

令和 2 年度環境省委託業務

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

令和 3 年 3 月

パナソニック株式会社

令和 2 年度脱炭素社会を支えるプラスチック等資源循環システム構築実証事業 (バイオ由来素材を複合した再生樹脂の適用技術実証)

成果報告書概要

1. 業務の目的

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

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

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

2. 業務の内容

(1)CeF と家電リサイクル樹脂の複合工程の開発

使用済み廃家電由来の廃プラスチック(再生 PP)を原料とし、CeF との複合化において、CeF の複合比率は、主に 15%程度を中心とし、混練条件、添加剤処方、CeF 種などの各種条件を変化させ、家電に適用できる複合プロセスの確立を行った。再生 PP については最適な複合条件を導出し、商品への適用可能性として、実製品(スティッククリーナー)の樹脂部品を成形試作し第 1 次製品適応検証完了した。

PS 樹脂の CeF 複合化については、相溶化剤や分散剤などの添加剤や CeF 種の混練条件による物性の挙動を検証した。

上記の検証において CeF 挙動を TEM 等により詳細を観察し、物性挙動との相関を考察し更なる向上への対策を立案した。

(2)選別工程の開発および資源循環システムへの影響評価

(i)選別工程の開発

CeF15%程度複合樹脂を、回収率 60%以上、純度 80%以上で選別できる選別

工法の確立を目指し、今年度は、近赤外線分光器の判別データベースに、再生材を母材とした CeF 複合サンプルを追加し拡張し、CeF の濃度別の判定が可能であること見出した。また、ハイパースペクトルカメラを用いて、高速搬送下での判別検証を実施し、その結果を用い、エアノズルでの射落としをシミュレーションし、CeF15%程度複合樹脂を、回収率 60%以上、純度 80%以上となることを確認した。一方で、普及を見据えた課題としては、濃度別の判定や色味、樹脂種などの影響を加味した判別精度の向上と可能性の見極めが重要であることが分かった。

(ii)CeF 複合樹脂の資源循環システムへの影響評価

CeF 複合樹脂が家電に適応された場合の資源循環システムの影響評価を実施した。従来の選別技術では、CeF 複合/非複合を選別することは難しいため、再生時に CeF 複合樹脂が混入し、低濃度 CeF 複合樹脂が生成される可能性がある。CeF 樹脂が 10%程度普及した場合を想定すると、再生樹脂に含まれる CeF 濃度が 1%程度になり、機械物性の一部が 10～20%程度低下することがわかった。一方、CeF 複合樹脂を、単一再生樹脂から近赤外選別にて選別分離することにより CeF 濃度は 0.05%程度に抑えることが可能であり、機械物性の維持が可能であることが確認できた。

(3)LCA の検証・評価

シナリオベースの LCA を実施し、スティッククリーナーへの一部導入に対する CO₂ 排出量削減効果の算定を実施した。機能単位は、スティッククリーナーの一部分に使用する樹脂材料とし、ベースラインを ABS、評価対象を CeF 複合再生 PP とした。2030 年の普及を考慮すると年間当たりの CO₂ 削減効果は、428t-CO₂ となった。

3. 来年度の取組

複合工程の開発では、抽出した課題の解決に向け、再生樹脂の作製条件出しと最適化を実施し、再生樹脂の物性を踏まえた適応商品・部品の検討を行う。また事業成立性を確認する。選別工程の開発では、ハイパースペクトルカメラを用いた判別技術の見極めを実施した後、搬送速度 3m/s での高速選別工法の確立に取り組む。また、資源循環システムへの影響評価については繰り返し成形の影響、LCA については対象製品を増やした評価を実施する。

**FY2020 Verification Project for Building a Resource Recycling System for
Plastics and other Materials to Support a Carbon-free Society
(Verification of Application Technology for Recycled Bio-derived Composite
Resin)**

Results report summary

1. Objectives of the Operation

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

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

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

2. Description of the Operation

(1) Development of a process to compound CeF and resins recycled from home electrical appliances

In compounding waste plastic derived from used and disposed home electrical appliances (recycled PP) with CeF, we established a compounding process applicable to home electrical appliances by varying various conditions such as kneading conditions, additive formulations,

and CeF types, with the content of CeF mainly around 15%. For recycled PP, we developed the optimal compounding conditions and completed the first product adaptation verification by molding prototypes of resin parts for an actual product (stick cleaner) to assess its applicability to products.

Regarding CeF composite PS resin, we examined the behavior of physical properties under kneading conditions with additives such as compatibilizing agents and dispersants, as well as CeF types.

During the above verification process, we observed the CeF behavior in detail using TEM, etc., considered the correlation with the behavior of the physical properties, and formulated measures for further improvement.

(2) Development of a sorting process and evaluation of the impact to the resource circulation system

(i) Development of a sorting process

With the aim to establish a sorting method that can sort composite resins containing around 15% of CeF with a collection rate of 60% or higher and collected resin purity of 80% or higher, we discovered that concentration-specific identification of CeF is possible as a result of adding CeF composite samples containing recycled materials as the base material to expand the identification database of near-infrared spectrometer this fiscal year. We also verified identification under high-speed transfer using hyper spectral cameras, simulated shooting down with an air nozzle using the results, and confirmed that the collection rate of composite resin containing around 15% of CeF is 60% or higher and the collected resin purity is 80% or higher. Meanwhile, there are issues for common use. We found that improvement of identification accuracy by adding concentration-specific identification as well as the influence of color tone and type of resin and also the determination of possibilities are important.

(ii) Evaluation of the impact of CeF composite resins to the resource circulation system

We evaluated the impact of CeF composite resins to the resource circulation system if they are applied to home electrical appliances. As it is difficult to sort resins containing/not containing CeF using the conventional sorting technology, CeF composite resins may get mixed in the

recycling process, generating low-concentration CeF composite resins. We discovered that the concentration of CeF contained in recycled resins will be around 1% and some mechanical properties will decline by around 10 to 20% when assuming that CeF resins become common by around 10%. On the other hand, we confirmed that the CeF concentration can be reduced to around 0.05% by selectively sorting CeF composite resins from single recycled resin via selection using near-infrared rays so that mechanical properties can be maintained.

(3) Verification and evaluation of LCA

We carried out a scenario-based LCA and calculated the CO₂ emission reduction effect of partial introduction to stick cleaners. The functional unit was resin material used in some parts of stick cleaners, the baseline was ABS, and the evaluation target was a recycled PP with CeF composite. When assuming that it will be commonly used by 2030, the annual CO₂ reduction effect is 428t-CO₂.

3. Initiatives to be Carried Out in the Next Fiscal Year

For the development of a composition process, in order to solve the extracted issues, we will determine and optimize conditions to create recycled resins and examine applied products and parts considering physical properties of recycled resins. We will also check if it will be viable as a business. For the development of a sorting process, we will check the identification technology using hyper spectral cameras and then work on the establishment of a high-speed sorting method at a 3 m/s of transfer rate. Concerning the evaluation of the impact to the resource circulation system, we will evaluate the impact of repeated molding. Concerning LCA, we will perform evaluations on more products.

目次

成果報告書概要	i
Results report summary	iii
1. 業務の目的	1
2. 業務の内容	2
2.1. セルロースファイバーと家電リサイクル樹脂の複合工程の開発	2
2.1.1. 緒言	2
2.1.2. アプローチ	4
2.1.3. 取組結果	27
2.1.4. 結言	69
2.2. 選別工程の開発	70
2.2.1. 緒言	70
2.2.2. アプローチ	72
2.2.3. 取組み結果	82
2.2.4. 結言	106
2.3. セルロースファイバー複合樹脂の資源循環システムへの影響評価 ...	107
2.3.1. 緒言	107
2.3.2. アプローチ	107
2.3.3. 取組結果	108
2.3.4. 結言	114
2.4. LCA の検証・評価	115
2.4.1. 緒言	115
2.4.2. アプローチ	115
2.4.3. 取組結果	122
2.4.4. 結言	126
3. 来年度の取組	132
【参考文献】	133

1. 業務の目的

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

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

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

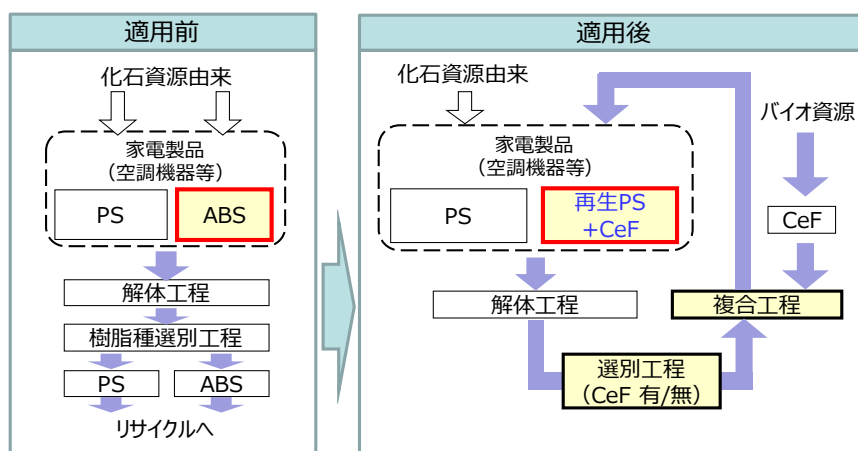


図 1-1 家電製品(空調機器等)における ABS 樹脂代替化の概要イメージ

2. 業務の内容

2.1. セルロースファイバーと家電リサイクル樹脂の複合工程の開発

2.1.1. 緒言

使用済み廃家電等から得られるリサイクル樹脂は、バージン樹脂に比べ、経年劣化や回収時の異物混入が原因となって、特に機械的強度等の性能が低下する。また、その特性はリサイクル樹脂そのものの品質面のバラつきが大きく影響している。一方、化石資源由来の材料を削減し、CO₂排出を削減するためには、バイオ由来プラスチックの製品活用推進だけでなく、単一リサイクル樹脂とバイオ由来材料を複合化させ、製品へ戻す取組み推進が肝要である。バイオ由来材料を複合化したリサイクル樹脂が、製品が必要とする性能を維持・向上させ安定させるためには、バイオ由来材料を効果的に複合させる技術が必要となる。製品に求められる特性に合致するセルロースファイバー(CeF)の均一分散のための解繊や混練などの工法条件の確立が課題と考える。その実施には、CeFと樹脂との性状や特性を把握した上で、相溶化剤や分散剤などの添加剤を含む、原材料間の最適な選定・調合・組み合わせを行う必要がある。また、原材料に対して、適正な加熱・混練の基本プロセス条件を見出し、製品に要求される特性や耐久性を十分に満たす量産プロセスの確立、最適化を行わなければならない。

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

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

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

本取組では、家電リサイクル法により回収した廃家電由来の樹脂部品から選別・回収した PP 樹脂、PS 樹脂に対し CeF を複合化して物性を向上させることを最終ターゲットとする。なお、樹脂に複合化させる CeF の形態については、繊維径 1～100 μ m 程度、あるいは等価粒子径 1～40 μ m のものを検証しているが、総じてセルロースファイバー：CeF と称することにする。

2.1.2. アプローチ

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

本実証における各年度のおおまかな予定は下記のとおりである。

令和元年度：使用済み廃家電由来樹脂(PP, PS)を主原料とし、セルロースファイバーの含有量を主パラメーターとする樹脂混練条件で、試作を行い、再生樹脂の機械的物性の挙動を把握し、セルロースファイバーの添加効果をまとめる。

評価データの蓄積を行い、家電製品に適用可能な複合条件を見出す。

適正な複合条件を見出すための情報を収集し、工法最適化に活用する。

令和2年度：使用済み廃家電(冷蔵庫)由来のリサイクルPP樹脂を主原料とするCeF複合PP再生樹脂を選定した小物家電商品(スティッククリーナー)の実証で、製品実用性を確認する。

バージンPSを主原料とするCeF複合樹脂の継続的な特性改善と、リサイクルPS樹脂への複合条件の適用検証を実施する。

コスト目標設定(500円/kg以下)と低減策出しを行う。

製品適用に必要なCeFの要件(コスト、性能など)の見極めを実施する。

令和3年度：

PP樹脂：

使用済み廃家電(洗濯機もしくは冷蔵庫)由来のリサイクルPP樹脂を主原料とするCeF複合PP再生樹脂を、選定した大物家電製品(洗濯機もしくは冷蔵庫)の部品実証で、製品適用性を確認する。

コスト目標設定(500円/kg以下の目途が立ち、更なるコストダウン1/2を目指す)と材料費低減策案出しを行う。

製品適用に必要なCeFの要件(コスト、性能など)等、事業成立性の評価、見極めを行う。

PS樹脂：

再生PSを主原料とするCeF複合樹脂の継続的な特性改善に基づ

き、成形部品での製品適用性の可否を判断する。

令和元年度の実施結果として、

- ・冷蔵庫 PP を素材とした CeF 複合条件の導出を図ることができた。
- ・PS 用相溶化剤、分散剤単体の効用度の把握を完了した。
- ・CeF 再生樹脂の特許調査を実施し、関連特許はないことがわかった。

2.1.2.1. 使用設備

1) 混練押出機(少量試作用・量産試作用)

少量試作用の外観を図 2-1 に示す。

メーカー：(株)テクノベル、品番：KZW15TW-45

スクリー：φ15mm、 L/D=45

少量多種の加工に効率が良く、混練性能の高い同方向回転 2 軸押出機を使用した。



図 2-1 試作 2 軸混練押出機

CeF 複合樹脂の量産試作に使用した、量産用 2 軸混練押出機の外観を図 2-2 に、材料供給機を図 2-3 に示す。

メーカー：東芝機械、品番:TEM-58SSG

スクリー径：φ58mm



図 2-2 量産 2 軸混練押出機

素材用



CeF用



改質剤用1



改質剤用2



無水マレイン酸用



図 2-3 量産 2 軸混練押出機 の材料供給機

2) 成形機(試験片ダンベル成形用)

射出成形機の外観を図 2-4 に示す。

メーカー：東洋機械金属(株)、 品番：SI-50V

金型は ISO 金型タイプ A を使用して、多目的試験片を成形する。

・機械物性等試験片：JIS K7139 タイプ A1 多目的試験片(t=4mm)



図 2-4 射出成形機

2.1.2.2. 物性試験および装置

今回の機械物性、物理物性、熱特性等の特性評価として下記の物性値を測定した。

- A) 比重
- B) MFR(メルトフローレート)
- C) 引張降伏応力(引張強さ),引張降伏ひずみ
- D) 曲げ強さ、曲げ弾性率
- E) シャルピー衝撃強さ(ノッチ付)
- F) 荷重たわみ温度(熱変形温度)

これら機械物性、物理物性、衝撃特性を試験測定し、CeF 種や含有濃度と添加剤種の違いによる特性を評価した。熱特性・物理特性としての MFR(メルトフローレート)は、流れ性、成形性の判断基準として評価される。

測定装置の外観を図 2-5 に示す。

MFR



引張り、曲げ強さ



シャルピー衝撃強さ



荷重たわみ温度



図 2-5 物性測定装置

表 2-1 から表 2-6 に、CeF+PP 樹脂における各試験項目及び試験条件を示す

表 2-1 PP の比重試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7112 (ISO 1183) 準拠 A法
測定項目	比重
試験片形状	JIS K 7139 タイプA1形 多目的試験片 (L=170)
試験条件	(多目的試験片の中央部10mmをカットし、10×10mmの試験片を3個作製する) 測定数 ; n=3
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 D-H100

表 2-2 PP の MFR 試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7210-1(ISO 1133-1) 準拠 A法
測定項目	MFR
試験片形状	ペレット形状
試験条件	予熱時間 ; 5分 試験温度 ; 230℃ 荷重 ; 2.16kg 測定数 ; n=1
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	タカラ L244

表 2-3 PP の引張試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7161-2 (ISO 527-2)準拠
測定項目	引張強さ、引張伸び
試験片形状	JIS K 7139 タイプA1形 多目的試験片 (L=170)
試験条件	試験速度 ; 50mm/min (強さ・伸び) 荷重 ; 2kN チャック間距離 ; 115mm 測定数 ; n=10
試験環境	(23±2)°C、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 VG20E

表 2-4 PP の曲げ試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7171 (ISO 178)準拠、3点曲げ試験
測定項目	曲げ強さ、曲げ弾性率
試験片形状	JIS K 7139 タイプA1形 多目的試験片 (L=170)
試験条件	試験速度 ; 2mm/min 荷重 ; 200N 支点間距離 ; 64mm 圧子及び支持台半径 : 5mm 測定数 ; n=5
試験環境	(23±2)°C、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 VG20E

表 2-5 PP のシャルピー衝撃試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7111-1(ISO 179-1) 準拠
測定項目	シャルピー衝撃強さ(ノッチ付)
試験片形状	JIS K 7139 タイプA1形 多目的試験片(L=170)
試験条件	(ノッチ付；試験片平行部からノッチングツールでノッチ加工を施す) 持ち上げ角度 ; 150度 公称振り子エネルギー ; 2.0J 測定数 ; n=10
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 DG-UB

表 2-6 PP の荷重たわみ温度試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7191-2 (ISO 75-2) 準拠
測定項目	荷重たわみ温度
試験片形状	JIS K 7139 タイプA1形 多目的試験片(L=170)
試験条件	(試験片平行部から80×10×t4mmを作成) 試験片方向；フラットワイズ 曲げ応力：0.45MPa 支点間距離：64mm 昇温速度：120℃/h 規定たわみ：0.34mm 熱媒体：シリコーンオイル 測定数：n=3
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 3M-2

表 2-7 から表 2-12 に、CeF+PS 樹脂における各試験条件、測定条件の詳細を示す。

表 2-7 PS の比重試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7112 (ISO 1183) 準拠 A 法
測定項目	比重
試験片形状	JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片(L=170)
試験条件	(多目的試験片の中央部 10mm をカットし、 10×10mm の試験片を 3 個作製する) 測定数 ; n=3
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	東洋精機 D-H100

表 2-8 PS の MFR 試験項目及び条件

試験方法	JIS K 7210-1(ISO 1133-1) 準拠 A 法
測定項目	MFR(メルトフローレート)
試験片形状	ペレット形状
試験条件	予熱時間 ; 5 分 試験温度 ; 200℃ 荷重 ; 5.0kg 測定数 ; n=1
試験環境	(23±2)℃、(50±5)%RH
測定装置	タカラ L244

表 2-9 PS の引張試験項目および条件

試験方法	JIS K 7161-2 (ISO 527-2)準拠
測定項目	引張強さ、引張伸び
試験片形状	JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片(L=170)
試験条件	試験速度 ; 50mm/min(強さ・伸び) 荷重 ; 10kN チャック間距離 ; 115mm 測定数 ; n=10
試験環境	(23±2)℃、 (50±5)%RH
測定装置	東洋精機 VG20E

表 2-10 PS の曲げ試験項目および条件

試験方法	JIS K 7171 (ISO 178)準拠、3点曲げ試験
測定項目	曲げ強さ、曲げ弾性率
試験片形状	JIS K 7139 タイプ A1 形 多目的試験片(L=170)
試験条件	試験速度 ; 2mm/min 荷重 ; 200N 支点間距離 ; 64mm 圧子及び支持台半径 ; 5mm 測定数 ; n=5
試験環境	(23±2)℃、 (50±5)%RH
測定装置	東洋精機 VG20E

表 2-11 PS のシャルピー衝撃試験項目および条件

試験方法	JIS K 7111-1(ISO 179-1) 準拠
測定項目	シャルピー衝撃強さ(ノッチ付)
試験片形状	JIS K 7111-1(ISO 179-1)/1eA ※多目的試験片平行部からノッチングツールによるノッチ加工付試験片を作製
試験条件	持ち上げ角度 ; 150 度 公称振り子エネルギー ; 2.0J 測定数 ; n=10
試験環境	(23±2)℃、 (50±5)%RH
測定装置	東洋精機 DG-UB

表 2-12 PS の荷重たわみ温度測定試験項目および条件

試験方法	JIS K 7191-2 (ISO 75-2) 準拠
測定項目	荷重たわみ温度(多目的試験片平行部から作製)
試験片寸法	80×10×t4 (mm)
試験条件	試験片方向 ; フラットワイズ 曲げ応力 ; 1.80MPa 支点間距離 ; 64mm 昇温速度 ; 120℃/ h 規定たわみ ; 0.34mm 熱媒体 ; シリコーンオイル 測定数 ; n=3
測定装置	東洋精機 3M-2

2.1.2.3. PP 樹脂への CeF 複合化

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

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

- ・ CeF 含有濃度：0、1～20%
- ・ 混練機(試作機)：2 軸混練押出
- ・ 混練機(量産機)：2 軸混練押出
- ・ 混練温度：
- ・ ベース樹脂：バージン PP 樹脂 3 種

廃家電由来 PP 樹脂 2 種(冷蔵庫由来：RF、洗濯機由来：WM)

・ 相溶化剤・分散改質剤：無水マレイン酸変性 PP (MAPP または PP-MAH)
等

- ・ CeF：現行品(針葉樹由来パルプの解砕品)を含む数種類
- ・ 試作条件数：206

各種物性測定のための試験片を作製した。作製試験片は下記の通りである。

- ・ 機械物性等試験片：JIS K 7139 タイプ A1 (ISO)多目的試験片(t=4mm)

2.1.2.2 の、表 2-1～表 2-6 の測定試験方法に従い物性・特性を評価し、最適な複合条件を導出した。

2.1.2.4. 製品適用事例の検証(CeF複合再生PP樹脂を使用した実製品試作)

前項でのPP樹脂へのCeF複合化条件により、実商品のスティッククリーナーの樹脂部品を成形試作し、成形性等の検証を実施した。

- ・成形性・成形条件：現行量産品と同一成形条件で問題なく成形可能か。
- ・外観・異物検査：異物・黒点等が規定個数以上ないか。
- ・組立性：量産品と同等の組立性か。

(i) 量産2軸混練押出機によるCeF複合再生PPの混練

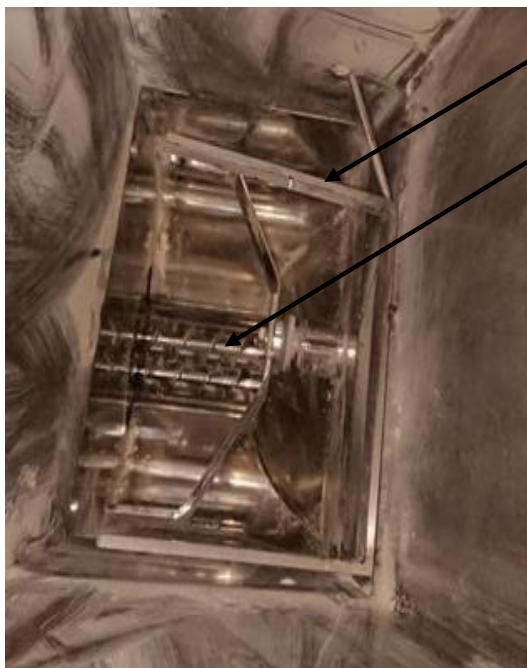
1) 装置の改造

令和元年度成果報告書「2.1.3.1 PP樹脂へのCeF複合化」の「4)量産混練条件」で課題であった13.5%以上のCeF供給については、図 2-6 の改造を行い対応した。一つ目の改造内容は、スクリュウ形状の検討である。形状の違うもので試作を繰り返しCeFの供給に最適な形状のものに変更した。二つ目の改造内容は、CeFの詰りを防止する為にアジテーターを新たに取り付けた。これらの改造により、量産2軸混練押出機で工業グレード粒径24 μ m以上のCeFを使用し20%配合までの試作が可能となった。

CeF用材料供給機



改造部(供給機内部)



アジテーター

スクリュー

アジテーター用モーター



図 2-6 CeF 用材料供給機の改造

2) 混練条件

量産 2 軸混練押出機加工条件は、表 2-13 に示す。

CeF 複合再生 PP の加工において、設備の安定稼働、材料の安定供給を可能とするために、ヒーター温度は、スクリュウの混練位置に対応したヒーター温度を 170℃から 190℃で設定した。次に材料供給量については、連続生産性と CeF の分散性から 35kg/h を最適材料投入量とした。製品適用検討用 CeF 複合再生 PP ペレットのフィルター目開きは、0.253mm を使用した。

表 2-13 量産 2 軸混練押出機条件

	設定
量産2軸混練押出機ヒーター温度	170～190℃
材料投入量	350kg/h
フィルター目開き	0.253mm

2.1.2.5. PS 樹脂への CeF 複合化

昨年度、廃家電由来 PS 樹脂について、PS 樹脂よりも比較的高価な ABS 樹脂への代替を目指して、物性の向上を図るための処方・工法・工程の開発検証を実施した。しかし、分散剤、相溶化剤、エラストマー等の効能の基礎検証が十分でなかったため、本年度はそれら添加剤の効能検証のため、ベースの PS 樹脂中への CeF の分散性・相溶化性の検証を実施した。すなわち、CeF 複合化 PS 樹脂(CeF+PS 樹脂)の物性維持向上を目的として、CeF と PS 樹脂の分散剤、相溶化剤、エラストマー等の混練・複合化条件の試作検証を実施した。複合化工程の条件は下記の通りである。

- ・ CeF 含有濃度：0、1～20%
- ・ 混練機(試作機)：2 軸混練押出
- ・ 混練温度：
- ・ ベース樹脂：バージン PS 樹脂(PS H9152)
- ・ 相溶化剤・分散改質剤：無水マレイン酸変性 PP(MAPP または PP-MAH)、低分子 PS 樹脂、SEBS(スチレン・エチレン・ブチレン・スチレン)エラストマー、SBBS(スチレン・ブタジエン・ブチレン・スチレン)等
- ・ CeF：現行品(針葉樹由来パルプの解砕品)を含む数種類
- ・ 試作条件数：137

PS 樹脂への相溶化剤、分散剤としては下記 3 種を主体にそれらの組合せや下記エラストマーでのブタジエン濃度等も変えて、検証した。

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

各種物性等のための試験片を作製した。作製試験片は下記の通りである。

- ・ 機械物性等試験片：JIS K7139 タイプ A1 (ISO3167)多目的試験片(t=4mm)

2.1.2.6. 複合樹脂中の CeF 状態の観察

CeF 複合化樹脂中の CeF の大きさ・形状や分散・配向状態、凝集状況(解繊の不十分さ)などを観察し、各種物性との相関について考察・検討した。また、CeF とベース樹脂との界面状態についても観察し、同様に各種物性との相関について検討した。物性測定のサンプル試験数に対しては、まだ観察評価サンプル数が少ないため、今後、観察評価サンプル数を増やしていく予定である。

2.1.2.6.1. SEM による複合樹脂中の CeF 分散・配向状態の観察評価

CeF 複合樹脂中の CeF の状態を SEM にて観察した。

観察条件は、表 2-14 のとおりであり、観察断面の模式図を図 2-7 に示す。

表 2-14 SEM 観察条件

加速電圧	10 kV
SEM 画像	SEI(二次電子像)
観察倍率	23 倍, 100 倍, 300 倍, 700 倍
観察箇所	JIS K 7139 1A 形 多目的試験片(ダンベル試験片)中央部付近の板幅方向(樹脂流動方向に垂直面)と長手方向(樹脂流動方向に平行面)の各切断面(図 2-7)
分析装置	走査電子顕微鏡 JSM-6510LA(日本電子(株)製)
測定機関	(株)DJK

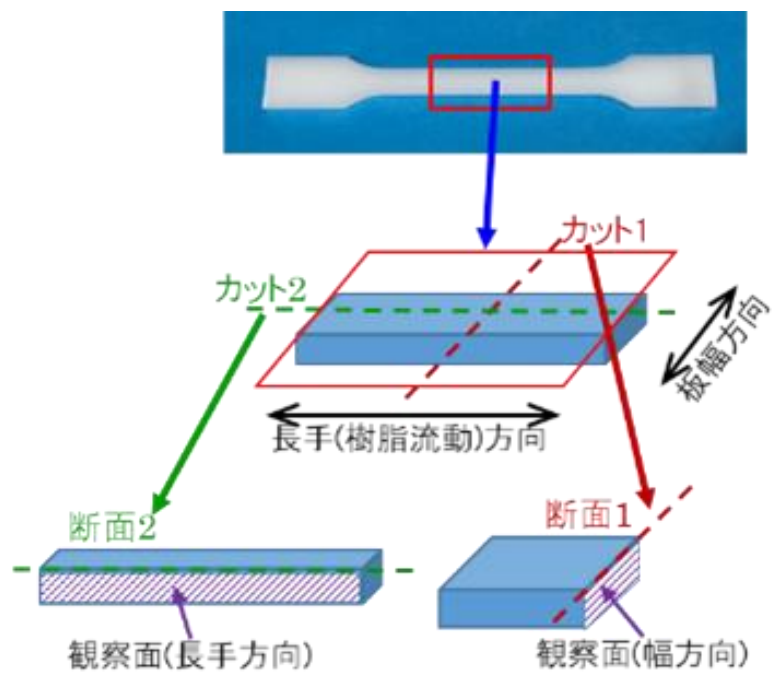


図 2-7 断面 SEM, TEM 観察面

2.1.2.6.2. TEM による複合樹脂中の CeF とベース樹脂との界面状態の観察評価

CeF 複合樹脂中の CeF および界面の状態を TEM にて観察した。前項の SEM 観察断面と同様に図 2-7 の如く試験片を切断し、樹脂流動方向である長手方向の TEM 観察を実施した。観察条件は、表 2-15 のとおりである。

表 2-15 TEM 観察条件

加速電圧	100 kV
観察倍率	写真倍率 5,000 倍, 10,000 倍, 20,000 倍, 50,000 倍
観察箇所	JIS K 7139 1A 形 多目的試験片(ダンベル試験片)中央部付近の樹脂流動方向に平行な長手方向の切断面(図 2-7)
TEM 装置	透過型電子顕微鏡(TEM) H-7650((株)日立製作所製)
測定機関	(株)三井化学分析センター

2.1.2.6.3. 放射光 X 線 CT による複合樹脂中の CeF の状態観察

CeF 複合樹脂中の CeF の状態を放射光 X 線 CT にて観察した。

観察条件は、表 2-16 のとおりであり、観察断面の模式図を図 2-8 に示す。

図の右下図が 3 次元観察画像であり、その図の青切断面が左上図、緑切断面が左下図、赤切断面が右上図である。

表 2-16 放射光 X 線 CT 観察条件

エネルギー	7～24KeV(白色光)
X 線フィルター	Al
Voxel サイズ	0.65 μ m/Voxel
観察箇所 試料調整	JIS K 7139 1A 形 多目的試験片(ダンベル試験片)中央部 付近を 1mm 角にカット
使用設備	あいちシンクロトロン放射光施設
測定機関	(株)KRI

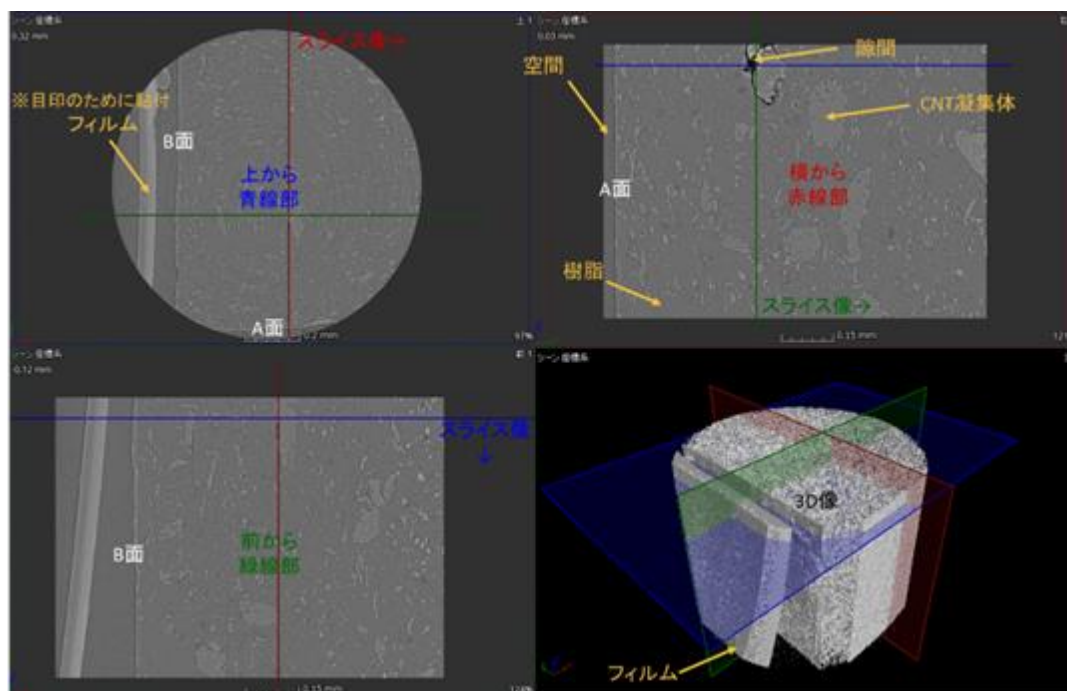


図 2-8 放射光 X 線 CT 観察画像例

2.1.2.6.4. X線CTによる in situ(イン・サイチュ：その場)引張負荷測定観察

CeF 複合樹脂中の CeF の状態を X 線 CT にて観察した。

観察条件は、表 2-17 のとおりであり、切り出した試験片サンプルの外観写真を図 2-9 に示す。この図の上下方向に引張負荷をかけ、中央の赤線で囲った領域を X 線 CT にて観察した。観察は無負荷時と、負荷荷重をかけて内部の CeF 界面や樹脂にクラックが発生し始めた時点で負荷を停止して観察した。

今回は、本分析手法が CeF 複合樹脂の評価手法の有効性検証のために 2 サンプルのみで実施した。

表 2-17 X 線 CT 分析観察条件

分析手法	X 線 CT
X 線管電圧	60kV
X 線管電流	108 μ A
ボクセルサイズ	4.1 μ m
観察箇所 試料調整	JIS K 7139 1A 形 多目的試験片(ダンベル試験片)の把持部(ゲート側)から外寸 20mm $\times$ 36mm(t=4mm)の領域を切り出し形状加工(図 2-9)
In situ 負荷	200N ～ 300N
測定装置	カールツァイス X 線 CT 装置 Xradia 620 Versa
測定機関	一般財団法人 材料科学技術振興財団(MST)

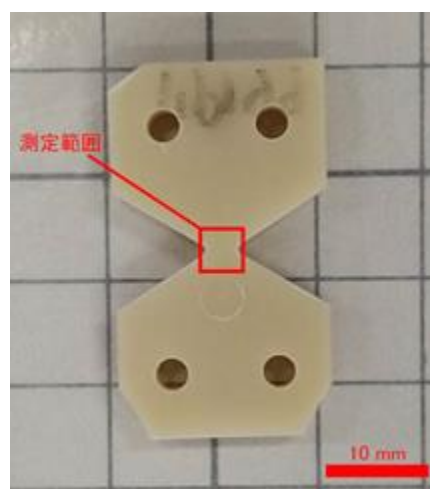


図 2-9 正面から見たサンプル外観

2.1.3. 取組結果

2.1.3.1. PP樹脂へのCeF複合化

1) CeFの選定1（小型試作用2軸混練押出機による評価）

表 2-18 に示す CeF 複合ベース樹脂の素材(ニートレジン)と、表 2-19 に示す CeF の組合せを混練し、素材に適した CeF を機械物性で評価した。評価は、ベース樹脂素材の物性値に対する保持率で検証した。材料入手の関係から、最初に現在量産で使用している CeF-1 と各素材の混練パターンを確認後、入手できた食品添加グレードや工業用途グレードなど 4 品番と、現在量産で使用している PP-2 との混練パターンを追加した。PP-1 は、主に冷蔵庫で使用されているバージン材料であり参考として記載している。今回検証した PP-2 は、主に洗濯機で使用されているバージン材料である。

