42.7
曲げ弾性率	GPa	2.33	4.43	2.92	2.86
引張強度	MPa	37.0	34.1	28.6	26.7
シャルピー衝撃 強度（ノッチなし）	kJ/m^2	50.8	18.3	15.6	14.9
シャルピー衝撃 強度（ノッチ付き）	kJ/m^2	10.8	3.0	2.6	2.6

2.5.2.1. 内装部品に求められる個別機能の検証

2.5.2.1.1. 検証方法と結果

複合機向けの樹脂製内装部品は数多くの部品から成り立っており、それぞれの部品によって求められる機能が異なる。内装部品に求められる機能についてテストピースを用いて評価した。評価内容と結果を表 2-5-2-3 に示した。

評価サンプルとして 3 種類の樹脂材料を用いた。PS 樹脂は複合機の内装部品として従来から使われている材料である。CF 添加 PP 樹脂は本事業において開発した材料である。PP 樹脂は CF 添加の影響を比較するための材料として評価に加えた。

表 2-5-2-3 テストピースによる評価結果

評価内容		評価方法*	評価サンプル		
			CF 添加 PP	PP	PS
			DC-FR71	比較用	従来材料
耐薬品性	潤滑剤 A	KM 法	△	○	○
	加工油 A	KM 法	△	○	○
	加工油 B	KM 法	△	○	○
	加工油 C	KM 法	△	○	○
セルフタップ（ネジ締結）		KM 法	△	△	○
箱反り		KM 法	△	△	○
落球衝撃試験		KM 法	△	○	○

*コニカミノルタ独自の評価方法

○：複合機の内装部材として使用可能

△：複合機の内装部材として使用箇所を限定もしくは部品設計を見直せば使用可能

×：複合機の内装部材として使用不可

耐薬品性については、各薬品に対しての耐久性を評価した。複合機の内装部品は潤滑剤や金属部品に使われる加工油と接するものがあり、それらの影響で部品が割れてしまうことがある。今回使用した薬品に対して、CF 添加 PP 樹脂は従来材料である PS 樹脂や比較用の PP 樹脂よりも耐薬品性は劣っているものの使用箇所を選定もしくは部品設計を見直せば使用可能であることが分かった。



図 2-5-2-2 耐薬品性の評価サンプル

セルフタップ（ネジ締結）については、樹脂ボスにタッピングネジを用いてタップを立てながらねじ込んで締結するセルフタップ法を評価した。樹脂部品を金属部品に固定したり、樹脂部品同士を接合したりする場合がある。CF 添加 PP 樹脂は従来材料である PS 樹脂に対して、過度な締め付けトルクを用いた際に割れ易かった。適切なトルクもしくは部品設計を見直せば使用可能であることが分かった。

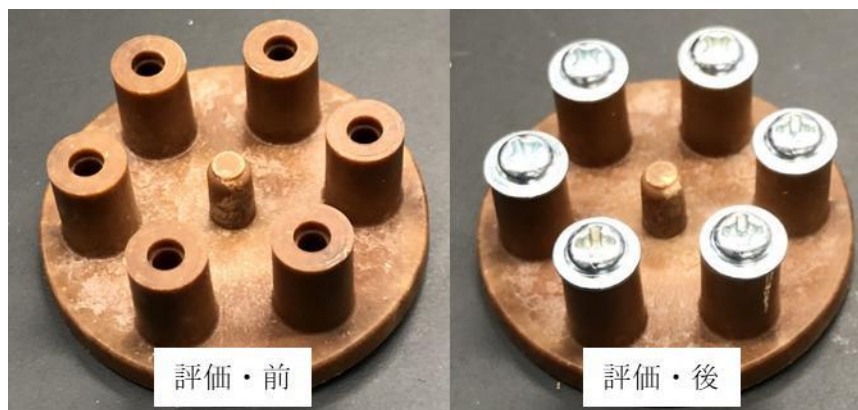


図 2-5-2-3 セルフタップ（ネジ締結）の評価サンプル

箱反りについては、箱型成形品の壁が内側に反った量を評価した。樹脂部品には箱型、L 字型、長尺などの形状があり、これらの部品が反りなどによる変形を起こすと内装部品として組み込めない場合がある。CF 添加 PP 樹脂は従来材料である PS 樹脂に対して、反り量が大きかったものの使用箇所を限定もしくは部品設計を見直せば使用可能であることが分かった。



図 2-5-2-4 箱反りの評価サンプル

落球衝撃試験については、成形品に鋼球を落下させたときの破損状況の評価した。内装部品においても耐衝撃性を求められる部品がある。CF 添加 PP 樹脂は従来材料である PS 樹脂や比較用の PP 樹脂よりも耐衝撃性は劣っているものの使用箇所を限定もしくは部品設計を見直せば使用可能であることが分かった。

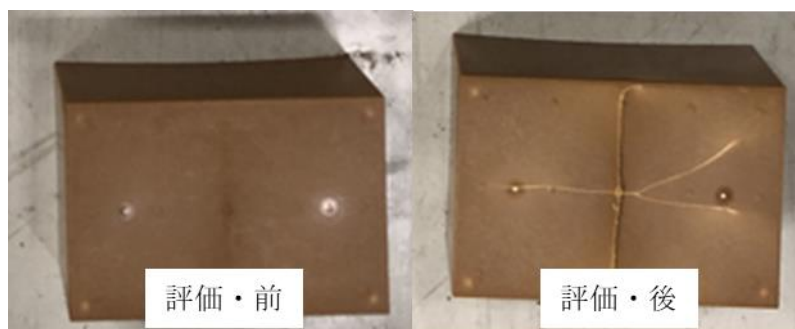


図 2-5-2-5 落球衝撃試験の評価サンプル

2.5.2.2. 複合機用部材における成形加工性の検証

2.5.2.2.1. 部品概要

ユーザーが複合機内部の駆動部品に直接触れることを防ぐための部材である「カバー」は、部品強度を確保するためにリブが多く配置されている特徴がある。リブ付近に発生する“ヒケ”や“ショートショット”などの成形加工性の課題を評価するために選定した。検証に用いた CF 添加 PP は成形外観に課題のあった令和 2 年度の検証配合である DC-FR23 を用い従来材（PS 樹脂）との成型加工性の比較を実施した。

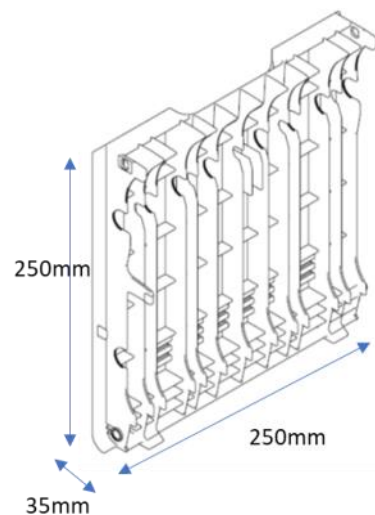


図 2-5-2-6 複合機用部材「カバー」

2.5.2.2.2. 試作結果

複合機向けの樹脂製内装部品の成形加工性の検討は、コニカミノルタメカトロニクス株式会社（瑞穂事業所）で実施した。射出成形機（型式：SE385EV-A、メーカー：住友重機械工業株式会社）を用いて、樹脂製内装部品を作製した。成形条件などを表 2-5-2-4 に示す。従来材に比べて CF 添加 PP は、シリンダー温度が低めに設定することから、消費電力を低く抑えることができた。

表 2-5-2-4 複合機用部材「カバー」の成形条件など

		シリンダー 温度(最大)	金型 温度	射出 圧力	保圧 圧力	消費電力
lot no.	CF[%]	℃	℃	MPa	MPa	kWh
DC-FR23	40	190	50	118	30	0.25
従来材 (PS)	0	230	50	87	30	0.28

