

令和7年度環境省委託業務

令和7年度脱炭素型循環経済システム構築促進事業

(うち、プラスチック等資源循環システム構築実証事業)

(新規溶媒溶解法による CFRP リサイクルプロセス実証事業)

委託業務成果報告書

令和8年3月

東レ株式会社

## 本事業の成果概要

炭素繊維複合材料(CFRP)は炭素繊維(CF)を樹脂で固めた複合材料であり、軽量、高剛性、高強度といった特徴から、航空機、産業用途、自動車などの幅広い産業に使われている。一方で、CFRP のリサイクルに関しては、廃棄 CFRP から取り出した rCF を鉄鋼炉の還元剤としてケミカルリサイクルする方法が開発されている。また、CFRP の樹脂を高温で熱分解して rCF を回収・再利用(熱分解法)するマテリアルリサイクルの技術開発も射出成型用途を中心に進んでいるが、炭素繊維の劣化や樹脂残渣などの課題もあり、さらなる用途拡大においては熱分解法 rCF の劣化抑制および樹脂残渣制御ができ、あらゆる廃棄 CFRP に適用できるリサイクル技術が必要と考えられる。さらに、熱分解法では、樹脂は二酸化炭素と水になり有効活用が困難な課題もあった。

そこで本提案では、ダメージレスかつ樹脂残渣レスで CF を回収する新規なリサイクル法(新規溶媒溶解法)を確立したうえで、得られたリサイクル CF(rCF)は連続繊維強化基材や不織布等の不連続繊維基材へ展開し、バージン CFRP に匹敵する高品位なリサイクル CFRP を作成することで CFRP リサイクル市場の拡大に貢献することを目的とした。加えて、エポキシ樹脂分解物から化学変換により選択的にフェノール類、アニリン類などの有用化合物を回収し、樹脂成分をもリサイクルすることも目的とした。以下、本事業での成果概要を記載する。

### (1) 新規溶媒溶解法による CFRP リサイクル

#### ① CFRP の解重合

本事業では、従来の熱分解法に代わる新規溶媒溶解法として、NMP 溶媒中、NaOH を分解剤として用いる CFRP 解重合技術を開発した。また、より温和な条件での反応を目指し、DMI 溶媒中、分解剤として KOH、分解助剤としてクラウンエーテルを添加する条件も開発した。これらの条件では航空機用 CFRP のマトリックス樹脂を分解し、炭素繊維をダメージレスかつ樹脂残渣レスで回収できる。

ラボスケール検討に加え、200 L 装置および 2600 L 装置で試作を実施し、用途開発検討用の rCF を確保するとともに、設備化に向けたプロセス検討を進めた。

#### ② rCF の評価

回収したリサイクル炭素繊維(rCF)について、XPS、TOF-SIMS 等による表面分析および各種物性評価を実施した。その結果、rCF 表面の元素組成から、rCF 表面に樹脂由来残渣はほとんど認められないこと、処理条件によって、最表面における化学構造が若干変化したことが示唆された。

さらに、rCF と各種樹脂との複合化を想定し、界面強度を測定した結果、本法で得られる rCF とナイロン樹脂または熱硬化エポキシ樹脂との界面せん断強度はバージン CF と同等であることがわかった。

#### ③ rCF の機能化

rCF の用途展開を目的として、フィード性(供給性)向上のための東化处理、および各種形態への成形加工を検討した。具体的には、rCF の東化处理(サイジング処理)では種々の装置を用いてフィード性に優れる形態への加工を検討したが、未だ十分なフィー

ド性が期待できる形態は得られていない。今後も引き続き検討を進める。

さらに、rCF の湿式および乾式不織布化を進めた。湿式不織布では、均一な不織布と、従来にない束状に収束した CF 部分を有する不均一な和紙調の不織布が試作できることがわかった。乾式不織布では、繊維の交絡度の制御、樹脂残渣量の低減が重要であり、本法rCF は乾式不織布化に好適に用いられることが確認できた。これにより、意匠性・機能性を有する rCF 基材への展開可能性を明確化した。

#### ④ リサイクル CFRP の開発

サイジング処理した rCF を用い、PPS 樹脂とのコンパウンドを検討した。得られたコンパウンド品は、サイジング剤の種類を最適化することで、界面接着強度が向上し、カップリング剤で処理することで、引張強度・曲げ特性ともにバージン材同等レベルの物性を発現することを確認した。

熱硬化性樹脂であるエポキシ樹脂と複合化した熱硬化rCFRP については、乾式不織布にエポキシ樹脂を含浸しプレス成形した基材の曲げ強度試験を行った結果、熱分解法rCF を用いた場合に比べ、本法rCF を用いた場合は強度が 25%高い結果を示し、本法の優位性を実証した。

### (2) エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換

#### ① エポキシ樹脂分解物のフェノール類およびアニリン類への変換技術の開発

新規溶媒溶解法により得られたエポキシ樹脂分解物について、LC-MS、GC-MS、GPC 等を用いた詳細分析を行い、有用化合物変換に適した分解物であることを確認した。

ビスフェノール A 型エポキシ樹脂を原料として用いた分解物に対して、不均一系触媒を用いた加水素分解反応を検討した結果、4-イソプロピルフェノール等のフェノール類を最大 63%の GC 収率で選択的に回収できることを実証した。

さらに、硬化剤として芳香族アミン、主剤としてテトラグリシジルジアミノジフェニルメタン (TGDDM)を用いた航空機用エポキシ樹脂の分解物に対して不均一系触媒を用いた加水素分解反応を検討した結果、DDS と TGDDM の構成骨格であるメチレンジアニリンがそれぞれ中程度の収率で得られることがわかった。

#### ② フェノール類の有用化合物への変換技術の開発

4-イソプロピルフェノールを原料として、抗菌剤として利用可能なイソプロピルメチルフェノールへの変換技術を検討した。

二酸化炭素を用いたカルボキシル化反応や芳香族メチル化反応を組み合わせた合成ルートを検討し、4-イソプロピルフェノールから抗菌剤等の原料となる化合物への変換可能性を示した。これにより、CFRP リサイクルにおける樹脂成分の高付加価値利用の方向性を明確化した。

### (3) LCA の評価・検証

#### ① CFRP 解重合の LCA 試算

新規溶媒溶解法による CFRP 解重合プロセスについて、パイロットスケールを想定した LCA 試算を実施した。その結果、rCF1 kg あたりの GHG 排出量は約 14.3 kg-CO<sub>2</sub>となり、バージン炭素繊維製造時と比較して約 30%の GHG 削減効果が得られる可能性を示した。

一方で、溶媒ロスが GHG 排出量に大きく寄与していることが明らかとなり、今後の課題として溶媒回収・固液分離工程の最適化が重要であることを示した。

#### ② エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換に関する LCA 試算

エポキシ樹脂分解物か芳香族アミン類を回収するプロセスについて、現行製法と比較した LCA 試算を実施した。その結果、メチレンジアニリンや DDS などの有価物について、従来製法と比較して GHG 排出量低減の可能性があることを確認した。

これにより、本事業で提案する CFRP リサイクル技術が、炭素繊維のみならず樹脂成分を含めた総合的な環境負荷低減に寄与する可能性を示した。

## Abstract

Carbon Fiber Reinforced Plastics (CFRP) are composite materials comprising carbon fibers (CF) integrated within a resin matrix. Due to their exceptional properties – specifically lightweight, high stiffness, and high strength – CFRP are extensively utilized across diverse sectors, including aerospace, automotive, and general industrial applications.

On the other hand, for the recycling of CFRP, a chemical recycling approach has been developed in which recovered carbon fibers (rCF) obtained from waste CFRP are used as reducing agents in steelmaking furnaces. In addition, material recycling technologies are being developed in which rCF is recovered and reused by thermally decomposing the resin component of CFRP at high temperatures (pyrolysis), mainly targeting injection molding applications. However, these pyrolysis-based approaches suffer from issues such as degradation of carbon fibers and residual resin on the fiber surface. Therefore, for further expansion of applications, recycling technologies are required that can suppress the degradation of pyrolysis-derived rCF, control resin residues, and be applicable to a wide variety of waste CFRP materials. Furthermore, in conventional pyrolysis processes, the resin component is converted into carbon dioxide and water, making its effective utilization difficult.

In this proposal, we established a novel solvent-based dissolution method for CFRP recycling that enables the recovery of CF without structural damage or residual resin. The recycled carbon fiber (rCF) obtained through this process is applied to continuous fiber-reinforced substrates and discontinuous fiber substrates, such as nonwoven fabrics. This enables the production of high-quality recycled CFRP comparable to virgin CFRP, thereby contributing to the expansion of the CFRP recycling market.

Additionally, this project aimed to achieve a circular economy for the resin component by selectively recovering high-value compounds, such as phenols and anilines, from epoxy resin degradation products through chemical conversion. The following sections summarize the key achievements of this project.

### 1. CFRP Recycling via Novel Solvent-Based Dissolution

#### 1.1 Depolymerization of CFRP

In this project, we developed a CFRP depolymerization technology based on a novel solvent dissolution method, as an alternative to the conventional pyrolysis process, in which NaOH is used as a depolymerizing agent in an NMP solvent system. Furthermore, to achieve milder reaction conditions, an alternative system using a KOH/crown ether additive in a DMI solvent was developed. These processes successfully decomposed the matrix resin of aerospace-grade CFRP, allowing for the recovery of carbon fibers devoid of damage and residues. Beyond laboratory-scale verification, trial production was conducted using 200-L and 2,600-L reactors, securing sufficient rCF for application development and facilitating process evaluation for commercialization.

## 1.2 Evaluation of rCF

Surface analysis (XPS and TOF-SIMS) and physical property evaluations of the recovered rCF confirmed the absence of resin-derived residues on the fiber surfaces. Elemental composition analysis indicated that only minor chemical structural changes occurred at the outermost surface, depending on processing conditions. Interfacial shear strength tests with nylon and thermosetting epoxy resins demonstrated that the rCF maintained performance levels comparable to virgin CF.

## 1.3 Functionalization of rCF

To broaden the utility of rCF, bundling (sizing) treatments were investigated to enhance feedability. While various devices were tested to optimize morphology, further studies are ongoing to achieve the required industrial feedability standards. Additionally, the fabrication of wet-laid and dry-laid nonwoven fabrics was explored. The wet-laid process successfully produced both uniform fabrics and unique, “washi-like” non-uniform fabrics containing bundled CF regions. In the dry-laid process, rCF proved highly suitable, provided that fiber entanglement and resin residues were strictly controlled. These results underscore the potential of rCF for high-functionality and aesthetic substrates.

## 1.4 Development of Recycled CFRP

Thermoplastic rCFRP was produced by compounding sized rCF with polyphenylene sulfide (PPS). By optimizing the sizing agent and utilizing coupling agents, the resulting composite achieved tensile and flexural properties equivalent to those of virgin materials. For thermosetting rCFRP, dry rCF nonwoven fabrics were impregnated with epoxy resin and press-molded. The resulting composite exhibited a flexural strength approximately 25% higher than that of rCF obtained via pyrolysis, validating the technical superiority of the proposed dissolution method.

# 2. Conversion of Resin Degradation Products into Value-Added Compounds

## 2.1 Conversion Technologies for Phenols and Anilines

Detailed analysis (LC-MS, GC-MS, and GPC) of the epoxy resin degradation products confirmed their suitability for chemical valorization. Hydrogenolysis using heterogeneous catalysts was applied to bisphenol A-type epoxy degradation products, yielding phenols such as 4-isopropylphenol with a maximum GC yield of 63%. Furthermore, the hydrogenolysis of aerospace-grade epoxy resins—comprising aromatic amine curing agents and tetraglycidyl diamine (TGDDM)—yielded methylenedianiline in moderate quantities.

## 2.2 Valorization of Phenolic Derivatives

Technologies were developed to convert 4-isopropylphenol into isopropyl methylphenol, a potent antibacterial agent. By integrating carboxylation using carbon dioxide with aromatic methylation, the feasibility of synthesizing raw materials for antibacterial agents was demonstrated. This provides a clear pathway for the high-value utilization of the resin component.

# 3. Life Cycle Assessment (LCA) and Verification

### 3.1 LCA of the Depolymerization Process

An LCA estimation based on pilot-scale operation indicated that GHG emissions for the rCF production process were approximately 14.3 kg-CO<sub>2</sub>/kg. This represents a potential 30% reduction in GHG emissions compared to virgin CF production. However, solvent loss was identified as a primary contributor to the carbon footprint, highlighting the optimization of solvent recovery and solid-liquid separation as critical future challenges.

### 3.2 LCA of Resin Product Conversion

LCA comparisons between the recovery of aromatic amines from resin degradation products and conventional manufacturing methods confirmed the potential for reduced GHG emissions for methylenedianiline and DDS. These findings demonstrate that the proposed recycling technology facilitates a comprehensive reduction in environmental impact, encompassing both the carbon fiber and the resin matrix.

## 目次

|                                                |    |
|------------------------------------------------|----|
| 1. 背景.....                                     | 11 |
| 1.1 炭素繊維複合材料.....                              | 11 |
| 1.1.1 繊維強化プラスチック .....                         | 11 |
| 1.1.2 FRP の用途 .....                            | 11 |
| 1.1.3 炭素繊維.....                                | 14 |
| 1.1.4 炭素繊維複合材料.....                            | 16 |
| 1.1.5 炭素繊維複合材料の成形方法.....                       | 18 |
| 1.1.6 炭素繊維複合材料の市場 .....                        | 21 |
| 1.2 炭素繊維複合材料のリサイクルの現状と本事業の意義 .....             | 21 |
| 1.2.1 炭素繊維複合材料のリサイクル状況とリサイクル方法.....            | 21 |
| 1.2.2 各リサイクラーの動向 .....                         | 22 |
| 1.2.3 本事業の意義 .....                             | 25 |
| 2. 本事業について .....                               | 26 |
| 2.1 本事業の目標.....                                | 26 |
| 2.2 本年事業開始前の検討状況と今後の目標達成のための課題.....            | 27 |
| 2.3 事業化の見込み時期と出口戦略 .....                       | 29 |
| 3. 本事業の成果(新規溶媒溶解法による CFRP リサイクルに関する技術開発) ..... | 31 |
| 3.1 CFRP の解重合検討.....                           | 31 |
| 3.1.1 CFRP 解重合ラボ検討.....                        | 31 |
| 3.1.2 CFRP 廃材の加工.....                          | 33 |
| 3.1.3 CFRP 解重合スケールアップ試作.....                   | 34 |
| 3.1.4 CFRP 解重合のプロセス検討.....                     | 37 |
| 3.2 rCF の評価 .....                              | 38 |
| 3.3 rCF の機能化.....                              | 52 |
| 3.3.1 rCF のサイジング処理(束化) .....                   | 52 |
| 3.3.2 rCF の湿式不織布化.....                         | 56 |
| 3.3.3 rCF の乾式不織布化.....                         | 61 |
| 3.4 リサイクル CFRP の開発.....                        | 63 |
| 3.4.1 リサイクル熱可塑 CFRP の開発.....                   | 63 |
| 3.4.2 リサイクル熱硬化 CFRP の開発.....                   | 64 |
| 3.4.3 用途探索.....                                | 68 |
| 4. エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換に関する技術開発 .....             | 71 |
| 4.1 エポキシ樹脂分解物の分析 .....                         | 71 |
| 4.2 エポキシ樹脂分解物のフェノール類への選択的変換技術の開発 .....         | 85 |



|                                           |     |
|-------------------------------------------|-----|
| 4.2.1 DICY 硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物の有価物変換 .....  | 85  |
| 4.2.2 芳香族アミン硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物の有価物変換 ..... | 86  |
| 4.3 エポキシ樹脂分解物のアミン類への選択的変換技術の開発 .....      | 86  |
| 4.4 エポキシ樹脂分解物の有価物変換方法の比較 .....            | 87  |
| 5. LCA の評価・検証 .....                       | 88  |
| 5.1 CFRP 解重合の LCA 試算 .....                | 88  |
| 5.2 エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換に関する LCA 試算 .....    | 89  |
| 5.2.1 メチレンジアニリンの推定現行製法 .....              | 89  |
| 5.2.2 DDS の推定現行製法 .....                   | 93  |
| 5.2.3 エポキシ樹脂分解物有価物変換の LCA 推定 .....        | 94  |
| 6. 学会等での収集情報 .....                        | 97  |
| 6.1 ジャパンモビリティショー2025 東京 .....             | 97  |
| 6.2 高機能素材 week 東京 .....                   | 97  |
| 6.3 SAMPE Japan 2025 .....                | 98  |
| 6.4 nano tech 2026 .....                  | 102 |
| 7. まとめ .....                              | 103 |
| [引用・参考文献] .....                           | 106 |
| [特許、展示会出展、プレスリリース等の実績] .....              | 107 |

[略記号表]

|          |                                                 |
|----------|-------------------------------------------------|
| BisA     | :ビスフェノール A                                      |
| CF       | :炭素繊維                                           |
| CFRP     | :炭素繊維複合材料                                       |
| CFRSP    | :Carbon Fiber Reinforced Thermosetting Plastics |
| CFRTP    | :熱可塑 CFRP                                       |
| DICY     | :dicyandiamide                                  |
| DMI      | :1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン                            |
| DMF      | :ジメチルホルムアミド                                     |
| DDS      | :Diaminodiphenyl Sulfone                        |
| GC-MS    | :ガスクロマトグラフ質量分析法                                 |
| GHG      | :Greenhouse Gas                                 |
| GPC      | :Gel Permeation Chromatography                  |
| IFSS     | :Interfacial Shear Strength                     |
| LCA      | :Life Cycle Assessment                          |
| LC-MS    | :液体クロマトグラフィー質量分析法                               |
| LDH      | :層状複水酸化物                                        |
| Mn       | :数平均分子量                                         |
| Mw       | :重量平均分子量                                        |
| NMP      | :N-メチル-2-ピロリドン                                  |
| PA6      | :ポリアミド 6                                        |
| PAN      | :ポリアクリロニトリル                                     |
| PPS      | :ポリフェニレンスルフィド                                   |
| PU       | :ポリウレタン                                         |
| rCF      | :リサイクル炭素繊維                                      |
| RTM      | :Resin Transfer Molding                         |
| SEM      | :走査型電子顕微鏡                                       |
| SMC      | :Sheet Molding Compound                         |
| TG-DTA   | :熱重量-示差熱分析                                      |
| TGDDM    | :N,N,N',N'-テトラグリシジル-4,4'-ジアミノジフェニルメタン           |
| TOF-SIMS | :Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometry |
| XPS      | :X 線光電子分光法                                      |

## 1. 背景

### 1.1 炭素繊維複合材料

#### 1.1.1 繊維強化プラスチック

繊維強化プラスチック(Fiber Reinforced Plastics、FRP)は、20 世紀初頭に樹脂の開発が進んだことで誕生した<sup>1)</sup>。1930～1940 年代には、アメリカで不飽和ポリエステル樹脂をマトリックス樹脂として、ガラス繊維を強化繊維として使用した FRP が開発された<sup>1)</sup>。その後、FRP は賦形性や加工性に優れているため、日用品や自動車などさまざまな用途に広がっていった。最近では、マトリックス樹脂および強化繊維の種類が増え、用途に応じた多様な FRP が開発されている。

FRP は、高強度・高剛性の繊維と比較的軽量のプラスチックを組み合わせることで、軽量でありながら高強度・高剛性という特性を持つ。複合材料の特性を示す指標として、強度や剛性を密度で割った比強度と比剛性が用いられる。従来の金属材料と比較すると、FRP は非常に高い比強度・比剛性を持つため、重量軽減が重要な課題である飛行機などの輸送機器やスポーツ用器具に適した材料となっている。

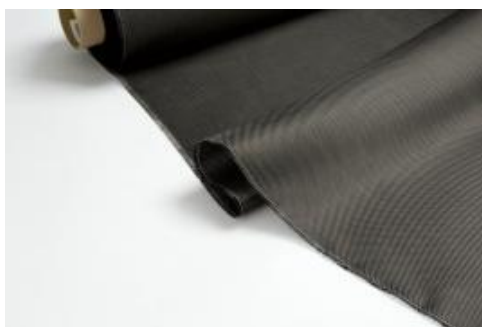


図 1-1-1 FRP 材料

#### 1.1.2 FRP の用途

FRP は、その軽量性と強度に加え、熱的および電気的特性、メンテナンス性、経済性、成形性などの観点から、多岐にわたる用途で使用されている。以下に、水回り、船舶、航空宇宙機、自動車、産業用ロボット、環境・エネルギー、タンクの各用途について述べる。

水回り用途では、FRP の耐食性と軽量性、熱的特性から、浴槽・浴室ユニットや浄化槽にガラス繊維を強化材として用いた GFRP(Glass Fiber Reinforced Plastics)が使用されている。これにより、FRP は需要の中でも大きな割合を占めている。従来のステンレスやホーロー製浴槽に比べ、軽量で運搬・施工が容易であり、強度耐性が高く外観も優れていることが評価され、広まった。浄化槽においても、1961 年に商品化されて以降、住宅建設の需要に伴い市場が成長してきた。ただし、最近では型代が安くリサイクル可能なジシクロペンタジエンを採用する製品も登場しており、浄化槽向け FRP 材料の需要はやや減少している。



図 1-1-2 FRP 用途例(船舶)

船舶用途では、プレジャーボートから大型船まで、多くの船舶構造部材として FRP の利用が拡大している。1970 年代頃から、耐海水性、軽量性、機械特性の改善を目的として FRP が船舶構造部材として広く用いられるようになった。船舶構造において、FRP は木材や金属材料に比べ、比強度が高く、成形性が良好で、曲面を主体としたデザインの自由度が高い、耐食性に優れている、など多くのメリットがある。船舶で主に使用される FRP は GFRP であり、ガラス繊維は薬品に侵されにくく、電気絶縁性が良好で、生産性が高く他の強化材に比べて安価であるため用いられている。



図 1-1-3 FRP 用途例(航空機)

航空宇宙機では、重量削減が主要課題の一つであり、従来の主要構造材料であるジュラルミンに代わり、炭素繊維を強化材として用いた CFRP の適用が急速に拡大している。最新の旅客機では、主翼や胴体構造部などの一次構造にも積極的に適用されており、CFRP の使用率が機体重量の約 50%に達する機体も存在する。航空機構造において、剛性確保などの理由から鋼などの金属材料が用いられるエンジンおよび着陸装置周りを除けば、機体のほとんどの部位の構造材料が CFRP をはじめとする複合材料構造に変わりつつある。また、人工衛星においても、打上げ時の軽

量化要求や軌道上での寸法安定性の観点から、構体パネルや支持構造材などに CFRP が用いられている。



図 1-1-4 FRP 用途例(自動車)

自動車においても、航空機と同様に車体軽量化のために CFRP の適用が拡大している。近年では高級車やコンセプトカーに加え、BMW i3 など一般乗用車への CFRP 使用も増加している。CFRP 車は軽量化による走行段階でのエネルギー消費量減少により、ライフサイクル全体で従来車よりもエネルギー消費量が減少するものの、車両製造段階では従来車よりも多くのエネルギー消費を必要とすることが示されている。同様の軽量化・高剛性要求から、産業用ロボットアームにおいても、可動部の慣性低減や高速・高精度化を目的として FRP の適用が検討・実用化されている。



図 1-1-5 FRP 用途例(風車ブレード)

環境・エネルギー分野では、風力発電用風車ブレードと本体カバー用の FRP 製品の生産が世界的に増加している。地球温暖化などの環境問題の観点から、CO<sub>2</sub> 排出量が少なく、無尽蔵なエネルギー源を利用した持続可能エネルギーとして風力発電が注目されている。近年では、ウィンド

ファームの建設がオフショアへと向かっており、それに伴い風車の大型化が進められている。風車翼の大型化に伴い、現在の主要構造材である GFRP では強度不足や剛性不足による翼端のたわみ増加が問題となっている。そのため、GFRP よりも比強度、比剛性に優れた CFRP を翼に使用した CF/GF ハイブリッド翼の研究開発が進められている。また、潮流や海流を利用した発電用のブレードにも FRP が同様に使用されている。



図 1-1-6 FRP 用途例(タンク)

タンク分野では、FRP が広い温度領域で金属材料よりも優れた断熱特性を有することから、液体水素タンク構造や既存極低温タンク構造の断熱性強化への用途が広がっている。また、CFRP 製圧力容器は金属製圧力容器と比較して優れた比強度を有することから、軽量化が要求される人工衛星用の気蓄器やロケットの推進薬タンクをはじめとする航空宇宙分野において近年利用されている。気密性が要求される場合は、タンク内側に金属ライナーが施された FRP 製タンクが用いられる。さらに耐食性、耐疲労性の面でも優れていることから、これらを要求する燃料電池自動車の高圧水素タンク、天然ガス(CNG)自動車の CNG タンクなど自動車分野への CFRP 製圧力容器の利用も拡大している。

#### 1.1.3 炭素繊維

上述のように、FRP の用途は拡大傾向にある。特に、比強度・比剛性が求められる用途では、炭素繊維を強化材として用いた CFRP が多く適用されている。この炭素繊維には、原料により大きく二種類が存在し、用途に応じて使い分けられている。



図 1-1-7 炭素繊維

代表的な炭素繊維は、ポリアクリロニトリル(PAN)系炭素繊維である。PAN 系炭素繊維の原料である PAN 繊維は、そのままでも酸素を遮断した環境で高温処理を行うことで炭素を主成分とする繊維状の残渣を得ることができる。しかし、融断に伴う長繊維の収率低下や不純物の残留、黒鉛化の不徹底などにより強度が低下する。そのため、十分な長さを維持しつつ高強度の炭素繊維を大量生産するには、PAN 分子の環化反応を伴う不融化(酸化安定化)処理を施した後、炭化および黒鉛化を行う。この PAN 系炭素繊維は市場に流通している炭素繊維の大半を占めており、軽量かつ高強度であることが特徴で、自動車や航空機の構造部品に多く使用されている。

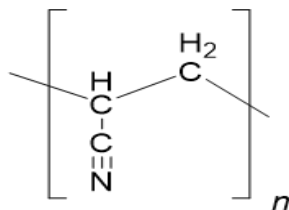


図 1-1-8 PAN 構造

もう一つは、ピッチ系炭素繊維である。石油精製時に残余となるボトム油や、石炭コークスの乾留時に残余となるコールタールは安価かつ安定した供給が可能であるため、炭素繊維のような高付加価値製品に転用できれば大きな利益を生む。一方、PAN のように化学的な均一性が明確な原料とは異なり、さまざまな芳香族分子が混じり合い組成変動が大きいピッチを原料とするためには、不純物を除去して均質化するための蒸留・溶剤抽出や機械的分離を経て、適宜改質を施す必要がある<sup>2)</sup>。改質ピッチの均質化および高品質化は高コスト化とのトレードオフとなる。石炭系・石油系に続く「第三のピッチ系」とも呼ばれる手法では、科学的に均質な原料を出発点として、高品質かつ均質なピッチを合成することが可能である。この手法は、改質工程に伴うコストを大幅に削減できる点に特徴があり、原料価格の抑制に成功すれば、将来的に主流となり得る高い潜在力を有している。塩化アルミニウムを触媒としてエチレンナフタールやナフタレンからピッチを合成する手法、あるいはナフタレンなどの均質な原料を HF-BF<sub>3</sub> などの超強酸触媒で重合して AR 樹脂と称するピッチを得る手法などが既に開発されている<sup>3)</sup>。これらの改質ピッチを 300～400℃に保ち、曳糸性を高めたものを紡糸して繊維化した後、PAN 系繊維同様に不融化・炭化・黒鉛化のプロセ



スを経て炭素繊維を得る。このようにして得られたピッチ系炭素繊維は、弾性率、高熱伝導、極低熱膨張が特徴で、産業用ロボットアームや人工衛星部材などに使用されている。

#### 1.1.4 炭素繊維複合材料

これらの炭素繊維を用いた FRP は炭素繊維複合材料と呼ばれ、炭素繊維だけでなく樹脂の種類によってもさらに分類される。炭素繊維複合材料に使用されるマトリックス樹脂のうち、熱硬化性樹脂を炭素繊維で補強したものが CFRSP (CFRP というと CFRSP のことを指すことが多い)、熱可塑性樹脂を炭素繊維で補強したものが CFRTP と呼ばれる。熱硬化性樹脂と熱可塑性樹脂の違いは、架橋剤によって三次元化されているかどうかであり、三次元化されることで耐熱性や強度が向上する。

CFRSP のマトリックス樹脂としては、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ビニルエステル樹脂、フェノール樹脂、ポリウレタン樹脂などが用いられる。

不飽和ポリエステル樹脂は、グリコールと飽和多塩基酸および不飽和多塩基酸をエステル化させ、スチレンモノマーなどの架橋モノマーに溶解して得られる。使用する原料により性能が異なるが、不飽和ポリエステル樹脂の特徴としては、過酸化物を硬化剤として使用することで硬化を早め、生産性を高めることができる。また、強度物性や耐薬品性に優れ、比較的安価である。さらに、ハンドレイアップ、スプレーアップ、引き抜き、フィラメントワインディング、RTM、SMC、BMC など幅広い成形方法に対応可能である。

エポキシ樹脂は、骨格にオキシラン環が 2 個以上ある樹脂を指す。一般的にアミンや酸無水物を硬化剤として使用し、混合反応して三次元硬化する。特徴としては、接着性や機械特性に優れ、成形収縮率が小さく、耐薬品性や電気特性に優れている。代表的な硬化剤として最も使用されているのはアミン系硬化剤であり、室温から高温まで硬化可能である。酸無水物系硬化剤は主に加熱硬化用に使用され、ポットライフが長い特徴を有するが、硬化剤の吸湿性に注意が必要である。

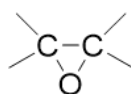


図 1-1-9 オキシラン環の構造

ビニルエステル樹脂は、エポキシ樹脂を(メタ)アクリレート化した樹脂である。使用するエポキシ原料により様々な性能を示し、一般的には耐酸性・耐アルカリ性に優れ、バランスの取れた機械的特性を示す。