なお、PP 樹脂への CeF の複合化で一般的に用いられている相溶化・分散剤(改質剤)としては、マレイン酸変性 PP を用い、添加率は 4～5phr 程度である。

表 2-18 素材一覧

項目	メーカー (リサイクル プラント)	グレード (由来)	代表物性値					
			引張強さ (MPa)	曲げ強さ (MPa)	曲げ弾性率 (MPa)	シャルピー衝撃値 (kJ/m ²)	荷重たわみ 温度(℃)	MFR (g/10min)
PP-1	プライムポリマー	J6083	27.4	38.6	1471	5.8	95	58
PP-2	日本ポリプロ	BC03C	33.7	47.9	1892	4.6	110	29
再生PP-1	パナソニックエコ	冷蔵庫(RF)	28.0	39.0	1525	6.2	99	46
再生PP-2	テクノロジーセンター	洗濯機(WM)	27.7	37.3	1459	7.5	93	20

表 2-19 CeF 一覧

セルロース繊維	参考粒度(μm)	備考
CeF-1	30～100	現行
CeF-2	37	食品添加グレード
CeF-3	37	工業用途グレード
CeF-4	24	食品添加グレード
CeF-5	6	食品素材グレード

バージン材の PP-2 に、表 2-19 の CeF の濃度を 5,10,15% および一部 20% を複合化した CeF+PP 樹脂の物性試験を実施した。図 2-10 に、曲げ弾性率の保持率の図を示す。コスト面で優位性のある CeF-3 において、物性値も他の CeF 種に比べて優位性があることがわかった。

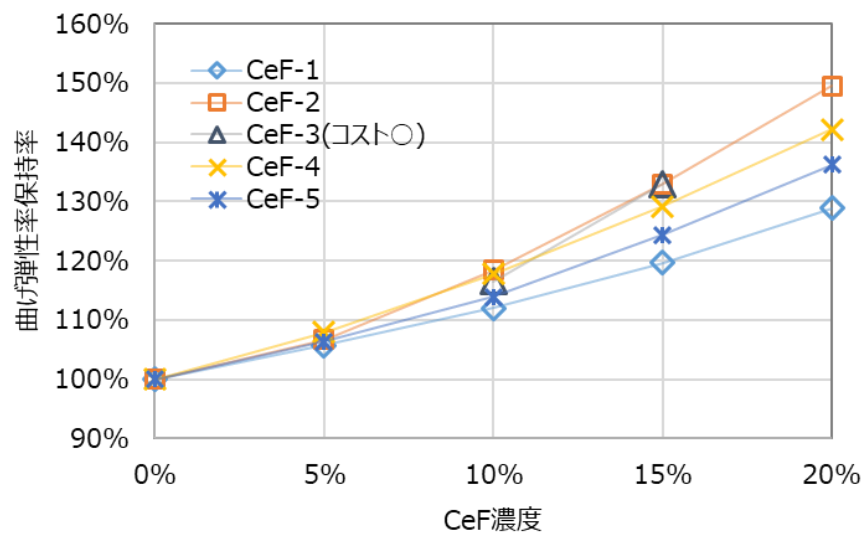


図 2-10 曲げ弾性率の保持率

曲げ強さ保持率、引張強さ保持率、シャルピー衝撃強度保持率についても、図 2-11～図 2-13 に示す。

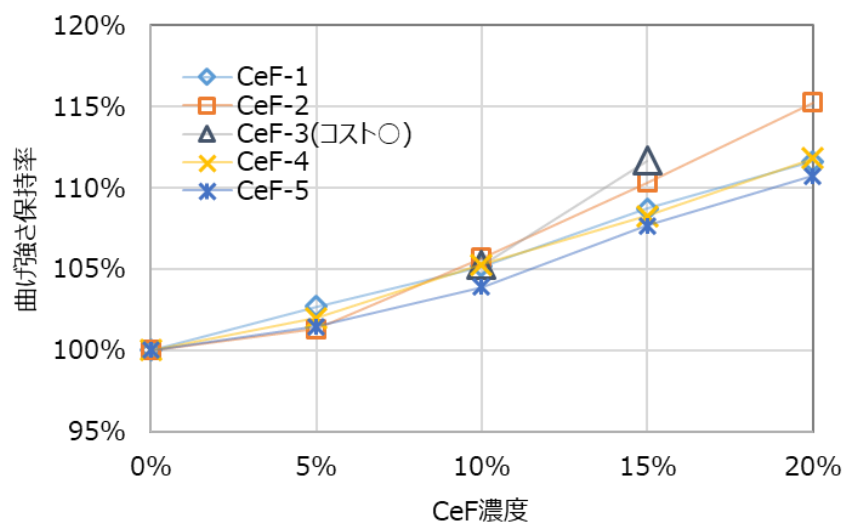


図 2-11 曲げ強さ保持率

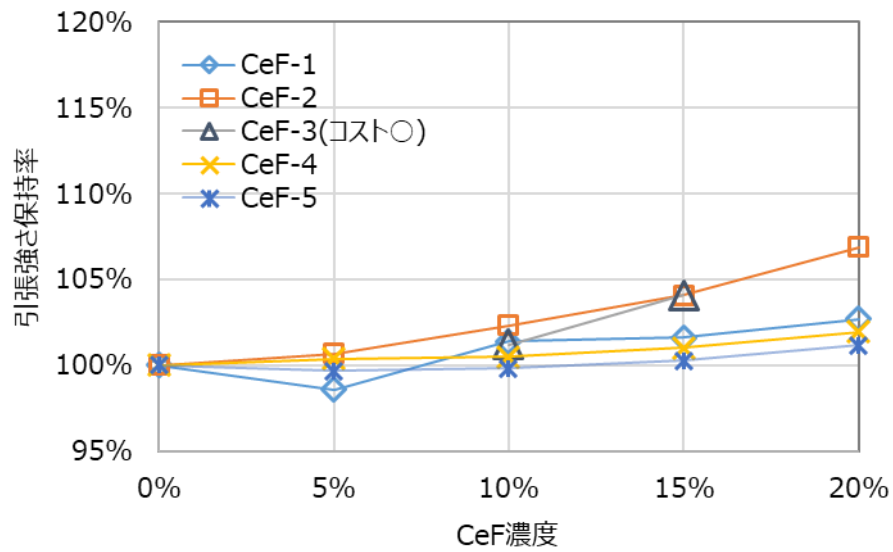


図 2-12 引張強さ保持率

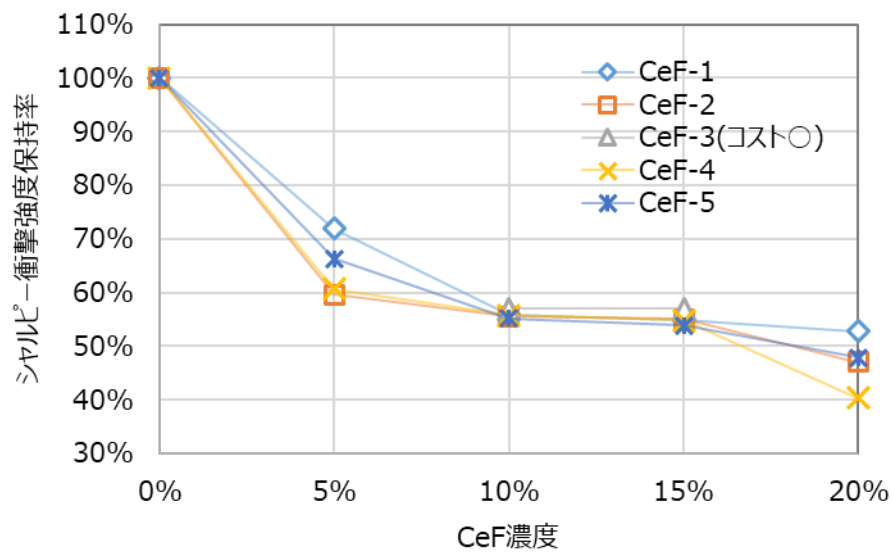


図 2-13 シャルピー衝撃強度保持率

シャルピー衝撃強度は、CeFを複合化させると大きく減少する。これに対する方策としては、後述する。

次に、再生 PP 樹脂へ CeF を複合化した場合の物性についても検証を実施した。図 2-14～図 2-16 に示す。

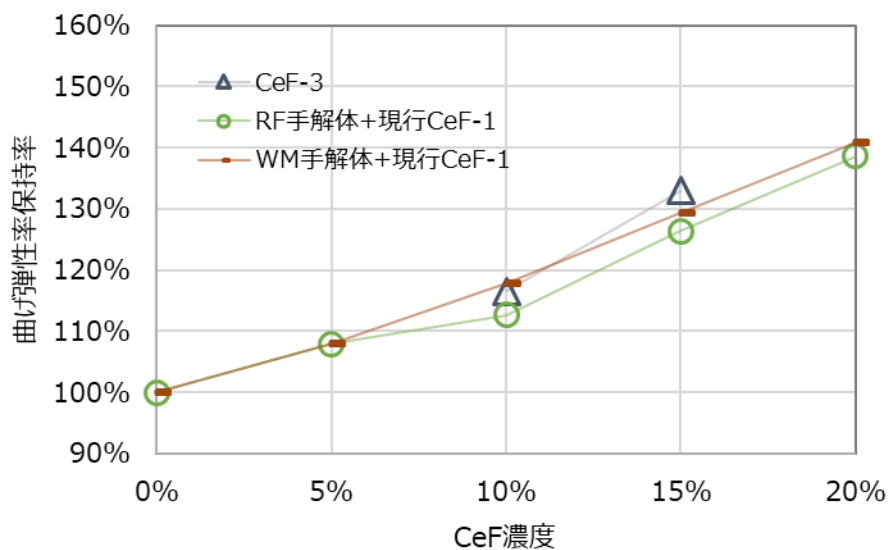


図 2-14 曲げ弾性率保持率

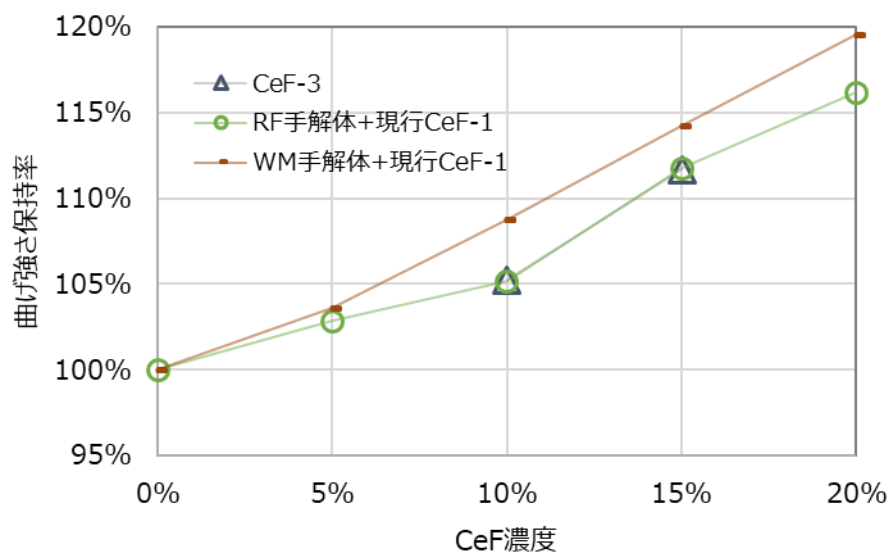


図 2-15 曲げ強さ保持率

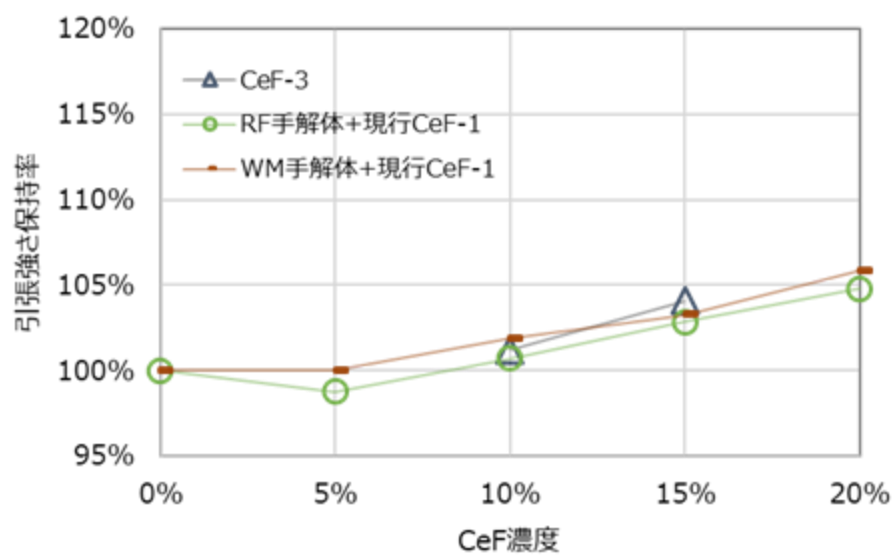


図 2-16 引張強さ保持率

CeF-3 の複合化 PP 樹脂に対して、エラストマー(SEBS)を添加した一例を図 2-17 に示す。

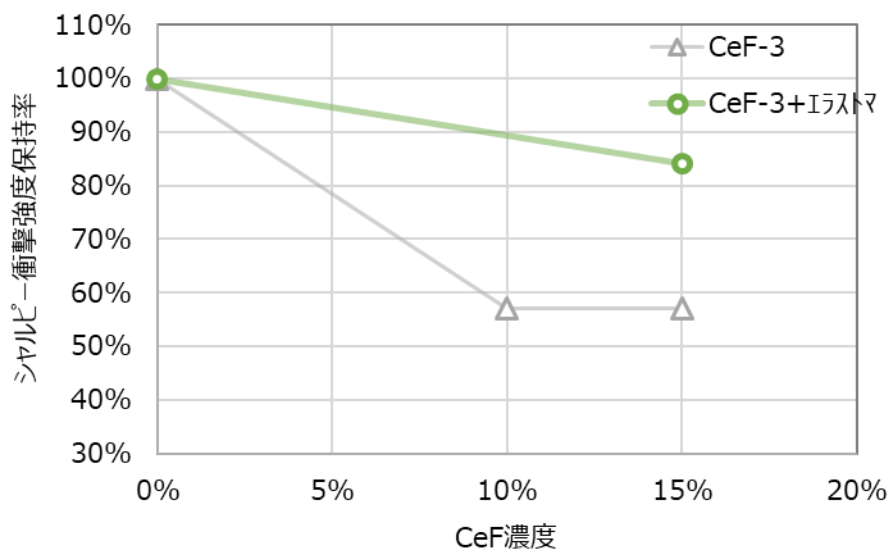


図 2-17 シャルピー衝撃強度保持率

エラストマーの添加により衝撃性が向上することが検証できたので、今後は CeF 種とエラストマー種等の組合せにより、物性とコストおよび量産性の最適な構成を見出していく。

2.1.3.2. 製品適用事例の検証(再生 PP+CeF 複合樹脂を使用した実製品試作)

上記、PP 樹脂への CeF 複合化条件により、実商品のスティッククリーナーの樹脂部品を成形試作し、成形性等の検証を実施した。

1) 機械物性

製品適用検討用 CeF 複合再生 PP ペレットおよび成形試験片での機械物性を表 2-20 に示す。比重と MFR については、スティッククリーナーの量産に使用している CeF 複合バージン PP ペレットの比重と MFR と比較して同等の値であった。曲げ強さについては、25%低下したが、曲げ弾性率は、8%向上した。シャルピー衝撃強さについては、12%向上した。

表 2-20 CeF 複合再生 PP ペレット機械物性

検査項目		測定方法	単位	CeF複合バージンPP	CeF複合再生PP
比重		JIS K 7112	—	100%	100%
MFR		JIS K 7210	g/10分	100%	100%
曲げ	強さ	JIS K 7171	Mpa	100%	75%
	弾性率	JIS K 7171	Mpa	100%	108%
シャルピー衝撃強さ (ノッチ付)		JIS K 7111	kJ/m ²	100%	112%

(CeF複合バージンPP：スティッククリーナー量産用ペレット)

2) スティッククリーナーの部品成形

●成形性・異物・組立性の検証

CeF 複合再生 PP 材料を用いた検討部品を作製するため、射出成形機にて 1 部品(ボデー部品)を成形加工し、その部品をスティッククリーナー本体に組み込んだ。ボデー部品を図 2-18 に示す。

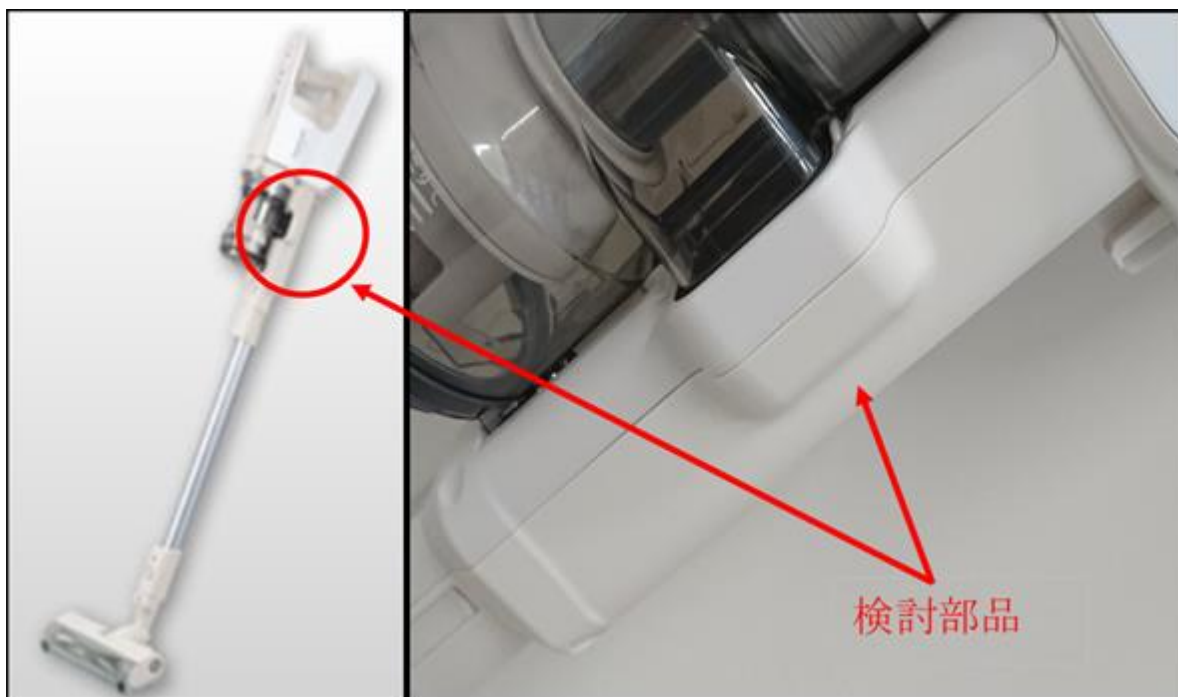


図 2-18 CeF 複合再生 PP ペレットでの成形部品

CeF 複合再生 PP サンプル作製品での検証結果を表 2-21 に示す。

成形性は、量産と同一条件で成形可能であった。異物検査については CeF 複合バージン PP(量産品)a 個以下の規格に対して、2 倍以上の異物が外観に確認された。

組立性は量産品と同等であった。

表 2-21 検証結果

部品の成形性・外観検査・組立性 (vsスティッククリーナー用量産規格)

	CeF複合バージンPP(量産品)	CeF複合再生PP
成形性	○	量産と同一条件で成形可能
異物検査	a個以下	a×2個程度
組立性	○	量産品と同等

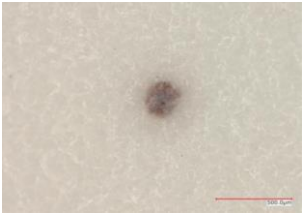
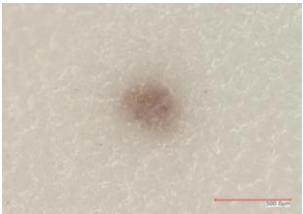
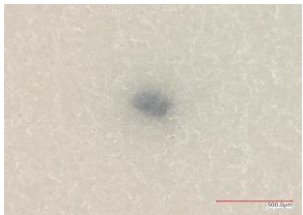
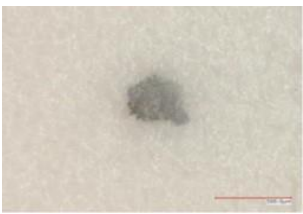
(異物検査方法：100×100mmのプレート5面を目視確認し、きょう雑物測定図表の0.3mm²以上の異物点個数を確認し1面あたりの平均値とする。)

●異物分析結果

CeF 複合バージン PP の外観面に現れる異物サンプル 10 個を採取し、異物分析した結果を表 2-22 に示す。

セルローズ由来の異物が 60%、金属系異物が 40%であった。CeF 複合再生 PP を用いると、さらに異物が増加する可能性があり、今後、異物の分析および異物が顕在化するプロセス等の検証をおこない、課題対策検討が必要である。

表 2-22 異物分析結果

分析個数：10個	セルローズ	金属
きょう雑物測定図表 0.3mm ² 以上の異物例	60%	40%
きょう雑物測定図表 0.3mm ² 以上の異物例	 	 

3) 現状の価格と事業化に向けた目標コスト

本年度の試作検討結果より導出したレシピの現状価格と事業化に向けた目標価格を表 2-23 に示す。CeF については、c 社の提供する製品がコストと物性の両立において優位であることを見出した。改質剤については、a 社の提供する製品がコストと物性の両立において優位であることを見出した。更に、a 社と b 社製品を併用することでコストと物性の両立においてより優位であることを見出した。分散剤については、a 社の提供する製品がコストと物性の両立において優位であることを見出した。現状の価格については、A レシピにおいて本年度目標コストであった 500 円/kg 以下を達成した。また、B レシピでは、更なるコストダウンの可能性を見出した。R3 年度は、事業化に向けた目標コストを 250 円/kg として更なるコストダウンを目指す。

表 2-23 レシピと目標コスト

優位度：◎>○>△

①CeF	生産国	コスト	物性
a社	日本	○	◎
b社	日本	△	○
c社	海外	◎	○～◎

②改質剤	生産国	コスト	物性
a社	海外	◎	○
b社	日本	△	○
c社	日本	○	△
a+b社	一	○～◎	◎

③分散剤	生産国	コスト	物性
a社	日本	○	○
b社	海外	△	△

CeF複合PP	①	②	③	目標コスト
Aレシピ°	a社	a+b社	a社	500円/kg以下
Bレシピ(再生)	c社	a+b社	a社	250円/kg

2.1.3.3. PS 樹脂への CeF 複合化

(1) CeF 複合化 PS 樹脂の CeF 濃度物性試験結果

表 2-19 での CeF-2 および CeF-4 を用い、相溶化剤、分散剤等の添加は行わず、PS バージン樹脂(PS ジャパン製 HIPS 樹脂 H9152)へ複合化させ、物性試験を実施した。バージン樹脂の物性に対する保持率の結果を図 2-19 に示す。

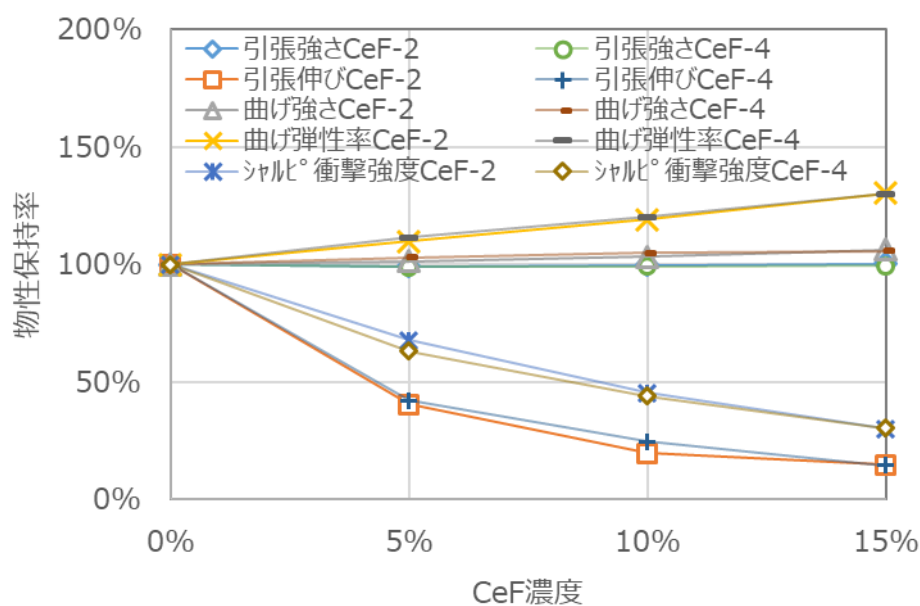


図 2-19 物性保持率

図より、PP 樹脂に比べ CeF 種の違いによる物性変化の差は少ない。一方、シャルピー衝撃強度と引張伸びが大幅に低下することがわかり、これらを改善する相溶化剤や改質剤の検証を実施した。

(2) CeF 複合化 PS 樹脂への改質剤の添加効果検証

衝撃向上への対策として、エラストマーの添加処方による物性変化の検証を実施した。表 2-24 に検証に付したエラストマー等の改質剤一覧を示す。CeF については、CeF-4 を 15%濃度で複合化させた。

表 2-24 改質検討エラストマー一覧

	メーカー	スチレン比率	備考(変性等)
TPE-1	旭化成	18%	
TPE-2	旭化成	30%	アミン変性
TPE-3	JSR	24%	
TPE-4	旭化成	20%	
TPE-5	旭化成	30%	
TPE-6	旭化成	30%	
TPE-7	旭化成	20%	酸変性

図 2-20 にエラストマー等改質剤の種別ごとに添加量を変化させ、シャルピー衝撃強さの変化を検証した。エラストマー添加量の増大により衝撃強さは向上するが、バージン素材と同等の衝撃強さを維持するには、16～17%の添加が必要であることがわかる。

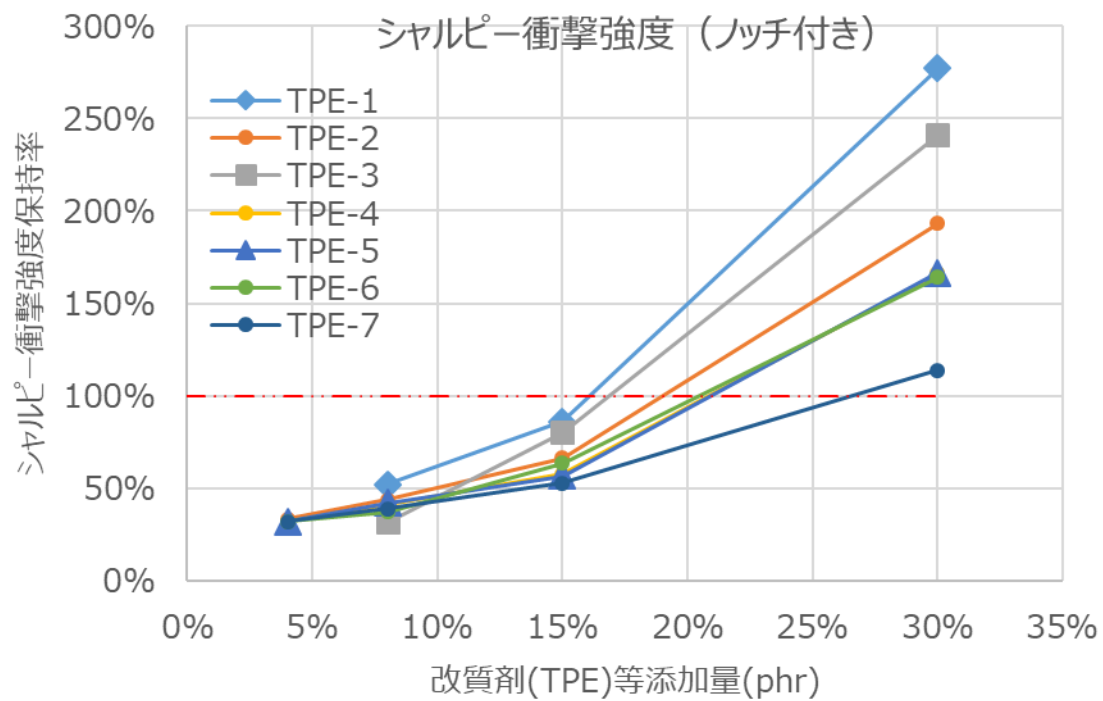


図 2-20 エラストマー等改質剤添加量とシャルピー衝撃強さの関係

一方、これらの影響に対して、曲げ弾性率や引張強さへの影響について、図 2-21、図 2-22 に示す。

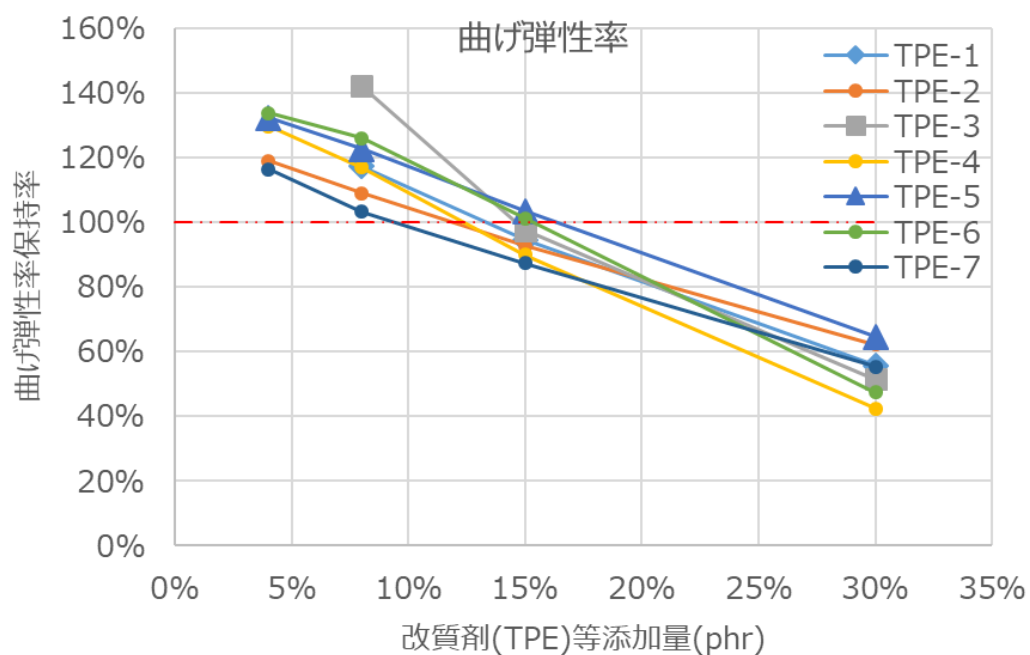


図 2-21 エラストマー等改質剤添加量と曲げ弾性率の関係

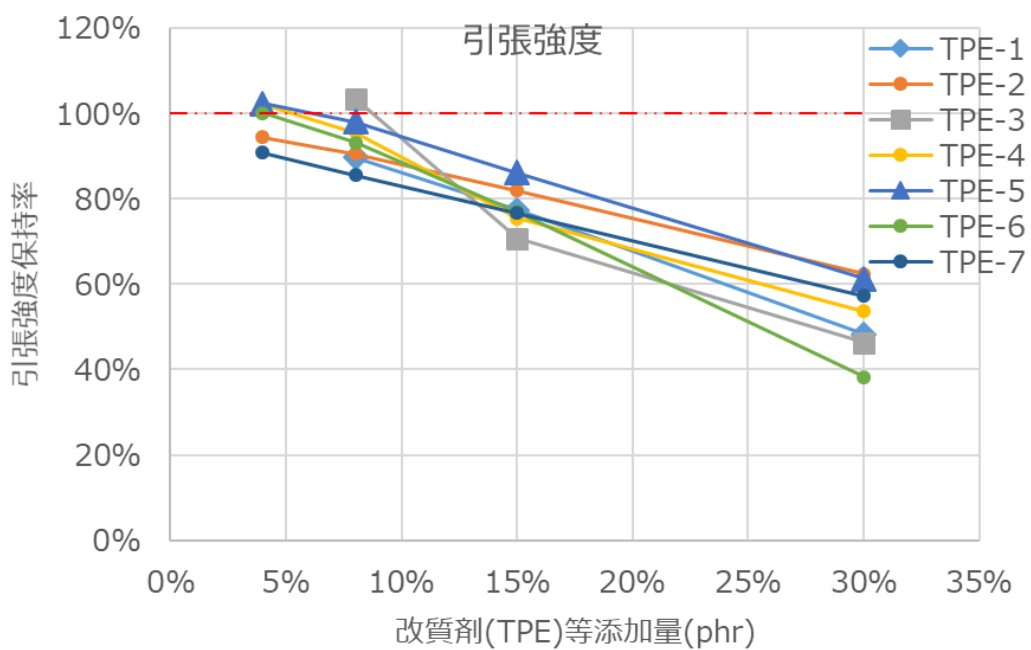


図 2-22 エラストマー等改質剤添加量と引張強さの関係

曲げ弾性率に関しては、添加量が 15%以下なら物性維持が可能であり、引張強さに関しては、添加量が 5~8%以下であれば物性維持が可能であることがわかった。これらにより、フィラー添加すると、硬さ・弾性率は向上し、引張伸びや衝撃強度は低下するというトレードオフの関係があることが検証された。

これらの結果を、CeF 濃度 15%固定で、添加剤種によるシャルピー衝撃強さと曲げ弾性率との相関性を図 2-23 に示した。

これらの結果より、シャルピー衝撃強さと曲げ弾性率において、部品による設計基準に見合った条件を見出す指標ができた。

一方、強度・弾性率と衝撃強度を両立する条件の確立のためには、更なる物性維持向上のための処方検証が必要であると考え、再生 PS 材への適用検討と共に方策立案・実証を実施していく。