2.5.2.2.3. 実用化に向けた課題

実際に成形した部品の写真を図 2-5-2-7 に示す。

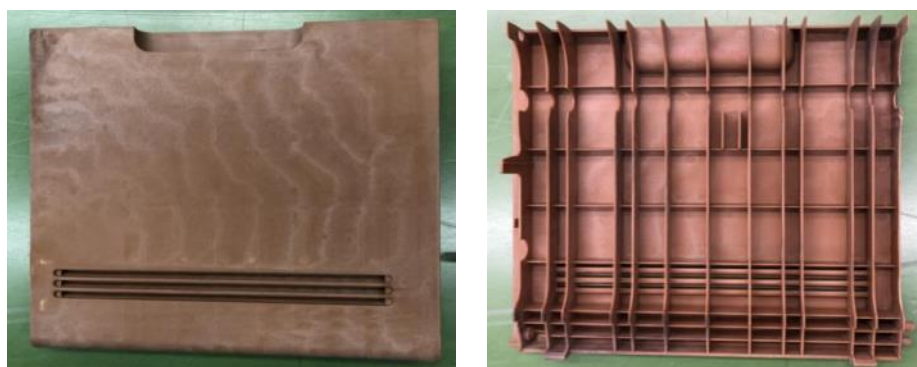


図 2-5-2-7 複合機用部材「カバー」の成形試作品の写真

CF 添加 PP を用いて「カバー」を試作した。成形条件を検討することによって、ショートすることなく成形することが出来た。成形加工性の課題としては、“流動痕”と“スプルー折れ”が挙げられる。課題として当初想定した“ヒケ”については従来材よりも CF 添加 PP の方が発生しにくかった。CF が添加されていることにより樹脂の収縮が抑えられた為と考えられる。

“流動痕”は外観全体に現れており、流動性の低さが要因だと考えている。また、金型の固定側にスプルーが取られる“スプルー折れ”が高頻度で発生した。スプルーが金型に取られると、その都度、成形を止める必要があり、生産性に影響を与える。CF 添加 PP の成形品としての脆さが要因だと考えている。抽出した課題をもとにトナーカートリッジにて検証を実施した。

2.5.2.3. 部品（トナーカートリッジ）としての検証

2.5.2.3.1. 部品概要

トナーカートリッジを複合機用部材における用途適正検証の部品として選定した。トナーを搭載しているカートリッジからトナーが供給されることで、複合機では印刷をすることができる。トナーカートリッジは複数の部品から構成されている。今回はその中から主要部品である本体と蓋の2部品（図 2-5-2-8）を選定した。

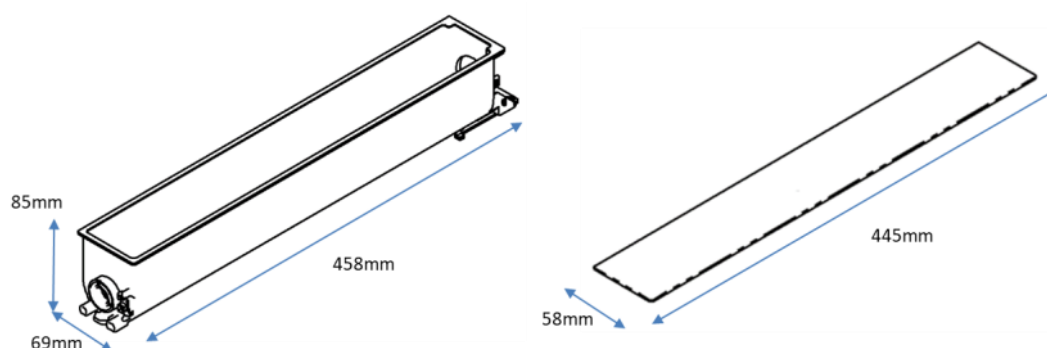


図 2-5-2-8 複合機用部材トナーカートリッジ（左：本体、右：蓋）

2.5.2.3.2. 試作結果

成形加工性と部品組立性について、これまでの検討によって課題を抽出してきた。その各課題の対策として、金型を修正した。金型修正内容を下記表 2-5-2-5 に示す。トナーカートリッジ部品としての機能を満たすために金型を調整した。

表 2-5-2-5 トナーカートリッジの金型修正内容

部品	部位	狙い	修正内容	結果
本体	嵌合	トナー漏れの防止	寸法調整	トナー漏れなし
	シャッター	摺動性の改善	寸法調整	量産品同等の摺動性を確保
	爪	射出成形時の爪破損の防止	爪の強度向上 (リブ追加)	爪破損なし
	底面のリブ	射出成形時のリブ破損の防止	リブの抜き勾配調整	リブ破損なし
	全体	本体と蓋の嵌合の改善	内反りの改善 (面補強や増肉による調整)	本体と蓋の嵌合の改善
蓋	全体	本体と蓋の嵌合の改善	寸法調整	本体と蓋の嵌合の改善

成形加工性の検討とトナーカートリッジとしての部品組立の検討は、コニカミノルタメカトロニクス株式会社で実施した。成形加工性の検討では、射出成形機(型式:SE385EV-A、メーカー:住友重機械工業株式会社)を用いて、本体と蓋を作製した。検証に用いた CF 添加 PP は圧縮処理木粉(ヒノキ)と PP ワックスを添加した成形外観を改善した処方として DC-FR71 を用いた。その成形条件などを表 2-5-2-6 に示す。

表 2-5-2-6 トナーカートリッジの成形条件など(本体と蓋)

	シリンダー 温度(最大)	金型 温度	射出 圧力	保圧 圧力
部位	℃	℃	MPa	MPa
本体	190	50	130	90
蓋	190	50	100	70

CF 添加 PP の材料としてのこれまでの本事業における検討と成形条件や金型の検討を実施してきたことにより、“流動痕”や“反り”などの成形加工性の課題は大きく改善した。実際に成形した部品の写真を図 2-5-2-9 に示す。



図 2-5-2-9 成形試作品の写真(左:本体、右:蓋)

上記の成形した部品とその他の構成部品とでトナーカートリッジを組立てた。実際に組立てたトナーカートリッジの写真を図 2-5-2-10 に示す。

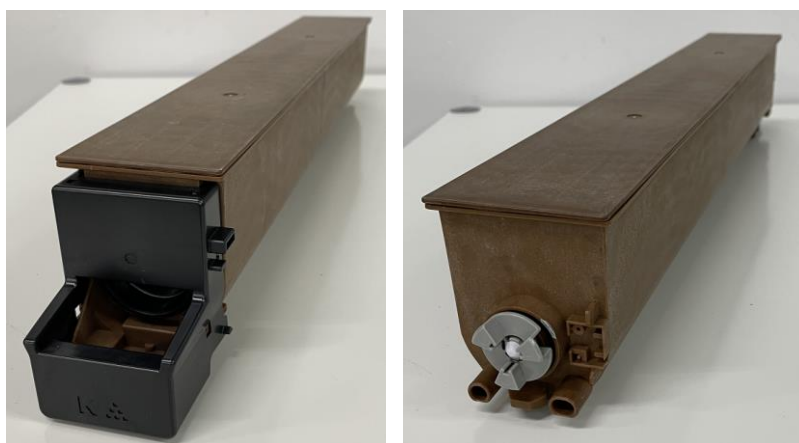


図 2-5-2-10 トナーカートリッジの写真（左：正面、右：背面）

2.5.2.3.3. 実用化に向けた課題

トナーカートリッジではトナーを搭載しているカートリッジからトナーを供給する。複合機の所定の位置にトナーカートリッジをセットし、トナーがカートリッジ内で漏れることなく保管され、供給されるという部品としての機能について検証した。検証内容と結果を表 2-5-2-7 に示した。

複合機への組込み（図 2-5-2-11）として、所定の位置にトナーカートリッジをセットすることは問題なく出来た。成形品の寸法精度が狙い通りだったことを検証出来た。

トナーの保管については、トナーカートリッジからトナーが漏れるということは特になかったが、従来材と比べると本体と蓋の接着強度が弱かった。衝撃を受けた時に本体と蓋が外れる懸念がある為、接着条件については今後検討していく必要がある。

トナーの供給については、特に問題なかった。実際に印刷するところまで出来た。但し、カートリッジ内の全てのトナーを供給した後に残ったトナー量が従来材よりも CF 添加 PP を用いて作製したトナーカートリッジの方が多かった。原因解析や対策などについては今後検討していく。

また、トナーカートリッジの従来材は黒色へ調色した材料を使用している。CF 添加 PP においても DC-FR113 を用い、黒色への調色性を検証した（図 2-5-2-12）。成形加工性、部品組立て、部品としての機能について、調色による影響は見られなかった。但し、同じ黒色でも従来材と CF 添加 PP を並べて比較すると色味が若干異なった。従来材と隣り合わせになるような外観性が求められる部品については使用方法を検討する必要がある。