フェノール樹脂は耐熱性と難燃性が特徴の樹脂で、高温環境での長時間使用において強度保持率が高い。また、高い難燃性を有し、燃焼時に煙の発生が少ない。原料はフェノールとホルムアルデヒドで、フェノール類とアルデヒド類の反応で製造される。硬化剤としては、塩酸などの無機酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸、スルホン化フェノール樹脂、リン酸などが単独または併用で使用される。



ポリウレタン樹脂は、ポリイソシアネートとポリオールを重縮合することで得られるウレタン結合を有する樹脂である。多官能のポリオールを用いることで架橋構造が形成され、使用する原料により様々な特性を発現する。特にポリオール構造に起因して高い柔軟性を発現することから、靱性が求められる用途に適している。

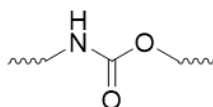


図 1-1-10 ウレタン結合の構造

CFRTP のマトリックス樹脂としては、ポリプロピレン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂などが用いられる。

ポリプロピレン樹脂は、プロピレンを重合させた樹脂で、プロピレンのみを重合した剛性が高いホモポリマー、少量のエチレンを共重合した透明性が高く柔軟なランダムポリマー、ゴム成分がホモ・ランダムポリマーに均一に微分散した衝撃性の高いブロックポリマーに分類される。汎用プラスチックの中では最も軽く耐薬品性に優れる。

ポリアミド樹脂は、アミド結合の繰り返し単位が主鎖を構成する結晶性の線状高分子である。脂肪族骨格を有するポリアミドはナイロンと総称される。また、芳香族骨格のみで構成されるポリアミドはアラミドと総称される。ポリアミド樹脂は機械特性が良く、引張り、圧縮、曲げ、衝撃に強く破損しにくく、自動車関連部品、電子部品、家庭用品など広く使用されている。

ポリカーボネート樹脂は、モノマー単位の結合部がすべてカーボネート基で構成されている。エンジニアリングプラスチックの中でも平均して高い物性を示し、特に透明性・耐衝撃性・難燃性などで高い物性を示す。物性に比べて安価であることから航空機、自動車、光学分野、医療分野などで広く使用されている。

ポリブチレンテレフタレート樹脂は、テレフタル酸(またはテレフタル酸ジメチル)と 1,4-ブタンジオールを重縮合させて得られるポリマーをベースとし、各種添加剤をコンパウンドして得られるポリエステル系のエンジニアリングプラスチックである。長期間熱安定性に優れることや寸法安定性や耐候性が良いといった特徴を持つ。また、電気的特性、耐薬品性、自己消化性、耐摩耗性に優れ、結晶化速度が大きく流動性も良好で成形性に優れるといった特徴も有する。これら優れた特徴から電気・電子、自動車分野を中心に広く普及している。

ポリエーテルエーテルケトン樹脂は、芳香族ポリエーテルケトン的一种であり、エーテル・エーテル・ケトンの順に結合を配置している。高耐熱、衝撃・引張・クリープ・疲労・摩耗に強く、耐薬品性も高いといった特徴を有する。また優れた電気絶縁性も有することから電気・電子分野でも広く使用されている。

ポリフェニレンサルファイド樹脂は、ベンゼン環と硫黄原子が交互に結合した直鎖状構造を持つ

結晶性の樹脂である。この樹脂の融点は約 280℃であり、高い耐熱性、剛性を有し、高温クリープ特性も良好であり優れた電気絶縁性も有する。また吸水率がきわめて低いことも特徴として挙げられる。この特徴から、自動車部品や家電部品、機械分野などに広く使用されている。

#### 1.1.5 炭素繊維複合材料の成形方法

炭素繊維複合材料の成形方法には、オートクレーブ成形、RTM 成形、プレス成形、SMC、シートワインディング成形、引抜き成形、射出成形などがある。樹脂の種類や中間基材、形状、コスト、数量、品質など、製品に求められる特性によって最適な成形方法を選定する必要があり、設計段階で成形方法を含めた計画を立てる必要がある。

オートクレーブ成形法は、オートクレーブ(圧力容器)を用いて、強化材となる炭素繊維に樹脂が含浸されたプリプレグと呼ばれるシート状の中間材料を使用し、加熱・加圧・真空引きをしながら樹脂を硬化させる成形法である。所定の形状にカットしたプリプレグを、設計された所定の位置・方向に必要枚数を積層し、オートクレーブ内で加熱・加圧しながら真空吸引を継続し、成形品の中から空洞(ボイド)を極力取り除くことにより、高品位な成形品が得られる。オートクレーブでは昇温・降温を含めて約 1~8 時間程度の時間を必要とし、製造コストが高くつくが、材料や形状など設計の自由度が高く、CFRP の特長や性能を最も引き出しやすい製法である。

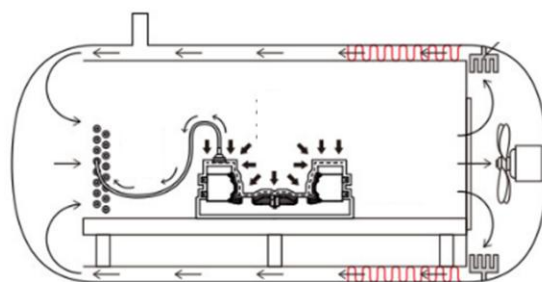


図 1-1-11 オートクレーブ成形

RTM 成形は、強化材となる炭素繊維の基材(織物などの中間基材)を金型内に設置した後、樹脂を注入して硬化させる成形法である。炭素繊維の基材を所定の形状に裁断し、設計された位置・方向に必要量を配置して、製品形状に予備賦形された状態のプリフォームと呼ばれる中間基材を、雄雌一体の金型内へ配置し、樹脂と硬化剤を混合しながら高い圧力で金型内へ注入する。繊維間に樹脂を流して型内に樹脂を充填させながら加熱し、硬化させることで成形品が得られる。プリプレグを使用したオートクレーブ成形品に比べ樹脂の使用量が多くなる傾向にある。比較的安定した品質が得やすく、金型を使用することもあり量産に適した成形法で中規模程度の生産量に向いており、面形状など比較的シンプルな形状(自動車のフードやルーフといった外板など)に採用されている。また、RTM 成形の一種である VaRTM(バキュームアシスト)成形もある。VaRTM (Vacuum assisted Resin Transfer Molding)は、上型を使わず下型だけを使用し、上面はフィルムバックで覆い、圧力ではなく真空吸引の力を利用して樹脂を含浸させる成形法である。真空引きを利用することで上型を無くすことができ、また型に負荷される力も減るため、金属ではない樹脂製や

木工製の型の使用が可能になり、型自体が安価にできるメリットがある。また、型の製作期間も短縮することが可能となり、結果的に型が軽くなるため型の取り扱いも楽になり、このことが RTM 成形法より大きいサイズの成形品に適用できる理由となっている。

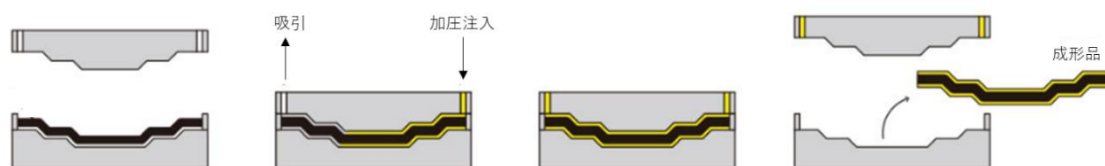


図 1-1-12 RTM 成形

プレス成形は、あらかじめ加熱しておいた金型にプリプレグや SMC 基材、BMC (Bulk Molding Compound) 基材などの中間基材を入れ、プレス機によって加圧しながら硬化させる成形法である。金型を使用するため、比較的寸法精度の高い成形品を得ることができ、成形時に昇温・降温を行わないため、オートクレーブ成形などに比べ成形サイクルを短縮することが可能である。ただし、プレス機を使用するため、成形品の形状が設計制約されることが多い。

SMC は、シート状に重ねられた SMC 基材を金型内に配置してプレス機によって加圧流動させる成形方法である。SMC 基材は、強化材となる炭素繊維を長さ 10～50mm 程に裁断し、樹脂、硬化剤、内部離型剤などを混合した樹脂ペーストに含浸させ、さらに加熱し増粘させたシート状の中間基材のことを指す。SMC 成形は、その SMC シートを裁断・計量して金型にチャージし、さらに加圧加熱し硬化させ成形品を得る成形法である。成形サイクルが短く大量生産に適しており、基材を流動させることでリブ、ボス、インサート、ネジなどの同時成形が可能であるといった特徴を持つ。ただし、強化材を裁断して使用することから、他の成形方法に比べ剛性や強度など物性が低くなる傾向にあり、強化繊維となる炭素繊維の優位性を完全に発現させることはできない。

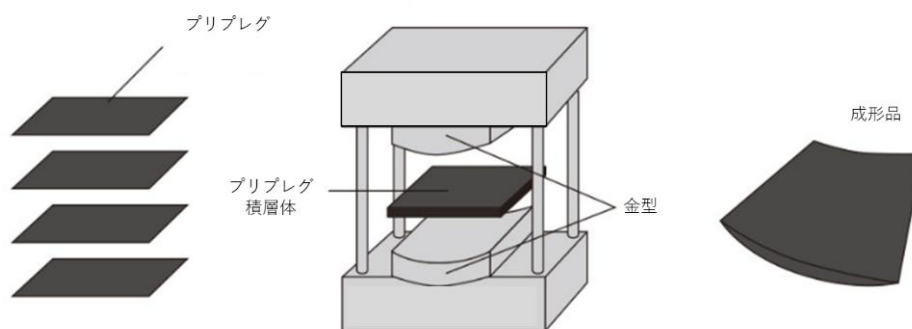


図 1-1-13 プレス成形

シートワインディング成形は、マンドレルと呼ばれる芯金にプリプレグ (強化材となる炭素繊維に樹脂が含浸されたプリプレグと呼ばれるシート状の中間材料) を巻き付けた後、さらに熱収縮テープを巻き付け、マンドレルごとオープンに入れて加熱・硬化させる成形法である。比較的肉厚が薄

いパイプ形状を作るのに適した成形方法であり、ゴルフシャフトや釣竿などで採用されている。プリプレグを種類および繊維配向について設計に従って制御しながら順に巻き重ねて積層するが、これがシートワインディング成形の最も得意とする技術のひとつである。主に 0 度・90 度・45 度方向にプリプレグを巻きつけていくが、この組み合わせによって様々な特性を持ったパイプを作ることができる。これに加えて、マンドレルを変えることにより様々な断面形状のパイプを製造することもできる。

引抜き成形は、炭素繊維の束(トゥ)をデボリンから引き出し、樹脂槽の中を通して含浸させた後、金型に引き込みながら加熱し、金型を通過する間に連続的に硬化させる成形法である。成形品は引き抜きながらカッターで切断したり、巻き取り装置で巻き取ったりして、一定の長さの成形品を連続的に製造する。丸棒や角パイプなど様々な断面形状の物を成形するのに適している。

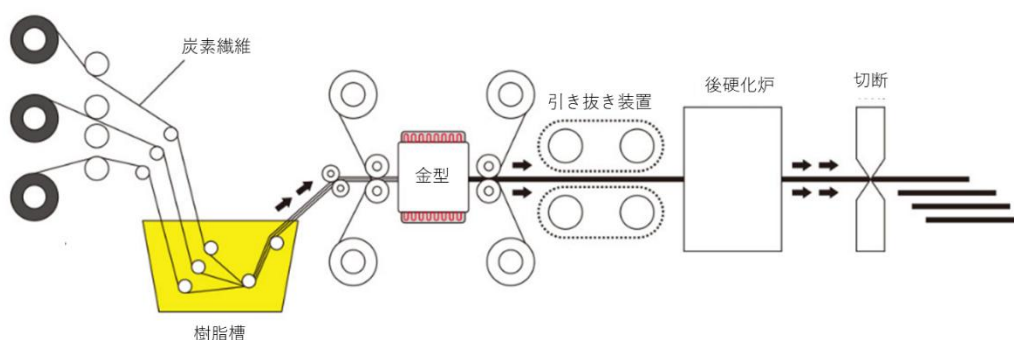


図 1-1-14 引き抜き成形

射出成型は、熱可塑性樹脂と短くカットした炭素繊維が混練されたペレットを加熱融解し、金型内に射出注入して冷却・硬化させる成形法である。ペレットをプランジャー内に入れ、スクリューの動きにより一定量のペレットが噛み込まれて加熱溶解され、金型の空洞(キャビティ)中に射出(押し込む)して成形し、金型内で冷却されて硬化した後、成形品を取り出す。ペレットを使用するため、成形自由度が高く複雑形状の製品が可能である。一般的な樹脂単体の射出成形品に比べ、強度や剛性は高くなるが、炭素繊維が長いまま成形する方法(オートクレーブ成形、RTM 成形)よりも強度や剛性は劣る。小型部品を大量生産するのに適した成形方法であり、自動車部品や産業設備の部品に使用されている。また、ノートパソコン筐体の成形にも用いられている。

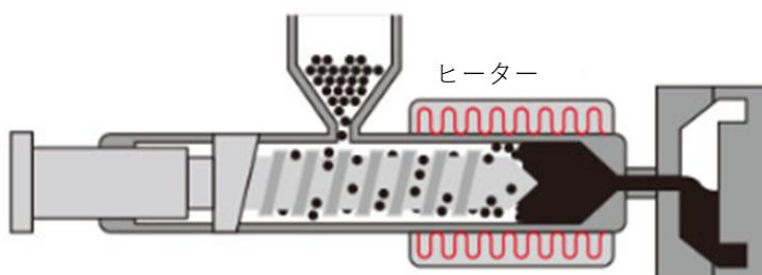


図 1-1-15 射出成形

#### 1.1.6 炭素繊維複合材料の市場

炭素繊維複合材料の市場において、2021 年時点で CFRSP のシェアは約 88%を占めている<sup>4)</sup>。CFRTP は数量市場での成長が見込まれる一方で、製造コストの低減技術が進展しており、製品単価の低下が予測される。そのため、2030 年から 2035 年にかけて CFRTP の数量市場比率は 20%に上昇すると予測されるが、金額市場における比率は 10%に満たないと予測される。

CFRSP に着目すると、2021 年における CFRSP の数量市場は風力発電ブレードの市場構成が最も大きい<sup>4)</sup>。航空機市場はコロナ禍で縮小しているが、材料単価が高いため金額市場ではシェアトップである。2035 年に向けては風力発電ブレード、航空機、圧力容器を主要用途として市場が拡大すると想定される。多くの分野において成形加工方法の脱オートクレーブ化が進むことから、数量市場に比べて金額市場におけるシェア拡大は緩やかになると予測されている。また、CFRSP は炭素繊維、中間基材、成形加工品の各工程において、欧米市場を中心に市場が形成されている。さらに、風力発電ブレード需要の拡大に伴い、中国市場のシェアが拡大している。

次に CFRTP に着目すると、CFRTP 市場では静電部品や摺動部品が金額・数量市場ともにシェアが高い。<sup>4)</sup>また、2025 年以降には航空機分野が拡大し、2030 年以降には自動車分野が大きく拡大することが予測される。また、CFRTP は中国および他のアジア地域が静電部品などのコンパウンド用途において主要な成形拠点となっているため、CFRSP のエリア構成と比較してシェアが高い傾向にある。

### 1.2 炭素繊維複合材料のリサイクルの現状と本事業の意義

#### 1.2.1 炭素繊維複合材料のリサイクル状況とリサイクル方法

近年、「大量生産・大量消費・大量廃棄」型の社会経済がもたらす海洋プラスチックや気候変動といった地球環境への悪影響が世界的に問題視されるようになり、脱炭素や資源循環を推進する動きが活発化している。特に環境問題への意識が高い欧州では、2010 年に策定された EU の成長戦略「Europe2020」で「資源効率的な欧州」がフラッグシップイニシアチブの一つに掲げられ、2050 年のビジョンと 2020 年までのマイルストーンを示す「資源効率的な欧州へのロードマップ (Roadmap to a Resource-Efficient Europe)」の発表を皮切りに、2015 年 12 月の循環経済パッケージ (Circular Economy Package)、2018 年 1 月の「EU プラスチック戦略 (EU Plastics Strategy)」、2020 年の新循環経済行動計画 (New Circular Economy Action Plan) など、相次いで廃棄物削減や循環型社会構築に向けた法整備が進められている。日本においても、2018 年に従来の「循環型社会形成基本法 (2001 年)」を改正した「循環型社会形成推進基本計画」が施行された他、2019 年 5 月には従来の 3R (リデュース、リユース、リサイクル) に「リニューアブル (再生可能資源)」を追加した「プラスチック資源循環戦略」、2022 年 4 月には「プラスチック資源循環促進法」が施行されている。

国内外での国を挙げての取組みにより、プラスチック製品の端材及び使用済廃材はできる限り回収し有効利用するという気運が高まっている。廃プラスチック排出量に占める処理量の内訳をみると、「有効利用 (マテリアルリサイクル、ケミカルリサイクル+サーマルリカバリー)」と「未利用 (埋立・

焼却)」の比率は、2010 年時点で日本が 77%:23%、EU が 47%:53%であったのが、2020 年には日本が 86%:14%、EU が 76%:24%と、10 年間で有効利用の比率が大幅に拡大している<sup>5)</sup>。

ただし、このように有効利用されるプラスチックは容器包装などで使用される単一素材のものが中心であり、炭素繊維とプラスチックのコンポジット材料である CFRP は、強化材である炭素繊維とマトリックス樹脂との分離が困難であることや、高耐熱材料でありサーマルリカバリーするにもエネルギー消費量が多く必要であることなどから、現状では端材・廃材共に廃棄物として処理される、つまり未利用となるケースがほとんどである。廃棄物に関する規制の厳しい EU においても、廃棄物を定義・分類した「EU 廃棄物カタログ(The European Waste Catalogue)」や、分類が困難な廃棄物の取り扱いを説明する「廃棄物分類についてのテクニカルガイダンス(Technical Guidance on the Classification of Waste(2018/C 124/01))」などが制定されているものの、CFRP を始めとする強化プラスチックの廃棄については、具体的な処理や対応に関する言及がされておらず、包括的なルールが指定されていない状況である。

CFRP は航空機、風力発電、圧力容器、自動車、スポーツ・レジャー用品など幅広い分野で使用されており、そのワールドワイドの市場規模は 2022 年で 148,900 トンに上ると推計される。このうち工程内端材として年間 15~16%程度、2022 年には 23,700 トンが排出されたと見られる。また、市中に出ている CFRP のうち航空機で約 30 年、その他用途で約 10 年という耐用期間を過ぎて同年に廃棄された量は 31,910 トンと見られ、2022 年の CFRP 廃棄物の量は端材・廃材を合わせて 55,610 トンに上ると推計される。CFRP 市場の拡大とともにこの量は増え続け、2030 年には端材・廃材を合わせた CFRP 廃棄物量は 10 万トンを超えるレベルとなる見込みである。一方で、排出された CFRP の端材・廃材がリサイクルに回る量を見ると、2022 年は 3,730 トンと推計され、端材排出量の 16%弱、使用済廃材と端材の合計量に占める比率は 7%弱と極一部にとどまる。CFRP 端材・廃材からのリサイクル炭素繊維(rCF)回収量は、ここ数年は 2,000 トン前後で推移しているものと見られるが、これは PAN 系のバージン CF(vCF)生産量の 2~3%という規模である<sup>5)</sup>。

CFRP から rCF を取り出すリサイクル技術の開発が進んでいないわけではなく、欧州では大手航空機メーカーであるエアバス社を中心に rCF 回収のための技術開発やリサイクルのためのサプライチェーン構築などが進められてきた。日本においても炭素繊維協会や CF メーカーなどにより 1997 年頃に CFRP の埋立処分に代わる処理方法の調査研究が行われたのを皮切りに、2000 年以降、CF メーカー、リサイクラー、大学、研究機関、NEDO、経済産業省、環境省など、産官学を挙げたプロジェクトが実施された。その結果、日本のリサイクラーの中には量産レベル、あるいはパイロット量産レベルの設備導入により商業規模での rCF 事業を開始するところも出てきている。従来主流であった熱分解方式だけでなく、酸や有機溶媒などを使用してマトリックス樹脂を分解する化学分解方式での開発も進み、パイロットスケールの量産設備の設置やパートナー企業との協業による量産プラント立ち上げの動きもみられるようになった。

### 1.2.2 各リサイクラーの動向

CFRP リサイクルでは、マトリックス樹脂と繊維を分離して rCF を回収するが、マトリックス樹脂の

分解・除去方法は、高熱による熱分解法と溶剤を用いる化学分解法の 2 つに大別される。熱分解法は、通常 500～600℃程度に加熱してマトリックス樹脂を熱分解することで炭素繊維を回収する。化学分解法は、通常熱分解法対比低い温度で、酸や塩基を分解剤とし、溶媒中でマトリックス樹脂を分解して炭素繊維を回収する<sup>5)</sup>。

熱分解法による CFRP のリサイクルは、富士加飾、新菱、カーボンファイバーリサイクル工業 (CFRI) など、複数のリサイクラーが開発を進めている。化学分解法についても、ミライ化成、旭化成などが開発していることが報告<sup>6)</sup>されている。

富士加飾は、熱分解法を展開するリサイクラーの一社である。同社は従来の熱分解法で課題とされてきた毛羽立ちや粉末発生、不純物混入による繊維強度低下や後加工性の問題に対し、自社開発の精密熱分解炉を用い、樹脂種や部材サイズに応じた条件を自動制御することで、再現性の高い処理と新品に近い特性を有する炭素繊維の回収を可能としている。回収繊維は加工性に優れ、コンパウンド用途や長繊維複合材への展開が検討されている<sup>7)</sup>。

新菱ではサーキュラーエコノミー事業の中で CFRP の端材・廃材からの rCF 回収を行っている。同社 CFRP 製造工程で発生する端材などを対象として、熱処理によって樹脂成分を除去し炭素繊維を回収するリサイクル技術を展開している。本技術は、CFRP を加熱処理することで炭素繊維を分離回収する熱分解型リサイクルプロセスを基盤としている点に特徴がある。回収されたリサイクル炭素繊維は、PP や ABS などの汎用樹脂からエンブラ、スーパーエンブラまで、各種樹脂へのコンパウンド化に対応しており、CFRP リサイクルから材料化までの一貫した技術体系が構築されている<sup>8)</sup>。

CFRI は CFRP 廃材からの CF 再生事業を行うベンチャー企業として 2008 年に設立された。もともと保有していた還元焼成技術を応用し、二段階焼成により CFRP から rCF を回収する技術を開発し、CF メーカーや、CFRP 製品メーカーの工程内端材(廃 CFRP)から rCF を回収している。同社が岐阜大学との共同研究により開発したエネルギー自立型二段階熱分解法では、CFRP 由来のエネルギーを利用しながら、炭素繊維を繊維状のまま回収することを特徴としている。本技術により、低コストかつ省エネルギーで、炭素繊維本来の特性を維持した再生が可能とされている。回収された炭素繊維は、成形材料、シート・マット材、構造部材など、幅広い用途への展開が想定されている<sup>9)</sup>。

ミライ化成は 2010 年 10 月より rCF の開発を開始した。同社は溶媒法により CFRP のマトリックス樹脂を分解し rCF を回収する技術の研究開発に取り組んでいる。本手法は、熱分解法と異なり高温処理を必要とせず、炭素繊維の繊維長や特性をある程度保持したまま回収できる点に特徴がある。同社は、処理対象となる CFRP の樹脂系や構成に応じて溶媒・薬品を選択することで、樹脂残渣の少ない再生炭素繊維 (rCF) の回収を可能としている。回収された rCF は、不織布、紡績糸、炭素繊維含有ペレットなどの中間基材へ加工され、CFRP および CFRTTP 成形体への再利用を前提とした材料開発が進められている。特に、青森県三沢市に設置した研究開発拠点「三沢 LAB」では、溶媒分解法による rCF 製造から不織布化・成形試作までの一貫検討が行われている<sup>10), 11)</sup>。

旭化成株式会社は電解硫酸法による連続炭素繊維のリサイクルに関する基礎技術を開発し、



2022 年 12 月にリリースした。本技術は、NEDO 先導研究プログラムの一環として、北九州工業高等専門学校および東京理科大学と連携して進められた。同社は、硫酸を電気分解して生成する酸化性活性種により樹脂成分を分解する電解硫酸法を新たに開発している。本手法の特徴として、樹脂種を問わず分解可能であること、炭素繊維の強度低下が生じないこと、および炭素繊維を連続繊維の形態で回収できる点が挙げられている。実証として、市販の CFRP 製小型タンクから連続炭素繊維を回収する基礎技術が確立された。回収した繊維は新品同様に扱うことが可能で、フィラメントワインディング成形への再適用が示されている<sup>12)</sup>。

炭素繊維のリサイクルは日本だけでなく海外でも進展している。Gen 2 Carbon Limited (以下、Gen 2 Carbon) は CFRP 廃材から炭素繊維を回収するリサイクル技術を事業の中核とする英国企業である。同社は、CFRP 廃材を処理し、樹脂成分を除去して炭素繊維を回収する熱分解法 (pyrolysis) を用いた炭素繊維回収プロセスを採用している。このプロセスにより、埋立処分されていた複合材料廃材から高付加価値な炭素繊維のみを回収することが可能となっている。回収されたリサイクル炭素繊維は、不織布 (nonwoven mat) などの中間基材へ再加工され、自動車や産業用途向け材料として供給されている<sup>13)</sup>。

Mitsubishi Chemical Advanced Materials (MCAM) は 2020 年 8 月、親会社である三菱ケミカル株式会社がドイツのリサイクル会社 CFK Valley Stade Recycling GmbH (以下、CFK Valley) およびリサイクル製品販売会社 CarboNXT GmbH (以下、CarboNXT) を買収したことをきっかけに、欧州における炭素繊維リサイクル事業を開始した。同社は、CFRP 製造工程端材や使用済み複合材料を対象として、熱分解法 (pyrolysis) による炭素繊維回収を行っている。回収プロセスでは、酸素を遮断した熱処理により樹脂成分を除去し、高純度なリサイクル炭素繊維 (rCF) を得ることが可能とされている。回収した rCF は、ミルド、チョップド、ノンウーブン (不織布) などの多様な形態に再加工され、軽量化用途向け材料として提供されている。同社は、炭素繊維回収から材料化までを一貫して担うことで、サーキュラーエコノミーに対応した炭素繊維バリューチェーンの構築を目指している<sup>14)</sup>。

Vartega Inc. は米国を拠点とする炭素繊維リサイクル企業であり、CFRP 製造工程から発生するドライファイバーおよびプリプレグ端材を主な原料としている。同社は、炭素繊維を回収するために、熱処理を含む樹脂除去プロセスを用いて高品質なリサイクル炭素繊維 (rCF) を製造している。回収された rCF は、チョップドファイバーや東化材料として再加工され、熱可塑性樹脂のコンパウンド用途や熱硬化性樹脂用途に供給されている。同社が保有する特許では、炭素繊維複合材料から樹脂を除去し、炭素繊維を回収する一連の処理プロセスが開示されている<sup>15), 16)</sup>。

CATACK-H は、韓国を拠点とする CFRP リサイクル企業であり、溶媒分解 (ソルボリシス) を用いた化学的リサイクル技術の中核としている。同社の技術は、韓国科学技術研究院 (KIST) で開発された CFRP 分解技術を基盤としており、低温・常圧といった穏和な条件下で樹脂を化学的に分解する点に特徴がある。このプロセスにより、CFRP 中のエポキシ樹脂を分解し、表面残渣の少ない高品質なリサイクル炭素繊維 (rCF) を回収可能としている。回収された炭素繊維は、ミルドファイバーや不織布などの中間材料へ再加工され、自動車、スポーツ用品、建材等の用途を想定して供



給されている<sup>17)</sup>。

### 1.2.3 本事業の意義

上述のように各社 CFRP のリサイクル技術の開発が進められているが、現状としては一部で実証や試行が進んでいる段階にあるものの実製品への搭載事例はいまだ少なく、リサイクル産業として十分に確立されているとは言い難い。リサイクル産業として確立するための課題として①高品位な rCF の回収、②樹脂分解物の有効活用、③rCF 市場開拓の実施、④リサイクル炭素繊維の供給安定性確保などが挙げられる。これに対し本事業では、CFRP リサイクルの技術検証を行い各課題の解決に取り組む。①については新規溶媒溶解法により、熱分解法で課題となっていた rCF のダメージを低減し vCF 対比、rCF の強度低下を 10%以下への抑制を図る。②についてはエポキシ樹脂分解物を有用化合物として回収する合成ルートの確立を図る。③についてはリサイクル CFRP 物性のバージン同等化(バージン材対比 $\geq 90\%$ )と用途展開を進め、出口戦略の明確化を図る。④については自社端材・廃材の活用による安定数量の確保を図る。これらを達成することによりゼロエミッションでサーキュラーエコノミーな社会実現に貢献する。

## 2. 本事業について

### 2.1 本事業の目標

前述のとおり、CFRP は CF を樹脂で固めた複合材料であり、軽量、高剛性、高強度といった特徴から、航空機、産業用途、自動車などの幅広い産業に使われている。一方で、CFRP のリサイクルに関しては、廃棄 CFRP から取り出した rCF を鉄鋼炉の還元剤としてケミカルリサイクルする方法が開発されている。また、CFRP の樹脂を高温で熱分解して rCF を回収・再利用(熱分解法)するマテリアルリサイクルの技術開発も射出成型用途を中心に進んでいるが、炭素繊維の劣化や樹脂残渣などの課題もあり、さらなる用途拡大においては熱分解法 rCF の劣化抑制および樹脂残渣制御ができ、あらゆる廃棄 CFRP に適用できるリサイクル技術が必要と考えられる。