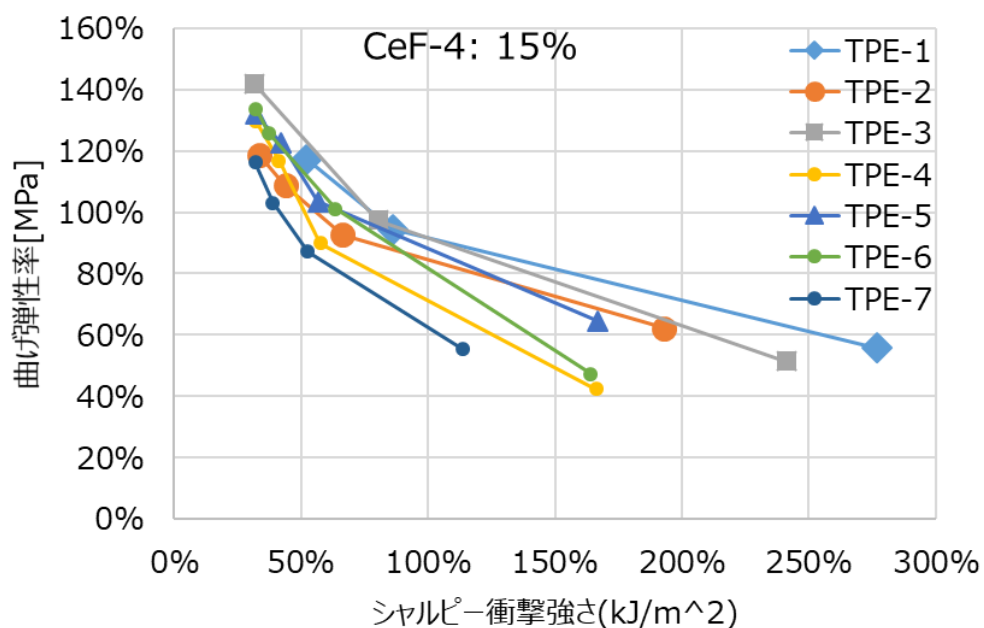


図 2-23 CeF15%濃度での添加剤種によるシャルピー衝撃強さと曲げ弾性率の関係

2.1.3.4. 複合樹脂中の CeF 状態の観察と物性との相関性検証

2.1.3.4.1. SEM による複合樹脂中の CeF 分散・配向状態の観察評価

(1) CeF 複合 PP 樹脂中の CeF 状態観察結果

SEM 観察サンプルの一覧を、表 2-25 に示す。

なお、今回、ベース樹脂はバージン PP(日本ポリプロ製 BC03C)の 1 種であり、TPE(エラストマー)は添加していない。

表 2-25 SEM 観察サンプル一覧表(CeF+PP)

	試作番号	セルロース	分散改質剤
1	19PP-34	CeF-1(15%)	なし
2	19PP-39	CeF-1(15%)	MAPP(100TS)(5%)
3	20PP-197	CeF-6(20%)	なし
4	20PP-198	CeF-6(20%)	MAPP(100TS)(5%)
5	20PP-205	CeF-7(20%)	なし
6	20PP-206	CeF-7(20%)	MAPP(100TS)(5%)

観察結果画像を図 2-24 から図 2-27 に示す。

試験片の長手方向(樹脂流動方向に平行)を MD と、幅方向(樹脂流動方向に垂直)を TD と記している。

倍率 100 倍以上の観察画像からわかるように、MAPP ありの条件では、MAPP なしの場合に比べて、CeF の凝集も少なく、分散度合も良いことがわかる。これらにより、物性の維持向上が図れていることが推察できる。

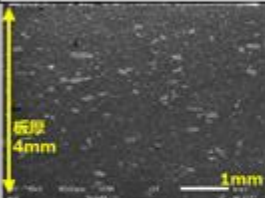
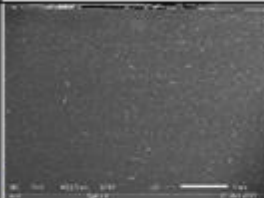
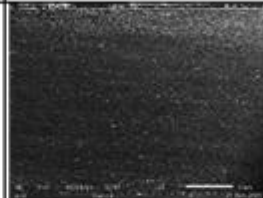
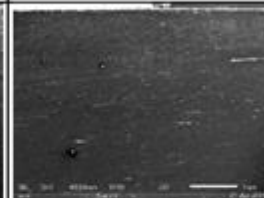
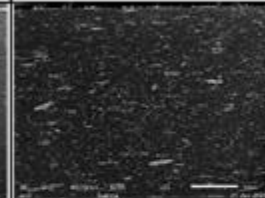
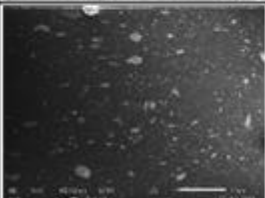
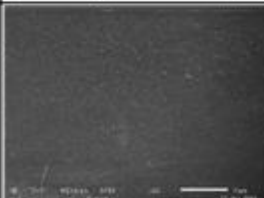
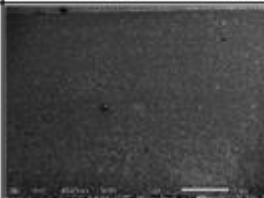
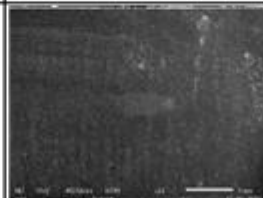
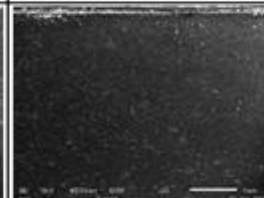
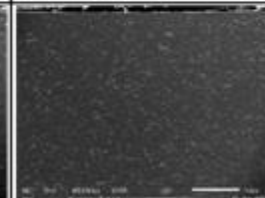
SEM	19PP-34	19PP-39	20PP-197	20PP-198	20PP-205	20PP-206
	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり
MD (長手) 23倍						
TD (幅) 23倍						

図 2-24 SEM 観察結果(CeF+PP, 23 倍)

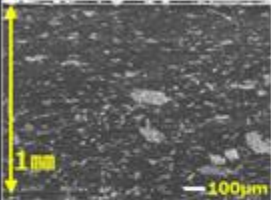
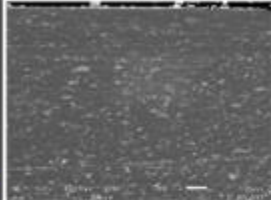
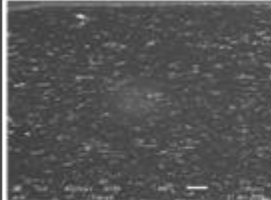
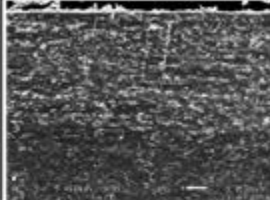
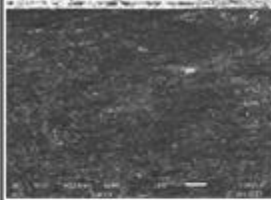
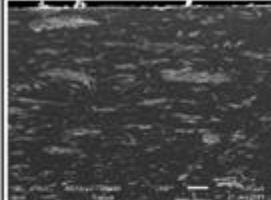
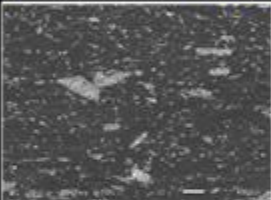
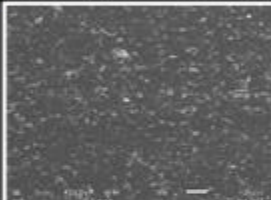
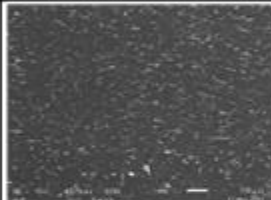
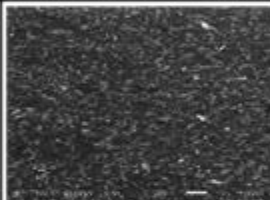
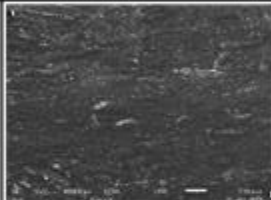
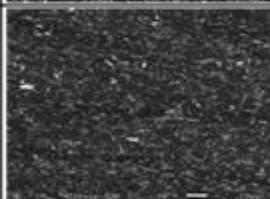
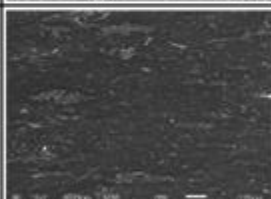
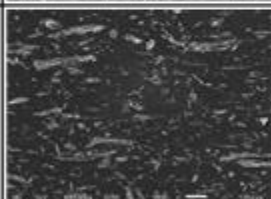
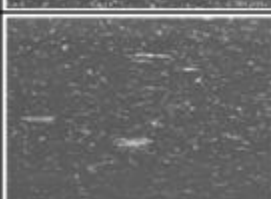
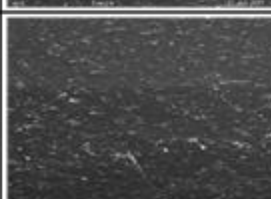
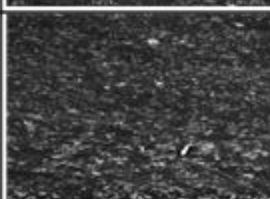
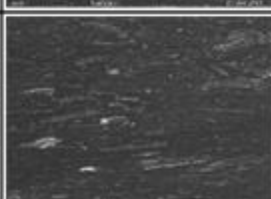
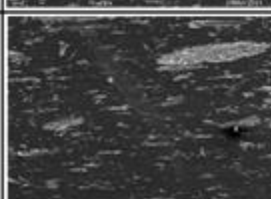
SEM	19PP-34	19PP-39	20PP-197	20PP-198	20PP-205	20PP-206
長手 方向	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり
MD 100倍 1 (上端 :壁面)						
MD 100倍 2						
MD 100倍 3						
MD 100倍 4 (下端 :壁面)						

図 2-25 SEM 観察結果(CeF+PP, 100 倍 長手方向)

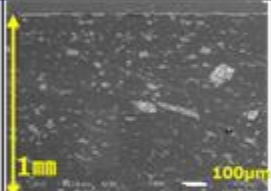
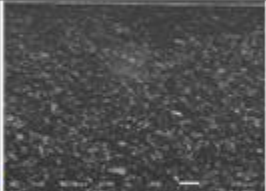
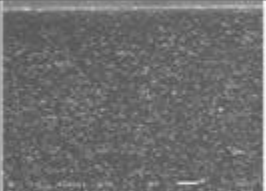
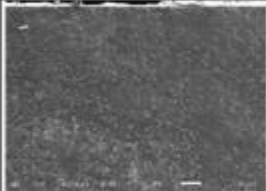
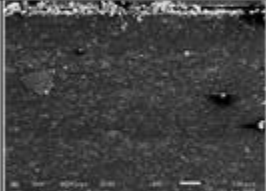
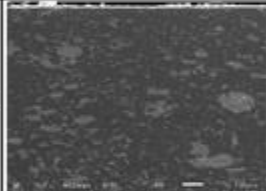
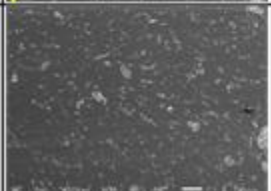
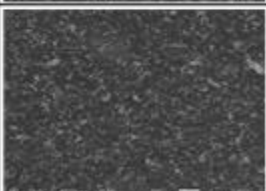
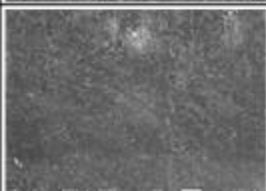
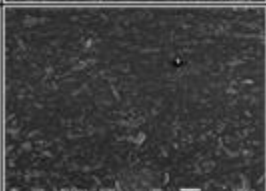
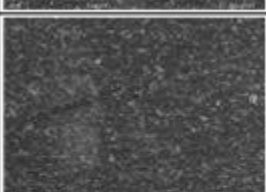
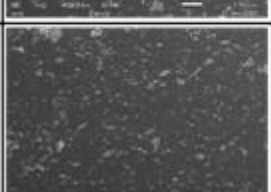
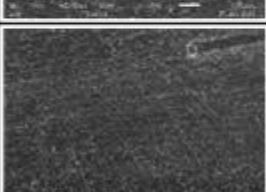
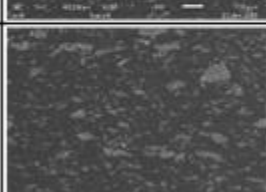
SEM	19PP-34	19PP-39	20PP-197	20PP-198	20PP-205	20PP-206
幅方向	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり	MAPPなし	MAPPあり
TD 100倍 1 (上端 :壁面)						
TD 100倍 2						
TD 100倍 3						
TD 100倍 4 (下端 :壁面)						

図 2-26 SEM 観察結果(CeF+PP, 100 倍 幅方向)

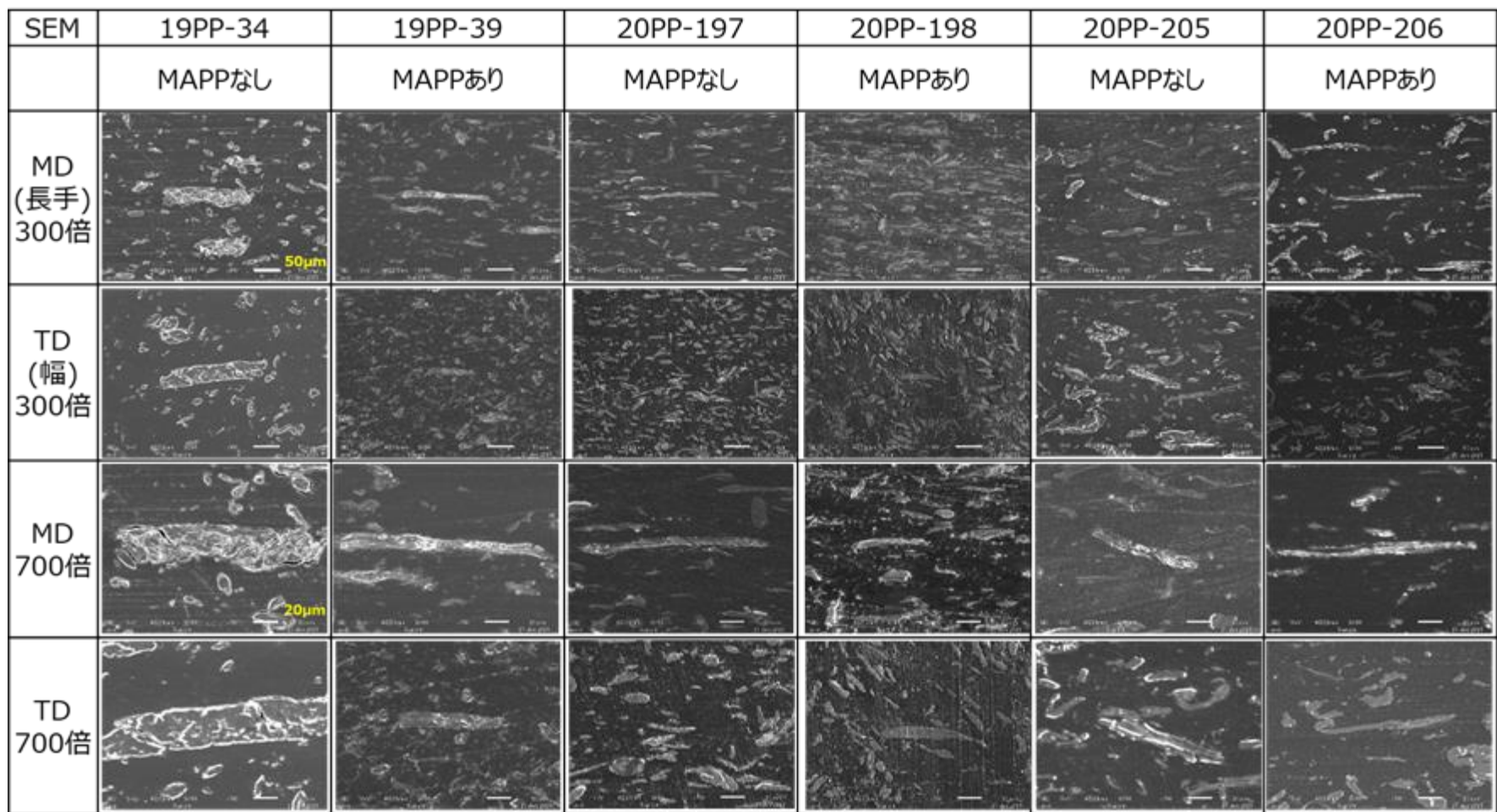


図 2-27 SEM 観察結果(CeF+PP, 300 倍, 700 倍)

(2) CeF 複合 PS 樹脂中の CeF 状態観察結果

SEM 観察サンプルの一覧を、表 2-26 に示す。

ベース樹脂はバージン PS(PS ジャパン製 HIPS H9152)の 1 種類であり、TPE(エラストマー)は添加していない。

表 2-26 SEM 観察サンプル一覧表(CeF+PS)

	試作番号	セルロース	分散改質剤
1	19PS-4	CeF-2(15%)	なし
2	19PS-16	CeF-4(15%)	低分子量 PS(2%)
3	20PS-89	CeF-4(15%)	SEBS (8%)
4	20PS-90	CeF-4(15%)	SEBS (15%)
5	20PS-113	CeF-4(15%)	低分子量 PS(2%), SEBS(15%)

観察結果画像を図 2-28 から図 2-31 に示す。

試験片の長手方向(樹脂流動方向に平行)を MD と、幅方向(樹脂流動方向に垂直)を TD と記している。

これらの結果によると、低分子量 PS を添加したものが、CeF の解繊・分散が良好であることがわかる。SEBS の添加の場合は、総じて添加剤なしに比べれば、CeF の分散状態は良好であるが、一部、凝集部があることがわかる。また、低分子量 PS ほどは、解繊・分散は良好でないことがわかった。これらの結果と機械物性の相関を今後更に検討し、物性維持向上の処方・工法の検討を進めていく。

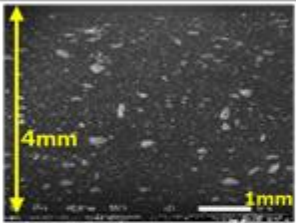
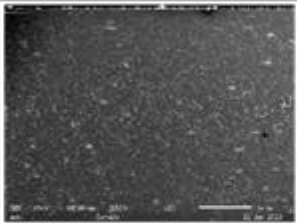
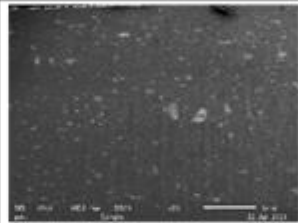
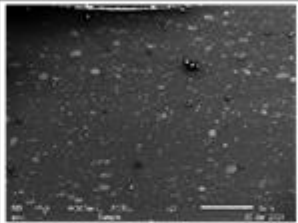
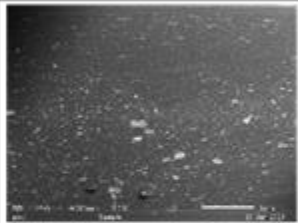
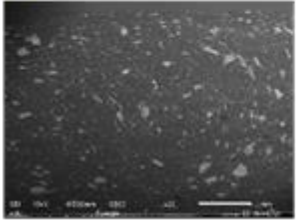
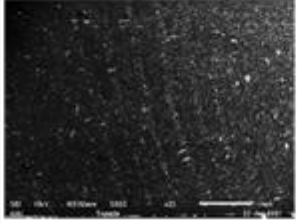
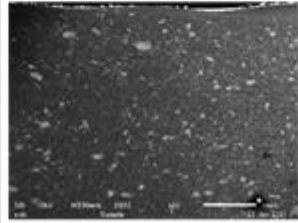
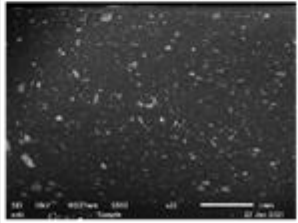
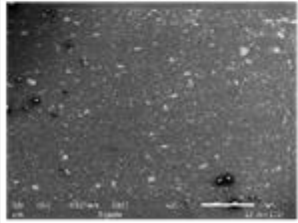
SEM	19PS-4	19PS-16	20PS-89	20PS-90	20PS-113
	CeF-2:15%のみ	CeF-4:15% 低PS: 2%	CeF-4:15% SEBS: 8%	CeF-4:15% SEBS: 15%	CeF-4:15% 低PS:2%,SEBS:15%
MD (長手) 23倍					
TD (幅) 23倍					

図 2-28 SEM 観察結果(CeF+PS, 23 倍)

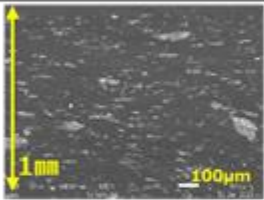
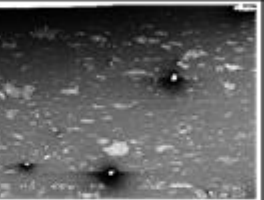
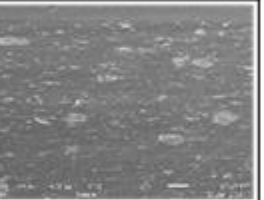
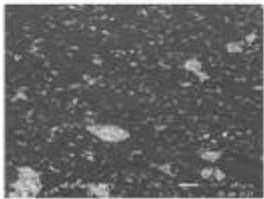
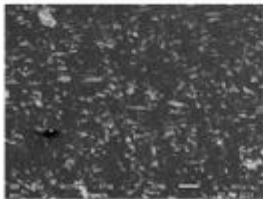
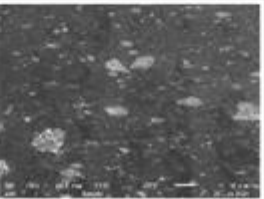
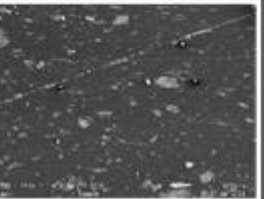
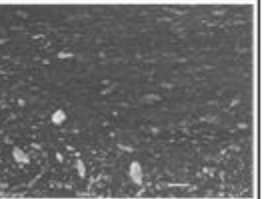
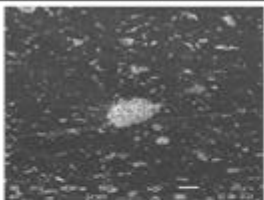
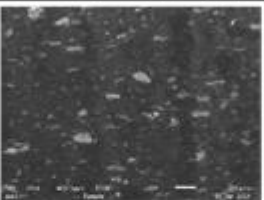
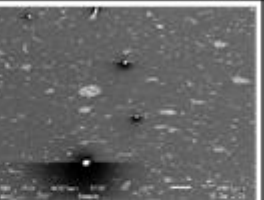
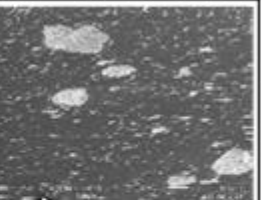
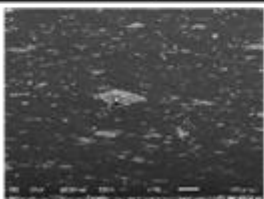
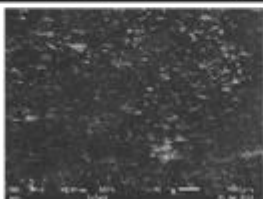
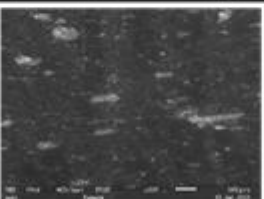
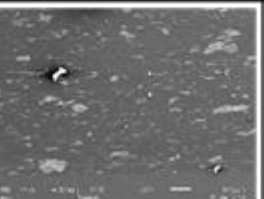
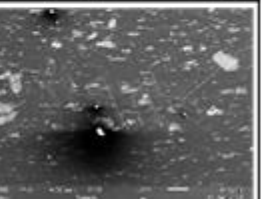
SEM	19PS-4	19PS-16	20PS-89	20PS-90	20PS-113
長手 方向	CeF-2:15%のみ	CeF-4:15% 低PS: 2%	CeF-4:15% SEBS: 8%	CeF-4:15% SEBS: 15%	CeF-4:15% 低PS:2%,SEBS:15%
MD 100倍 1 (上端 :壁面)					
MD 100倍 2					
MD 100倍 3					
MD 100倍 4 (下端 :壁面)					

図 2-29 SEM 観察結果(CeF+PS, 100 倍 長手方向)

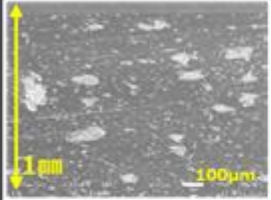
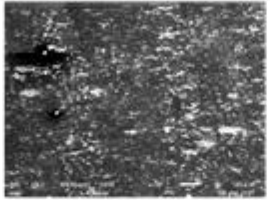
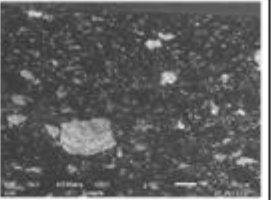
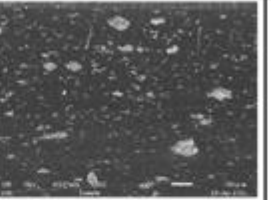
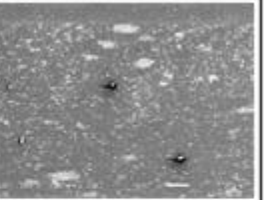
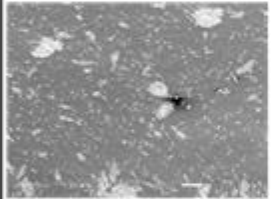
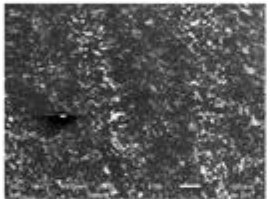
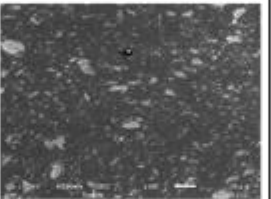
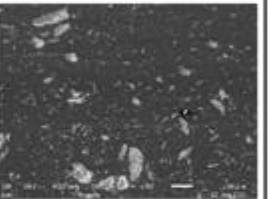
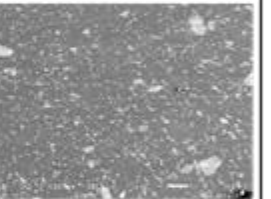
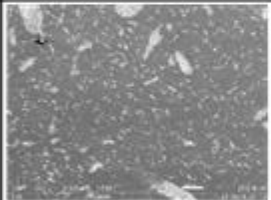
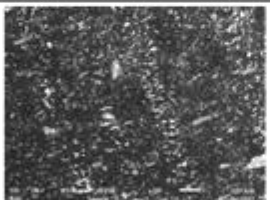
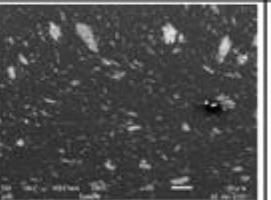
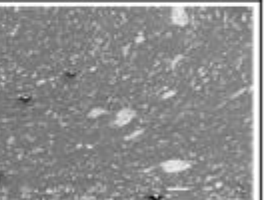
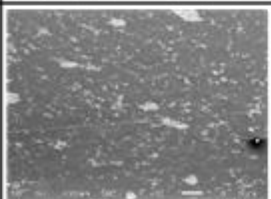
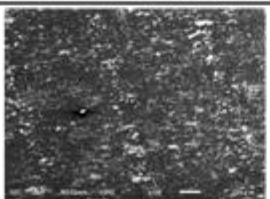
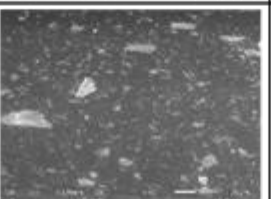
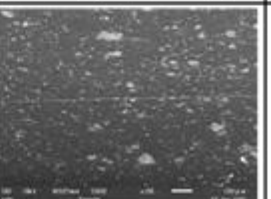
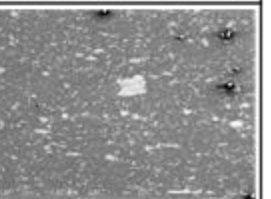
SEM	19PS-4	19PS-16	20PS-89	20PS-90	20PS-113
幅方向	CeF-2:15%のみ	CeF-4:15% 低PS: 2%	CeF-4:15% SEBS: 8%	CeF-4:15% SEBS: 15%	CeF-4:15% 低PS:2%,SEBS:15%
TD 100倍 1 (上端 :壁面)					
TD 100倍 2					
TD 100倍 3					
TD 100倍 4 (下端 :壁面)					

図 2-30 SEM 観察結果(CeF+PS, 100 倍 幅方向)

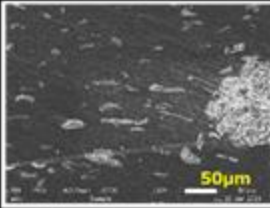
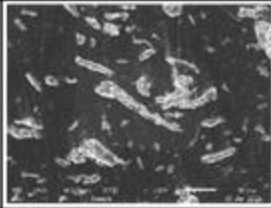
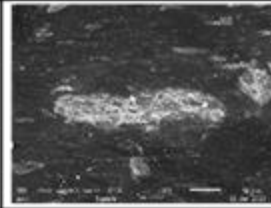
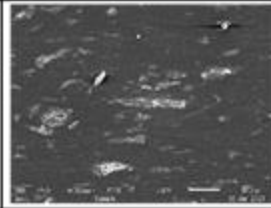
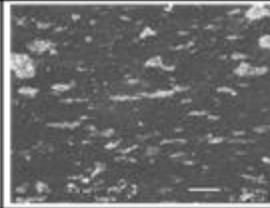
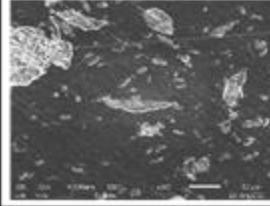
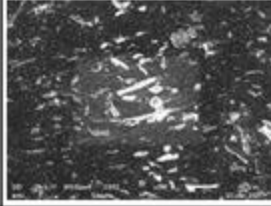
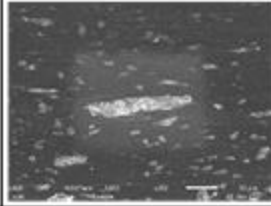
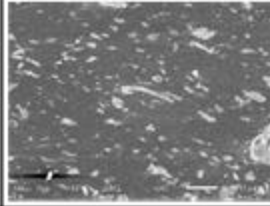
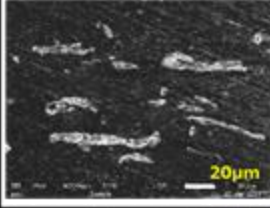
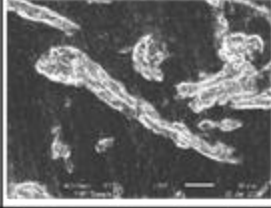
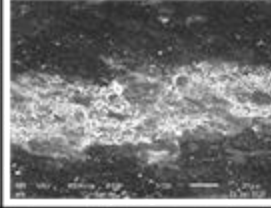
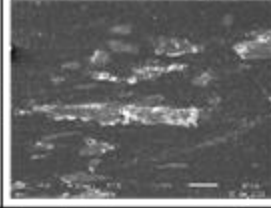
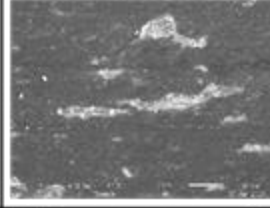
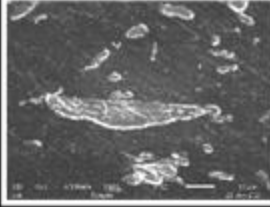
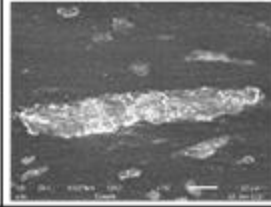
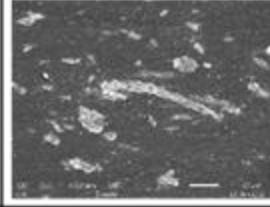
SEM	19PS-4	19PS-16	20PS-89	20PS-90	20PS-113
	CeF-2:15%のみ	CeF-4:15% 低PS: 2%	CeF-4:15% SEBS: 8%	CeF-4:15% SEBS: 15%	CeF-4:15% 低PS:2%,SEBS:15%
MD (長手) 300倍					
TD (幅) 300倍					
MD 700倍					
TD 700倍					

図 2-31 SEM 観察結果(CeF+PS, 300 倍, 700 倍)

2.1.3.4.2. TEM による複合樹脂中の CeF とベース樹脂との界面状態の観察評価

(1) CeF 複合 PP 樹脂注の CeF 状態観察結果

TEM 観察サンプルの一覧を、表 2-27 に示す。

ベース樹脂はバージン PP(日本ポリプロ製 BC03C)に加え、廃家電由来の PP 樹脂についても検討した。TPE(エラストマー)は添加していない。

表 2-27 SEM 観察サンプル一覧表(CeF+PP)

	試作番号	ベース樹脂	セルロース	分散改質剤
1	19PP-34	BC03C	CeF-1(15%)	なし
2	19PP-39	BC03C	CeF-1(15%)	MAPP(100TS)(5%)
3	19PP-84	手解体 PP	CeF-1(15%)	なし
4	19PP-91	手解体 PP	CeF-1(15%)	MAPP(100TS)(5%)
5	20PP-130	BC03C	CeF-3(20%)	なし
6	20PP-135	BC03C	CeF-3(20%)	MAPP(100TS)(5%)

観察結果画像を図 2-32 に示す。

画像中、薄い灰色の島相は CeF であり、黒色島相はベース樹脂に含まれるゴム相(EPR)と考えられる。SEM 画像や TEM 画像では局所的な観察結果しか得られないが、図より、SEM 結果と同様に、総じて MAPP 添加した方が、CeF が解繊されサイズが小さくなっていることが観察できる。ベース樹脂に元々含有していた EPR も CeF サイズに比べて小さいため、MAPP の効果を阻害することなく解繊・分散の効果が得られていると推察される。

今後は、SEBS などの添加による物性向上の検証も実施していく予定である。

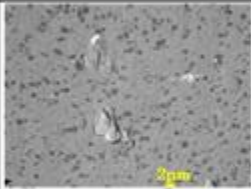
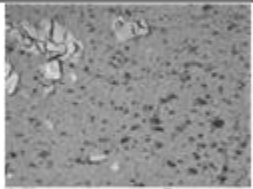
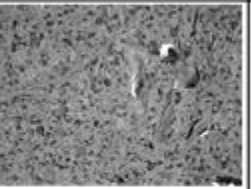
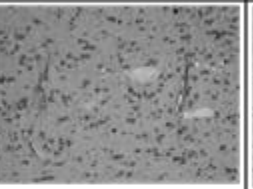
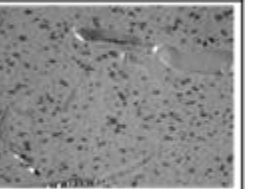
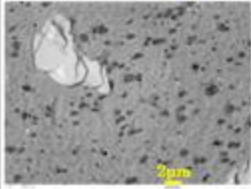
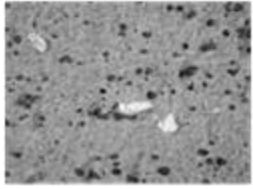
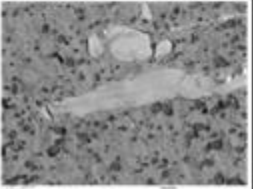
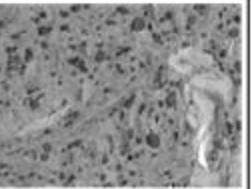
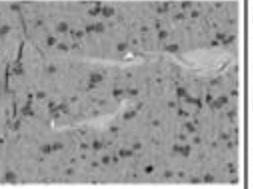
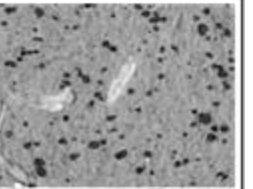
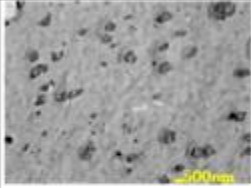
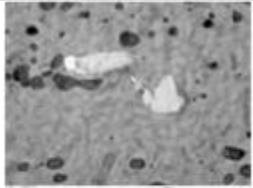
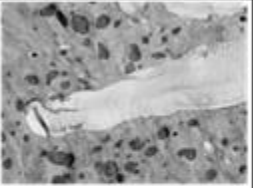
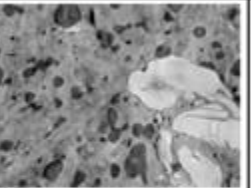
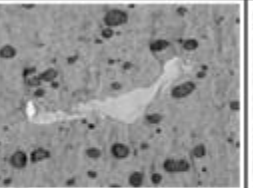
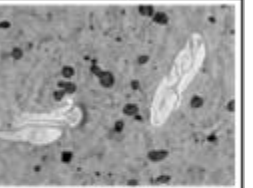
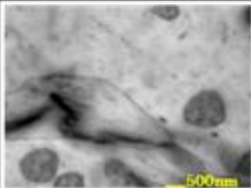
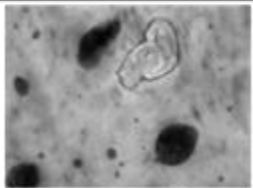
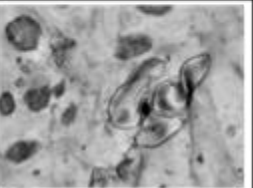
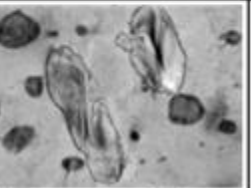
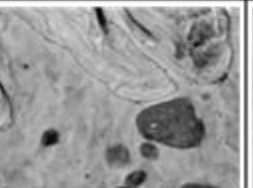
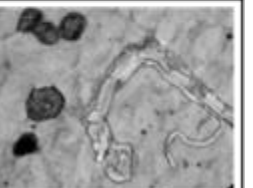
TEM	19PP-34	19PP-39	19PP-84	19PP-91	20PP-130	20PP-135
長手 方向	CeF-1:15%のみ	CeF-1:15% MAPP: 5%	再生PP CeF-1:15%のみ	再生PP,CeF-1 :15%,MAPP:5%	CeF-3:20%のみ	CeF-3:20% MAPP: 5%
MD 5000 倍						
MD 10,000 倍						
MD 20,000 倍						
MD 50,000 倍						