実用化に向けて本事業で抽出した課題に対して、CF 添加 PP の材料としての検討だけではなく、製造条件や部品設計などについて今後も更なる検討を進める。

表 2-5-2-7 部品機能の検証内容と結果

評価内容	評価方法*	結果
複合機への組込み	KM 法	○
トナーの保管	KM 法	△
トナーの供給	KM 法	△

*コニカミノルタ独自の評価方法

○：トナーカートリッジとして使用可能

△：トナーカートリッジとして使用箇所を限定もしくは部品設計を見直せば使用可能

×：トナーカートリッジとして使用不可



図 2-5-2-11 複合機にトナーカートリッジをセットした様子



図 2-5-2-12 黒色へ調色したトナーカートリッジの写真
(左：従来材、右：CF 添加 PP)

2.5.3. 多回リサイクル性の検証

2.5.3.1. 試験概要

本項では、圧縮処理を用いた CF 添加 PP について、材料がそのライフサイクルにおいて 5 回利用されることを想定して多回リサイクル試験を行い機械特性へ及ぼす影響について調査した。「2.1.成型流動性を確保する CF の開発」にて、流動性を改善した圧縮処理 CF（ヒノキ）を用いた。表 2-5-3-1 に従って、標準的な処方である「DC-BL8」、耐衝撃処方である「DC-SRT49」及び難燃処方である「DC-FR113」の CF 添加 PP のペレットを作製した。ここで使用した PP は MFR = 100 g/10min である。図 2-5-3-1 に従って、リサイクルを想定した試験片を作製した。リサイクル工程としては、作製された CF 添加 PP のペレットを製品金型（靴べら）で射出成型し、粉砕、リペレットする工程を 0～4 回繰り返した。この試験片を用いて、曲げ強度、引張強度、衝撃強度、流動性および外観を評価した。

表 2-5-3-1 多回リサイクル性検証配合

	圧縮ヒノキ [%]	PP [%]	MaPP [%]	αオレフィン コポリマー [%]	APP [%]	PP ワックス [%]	顔料 MB [%]
DC-BL8	50.0	48.0	2.0				
DC-SRT49	40.0	48.4	1.6	10.0			
DC-FR113	40.0	30.8	3.2		20.0	5.0	1.0



図 2-5-3-1 多回リサイクル工程図

2.5.3.2. 試験結果

多回リサイクルと機械的特性の関係

リサイクル回数と各種機械的特性の性能保持率について図 2-5-3-2 に示す。一般的な PP では、多回リサイクルにより PP の低分子化が発生し、曲げ強度、引張強度、衝撃強度の低下および流動性の上昇が見込まれる。しかし、圧縮処理を用いた CF 添加 PP では、曲げ強度・弾性率、引張強度について、難燃処方 (DC-FR113) は若干の性能低下の傾向にあるが、それ以外の処方については横ばいもしくは若干の上昇傾向にある。一方、衝撃強度については「ノッチなし」は大きく上昇傾向にあり、「ノッチあり」は、横ばいもしくは若干の上昇傾向にあった。圧縮処理を用いた CF 添加 PP も PP の低分子化が発生していると考えるが、それ以上に二軸押出機の混練 (せん断応力) が複数回加わることにより圧縮処理 CF の分散性や添加剤 (APP や α オレフィンコポリマー) の分散が高まったことが機械的特性向上に寄与していると推察する。MFR の変化については、成形の許容範囲と考えるが、一定傾向でない結果となっており、PP の低分子化と CF 並びに添加剤の分散性が複数回の混練により、相反する影響を与えた為と考える。これらの結果から、難燃処方については、性能低下率を考慮したリサイクル利用が必要であるが、それ以外の処方については、マテリアルリサイクルは十分可能であると考ええる。

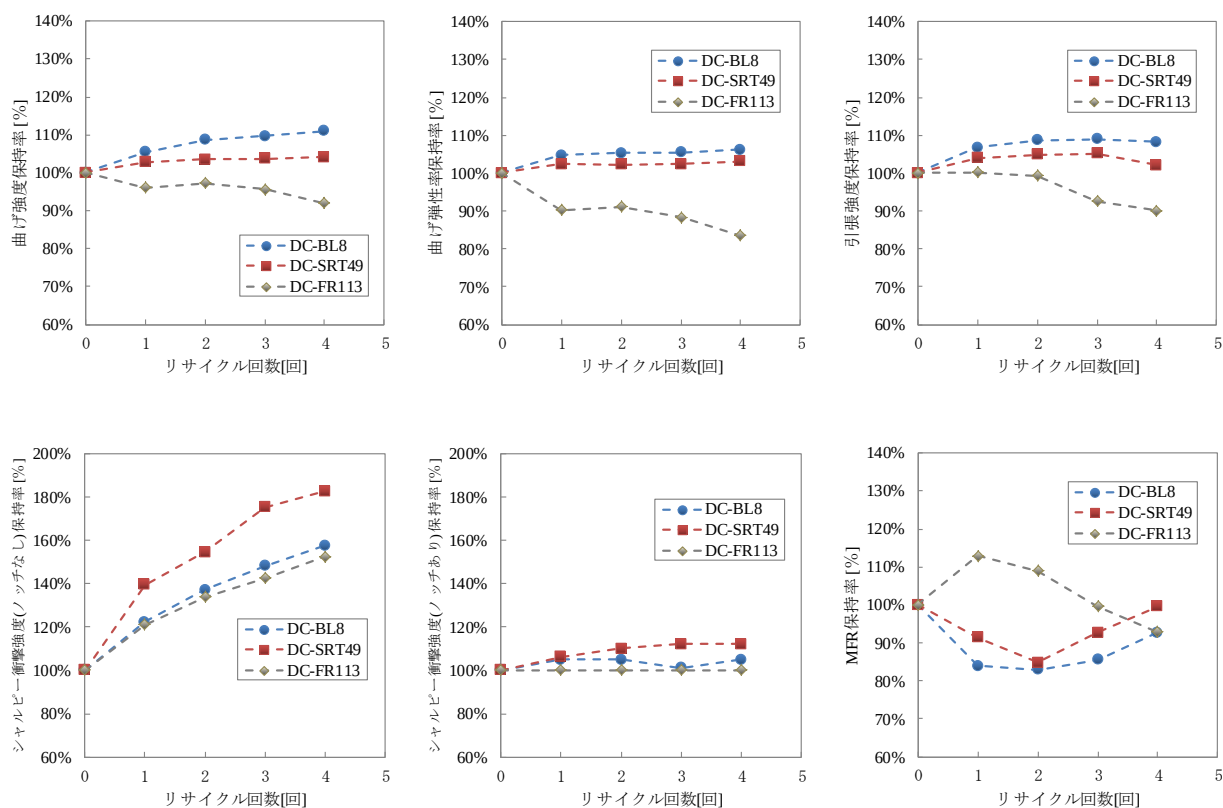


図 2-5-3-2 多回リサイクルにおける機械的特性

多回リサイクルと外観の関係

続いて、図 2-5-3-3 では多回リサイクルによる外観の変化を示す。リサイクル回数が 0 回（初期）の試験片には、圧縮処理による CF の凝集による白点が目視できるが、リサイクル回数を重ねる事により白点が無くなり、外観が向上した。2 軸押出機による複数回の練りにより、CF の分散性が向上したと推察する。

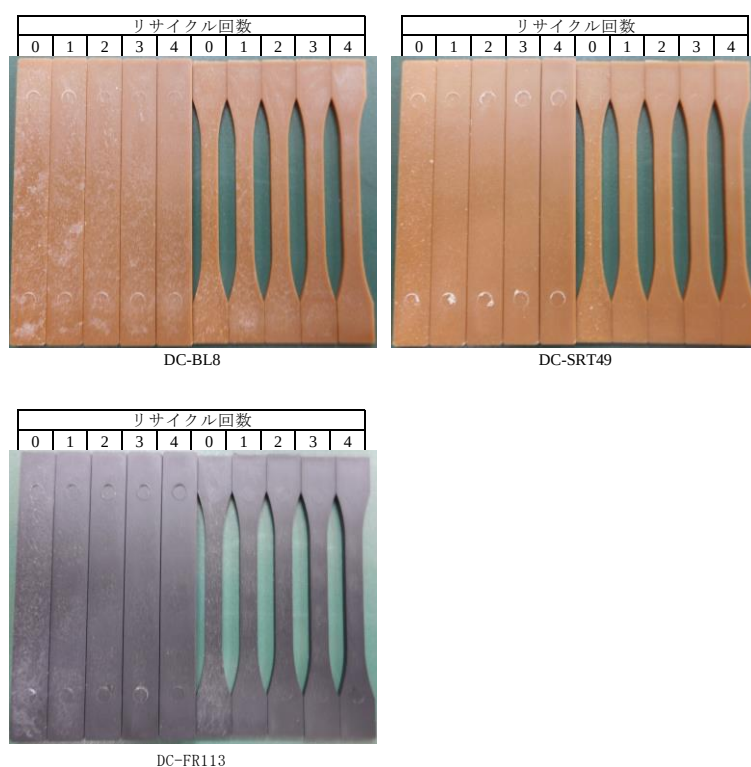


図 2-5-3-3 多回リサイクルによる外観変化

多回リサイクル（DC-FR113）が難燃性に及ぼす影響

難燃性処方のリサイクル回数による難燃性能について、評価した結果を表 2-5-3-2 に示す。リサイクル 2 回目より難燃性能が向上する結果が得られた。これはポリリン酸アンモニウムの微分散化が進んだ影響と考えられ、初期品においても、コンパウンド条件の調整により性能向上の可能性があることが示唆された。