CFRP のリサイクルが困難な要因として、CFRP を構成するマトリックス樹脂に、エポキシ樹脂等の化学分解が困難で不溶不融な熱硬化樹脂が用いられることが挙げられる。CFRP のリサイクル手段として検討が進んでいる熱分解法では、炭素繊維が劣化することに加え、一部樹脂残渣が CF 表面に残留するため、rCFRP の物性が低下するだけでなく、rCFRP 基材の作成方法に制約があり、熱可塑性樹脂と rCF をコンパウンドした炭素繊維強化熱可塑樹脂複合材(rCFRTP)として射出成形等の一部の用途展開に限定される課題もある。さらに樹脂は二酸化炭素と水になり有効活用できない課題もあった。また、エポキシ樹脂を化学分解により有効物に変換可能な技術もほとんど存在しない。

そこで本提案では、ダメージレスかつ樹脂残渣レスで CF を回収する新規なリサイクル法(新規溶媒溶解法)を確立することを目的とし、得られた rCF はプリプレグや RTM といった連続繊維強化基材や SMC、不織布等の不連続繊維基材へ展開し、バージン CFRP に匹敵する高品位な rCFRP を作成することで CFRP リサイクル市場の拡大に貢献する。加えて、エポキシ樹脂分解物から化学変換により選択的にフェノール類等有用化合物を回収し、さらに別の有用化合物へと変換する合成ルートも確立することも目的とし、ゼロエミッションでサーキュラーエコノミーな社会実現に貢献する。

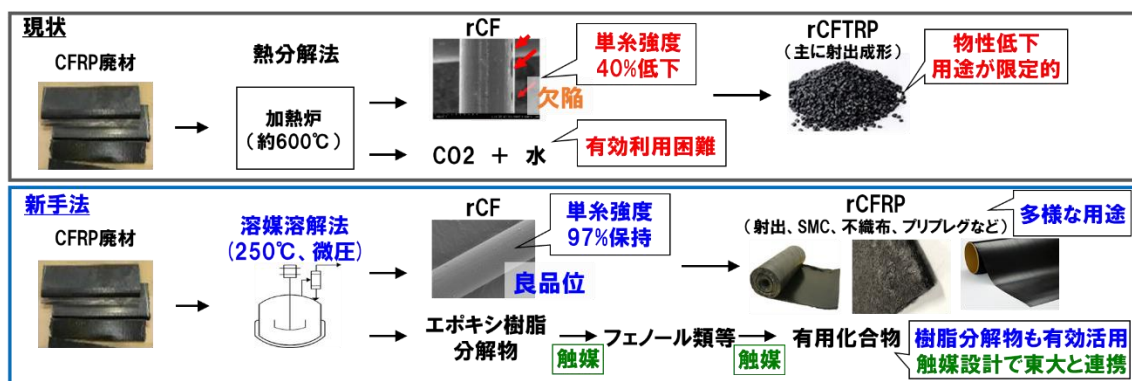


図 2-1-1 CFRP リサイクルの現状と本事業のイメージ

## 2.2 本年事業開始前の検討状況と今後の目標達成のための課題

本事業に向けて、予め事前検証を行った。溶媒中で CFRP のマトリックス樹脂を化学分解し、ダメージレスでrCF を回収できるとされる技術がいくつか発表されているが<sup>18), 19)</sup>、当社で検証を行ったところ、硬化済の CFRP 製品(航空機用 CFRP 硬化物)の分解は困難であり、相対的に分解難易度が低い未硬化中間基材(未硬化状態のエポキシ樹脂が含浸された炭素繊維材料:プリプレグ)では分解可能であった。

一方、本提案では、2035 年(令和 17 年)頃から急増すると予想される使用済 CFRP 廃材をリサイクル可能な技術を確認すべく、硬化済の航空機用 CFRP 端材をターゲットにダメージレスでrCF を回収可能な条件を探索した。令和6年度までに、種々の溶媒や分解剤を検討した結果、NMP 溶媒中、約250℃で、分解剤として NaOH を作用させることで、航空機用 CFRP 端材から樹脂残渣レスかつほぼ強度低下のないrCF を回収することができた。また、CF 表面には、熱分解法に見られるような不規則な凹状欠損がなく、良品位であった。

表 2-2-1 本技術の事前検証結果

|         | 熱分解法                      | 本提案           | A社法       | B社法       |
|---------|---------------------------|---------------|-----------|-----------|
| 溶媒      | —                         | NMP           | 水         | 有機溶媒      |
| 分解剤     | —                         | NaOH          | 強酸・強塩基    | 強塩基       |
| 分解対象    | 対象 CFRP に制限なし             | 対象 CFRP に制限なし | 硬化剤種に制限あり | 硬化剤種に制限あり |
| rCF 品質  | △<br>(劣化)                 | ○             | ○         | ○         |
| 樹脂成分の回収 | 不可<br>(CO <sub>2</sub> 化) | 検討中           | 困難        | 可能性あり     |

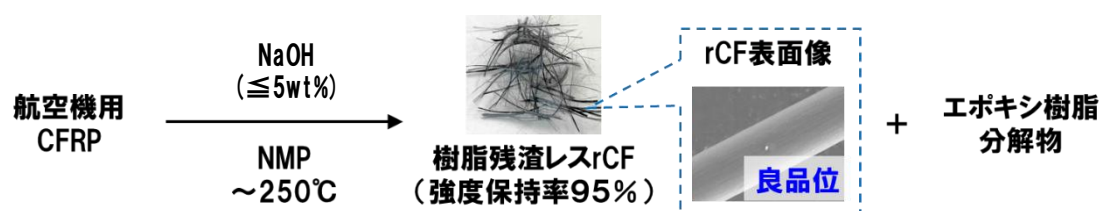


図 2-2-1 本技術でのラボ CFRP 分解試験

さらに、本提案の手法で得られたrCF をポリアミド樹脂とコンパウンドして得たrCF RTP の物性を評価した結果、バージン CF を用いた場合と同等の物性を示すことを確認した。



図 2-2-2 本技術で得られた rCF を用いたコンパウンド品の評価

以上を踏まえ、令和6年度は、本技術のスケールアップ検証や本技術で得られるrCFのより詳細な特性分析、本技術で得られるrCFのサイジング処理によるrCFRTP物性向上などに取り組んだ。今後の課題は、本提案手法のスケールアップ検討と用途開発用rCFの確保、工業化に向けたプロセス機器の調査や適正化したプロセスでのコスト検証、CFPの精査、rCFの機能化(サイジング剤の付与、不織布など多様な形態への展開)とrCFRPの用途確立、CFRPリサイクル事業化のための連携ユーザー探索である。

さらに、エポキシ樹脂分解物の有価物変換に向けた調査・事前検討にも着手した。エポキシ樹脂は、不溶不融であり、通常解重合が困難であるため、エポキシ樹脂を分解して、その構成成分へと選択的に変換する手法は非常に限られた報告例しかない<sup>20)</sup>。一方で、本共同提案者らは、ビスフェノールA型エポキシ樹脂にアミド溶媒中、水素雰囲気下、有機ニッケル触媒を作用させることで、該エポキシ樹脂を分解し、ビスフェノールAへと選択的に変換する手法を開発している<sup>21)</sup>。加えて、共同提案者らは種々のエポキシ樹脂に含まれる共通骨格であるフェノールなどへと変換する手法も開発中である。

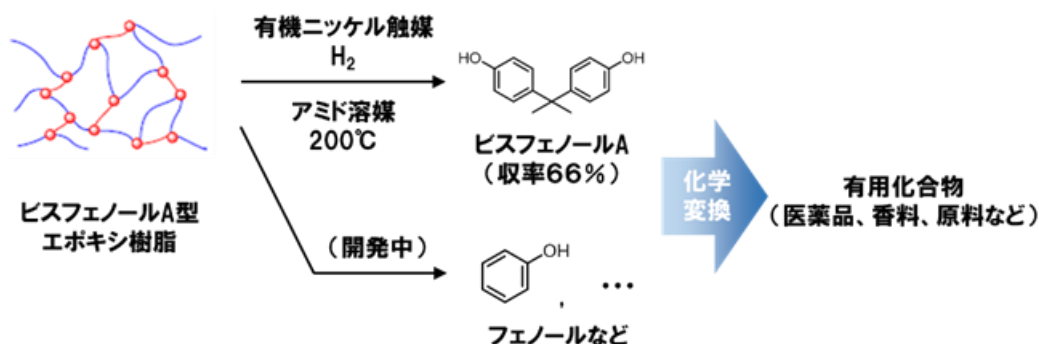


図2-2-3 エポキシ樹脂分解物の有価物変換に向けたスキーム

以上を踏まえ、令和7年度において共同提案者は、得られるフェノール類をさらに有機変換し、有価物とする場合の対象化合物を検討し、4-イソプロピルフェノールを抗菌剤などに用いられる4-イソプロピルメチルフェノールに変換するラボ検討に着手した。また、航空機用エポキシ樹脂分解物からアミン類を回収できる可能性があることも見出した。

今後の課題は、新規溶媒溶解法と組み合わせることで、エポキシ樹脂分解物からフェノール類

(ビスフェノールA、フェノールなど)やアミン類などの有用化合物へと選択的に変換する条件の確立、精製含めた合成プロセスの確度向上と実現性の判断、さらに、得られた有用化合物から医薬品、香料、樹脂およびそれら原料などさらに別の有用化合物へと変換する合成ルートの確立である。

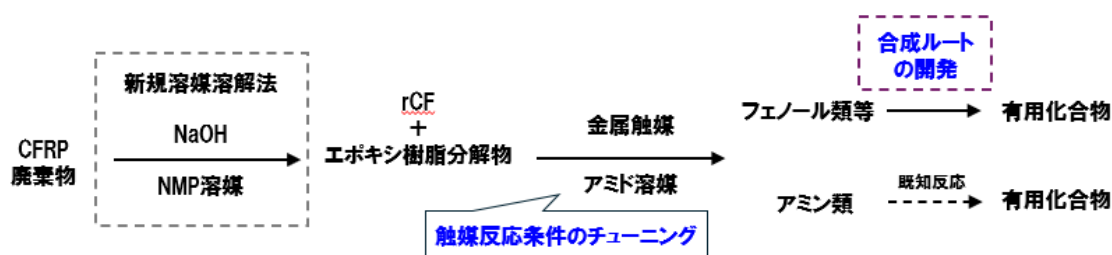


図 2-2-4 エポキシ樹脂分解物の有価物変換実証に向けたイメージ

以上の課題を達成することで、CFRP硬化物からのダメージレスCF回収と、エポキシ樹脂分解物の有用化合物回収を両立する全く新しいCFRPリサイクル技術創出を目指す。

## 2.3 事業化の見込み時期と出口戦略

本事業終了後、CFRP 処理量 300t/年(rCF 生産量 200t/年)のパイロットスケール設備(運転開始目標:令和 10 年度)、さらに CFRP 処理量 0.3 万t/年(rCF 生産量 0.2 万t/年)の商業設備立ち上げを目指して、rCFRP の用途開発を進める。本提案による CFRP リサイクルでは、ダメージレスかつ樹脂残渣レスで、高品位なrCF の回収が期待できる。従来の熱分解法によるrCF では、熱可塑樹脂とコンパウンドしたrCF ペレット(射出成形)の開発がメインであったが、この用途に加えて、不連続繊維基材(不織布、SMCなど)や連続繊維基材(プリプレグ、RTM など)への展開も進める。

熱可塑樹脂とコンパウンドしたrCF ペレット(射出成形)に関しては、熱分解法と比較してrCF ペレットの物性が向上し、バージン CF ペレット同等の特性発現が期待できるので、バージンrCF ペレットや熱分解法 rCF ペレットの置き換えを狙う。具体的にはパソコン筐体(rCF 目標数量:10t/年、令和 12 年度)や、自動車部品(rCF 目標数量:100t/年、令和 12 年度)、スポーツ用途への展開を行う。

さらに、市場成長率の高い自動車向け不連続繊維強化基材への適用を狙い、不連続繊維形態のrCF から製造できるrCF 不織布や SMC (Sheet Molding Compound) 基材を作成し用途展開を行う。自動車向けは軽量化・CFP削減ニーズが高く、アルミダイキャスト代替(インバーター等のEV部品)としてrCFRP の引き合いが大きい。加えて、新規なアイテムとして、rCF 不織布を表層の意匠材として展開する検討も推進する。

CFRP 市場の圧倒的シェアを有する連続繊維強化基材への適用を狙い、不連続 rCF を紡績することで、連続糸ライクな取り扱いが可能となる rCF 紡績糸に加工し、rCF 織物(RTM 成形)や一

方向基材(プリプレグ)、引拔材などを作成し用途展開を行う。これらの用途拡大を進め、CF リサイクル率の飛躍的な拡大を狙う。

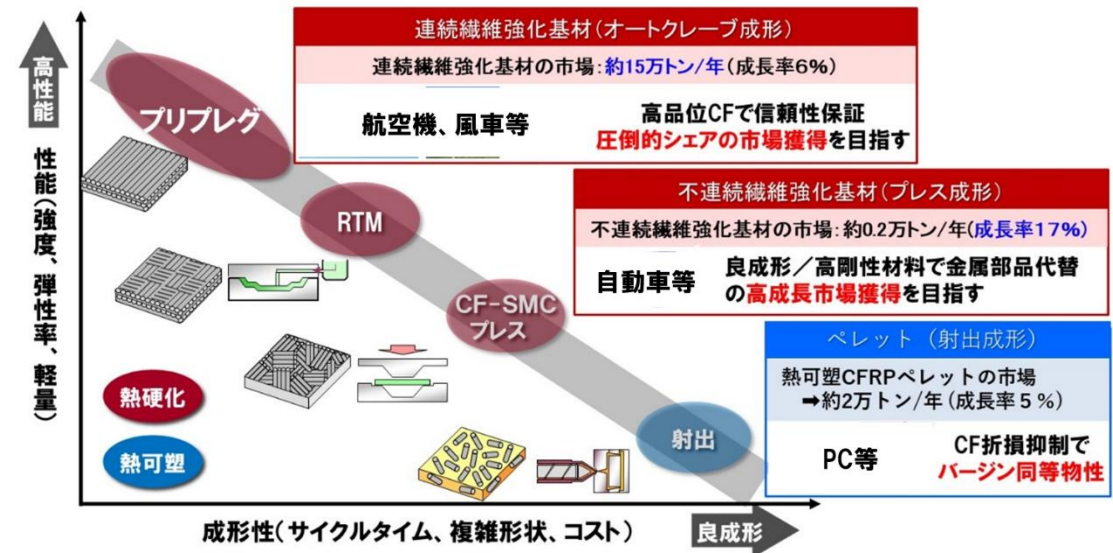


図 2-3-1 CFRP 成形加工法

さらに波及効果として、エポキシ樹脂分解物の有価物変換の技術が確立できれば、CFRP 廃材のみにとどまらず、塗装剤や接着剤や封止材等のエポキシ樹脂単体のリサイクルにも応用できる。エポキシ樹脂単体の市場は 2024 年に355 万t(エポキシ樹脂市場規模調査 2024)であり、CFRP の市場 18 万t(2023 年度リサイクル CFRP 市場の展望)と比較して大きく、本技術実証により CFP の飛躍的削減が期待できる。



### 3. 本事業の成果(新規溶媒溶解法による CFRP リサイクルに関する技術開発)

#### 3.1 CFRP の解重合検討

##### 3.1.1 CFRP 解重合ラボ検討

昨年度、CFRP 分解方法として NMP を用いた加圧短時間条件(240℃、加圧、分解剤:NaOH。以降 NMP 法とも記載する)、DMI を用いた常圧長時間条件(232℃、常圧、分解剤:KOH。以降 DMI 法とも記載する)を報告した。これらの反応条件をベースにコスト、LCA の最小化を目的とした反応条件最適化検討を実施した。なお本試験では分解対象 CFRP として航空機用 CFRP 廃材を用いた。

まず NMP 法について、反応温度を NMP の沸点近傍である 200℃とし、塩基の活性を向上させる目的でクラウンエーテル(18-crown-6-ether)を塩基に対して1当量添加した。しかし分解試験後の試験片の外観はほとんど変化せず完全分解には至らなかった(図 3-1-1)。分解状態がほとんど変化しなかった要因はクラウンエーテル添加による金属錯体形成安定性が適当ではなかったことに起因していると考えられ、クラウンエーテルに対して安定的に金属錯体を形成することが知られている K 系の塩基(KOH)を使用した。その結果、CFRP の分解が明らかに進行し、部分的に繊維状分解物が見られるようになった(図 3-1-2)。



図 3-1-1 常圧分解試験後の CFRP サンプル



図 3-1-2 常圧分解試験後の CFRP サンプル(KOH 使用)

上記結果を受け、さらなる分解率向上を目指してクラウンエーテルの添加量最適化検討を実施した。クラウンエーテルの添加量を KOH に対して 0.1～1.4 当量の間で検討した結果、クラウンエーテルを KOH に対して 1.4 当量添加した際に CFRP がほとんど分解していることが確認された(図 3-1-3)。分解試験後の炭素繊維について TG-DTA 測定した結果、樹脂残渣と帰属される重量減少率は 1%以下であり CFRP の分解が十分に進行したことが確認された(図 3-1-4)。またクラウンエーテルの添加量についてさらなる増加検討を実施したが KOH に対して 1.4 当量以上添加しても CFRP 分解率は向上しないことも確認された(図 3-1-5)。

以上の結果から、反応温度の低下、反応時圧力の常圧化が可能なことがわかった。

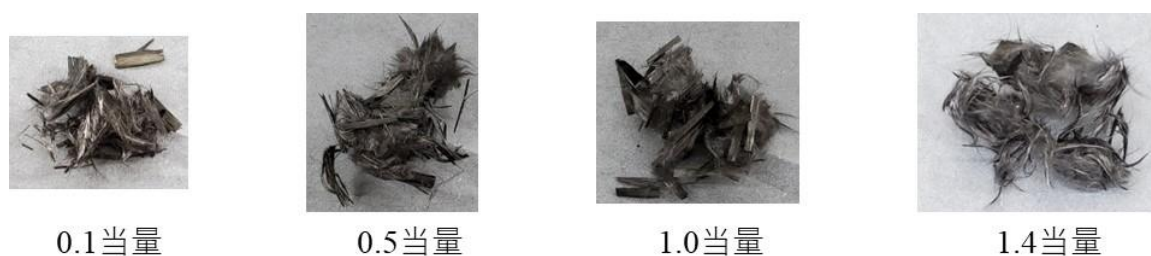


図 3-1-3 常圧分解試験後の CFRP サンプル外観(クラウンエーテル量依存性)

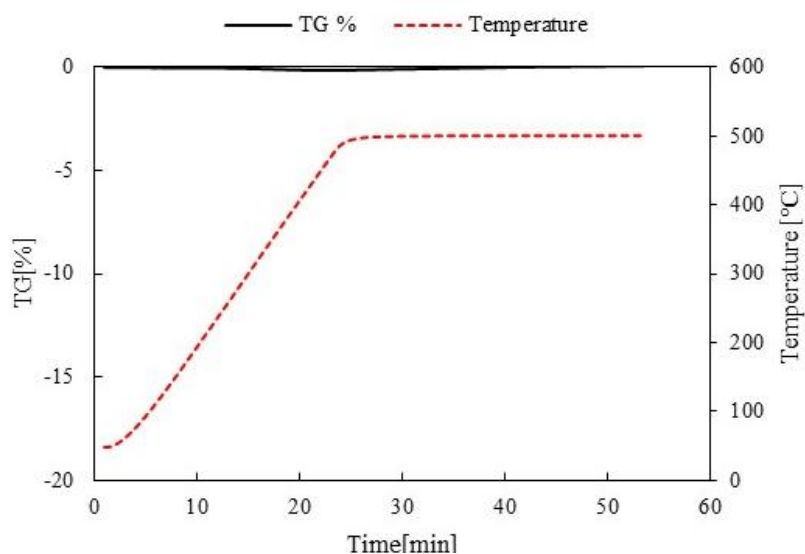


図 3-1-4 TG-DTA 測定結果



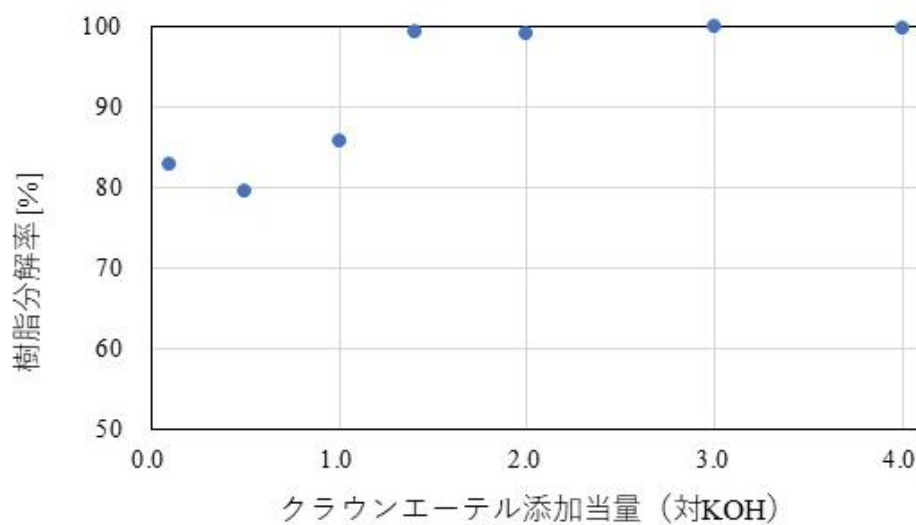


図 3-1-5 樹脂分解率のクラウンエーテル添加量依存性

### 3.1.2 CFRP 廃材の加工

後述するスケールアップ試作において、昨年度と同様の塊状の CFRP 廃材に加えシート状の廃材についても検討対象とした。

裁断前後のシート状廃材の外観をそれぞれ図 3-1-6、図 3-1-7 に示す。裁断後の廃材について異物等がないことを目視にて確認し、分解試験に使用した。



図 3-1-6 裁断前のシート状廃材外観



図 3-1-7 裁断後のシート状廃材外観

### 3.1.3 CFRP 解重合スケールアップ試作

rCF 数量確保および新規溶媒溶解法プロセスの課題抽出のため、CFRP 解重合のスケールアップ試作を行った。なお、昨年度のスケールアップ試作にて底栓弁バルブで rCF 詰まりが生じ、底栓弁から rCF をほとんど抜き出すことは出来ない課題が生じた(後述のイメージ参照)。そこで、CFRP 廃材のカット長に応じて、適切な反応装置を検討した。

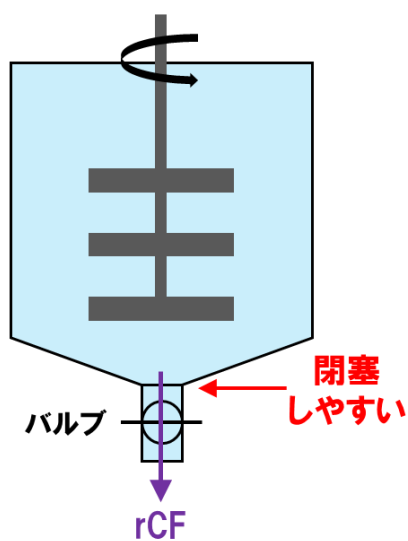


図 3-1-8 一般的な反応釜での課題

### 3.1.3.1 ムッチェでの試作

昨年度のスケーラップ試作にて底栓弁バルブでrCF 詰まりが生じ、底栓弁からrCF をほとんど抜き出すことは出来ない課題が生じた。特にカット長が長い CFRP 廃材を用いた場合における詰まりが顕著であり、各出口検討に必要な rCF 確保が困難であった。

そこで本検討では、ムッチェと呼ばれる、ろ過・固液分離用途に一般的に用いられる密閉容器型の装置を用いて試作を実施した。ムッチェは、容器底部にろ過媒体(フィルター)を備え、スラリー状の内容物から固形分をろ過・回収できる構造を有しており、底栓弁を介した排出を必要としないため、繊維状物質による詰まりが生じにくいという特長がある。



図 3-1-9 分解に使用したムッチェ(左:外観、右:内部)

前記シート状の廃材(カット長 50mm)を用いて、ムッチェにて合計 4 バッチの試作を実施した。1 バッチ目と2 バッチ目は水投入時に液の白濁が著しかったことから樹脂分解が不十分であることが示唆された。そのため 3 バッチ目以降は NMP での洗浄回数を増加させて試作した。その結果、3 バッチ目および4 バッチ目は外観が良好な高品位な繊維長 50mm の rCF が回収できた。また、本装置であれば、繊維長 50mm でも回収作業にも問題ないことがわかった。



図 3-1-10 回収した rCF の外観



### 3.1.3.2 rCF 抜き出し性確認

今後の用途展開を考え、3mm または 6mm のカット長に裁断したシート状廃材を用いて、該カット長廃材での反応釜での試作可否を確認した。昨年度閉塞が生じた際は、カット長 50mm の CFRP 廃材を用いたが、3mm または 6mm のカット長であれば一般的な反応釜でも底栓弁から抜き出しができる可能性があると思定し、試作には 200L の反応釜を使用した。

まず、3mm のシート状廃材を用いて試作した結果、図 3-1-11 のように反応釜底部の抜き出し管で閉塞することなく rCF を回収可能であった。次に、カット長 6mm のシート状廃材にて同様の検討を行った結果、3mm の場合同様に問題なく反応釜から抜き出し可能であった(図 3-1-10)。

来期以降での試作では、さらにスケールを広げて rCF の数量を確保する。



図 3-1-11 3mm シート状廃材使用時の抜き出し状況(左:槽内、右:抜き出したサンプル)



図 3-1-12 6mm シート状廃材使用時の抜き出し状況(左:槽内、右:抜き出したサンプル)

### 3.1.4 CFRP 解重合のプロセス検討

コスト／LCA 試算精度向上と設備構築に向けたプロセス検討と解重合装置の調査を実施したので、以下に詳細を記載する。これまで、解重合装置として一般的な反応釜を想定して検討や試作を進めていたが、特にサイズの大きい CFRP 廃材、すなわち繊維長の長い rCF を回収する場合、底栓弁からの rCF 排出性（プロセス性）に課題があることが判明、装置とプロセス性を検討した。

まず、横から rCF を排出可能な掻き出し機構付きろ過乾燥装置として次の図にイメージを示す WD フィルターを選定した。

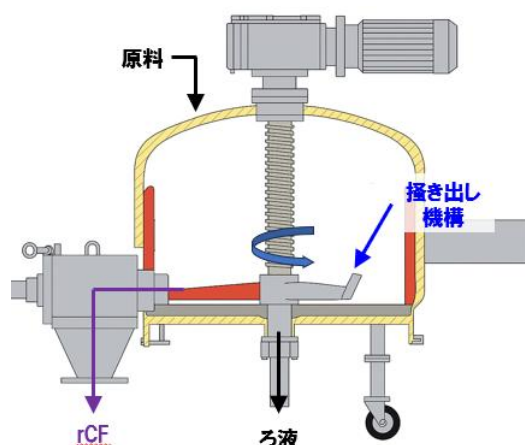


図 3-1-13 WD フィルターのイメージ図

rCF 数量確保とあわせて該装置での試作を実施した。WD フィルター（容量：2600L）に廃 CFRP（カット長 5cm）を 40kg と、溶媒（NMP、2000kg）などを仕込み、解重合反応後、溶媒を排出した。次に装置内のウェット rCF を装置側面の排出口から排出することを試みたが、装置の側壁や攪拌翼に付着し、排出口からウェット rCF はほとんど排出されなかった。ウェット rCF 自体は、装置を解体して内部から回収し、乾燥して 25kg の rCF を回収した。一方、本来の排出口からは排出出来なかったため、本検討用のプロセス機器としては見送りの判断とした。

### 3.2 rCF の評価

スケールアップ検討(前記 3.1.3.1 章)で得られた rCF (rCF-JY) の評価と、過去の NMP 法により得られた rCF の比較を行った。以下に評価結果の詳細を記載する。

まず 3.1.3.1 章の検討で得られた rCF の表面元素組成および表面に存在する官能基の化学状態を把握することを目的として XPS 分析を行った。XPS (X 線光電子分光法) の原理や特長は次のとおりである、超高真空中で試料表面に軟 X 線を照射し、表面から放出される光電子をアナライザーで検出する。光電子が物質中を進むことができる長さ(平均自由行程)が数 nm であることから、本分析手法における検出深さは数 nm となる。物質中の束縛電子の結合エネルギー値から表面の元素情報が、また各ピークのエネルギーシフトから価数や結合状態に関する情報が得られる。さらにピーク面積比を用いて定量することができる。<sup>21)</sup>