図 2-32 TEM 観察結果画像(CeF+PP)

(2) CeF 複合 PS 樹脂注の CeF 状態観察結果

TEM 観察サンプルの一覧を、表 2-28 に示す。

ベース樹脂はいずれもバージン PS(PS ジャパン製 HIPS H9152)である。それに加え、廃家電由来の PP 樹脂についても検討した。TPE(エラストマー)は添加していない。

表 2-28 SEM 観察サンプル一覧表(CeF+PP)

	試作番号	セルロース	分散改質剤	SEBS エラストマー
1	19PS-4	CeF-2(15%)	なし	なし
2	20PS-29	CeF-4(15%)	MAPP(2%)	なし
3	20PS-37	CeF-4(15%)	低分子量 PS(2%)	なし
4	20PS-89	CeF-4(15%)	なし	(8%)
5	20PS-90	CeF-4(20%)	なし	(15%)
6	20PS-113	CeF-4(20%)	低分子量 PS(2%)	(15%)

観察結果画像を図 2-33 に示す。

画像中、薄い灰色の島相は CeF であり、円形状あるいは楕円状の黒色島相はベース樹脂に含まれるブタジエンゴム相と考えられる。

MAPP または低分子量 PS を処方したものは、そうでないものに比べて CeF の解繊が進みサイズも小さくなり、分散性も良いと考えられる。また、SEBS を配合したサンプルについては(図中の 20PS-89,20PS-90,20PS-113)については、セルロースファイバーに沿って、層状に配向したゴム相が観察され、これらが SEBS 相であると推察される。更にこれらのエラストマーのゴム相は PS 海相と CeF の界面に沿っても存在しており、この効果により衝撃性(靱性)が向上すると考えられる。

従って、これらのことから、MAPP または低分子量 PS の、CeF に対する解繊性と分散性に加えてエラストマーの添加により衝撃性が向上すると考えた。しかしながら、分散改質剤とエラストマーの組合せにおいて物性試験結果では、衝撃性および弾性率の改善は見られなかった。その結果の TEM 観察画像が、図中右端欄の 20PS-113 であるが、CeF のサイズが十分に解繊できていないように見てとれる。これは、分散改質剤とエラストマーを工法上同時に添加処方しているため、エラストマーが分散改質剤自体の分散を妨げ、CeF に対して機

能を発現していないと推察される。

以上のことをまとめた図が、図 2-34 である。下側にそれぞれの添加処方に対する曲げ弾性率とシャルピー衝撃強さのベース樹脂の物性に対する保持率を示している。

このことから、エラストマーの添加処方の前工程で CeF を十分に解繊・分散改質するための混練工程の後に、エラストマー添加混練工程による物性改善の効果を検証する必要があると考え、これらの混練工法・工程の改善検証を実施していく。また、上記のように工程を分割することなく、分散改質と諸物性向上の添加処方組合せの探索・検証も継続する予定である。

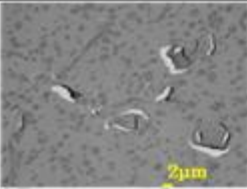
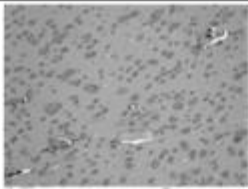
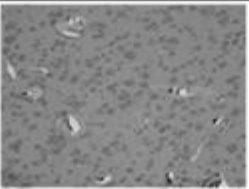
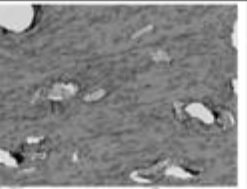
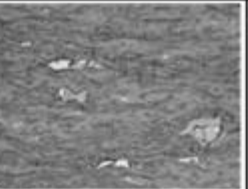
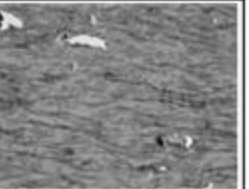
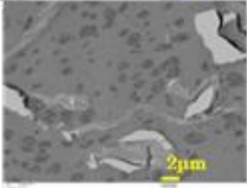
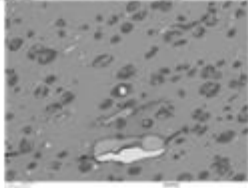
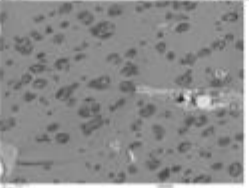
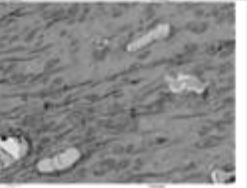
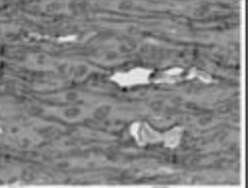
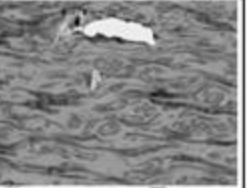
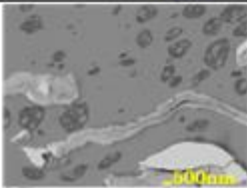
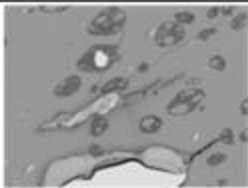
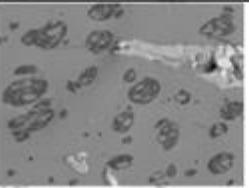
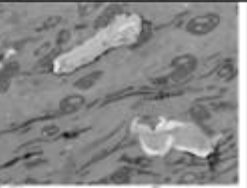
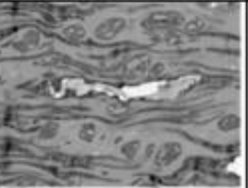
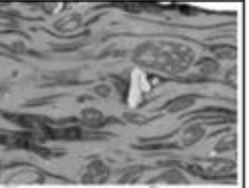
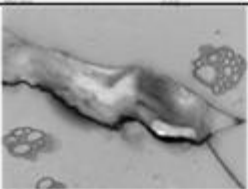
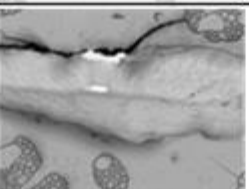
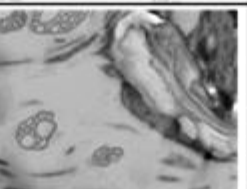
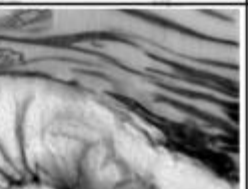
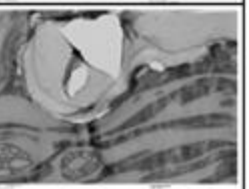
TEM	19PS-4	20PS-29	20PS-37	20PS-89	20PS-90	20PS-113
長手 方向	CeF-2:15%のみ	CeF-4:15% MAPP: 2%	CeF-4:15% 低分子PS: 2%	CeF-4:15% SEBS: 8%	CeF-4:15% SEBS: 15%	CeF-4:15% 低PS:2%,SEBS15%
MD 5000 倍						
MD 10,000 倍						
MD 20,000 倍						
MD 50,000 倍						

図 2-33 TEM 観察結果画像(CeF+PS)

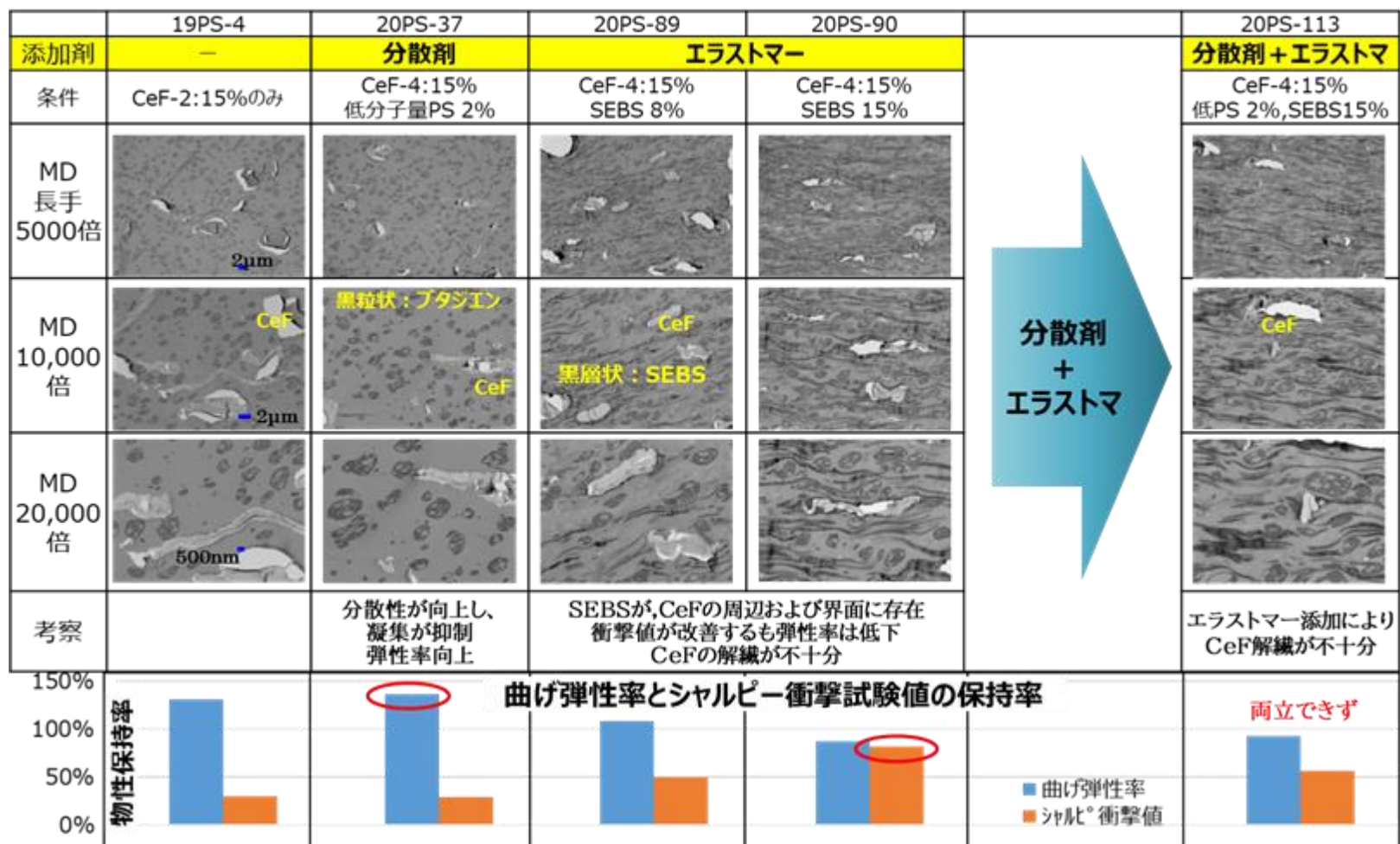


図 2-34 TEM 観察結果と物性試験結果の相関検討

2.1.3.4.3. 放射光 X 線 CT による複合樹脂中の CeF の状態観察

放射光 X 線 CT 観察のサンプル例を、表 2-29 に示す。この 2 サンプルでの MAPP あり・なしの結果に対して、X 線 CT による CeF の評価について検証した。

表 2-29 SEM 観察サンプル一覧表(CeF+PP)

	試作番号	ベース樹脂	セルロース	分散改質剤
1	19PP-34	BC03C	CeF-1(15%)	なし
2	19PP-39	BC03C	CeF-1(15%)	MAPP(100TS)(5%)

図 2-8 に示した断面のうち、右上図の断面の放射光 X 線 CT 観察の観察画像の例を、図 2-35 に示す。断面は、それぞれ 20 μ m 毎に移動しており、同じセルロースファイバーの形状の変遷を矢印でたどっている。

19PP-34 の MAPP 無添加のケースでの CeF は、サイズの大きいものが数枚の画像にわたって観察できており、解繊が不十分な 100 μ m オーダー CeF の凝集物が散見される。一方、MAPP 添加ありのケースでの CeF のサイズは、10 μ m 程度以下であり凝集もなく、解繊・分散が良好であることがわかる。

この分析観察手法は、CeF 界面接着性の評価は困難であるが、比較的広い領域での CeF の状態が観察できるので、今後、更に CeF 複合 PS 樹脂へも適用し、また、分析観察のサンプル数を増して、物性等との相関を検討し、物性改善の対策立案のために活用していく。

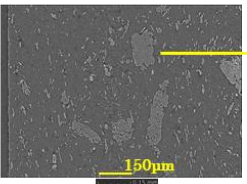
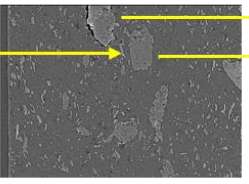
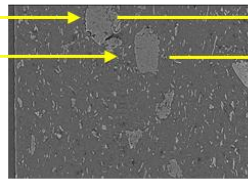
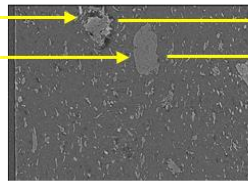
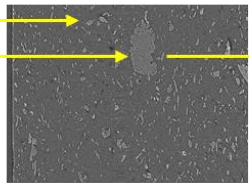
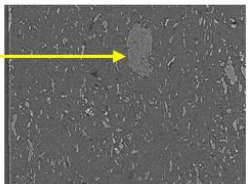
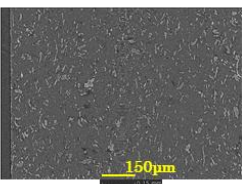
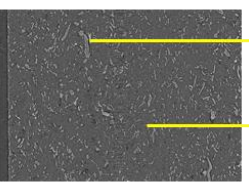
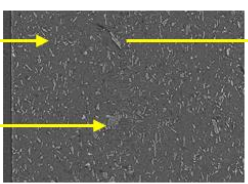
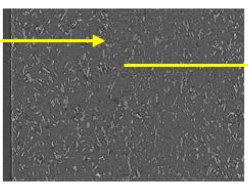
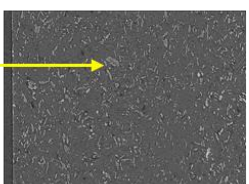
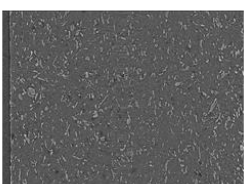
	放射光X線CTによるCeF成形品内部観察例					
	断面を、垂直方向に20μm毎に移動観察					
19PP-34 MAPPなし						
19PP-39 MAPPあり						

図 2-35 放射光 X 線 CT 観察例

2.1.3.4.4. X 線 CT による in situ(イン・サイチュ：その場)引張負荷測定観察

CeF 複合樹脂中の CeF の状態を放射光 X 線 CT にて観察した。

放射光 X 線 CT 観察のサンプル例を、表 2-30 に示す。この 2 サンプルでの分散改質剤の違いについて、X 線 CT による CeF の評価について検証した。

表 2-30 in situ X 線 CT 観察サンプル一覧表(CeF+PS)

	試作番号	ベース樹脂	セルロース	分散改質剤
1	20PS-29	H9152	CeF-4(15%)	MAPP(100TS)(2%)
2	20PS-37	H9152	CeF-4(15%)	低分子量 PS (5%)

CeF+PS 樹脂の観察画像結果例を図 2-36 および図 2-37 に示す。左側が無負荷の状態、右側が負荷後停止した状態の画像である。一部、クラックが発生している箇所を観察することができる。

クラック発生時の荷重(右図)によりその時点までの引張強さ、引張弾性率を求めることができ、実際の引張試験での引張強さ、引張弾性率の結果との相関をみることにより、破壊が始まるまでと、それ以降進展する挙動と区別することが可能になると考えられる。これにより、CeF と樹脂の界面剥離が起点となるかそうでないかにより、分散・相溶化性の検討方法も変わってくると予想される。従って、ここで観察される界面剥離と成形品本体の破壊の状態のこれらの分析・観察手法を用いれば、CeF の形状・サイズ、配向状態等により、破壊につながるクラックの発生の状況を観察することができ、物性との相関も検証できると考えられる。

今後、サンプル検体数を増やし、メカニズムの解明をしていく必要がある。

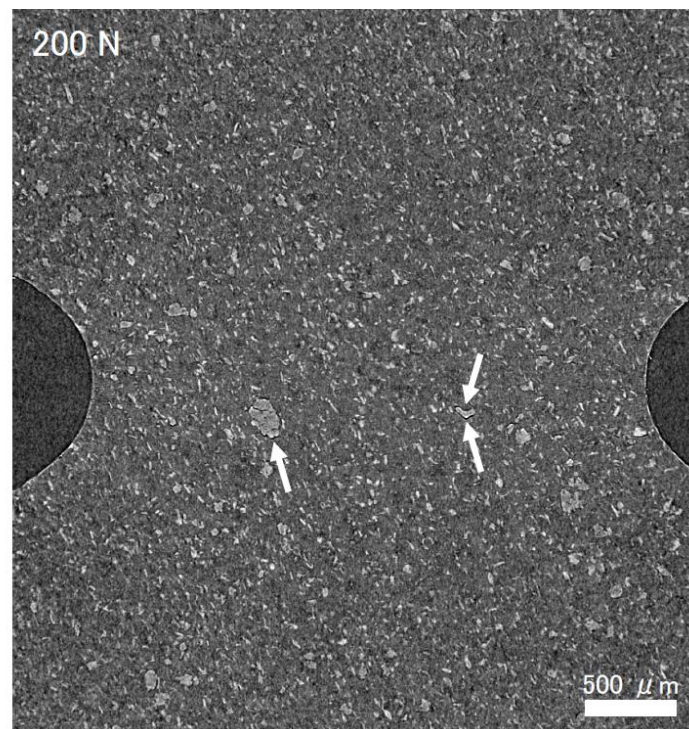
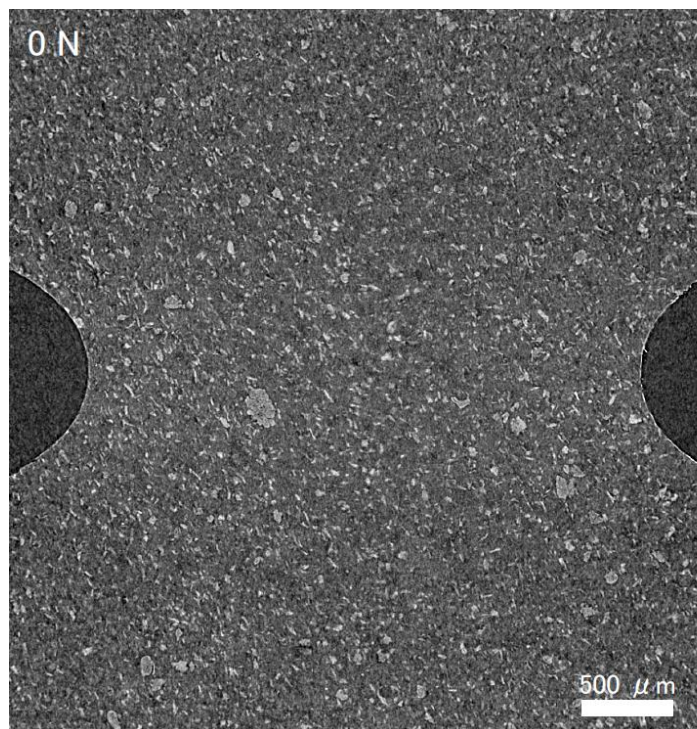


図 2-36 サンプル(20PS-29)中央近傍の断面像(左：引張り前、右：引張り後)

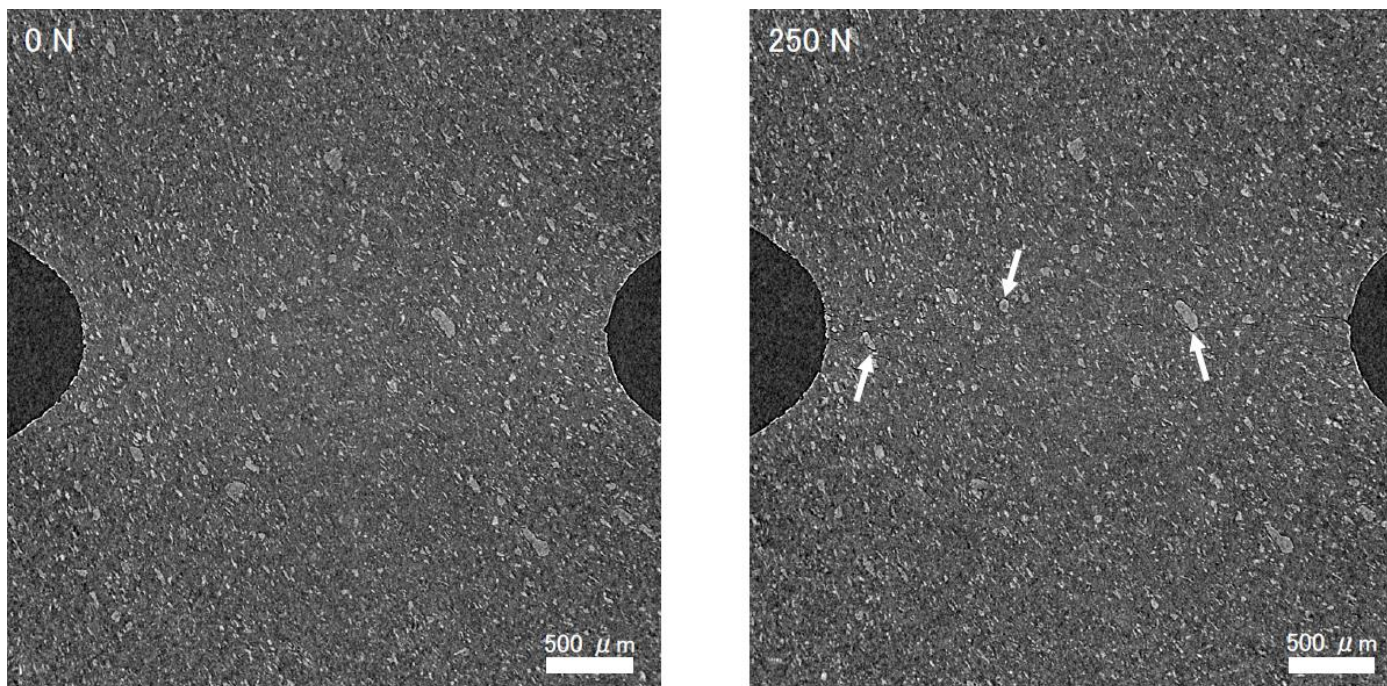


図 2-37 サンプル(20PS-37)中央近傍の断面像(左：引張り前、右：引張り後)

2.1.3.5. 技術調査

(i) 調査目的

本事業が対象とする再生樹脂(PP:ポリプロピレンやPS:ポリスチレン)は非常に疎水的である。一方、CeFは表面が非常に親水的なため、工夫をしなければ熔融状態の樹脂の中で自然と凝集してしまう。CeFが凝集すると、たとえその凝集物が十分強くとも応力集中体となるため、複合化樹脂の強度は大幅に低下する。そこで、CeFとマトリックス樹脂(PP,PS)との相溶性(界面の接着性・密着性)を向上させる技術知見を得るために文献調査を行った。

(ii) 調査結果

(相溶化剤について)

CeF複合化樹脂において、CeFは水分散体として提供されており、樹脂との複合化のために乾燥処理を行うと強固な凝集体となる。また、酸素、無機物を多く有する極性物質である。マトリックス樹脂であるPP、PSといった汎用樹脂は炭素、水素からなる石油由来の無極性樹脂であり、両物質はいわば「水と油」の関係であり、お互いになじまない。

2種類以上のポリマーを混ぜ合わせて作られるポリマーアロイにおいては、ポリマーが、分子レベルで相溶する「完全相溶系」と非相溶であり相分離する「非相溶系」があり、ほとんどの組み合わせのポリマーアロイは「非相溶系」である。相溶化剤は複合化材料間の界面を制御する目的で不可欠な材料である。

相溶化剤は、表 2-31 に示すように、分子構造内に反応性極性基を有しない「非反応型相溶化剤」と反応性極性基を有する「反応型相溶化剤」とに分類される。

「反応型相溶化剤」の反応性極性基は、主に、無水マレイン酸を中心とするカルボン酸、メタクリル酸グリシジルに代表されるエポキシ基、水酸基、オキサゾリン基等である。更に、「反応型相溶化剤」は、共重合タイプ、あるいは樹脂に極性モノマーをグラフトさせたグラフトタイプが挙げられる。¹⁾²⁾

ポリマーアロイでは、無水マレイン酸による反応がポリマーブレンドによりよく利用され、また、GFRPP(繊維強化ポリプロピレン)、WPC(ウッドプラスチック)等での複合化樹脂にも極性フィラーと無極性樹脂、あるいは極性樹脂と無極性樹脂とを馴染ませる為に無水マレイン酸が用いられている。

表 2-31 相溶化剤の分子構造

反応性	相溶化剤の構造	相溶化剤の例
非反応型	ホモポリマー ランダムポリマー ブロック グラフトポリマー	ポリマーカーボネート エチレン・プロピレンゴム PE-g-PS,SEBS
反応型	ランダムポリマー ブロック グラフトポリマー	EGMA,SMA マレイン酸変性 SEBS EGMA-g-AS

SEBS：水素スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体、PE：ポリエチレン

EGMA：エチレン/メタクリル酸グリシジル共重合体

AS：アクリルニトリルスチレン共重合体

SMA：スチレンマレイン酸共重合体

表 2-32 に、主な市販の相溶化剤を示す。

表 2-32 相溶化剤の分子構造

商品名	相溶化剤の構造	メーカー
クレイトン D,G,FG	SBS,SEBS, MAH 変性 SEBS	シェルジャパン
タフテック H,M	SEBS, MAH 変性 SEBS	旭化成工業
ダイナロン	SE	日本合成ゴム
セプトン	SEPS	クラレ
エボフレンド	エポキシ化	ダイセル化学工業
ノフアロイ	エラシトマー系グラフト ポリマー	日本油脂
レクスパール	EGMA	日本ポリオレフィン
ボンドファースト	E/VA/GMA	住友化学工業
ホンダイン	E/VA/GMA	住友化学工業

SBS：スチレン系熱可塑性共重合体、GMA：メタクリル酸グリシジル共重合体

SEPS：スチレンエチレンプロピレンスチレンブロック共重合体

MAH：無水マレイン酸、VA：酢酸ビニル、SE：エポキシ共重合体

(CeF 複合材料における相溶化剤の機能について)

CeF とマトリックス樹脂(PP,PS)との相溶性(界面の接着性・密着性)を向上させる技術として、CeF のネットワークを固定化した後、樹脂を充填する手法、CeF の表面化学修飾による樹脂分散化と界面補強における手法、セルロースの凝集塊の発生を抑制し、かつ樹脂にセルロースを均一に分散させる目的で、親水性でありかつ特定の HLB 値(親水親油バランス)を有する添加剤(低分子系界面活性剤)を導入した手法等が報告されている。しかしながら、いずれの場合もセルロースナノ材料による補強効果はさほど大きくない。³⁾

一方、相溶化剤を用いた CeF とマトリックス樹脂(PP,PS)に異種界面の接着性・密着性の向上化、補強効果について幾つかの報告がなされている。

日笠ら⁴⁾は、セルロースを充填した複合樹脂に関して、無水マレイン酸変性 PP(PP-MAH)を共存させることによって界面の接着性をコントロールし、界面接着がセルロースを充填した複合樹脂の力学特性に与える影響について代表的なフィラーであるタルクと炭酸カルシウム(CaCO₃)を充填した複合樹脂と比較し報告している。

彼らの報告によると、相溶化剤(PP-MAH)とフィラー3 種(セルロース、タルク、CaCO₃)との相互作用について、動的粘性値の計測と SEM 写真観察から、セルロース、タルク、CaCO₃ のフィラーともに PP-MAH には相互作用が有ることを確認した。PP-MAH との相互作用の強さは、CaCO₃>タルク>セルロースの順であった。

次に、PP に各フィラーを充填した複合樹脂(フィラー材/PP 複合樹脂)に対する力学特性として、弾性率、引張強度、衝撃強度について各々のフィラー/PP 複合樹脂について PP-MAH 共存の有無を含めた比較検討を行った。

弾性率は、いずれのフィラーに対し、PP-MAH 共存有り無し、フィラーの違いによる差はみられなかった。

引張強度は、セルロース/PP 複合樹脂において PP-MAH が共存していないものに比べ、共存しているものは大きく向上し、PP-MAH 共存下で、セルロースの充填量が増すにつれ引張強度も増加した。これは、マトリックス剤である PP と相溶化剤である PP-MAH との界面が接着することにより界面が剥離しにくくなり、大きな変形においても、フィラーであるセルロースに十分に応力が伝達されるためと考察している。

衝撃強度は、各々のフィラーに対し、PP-MAH が共存することで向上が確認された。しかしながら、セルロース/PP 複合樹脂の衝撃強度は、セルロース量とともに顕著に低下した。この結果は、セルロースに限らず、フィラー添加に

よる衝撃強度の低下は、よく起こる現象であり、複合化樹脂中のフィラー端部に応力が集中し、破壊起点となるからとされていると考察している。

また、PP-MAH による界面接着の有効性について 3 種類のフィラーの引張強度の向上度より検証した結果、効果はセルロース>タルク>CaCO₃ の順となり、PP-MAH との 3 種類のフィラーの相互作用の強さ (CaCO₃>タルク>セルロース) と一致しなかった。このことは、界面における化学的な相互作用の強さと引張試験における界面接着の有効性とでは傾向が同じとは限らないことを意味していると考察している。

青木⁵⁾は、界面の接着性及び密着性の向上に対し、PP 系複合化樹脂の設計、製造に欠かすことのできない必須添加剤である無水マレイン酸変性ポリプロピレン (MAPP) の無水マレイン酸 (MA) に着目した。PP の無水マレイン酸グラフト反応は、まず、有機過酸化物が熱分解により、ラジカルを発生する。このラジカルがポリマー鎖から水素を引き抜き、ポリマー鎖上にラジカルを発生させる。そこに無水マレイン酸の二重結合が付加することである。

MAPP の無水マレイン酸 (MA) のグラフト量はフィラー界面との反応性に関係し、グラフト量が多ければ多いほど、多くの化学結合が形成される。

セルロース系フィラーの場合、MAPP のカルボキシル基との水素結合やエステル結合の形成が界面接着性に寄与し、MAPP の分子鎖がマトリクス樹脂の分子鎖との絡み合うレベルの分子量を有していることが重要であり、界面での結合形成と分子鎖の絡み合い効果によりフィラーの強度を引き出し、機械的強度向上効果を発現する。

セルロースと樹脂の複合化においては、CeF が熱劣化するため、できるだけ加工時の熱履歴を抑える必要がある。すなわち、短時間で分散しなければならない。また、CeF 間の強固な水素結合に打ち勝つために、MAPP が CeF と多くの化学結合を形成する必要がある為、MAPP が高グラフト量を保有しないとけない。

CNF/PP 系複合樹脂において、MA のグラフト反応メカニズムは、PP 鎖上に生じたポリマーラジカルへの MA のグラフト反応と PP 鎖の分子切断が競争反応となる。この反応では、分子切断が圧倒的に優位であるため、グラフト量を高くすると分子量が急激に低下するため、グラフト量/分子量は Trade-off の関係にある。よって、高グラフト量/高高分子量バランスを有する MAPP の作製は技術的に課題であると報告している。

福島ら⁶⁾⁷⁾は、CeF と樹脂の複合化においてマレイン酸変性 PP (MA-PP) と低分子量 PP を用いて CeF とマトリックス樹脂 (PP) との相溶性について検討を行

っている。彼らは、相溶化剤として低分子量 MA-PP、高分子量 MA-PP、低分子量 PP を用いて PP 樹脂と CeF 複合樹脂を二軸押出機にて作製し、MA-PP 未添加複合樹脂、PP 樹脂単独(neat PP)の機械特性について比較を行った。尚、CeF は乾式破碎により所定以下の粒径になるように微細化 CeF を調整した。

彼らは、PP 樹脂へ充填された CeF の分散性について、熱プレスしたシートを観察し、目視で識別可能な大きさである数百 μm 以上の CeF 凝集体の個数を計測することで、MA-PP の分子量と CeF 凝集体(数百 μm 以上)の個数との関係について検討を行った。その結果、CeF 凝集体(数百 μm 以上)の個数が MA-PP の分子量が小さくなるに従い減少傾向にあることを確認した。

このことにより、低分子量の MA-PP では CeF の分散性が向上し、CeF の凝集が抑制されたと結論づけている。また、低分子量の MA-PP を含む CeF 複合樹脂は、neat PP や MA-PP 未添加に比べると、曲げ強度、曲げ弾性率とも向上していた。これは、MA-PP の添加により PP 樹脂と CeF 間の密着性が向上したためと考察している。

低分子量 PP を充填した複合樹脂は MA-PP を充填した複合樹脂と同様に、数百 μm の凝集体はほとんど観察されず、CeF は樹脂内で良分散しており、低分子量 PP を充填した複合樹脂は MA-PP を充填した複合樹脂と比べ、曲げ強度は同等であったが、曲げ弾性率は 10%向上した。分子量と CeF 解繊の凝集体(数百 μm 以上)の個数の関係において、相溶化剤として充填した低分子量 PP においても、分子量が低いほど分散状態が良化する傾向にあることを確認した。

酸価の影響についてはほぼ無く、低分子量 PP の充填によって分散状態の向上が示唆されたと考察している。

(まとめ)