表 2-5-3-2 多回リサイクルが難燃性に及ぼす影響

厚み	難燃性判定結果				
	初期	リサイクル 1 回目	リサイクル 2 回目	リサイクル 3 回目	リサイクル 4 回目
1.6mm	V-2	V-2	V-0	V-0	V-0
3.2mm	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0

2.5.4. まとめ

本項では、社会実装に向けた CF 添加 PP の製品用途適正検証を行った。輸送包装部材（サイドプロテクター）、複合機用部材（トナーカートリッジ）を対象として成形試作、製品性能の評価を実施し、実製品への適用について評価した結果、いずれの部材においても設計変更を行うことで製品化可能である検証を得ることができた。また、マテリアルリサイクルを想定した多回リサイクル試験を実施し、機械特性に及ぼす影響を調査した結果、難燃処方においては強度面で若干の性能低下が認められたが、それ以外の処方の性能低下は見られず、マテリアルリサイクルが可能である見解を得た。

2.6. LCA の検証・評価

2.6.1. 目的

セルロースファイラー（CF）を利用した CF 添加 PP 製造に関する CO₂ 排出量を算出し、ポリプロピレン（PP）単体製品と比較することにより CO₂ 削減効果を評価する。

2.6.2. 評価方法

2.6.2.1. 評価プロセス

A：CF 添加 PP 製品製造プロセス＜評価対象製品 1＞

（廃棄処理は、再生・焼却・埋立処理）

B：PP 単体による製品製造プロセス＜ベースライン 1＞

（廃棄処理は、再生・焼却・埋立処理）

C：CF 添加 PP 製品製造プロセス＜評価対象製品 2＞

（廃棄処理は、焼却・埋立処理）

D：PP 単体による製品製造プロセス＜ベースライン 2＞

（廃棄処理は、焼却・埋立処理）

E：CF 添加 PP マスターバッチを利用した製品製造プロセス＜評価対象製品 3＞

（廃棄処理は、再生・焼却・埋立処理）

2.6.2.2. 評価範囲と評価条件

A：セルロースファイラーを利用した CF 添加 PP 製品製造プロセス＜評価対象製品 1＞の評価範囲を図 2-6-2-1 に示す。

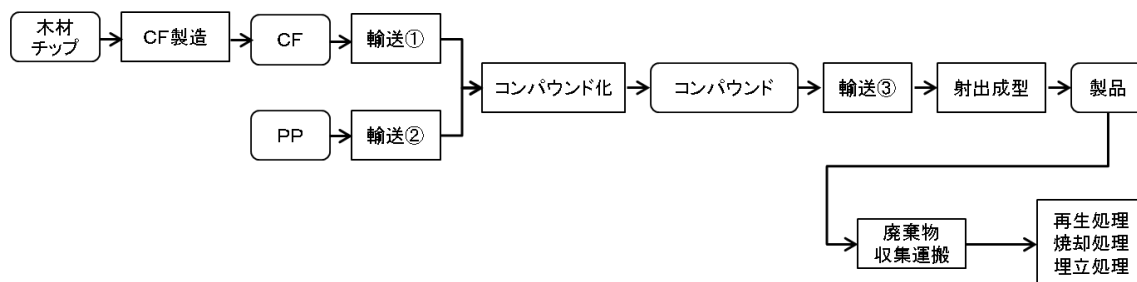


図 2-6-2-1 評価対象製品フロー 1

原料として木材チップの製造、および PP の製造から、木粉（CF）の製造、PP とのコンパウンド化、射出成型による製品化、および製品の使用後に産業廃棄物として処理される工程までを評価範囲とした。

- ・ CF に関しては、圧縮処理による CF 製造

- ・ PP とのコンパウンド化における CF の添加割合は、20%、30%、40%、50%
の 4 パターン

- ・ 廃棄処理方法は再生・焼却・埋立処理

として評価した。対象とした各工程において、ロスおよび副製品はないものとした。

B：PP 単体による製品製造プロセス＜ベースライン 1＞の評価範囲を図 2-6-2-2 に示す。

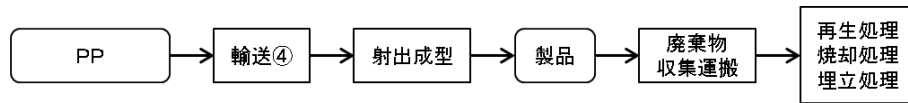


図 2-6-2-2 ベースライン 1

PP 原料の製造から、PP を射出成型により製品化する工程、および使用後に産業廃棄物として処理される工程までをベースラインの評価範囲とした。対象とした工程において、ロスおよび副製品はないものとした。廃棄処理は再生・焼却・埋立処理の評価とした。

C：セルロースフィラーを利用した CF 添加 PP 製品製造プロセス＜評価対象製品 2＞の評価範囲を図 2-6-2-3 に示す。

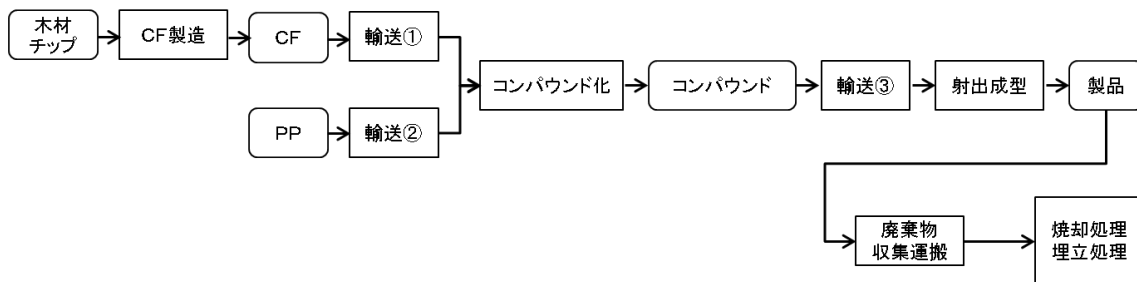


図 2-6-2-3 評価対象製品フロー 2

＜評価対象製品 2＞では再生処理に適さない製品を対象とし、＜評価対象製品 1＞の産業廃棄処理工程を焼却・埋立処理のみとして評価とした。

D:PP 単体による製品製造プロセス＜ベースライン 2＞の評価範囲を図 2-6-2-4 に示す。

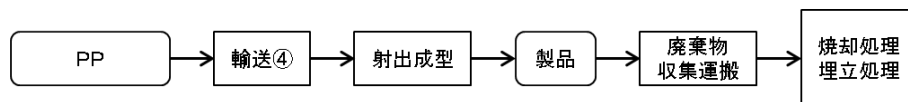


図 2-6-2-4 ベースライン 2

＜ベースライン 2＞では再生処理に適さない製品を対象とし、＜評価対象製品 2＞と同様に＜ベースライン 1＞の産業廃棄処理工程を焼却・埋立処理のみとして評価とした。