以下に、まずは測定結果を示す。

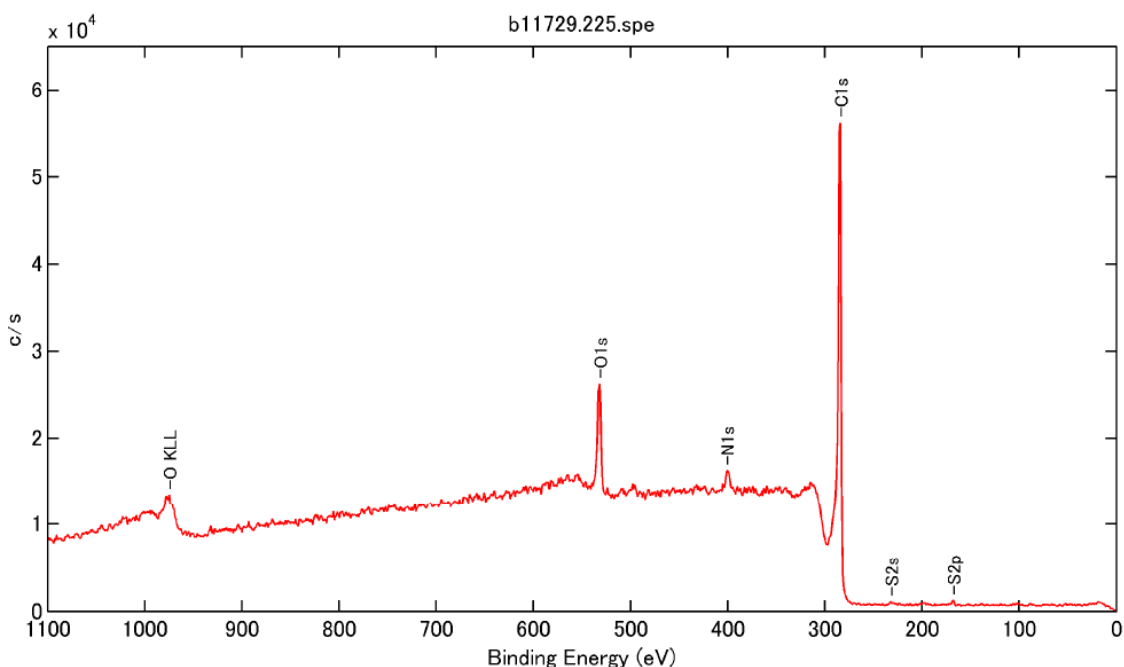


図 3-2-1 rCF-JY ワイドスキャン

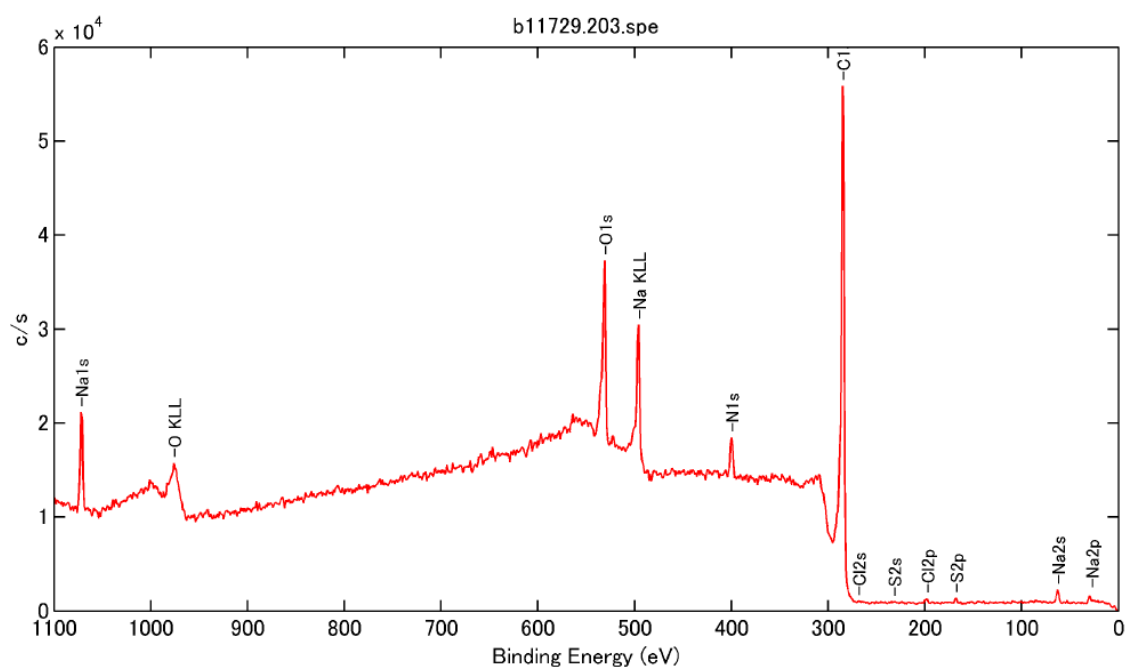


図 3-2-2 NMP 法 rCF ワイドスキャン

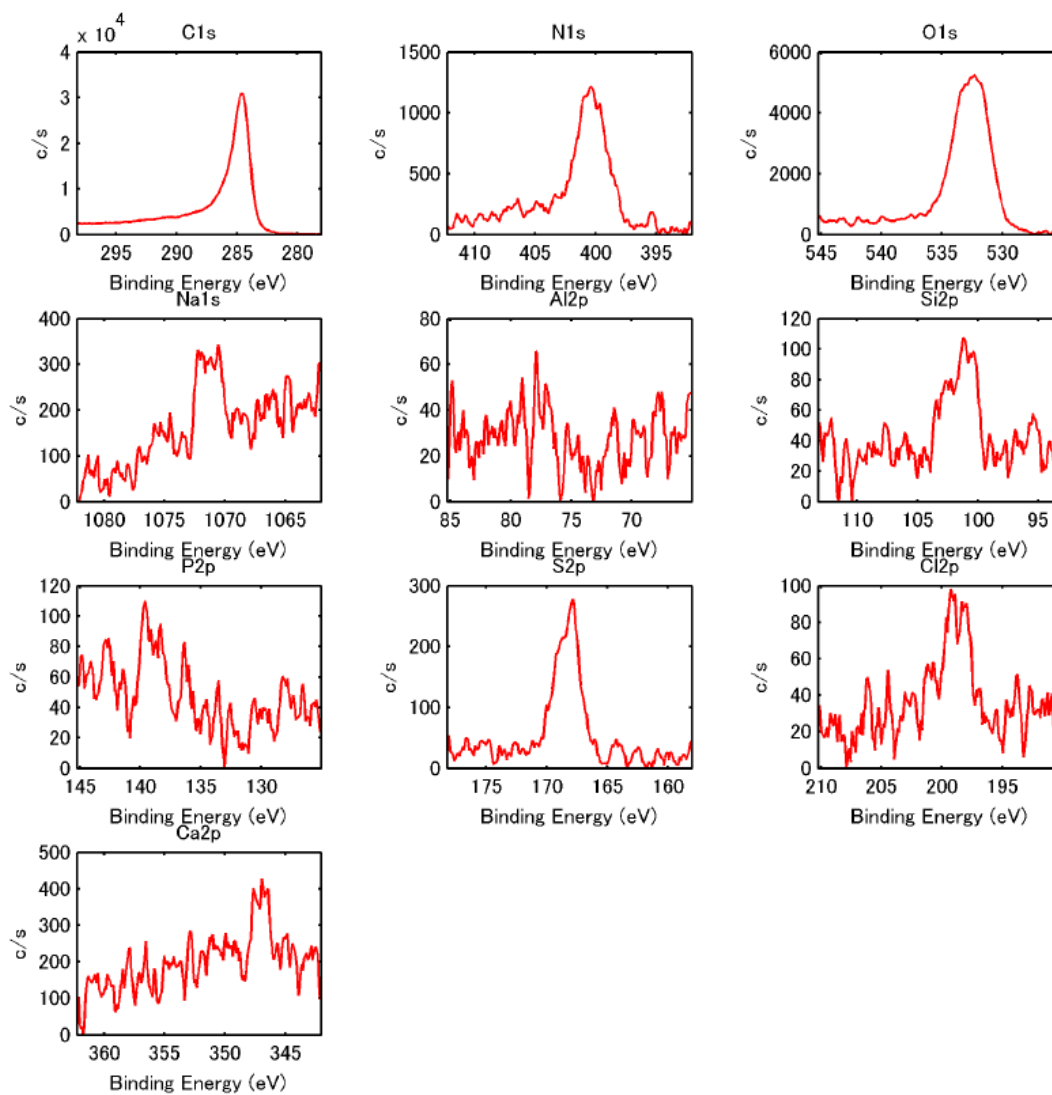


図 3-2-3 rCF-JY ナローキャン



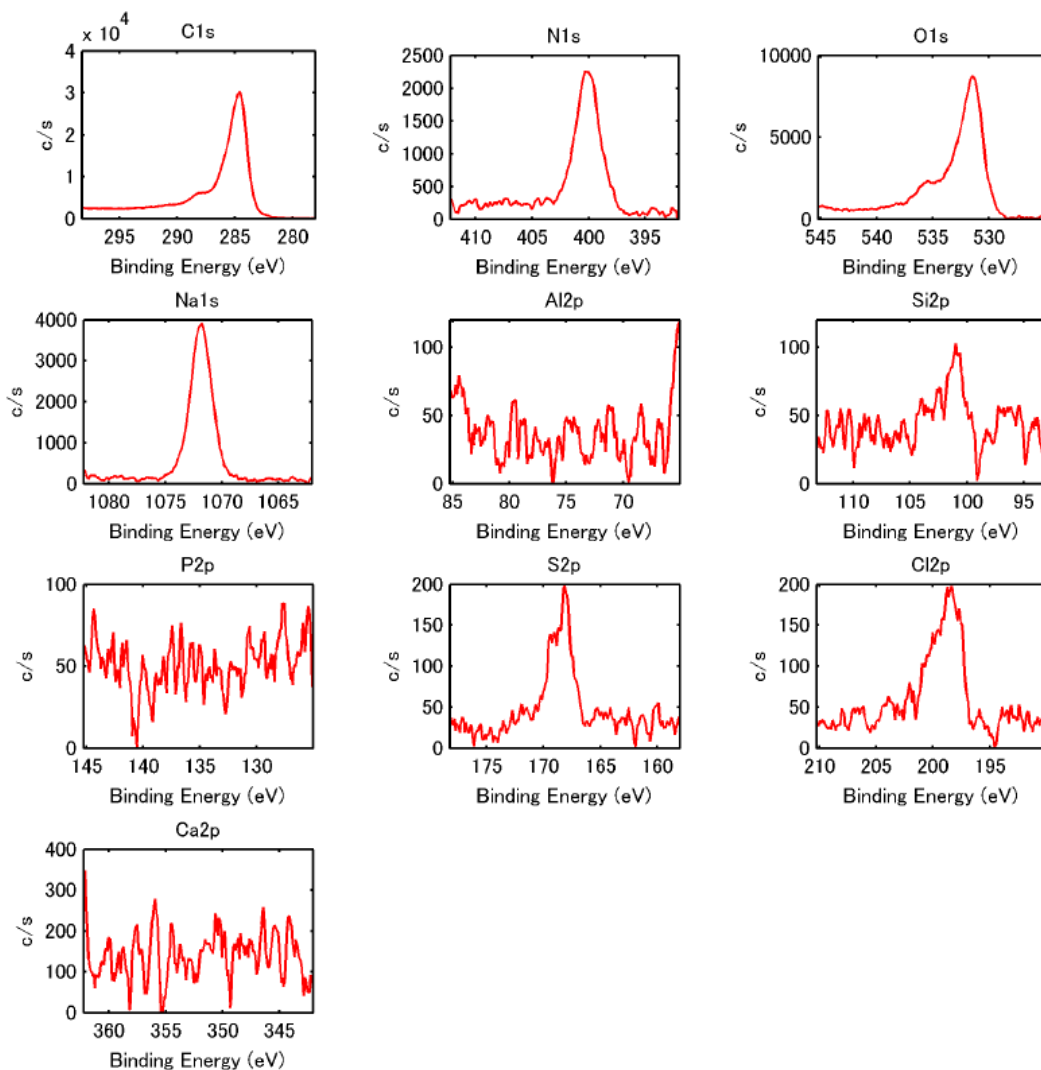


図 3-2-4 NMP 法 rCF ナROWSキャン

次に、得られたスペクトルから元素組成、原子数比を計算した結果を以下の表に示す。

表 3-2-1 元素組成 (atom%)

| 試料名    | C    | N   | O    | Na  | Si  | S   | Cl  | Ca  |
|--------|------|-----|------|-----|-----|-----|-----|-----|
| NMP法CF | 82.6 | 4.1 | 10.3 | 2.6 | 0.1 | 0.2 | 0.1 | —   |
| rCF-JY | 87.2 | 2.8 | 9.4  | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.1 | 0.1 |

表 3-2-2 原子数比(炭素原子基準)

| 試料名    | N/C   | O/C   | Na/C  | Si/C  | S/C   | Cl/C  | Ca/C  |
|--------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| NMP法CF | 0.05  | 0.125 | 0.031 | 0.001 | 0.002 | 0.002 | —     |
| rCF-JY | 0.032 | 0.108 | 0.001 | 0.002 | 0.003 | 0.001 | 0.001 |

上記表のとおり、検出元素は、炭素、窒素、酸素、ナトリウム、ケイ素(微量)、硫黄(微量)、塩素(微量)、カルシウム(rCF-JY のみ、微量)であった。rCF-JY は過去の NMP 法 rCF と同様に樹脂残渣の少ない品位良好な rCF であることが確認できた。なお、過去の NMP 法 rCF は、バージン同等の特性を示すことが把握できているため、rCF-JY もバージン同等の特性であると判断できる。

次に、2種類の rCF で繊維最表面に存在する分子種や官能基に由来する分子断片イオン(フラグメントイオン)を検出し、その相対強度や分布から表面状態の違いを比較評価することを目的として、TOF-SIMS(飛行時間型二次イオン質量分析法)分析を行った。その原理等は次のとおりである。超高真空中においた試料表面にパルス化されたイオン(一次イオン)が照射され、試料表面から放出されたイオン(二次イオン)は一定の運動エネルギーを得て飛行時間型の質量分析計へ導かれる。同じエネルギーで加速された二次イオンのそれぞれは質量に応じた速度で分析計を通過するが、検出器までの距離は一定であるためそこに到達するまでの時間(飛行時間)は質量の関数となり、この飛行時間の分布を精密に計測することによって二次イオンの質量分布、すなわち質量スペクトルが得られる。質量スペクトルを解析することにより試料表面に存在する有機物や無機物を同定することができ、そのピーク強度から存在量に関する知見を得ることができる。また、一次イオンビームを 1 μm 以下に収束させることにより、微小部の分析や高空間分解能でのイメージング測定(分布観察)が可能である<sup>22)</sup>。なお、本分析手法における検出深さは数 nm 以下である。

TOF-SIMS スペクトルにおいて観測された主なピークと由来する成分について下表にまとめた。

表 3-2-3 TOF-SIMS において観測された主なピーク

| 成分                                | 正二次イオン                                                       | 負二次イオン                                            |
|-----------------------------------|--------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------|
| 有機物およびカーボンに共通                     |                                                              | $C_x^-$ , $C_xH^-$                                |
| C-N 構造 (主に $CF^*$ )               |                                                              | $C_xN^-$                                          |
| C(=O)N 構造 (主に $CF^*$ )            |                                                              | $C_xNO^-$                                         |
| C(=O)O 構造 (カルボキシル基<br>またはエステル結合)  |                                                              | $^{45}CHO_2^-$                                    |
| $NO_x$ 構造 ( $NO_x$ 基または当該構造を含む成分) |                                                              | $NO_x^-$                                          |
| $SO_x$ 構造 ( $SO_x$ 基または当該構造を含む成分) |                                                              | $SO_x^-$                                          |
| TGDDM (マトリクス樹脂)                   | $^{106}C_7H_8N^+$ , $^{118}C_8H_8N^+$ ,<br>$^{130}C_9H_8N^+$ |                                                   |
| DDS (マトリクス樹脂)                     |                                                              | $^{156}C_6H_6NSO_2^-$                             |
| PES (マトリクス樹脂)                     |                                                              | $^{184}C_8H_8SO_3^-$ , $^{325}C_{18}H_{13}SO_4^-$ |
| フタル酸エステル                          | $^{149}C_8H_5O_3^+$                                          |                                                   |
| ブチルヒドロキシトルエン構造                    | $^{219}C_{15}H_{23}O^+$                                      |                                                   |
| オクトキシ基                            |                                                              | $^{129}C_8H_{17}O^-$                              |
| ポリジメチルシロキサン                       | $^{73}SiC_3H_9^+$ , $^{147}Si_2OC_5H_{15}^+$<br>など           |                                                   |
| 脂肪族炭化水素                           | $^{41}C_3H_5^+$ , $^{55}C_4H_7^+$ など                         |                                                   |
| 芳香族炭化水素                           | $^{77}C_6H_5^+$ , $^{91}C_7H_7^+$ など                         |                                                   |
| 無機元素                              | $^{23}Na^+$ , $^{39}K^+$ , $^{40}Ca^+$                       | $^{35}Cl^-$ , $^{127}I^-$                         |

(\*) $CF$  の場合、構造中に含まれる窒素や酸素と、炭素が結合した C-N 構造や C(=O)N 構造由来のピークが一般に観測される。

次に、総二次イオン強度による規格化強度(スペクトル全体の合計強度に対する各ピーク強度の割合)を用いて、検出成分量について試料間比較を行った。

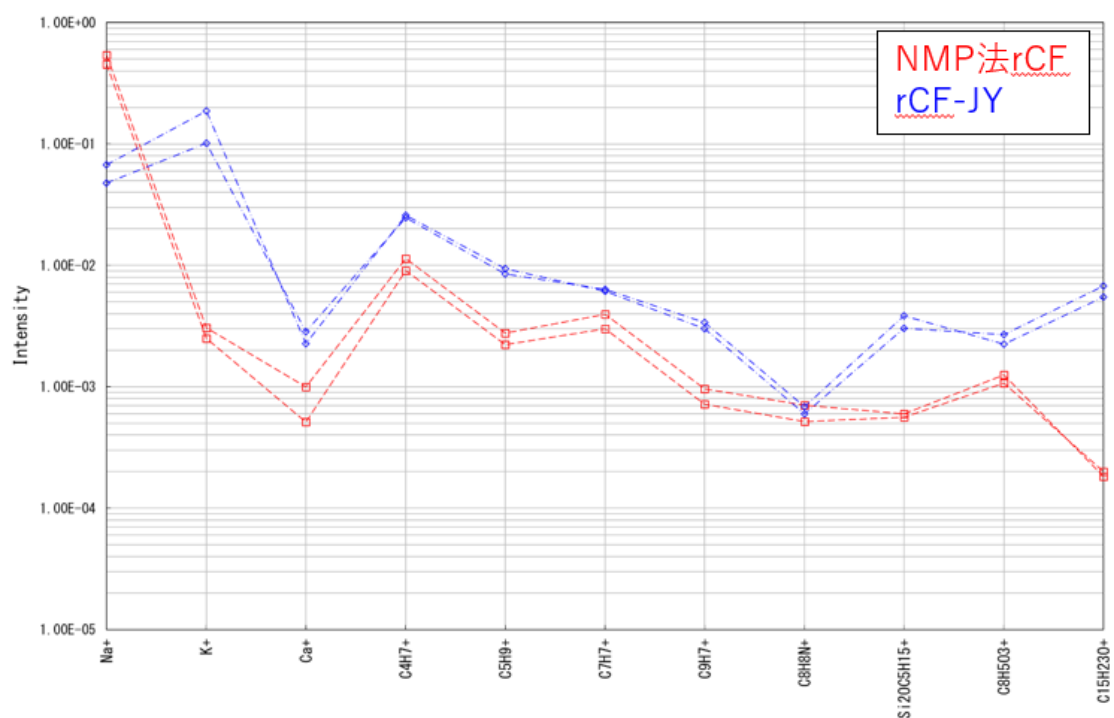


図 3-2-5 主な正二次イオンのピーク強度の比較(規格化)

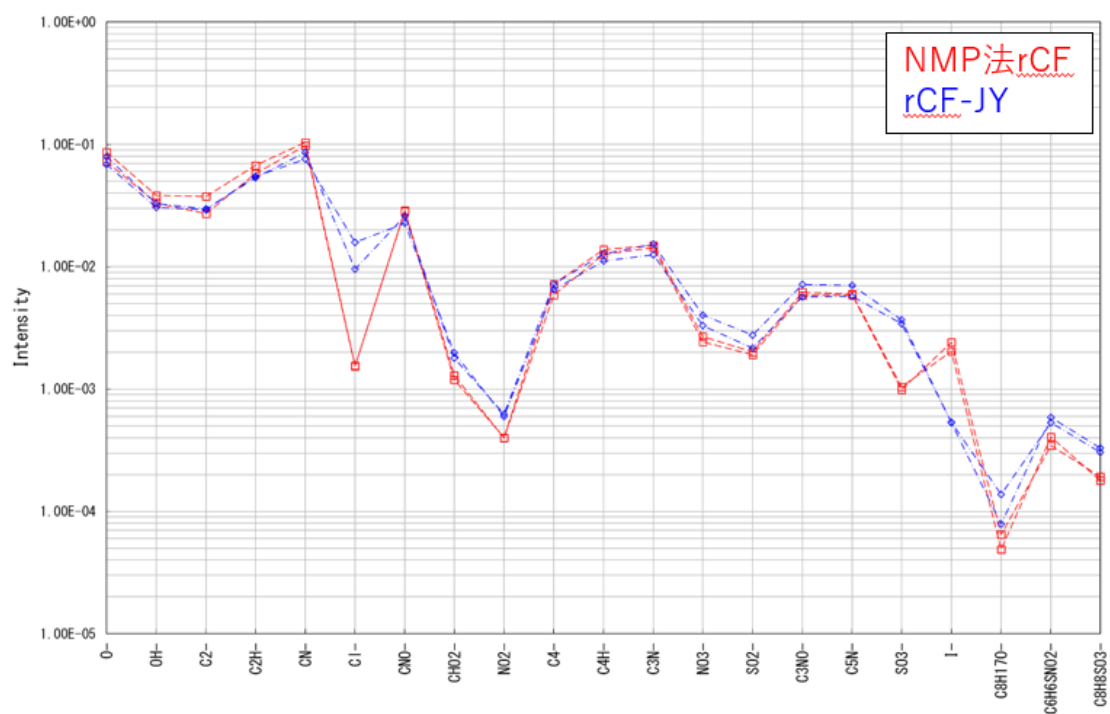


図 3-2-6 主な負二次イオンのピーク強度の比較(規格化)

さらに rCF-JY と NMP 法 rCF を比較した結果を下表にまとめた。CN 構造、C(=O)N 構造、NO<sub>x</sub> 構造、SO<sub>2</sub> 構造は両 rCF で顕著な差が見られなかった。一方で C(=O)O 構造や SO<sub>3</sub><sup>-</sup> 構造は rCF-JY の方が NMP 法 rCF よりも多く存在していた。このことから、2種類の rCF で最表面における化学構造が若干変化したことが示唆された。

表 3-2-4 TOF-SIMS 検出成分の比較

| 構造                 | ピーク                                                           | 試料間の大小関係        |
|--------------------|---------------------------------------------------------------|-----------------|
| CN構造               | C <sub>3</sub> N <sup>-</sup> , C <sub>5</sub> N <sup>-</sup> | 顕著な差異なし         |
| C(=O)N構造           | C <sub>3</sub> NO <sup>-</sup>                                | 顕著な差異なし         |
| C(=O)O構造           | CHO <sub>2</sub> <sup>-</sup>                                 | rCF-JY > NMP法CF |
| NO <sub>x</sub> 構造 | NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>   | 顕著な差異なし         |
| SO <sub>x</sub> 構造 | SO <sub>2</sub> <sup>-</sup>                                  | 顕著な差異なし         |
| SO <sub>x</sub> 構造 | SO <sub>3</sub> <sup>-</sup>                                  | rCF-JY > NMP法CF |

NMP 法により得られた rCF について、各種樹脂との複合化を想定した界面接着強度を測定した。界面接着強度の測定にはマイクロドロプレット法を適用した。マイクロドロプレット法は、単一の炭素繊維上に、微量量(数十～数百 μm 程度)の樹脂ドロプレットを形成し、微小荷重試験機(マイクロメカニカルテスター等)を用いて引き抜き変形させることで、樹脂ドロプレットと繊維表面との界面がせん断破壊する際の荷重を取得する界面接着強度の測定方法である。ここで得られる界面破壊時の最大荷重(F<sub>max</sub>)、炭素繊維の繊維径(d)、埋め込み長(L)をもとに下記式を用いて界面せん断強度(IFSS)が算出される。

$$IFSS = \frac{F_{max}}{\pi dL}$$

なお本評価では比較対象として熱分解法により得られた rCF および、バージン CF(vCF)を選定し、評価対象樹脂としては熱可塑樹脂として一般的でコンパウンド用樹脂の候補としているナイロン 6、PPS、および熱硬化樹脂として代表的な熱硬化エポキシの 3 種類の樹脂を選定した。

ナイロン 6 に対する結果を下記に示す。いずれのサンプルも界面強度に大きな差は見られなかった。これはナイロン 6 のアミド結合が炭素繊維表面と強固な相互作用を形成しており、アミド結合が樹脂中に多く存在していることにより炭素繊維表面状態の寄与が減少したことに起因していると考えられる。

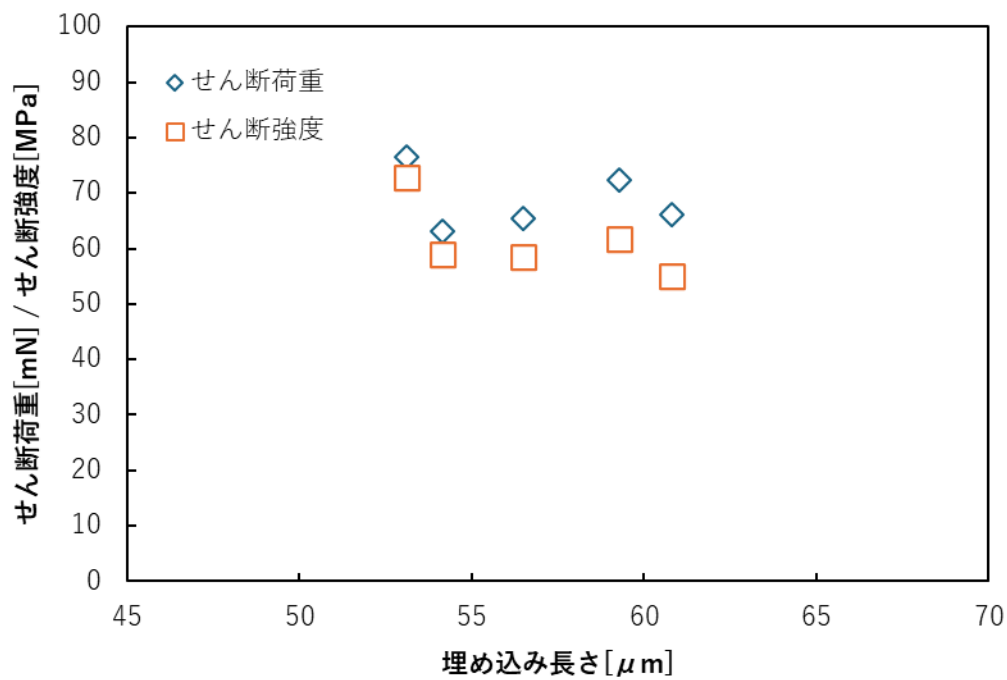


図 3-2-7 熱分解法 rCF-ナイロン 6 のマイクロドロップレット法試験結果

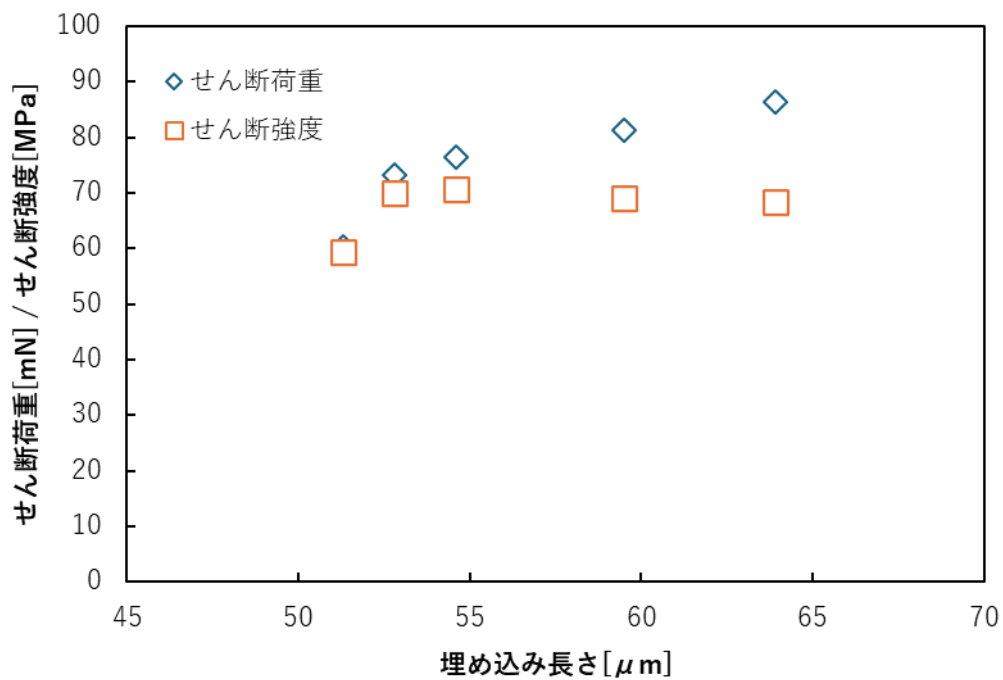


図 3-2-8 vCF-ナイロン 6 のマイクロドロップレット法試験結果

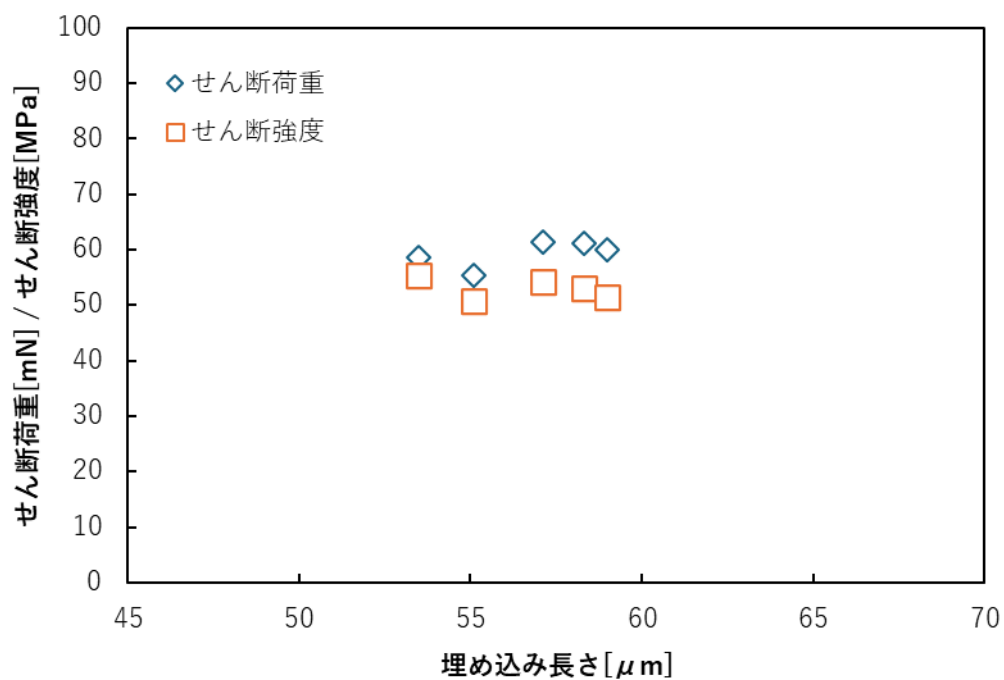


図 3-2-9 NMP 法 rCF-ナイロン 6 のマイクロドロップレット法試験結果

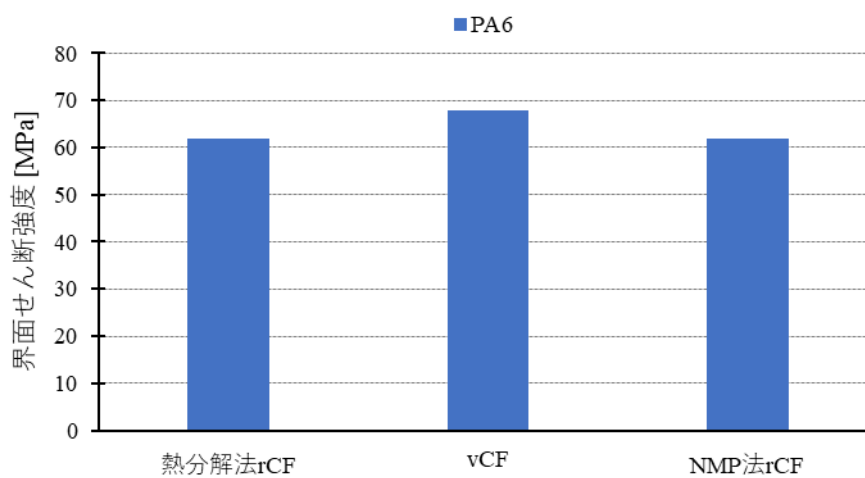


図 3-2-10 ナイロン 6 に対するマイクロドロップレット法試験結果比較

次に熱硬化エポキシに対する結果を下記に示す。いずれのサンプルも界面強度に大きな差は見られず、界面強度はナイロン 6 よりも低い結果となった。サンプル間で差異が見られなかった要因は、ナイロン 6 同様に樹脂中の官能基濃度が高かったことに起因していると考えられる。また界面強度がナイロン 6 と比べて低かったのはこの官能基の相互作用力の差、もしくは樹脂の硬化収縮に起因した残留応力の二つの影響が考えられる。