本調査において、CeF とマトリックス樹脂(PP,PS)との相溶性(界面の接着性・密着性)を向上させる技術について、CeF と PP の複合化に対して、ポリマーアロイに用いられる無水マレイン酸系の相溶化剤が界面の接着性・密着性を向上させ、弾性率、引張強度の機械的強度を向上させる相溶化剤であることを把握した。

2.1.4. 結言

PP 樹脂への CeF 複合化については、廃家電由来 PP 樹脂を用いた CeF 複合化の最適化(処方・工法)に目途がたち、更なる物性向上とコスト削減に向け試作検証を実施した。商品への適用可能性として、実製品(スティッククリーナー)の樹脂部品を成形試作し第 1 次製品適応の検証を完了した。

また、コストターゲットについては、当初の目論見を達成できる目途が立ち、更なるコストダウンへ向けた取組みを推進中である。

PS(HIPS)樹脂への CeF 複合化については、CeF 種,添加剤等の条件による物性の挙動を把握し、静的強度(引張・曲げ)向上と、衝撃強度向上を両立する添加剤処方の探索・検証を実施したが目標には未達であった。一方、それら静的強度と衝撃強度物性の相関等が把握できたので、今後の処方探索や処方組合せの検証を進めていく基礎データを確立できた。

また、SEM,TEM や X 線 CT による内部構造の CeF 状態の分析観察を実施し、物性との相関検証を実施中である。

2.2. 選別工程の開発

2.2.1. 緒言

CeF を複合した樹脂の普及が進み、利用量の拡大にともない、現在の資源循環システムへ影響を与えないかが大きな課題となる。特に家電 4 品目を対象とした家電リサイクル法⁸⁾に則ったシステムでの対策が必要である。

一般的に使用済みとなった廃家電は回収され、家電リサイクル工場にて、「解体～破碎～選別～加工」の流れでリサイクルされる。破碎工程にて破碎し、粉々になった家電から、次工程である選別工程の上流で磁力選別や渦電流選別などでまず金属を回収する。その結果、図 2-38 に示すように、家電に多く用いられている樹脂であるポリプロピレン(PP)、ポリスチレン(PS)、アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン(ABS)などの複数の樹脂種が混在したミックスプラスチックが発生する。ミックスプラスチックをリサイクルし、再び原材料として活用するには同じく選別工程で、単一の樹脂種別に選別することが必要である。



図 2-38 ミックスプラスチック

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

異によって生じる波長帯域ごとの光吸収強度から樹脂種を判別し、樹脂種毎にエアノズルから吹き出すエアジェットで吹き落として回収する工法である。CeF 複合樹脂においては、CeF(比重：約 1.3-1.5)の含有濃度によって比重が大きく変動することが予想される。そのため、CeF 複合樹脂の選別工法としては、原理的可能性から近赤外線選別が期待される。図 2-39 に、現在家電リサイクル工場で稼働している、近赤外線樹脂選別機の外観を示す。



図 2-39 近赤外線樹脂選別機外観写真

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

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

2.2.2. アプローチ

2.2.2.1. アプローチ(全体)

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

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

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

そのために本実証では、3m/s の高速搬送下において、CeF 複合樹脂(含有濃度 15%)が混在するミックスプラスチックから所望の樹脂種を、回収率 60%以上、純度 80%以上の選別性能で選別することを最終目標に置いている。

本実証に各年度の大まかな予定は下記のとおりである。

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

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

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

令和元年度においては、CeF を複合した樹脂サンプル片を近赤外線分光器で測定し、以下 3 点についての選別性の基礎評価を実施した。

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

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

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

2.2.2.2. アプローチ(令和 2 年度)

i) 再生材母材 CeF 複合樹脂のデータベース拡充

本年度は、まず分析器である近赤外線分光器を使用し、再生材に CeF を複合したサンプルの判別用データベースを構築し、再生材母材においても CeF の含有濃度ごとの違いを原理的に選別が可能であるか検証を実施した。検証に用いた近赤外線分光器および測定の様子を図 2-40 に示す。

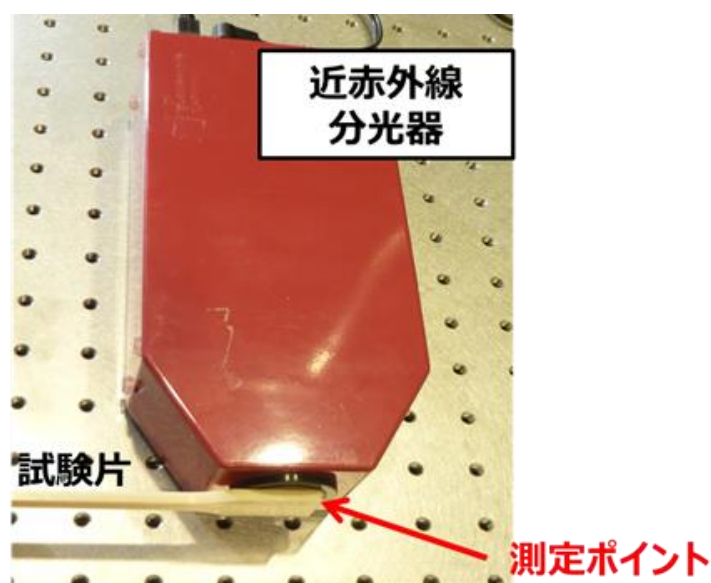


図 2-40 近赤外線分光器

なお本検証で用いた近赤外線分光器は以下の通りである。

- 近赤外線分光器

機器名：近赤外線分光光度計(NIRSCAN-MKII)

メーカー：株式会社 システムズエンジニアリング

分光方式：AOTF(Acousto-Optic Tunable Filter 音響光学可変波長フィルター)

測定波長範囲：1.6～2.4 μ m

ソフトウェア：AOTF Analyzer(メーカー標準付属品)

本分光器を用い、作製した CeF 複合 PS および PP のダンベル試験片をサンプルとして、測定を行った。なお測定の際には図 2-40 に示す通り、分光器の測定ポイントにダンベル試験片を押し当てる形で測定を実施した。

検証は以下のステップで実施した。

STEP1. サンプルを分光器で測定

STEP2. 昨年度作成した分光器のデータベースに、再生樹脂に **CeF** をそれぞれ含有濃度 0%、5%、10%、15%複合したサンプルのデータを追加登録

STEP3. 各サンプルを再度測定し、該当するデータベースに判別されるか検証

STEP3 については、**STEP2** にて登録したデータベースに、改めて測定したサンプルが判別されるか否か、もしくは誤判定し何に判別されるかを検証した。その際の判別には分光器の標準ソフトウェアである **AOTF Analyzer** にある下記の機能を用いた。

機能：SNV 判別

閾値：0.7

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

なおデータベースとはあらかじめ、当社で過去から蓄積した樹脂データを登録したデータベースに対して昨年度 **CeF** 複合樹脂のデータを登録したものであり、そのデータベースに今回新たに **STEP2** で作成したデータを追加した。

本取組み結果を 2.2.3.1 で報告する。

ii) ハイパースペクトルカメラを用いた検証準備

昨年度は、分光器による測定においてダンベル試験片を作製して評価を実施した。今年度は、ベルトコンベアを用いた高速搬送下での判別検証を行うため、搬送中にコンベア上で転がる等によるイレギュラーな現象が発生することを懸念した。そのため、高速搬送下における再現性を確保するべく、縦横比が安定している図 2-41 に示すような 50mm 角厚さ 2mm のサンプルプレート新たに作製した。

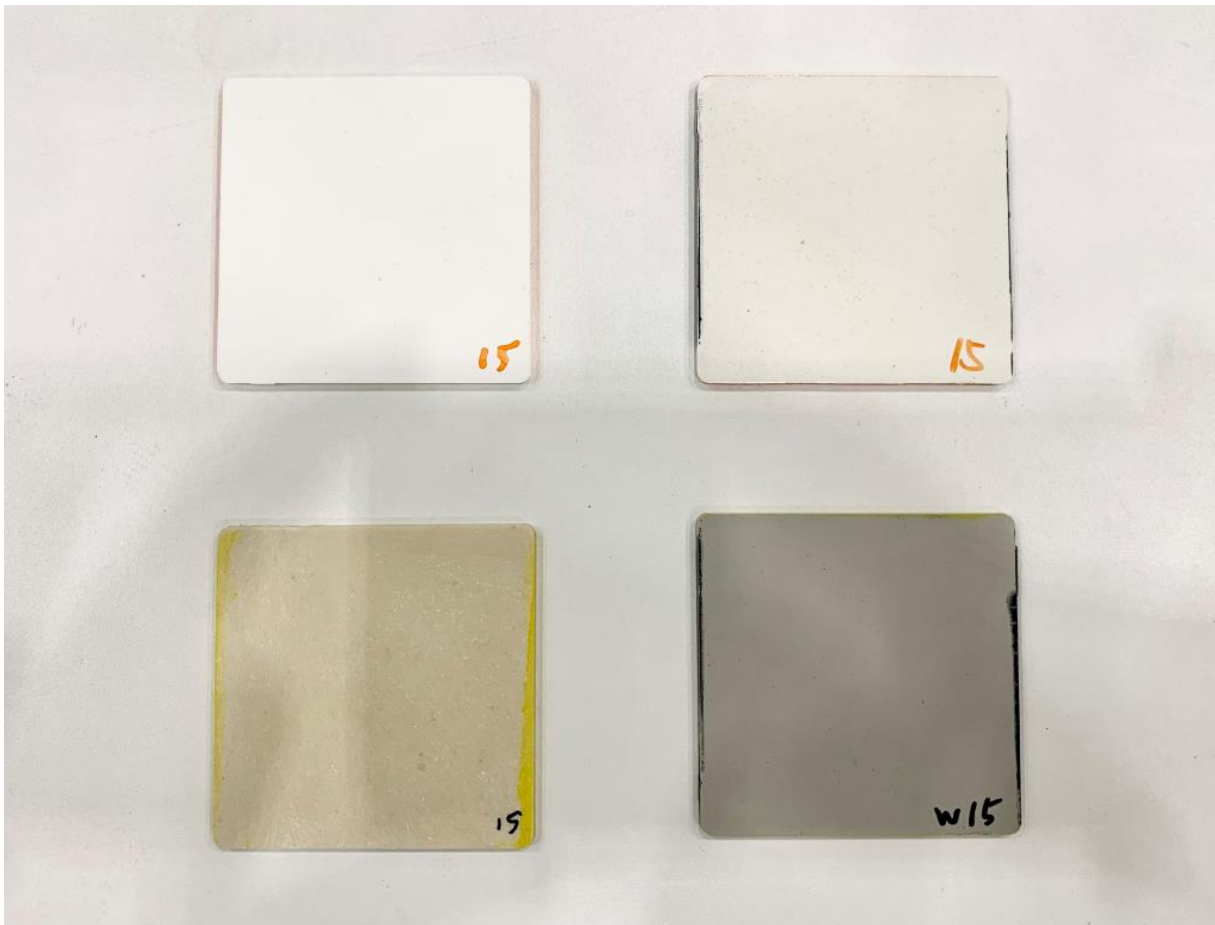


図 2-41 高速搬送下での検証用サンプルプレート

なお、サンプルの種類としては、これまでの実証において製作したバージン樹脂(新材 100%)およびバージン樹脂に **CeF** を 15%程度複合した樹脂(新材 +**CeF**15%)に加えて、バージン樹脂に **CeF** の濃度を変えて複合した樹脂および樹脂再生材に **CeF** を複合した樹脂を 12 種類追加した。今回追加作製したサンプルのリストを表 2-33 に示す。

表 2-33 高速搬送下での検証用サンプル追加作製リスト

サンプル名	”ベース母材”+”CeF 添加量”	色味
PPV-CeF5-w	(新材 PP) +CeF5%	白色
PPV-CeF5-n	(新材 PP) +CeF5%	ナチュラル色
PPV-CeF5-g	(新材 PP) +CeF5%	灰色
PPV-CeF10-w	(新材 PP) +CeF10%	白色
PPV-CeF10-n	(新材 PP) +CeF10%	ナチュラル色
PPV-CeF10-g	(新材 PP) +CeF10%	灰色
PPRe-w	(再生 PP100%)	白色
PPRe-n	(再生 PP100%)	ナチュラル色
PPRe-g	(再生 PP100%)	灰色
PPRe-CeF15-w	(再生 PP) +CeF15%	白色
PPRe-CeF15-n	(再生 PP) +CeF15%	ナチュラル色
PPRe-CeF15-g	(再生 PP) +CeF15%	灰色
PSV-CeF5-w	(新材 PS) +CeF5%	白色
PSV-CeF5-n	(新材 PS) +CeF5%	ナチュラル色
PSV-CeF5-g	(新材 PS) +CeF5%	灰色
PSV-CeF10-w	(新材 PS) +CeF10%	白色
PSV-CeF10-n	(新材 PS) +CeF10%	ナチュラル色
PSV-CeF10-g	(新材 PS) +CeF10%	灰色
PSRe-w	(再生 PS100%)	白色
PSRe-n	(再生 PS100%)	ナチュラル色
PSRe-g	(再生 PS100%)	灰色
PSRe-CeF15-w	(再生 PS) +CeF15%	白色
PSRe-CeF15-n	(再生 PS) +CeF15%	ナチュラル色
PSRe-CeF15-g	(再生 PS) +CeF15%	灰色

また本年度は、これまでの近赤外線分光器のスペクトル測定結果を踏まえて、近赤外線分光器と同等の検出波長帯域を持ち、広範囲の検出領域かつ量産と同レベルの高速検出が可能なハイパースペクトルカメラを選定した。

本検証で用いたハイパースペクトルカメラは以下の通りである。

- ハイパースペクトルカメラ

機器名：ハイパースペクトルカメラ(HSC)

検出方式：ラインセンサー方式

測定波長範囲：約 1.4～2.1 μ m

ラインレート：約 800fps (最大)

次に、選定したハイパースペクトルカメラを用いて図 2-42 に示すような量産検証用選別装置へ設置した。設置の場所としては、図 2-42 の「近赤外線センサー」の位置にこれまで使用していた近赤外線センサーと置き換える形で設置した。なお、この量産用選別検証機はベルトコンベアで約 3m/s の高速で樹脂を搬送でき、検出部で検出したスペクトルデータをもとに樹脂種を判定し、判定した結果を元に射落し部に設けたエアノズルユニットにて樹脂を射落して回収することが可能である。

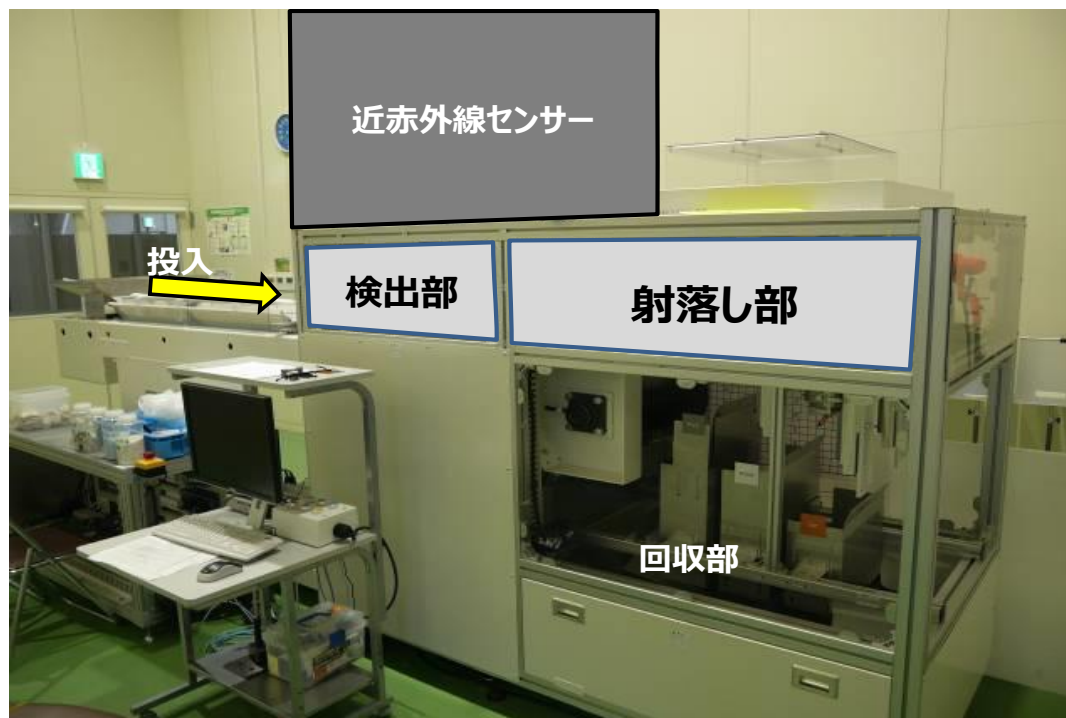


図 2-42 量産検証用選別装置

続いて、高速搬送下での検証前準備として、コンベア静止状態での樹脂スペクトルの取得を行った。実施の方法としては、量産検証用選別装置に設置したハイパースペクトルカメラを用いて、これまでの樹脂サンプルおよび今回作製した表 2-33 のサンプルを停止しているコンベア上に設置し、近赤外線スペクトルを取得した。測定の様子を図 2-43 に示す。

図 2-43 に示すように、従来機と同様にハロゲンランプを光源として樹脂に光を照射し、反射した拡散光をハイパースペクトルカメラで検出し、測定サンプルの樹脂スペクトルを取得した。

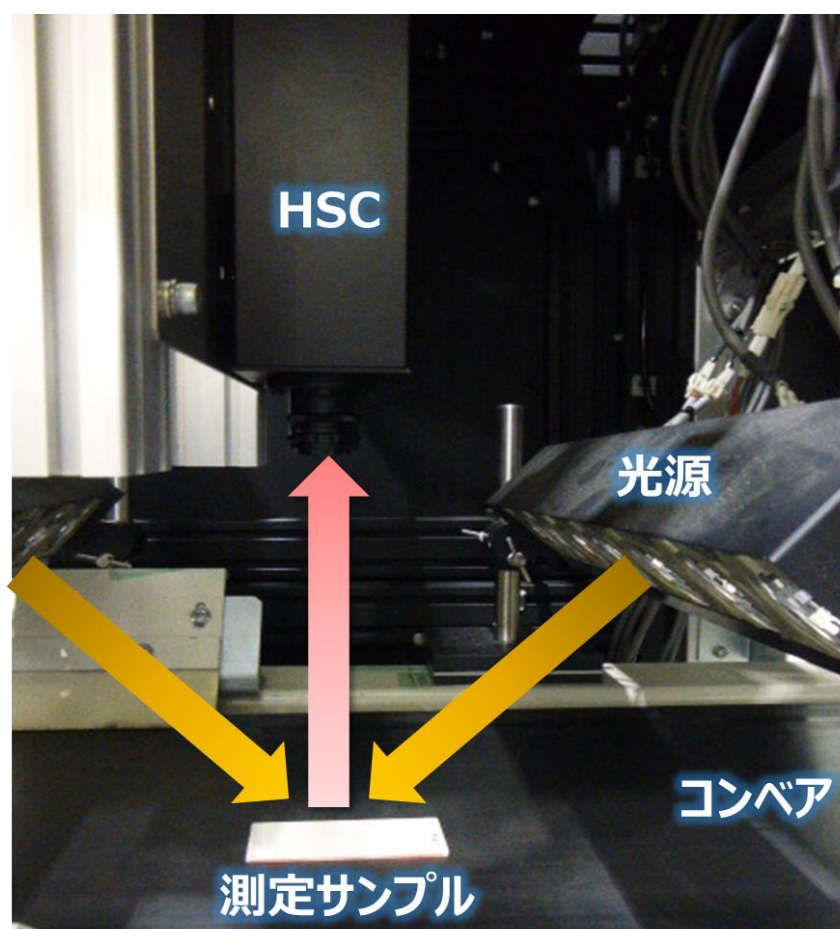


図 2-43 測定の様子(検出部拡大)

今回取得した各樹脂におけるスペクトルについての本取組み結果を 2.2.3.2 で報告する。

iii) ハイパースペクトルカメラを用いた高速搬送下での判別検証

ii)で準備したサンプル(CeF複合濃度5%および10%は除く)、HSCを用いて、高速搬送下での樹脂種判別検証を実施した。

ベルトコンベアにより3m/sで高速搬送される樹脂サンプルに図2-43と同様に光源から光を当て、その反射光をHSCで測定し、自社独自アルゴリズムにより、正しく樹脂種が判別されるか、また令和3年度に実施するエアノズルによる射落としをシミュレーションしたときに目標値である純度80%、回収率60%以上が達成できるかどうか検証した。

本取組み結果を2.2.3.3で報告する。

2.2.3. 取組み結果

2.2.3.1. 近赤外線分光を用いた再生材母材 **CeF** 複合樹脂の判別性評価

分光器を用いて実施した、サンプルの測定および判別検証結果を以下に 2.2.2.2 の i) の STEP に沿って示す。

■ STEP1. サンプルを分光器で測定

表 2-34 に示す再生材の PP、PS をそれぞれ母材とした、**CeF** 複合濃度が 0%、5%、10%、15% のダンベル試験片 16 種を新たに準備し、近赤外線分光器で測定した。

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

表 2-34 データベースに追加するサンプル一覧

No	母材	CeF 複合濃度
1	再生 PP(手解体品)	0%
2	再生 PP(手解体品)	5%
3	再生 PP(手解体品)	10%
4	再生 PP(手解体品)	15%
5	再生 PP(破砕品)	0%
6	再生 PP(破砕品)	5%
7	再生 PP(破砕品)	10%
8	再生 PP(破砕品)	15%
9	再生 PS(手解体品)	0%
10	再生 PS(手解体品)	5%
11	再生 PS(手解体品)	10%
12	再生 PS(手解体品)	15%
13	再生 PS(破砕品)	0%
14	再生 PS(破砕品)	5%
15	再生 PS(破砕品)	10%
16	再生 PS(破砕品)	15%

■STEP2. 昨年度作成した分光器のデータベースに、再生樹脂に CeF をそれぞれ含有濃度 0%、5%、10%、15%複合したサンプルのデータを追加登録

STEP1 で測定したデータを、昨年度作成したデータベースへ登録し、データベースの拡充を行った。ここで昨年度作成したデータベースとは、当社で過去から蓄積した樹脂データを登録したデータベースに、昨年度バージン材を母材とした CeF 複合樹脂の測定データを追加したものである。

■STEP3. 各サンプルを再度測定し、該当するデータベースに判別されるか検証

STEP2 にて作成したデータベースを用いて、再度サンプルを測定し、分光器の機能を用いて、測定したサンプルがどのデータベースに判別されるか検証を行った。

以下、表 2-35、表 2-36 にそれぞれ PP、PS での検証結果を示す。

表 2-35 PP 母材における判別検証結果

		母材(バージンPP)+CeF n%				母材(リサイクルPP)+CeF n% ※手解体				母材(リサイクルPP)+CeF n% ※破砕			
データベース		0%	5%	10%	15%	0%	5%	10%	15%	0%	5%	10%	15%
バージン材	CeF 0%	○											
	CeF 5%		○										
	CeF 10%			○	△								
	CeF 15%			△	○								
再生材 (手解体)	CeF 0%					○							
	CeF 5%						○						
	CeF 10%							○	△				
	CeF 15%								○				△
再生材 (破砕)	CeF 0%									○			
	CeF 5%										○		
	CeF 10%											○	
	CeF 15%												○

表 2-36 PS 母材における判別検証結果

		母材(バージンPS)+CeF n%				母材(リサイクルPS)+CeF n% ※手解体				母材(リサイクルPS)+CeF n% ※破砕			
データベース		0%	5%	10%	15%	0%	5%	10%	15%	0%	5%	10%	15%
バージン材	CeF 0%	○											
	CeF 5%		○										
	CeF 10%		△	○									
	CeF 15%			△	○								
再生材 (手解体)	CeF 0%					○							
	CeF 5%						○						
	CeF 10%							○					
	CeF 15%								○				
再生材 (破砕)	CeF 0%									○			
	CeF 5%									△	○	△	
	CeF 10%										△	○	
	CeF 15%											△	○

表について、縦軸にはバージン材を母材とした **CeF** 複合樹脂および、新たに登録した再生材を母材とした、**CeF** の各含有濃度における複合樹脂のデータベースを取っている。

横軸には、データベース登録後改めて測定したサンプルを取っている。

表中「○」は測定したサンプルが、該当するデータベースに正しく判別されている(スコア値が最も高く、閾値以上)ことを表し、「△」は判別結果第 1 位(スコア値が最も高い)にはならなかったが、スコア値の差が第 1 位と 0.05 以内であったことを表す。昨年度は正しく判別されなかった(該当しないデータベースが最もスコア値が高い)ものを「×」であらわしていたが、今回の取組みでは「×」となるサンプルは無かった。

以上の結果から、母材が再生材である場合においても、**CeF** 含有濃度が 5% 刻みであれば、今回の分光器を使用した検証環境においては正しく判別されるということが分かった。

しかし異なる含有濃度のサンプルとのスコア値が近くなる「△」も少なからず発生しており、量産を見据えた波長分解能が劣る **HSC** での判別検証においては、引き続き判別可能濃度の見極めが重要である。

また手解体品と破碎品でも結果が異なることから、母材の由来違い、異物の混入状態などにより、判別結果が左右されることが分かった。

2.2.3.2. ハイパースペクトルカメラを用いた判別検証準備

2.2.2.2 で述べた条件下で、コンベア静止状態で取得した樹脂スペクトルの全測定結果を図 2-44 に示す。今回取得したサンプルは全 42 種類である。

なお、図 2-44 は取得した各樹脂のスペクトルを規格化して示している。

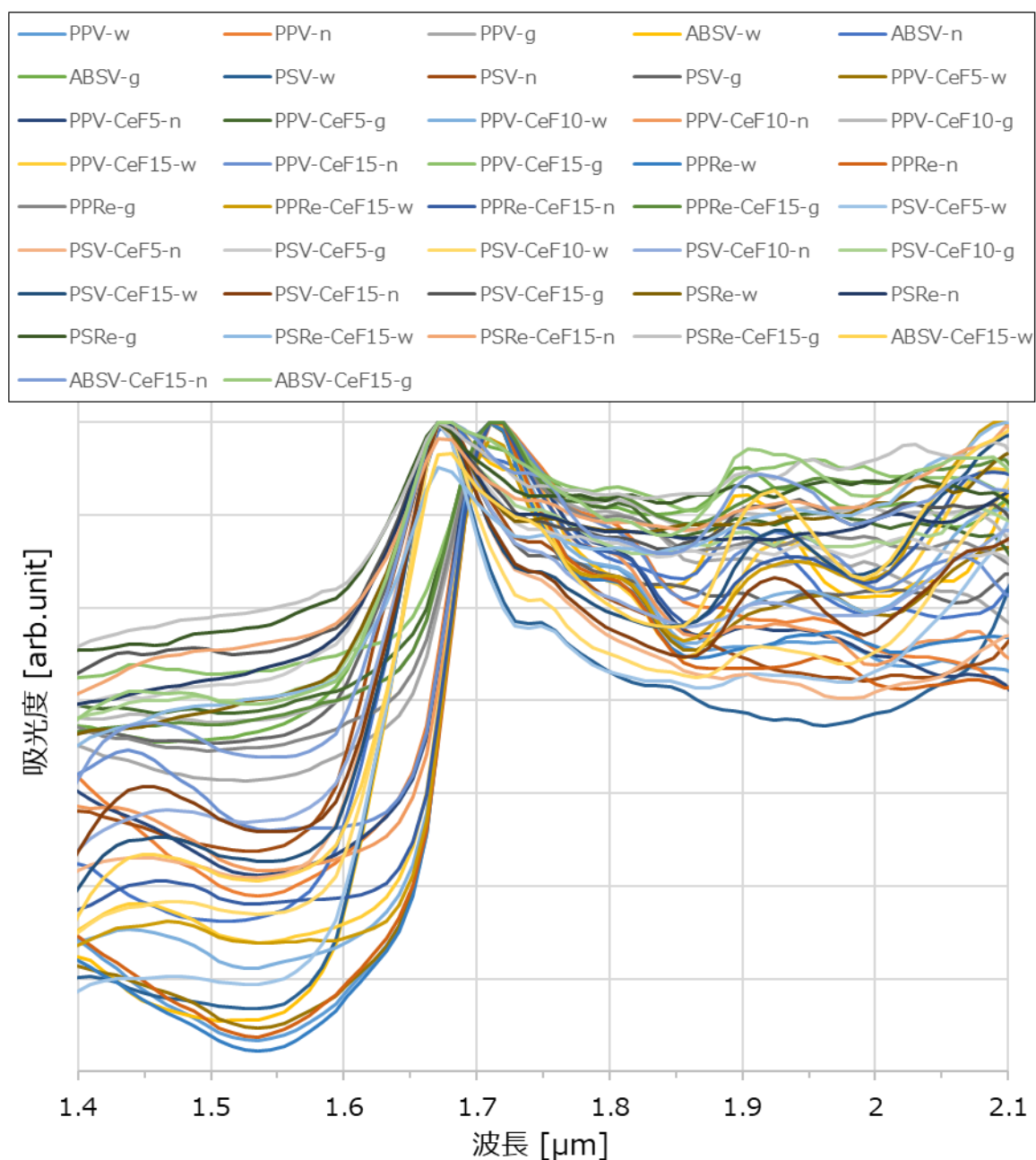


図 2-44 コンベア静止状態での取得スペクトルグラフ(全データ)

図 2-44 の状態では定性的な考察が困難であるため、取得したスペクトルデータから一部を抜粋しながら以下の図 2-45～図 2-53 に示すように比較を行った。

ここで図 2-45～図 2-53 の説明を以下に記す。なお、各図における縦軸の吸光度においては、定性的な比較を容易にするためにオフセットして示している。

図 2-45：バージン材 PP、PS に対し CeF 含有濃度 15%で複合したサンプルのスペクトルグラフ

図 2-46：バージン材 PP に対し、CeF 含有濃度を 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルのスペクトルグラフ

図 2-47：バージン材 PS に対し、CeF 含有濃度を 0%、5%、10%、15%で複合したサンプルのスペクトルグラフ

図 2-48：バージン材 PP に対し、着色剤(白色系、灰色系)を添加したものとしなかったサンプルのスペクトルグラフ

図 2-49：バージン材 PS に対し、着色剤(白色系、灰色系)を添加したものとしなかったサンプルのスペクトルグラフ

図 2-50：CeF 含有濃度 15%で複合したバージン材 PP に対し、着色剤(白色系、灰色系)を添加したものとしなかったサンプルのスペクトルグラフ

図 2-51：CeF 含有濃度 15%で複合したバージン材 PS に対し、着色剤(白色系、灰色系)を添加したものとしなかったサンプルのスペクトルグラフ

図 2-52：バージン材 PP、PS に対し、再生材 PP、PS のスペクトルグラフ

図 2-53：バージン材 PP、PS に CeF 含有濃度 15%で複合したサンプルに対し、再生材 PP、PS に CeF 含有濃度 15%で複合したサンプルのスペクトルグラフ