E：CF 添加 PP マスターバッチを利用した製品製造プロセス＜評価対象製品 3＞
 の評価範囲を図 2-6-2-5 に示す。

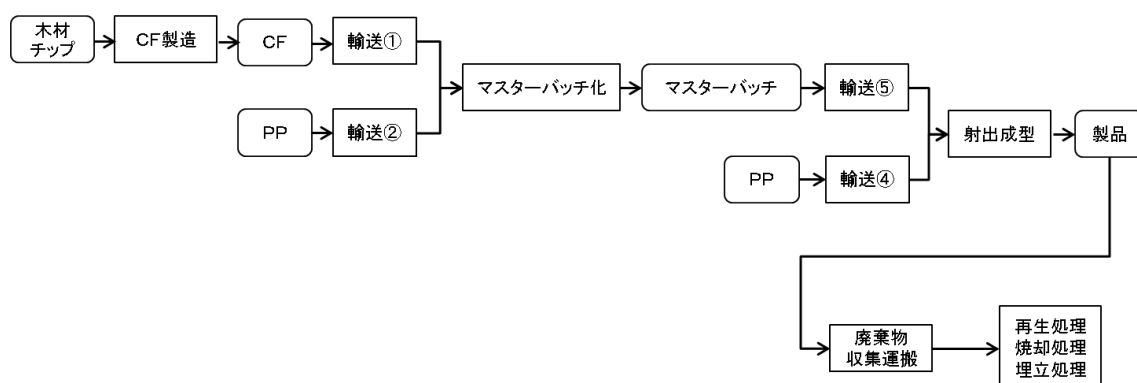


図 2-6-2-5 評価対象製品フロー 3

＜評価対象製品 3＞は、マスターバッチ利用は CF 添加 PP 成型品のコストを低減する手段として有用であることから、その CO₂ 排出量の算出を目的とした。マスターバッチの CF 添加量は 60%とし、射出成型後の製品が CF20%、30%、40%、50%の 4 パターンとなるように、マスターバッチを PP にて希釈成型した場合の評価とした。その他の工程については＜評価対象製品 1＞と同様とした。

機能単位は、射出成型製品 1kg あたりを基本とした。バックグラウンドデータには、IDEAv2.3（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。

使用したバックグラウンドデータは以下の通りである。

- ・木材チップ
- ・ポリプロピレン
- ・トラック輸送サービス,10 トン車, 積載率_75%
- ・トラック輸送サービス,10 トン車, 積載率_100%
- ・電力, 日本平均, 2017 年度
- ・産業廃棄物収集運搬サービス
- ・フラフ・ベール状の使用済みその他プラスチック製品
- ・焼却処理サービス, 産業廃棄物, 廃プラスチック
- ・焼却処理サービス, 産業廃棄物, 紙くず、木くず
- ・埋立処理サービス, 産業廃棄物

木材チップの体積・重量換算には、絶乾重量 0.1t/m³を用いた。

輸送①～⑤輸送距離は、国交省のトラック輸送状況の実態調査結果(全体版)から、大型車

の平均実車距離を抽出した。

輸送①：CF 輸送

（積載重量 8,000 kg、10t トラック輸送、272 km）

輸送②～⑤：ポリプロピレン、CF 添加 PP コンパウンド、CF 添加 PP マスターバッチ

（積載重量 10,000 kg、10t トラック輸送、272 km）

プラスチック廃棄物の処理割合については、（一社）プラスチック循環利用協会の調査報告「プラスチックのマテリアルフロー（2017 年）」を参照し、廃棄処理比率を算出した。

CF 製造については粉碎工程（宮下木材（株）粉碎設備）、圧縮処理（ディスクペレッター）、解繊処理（マスコロイダー）の量産テスト時の消費電力測定結果、コンパウンド化工程、マスターバッチ化工程についてはφ70mm 二軸押出機（TEM70BH）を用いた量産テスト時の消費電力量測定結果を用いた。また、射出成型工程については、昭和プロダクツの梱包・包装用資材（サイドプロテクター）射出成型テストの消費電力量測定結果を用いた。

2.6.3. 評価結果

2.6.3.1. 圧縮処理 CF を用いた CF 添加 PP 製品製造プロセス（再生処理有り）

圧縮処理により作製した CF を用いて製造した CF 添加 PP の 1kg あたりの CO₂ 排出量を評価した。廃棄処理は再生処理（28%）・焼却処理（66%）・埋立処理（6%）として評価とした。

評価に用いたインベントリを表 2-6-3-1～表 2-6-3-4 に、同様の条件で評価した PP 単体製品のインベントリを表 2-6-3-5 に、評価により算出した CO₂ 排出量を図 2-6-3-1 に示した。CF を添加した PP による射出成型品は、PP 単体の射出成型品と比較して、CO₂ 排出量が減少することが示された。CF 添加 PP 射出成形品の CO₂ 削減効果は、PP 単体の 4.19 kg-CO₂e/kg-PP から、CF の添加量が 20%から 30%、40%、50%と増加するにつれて大きくなり、CF50%添加 PP では、2.96 kg-CO₂e/kg-CF-PP と、約 29%の削減となった。工程ごとに見ると、原料由来の CO₂ 排出量は、PP 単体の 2.06 kg-CO₂e に対して、CF50%PP コンパウンドは 1.63 kg-CO₂e と約 21%減、また、廃棄リサイクル処理工程（再生、焼却、埋立）の CO₂ 排出量は、PP 単体の 1.87 kg-CO₂e に対して、CF50%PP コンパウンドは 1.10 kg-CO₂e と約 41%減となった。

表 2-6-3-1 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF20%、再生処理有り)

CF20%PP(再生処理有り)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.200 kg	0.148
輸送①: 積載率75%	0.054 tkm	0.008
PP	0.800 kg	1.649
輸送②: 積載率100%	0.218 tkm	0.024
コンパウンド化工程	0.298 kWh	0.177
コンパウンド製造	1.000 kg	2.006
コンパウンド	1.000 kg	2.006
輸送③: 積載率100%	0.272 tkm	0.030
射出成型工程	0.318 kWh	0.190
射出製品製造	1.000 kg	2.226
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.528 kg	1.347
焼却処理(CF)	0.132 kg	0.027
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.561

表 2-6-3-2 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF30%、再生処理有り)

CF30%PP(再生処理有り)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.300 kg	0.222
輸送①: 積載率75%	0.082 tkm	0.011
PP	0.700 kg	1.443
輸送②: 積載率100%	0.190 tkm	0.021
コンパウンド化工程	0.306 kWh	0.182
コンパウンド製造	1.000 kg	1.880
コンパウンド	1.000 kg	1.880
輸送③	0.272 tkm	0.030
射出成型工程	0.341 kWh	0.203
射出製品製造	1.000 kg	2.113
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.462 kg	1.178
焼却処理(CF)	0.198 kg	0.040
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.406

表 2-6-3-3 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF40%、再生処理有り)

CF40%PP(再生処理有り)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.400 kg	0.296
輸送①: 積載率75%	0.109 tkm	0.015
PP	0.600 kg	1.237
輸送②: 積載率100%	0.163 tkm	0.018
コンパウンド化工程	0.323 kWh	0.192
コンパウンド製造	1.000 kg	1.759
コンパウンド	1.000 kg	1.759
輸送③	0.272 tkm	0.030
射出成型工程	0.335 kWh	0.199
射出製品製造	1.000 kg	1.988
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.396 kg	1.010
焼却処理(CF)	0.264 kg	0.054
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.251

表 2-6-3-4 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF50%、再生処理有り)

CF50%PP(再生処理有り)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.500 kg	0.370
輸送①: 積載率75%	0.136 tkm	0.019
PP	0.500 kg	1.031
輸送②: 積載率100%	0.136 tkm	0.015
コンパウンド化工程	0.335 kWh	0.199
コンパウンド製造	1.000 kg	1.634
コンパウンド	1.000 kg	1.634
輸送③	0.272 tkm	0.030
射出成型工程	0.340 kWh	0.203
射出製品製造	1.000 kg	1.867
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.330 kg	0.842
焼却処理(CF)	0.330 kg	0.067
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.096

表 2-6-3-5 PP 成型品製造プロセスの CO₂ 排出量（再生処理有り）

PP成型品(再生処理有り)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
PP	1.000 kg	2.062
輸送④: 積載率100%	0.272 tkm	0.030
射出成型工程	0.375 kWh	0.224
射出製品製造	1.000 kg	2.315
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.660 kg	1.683
焼却処理(CF)	0.000 kg	0.000
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.871