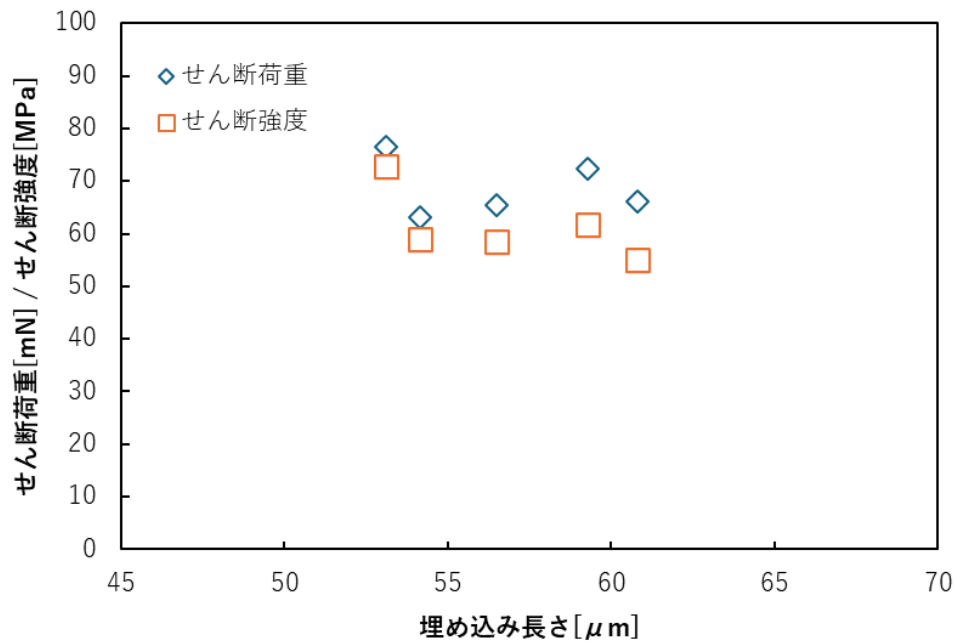


図 3-2-11 熱分解法 rCF-熱硬化エポキシのマイクロドロップレット法試験結果

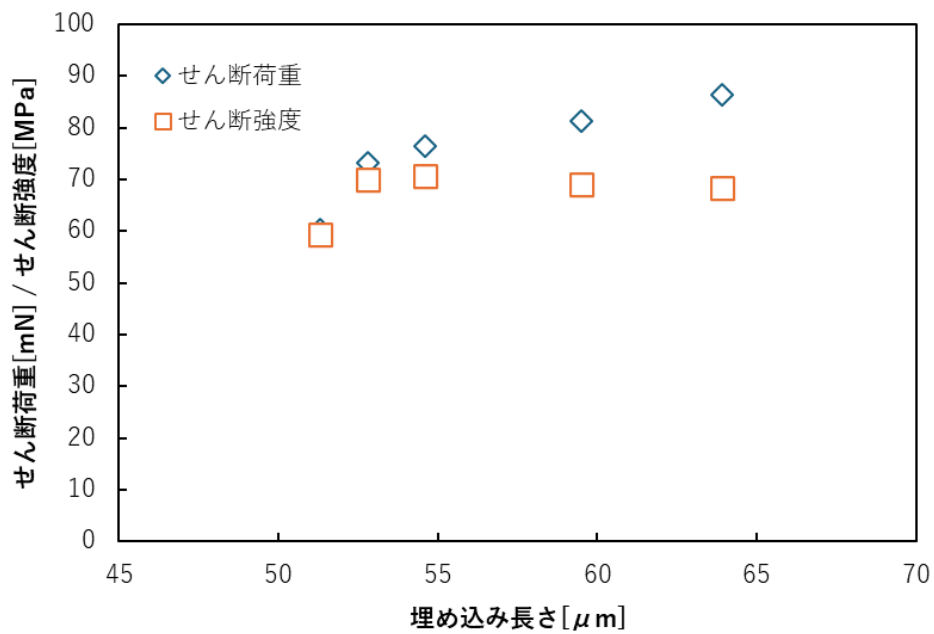


図 3-2-12 vCF-熱硬化エポキシのマイクロドロップレット法試験結果

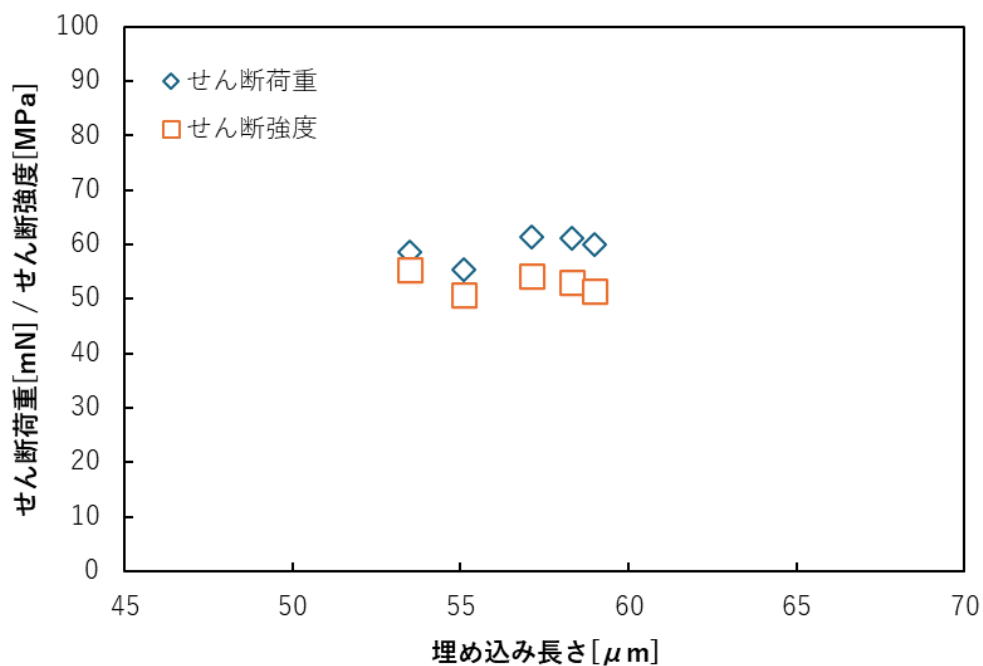


図 3-2-13 NMP 法 rCF-熱硬化エポキシのマイクロドロプレット法試験結果

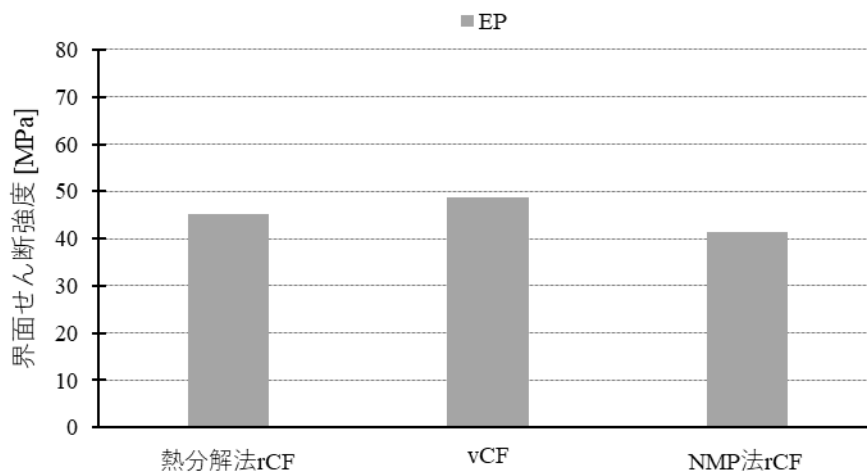


図 3-2-14 熱硬化エポキシに対するマイクロドロプレット法試験結果比較

次に PPS に対する結果を下記に示す。界面強度は熱分解法 rCF < vCF < NMP 法 rCF の順であった。サンプル間で差が顕著にみられる理由は、PPS が分子骨格中にアミド結合のような極性基を有しないため、樹脂と炭素繊維との間の相互作用が弱くなっていることに起因していると考えられる。界面強度の強弱に関しては繊維の表面状態を反映していると考えられ、熱分解法 rCF は繊維がダメージを受けて強度が低下、NMP 法 rCF は加圧塩基条件により表面官能基が増加したことにそれぞれ起因していると推測される。

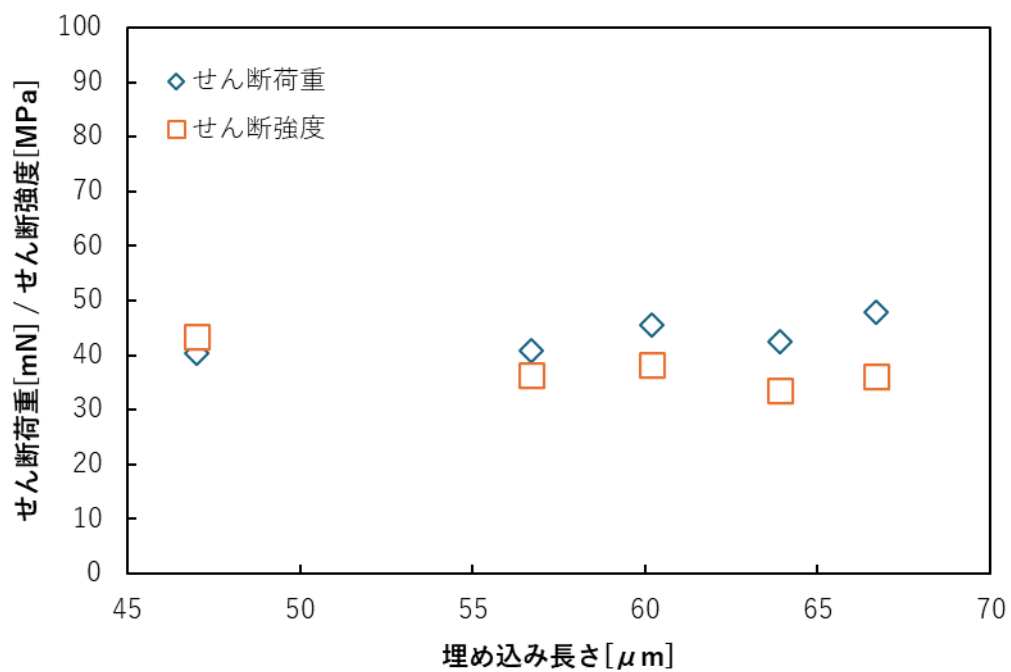


図 3-2-15 熱分解法 rCF-PPS のマイクロドロップレット法試験結果

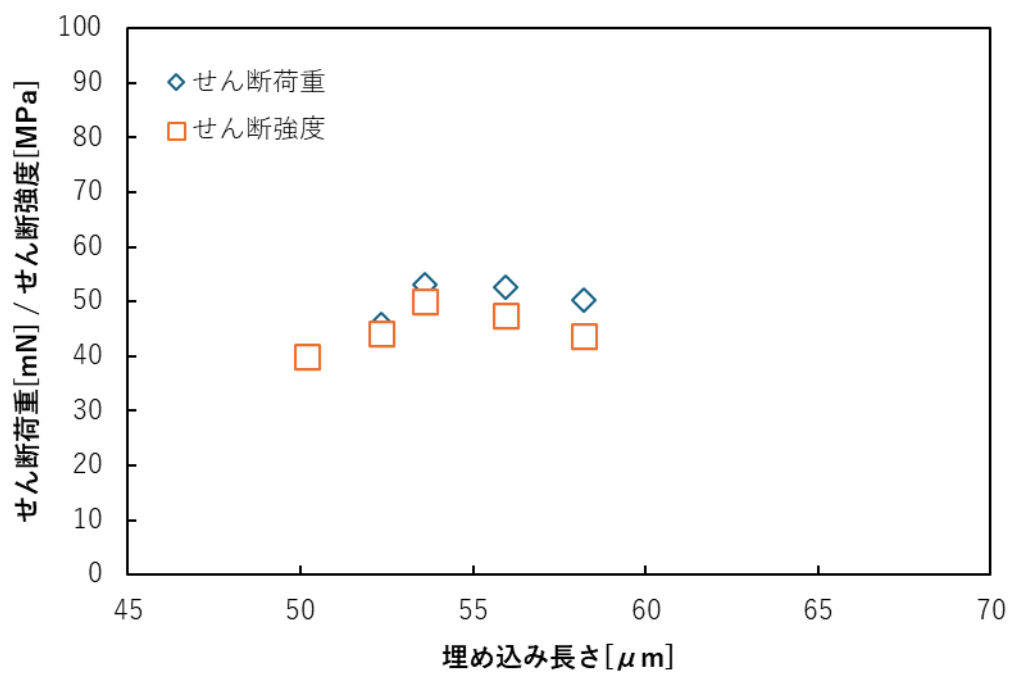


図 3-2-16 vCF-PPS のマイクロドロップレット法試験結果

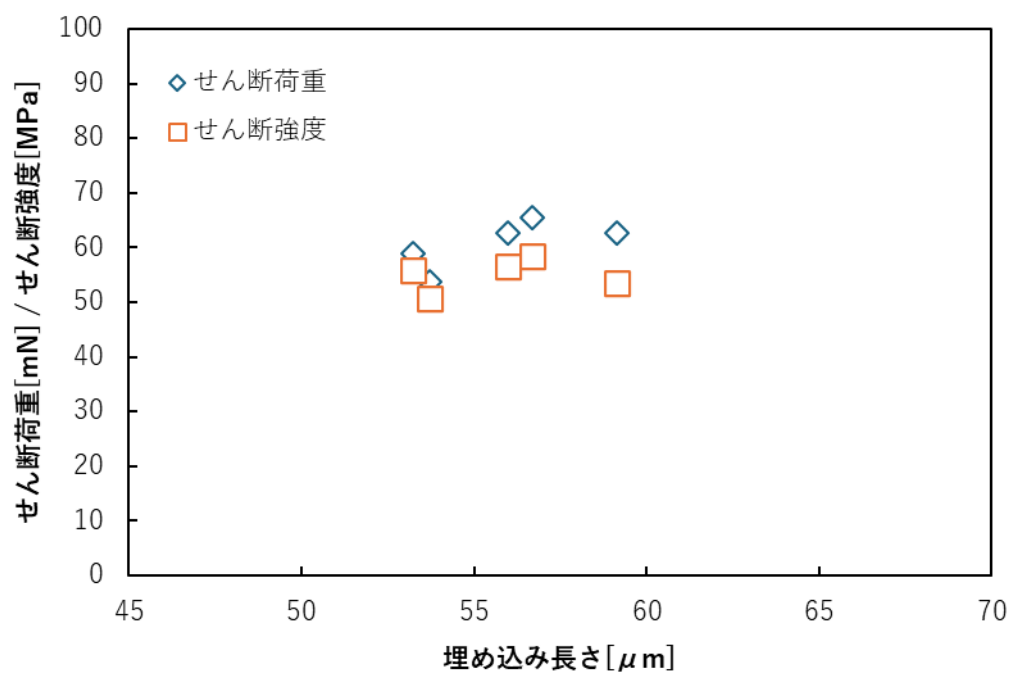


図 3-2-17 NMP 法 rCF-PPS のマイクロドロップレット法試験結果

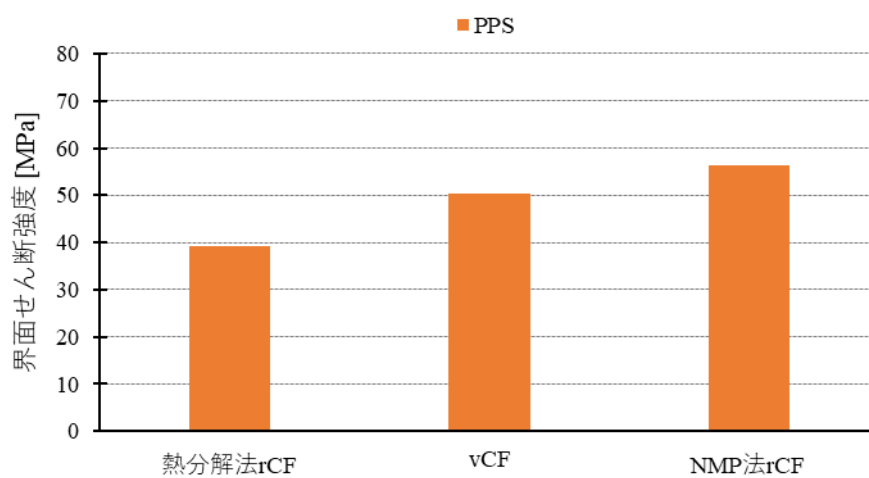


図 3-2-18 PPS に対するマイクロドロップレット法試験結果比較

### 3.3 rCF の機能化

#### 3.3.1 rCF のサイジング処理(束化)

リサイクル炭素繊維(rCF)は綿状で得られることが多いものの、そのままでは繊維が絡みやすく、フィーダーや混練装置への投入時にブリッジや詰まりが生じ、安定供給が困難になるという課題を抱えている。連続プロセスへの適用を考える上では、フィード性を十分に確保することが必須であり、そのためには綿状 rCF を適切な形状に整える前処理が重要となる。本検討では、rCF を束化あるいは粒状に造粒変換することでフィード性の改善を図ることを目的とし、昨年度から複数の装置を用いた処理を比較してきた。

令和6年度はまずヘンシェルミキサーを使用し、綿状 rCF に対して高速回転羽根による強い衝撃とせん断を付与することで束化を試みた。ヘンシェルミキサーは羽根が原料を容器壁面に押し付けながら攪拌する構造を持ち、強い流動による繊維の集束を期待して選定したものである。しかし、得られた試作物は繊維が過度に細長くまとまる傾向が顕著であり、全体として針状の集合体が多く発生した。結果的にフィーダー投入時の流動性が悪化し、フィード性の改善には至らなかった。



図 3-3-1 ヘンシェルミキサー使用時の束形状

この結果を踏まえ、令和7年度はヘンシェルミキサーとは異なる流動特性を持つ装置を用いることで、より適した束化形態が得られないかを検討した。その一つとしてバランスグラルを用いた処理を実施した。バランスグラルは比較的穏やかな搬送流と均一混合を特徴とし、繊維への局所的な衝撃を抑えながら束化が行える可能性があると考えられた。しかし、実際に得られた試作物は、ヘンシェルミキサーよりも均一性は向上したものの、依然として針状繊維が多く残存しており、フィード性についても決定的な改善には繋がらなかった。機械的処理のみで針状化を抑えながらまとまりのある束形状を形成することは容易ではないことが改めて確認された。

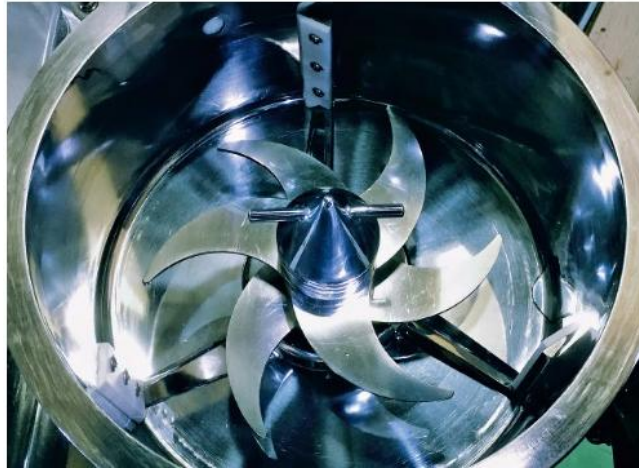


図 3-3-2 バランスگران装置内部構造



図 3-3-3 バランスگران使用時の rCF 束外観

次に束化とは異なるアプローチとして造粒化の可能性を検討するため、ディスクペレッターを用いた処理も実施した。ディスクペレッターは二枚のディスクの間で原料に圧縮・押し出し力を加えることで、比較的均一な粒状物を得られる装置である。この処理により得られた試作物は確かに粒状形態を示し、形状としてはフィード性の向上が期待できる結果であった。しかし、押圧による繊維折損が大きく、炭素繊維としての長繊維性が大幅に損なわれていることが確認された。形状制御という観点では有効である一方、用途によっては繊維性能の低下が問題となる可能性が残る結果であった。



図 3-3-4 ディスクペレッター装置内部構造



図 3-3-5 ディスクペレッター使用時の rCF 束外観



より穏やかな動作を特徴とするレディゲミキサーによる処理も行った。レディゲミキサーは低速回転翼によって原料を混合する装置であり、繊維に大きな負荷を与えることなく、自然な集束が得られる可能性があると考えられた。しかし、得られた試作物は粒状と針状が混在する結果となり、形状のばらつきが大きい点が課題として顕在化した。繊維折損は比較的少ないものの、狙いとする均一で安定した束化には至らず、再現性の高いフィード性改善に繋がる形状を得ることは難しいと判断された。



図 3-3-6 レディゲミキサー装置内部構造



図 3-3-7 レディゲミキサー使用時の rCF 束外観



### 3.3.2 rCF の湿式不織布化

#### 3.3.2.1 rCF の水への分散性因子評価

湿式不織布製造では、炭素繊維が水中でどの程度均一に分散するかが最も重要な工程要件となる。特に rCF は回収方法により表面状態が大きく異なるため、水への分散挙動には繊維ごとに大きな差が生じる。水中に投入した際、一度凝集すると再分散が極めて困難になる rCF も存在し、こうした繊維は抄紙スラリーの形成を著しく阻害する。そこで本検討では、rCF の水分散性を支配する因子について評価を行った。なお評価には 3mm にカットした rCF-JY を用いた。

まず分散性評価時の液比について検討した。rCF 重量に対する液比を 20 倍、40 倍、100 倍すると液比が増加するに伴い塊状物の形成が促進されることが示唆された。これは液比を増加させることにより水中における繊維の自由度が増加するため繊維同士の交絡が促進されたことに起因していると考えられる。実際の湿式不織布作成時は生産安定性などから液比が高いことが想定され、高い液比における塊状物減少についてさらに検討を進めた。



図 3-3-8 rCF の水に対する分散性(液比依存性)

次に攪拌時の液流について検討した。通常のメカニカルスターラーによる攪拌は一方向の層流であり繊維同士の凝集が進行しやすいと考えられる。そこで液流を乱す乱流条件で rCF の水に対する分散性を評価した。その結果、塊状物の形成が僅かに低減されたものの現行条件では均一な分散体を得るには不十分であると判断し、その他の分散性改良方法についてさらに検討した。

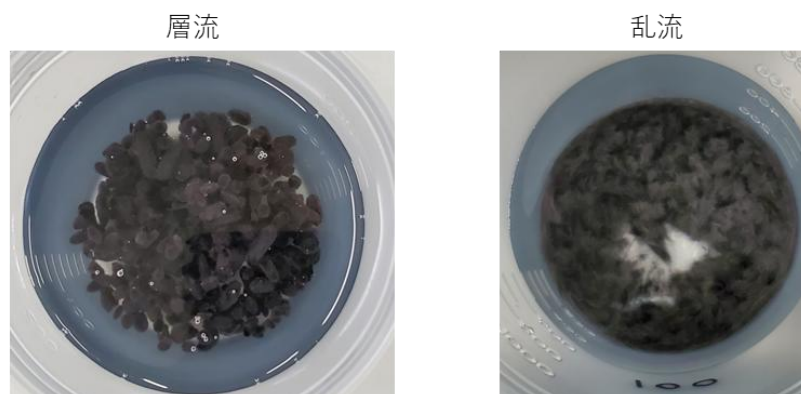


図 3-3-9 rCF の水に対する分散性(液流依存性)

次に分散剤添加による分散性向上を検討した。分散剤は適切に選択すれば繊維表面を改質することで分散媒中での分散性を向上させ、繊維の再凝集を抑制する効果を発現する一方、対象繊維との組み合わせが適切でない場合にはほとんど分散性向上効果は得られない。そこで、最適な分散剤を把握する目的で複数種の分散剤について検討し分散性を評価した。その結果、検討した分散剤のうち分散剤 A が分散性向上に特に効果があることが明らかとなった。

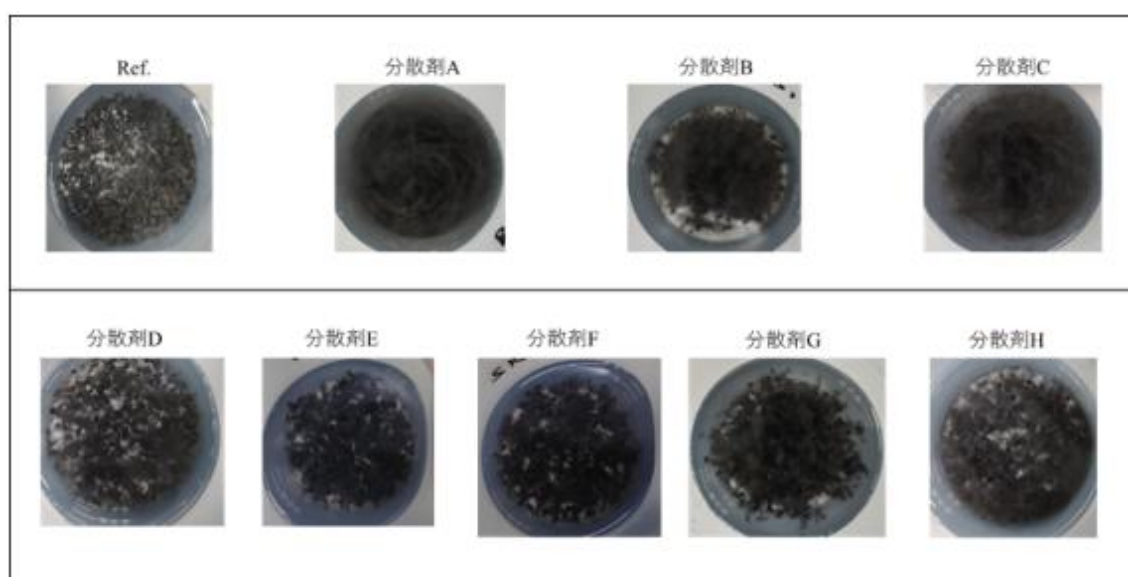


図 3-3-10 rCF の水に対する分散性(分散剤の影響)