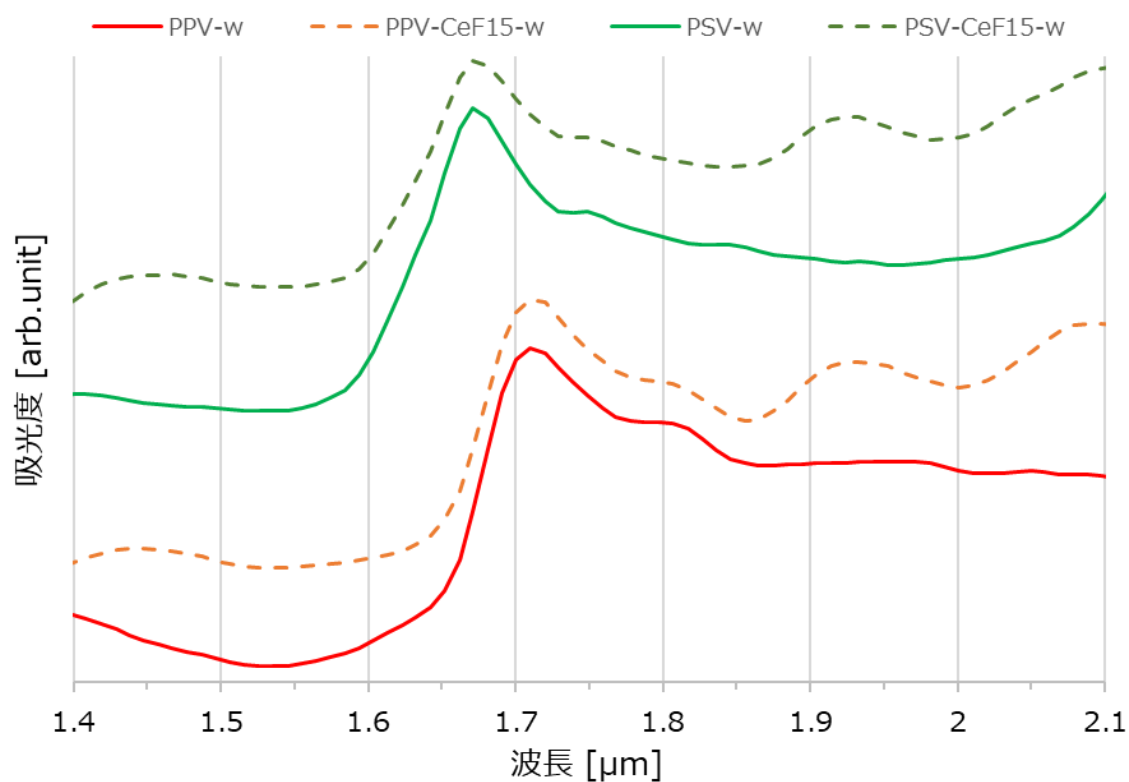


図 2-45 バージン材 PP(CeF 0%、15%)、PS(CeF 0%、15%)スペクトル

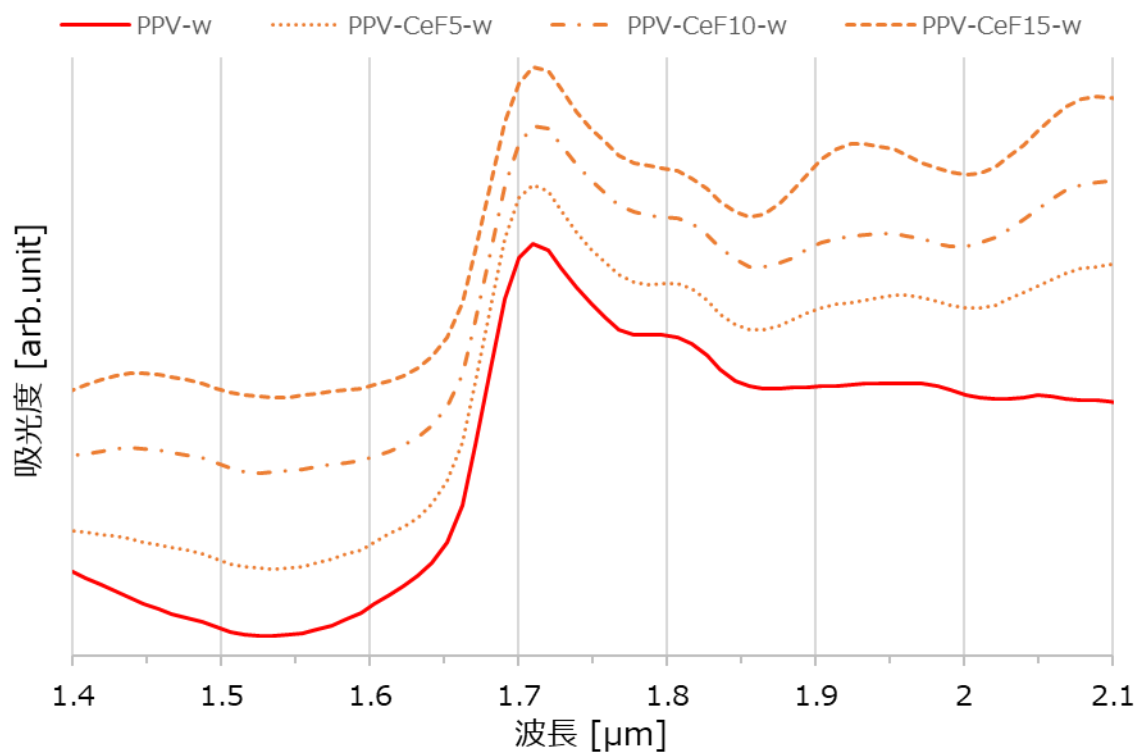


図 2-46 バージン材 PP(CeF0%、5%、10%、15%)スペクトル

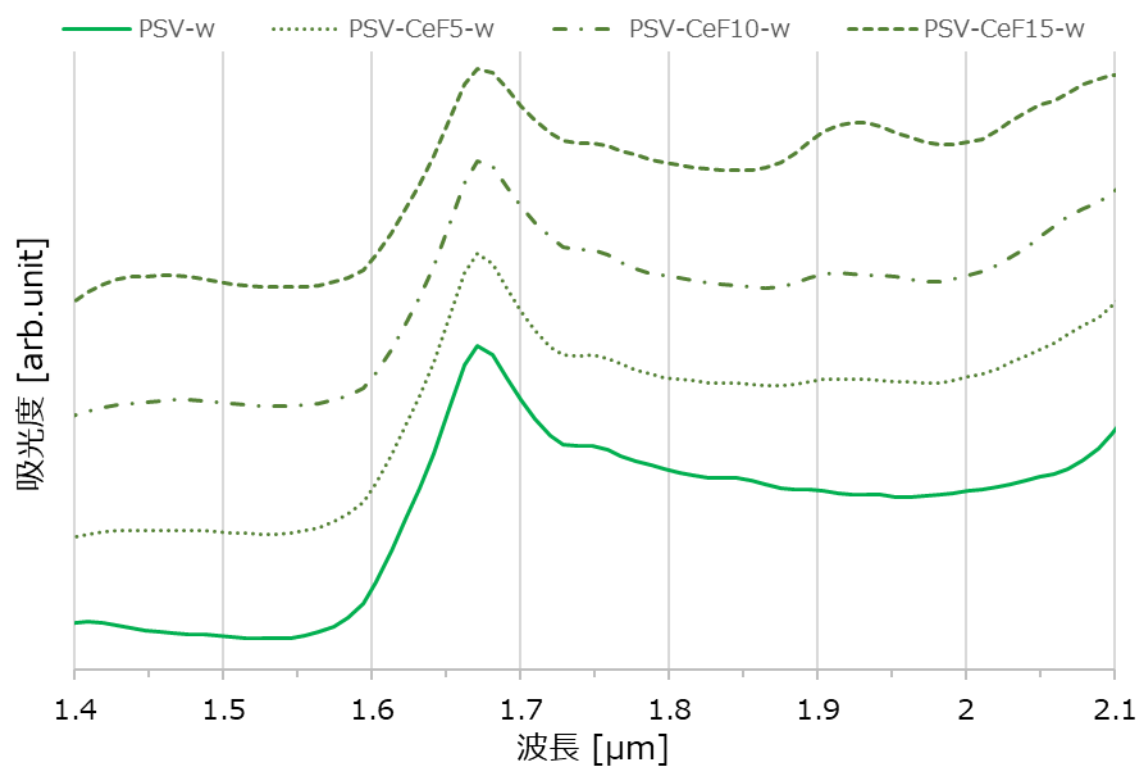


図 2-47 バージン材 PS(CeF0%、5%、10%、15%)スペクトル

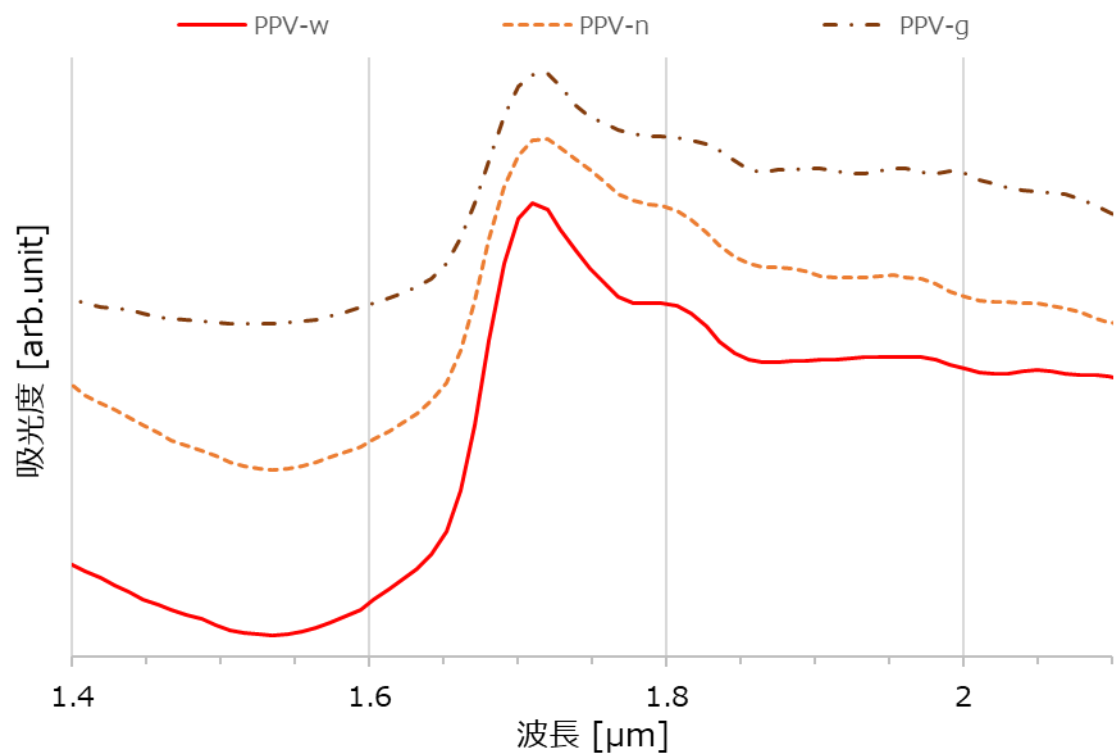


図 2-48 バージン材 PP(白色、ナチュラル色、灰色)スペクトル

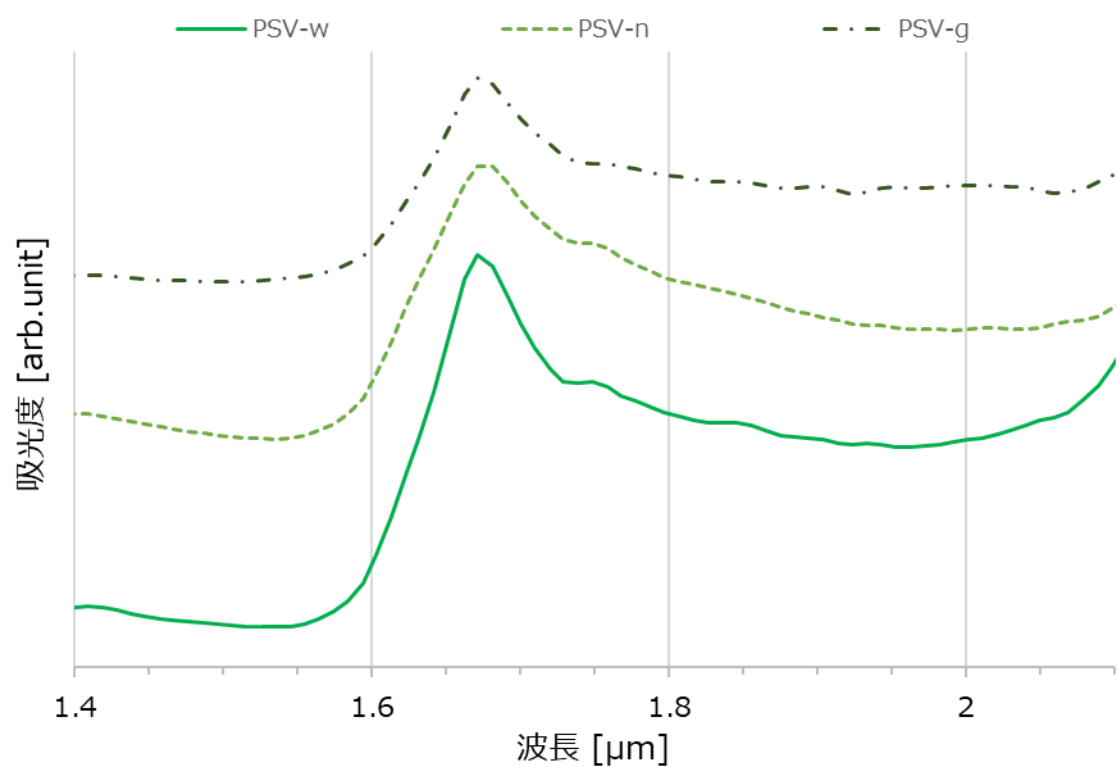


図 2-49 バージン材 PS(白色、ナチュラル色、灰色)スペクトル

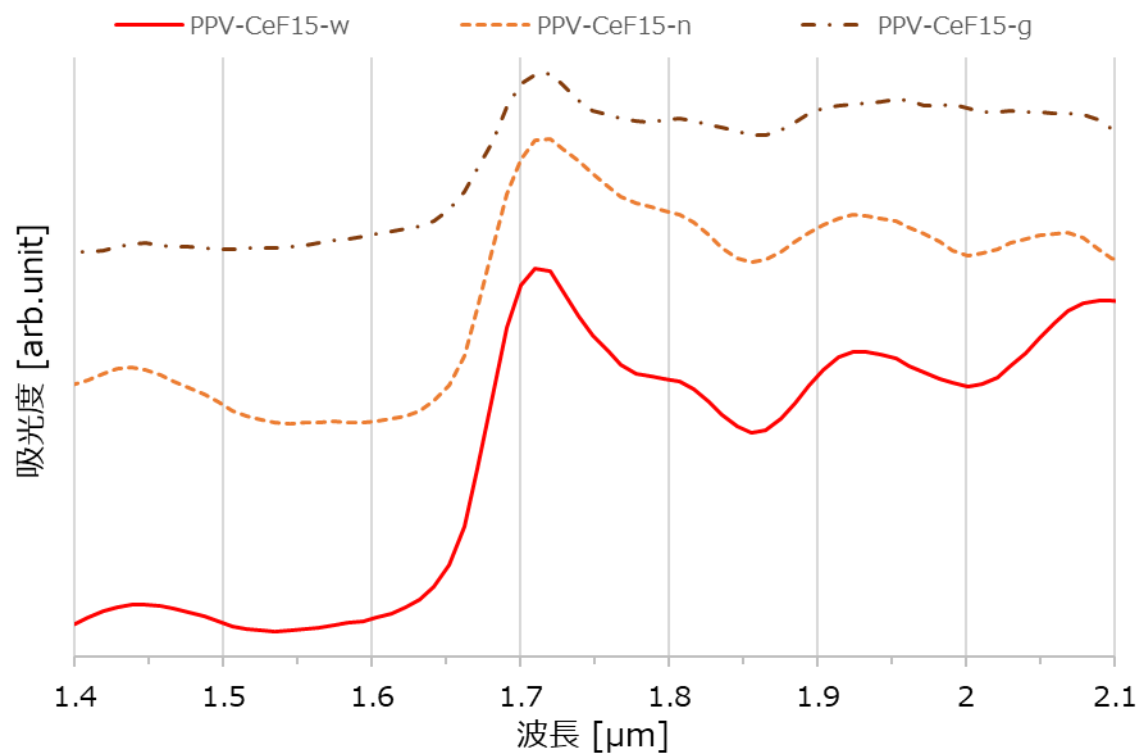


図 2-50 バージン材 PP+CeF15%(白色、ナチュラル色、灰色)スペクトル

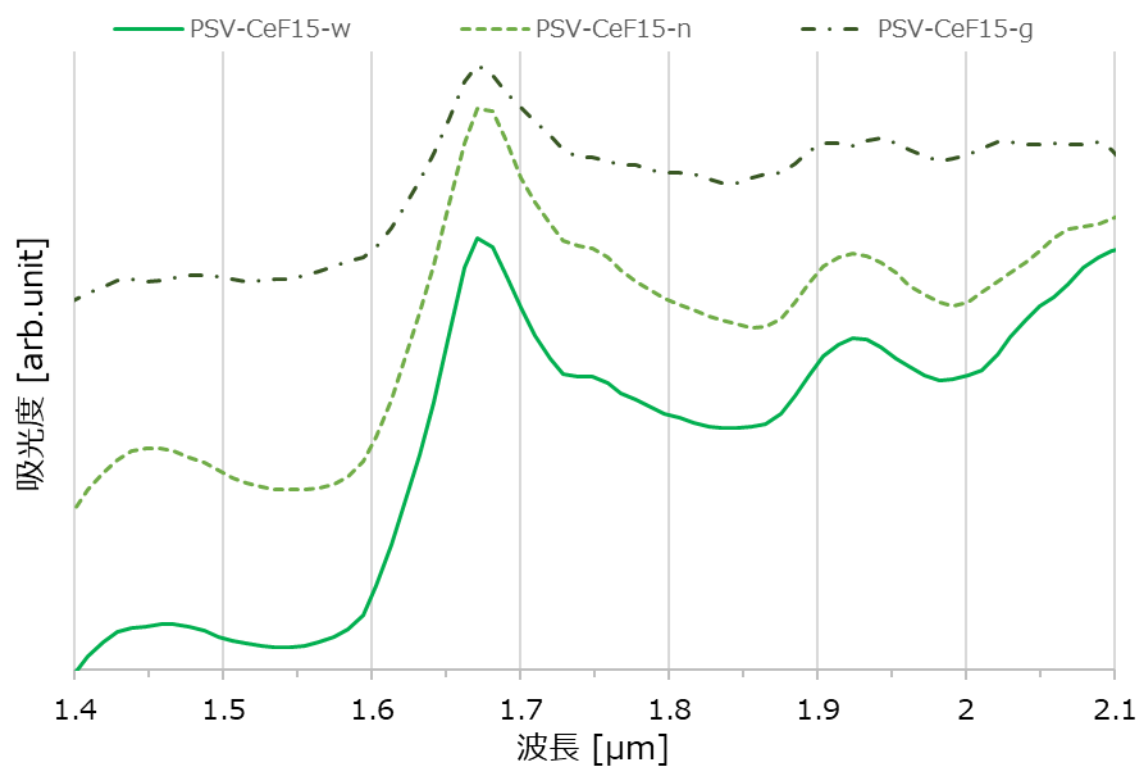


図 2-51 バージン材 PS+CeF15%(白色、ナチュラル色、灰色)スペクトル

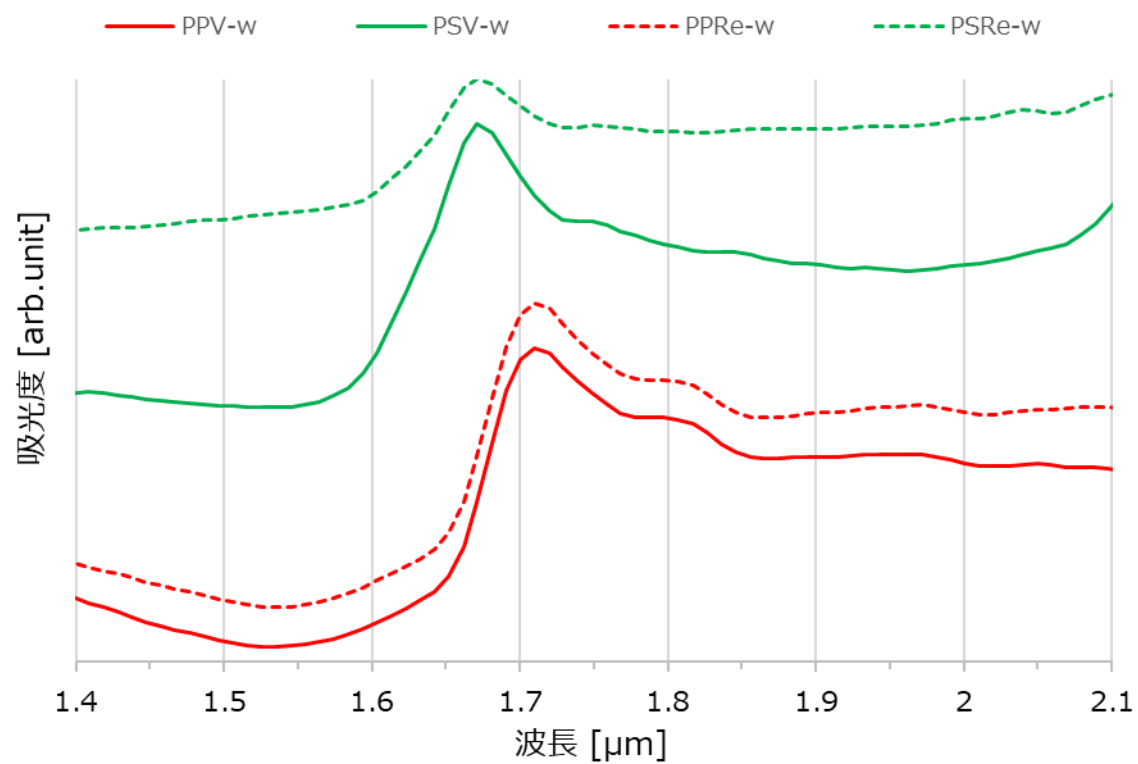


図 2-52 バージン材(PP、PS)と再生材(PP、PS)のスペクトル

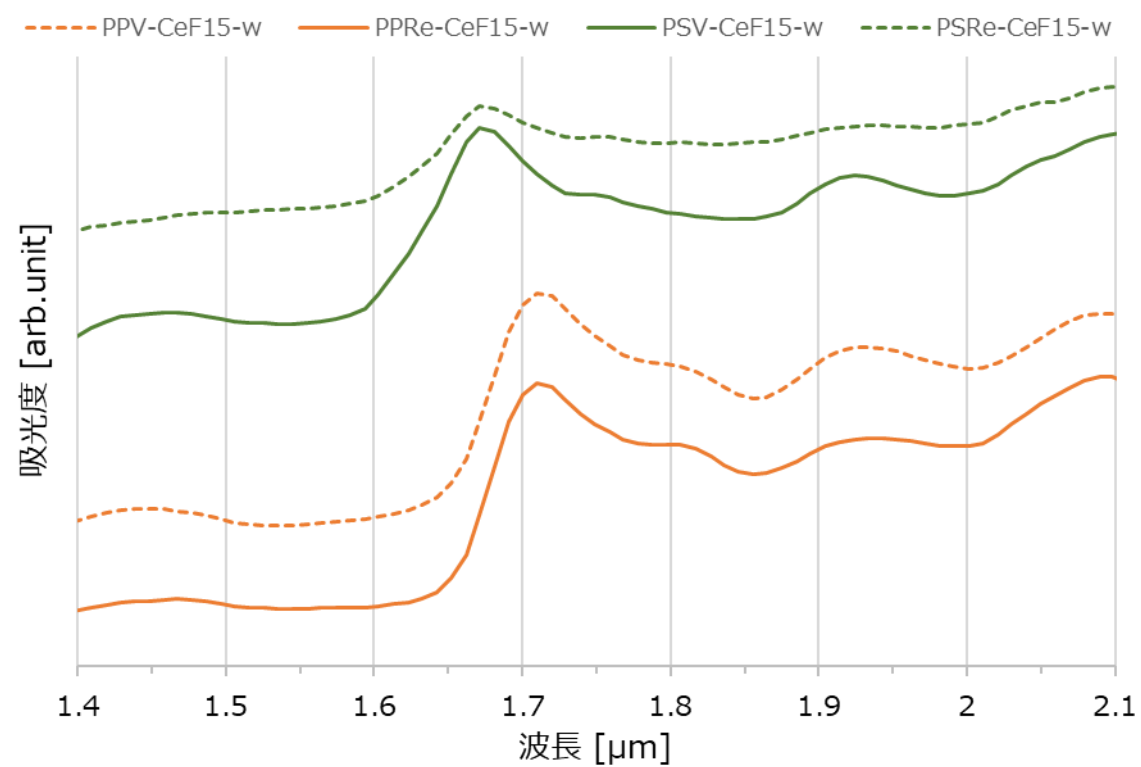


図 2-53 バージン材(CeF15%)と再生材(CeF15%)のスペクトル

以上の各結果より、波形の差異を定性的に確認した。

まず、図 2-45 について、バージン材 PP(PPV-w)と CeF15%を複合したバージン材 PP(PPV-CeF15-w)の差異として、 $1.45\mu\text{m}$ 、 $1.95\mu\text{m}$ および $2.15\mu\text{m}$ 付近に CeF 特有のピークが見られている。また、バージン材 PS(PSV-w)と CeF15%を複合したバージン材 PS(PSV-CeF15-w)においても同様の差異が見られている。このことから、上記帯域の差異を見分けることで CeF 複合の有無について判定が可能であると言える。

図 2-46 について、バージン材 PP(PPV-w)に対して、CeF 含有濃度を 0%、5%、10%、15%で複合したスペクトルを見ると、CeF の含有濃度が上がるにつれて、図 2-45 で確認した $1.45\mu\text{m}$ 、 $1.95\mu\text{m}$ および $2.15\mu\text{m}$ 付近の CeF 特有のピーク強度が高くなっていることが確認できる。一方で、CeF 含有濃度 0%と 15%では明確にピーク差異が確認できるものの、CeF 含有濃度 0%と 5%、CeF 含有濃度 5%と 10%では CeF 特有のピークが僅かである。このことから、CeF 含有濃度の判定においては、5%間隔での濃度別の判定は非常に困難であると考えられる。また、CeF 含有濃度 5%および 10%の判定においては、15%と比較すると CeF 特有のピーク差が僅かであるため、バージン材 PP と誤判定する可能性が考えられる。

図 2-47 について、バージン材 PS(PSV-w)に対して、CeF 含有濃度を 0%、5%、10%、15%で複合したスペクトルを見ると、図 2-46 の PP と同様に CeF 含有濃度が高くなるにつれて $1.45\mu\text{m}$ 、 $1.95\mu\text{m}$ および $2.15\mu\text{m}$ 付近のピーク強度が高くなっていることが確認できる。一方で、こちらも PP と同様に CeF 含有濃度 0%と 15%では明確にピーク差異が確認できるものの、CeF 含有濃度 0%と 5%、CeF 含有濃度 5%と 10%では CeF 特有のピークが僅かである。このことから、CeF 含有濃度の判定においては、5%間隔での濃度別の判定は非常に困難であると考えられる。また、CeF 含有濃度 5%および 10%の判定においては、15%と比較すると CeF 特有のピーク差が僅かであるため、バージン材 PS と誤判定する可能性が考えられる。

図 2-48 について、バージン材 PP に対して、着色剤を添加していないサンプル(PPV-n)と白色系の着色剤を添加したサンプル(PPV-w)においては、の差異は見られず、スペクトル波形はほぼ一致している。また、黒色系の着色剤を添加

して灰色に着色したサンプル(PPV-g)においては、スペクトルの形状はほぼ変わらないものの、全体的な強度が低くなっている。これは、黒色系の着色剤に含まれるカーボンブラックによる影響と考えられる。具体的には、カーボンブラックによって、測定波長領域の光を吸収したため、ハイパースペクトルカメラで検出される拡散光が減衰したものと推測する。

図 2-49 について、バージン材 PS に対して、図 2-48 の PP と同様であるが、着色剤を添加していないサンプル(PSV-n)と白色系の着色剤を添加したサンプル(PSV-w)においては、の差異は見られず、スペクトル波形はほぼ一致している。また、黒色系の着色剤を添加して灰色に着色したサンプル(PSV-g)においては、スペクトルの形状はほぼ変わらないものの、全体的な強度が低くなっている。こちらも、黒色系の着色剤に含まれるカーボンブラックによる光吸収の影響と考えられる。

図 2-50 について、CeF 含有濃度 15%で複合したバージン材 PP に対して、着色剤を添加していないサンプル(PPV-CeF15-n)と白色系の着色剤を添加したサンプル(PPV-CeF15-w)においては、の差異は見られず、スペクトル波形はほぼ一致している。また、黒色系の着色剤を添加して灰色に着色したサンプル(PPV-CeF15-g)においては、スペクトルの形状はほぼ変わらないものの、全体的な強度が低くなっている。こちらも、黒色系の着色剤に含まれるカーボンブラックによる光吸収の影響と考えられる。灰色に着色したサンプル(PPV-CeF15-g)においては、CeF 特有のピーク差が僅かであるため、バージン材 PP と誤判定する可能性が考えられる。

図 2-51 について、CeF 含有濃度 15%で複合したバージン材 PS に対して、図 2-50 の PP と同様に着色剤を添加していないサンプル(PSV-CeF15-n)と白色系の着色剤を添加したサンプル(PSV-CeF15-w)においては、の差異は見られず、スペクトル波形はほぼ一致している。また、黒色系の着色剤を添加して灰色に着色したサンプル(PPV-CeF15-g)においては、スペクトルの形状はほぼ変わらないものの、全体的な強度が低くなっている。こちらも、黒色系の着色剤に含まれるカーボンブラックによる光吸収の影響と考えられる。灰色に着色したサンプル(PSV-CeF15-g)においては、CeF 特有のピーク差が僅かであるため、バージン材 PS と誤判定する可能性が考えられる。

図 2-52 について、バージン材 PP(PPV-w)と再生材 PP(PPre-w)のスペクトル波形はほぼ一致している。一方で、バージン材 PS(PSV-w)と再生材 PS(PPre-w)については、波形の形状自体は一致しているものの、再生材 PS(PPre-w)のスペクトル強度が全体的に低くなっている。これは図 2-48 から図 2-51 で見られた色味の影響によるものであり、詳細については、次の図 2-53 の結果と交えて説明する。

図 2-53 について、CeF15%を複合したバージン材 PP(PPV-CeF15-w)と CeF15%を複合した再生材 PP(PPre-CeF15-w)のスペクトル波形はほぼ一致している。また、CeF15%を複合したバージン材 PS(PSV-CeF15-w)と CeF15%を複合した再生材 PS(PPre-CeF15-w)については、再生材 PS(PPre-CeF15-w)のスペクトル強度が低くなっている。

これは、図 2-54 に示すように、再生材 PS(PPre-CeF15-w)の色味が灰色と なっていることが影響していると考えられる。ベース材料となった再生材 PS が、様々な廃家電部品から構成されており、その中に黒色系の着色剤が含まれるものが多かったためと推測する。再生材 PS(PPre-CeF15-w)においては、CeF 特有のピーク差が僅かであるため、バージン材 PS と誤判定する可能性が考えられる。

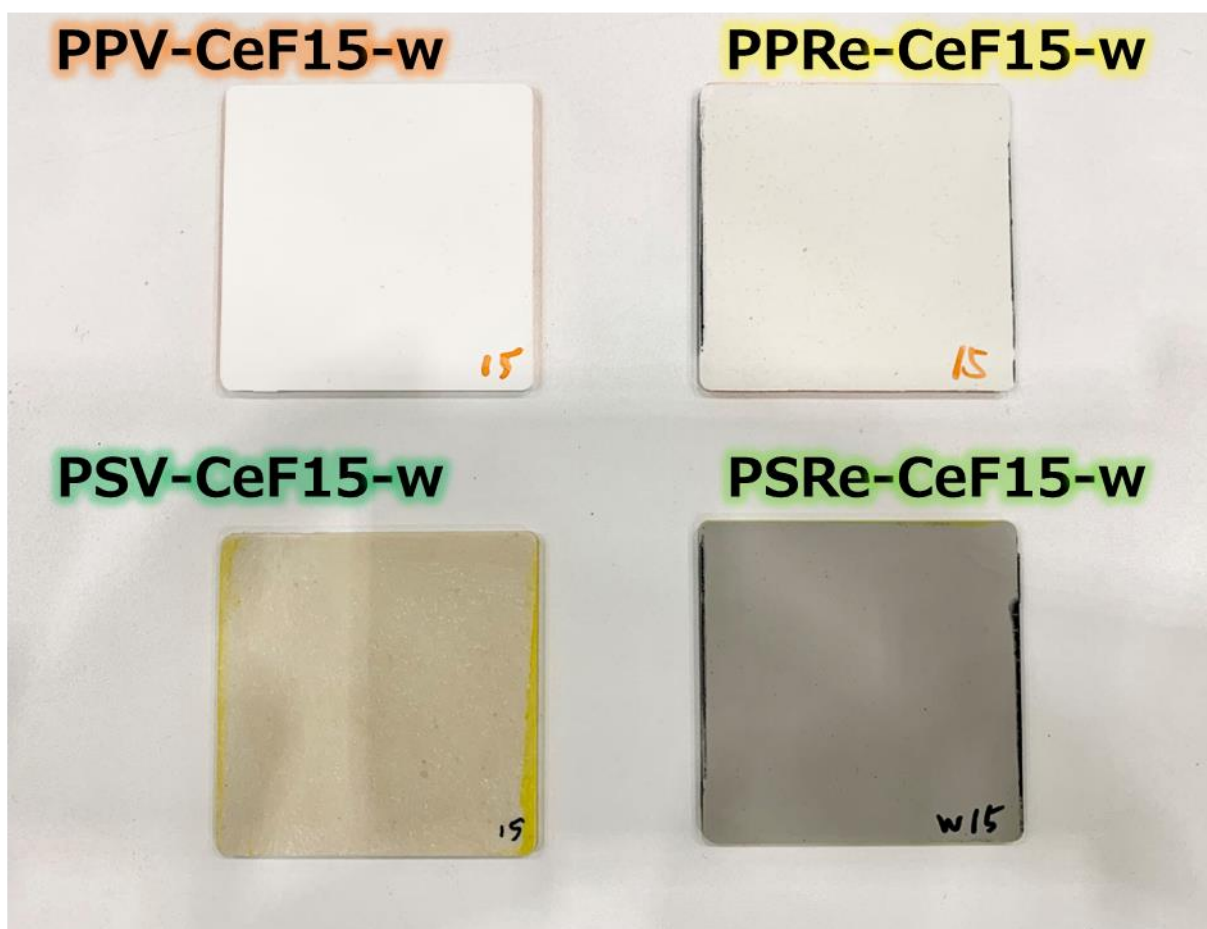


図 2-54 バージン材(CeF15%)と再生材(CeF15%)のサンプル写真

2.2.3.3. ハイパースペクトルカメラを用いた高速搬送下での判別検証

本検証で使用した樹脂サンプルは今回追加した表 2-33 の内、CeF 含有濃度 5%および 10%のものを除き、かつ昨年度までに作製していた母材がバージン材である CeF 複合樹脂や、CeF を含有しないベース母材のみの樹脂サンプルも合わせた 30 種のサンプルで実施した(表 2-37)。なお、本検証においては家電によく使われている ABS および CeF 複合 ABS もサンプルとして使用した。

表 2-37 高速搬送判別検証用サンプル

サンプル名	”ベース母材”+”CeF 添加量”	色味
PP-w	新材 PP	白色
PP-n	新材 PP	ナチュラル色
PP-g	新材 PP	灰色
PPRe-w	(再生 PP100%)	白色
PPRe-n	(再生 PP100%)	ナチュラル色
PPRe-g	(再生 PP100%)	灰色
PPV-CeF15-w	(新材 PP) +CeF15%	白色
PPV-CeF15-n	(新材 PP) +CeF15%	ナチュラル色
PPV-CeF15-g	(新材 PP) +CeF15%	灰色
PPRe-CeF15-w	(再生 PP) +CeF15%	白色
PPRe-CeF15-n	(再生 PP) +CeF15%	ナチュラル色
PPRe-CeF15-g	(再生 PP) +CeF15%	灰色
ABS-w	新材 ABS	白色
ABS-n	新材 ABS	ナチュラル色
ABS-g	新材 ABS	灰色
ABSV-CeF15-w	(新材 ABS) +CeF15%	白色
ABSV-CeF15-n	(新材 ABS) +CeF15%	ナチュラル色
ABSV-CeF15-g	(新材 ABS) +CeF15%	灰色
PS-w	新材 PS	白色
PS-n	新材 PS	ナチュラル色
PS-g	新材 PS	灰色
PSRe-w	(再生 PS100%)	白色
PSRe-n	(再生 PS100%)	ナチュラル色

PSRe-g	(再生 PS100%)	灰色
PSV-CeF15-w	(新材 PS) +CeF15%	白色
PSV-CeF15-n	(新材 PS) +CeF15%	ナチュラル色
PSV-CeF15-g	(新材 PS) +CeF15%	灰色
PSRe-CeF15-w	(再生 PS) +CeF15%	白色
PSRe-CeF15-n	(再生 PS) +CeF15%	ナチュラル色
PSRe-CeF15-g	(再生 PS) +CeF15%	灰色

以上のサンプルを図 2-42 の量産検証用選別装置に投入し、搬送されながらの判別、およびその判別結果を用いたエアノズルでの射落としシミュレーションを実施した。

ここで射落としシミュレーションとは当社が独自に開発したシミュレーションソフトであり、HSC による判別結果を用いて、ある樹脂片をどの樹脂種としてエアノズルで射落とすかシミュレーションするものである。この結果により、例えば CeF-PP を CeF-PS として誤って射落としていけば、CeF-PP の純度が下がり、かつ CeF-PS の回収率が下がるというように、純度・回収率を算出していく。

図 2-55 がシミュレーションソフトの一部である。図右側には赤く示された四角形が 6 片見られるが、これは PP-w の樹脂サンプルをコンベア上に流し、判別したものの一部であり、すべてが PP(CeF を含有しない)を示す赤色になっており、正しく判別されていることを示す。仮に CeF-PP や PS などに誤判定されると、それぞれピンクや緑色に着色されて表示される。

樹脂No:樹脂名	教示名	
1:コンベア	conveyor	
2:PP	PP-w	
	PP-n	
	PP-g	
	PPRe-w	
	PPRe-n	
	PPRe-g	
3:PP-CeF	PPV-CeF5-w	
	PPV-CeF5-n	
	PPV-CeF5-g	
	PPV-CeF10-w	
	PPV-CeF10-n	
	PPV-CeF10-g	
	PPV-CeF15-w	
	PPV-CeF15-n	
	PPV-CeF15-g	
	PPRe-CeF15-w	
	PPRe-CeF15-n	
	PPRe-CeF15-g	
4:ABS	ABS-w	
	ABS-n	
	ABS-g	
5:ABS-CeF	ABSV-CeF15-w	
	ABSV-CeF15-n	
	ABSV-CeF15-g	
6:PS	PS-w	
	PS-n	
	PS-g	
	PSRe-w	
	PSRe-n	
	PSRe-g	
	PSV-CeF5-w	
	PSV-CeF5-n	
	PSV-CeF5-g	