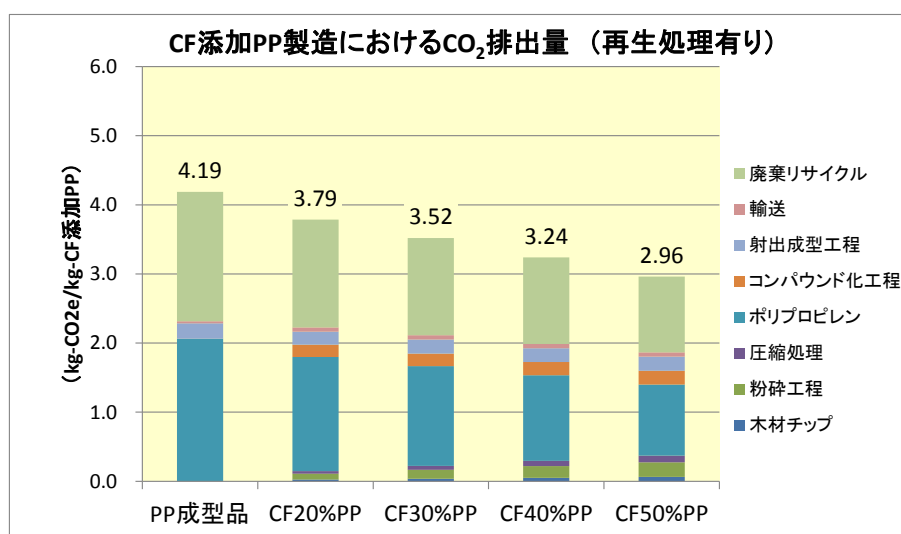


図 2-6-3-1 CF 添加 PP 射出成型品製造における CO₂ 排出量評価結果（再生処理有り）

2.6.3.2. 圧縮処理 CF を用いた CF 添加 PP 製品製造プロセス（再生処理無し）

圧縮処理により作製した CF を用いて製造した CF 添加 PP の 1kg あたりの CO₂ 排出量を評価した。ここでは再生処理に適さない製品を対象とし、廃棄処理は・焼却処理（92）・埋立処理（8%）として評価した。

廃棄リサイクル処理以外の工程については、上述の「＜評価対象製品 1＞（再生処理有り）」と同じデータを使用した。評価に用いたインベントリを表 2-6-3-6～表 2-6-3-9 に、同様の条件で評価した PP 単体製品のインベントリを表 2-6-3-10 に、評価により算出した CO₂ 排出量を図 2-6-3-2 に示した。

廃棄処理において再生処理無しの場合においても CF を添加した PP による射出成形品は、PP 単体の射出成形品と比較して、CO₂ 排出量が減少することが示された。CO₂ 削減効果は、PP 単体の 4.82 kg-CO₂e/kg-PP から、CF の添加量が 20%から 30%、40%、50%と増加するにつれて大きくなり、CF50%添加 PP では、3.30kg- CO₂e/kg-CF-PP と、約 32%の削減となった。廃棄処理工程(焼却、埋立)の CO₂ 排出量は、PP 単体の 2.51 kg- CO₂e に対して、CF50%PP では 1.43 kg-CO₂e と約 43%減となった。

表 2-6-3-6 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF20%、再生処理無し)

CF20%PP(再生処理無し)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
射出製品製造	1.000 kg	2.226
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.736 kg	1.877
焼却処理(CF)	0.184 kg	0.037
埋立処理	0.080 kg	0.001
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	2.077

表 2-6-3-7 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF30%、再生処理無し)

CF30%PP(再生処理無し)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
射出製品製造	1.000 kg	2.113
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.644 kg	1.642
焼却処理(CF)	0.276 kg	0.056
埋立処理	0.080 kg	0.001
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.861

表 2-6-3-8 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF40%、再生処理無し)

CF40%PP(再生処理無し)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
射出製品製造	1.000 kg	1.988
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.552 kg	1.408
焼却処理(CF)	0.368 kg	0.075
埋立処理	0.080 kg	0.001
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.645

表 2-6-3-9 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF50%、再生処理無し)

CF50%PP(再生処理無し)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
射出製品製造	1.000 kg	1.867
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.460 kg	1.173
焼却処理(CF)	0.460 kg	0.093
埋立処理	0.080 kg	0.001
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.429

表 2-6-3-10 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量（再生処理無し）

PP(再生処理無し)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
射出製品製造	1.000 kg	2.315
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.920 kg	2.346
焼却処理(CF)	0.000 kg	0.000
埋立処理	0.080 kg	0.001
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	2.509

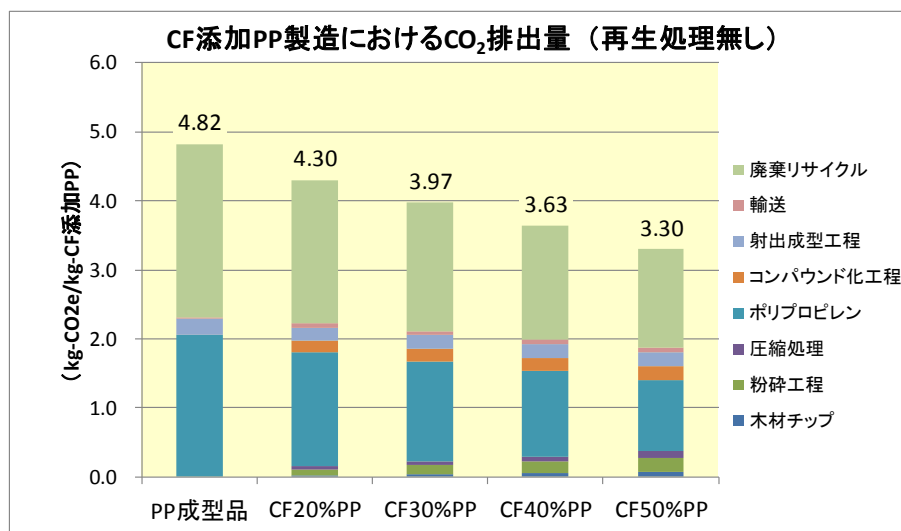


図 2-6-3-2 CF 添加 PP 射出成型品製造における CO₂ 排出量評価結果（再生処理無し）

2.6.3.3. CF 添加 PP 廃棄処理時の処理方法による比較

圧縮処理 CF を用いた CF 添加 PP 射出成型製品と、PP 単体の射出成型製品の CO₂ 排出量を、CF 添加量別、廃棄処理方法別（再生処理の有無）の重量あたりで比較評価した結果を表 2-6-3-11 に示す。また、材料の比重（表 2-6-3-12）を加味した容積あたりの比較評価結果を表 2-6-3-13 に示す。再生処理の有無を CF 添加量別で比較した結果、再生処理有りに比べ、再生処理無しは CO₂ 排出量が増加した。CF 添加量の増加により、CO₂ 排出量削減効果は向上しているが、CF 添加 PP が再生処理に適さない場合（再生処理無し）においては再生処理有りの PP 成型品 4.19 kg-CO₂e/kg-PP と比較すると、重量あたりで CF 添加率は 30% 以上、容積あたりで 50% 以上にて CO₂ 排出量削減効果が得られる評価結果となった。これらの結果から、CF 添加 PP の再生処理の社会的な仕組みが構築されていない状況、且つ CF による補強効果を加味しない場合においては、再生処理がなされていない製品など、現状の廃棄処理状況を考慮した CF 添加 PP 適用製品の選定が重要である。

表 2-6-3-11 PP 単体と CF 添加 PP の廃棄処理方法別による CO₂ 排出量比較（重量あたり）単位：kg-CO₂e/kg-CF-PP

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
①再生処理有り	4.19	3.79	3.52	3.24	2.96
②再生処理無し	4.82	4.30	3.97	3.63	3.30
①-②	-0.63	-0.51	-0.45	-0.39	-0.34

表 2-6-3-12 PP 単体と CF 添加 PP との比重比較

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
比重	0.90	0.97	1.01	1.06	1.11

表 2-6-3-13 PP 単体と CF 添加 PP の廃棄処理方法別による CO₂ 排出量比較（容積あたり）単位：トン-CO₂e /m³-CF-PP

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
①再生処理有り	3.77	3.67	3.55	3.43	3.29
②再生処理無し	4.34	4.17	4.01	3.85	3.66
①-②	-0.57	-0.50	-0.46	-0.42	-0.37

2.6.3.4. CF による材料の補強効果を加味した比較

CF 添加 PP の補強効果を加味した場合の比較として圧縮処理 CF を利用した CF 添加 PP と PP 単体（CF 添加 PP のベース樹脂）の曲げ強度（表 2-6-3-14）をもとに補強効果を加味して算出した製品厚み比率を表 2-6-3-15 に示す。曲げ強度補正後の容積あたりの CO₂ 排出量削減効果を表 2-6-3-16 に示す。

CF 添加による補強効果を加味し、CF 添加 PP の再生処理無し＜評価対象製品 2＞と、再生処理有りの PP 単体＜ベースライン 1＞と比較すると CF 添加率は 30%以上にて CO₂ 排出量削減効果が得られる評価結果となった。

表 2-6-3-14 CF 添加 PP との比較（曲げ強度）

単位：MPa

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
曲げ強度	38.8	42.6	46.7	52.3	57.7

表 2-6-3-15 CF 添加 PP との比較（厚み比率／PP）

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
厚み比率	1.00	0.95	0.91	0.86	0.82