次に増粘剤添加による繊維同士の凝集抑制を検討した。その結果、増粘剤 a を使用することで塊状体のサイズが大きく低減することが明らかとなった。

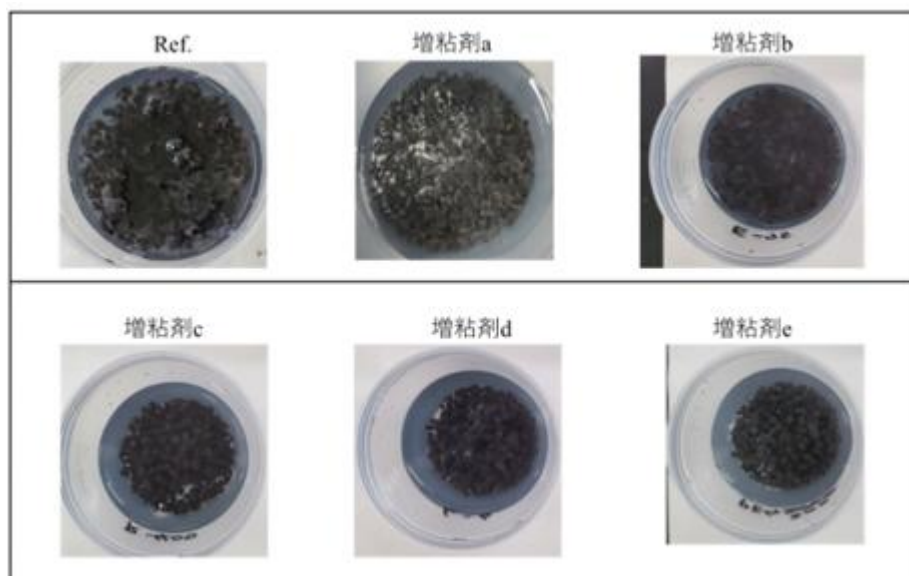


図 3-3-11 rCF の水に対する分散性(増粘剤の影響)

上記結果より、分散剤 A と増粘剤 a の組み合わせが rCF の分散性向上に特に有効な添加剤であると判断し次章の湿式不織布検討の事前検討時の条件とした。

### 3.3.2.2 湿式不織布試作

湿式不織布への適用性を確認するため、NMP 法で回収した rCF (繊維長 3 mm および 6 mm) を用い実際の湿式不織布化を行った。その結果、繊維長および製造条件の違いにより、得られる不織布の外観や繊維分散状態に明確な差が生じることが確認された。

まず、繊維長 3 mm の rCF を用いて製造した不織布では、局所的な凝集や偏りはほとんど認められず、細かな繊維が均一に絡み合う滑らかなシート構造が確認できた。これは、事前に評価したように、NMP 法 rCF は樹脂残渣が少なく、適切な前処理によって水分散性を確保しやすい特徴を持っていることが製造結果にも反映されたものであると考えられる。

一方、繊維長 6 mm の rCF を用いた試作では、均一に分散した部分と束状に収束した CF 部分を有する不均一な和紙調の不織布が形成された。長繊維特有のしなやかさによって、繊維同士が部分的に絡み合い、短繊維では得られない有機的で自然なテクスチャが現れた。特に長繊維がランダム方向に走る様子が明確に視認でき、意匠性に富む素材感が得られた点が特徴である。このため、滑らかさよりも“繊維の走り”や“風合い”を活かした外観が求められる用途において優位性を持つことが示唆された。

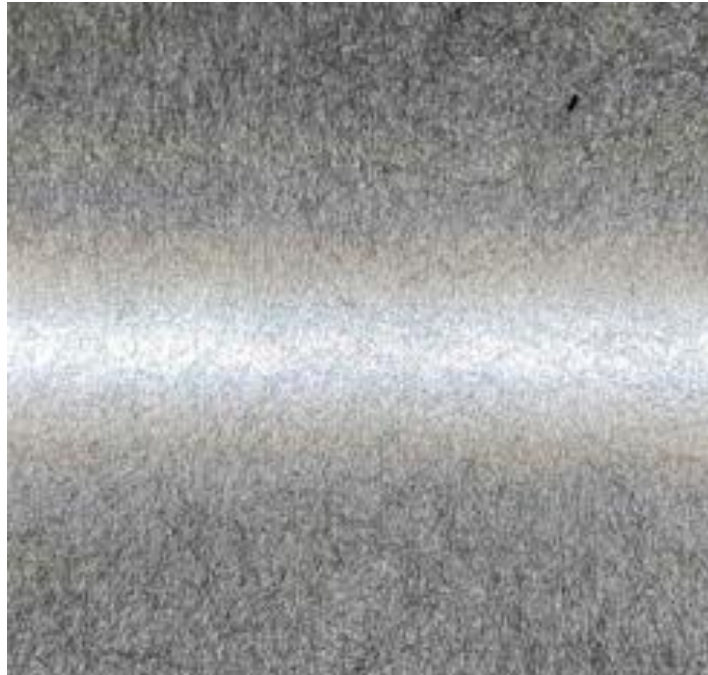


図 3-3-12 3mmrCF を使用した抄紙外観

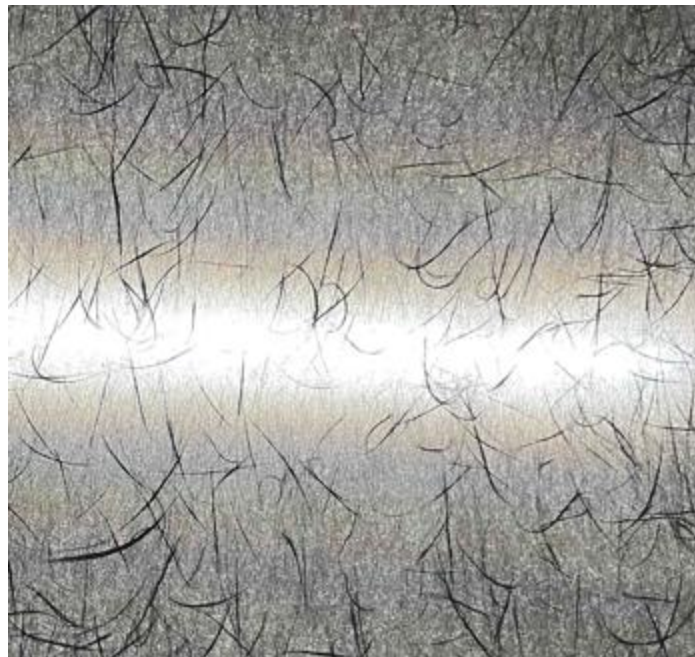


図 3-3-13 6mmrCF を使用した抄紙外観



次に繊維長 12 mm および 24 mm の長繊維 rCF について湿式不織布への適用評価を行った。試作の結果、長繊維 rCF を用いることで、目付 120 g/m<sup>2</sup>の厚みを持つ湿式不織布を成形できることが明らかとなった。繊維長 12 mm の rCF を用いた不織布では、抄紙工程中の水中分散性が良好であり、繊維が適度に絡み合いながらも層状に堆積していくことで、高目付に対応したシート構造が形成された。短繊維を使用した場合には、繊維の絡みが弱く、厚さ方向への積層が均一に進みにくいという課題があったが、12 mm の長繊維ではその課題が大幅に改善され、厚物シートの形成が可能となった。

さらに、繊維長 24 mm の rCF を用いた試作では、12 mm 以上に厚みの出やすい挙動が確認され、繊維の長さが厚目付材料の形成に大きく寄与していることが示された。長繊維が繊維ネットワーク全体の絡み合いを強め、脱水工程においても層構造が維持されやすく、結果的に厚みのある不織布が一体的に成形される傾向が見られた。短繊維では成形途中で構造が崩れやすく、目付の増大に伴ってシートが不安定化することが課題であったが、長繊維を用いることで高目付域でも形態を保持したまま適用可能であることが示唆された。

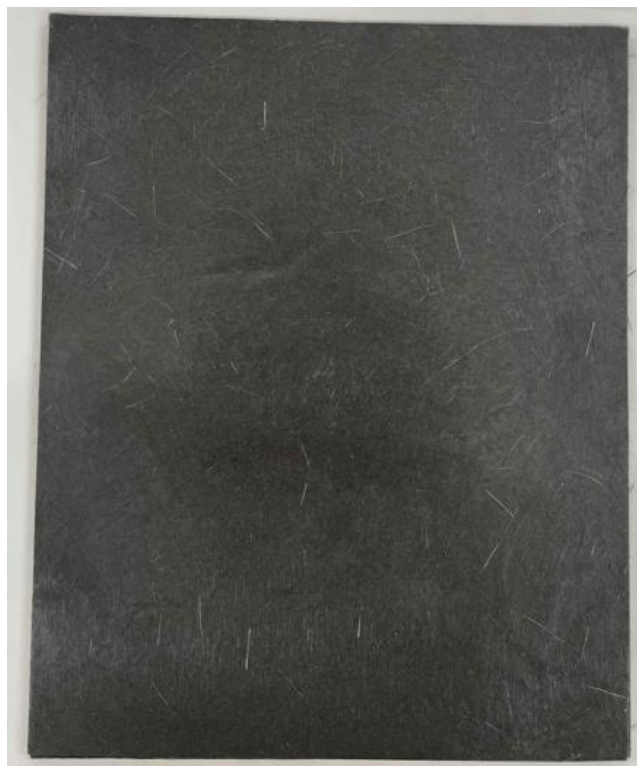


図 3-3-14 12mmrCF を使用した抄紙外観



図 3-3-15 24mmrCF を使用した抄紙外観

上記試作結果より、3 mm や 6 mm といった短繊維長の rCF を用いた場合には薄目付の意匠性を有する不織布を、12 mm や 24 mm といった長繊維長の rCF を用いた場合には厚目付の不織布を試作できた。今後、各不織布の特徴明確化と適用材料の選定を進める。

### 3.3.3 rCF の乾式不織布化

rCF 不織布を用いた CFRP 開発のため、新規溶媒溶解法により得られる rCF の乾式不織布化を検討した。rCF の不織布化は、再委託先にて実施した。

まず本試作では、4 種類の原料(試料#1～#4)を用い、その繊維特性および製造条件による影響を比較検討した。以下に、各試料の特徴と不織布製造性について整理した。なお、本試作で用いた原料は、いずれも東レ製 T800 を用いた航空機向け CFRP 廃材をリサイクルしたものである。また、繊維長は 50 mm、目付は 150 gsm に統一し、各試料間の比較が可能となるよう条件を揃えて評価を行った。

表 3-3-1 比較表1

| 水準          | #1      | #2          | #3          | #4     |
|-------------|---------|-------------|-------------|--------|
| リサイクル方法     | NMP法    | NMP法        | NMP法        | 熱分解法   |
| 分解条件        | 6000L釜  | 200L釜-水準1,2 | 200L釜-水準3,4 | —      |
| サイジング剤      | なし      | なし          | なし          | あり     |
| 強度低下        | <5%     | <5%         | <5%         | 10%    |
| 樹脂残渣        | <0.1%   | 1.35%       | 0.4%        | あり     |
| 糸の交絡度       | 大       | 小           | 小           | 中      |
| 工程適通性       | 不織布得られず | 不織布製造可      | 不織布製造可      | 不織布製造可 |
| 収率          | 0%      | 90%         | 78%         | 80%    |
| 工程適通時の繊維ケバ量 | 多       | 小           | 中           | 中      |

まず、各試料の繊維特性について比較した。#1は繊維同士の交絡度が他試料に比べて大きく、また熱分解法により得られた#4はサイジング剤が残存する点が特徴的である。サイジング剤に関しては、#4のみサイジング剤が付与されているが、後述する工程通過性やケバ発生量に影響した。なお、#4は熱分解法によるリサイクルのため、熱履歴の影響から強度低下が大きい。また、糸の交絡は、リサイクル方法により異なり、交絡度の大きい#1は後工程での飛散やカード巻付きに影響を及ぼした。

次に、不織布製造結果について比較した。交絡度が大きくケバが多い#1は工程途中での繊維の飛散・絡まりが問題となり、シート化が困難であった。一方、#2～#4は概ね工程を通過し、不織布が得られた。工程通過時の繊維ケバ量に関しては、交絡度の大きい#1でケバが多く、工程通過の阻害要因となった。サイズ剤を含む#4は安定した工程通過性を示したものの、ケバ量は中程度であった。

以上の結果をまとめると、本試作の結果、NMP法において#2、#3の製造条件でリサイクルされたrCFが、不織布化における工程通過性・収率の観点から良好な傾向を示した。一方で、交絡度が高くケバが多い#1はシート化が困難であり、今後のリサイクル条件検討が必要と考えられる。また、熱分解法(#4)はサイジング剤残存による繊維同士の結束性の高さから、不織布としての形状保持性は良好であったものの、強度低下率がやや大きい点には留意が必要である。

以上より、本検討によりリサイクル炭素繊維の乾式不織布化における課題として、交絡度の制御、樹脂残渣量の低減、ケバ量管理が工程通過性および収率に強く影響することが明らかとなった。

### 3.4 リサイクル CFRP の開発

#### 3.4.1 リサイクル熱可塑 CFRP の開発

リサイクル炭素繊維 (rCF) を熱可塑性樹脂へ適用する際には、樹脂との界面接着が物性に大きく影響する。特に PPS との複合化では、3.2 章で示唆されたように繊維表面の状態に大きく影響を受ける。そのためどのようなサイジング剤を付与するかによって、成形体の強度・延性・剛性が顕著に変化すると予想され、本検討では複数種類のサイジング剤を施した rCF を用いて、PPS とのコンパウンド後の力学特性を詳細に比較した。

評価では、サイジング剤の rCF に加え、エポキシ系、ウレタン系、ポリイミド系、カップリング剤系のサイジング剤を施した rCF を、それぞれ rCF 重量が r-CFRP 中で 20wt% となるようにして PPS と混練し、ISO 527-2-5A に準拠した熱可塑 r-CFRP として力学試験を実施した。その結果、複合体の引張強度、引張伸び、曲げ弾性率はいずれもサイジング剤の種類によって異なる挙動を示した。

サイジング剤の rCF では引張強度が 170 MPa に留まり、樹脂界面との接着が十分でないことが示唆された。一方、エポキシ系サイジング剤を施した rCF では引張強度が 192 MPa へ向上し、界面接着が強化される傾向が示された。さらにウレタン系サイジング剤では 204 MPa と最も高い値を示し、引張伸びや曲げ弾性率についても他の系統と比べて良好なバランスを示した。これに対し、ポリイミド系は 176 MPa とやや低下したが、カップリング剤系では 204 MPa と高い強度が得られ、サイジングの化学構造が PPS との相溶性や界面強度に直接寄与していることが明確となった。

これらの試験結果から、サイジング剤を適切に選択することで、リサイクル CF であっても熱可塑 CFRP として十分な力学特性を発現させることが可能であることが示された。特にウレタン系やカップリング剤系のサイジング剤は、界面接着の促進を通じて複合材の物性向上に顕著な効果を有していることが確認され、本検討においても最も高い性能を示した。

表 3-4-1 熱可塑 r-CFRP の力学物性 (rCF 割合: 20%)

| CF 種<br>(Sz 剤種) | リサイクル CF<br>(サイジング剤) | リサイクル CF<br>(エポキシ系) | リサイクル CF<br>(ウレタン系) | リサイクル CF<br>(ポリイミド系) | リサイクル CF<br>(カップリング剤) |
|-----------------|----------------------|---------------------|---------------------|----------------------|-----------------------|
| 引張強度 (MPa)      | 170                  | 192                 | 204                 | 176                  | 204                   |
| 引張伸び (%)        | 2.0                  | 2.5                 | 2.6                 | 2.2                  | 2.7                   |
| 曲げ弾性率<br>(GPa)  | 18.1                 | 18.9                | 19.1                | 17.8                 | 18.1                  |

次に、それぞれのサイジング剤が PPS との界面接着にどのように寄与しているかを明らかにするため、プッシュアウト試験により界面せん断強度 (IFSS) を定量的に評価し、前述の複合材物性の序列と照らし合わせて解析を行った。

プッシュアウト試験の結果、サイジング剤 rCF では界面せん断強度が最も低く、PPS 樹脂との界面接着が十分に形成されていないことが示された。これに対し、エポキシ系、ウレタン系、ポリイミド系の順に界面強度は向上し、特にカップリング剤処理を施した rCF では界面強度が最も高い値



を示した。カップリング剤は PPS との相互作用を形成しやすく、また CF 表面との結合性も高いことから、樹脂と繊維の界面における化学的架橋が強固に働いたと考えられる。

得られた界面せん断強度の序列は、PPS コンパウンドとしての引張強度・伸度・曲げ弾性率の序列と比較的一致しており、複合材の力学特性が界面強度に依存していることが明確に示された。特にカップリング剤系サイジングの採用により、界面接着強度はサイジングレスの約 3 割程度向上し、この界面強化が複合材全体の強度向上に直接反映されていた。

これらの結果から、PPS と rCF の複合化において力学物性に差が生じた主要因は、サイジング剤の化学構造と PPS 樹脂との親和性の違いに起因する界面接着力の差であることが分かった。すなわち、PPS 側と CF 側の両方に化学的に結合し得る官能基を有するサイジング剤ほど界面強度が高くなり、その結果として複合材としての引張特性や曲げ特性が向上するという関係性が示された。

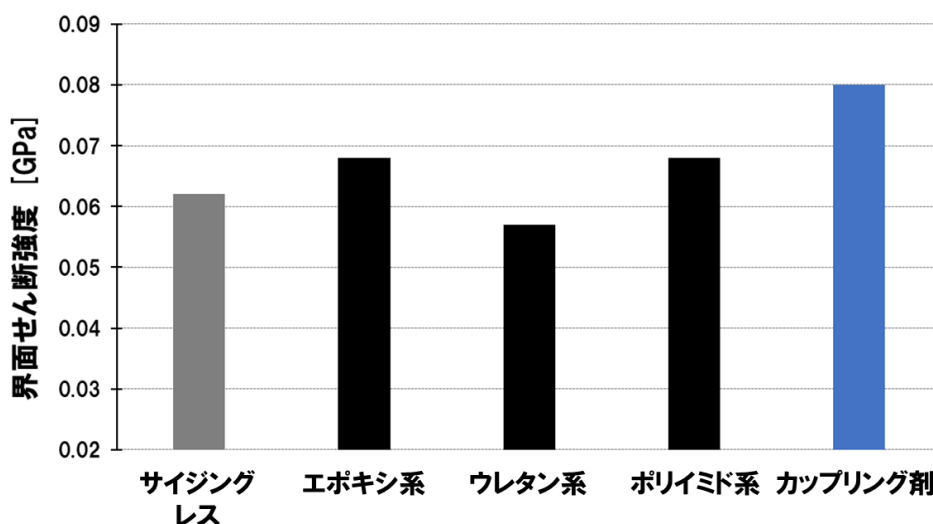


図 3-4-1 熱可塑 r-CFRP のプッシュアウト試験結果

#### 3.4.2 リサイクル熱硬化 CFRP の開発

rCF 乾式不織布を用いて CFRP を作製し、その曲げ強度を評価した。なお、東レ(株)製トレカ® T800 相当の CF を使用した航空機廃材から NMP 法、または熱分解法にて得られたリサイクル炭素繊維を原料とした。乾式不織布には、エポキシ樹脂(Rc40 wt%)が均一に含浸するように調製した後、プレス成形機を用いて CFRP 化を行った。成形条件は、硬化温度 140℃、硬化時間 30 分、プレス圧 15 MPa とした。

曲げ強度試験の結果、NMP 法 rCF を用いた CFRP は 496 MPa の曲げ強度を示し、対照として評価した熱分解法 rCF を用いた CFRP の曲げ強度 372 MPa 対比、25%高い値を示した。この結果から、乾式不織布を CFRP 化した際、熱分解法 rCF に比べて、NMP 法 rCF は高い曲げ物性は発現することがわかった。

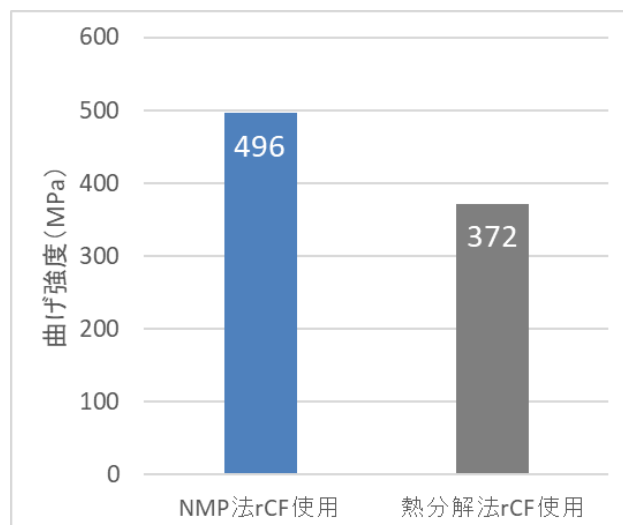


図 3-4-2 曲げ強度比較

曲げ強度差の要因を考察するため、コンポジット中に含まれる炭素繊維の繊維長の違いが影響している可能性について着目した。推定原因の確認として、乾式不織布そのものを 16 MPa の圧力でプレス加工し、加工後に発生する粉末量を比較した。

比較の結果、粉末がほとんど発生しない NMP 法 rCF の不織布に対し、熱分解法ではプレス後に明確な粉末残渣が確認された。これは、繊維の交絡状態や繊維強度の影響により、プレス時に繊維が破断しやすいことを示唆している。

この観察結果から、熱分解法の不織布では、プレス工程において繊維の折損が生じやすく、最終的なコンポジット特性(曲げ強度など)の低下要因の一つと想定される。

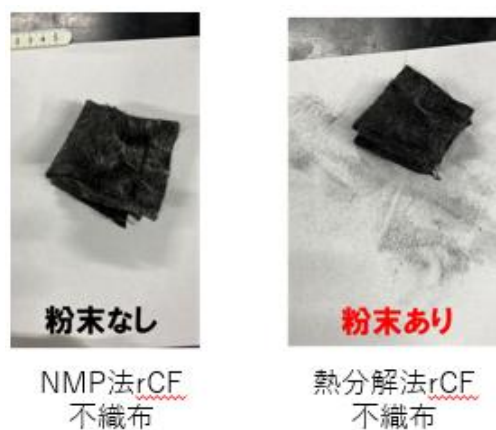


図 3-4-3 不織布のみをプレス(16MPa)加圧した後の粉末量比較

本研究では、乾式不織布の CFRP 化における機械特性差の要因として、コンポジット中に含まれる炭素繊維の繊維長が影響している可能性が示唆された。この仮説を検証するため、今後は以下の二つのアプローチにより繊維長評価を進める。

1. コンポジット中の繊維長を X 線 CT により非破壊で測定する。
2. コンポジットを焼成(樹脂除去)し、得られた繊維を回収して繊維長を測定する。

これらの取り組みにより、乾式不織布から CFRP 化した際の機械特性発現メカニズムの解明と、より高性能な rCF 不織布の設計指針確立を目指す。

一方で、当初は溶媒分解法 rCF と熱分解法 rCF の CFRP について、炭素繊維と樹脂の界面接着性が異なる可能性を疑い、SEM 観察により界面状態を比較した。しかし、本検討で得られた SEM 画像を詳細に確認した結果、両者の観察像は同一であることが判明し、界面状態に明確な差は確認されなかった。SEM 観察では、いずれの試料においても繊維界面に樹脂残渣が残留しておらず、清浄な界面が得られた。

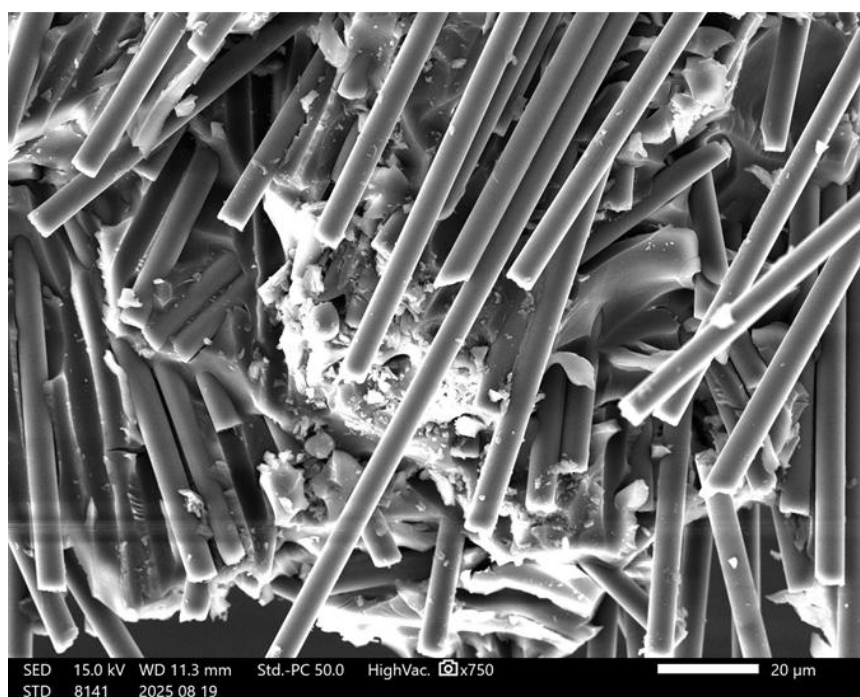


図 3-4-3 NMP 法 rCF を用いた CFRP の SEM 画像

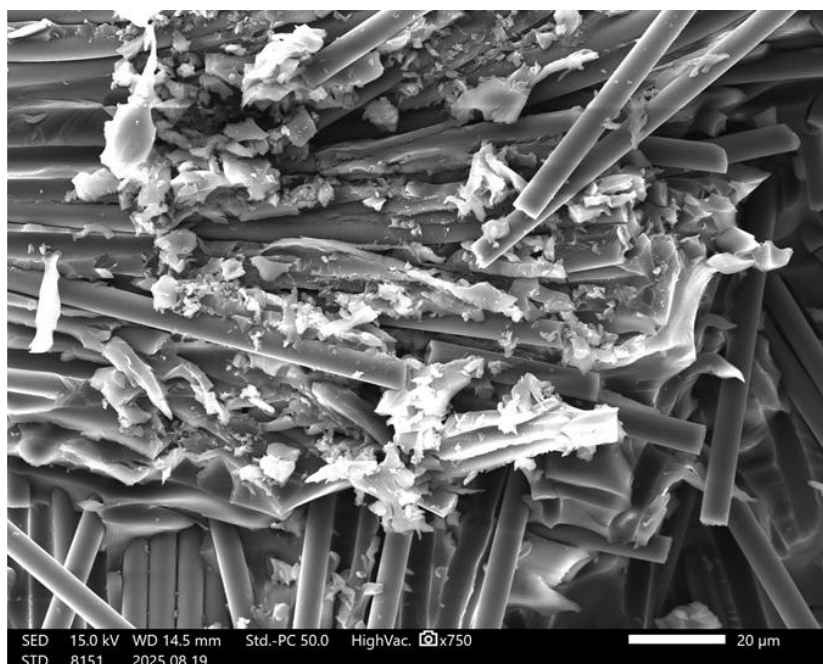


図 3-4-4 熱分解法 rCF を用いた CFRP の SEM 画像

次に、湿式不織布のプリプレグ化を検討した。図 3-3-12 に示した繊維長 3mm の rCF を用いた目付 20 g/m<sup>2</sup> の湿式不織布にエポキシ樹脂を含浸したプリプレグを作成した。得られた湿式不織布プリプレグを下図に示した。なお、白い部分は離型紙である。今後、機械特性の把握や加工法の検討を進める。



図 3-4-5 湿式不織布プリプレグの外観

### 3.4.3 用途探索

リサイクル炭素繊維の各種用途探索を実施した。中でも、本年は主として、リサイクル炭素繊維の製造量が少量から製造することが可能な炭素繊維不織布の形態での用途探索を実施した。

まず乾式不織布においては、上記のように得られた物性を軸に、現状バージン炭素繊維複合材料を使用している顧客に対しヒアリングを開始した。

次に、湿式不織布においては、NMP 法にて得られた炭素繊維を用いた場合、製造条件によって意匠性を制御することができることが判明し、炭素繊維の機能性(電波遮蔽や熱伝導性など)と和紙の意匠性を兼ね備えた新素材として、幅広い分野への顧客ワークを開始した。

その結果、今回開発した和紙調炭素繊維不織布は、2025 年 10 月 30 日(木)～11 月 9 日(日)にて東京ビッグサイトで開催された Japan Mobility Show に出展中のマツダ株式会社のビジョンモデルの内装や外装部品に搭載された。



図 3-4-6 Japan Mobility Show2025 マツダ株式会社ブース内写真





図 3-4-7 リサイクル炭素繊維不織布の使用部分

また、建材分野顧客へのワークを見据えリサイクル炭素繊維不織布の光透過性を生かしたテーブルを作成し、従来とは異なる顧客群へのアプローチも開始した。



図 3-4-8 リサイクル炭素繊維不織布を使用したテーブル

さらに、Nanotech 展(2026/1/28～30、東京ビッグサイト)にて、更なる新規顧客開拓を検討した。航空機部材由来の廃材からリサイクルしたストーリー性を訴求できるリサイクル炭素繊維を PR する

とともに、より身近な“魅せる”炭素繊維として知ってもらおうべく様々なアイテムを作成し展示した。



#### 4. エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換に関する技術開発

本項では、新規溶媒溶解法により得られるエポキシ樹脂分解物のフェノール類やアニリン類など特定化合物への選択的変換技術の開発、およびこれにより得られるフェノール類、あるいはアニリン類等をさらに有用化合物に変換する技術を検討した。詳細は後述するが、本検討により得られるフェノール類としては、ビスフェノール A、フェノール、イソプロピルフェノールがあげられる。ビスフェノール A とフェノールは樹脂原料などとして利用されている。イソプロピルフェノールは、さらなる有用化合物への変換を検討した。また、本検討により得られるアニリン類としては、DDS、メチレンジアニリンがあげられる。DDS はそのままエポキシ樹脂の硬化剤として、メチレンジアニリンはエポキシ樹脂原料の前駆体として利用されている。以下の図に示すように、従来の熱分解法では、CFRP を構成するマトリックス樹脂は加熱により  $\text{CO}_2$  となり、大気放出される。一方、溶媒分解法では、樹脂は混合物の樹脂分解物となるが、有効利用手段がない場合、通常廃棄(焼却処分)され、 $\text{CO}_2$  となることが想定される。ここで、この樹脂分解物の有価物変換が可能となった場合、廃棄される樹脂分解物を前述のような有価物として利用可能となるため、スキーム全体としてさらなる  $\text{CO}_2$  排出削減が期待でき検討を進めた。