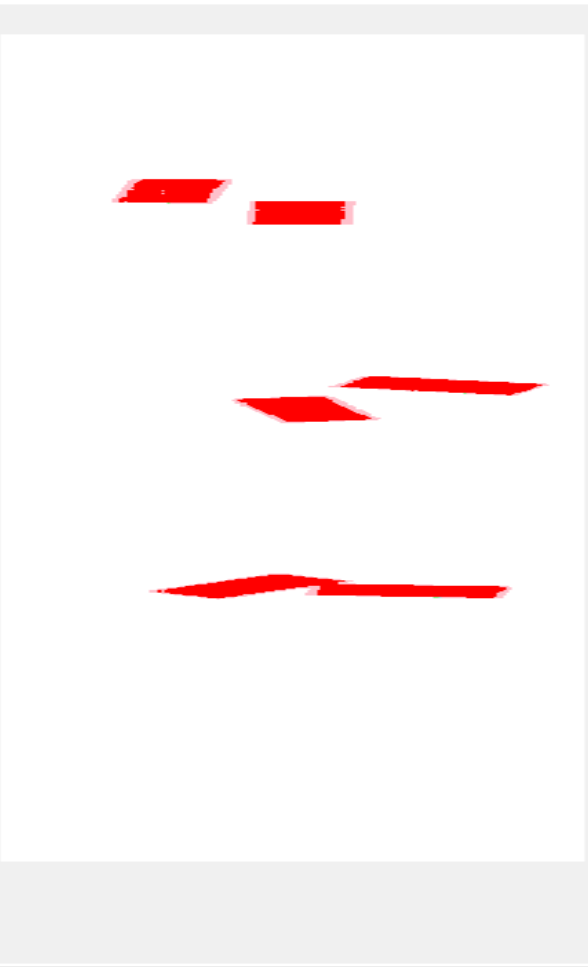


図 2-55 シミュレーション画面(一部編集)

これを用いて、表 2-37 すべてのサンプルを判別、射落としシミュレーションを実施した。なお、表 2-37 の樹脂は実際のリサイクル工場ではすべてが同比率で混在している訳ではないため、純度・回収率を算出するにあたり、表 2-38 の条件でサンプルごとの混在比を重みづけした。

表 2-38 サンプル配合条件

項目	条件	比率
母材	PP : ABS : PS	1 : 1 : 1
色	白 : ナチュラル : 灰色	7 : 2 : 1
CeF 有無	CeF 無 : CeF 有	9 : 1
再生材 (PP,PS のみ)	新材 : 再生材	9 : 1

この条件により、各サンプルを表 2-39 の枚数ずつ配合したと想定し、純度・回収率の評価を行った。

表 2-39 想定配合枚数

サンプル名	枚数	サンプル名	枚数
PP-w	5670	ABSV-CeF15-w	700
PP-n	1620	ABSV-CeF15-n	200
PP-g	810	ABSV-CeF15-g	100
PPRe-w	630	PS-w	5670
PPRe-n	180	PS-n	1620
PPRe-g	90	PS-g	810
PPV-CeF15-w	630	PSRe-w	630
PPV-CeF15-n	180	PSRe-n	180
PPV-CeF15-g	90	PSRe-g	90
PPRe-CeF15-w	70	PSV-CeF15-w	630
PPRe-CeF15-n	20	PSV-CeF15-n	180
PPRe-CeF15-g	10	PSV-CeF15-g	90
ABS-w	6300	PSRe-CeF15-w	70
ABS-n	1800	PSRe-CeF15-n	20
ABS-g	900	PSRe-CeF15-g	10

検証結果を以下の表 2-40 に示す。

表 2-40 射落としシミュレーション結果

樹脂種	純度 ($\geq 80\%$)	回収率 ($\geq 60\%$)	判定
PP	99.9%	99.7%	○
PP-CeF	97.6%	99.5%	○
ABS	100%	90.0%	○
ABS-CeF	80.2%	84.2%	○
PS	91.2%	99.7%	○
PS-CeF	91.2%	89.5%	○

また各樹脂サンプルがどのデータベースに判別されたかを含む、詳細な検証結果が表 2-41 である。行が判別したサンプル名、列が判別されたデータである。例えば PPre-w は 630 枚中、606 枚が正しく判定され、24 枚が誤判定(PP-CeF に判定)されたということになる。正しく判定された枚数を太字で示している。

表 2-41 射落としシミュレーション結果(詳細)

		PP	PP-CeF	ABS	ABS-CeF	PS	PS-CeF
PP	PP-w	5670	0	0	0	0	0
	PP-n	1620	0	0	0	0	0
	PP-g	810	0	0	0	0	0
	PPRe-w	606	24	0	0	0	0
	PPRe-n	180	0	0	0	0	0
	PPRe-g	90	0	0	0	0	0
PP -CeF	PPV-CeF15-w	0	630	0	0	0	0
	PPV-CeF15-n	0	180	0	0	0	0
	PPV-CeF15-g	5	85	0	0	0	0
	PPRe-CeF15-w	0	70	0	0	0	0
	PPRe-CeF15-n	0	20	0	0	0	0
	PPRe-CeF15-g	0	10	0	0	0	0
ABS	ABS-w	0	0	6300	0	0	0
	ABS-n	0	0	1800	0	0	0
	ABS-g	0	0	0	208	692	0
ABS -CeF	ABSV-CeF15-w	0	0	0	700	0	0
	PPV-CeF15-n	0	0	0	133	67	0
	PPV-CeF15-g	0	0	0	9	36	55
PS	PS-w	0	0	0	0	5670	0
	PS-n	0	0	0	0	1620	0
	PS-g	0	0	0	0	810	0
	PSRe-w	0	0	0	0	630	0
	PSRe-n	0	0	0	0	180	0
	PSRe-g	0	0	0	0	64	26
PS - CeF	PSV-CeF15-w	0	0	0	0	0	630
	PSV-CeF15-n	0	0	0	0	45	135
	PSV-CeF15-g	0	0	0	0	25	65
	PSRe-CeF15-w	0	0	0	0	30	40
	PSRe-CeF15-n	0	0	0	0	0	20
	PSRe-CeF15-g	0	0	0	0	5	5

まず表 2-40 よりハイパースペクトルカメラを用いた、高速搬送下における選別目標である純度 80%以上、回収率 60%以上をシミュレーションにおいて全樹脂種で達成することができた。

表 2-41 を見ると、PS-CeF が PS に誤判定されていることが目立つ(PSV-CeF15-w 以外)。これは図 2-54 にも示すように、樹脂サンプルが濃色に近い色となっているために、近赤外線が吸収され正しく判別できなかったものと思われる。それら色味の課題については 2.2.3.4 にてまとめる。

来年度においては、今回の HSC をはじめとした判別部をエアノズルユニットとも結合することで、実際に樹脂サンプルを射落とし、純度・回収率の評価を進めていく。

2.2.3.4. 高速選別に向けた課題と来期取組みに向けて

2.2.3.2 で示した各樹脂スペクトルの結果と、2.2.3.3 で示した高速搬送下(3m/s)での判別検証結果を踏まえ、高速選別に向けた課題として以下の3点が課題として挙げる。

i) CeF濃度判別の精度向上および可能性の見極め

図 2-46と図 2-47で示したようにCeF濃度5%、10%程度の低濃度ではCeF含有の有無および濃度の判別精度向上が課題と言える。そのため、来期に向けて、CeF特有のピーク位置により着目して判定するようなアルゴリズムを加え、改善の効果と可能性の見極めを行う必要があると考える。

ii) 色味の影響を考慮した判定精度の向上および可能性の見極め

図 2-48 から図 2-51 で示したように色味による影響を加味した判別精度向上が課題と言える。そのため、来期に向けて、スペクトル強度により着目して判定するようなアルゴリズムを加え、改善の効果と可能性の見極めを行う必要があると考える。

iii) 樹脂種拡大を想定した判定精度の向上および可能性の見極め

今回、ベース母材としてPPとPSについて検証を実施したが、家電製品においては、これらに加えABSも多く使用されている。これまでの実証で作製したABSのサンプルを含めて、PP、PS、ABSのCeF濃度0%および15%のスペクトルを図 2-56に示す。ベース母材であるバージン材同士(PPV-w、PSV-w、ABSV-w)においては、従来通り判別は可能であることがこれまでの検証で確認できている。

一方で、CeF15%含有樹脂(PP-CeF15-w、PS-CeF15-w、ABS-CeF15-w)のスペクトルを踏まえると、バージン材ABS(ABSV-w)とCeF15%含有PS(PS-CeF15-w)およびABS(ABS-CeF15-w)が近似していることが分かる。このことから、樹脂種拡大に向けた判別精度向上が課題と言える。

そのため、来期に向けて、近似するスペクトルにより着目して判定するようなアルゴリズムを加え、改善の効果と可能性の見極めを行う必要があると考える。

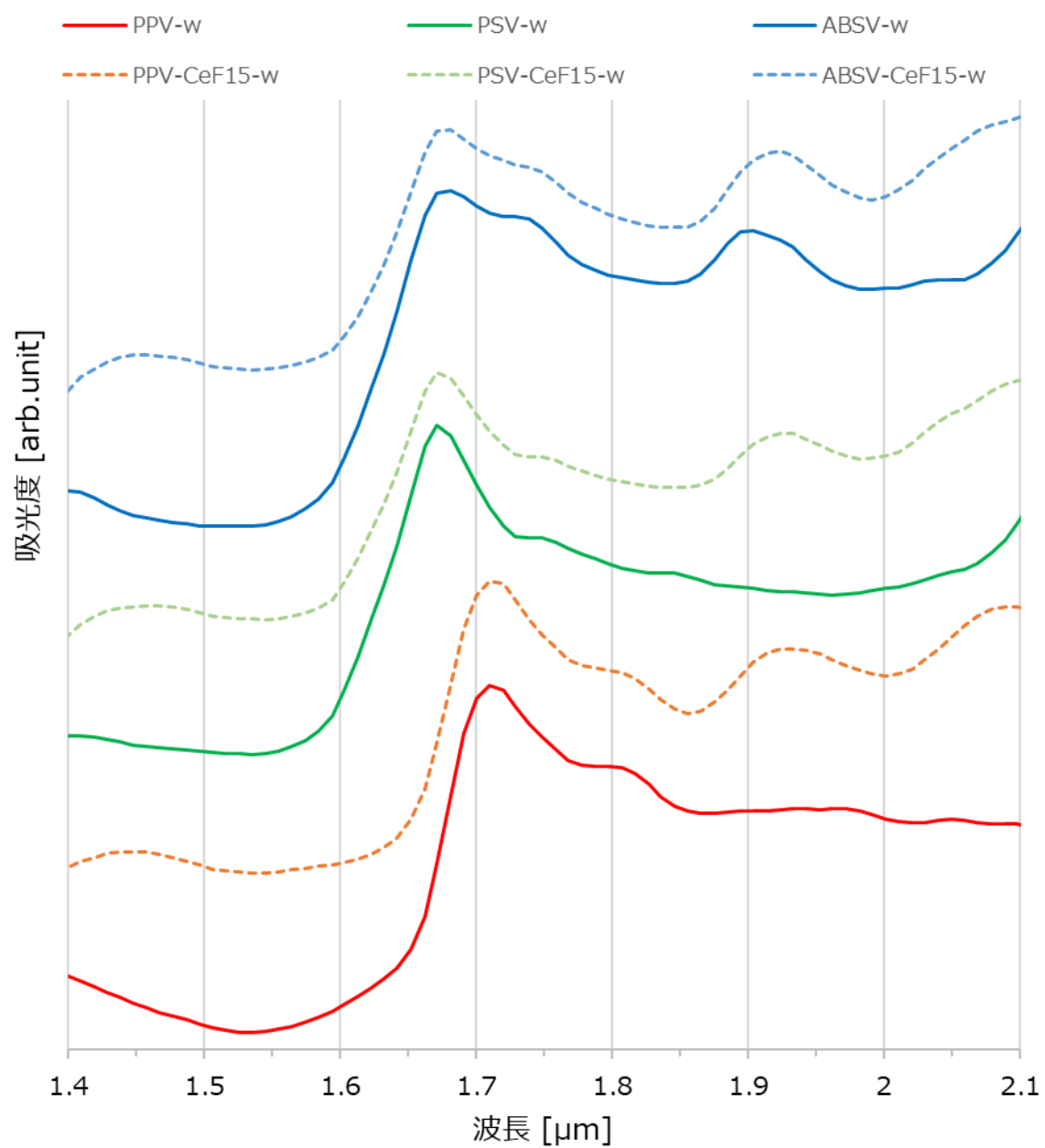


図 2-56 バージン材 PP、PS、ABS の CeF 濃度 0%、15% スペクトル

2.2.4. 結言

バージン材に CeF を複合したサンプルに加え、再生材に CeF を複合したサンプルの判別用データベースを構築し、判別評価を実施した。加えてハイパースペクトルカメラを用いて、3m/s での高速搬送下での判別評価を実施した。

その結果、近赤外線分光器においては濃度ごとの判別の可能性を見出し、ハイパースペクトルカメラにおいては高速搬送下での判定で純度 80%以上、回収率 60%以上を達成した。

また課題として、以下の 3 点が課題であることが分かった。

- i) 5～10%程度の低濃度での判別精度向上および可能性の見極め
- ii) 色味の影響を考慮した判定精度の向上および可能性の見極め
- iii) PS、ABSにおける判定精度の向上および可能性の見極め

今後としては、上記判定精度の改善および精度の見極めを行い、ハイパースペクトルカメラを用いた高速搬送下(3m/s)での選別工法の開発を実施する。

また、CeF 複合樹脂のリサイクルシステム普及にあたり、選別装置の低コスト化、汎用化についても検討していく。

2.3. セルロースファイバー複合樹脂の資源循環システムへの影響評価

2.3.1. 緒言

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

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

2.3.2. アプローチ

昨年度に実施した選別時の影響評価によって、一般的な樹脂選別のフローである湿式比重選別と静電選別を用いた 2 段階選別における CeF 複合樹脂の選別時の課題が明確になった。具体的な課題は、CeF 含有濃度が 15%以下(家電適応において想定される濃度)の場合には、3 種(PS, ABS, PP)の混合樹脂を単一樹脂に選別することが可能であるが、一方で、CeF の複合/非複合の選別は難しいということである。CeF の複合/非複合の選別が出来ない場合、意図せず再生樹脂に CeF 複合樹脂が混入してしまい、その物性に影響を与えてしまうことが考えられる。そこで、CeF 樹脂の家電製品での普及率が 1%~10%を想定したケーススタディを実施し、再生樹脂に意図せず CeF 複合樹脂が混入してしまった場合に、どの程度の極低濃度 CeF 複合樹脂が生成されるのかの影響を考察する。

さらに、再生時の影響評価として、上記ケーススタディの結果をもとに、極低濃度 CeF 複合樹脂を作製し、その物性評価を行うことで、再生樹脂にどのような影響が発生するかを評価する。

2.3.3. 取組結果

(i) 選別時の影響評価

図 2-57 に、リサイクル工場で用いられる一般的な樹脂選別フローを示す。回収されて家電は、まず手解体により忌避物と基板等の有価物を取り除かれる。その後、機械破碎された後に、磁力選別によって鉄が回収され、渦電流選別によって銅・アルミが回収される。続いて樹脂選別工程において PP、PS、ABS の 3 種の樹脂を単一樹脂に選別した後、再生工程で再生樹脂が生産させる。

図 2-58 に CeF 複合樹脂適応前後の選別フローを示す。CeF 複合樹脂適応前の現在の樹脂選別では、湿式フローである①水比重+静電選別が多くのリサイクル工場で採用されている(樹脂選別フロー①)。また一部のリサイクル工場では、②近赤外線選別が実施されている(樹脂選別フロー②)。この両選別フローに CeF 複合樹脂が適応されると、①水比重+静電選別では、単一樹脂への選別は可能だが、CeF 含有/非含有は選別不可となり、PP、PS、ABS のそれぞれに CeF が複合された PP-CeF、PS-CeF、ABS-CeF 樹脂が意図せず混入してしまう。一方、②近赤外線選別では、近赤外線選別を CeF 対応に改造することで、単一樹脂に選別するだけでなく、CeF 含有/非含有も選別することが可能となる。

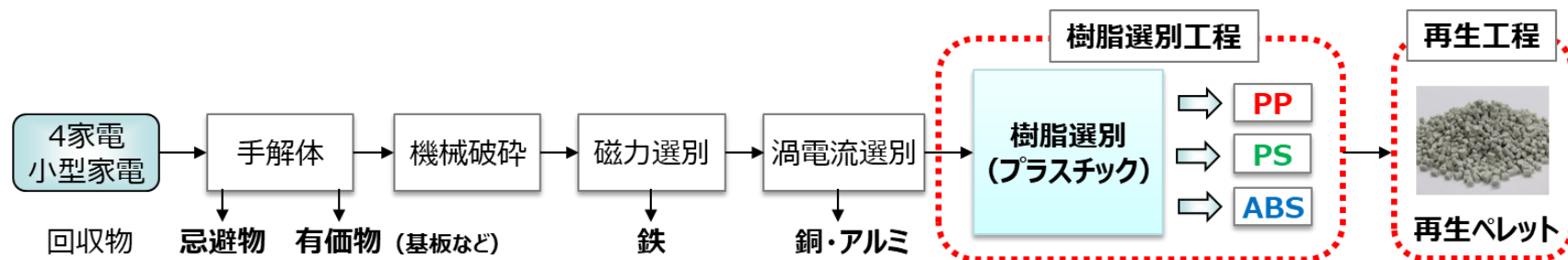


図 2-57 一般的な家電リサイクルフロー

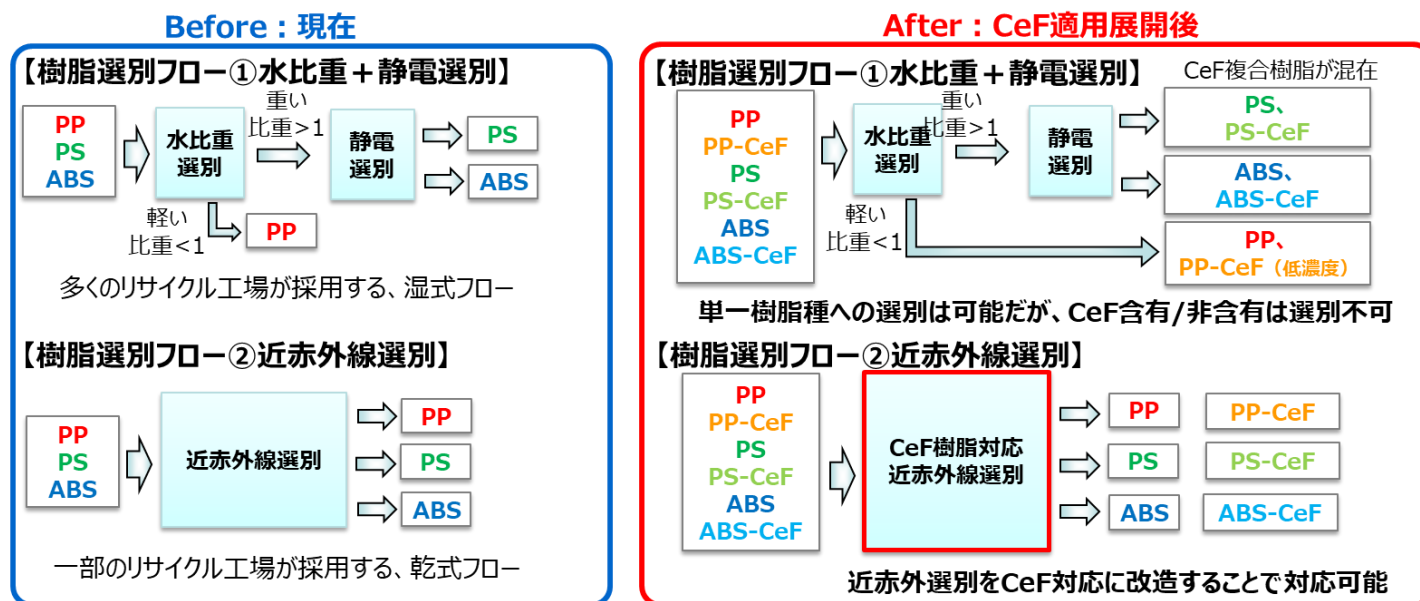


図 2-58 CeF 複合樹脂適応前後の選別フロー

ここで、CeF 樹脂の普及率を 1～10%で想定し、

① 水比重+静電選別

② CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別

の各選別フローで、CeF 樹脂が混入する量のケーススタディを実施する。ケーススタディ時の想定条件を図 2-59 に示す。CeF 複合樹脂の CeF 濃度は、15%に設定した。また、CeF 含有/非含有の選別は、①水比重+静電選別では不可とし、②CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別では可能とした。

◇ケーススタディ時の想定条件

・ CeF複合樹脂のCeF濃度=15%に設定

	母材樹脂の 単一樹脂への選別	CeF含有/非含有 の選別
①水比重+静電分離選別	○	×
②CeF対応近赤外線選別	○	○

図 2-59 ケーススタディ時の想定条件

図 2-58 の想定条件で実施したケーススタディでの CeF 複合樹脂の混入による回収樹脂中の CeF 濃度を図 2-60 に示す。①水比重+静電選別では、回収純度 100%とした。一方で、②CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別では、現在稼働中の選別装置の実績を基に、回収純度を 97%として、CeF 樹脂の混入率を 3%と設定した。

◇ CeF複合樹脂の混入による回収樹脂中のCeF濃度

①水比重+静電分離選別

	CeF樹脂 普及率	回収樹脂全体の CeF濃度
(1)-1	1.0%	0.15%
(1)-3	5.0%	0.75%
(1)-5	10.0%	1.50%

②CeF対応近赤外線選別

	CeF樹脂 普及率	回収純度	CeF 混入率	回収樹脂全体の CeF濃度
(2)-1	1.0%	97%	3%	0.00%
(2)-3	5.0%	97%	3%	0.02%
(2)-5	10.0%	97%	3%	0.05%

図 2-60 CeF 複合樹脂の混入による回収樹脂中の CeF 濃度

ケーススタディの結果としては、①水比重+静電選別では、普及率 10%で回収樹脂全体の CeF 濃度は、1.5%になった。一方で、②CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別では、普及率 10%でも 0.05%に抑制できることが分かった。

以上のケーススタディにより、近赤外線選別による CeF 含有/非含有の選別を実現することが非常に重要であることが分かった。

(ii) 再生時の影響評価

続いて、ケーススタディ結果を元に、極低濃度 CeF 複合再生樹脂を作製し、その物性評価を実施した。結果を図 2-61 に示す。

CeF 濃度 0.05%では、特性にほぼ影響がないことが分かった。CeF 濃度 0.15%を超えると、シャルピー衝撃値、引張伸びの低下が発生し始め、CeF 濃度 0.75%では 15%程度のシャルピー衝撃値、引張伸びの低下が発生してしまうことが分かった。一方で、CeF 複合による曲げ弾性率、曲げ強さ、引張強さの物性強化効果は、まだ発生しておらず、極低濃度領域では、CeF 複合による物性強化の恩恵が受けにくいことが示唆された。

次に、選別方式の違いによる影響について考察する。①水比重+静電選別を実施した場合、CeF 複合樹脂の普及率が 10%時の時の回収樹脂に含まれる CeF 濃度は 1.5%である。この時、シャルピー衝撃値、引張伸びで 20%弱の物性低

下が発生してしまう可能性があることが示唆された。一方で、②CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別を実施した場合、CeF 複合樹脂の普及率が10%時の時の回収樹脂に含まれる CeF 濃度は 0.05%であり、その物性値にほぼ影響がないことが分かった。

以上の結果から、②CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別を普及させることで、CeF 複合樹脂が 10%程度普及した場合でも、単一再生樹脂に意図せず混入する CeF 複合樹脂の濃度を極めて低く抑えることが可能となり、物性低下を抑制することが可能であることが示唆された。

続いて、極低濃度 CeF 複合再生樹脂の色見について評価を行った。CeF 濃度 0%～1.5%のダンベル試験片の写真を図 2-62 に示す。0%～1.5%のダンベル試験片のいずれにおいても、CeF 複合樹脂特有の茶色への変色は見られないという結果になった。

この結果より、CeF 濃度 1.5%程度の極低濃度 CeF 複合樹脂が生産されてしまった場合でも、色見の影響としては、ほとんどないことが確認できた。

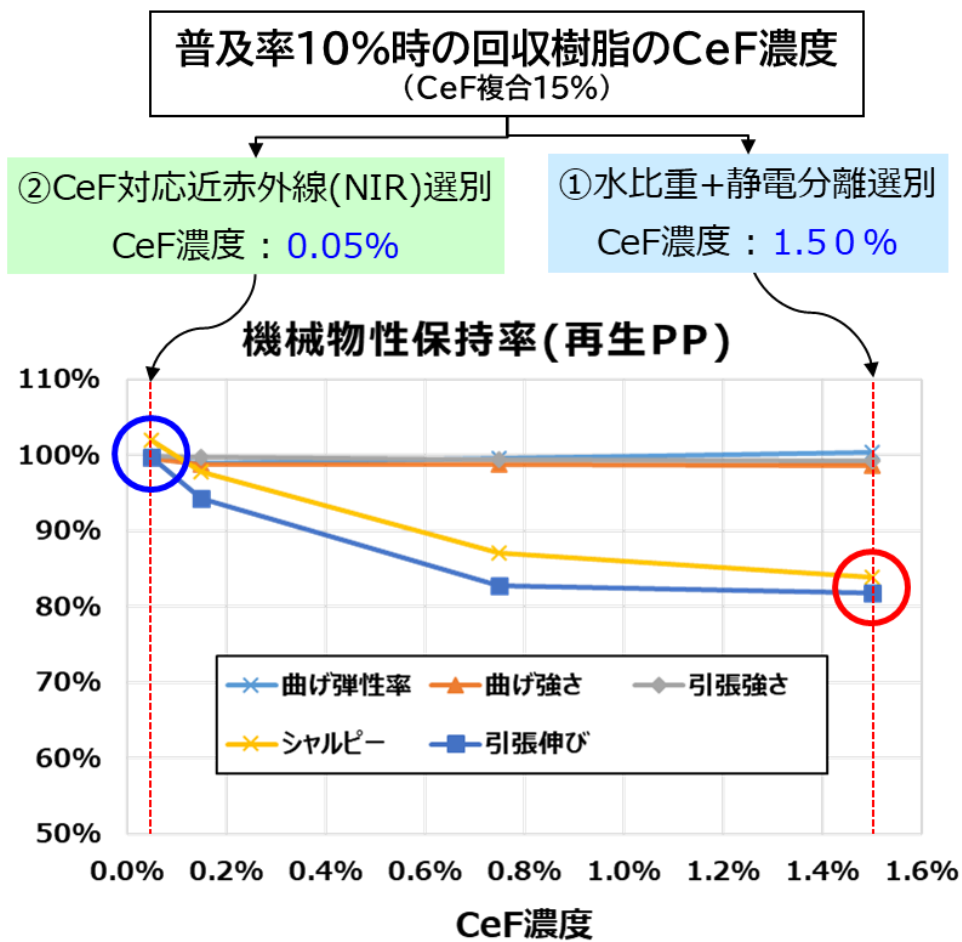


図 2-61 極低濃度 CeF 複合再生樹脂の物理特性

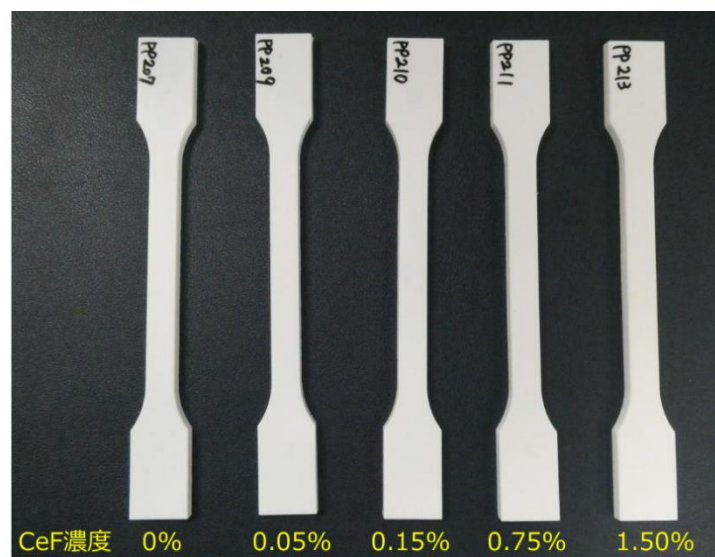


図 2-62 ダンベル試験片

2.3.4. 結言

一般的な家電リサイクルフローを提示し、さらに樹脂選別工程における CeF 複合樹脂の選別時の課題を明確化した上で、CeF 樹脂の普及率が 1%～10%を想定したケーススタディを実施し、再生樹脂に意図せず CeF 複合樹脂が混入してしまった場合の影響を評価した。

- ① 比重+静電選別を実施した場合、CeF 複合樹脂の普及率が 10%時の回収樹脂に含まれる CeF 濃度は 1.5%となり、この時、シャルピー衝撃値、引張伸びで 20%弱の物性低下が発生してしまう可能性があることがわかった。
- ② CeF 含有/非含有の選別に対応した近赤外線選別を実施した場合には、回収樹脂に含まれる CeF 濃度は 0.05%となり、物性への影響がないことを明確化した。

今回、CeF 複合樹脂の混入に着目し、資源循環システムへの影響を評価したが、20%以上の高濃度 CeF 複合樹脂が生産された場合には、水比重選別において、本来 PP、PS、ABS の単一樹脂回収にも影響が出る可能性がある。この影響については、次年度での評価を予定している。

2.4. LCA の検証・評価

2.4.1. 緒言

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

2.4.2. アプローチ

2.4.2.1. アプローチ(全体)

日本 LCA 学会及び経産省が公表している LCA ガイドライン⁹⁾¹⁰⁾に基づき、バイオ素材複合再生樹脂による素材代替の LCA を実施する。具体的には、下記の 6 ステップで実施していく。

(i) 目的の設定

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

(ii) 定量化対象の設定

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

(iii) ベースラインシナリオの設定

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

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

(iv) 定量化の範囲・内容の設定

本事業で対象とする温室効果ガスは、本事業が採択された募集要項¹¹⁾で指定された CO₂ を対象とする。

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

例えば、評価対象が CeF 複合再生 PS であり、素材代替前が PS と ABS で構成される部品への適用検討の場合、評価範囲の簡略した LC フローを図 2-63、図 2-64 と図 2-65 に示す。下記の LC フロー中で、緑背景で囲まれた範囲が評価範囲である。また、白地に紺背景のプロセスは、フォアグラウンドデータであり、黒字に白背景のプロセスは、バックグラウンドデータであることを示している。詳細の LC フローは、後述の図 2-72、図 2-73 と図 2-74 に示している。

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

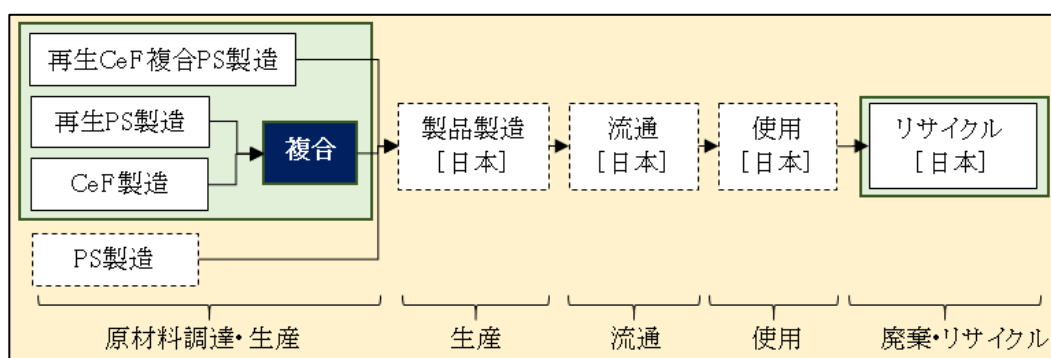


図 2-63 評価範囲の簡略例(本事業 CeF 複合再生 PS)

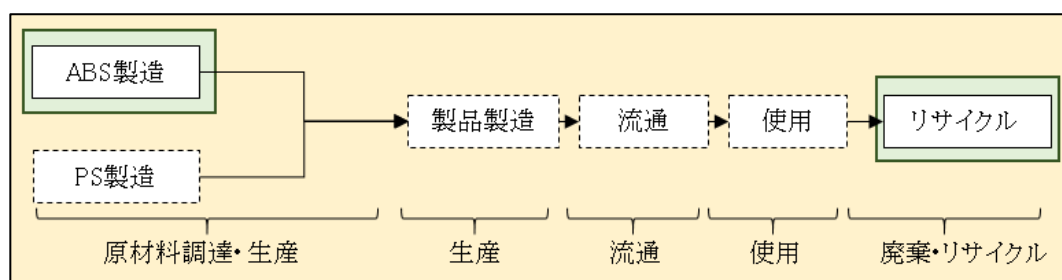


図 2-64 評価範囲の簡略例(ベースライン ABS)

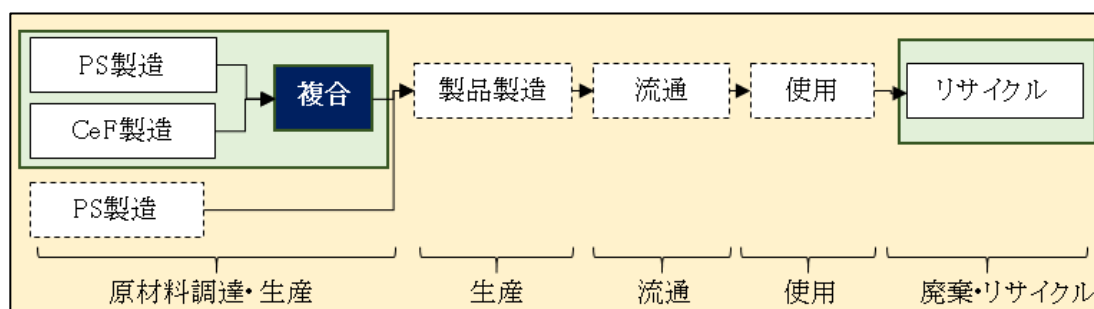


図 2-65 評価範囲の簡略例(ベースライン CeF 複合 PS)

(v) 削減貢献量の累積方法の決定

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

(vi) 削減貢献量の定量化

上記(i)～(v)に基づき、CO₂ 排出量及びコストの定量評価を実施する。

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

令和元年度：LC フローを明確化し、市販の LC インベントリデータベース¹²⁾に基づいて試算し、単純な素材代替の効果を把握する

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

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

令和元年度では、ABS の単純代替として、CeF 複合再生 PS の代替効果(CO₂ 排出削減効果)が 0.57 kg-CO₂/kg であると評価した。

本年度では、当初の計画通り、適用商品としてスティッククリーナーへ導入した場合について、LCA を実施した。

2.4.2.2. アプローチ(令和 2 年度)

本年度では、スティッククリーナーのボデー部品に対して、CeF 複合再生 PP(CeF 含有濃度 15%)を導入した場合について、LCA を実施した。ここでの CeF 複合再生 PP とは、家電由来の再生 PP と CeF の複合樹脂を指している。
(経済効果については、事業情報のため記載していない。)

(i)' 目的の設定

スティッククリーナーを対象として、ABS の代替材料として、CeF 複合再生 PP を導入することによる環境効果を評価した。

(ii)' 定量化の設定

スティッククリーナーのボデー部品に必要な強度を担保した樹脂材料を機能単位として、設定した。

(詳細な仕様は、事業情報のため記載していない。)