表 2-6-3-16 CF 添加 PP との比較（容積あたり・曲げ強度補正）

単位：kg-CO₂e /1 製品-CF-PP

	PP 単体	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
①再生処理有り	3.77	3.51	3.24	2.96	2.70
②再生処理無し	4.34	3.98	3.66	3.32	3.00
①-②	-0.57	-0.47	-0.42	-0.36	-0.30

2.6.3.5. CF 添加 PP マスターバッチ利用時の CF 添加 PP 製品製造プロセス

マスターバッチ利用は CF 添加 PP 成型品のコストを低減する手段として有用であることから、ここでは、その CO₂ 排出量に及ぼす影響の確認を目的とした。マスターバッチの CF 添加量は 60%とし、製造した CF 添加 PP の 1kg あたりの CO₂ 排出量を評価した。廃棄処理は再生処理（28%）・焼却処理（66%）・埋立処理（6%）として評価した。評価に用いたインベントリを表 2-6-3-17～表 2-6-3-20 に、評価により算出した CO₂ 排出量を図 2-6-3-3 に示した。また表 2-6-3-21 にマスターバッチ利用の有無による CO₂ 排出量評価結果を示す。

これらの結果から、マスターバッチ利用の場合においても CO₂ 削減効果は CF の添加量が 20%から 30%、40%、50%と増加するにつれて大きくなった。またマスターバッチ利用の有無にて比較すると CF50%添加 PP で 0.02 kg-CO₂e、CF20%添加 PP で 0.13 kg-CO₂e と CF 添加量が少なくなるにつれてマスターバッチ利用による CO₂ 削減効果が大きくなる結果が得られた。

表 2-6-3-17 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量（CF20%、マスターバッチ利用）

CF20%PP(マスターバッチ利用)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.600 kg	0.444
輸送①: 積載率75%	0.163 tkm	0.023
PP	0.400 kg	0.825
輸送②: 積載率100%	0.109 tkm	0.012
マスターバッチ化工程	0.371 kWh	0.221
マスターバッチ製造	1.000 kg	1.524
マスターバッチ	0.333 kg	0.508
輸送⑤: 積載率100%	0.091 tkm	0.010
PP	0.667 kg	1.375
輸送④: 積載率100%	0.181 tkm	0.020
射出成型工程	0.318 kWh	0.190
射出製品製造	1.000 kg	2.102
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.528 kg	1.347
焼却処理(CF)	0.132 kg	0.027
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.561

表 2-6-3-18 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF30%、マスターバッチ利用)

CF30%PP (マスターバッチ利用)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.600 kg	0.444
輸送①: 積載率75%	0.163 tkm	0.023
PP	0.400 kg	0.825
輸送②: 積載率100%	0.109 tkm	0.012
マスターバッチ化工程	0.371 kWh	0.221
マスターバッチ製造	1.000 kg	1.524
マスターバッチ	0.500 kg	0.762
輸送⑤: 積載率100%	0.136 tkm	0.015
PP	0.500 kg	1.031
輸送④: 積載率100%	0.136 tkm	0.015
射出成型工程	0.341 kWh	0.203
射出製品製造	1.000 kg	2.026
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.462 kg	1.178
焼却処理(CF)	0.198 kg	0.040
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.406

表 2-6-3-19 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF40%、マスターバッチ利用)

CF40%PP (マスターバッチ利用)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.600 kg	0.444
輸送①: 積載率75%	0.163 tkm	0.023
PP	0.400 kg	0.825
輸送②: 積載率100%	0.109 tkm	0.012
マスターバッチ化工程	0.371 kWh	0.221
マスターバッチ製造	1.000 kg	1.524
マスターバッチ	0.667 kg	1.016
輸送⑤: 積載率100%	0.181 tkm	0.020
PP	0.333 kg	0.687
輸送④: 積載率100%	0.091 tkm	0.010
射出成型工程	0.335 kWh	0.199
射出製品製造	1.000 kg	1.933
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.396 kg	1.010
焼却処理(CF)	0.264 kg	0.054
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.251

表 2-6-3-20 CF 添加 PP 製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF50%、マスターバッチ利用)

CF50%PP (マスターバッチ利用)	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.600 kg	0.444
輸送①: 積載率75%	0.163 tkm	0.023
PP	0.400 kg	0.825
輸送②: 積載率100%	0.109 tkm	0.012
マスターバッチ化工程	0.371 kWh	0.221
マスターバッチ製造	1.000 kg	1.524
マスターバッチ	0.833 kg	1.270
輸送⑤: 積載率100%	0.227 tkm	0.025
PP	0.167 kg	0.344
輸送④: 積載率100%	0.045 tkm	0.005
射出成型工程	0.340 kWh	0.203
射出製品製造	1.000 kg	1.847
廃棄物収集運搬	1.000 kg	0.162
再生処理	0.280 kg	0.025
焼却処理(プラ)	0.330 kg	0.842
焼却処理(CF)	0.330 kg	0.067
埋立処理	0.060 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 kg	1.096

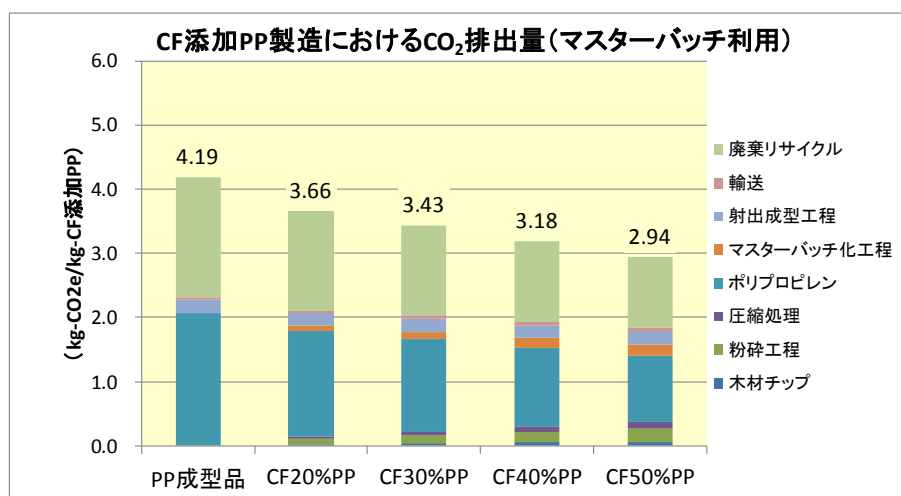


図 2-6-3-3 CF 添加 PP 射出成型品製造における CO₂ 排出量評価結果 (マスターバッチ利用)

表 2-6-3-21 マスターバッチ（MB）利用の有無による CF 添加 PP の CO₂ 排出量比単位：kg-CO₂e/kg-CF-PP

	CF20%PP	CF30%PP	CF40%PP	CF50%PP
①MB 利用無し	3.79	3.52	3.24	2.96
②MB 利用有り	3.66	3.43	3.18	2.94
①-②	0.13	0.09	0.06	0.02

2.6.3.6. CF 添加 PP を利用した射出成型品（サイドプロテクター）の CO₂ 排出量

昭和プロダクツのサイドプロテクターをモデルとして製造した CF40%添加 PP 及び PP 単体の 1 製品あたりの CO₂ 排出量を評価した。また、製品の実試作評価から製品肉厚を 2.0 mm から 1.5mm に減少させたモデルについて、＜評価対象製品 2＞と＜ベースライン 2＞を評価範囲として CO₂ 排出量の比較を行った。

評価に用いたインベントリを表 2-6-3-22～表 2-6-3-24 に、評価により算出した CO₂ 排出量を図 2-6-3-4 に示した。PP 単体と CF 添加 PP を同一の製品肉厚 2.0mm で比較するとサイドプロテクター 1 個当たりの CO₂ 排出量の削減は 0.08kg-CO₂e で約 12% の削減効果であるが、CF の補強効果を実証した製品肉厚 1.5mm の CF 添加 PP と比較すると 0.19kg-CO₂e で約 28% の削減効果が得られた。

表 2-6-3-22 サイドプロテクター製造プロセスの CO₂ 排出量（CF40%、t=2.00mm）

CF40%PP: サイドプロテクター t=2.00mm	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.400 kg	0.296
輸送①: 積載率75%	0.109 tkm	0.015
PP	0.600 kg	1.237
輸送②: 積載率100%	0.163 tkm	0.018
コンパウンド化工程	0.323 kWh	0.192
コンパウンド製造	1.000 kg	1.759
コンパウンド	0.164 kg	0.288
輸送③: 積載率100%	0.045 tkm	0.005
射出成型工程	0.049 kWh	0.029
サイドプロテクター製造	1.000 個	0.323
廃棄物収集運搬	0.164 kg	0.027
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.091 kg	0.231
焼却処理(CF)	0.060 kg	0.012
埋立処理	0.013 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 個	0.270