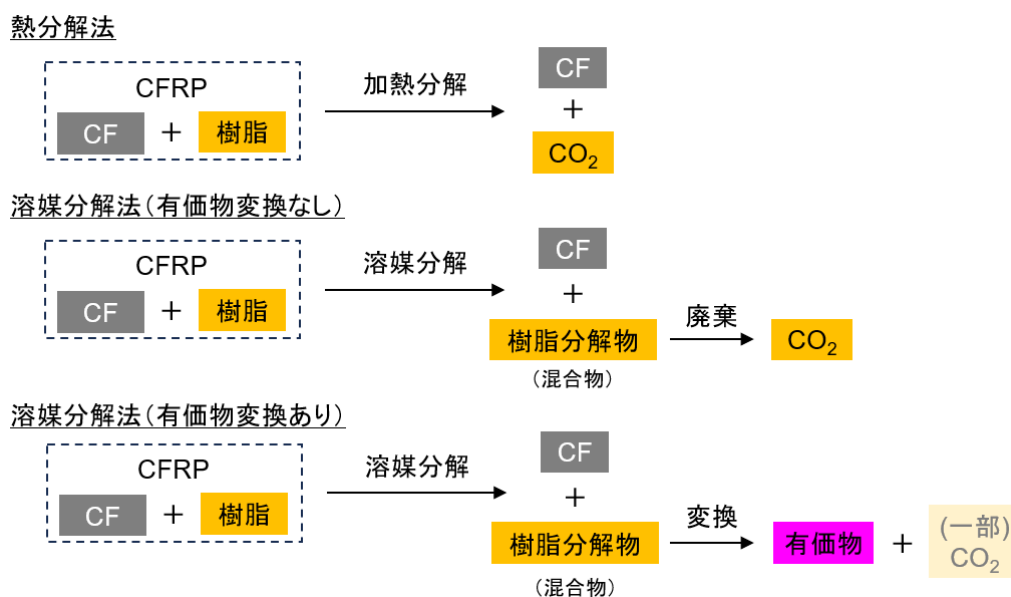


図 4-1-1 樹脂分解物の有価物変換イメージ

##### 4.1 エポキシ樹脂分解物の分析

エポキシ樹脂分解物の高選択的な特定化合物変換に向けて、樹脂分解物の分析を実施した。まずは、解析単純化のため、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂を DICY で硬化したエポキシ樹脂（ビスフェノール A 型エポキシ樹脂: DICY = 100:6.5 (重量比)) を作成し、これを 250℃1 時間条件で分解したエポキシ樹脂分解物（以降 BisA/DICY 系分解物とも表記する）、TGDDM を DDS で効果したエポキシ樹脂（ビスフェノール A 型エポキシ樹脂: DICY = 100:54 (重量比)) を 250℃2 時間条件で分解したサンプル（以降 TGDDM/DDS 系分解物とも表記する）を用いて、分解物の分析を

行った。

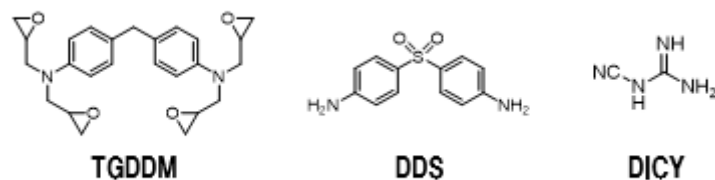


図 4-1-2 エポキシ樹脂原料の構造

まずは、LC-MS で分析した結果を記載した。測定条件と分析結果を以下に記載する。

- HPLC : UltiMate3000 ( Thermo Fisher Scientific )
- Column : Cadenza CD-C18, 2.0 mm×150 mm, 3 μm (Imtakt)

以下に TGDDM/DDS 系分解物の分析結果を示す。

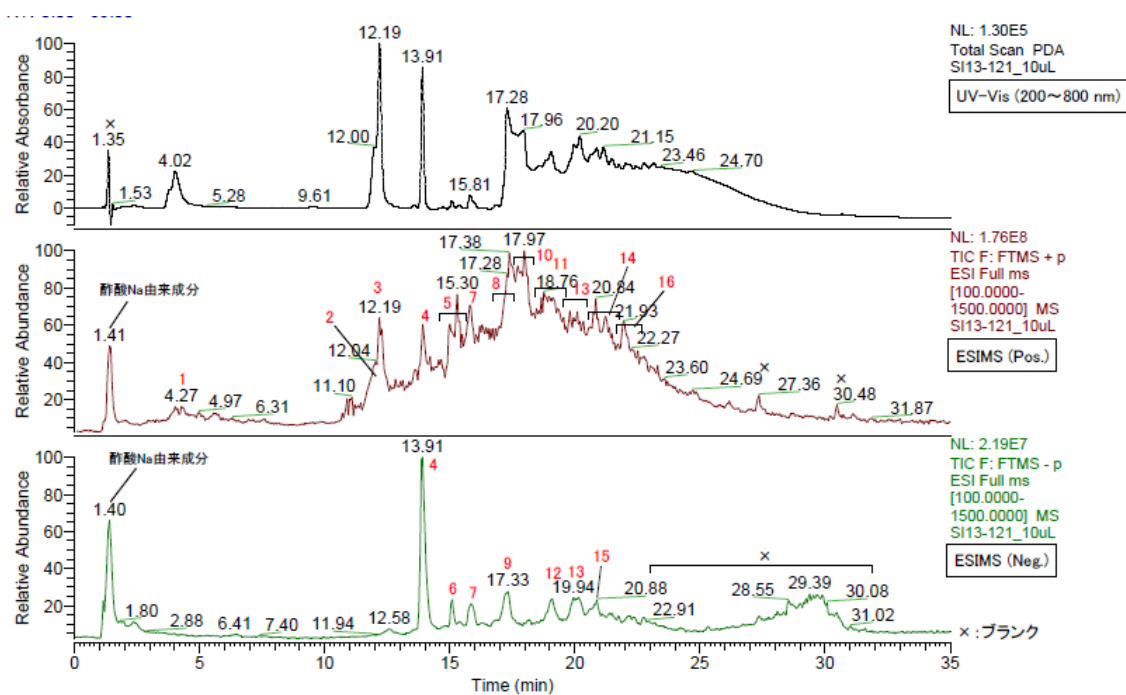


図 4-1-3 TGDDM/DDS 系分解物の LC/UV-Vis クロマトグラム、LC-MS クロマトグラム

次に、各ピークのマスペクトルを分析し、構造を推定した結果を示す。

表 4-1-1 各ピークの推定組成式(ピーク 1～7)

| SI13-121 (TGDDM/DDS 系エポキシ樹脂分解物) |                                                                      |      |
|---------------------------------|----------------------------------------------------------------------|------|
| ピーク No.                         | 推定組成式                                                                | 推定構造 |
| 1                               | $C_5H_9NO$<br>$C_{10}H_{18}N_2O_2$                                   |      |
| 2                               | $C_{11}H_{18}N_2O_2$                                                 |      |
| 3                               | $C_{12}H_{12}N_2O_2S$                                                |      |
| 4                               | $C_{12}H_{11}NO_3S$                                                  |      |
| 5                               | $C_{12}H_{20}N_2O_2$                                                 |      |
| 6                               | $C_{12}H_{10}O_4S$                                                   |      |
| 7                               | $C_{13}H_{22}N_2O_2$<br>$C_{21}H_{29}N_3O_3$<br>$C_{24}H_{35}N_3O_5$ |      |

表 4-1-2 各ピークの推定組成式(ピーク 8～13)

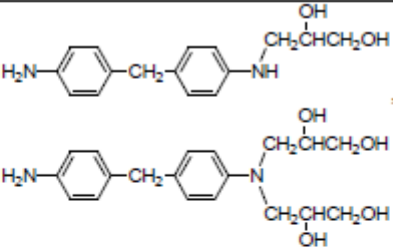
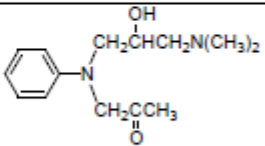
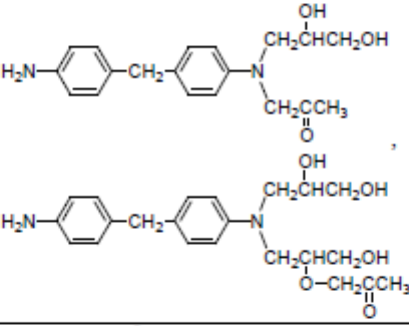
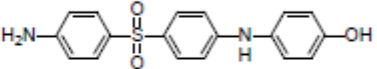
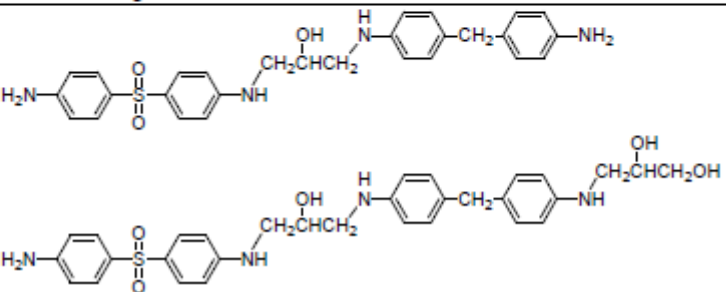
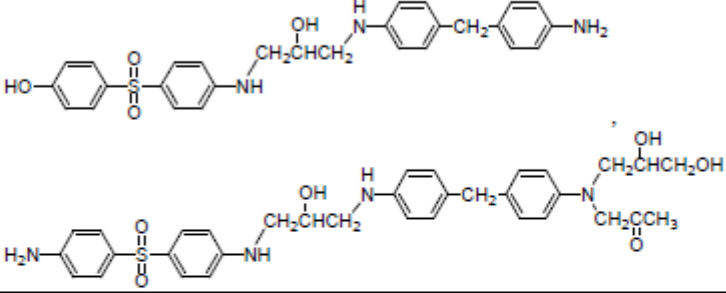
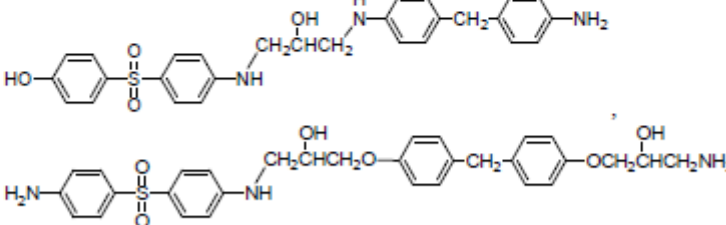
|      |                                                               |                                                                                                                                |
|------|---------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 8, 9 | $C_{16}H_{20}N_2O_2$<br>$C_{19}H_{26}N_2O_4$                  |                                               |
| 10   | $C_{14}H_{22}N_2O_2$                                          |                                               |
| 11   | $C_9H_{15}NO$<br>$C_{19}H_{24}N_2O_3$<br>$C_{22}H_{30}N_2O_5$ | <p><math>C_9H_{15}NO</math> の分子式を有する成分,</p>  |
| 12   | $C_{18}H_{16}N_2O_3S$                                         |                                             |
| 13   | $C_{28}H_{30}N_4O_3S$<br>$C_{31}H_{36}N_4O_5S$                |                                            |

表 4-1-3 各ピークの推定組成式(ピーク 14~16)

|    |                                                                                                                 |                                                                                                                                                                                         |
|----|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 14 | $C_{10}H_{17}NO$<br>$C_{16}H_{14}N_2$<br>$C_{19}H_{20}N_2O_2$<br>$C_{28}H_{29}N_3O_4S$<br>$C_{34}H_{40}N_4O_6S$ | $C_{10}H_{17}NO$ の分子式を有する成分,<br>$C_{16}H_{14}N_2$ の分子式を有する成分,<br>$C_{19}H_{20}N_2O_2$ の分子式を有する成分,<br> |
| 15 | $C_{28}H_{29}N_3O_4S$<br>$C_{31}H_{35}N_3O_6S$                                                                  |                                                                                                      |
| 16 | $C_{10}H_8O_3$<br>$C_{21}H_{25}N_3O$                                                                            | $C_{10}H_8O_3$ の分子式を有する成分,<br>$C_{21}H_{25}N_3O$ の分子式を有する成分                                                                                                                             |

推定組成式からは、硬化剤の DDS や主剤の TGDDM にエポキシ残鎖が結合した構造のフラグメントが確認された。一方で DDS や TGDDM の骨格 (DDS や 4,4'-Methylenedianiline) は保持されているフラグメントが多いことがわかる、すなわち、昨年度までの検討から、BisA 型エポキシ樹脂を主剤に用いた場合は、ビスフェノール骨格が熱で開裂した構造(フェノールと 4-イソプロピルフェノール)が多数観測されたが、そのような熱による開裂は主には生じていないことがわかった。以上から、本反応による分解物は、有価物変換の原料として有効利用できる可能性が示された。

次に、BisA/DICY 系分解物の LC-MS スペクトルを示す。

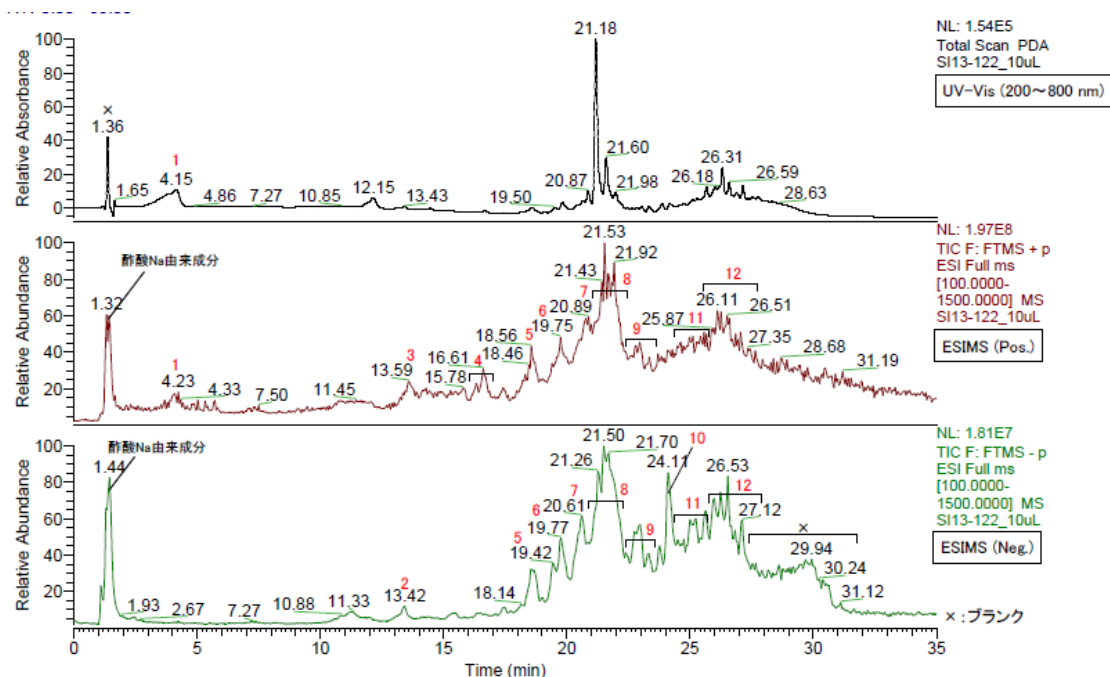


図 4-1-4 BisA/DICY 系分解物の LC/UV-Vis クロマトグラム、LC-MS クロマトグラム

表 4-1-4 各ピークの推定組成式(ピーク 1~4)

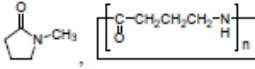
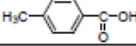
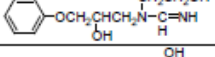
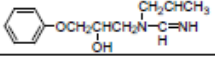
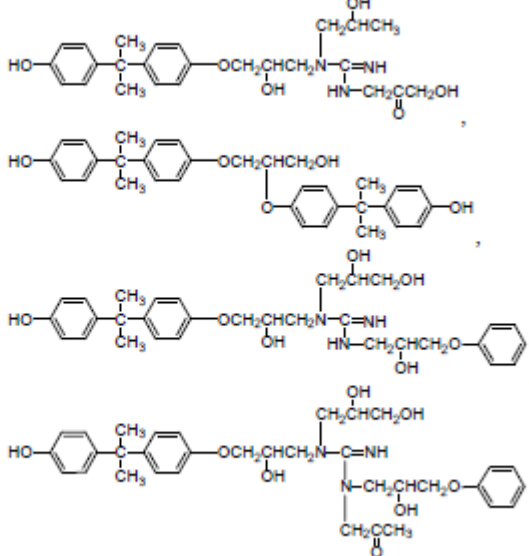
| SI13-122 (BisA/DICY 系エポキシ樹脂分解物) |                                    |                                                                                     |
|---------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|
| ピーク No.                         | 推定組成式                              | 推定構造                                                                                |
| 1                               | $C_5H_9NO$<br>$C_{10}H_{18}N_2O_2$ |  |
| 2                               | $C_8H_8O_2$                        |  |
| 3                               | $C_{12}H_{18}N_2O_3$               |  |
| 4                               | $C_{13}H_{20}N_2O_3$               |  |

表 4-1-5 各ピークの推定組成式(ピーク 5~11)

|    |                                                                |  |
|----|----------------------------------------------------------------|--|
| 5  | $C_{14}H_{17}NO_2$<br>$C_{15}H_{23}NO_4$<br>$C_{17}H_{25}NO_4$ |  |
| 6  | $C_{15}H_{23}NO_4$<br>$C_{17}H_{27}NO_6$<br>$C_{23}H_{31}NO_5$ |  |
| 7  | $C_{21}H_{29}NO_5$                                             |  |
| 8  | $C_{21}H_{27}NO_4$                                             |  |
| 9  | $C_{21}H_{26}O_5$<br>$C_{22}H_{29}NO_4$<br>$C_{24}H_{31}NO_5$  |  |
| 10 | $C_{20}H_{24}O_4$                                              |  |
| 11 | $C_{21}H_{27}NO_4$<br>$C_{27}H_{31}NO_4$<br>$C_{30}H_{37}NO_6$ |  |



表 4-1-6 各ピークの推定組成式(ピーク 12)

|    |                                                                                           |                                                                                    |
|----|-------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|
| 12 | $C_{25}H_{35}N_3O_6$<br>$C_{33}H_{36}O_5$<br>$C_{31}H_{41}N_3O_7$<br>$C_{34}H_{45}N_3O_8$ |  |
|----|-------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|

推定組成式からは、主剤由来のビスフェノール骨格に硬化剤 DICY の反応物やエポキシ樹脂の残鎖が存在するフラグメントや、ビスフェノール骨格が熱で開裂したフラグメントが観測された。本分解物を後工程で、硬化剤 DICY の反応物やエポキシ樹脂の残鎖をさらに分解することで、ビスフェノール A、またはその分解物であるフェノールやイソプロピルフェノールに変換可能であり、有価物変換の原料として使用可能性があることがわかった。

次に、BisA/DICY 系分解物、TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 分析を行った。測定条件と結果を以下に記載する。

- GC: 7890B (Agilent)
- カラム : DB-5 (30 m×0.25 mm i.d., 膜厚 0.25 μm, Agilent)

まず、TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 測定結果を示す。

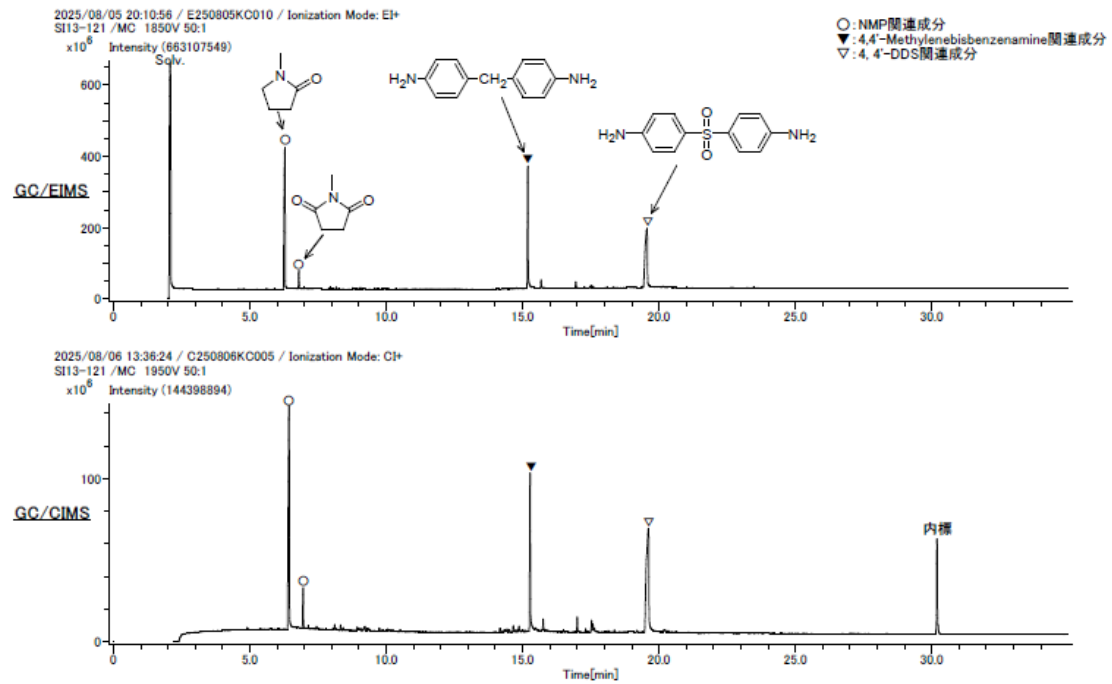


図 4-1-5 TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 測定 TICC クロマトグラム(全体図)

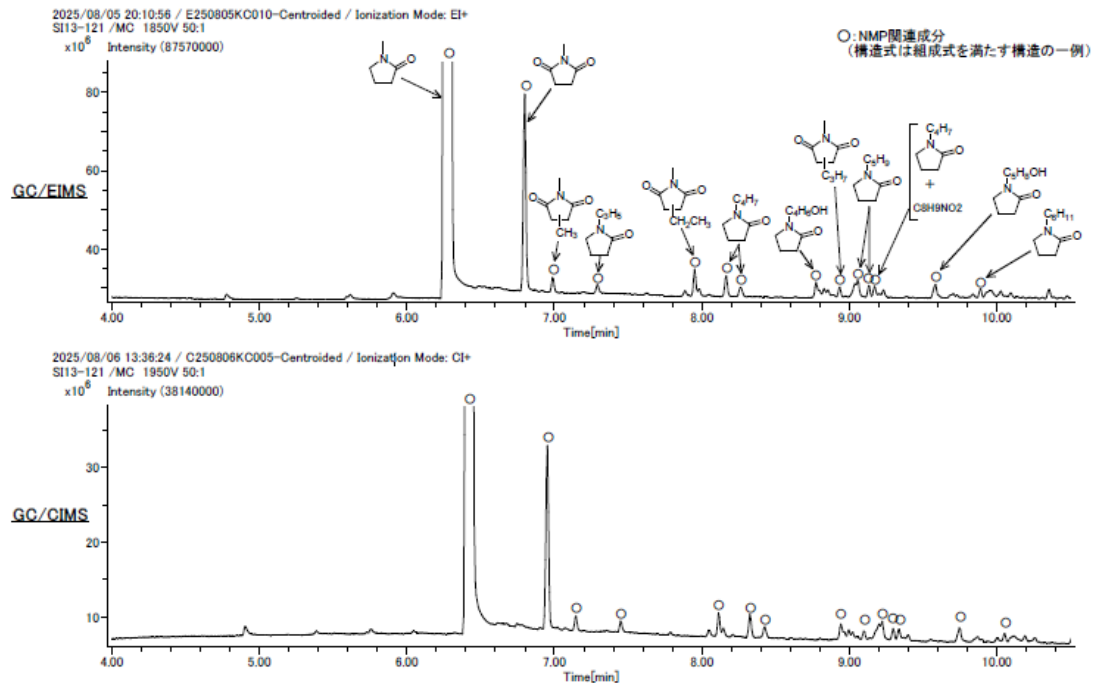


図 4-1-6 TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 測定 TICC クロマトグラム(拡大図1)

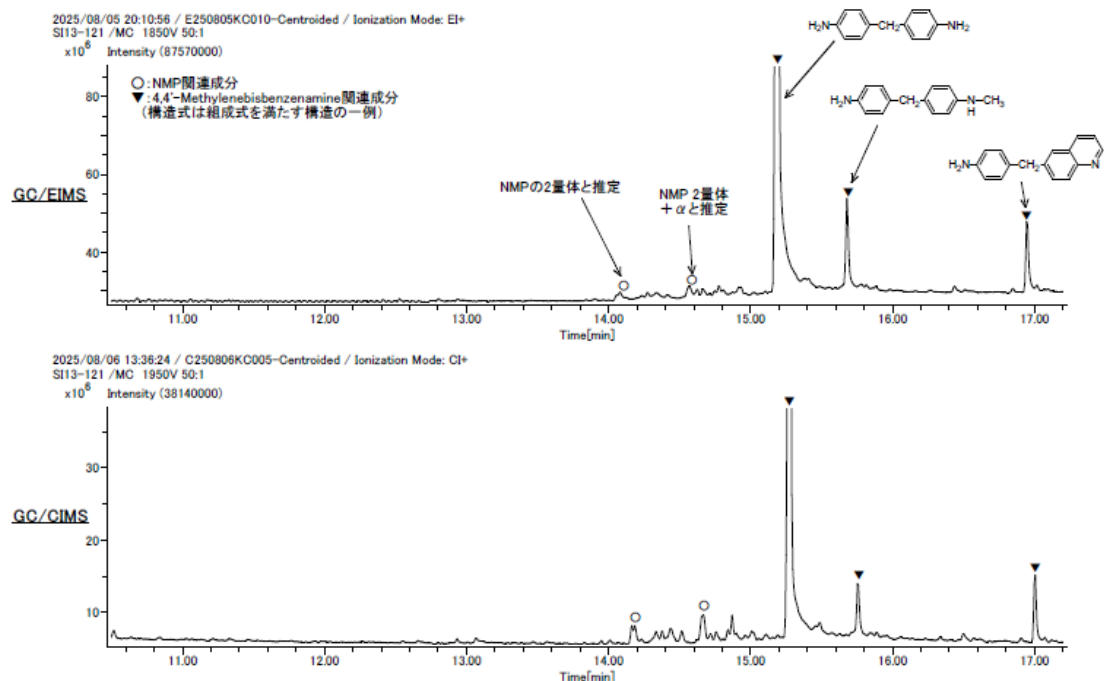


図 4-1-7 TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 測定 TICC クロマトグラム(拡大図2)

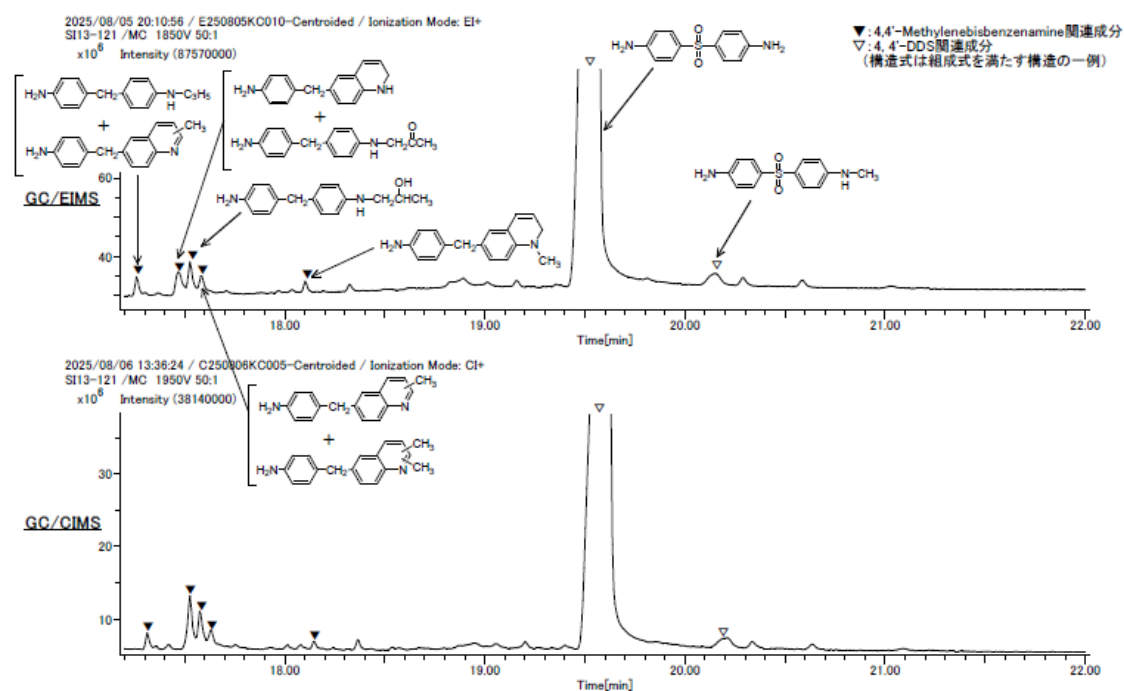


図 4-1-8 TGDDM/DDS 系分解物の GC-MS 測定 TICC クロマトグラム(拡大図3)

通常 LC-MS と比較して GC-MS ではより低分子量の成分の構造が推定できるが、検出された構造からは、溶媒である NMP の変性物に加えて、LC-MS での結果と同じく、硬化剤の DDS や主剤

の TGDDM にエポキシ残鎖が結合した構造のフラグメントが確認された。また、LC-MS の場合と同じく、DDS や TGDDM の骨格 (DDS や 4,4'-Methylenedianiline) は保持されているフラグメントが多く、本反応による分解物は、有価物変換の原料として有効利用できる可能性があると示された。