(iii)' ベースラインシナリオの設定

本実証が適用されなかった際の素材候補として、ABS と CeF 複合 PP の 2 種類を検討した。ここでの CeF 複合 PP とは、バージン PP と CeF の複合樹脂を指している。本年度は、強度変化による体積増減を考慮せずに、比重のみ考慮した。本実証では、CeF 複合再生 PP の比重が 0.95 であり、ABS の比重は 1.05 である。また、CeF 複合再生 PP と CeF 複合 PP の比重は、同一であると仮定した。

(iv)' 定量化の範囲・内容の設定

2.4.2.1 の(iv)で述べた通り、本事業では、温室効果ガスの内 CO₂ を対象とした。また、本年度の評価範囲を図 2-66、図 2-67 と図 2-68 に示す。下記の LC フロー中で、緑背景で囲まれた範囲が評価範囲である。

本年度は、フォアグラウンドデータとして、複合工程での設備の使用状態を計測し、LCA に反映している。また、本年度の中間報告会で指摘された製品製造工程をフォアグラウンドデータとして、評価範囲の拡張を実施している。ただし、製品製造工程の測定および反映は次年度に実施する。

他のプロセスについては、市販のデータベースに基づく算出のため、バックグラウンドデータとなっている。詳細の LC フローについては、後述の図 2-75、図 2-76 と図 2-77 に示している。

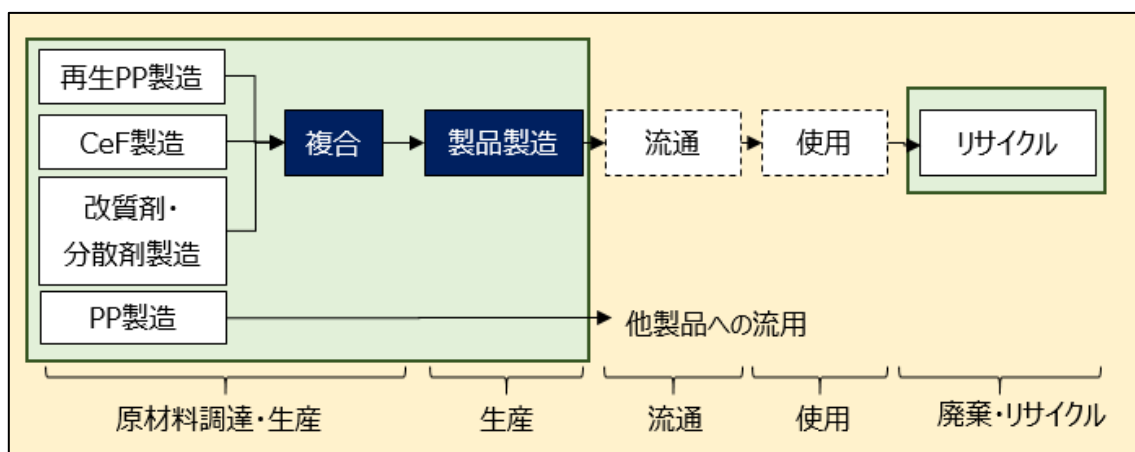


図 2-66 評価範囲の簡略図(本事業 CeF 複合再生 PP)

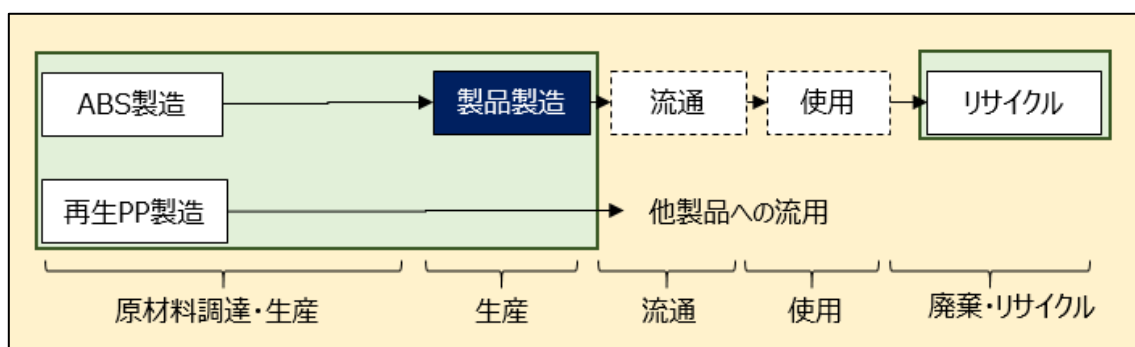


図 2-67 評価範囲の簡略図(ベースライン ABS)

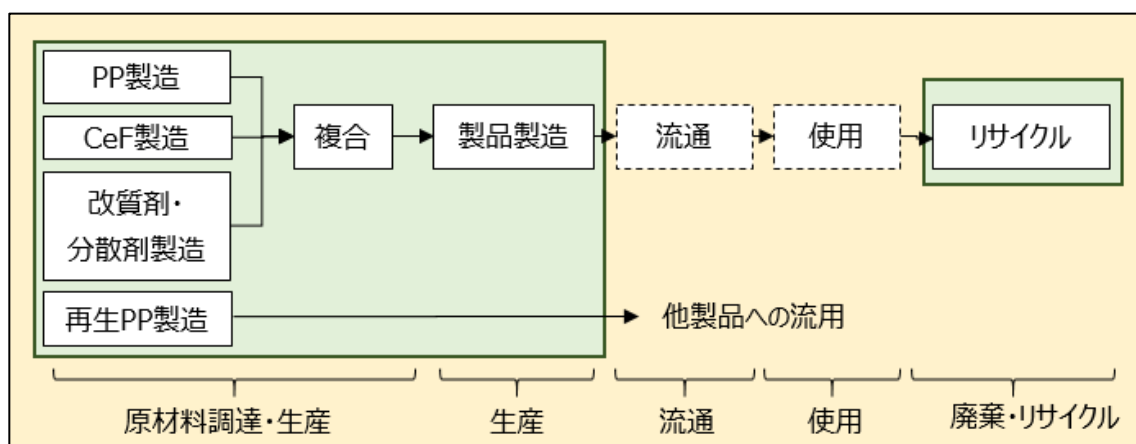


図 2-68 評価範囲の簡略図(ベースライン CeF 複合 PP)

(v)' 削減貢献量の累積方法の決定

2.4.2.1 の(v)で述べた通り、フローベースで評価を実施した。

(vi)' 削減貢献量の定量化

(i)'～(v)'に基づいて、CO₂ 排出量の定量化を実施した。具体的には、各シナリオの条件は、表 2-42 に示す通りに設定した。更に、各プロセスで投入されたエネルギーを市販データベースのインベントリデータから抽出し、データベースのエネルギー起源 CO₂ を積算することで、合計のエネルギー起源 CO₂ を算出した。

また、リサイクル控除として、再生した材料重量だけ、各再生材を生産するのに発生した CO₂ 量を控除した。更に、CeF は植物由来の素材であり、原料としての植物が成長する際に、光合成を行っている。光合成によって、大気中の CO₂ を吸収し、植物体内に糖等として炭素を蓄積する特性がある(以下、炭素固定)。炭素固定による CO₂ 削減は、市販データベースでは取り扱っていないため、今回炭素固定を追加検討した。先行文献¹³⁾¹⁴⁾を参考にし、炭素固定により 1.83 kg-CO₂/kg-CeF 減少する形で反映させた。

また、市場代替性を反映しており、本事業では再生 PP を使用している為、従来再生 PP が使用していた他製品には、バージン PP を投入するシナリオとなっている。

結果については、次項で述べる。

表 2-42 各シナリオの算出条件

工 程	プロセス	本事業 CeF 複合再生 PP	ベースライン ABS	ベースライン CeF 複合 PP
原料調達・生産	原料調達	・再生 PP 製造 ・CeF 製造 ・改質剤、分散剤製造 ・PP 製造(他製品用)	・ABS 製造 ・再生 PP 製造 (他製品用)	・PP 製造 ・CeF 製造 ・改質剤、分散剤製造 ・再生 PP 製造(他製品用)
	複合	・CeF 複合再生 PP の実データを使用 (冷却設備等の周辺設備も含む)	なし	・CeF 複合 PP の実データを使用 (冷却設備等の周辺設備も含む)
製品製造	部品製造	今年度は、データなし (令和 3 年度に測定及び反映予定)		
リサイクル	中間処理	・素材回収率 60% ・残り 40%は産業廃棄処理		
	再生	・再生 CeF 複合 PP の製造分だけ控除	・再生 ABS の製造分だけ控除	・再生 CeF 複合 PP の製造分だけ控除

2.4.3. 取組結果

2.4.3.1. 1台あたりのCO₂排出削減効果

前項で記載したアプローチに則り、スティッククリーナー1台あたりでのCO₂算排出削減について、LCAの比較結果を図2-69に示す。この結果から、ABSから本事業のCeF複合再生PP代替することによって、エネルギー起源CO₂を0.18kg-CO₂分だけ削減できることが判明した。

また、バージンPPを使用したCeF複合PPに対しては、市場代替性の観点から、CO₂排出量の削減効果は得られなかった。しかし、本事業で、CeF複合PPの水平リサイクルとして、再度スティッククリーナーに導入できれば、本事業での原材料調達を削減できるため、0.13kg-CO₂削減が可能である。

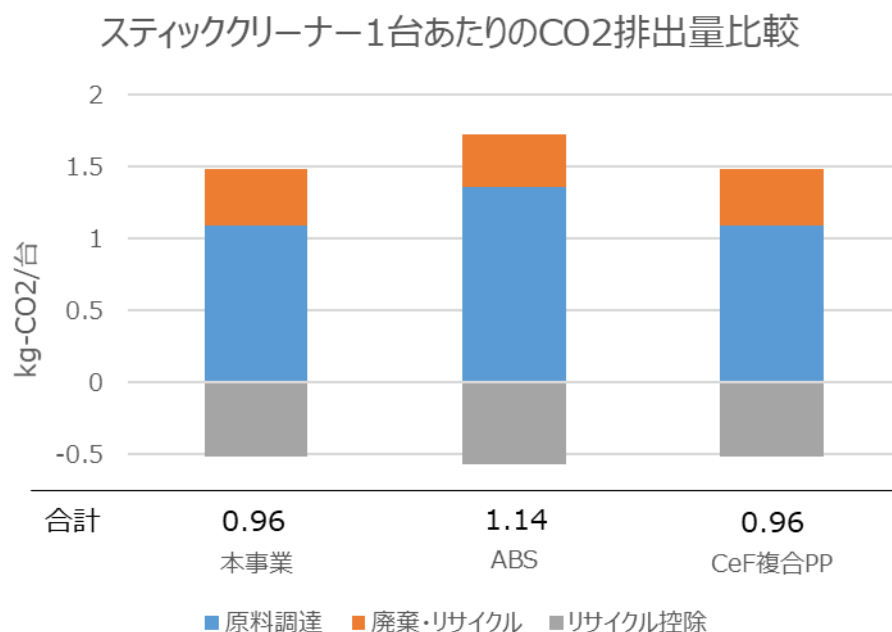


図 2-69 CO₂排出量の比較(スティッククリーナー1台あたり)

2.4.3.2. 普及を考慮した CO2 排出削減効果

本事業がスティッククリーナーに普及した場合の CO2 排出削減効果を評価するために、まずはスティッククリーナーの普及予測を実施した。

掃除機として、5つのタイプに分類し(スティッククリーナー、キャニスター、ハンディ、ロボット、その他)、各タイプの2014年度から2019年度の6年間における販売実績を対数近似し、普及段階である2030年度の販売実績を予測した。その結果を図2-70に示す。2030年度における、スティッククリーナーの販売予測は約464万台である。

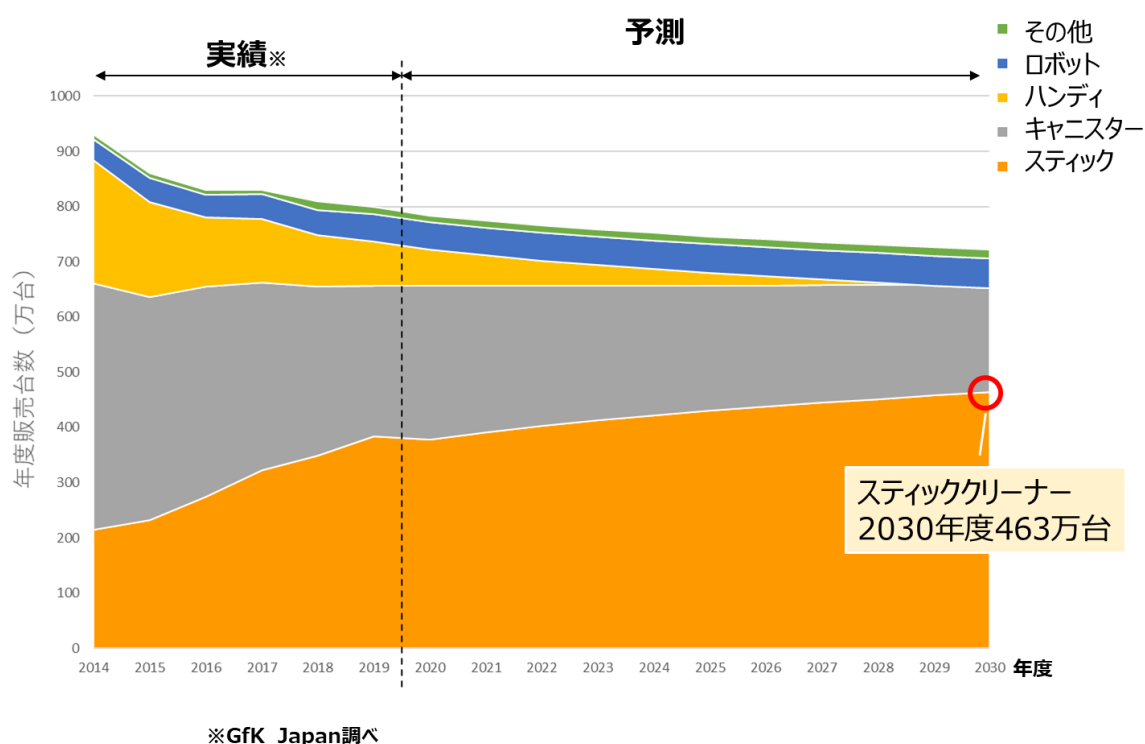


図 2-70 掃除機市場の販売予測

2030 年度のスティッククリーナーの半分となる 232 万台に導入できたとして、CO₂ 削減量を試算した。2.4.3.1 で、1 台当たりの削減量を試算しているので、普及量(232 万台)を考慮した LCA を実施した。その比較結果を表 2-43 に示す。この結果から、ABS から本事業の CeF 複合再生 PP に代替することによって、エネルギー起源 CO₂ を 428t・CO₂ 分だけ削減できることが判明した。また、非エネルギー起源 CO₂ は、本事業により 634 t・CO₂ 分だけ削減できることを明確にした。

表 2-43 普及量を反映した CO₂ 排出量(スティッククリーナー)

(単位：t・CO ₂)	① 評価対象製品			② ベースライン			③ 削減量 (②－①)		
	生産 原材料調達・	リサイクル 廃棄・	合計	生産 原材料調達・	リサイクル 廃棄・	合計	生産 原材料調達・	リサイクル 廃棄・	合計
エネルギー起源	1,308	926	2,234	1,805	856	2,662	497	-69	428
非エネルギー起源	523	625	1,148	1,157	625	1,782	634	0	634
合計	1,831	1,551	3,382	2,963	1,481	4,444	1,132	-69	1,062

2.4.3.3. CNF 複合 PP との比較(参考)

参考までに、CNF 複合 PP と本事業である CeF 複合 PP の比較を実施した。CNF に関しては、参考文献から情報収集¹³⁾を実施した。また、今回は、エネルギー起源と非エネルギー起源の区別は実施していない。算出した LCA の比較結果を図 2-71 に示す。

この結果から、CNF 複合 PP に対して、本事業の CeF 複合再生 PP では、0.32 kg-CO₂ 分だけ削減できることが判明した。特に、ナノファイバー化するエネルギー分を削減できたことが大きい。

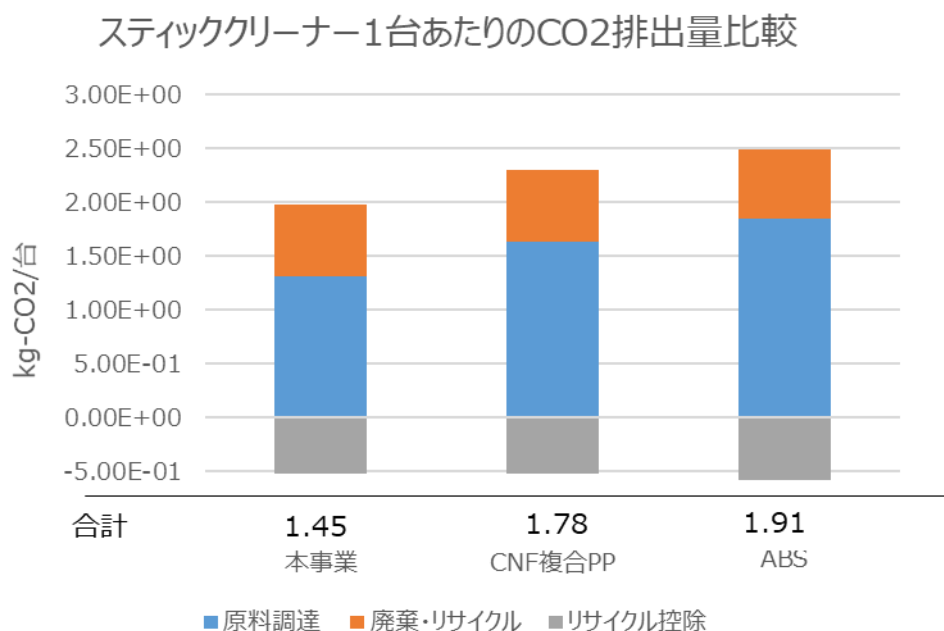


図 2-71 CO₂ 排出量の比較

2.4.4. 結言

スティッククリーナーに本事業を適用した LCA を実施した。この結果より、本事業の CO₂ 削減効果として、2030 年度にスティッククリーナーの販売台数の半分に導入できれば、428t-CO₂ の削減できることを明確化した。次年度は、適用商品を拡大することで、より普及効果を反映した LCA を実施していく。また、製品製造工程での設備測定を実施し、評価に反映していく。

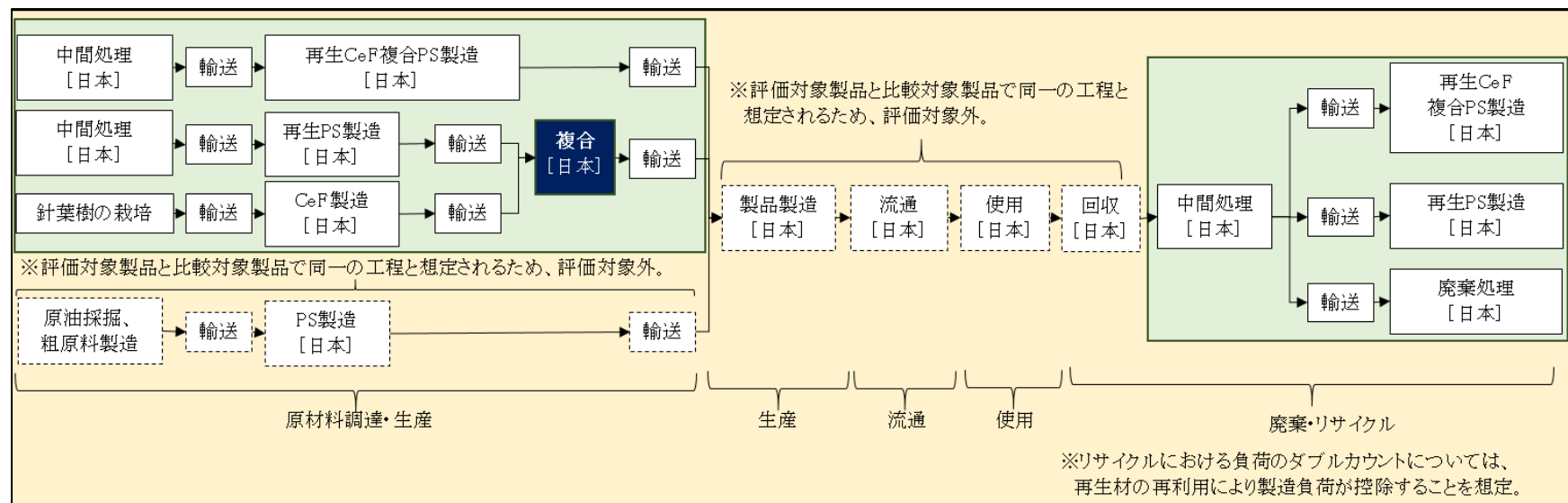


図 2-72 評価範囲の例(本事業 CeF 複合再生 PS)

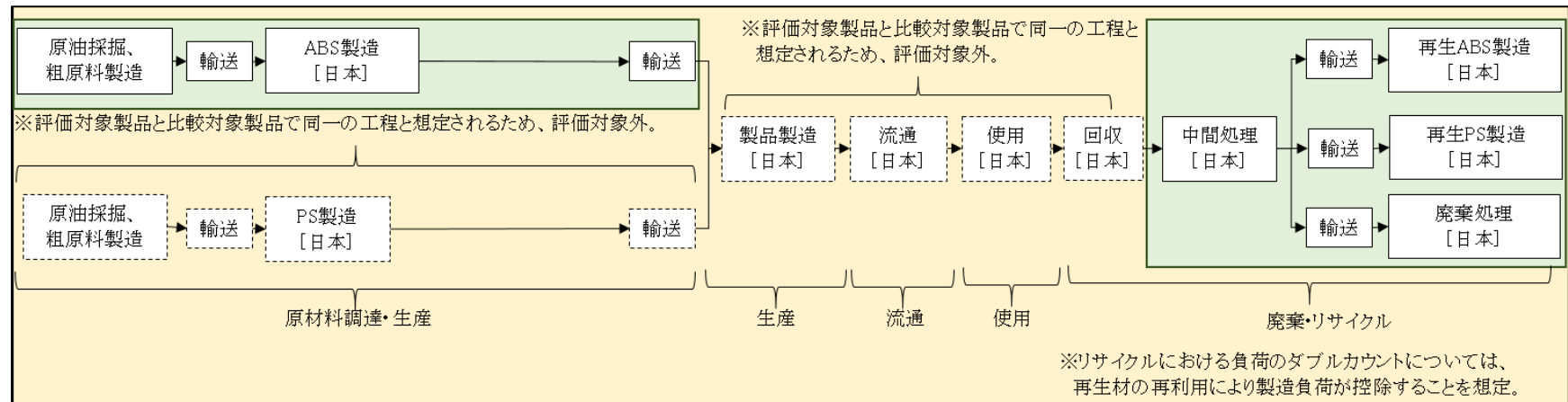


図 2-73 評価範囲の例(ベースライン ABS)

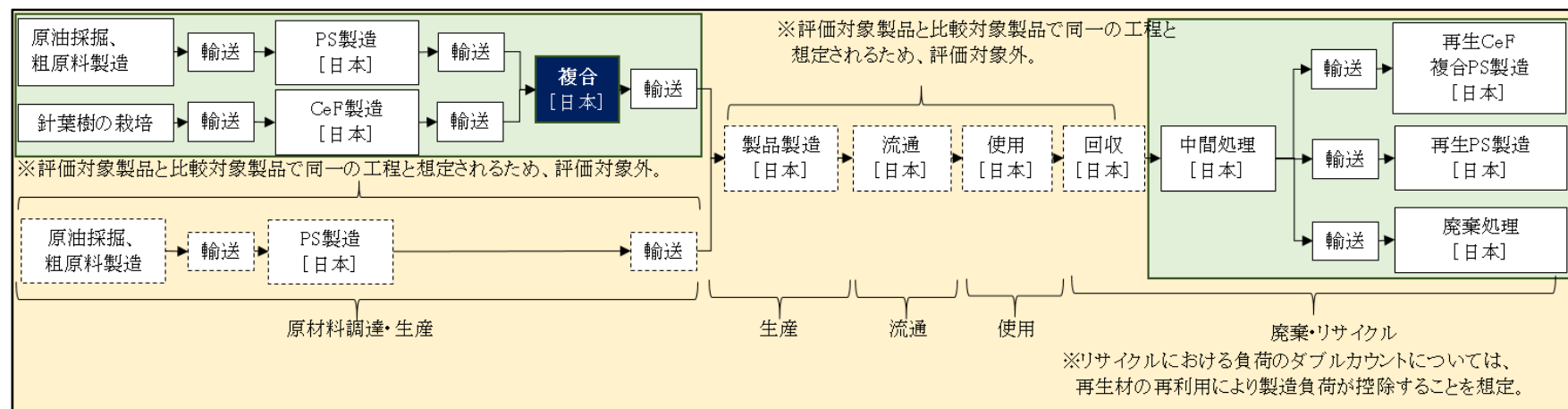


図 2-74 評価範囲の例(ベースライン CeF 複合 PS)

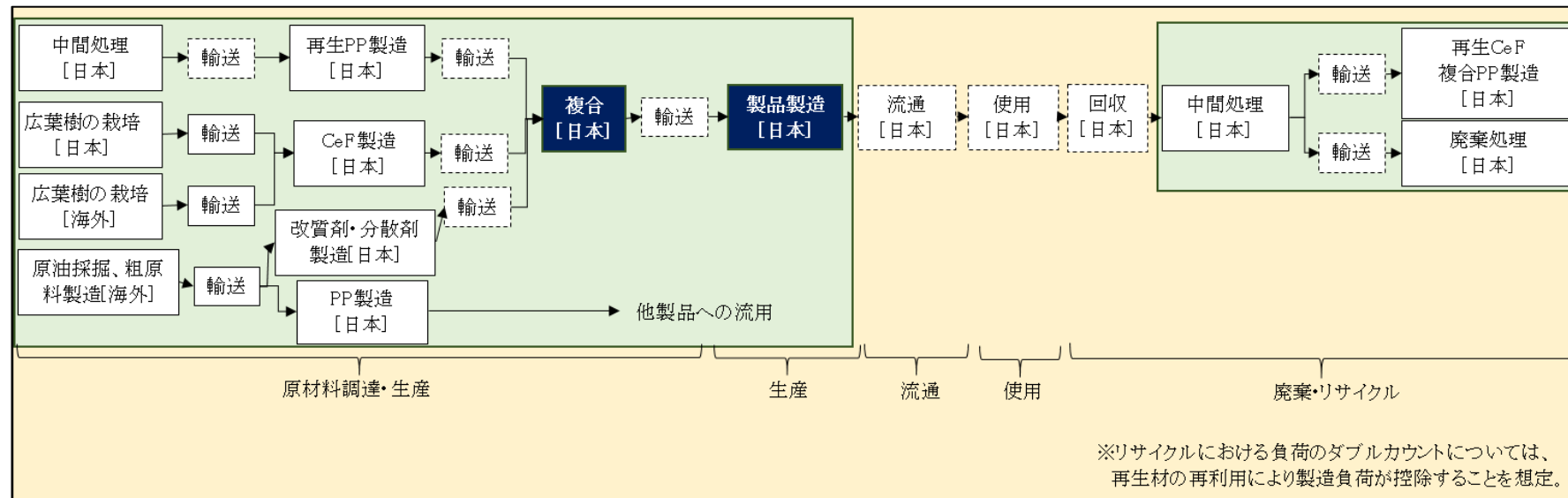


図 2-75 令和 2 年度の評価範囲(本事業 CeF 複合再生 PP)

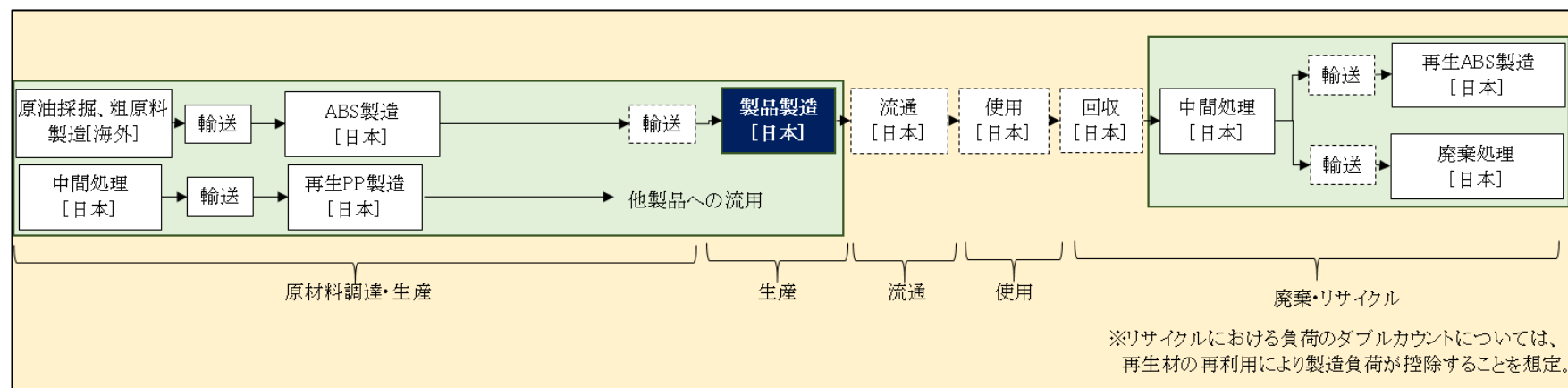


図 2-76 令和 2 年度の評価範囲(ベースライン ABS)

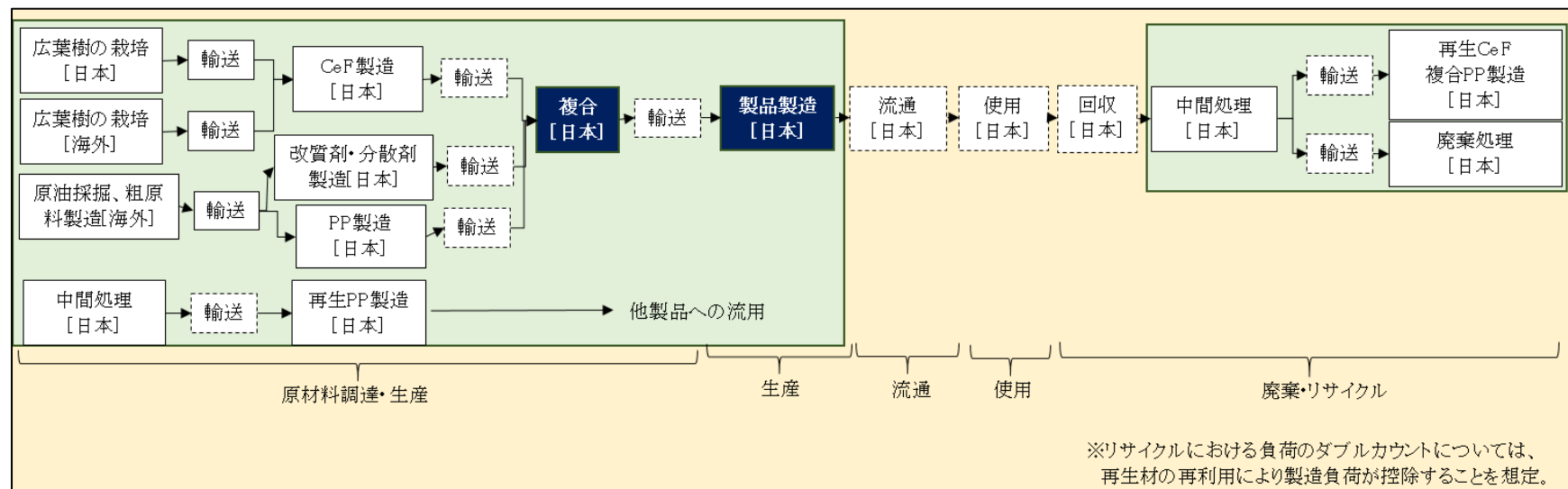


図 2-77 令和 2 年度の評価範囲(ベースライン CeF 複合 PP)

3. 来年度の取組

以下に、各項目の来年度の取組みを示す。

1) 複合工程の開発

(i) CeF 複合再生 PP 樹脂については、商品適用に向け、下記内容について取組む。

- ・ 材料、工法最適化による CeF 由来黒点の低減
- ・ 経時耐久性検証による製品適用評価
- ・ スティッククリーナーに加え、洗濯機などの部品試作と評価
- ・ 適応可能商品拡大に向けた更なるコストダウン

(ii) CeF 複合再生 PS 樹脂については、下記内容に取組む。

- ・ 分散剤・相溶化剤・エラストマーの組合せによる物性改善
- ・ エアコンなどの部品試作と評価

2) 選別工程の開発

(i) ハイパースペクトルカメラを用いた高速選別工法の確立
(エアノズルによる射落としを含む)

- 搬送速度：3m/s
- 回収率 60%以上、純度 80%以上

(ii) 低濃度 CeF 複合樹脂の選別性、および色味での選別性見極め

3) 資源循環システムへの影響評価

(i) 極低濃度のセルロース混入時の物理物性の詳細評価

- 各種複合条件での物理特性評価

(セルロース混入を考慮せず成形した場合の影響評価(色味含む))

4) LCA の検証・評価

(i) 成型プロセスの設備測定および CO₂ 評価

(ii) 評価対象の商品の拡大(適用検討商品に対し、すべて実施)

【参考文献】

- 1) 前川一彦,永田員也 : 日本接着学会誌,Vol.37,No2(2001)
- 2) 青木憲治 : 木材工業,Vol.67,No.11,2012
- 3) 榊原圭太 : 機能材料,Vol34,No11
- 4) 日笠茂樹 : MATERIAL STAGE Vol.17,No.12,2018
- 5) 青木憲治 : Cellulose Commun.,Vol25,No4,2018
- 6) 福島直弥 : 成形加工シンポジア,18,131-132,2018
- 7) 福島直弥 : 成形加工シンポジア,19,231-132,2019
- 8) 経済産業省.”家電リサイクル法(特定家庭用機器再商品化法)”. 経済産業省. https://www.meti.go.jp/policy/it_policy/kaden_recycle/index.html, (参照 2021.2.16)
- 9) 日本 LCA 学会「温室効果ガス排出削減貢献量算定ガイドライン」、
2015 年 2 月
- 10) 経済産業省「温室効果ガス削減貢献定量化ガイドライン」、 2018 年 3 月
- 11) 環境省「令和元年度脱炭素社会を支えるプラスチック等資源循環システム構築実証事業公募要領(二次公募)」、 令和元年 7 月
- 12) 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 安全科学研究部門 IDEA ラボ、
一般社団法人 サステナブル経営推進機構「LCI データベース IDEA
version 2.3」、 2019 年 12 月
- 13) Sun、 X.Z.; Moon、 D.; Minowa、 T. Evaluation of energy
consumption and greenhouse gas emissions in preparation of
cellulose nanofibers from woody biomass. Am. Soc. Agric. Biol. Eng.
(ASABE)2013、 56、 1061-1067
- 14) Unwin、 G.L; Kriedemann、 P.E. PRINSIPLES AND PROCESSES
OF CARBON SEQUESTRATION BY TREES. Research and
Development Division: State Forests of New South Wales、
Australia、 2000

リサイクル適性の表示：印刷用の紙にリサイクルできます

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