表 2-6-3-23 サイドプロテクター製造プロセスの CO₂ 排出量 (CF40%、 t =1.50mm)

CF40%PP: サイドプロテクター t=1.50mm	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
木材チップ	1.000 kg	0.126
粉碎工程	0.712 kWh	0.424
圧縮処理	0.204 kWh	0.121
解繊処理	0.115 kWh	0.069
CF製造	1.000 kg	0.740
CF	0.400 kg	0.296
輸送①: 積載率75%	0.109 tkm	0.015
PP	0.600 kg	1.237
輸送②: 積載率100%	0.163 tkm	0.018
コンパウンド化工程	0.323 kWh	0.192
コンパウンド製造	1.000 kg	1.759
コンパウンド	0.131 kg	0.230
輸送③	0.036 tkm	0.004
射出成型工程	0.046 kWh	0.027
サイドプロテクター製造	1.000 個	0.262
廃棄物収集運搬	0.131 kg	0.021
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.072 kg	0.184
焼却処理(CF)	0.048 kg	0.010
埋立処理	0.010 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 個	0.216

表 2-6-3-24 サイドプロテクター製造プロセスの CO₂ 排出量 (PP 単体、 t =2.00mm)

PP単体: サイドプロテクター t=2.00mm	投入量	GHG排出量 (kg-CO ₂ e)
PP	0.139 kg	0.287
輸送④	0.038 tkm	0.004
射出成型工程	0.057 kWh	0.034
サイドプロテクター製造	1.000 個	0.325
廃棄物収集運搬	0.139 kg	0.023
再生処理	0.000 kg	0.000
焼却処理(プラ)	0.128 kg	0.326
埋立処理	0.011 kg	0.000
廃棄リサイクル処理	1.000 個	0.349

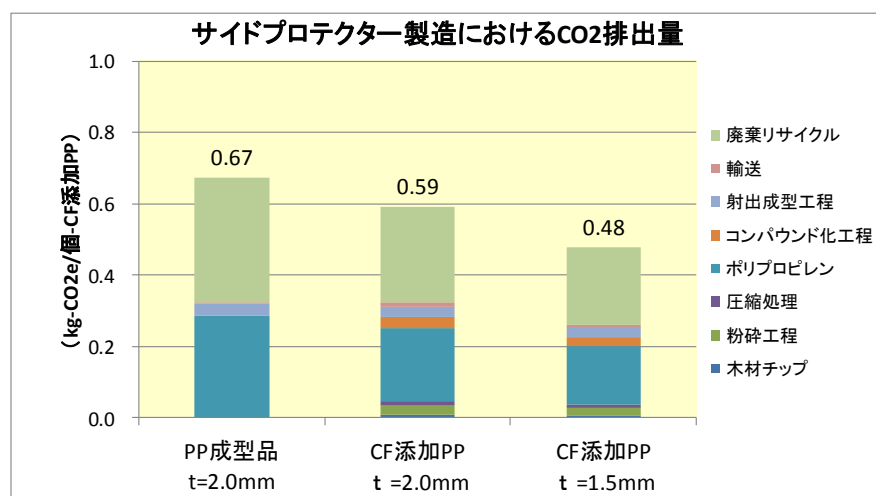


図 2-6-3-4 サイドプロテクター製造における CO₂ 排出量評価結果

2.6.4. まとめ

木粉（CF）を添加した PP 射出成型製品について、ライフサイクル CO₂ 排出量の削減効果を評価した。CF 添加により CO₂ 排出量は減少し、CF 添加量が増加するにつれて、CO₂ 排出量の削減量も増加し、CF50%添加 PP において、廃棄処理について再生処理ありの場合 1.23 kg-CO₂e/kg、再生処理なしの場合 1.52 kg-CO₂e/kg の削減効果が得られた。本事業の CO₂ 排出量削減効果 0.4kg-CO₂e/kg の目標に対しては CF20%以上の添加で達成することが試算された。各製品の比重は、CF 添加により大きくなるため、容積あたりで見ると CF 導入による CO₂ 削減効果は小さくなったが、いずれも削減量はプラスであり、一定の削減効果は確認されることがわかった。

一方、CF 添加 PP が市場に導入された初期段階では廃棄処理において再生処理の社会的な仕組みが構築されていない状況が考えられる為、再生処理がなされていない PP 製品など、現状の廃棄処理状況を考慮した上で CF 添加 PP を適用する製品の選定が重要である。

製品のコスト削減効果が見込めるマスターバッチ利用については、CO₂ 削減効果は少ないものの、CO₂ 排出量の増加には繋がらないことが試算された。

また、曲げ強度が CF 添加量に応じて向上することから、CF の補強効果を利用した薄肉化が CO₂ 排出量削減に効果的であり、サイドプロテクターを用いた製品実証では薄肉化により製品 1 個あたり CO₂ 排出量の削減効果が 0.19kg-CO₂e で約 28%削減することが試算された。

3. 総括

本事業は令和元年度より環境省委託業務「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（セルロースフィラーによる化石資源由来プラスチック使用量の削減）」委託業務として、化石資源由来プラスチックを CF に置き換え使用量を削減する技術の実証を行った。

成型流動性を確保する CF の開発として圧縮処理等を用いて、成型流動性を確保する CF の改質技術の開発に取り組んだ。流動性には、木粉の嵩比重という因子が流動性に寄与していることを解明でき、CF 種類を変更した場合においても流動性目標であった MFR 3.0 g/10min 以上となる CF 処理技術を構築することができた。

難燃性を有する複合化技術の開発として、ポリリン酸アンモニウム（APP）と CF の相乗効果を利用した難燃化に取り組んだ。CF40%以上、APP20%以上が必要となり、その多量なフィラーは製品外観に不具合を及ぼす原因となる。この課題に対して、圧縮処理木粉の利用、相容化剤の増量、PP 系ワックスの添加、射出速度の影響を検証することによって、成形外観と難燃性（肉厚 3.2mm : V-0、1.6mm : V-2）を両立する難燃化 CF 添加 PP の処方を確立した。

CF 添加 PP の耐衝撃性の改善について取り組んだ。CF を添加することで、曲げ強度や弾性率は向上する一方で、フィラー添加特有の耐衝撃性が低下する。CF 添加 PP の耐衝撃性を改善することは製品化を進めるにおいて必要な技術である。本事業で確立した α オレフィンコポリマーを添加する耐衝撃処方を圧縮処理された様々な CF に適用した結果、いずれの CF 種類においても耐衝撃性能を改善することができた。

CF は種類によってフィラーサイズや形状、木質成分に違いがあり、CF 添加 PP 製品はその CF 性状により様々な機械特性が付与される。本事業では、各種 CF 性状とその添加量（20%~50%）別の機械特性を取得し、データベース化した。得られたデータをもとに CF 性状と機械特性の関係について PLS 解析を行い、CF 特性因子毎の寄与度を抽出し、CF 添加量、嵩比重と近赤外分光分析によって CF 添加 PP の機械特性予測を実施した。その結果、CF 品質の簡易評価項目として嵩比重測定と近赤外分光分析が有効であることを見出した。

社会実装に向けた CF 添加 PP の製品検証を行った。輸送包装部材（サイドプロテクター）、複合機用部材（トナーカートリッジ）を対象として成形試作、製品性能の評価を実施した結果、いずれの部材においても設計変更を行うことで製品化可能である検証を得た。

LCA の検証・評価として圧縮処理された CF を用いた CF 添加 PP のライフサイクルでの CO₂ 排出量を算出し、PP 製品との比較を実施した。CF 添加 PP は PP 製品と比べて CO₂ 排出量が少なく、CF 添加量が増加するにつれて CO₂ 排出量の削減量が増加することが示された。また、CF 添加による補強効果を加味した薄肉化にて実製品（サイドプロテクター）製品単位で試算した結果、肉厚を 2.0mm から 1.5mm に薄肉化することで約 28%の CO₂ 排出量を削減する試算を得た。

これらの取組みにより、「セルロースフィラーによる化石資源由来プラスチック使用量の削減及び CO₂ 排出量削減」に向けた技術基盤を構築することができた。

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」に関わる判断の基準に従い、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。