次に、BisA/DICY 系分解物の GC-MS 測定結果を示す。

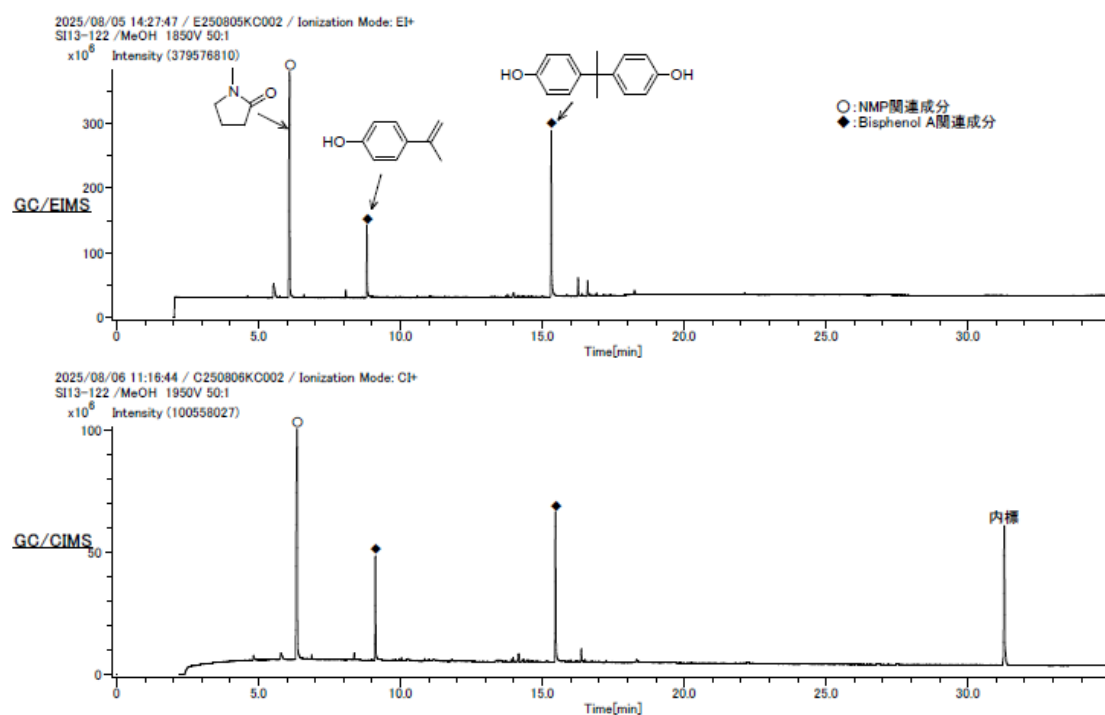


図 4-1-9 BisA/DICY 系分解物の GC-MS 測定 TICC (全体図)

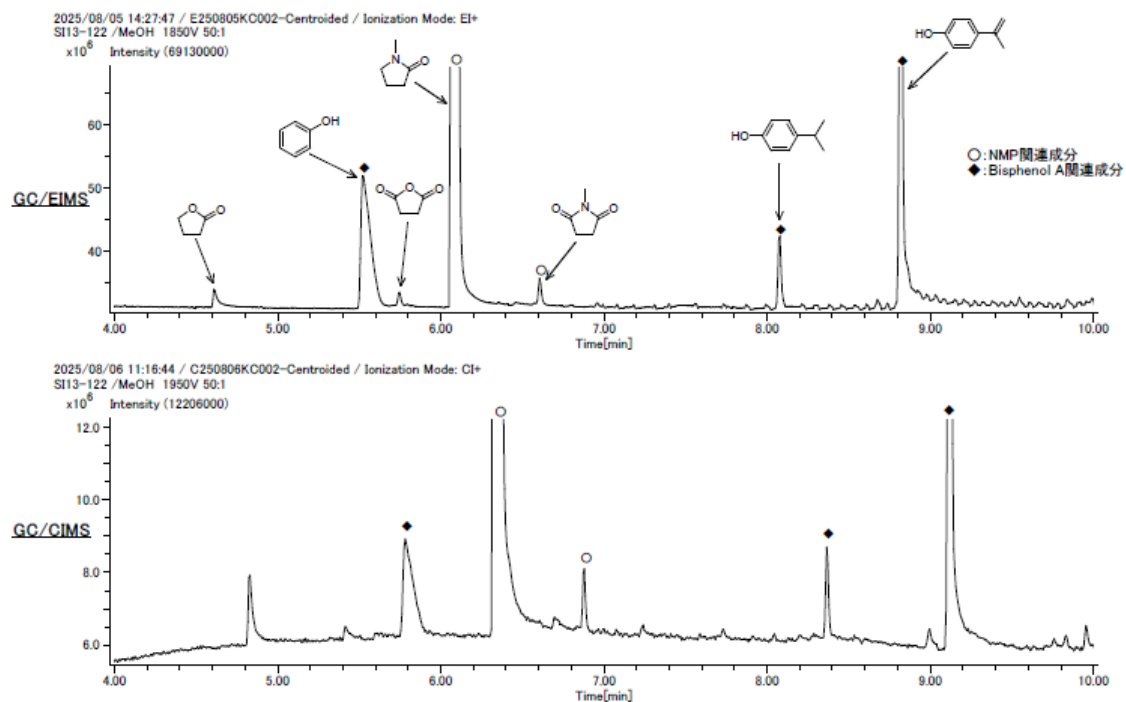


図 4-1-10 BisA/DICY 系分解物の GC-MS 測定 TICC(拡大図1)

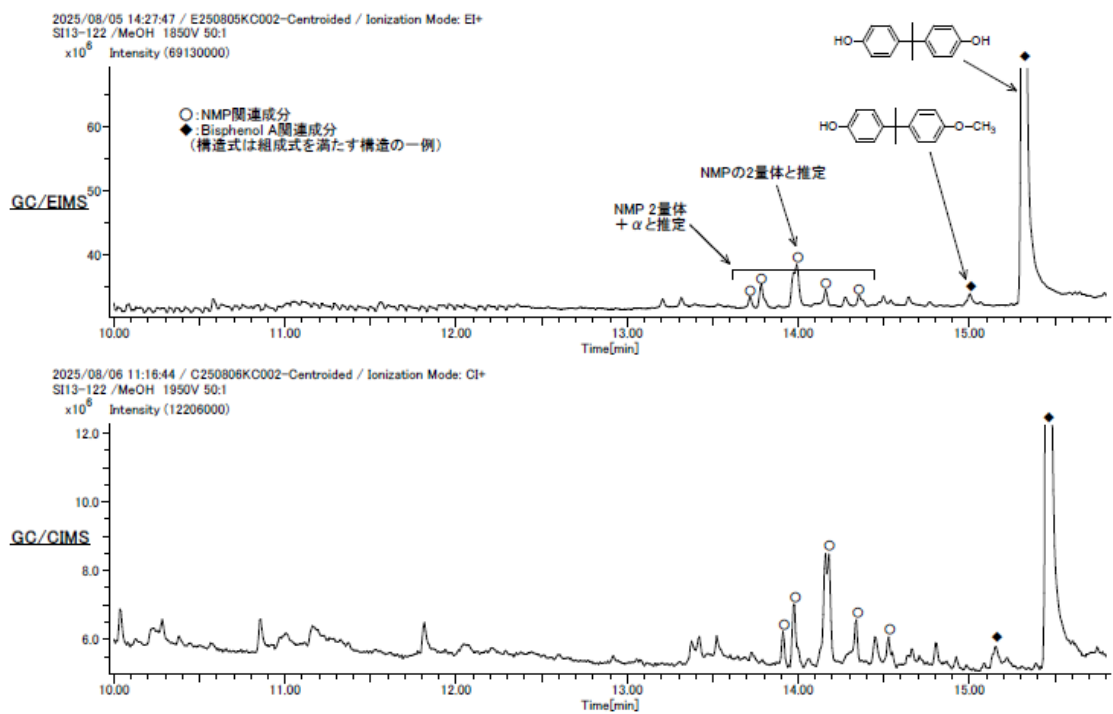


図 4-1-11 BisA/DICY 系分解物の GC-MS 測定 TICC(拡大図2)

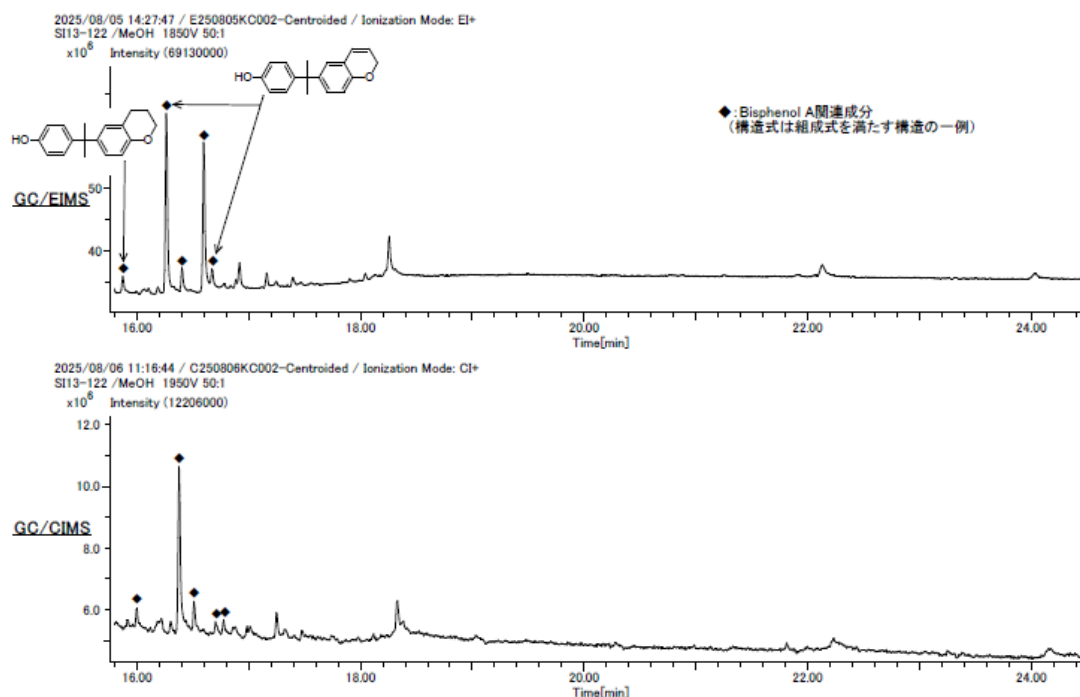


図 4-1-12 BisA/DICY 系分解物の GC-MS 測定 TICC(拡大図3)

通常 LC-MS と比較して GC-MS ではより低分子量の成分の構造が推定できるが、検出された構造からは、溶媒である NMP の変性物に加えて、LC-MS での結果と同じくビスフェノール骨格が熱で開裂したフラグメントなどが観測された。本分解物を後工程で、硬化剤 DICY の反応物やエポキシ樹脂の残鎖をさらに分解することで、ビスフェノール A、またはその分解物であるフェノールやイソプロピルフェノールに変換可能であり、有価物変換の原料として使用可能性があることがわかった。

次に、分解物の GPC 測定を行った。まずは GPC の測定条件を以下に示す。

- ・装置:ゲル浸透クロマトグラフ GPC (昭和電工製)
- ・カラム:TSKgel  $\alpha$ -M、 $\alpha$ -3000 各 1 本(・ 7.8 mm  $\times$  30 cm、東ソー製)

次に測定結果を図と表で示す。図表中、SI13-051 は製品プリブレグの分解物であり、SI13-121 が TGDDM/DDS 系分解物であり、SI13-122 が BisA/DICY 系分解物である。

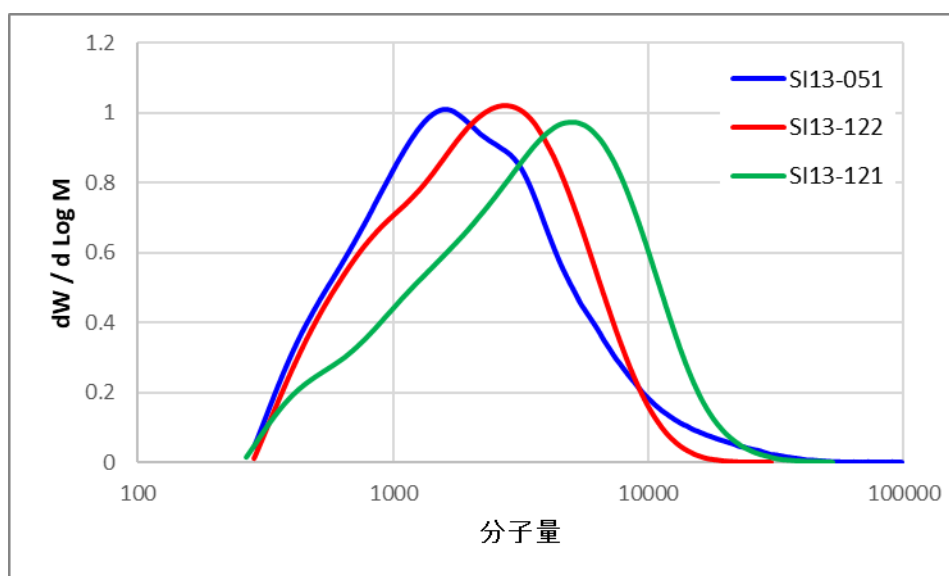


図 4-1-13 分子量分布曲線

表 4-1-7 分子量測定結果

| 試料名                    | 数平均分子量 | 重量平均分子量 | z 平均分子量 | 多分散度      |           |
|------------------------|--------|---------|---------|-----------|-----------|
|                        | $M_n$  | $M_w$   | $M_z$   | $M_w/M_n$ | $M_z/M_w$ |
| SI13-051 <sup>3)</sup> | 1330   | 2970    | 7910    | 2.23      | 2.66      |
| SI13-121 <sup>4)</sup> | 1950   | 4650    | 8340    | 2.38      | 1.79      |
| SI13-122 <sup>5)</sup> | 1440   | 2800    | 4720    | 1.94      | 1.69      |

以上の結果から、TGDDM/DDS 系分解物(SI13-121)、BisA/DICY 系分解物(SI13-122)ともにオリゴマーレベルまで低分子量化が進み、比較的低温でも NMP に溶解するため、有価物変換に好適な状態であることがわかった。



4.2 エポキシ樹脂分解物のフェノール類への選択的変換技術の開発

下記図に示すように、CFRP を構成するマトリックス樹脂の分解物も有効活用すべく、ビス A 型エポキシ樹脂分解物を IPP に変換し、さらに抗菌剤などとして利用されている IPMP に変換する合成ルートを着想、その検討を進めた。

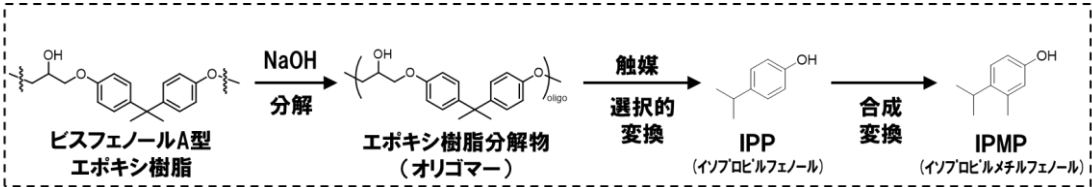


図 4-2-1 有価物変換のスキーム

4.2.1 DICY 硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物の有価物変換

まず、DICY 硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物からフェノール類(IPP)を回収することを目的として、条件検討を行った。原料としては、ビス A 型エポキシと硬化剤である DICY と硬化促進剤を 100 : 6.5 : 1 の質量比で混合し熱硬化させたものを用いた。ここで得られたエポキシ樹脂原料を、エポキシ樹脂、水酸化ナトリウム、溶媒 NMP を 5.00 : 0.95 : 94.05 の質量比で混合して 250 ℃または 200 ℃で反応させ得られた分解物を有価物変換検討に用いる反応液として用いた。

得られた反応液に対して、さらに下表に示した処理を施した。SI13-041 Liquid は追加の処理を施さなかったサンプル、SI13-062 は反応物を二分割し、一方は追加の処理を施さず(SI13-062 Liquid)、もう一方は塩酸で中和して中性にしたのちに NMP 溶媒を留去して残った固体を得たもの(SI13-062 Solid)である。SI13-072 は 200 ℃で 2 時間反応させたのち二分割し、一方は追加の処理を施さず(SI13-072 Liquid)、もう一方は塩酸で中和して中性にしたのちに NMP 溶媒を留去して残った固体を得たもの(SI13-072 Solid)である(下表)。

表 4-2-1 DICY 硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物

| Lot No.         | EP主剤        | 硬化剤  | 反応温度(℃) | 反応時間(h) | 中和濃縮 | NMP含有率(%) | 60℃DMF溶解性 |
|-----------------|-------------|------|---------|---------|------|-----------|-----------|
| SI13-041 Liquid | bisA-typeEP | DICY | 250     | 1       | —    | —         | —         |
| SI13-062 Liquid | bisA-typeEP | DICY | 250     | 1       | —    | —         | —         |
| SI13-062 Solid  | bisA-typeEP | DICY | 250     | 1       | 有    | 6.4       | △濁りあり     |
| SI13-072 Liquid | bisA-typeEP | DICY | 200     | 2       | —    | —         | —         |
| SI13-072 Solid  | bisA-typeEP | DICY | 200     | 2       | 有    | 3.6       | ×不溶       |

上述のサンプルを用いて、不均一系触媒を用いた水素化分解による目的物への変換を試みた。詳細な結果は非公開とするが、目的物である IPP の生成を確認した。

#### 4.2.2 芳香族アミン硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物の有価物変換

本検討では、対象サンプルとして、芳香族アミン硬化ビス A 型エポキシ樹脂の分解物の反応液を用いた。芳香族アミン硬化ビス A 型エポキシ樹脂としては、ビス A 型エポキシと芳香族アミン硬化剤である 4,4'-DDS を 100 : 35 の質量比で混合し熱硬化させたものを用いた。ここで得られたエポキシ樹脂をエポキシ樹脂、水酸化ナトリウム、溶媒 NMP を 5.00 : 0.95 : 94.05 の質量比で混合して 250 °C または 200 °C で 2 時間反応させ、反応液を得た。

得られた反応液に対して、さらに下表に示した処理を施した。SI13-045 Liquid は追加の処理を施さなかったサンプルである。SI-063 は反応させたのちに二分割し、一方は追加の処理を施さず (SI-063 Liquid)、もう一方は塩酸で中和して中性にしたのちに NMP 溶媒を留去して残った固体を得たもの (SI-063 Solid) である。SI-068 は分解反応の反応温度が 200 °C であり、反応液を二分割し、一方は追加の処理を施さず (SI-068 Liquid)、もう一方は塩酸で中和して中性にしたのちに NMP 溶媒を留去して残った固体を得たもの (SI-068 Solid) である (下表)。

表 4-2-2 芳香族アミン硬化ビス A 型エポキシ樹脂分解物

| Lot             | EP主剤        | 硬化剤     | 反応温度<br>(°C) | 反応時間<br>(h) | 中和濃縮 | NMP<br>含有率<br>(%) | 60°C<br>DMF<br>溶解性 |
|-----------------|-------------|---------|--------------|-------------|------|-------------------|--------------------|
| SI13-045 Liquid | bisA-typeEP | 4,4-DDS | 250          | 2           | —    | —                 | —                  |
| SI13-063 Liquid | bisA-typeEP | 4,4-DDS | 250          | 2           | —    | —                 | —                  |
| SI13-063 Solid  | bisA-typeEP | 4,4-DDS | 250          | 2           | 有    | 9.6               | △                  |
| SI13-068 Liquid | bisA-typeEP | 4,4-DDS | 200          | 2           | —    | —                 | —                  |
| SI13-068 Solid  | bisA-typeEP | 4,4-DDS | 200          | 2           | 有    | 19.2              | ○                  |

上述のサンプルを用いて、不均一系触媒を用いた水素化分解による目的物への変換を試みた。特に、ジアミンである 4,4'-DDS は回収できれば価値のある化合物であり、収率向上を目的とした条件のスクリーニングを行った。詳細な結果は非公開とするが、目的物である IPP とジアミンである 4,4'-DDS の生成を確認した。

#### 4.3 エポキシ樹脂分解物のアミン類への選択的変換技術の開発

硬化剤として芳香族アミンを、主剤としてテトラグリシジルジアミノジフェニルメタン(TGDDM)を用いたエポキシ樹脂をマトリックスとすることは航空機用途などで一般的であり、各成分が比較的高付加価値な化合物のため、C-N 結合の開裂によりアミン類が回収できれば、エポキシ樹脂分解物の有効活用が期待できる。

対象サンプルとして、TGDDM を芳香族アミンである 4,4'-DDS で硬化したエポキシ樹脂を検討した。特に、航空機用途でよく用いられるジアミノジフェニルスルホン(4,4'-DDS)や、TGDDM の原料になるメチレンジアニリンはフェノール類よりも高付加価値であるため、これらが高収率で回収できれば、経済合理性の成立が期待できる。これを目的としたさらなる検討を行った。

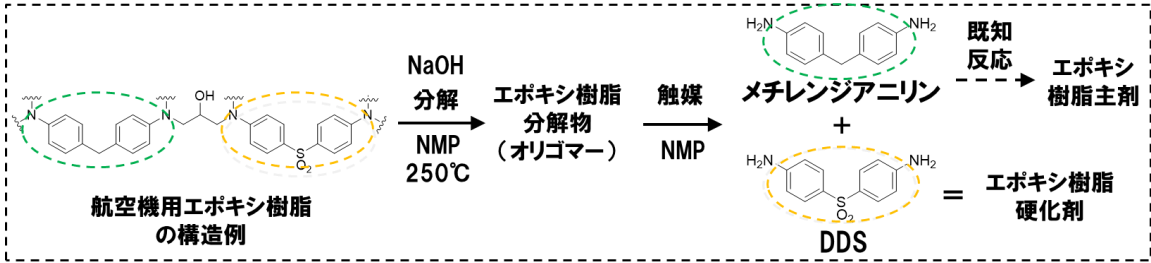


図 4-3-1 航空機用エポキシ樹脂分解物の有効活用イメージ

原料のエポキシ樹脂として、TGDDM と 4,4'-DDS を 100 : 54 の質量比で混合し熱硬化させたものを用いた。エポキシ樹脂、水酸化ナトリウム、溶媒 NMP を 5.00 : 0.95 : 94.05 の質量比で混合して 250 °C で 2 時間反応させ、分解反応の反応液を得た。

得られた反応液を二分割して、追加の処理を施さなかったサンプル(SI13-073 Liquid)と、塩酸で中和して中性にしたのちに NMP 溶媒を留去して残った固体(SI13-073 Solid)を反応の原料とした。

表 4-3-1 芳香族アミン硬化 TGDDM エポキシ樹脂分解物

| Lot No.         | EP主剤     | 硬化剤     | 反応温度 (°C) | 反応時間 (h) | 中和濃縮 | NMP 含有率 (%) | 60°C DMF 溶解性 |
|-----------------|----------|---------|-----------|----------|------|-------------|--------------|
| SI13-073 Liquid | TGDDM EP | 4,4-DDS | 250       | 2        | —    | —           | —            |
| SI13-073 Solid  | TGDDM EP | 4,4-DDS | 250       | 2        | 有    | 16.6        | ○            |

上述のサンプルを用いて、不均一系触媒を用いた水素化分解による有価物変換を試みた。特に、ジアミンであるメチレンジアニリン (DDM)、4,4'-DDS それぞれの収率向上を目的とした条件のスクリーニングを行った。詳細な結果は非公開とするが、メチレンジアニリンと 4,4'-DDS の生成を確認した。

#### 4.4 エポキシ樹脂分解物の有価物変換方法の比較

エポキシ樹脂をフェノール類へと変換する技術について、調査、比較を行い、結果を次の表に示した。各手法にメリット／デメリットがあり、比較検討を継続して本手法のポテンシャルを見極める。

表 4-4-1 エポキシ樹脂分解物の有価物変換方法の比較

|        | 本技術                                                        | 比較技術1                                        | 比較技術2                                     |
|--------|------------------------------------------------------------|----------------------------------------------|-------------------------------------------|
| 出展     | —                                                          | Green Chem 26, 815-824 (2024) <sup>23)</sup> | Nature 617, 730-737 (2023) <sup>24)</sup> |
| 触媒／分解剤 | Pd <sub>1</sub> Ni <sub>1</sub> /CeO <sub>2</sub><br>不均一触媒 | 過剰のNaOH                                      | ルテニウム触媒                                   |
| メリット   | 不均一触媒のため、<br>分離回収可能                                        | 高価な金属元素が<br>不使用                              | 高い選択性                                     |
| デメリット  | 比較的高価なPd元素<br>の使用                                          | 反応後に余剰NaOH<br>の中和が必要                         | ルテニウム触媒は<br>回収再利用困難                       |

## 5. LCA の評価・検証

### 5.1 CFRP 解重合の LCA 試算

CFRP の解重合工程は、事業者らでその GHG 排出量を試算した。以下の図に示すような製造プロセスを仮定し、CFRP 処理量が 2500 t/y 規模、バッチ式反応容器、CFRP／溶媒の重量比を 1／9 と仮定した。なお、CFRP 廃材の搬送などにかかる GHG 排出量は試算に含んでいない。

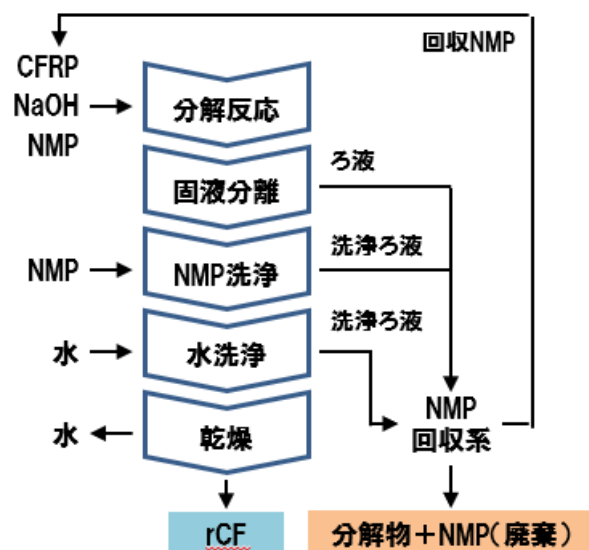


図 5-5-1 GHG 排出量の前提となる製造プロセス図

次に、バージン CF 製造時の GHG 排出量、現行熱分解法の GHG 排出量、および本法での当初試算GHG排出量、NMP 回収工程適正化後のGHG排出量の各試算結果を以下の図に記載した。

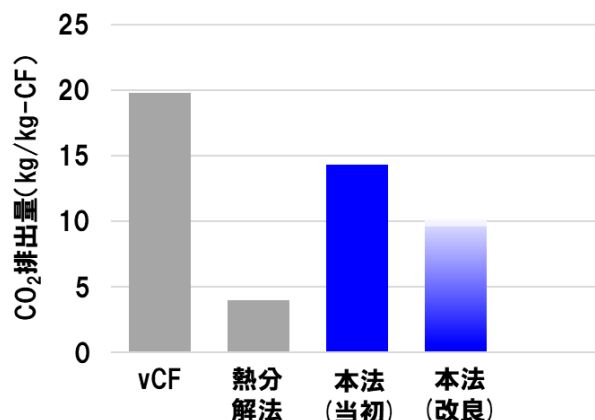


図 5-5-2 GHG 排出量の試算結果

熱分解法の GHG 排出量は、公知情報から熱分解炉での灯油消費量を 36.45 MJ/kg-rCF<sup>25)</sup>、灯油のエネルギー単位熱量を 36.7 MJ/L<sup>26)</sup>として、灯油由来の GHG 排出量を 2.46 kg-CO<sub>2</sub>/kg-rCF と計算し、これに、rCF を 1kg 製造する際に放出される熱硬化樹脂由来の CO<sub>2</sub> 量 1.54 kg/kg-rCF を加えて算出した。バージン CF 製造時の GHG 排出量は、炭素繊維協会の公表値である<sup>27)</sup>。

本事業者らの試算では、当初試算の GHG 排出量は、バージン CF 製造時よりも約 30%低い値であった。一方、廃棄される NMP に由来する分が本排出量に大きく寄与していたため、NMP 蒸留回収工程のプロセスを見直し、NMP 蒸留回収ロス率を当初試算より大幅に低減できる可能性を見出した。その NMP 回収ロス改善を試算に織り込むと、解重合工程の GHG 排出量は大きく改善できる可能性があることがわかった。

## 5.2 エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換に関する LCA 試算

エポキシ樹脂分解物をアニリン類の有価物へと変換する合成ルートに関して、その LCA を試算した。まず、ターゲット化合物であるメチレンジアニリンと DDS の現行製品の製造方法を推定し、その LCA を試算した。

### 5.2.1 メチレンジアニリンの推定現行製法

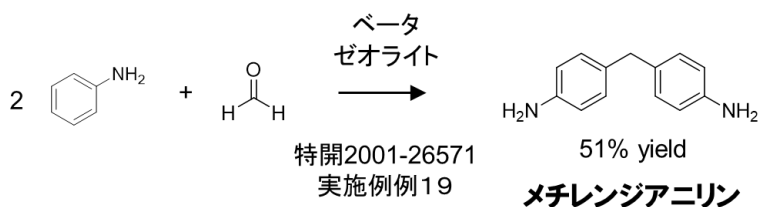


図 5-2-1 メチレンジアニリンの推定製法

メチレンジアニリンの製法を前記図に示すように推定し、このスキームに基づき、LCA を試算した。本スキームに使用する薬品類のうち、ゼオライト触媒は IDEA データベースに数値が収載されてい

なかったため、その原料にさかのぼり試算した。

以下に、推定したゼオライト触媒 LCA 試算結果を示す。

表 5-2-1 ゼオライト触媒の LCA 試算結果

| 特開2001-26571：ジアミノジフェニルメタンとその高級同族体の製造方法 |                                                                        |                          |                   |                                                 |                                                                         |                                  |                   |                                  |
|----------------------------------------|------------------------------------------------------------------------|--------------------------|-------------------|-------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|----------------------------------|-------------------|----------------------------------|
| 工程                                     | 原料項目                                                                   | 活動量<br>(使用量)             | 単位                | IDEA製品コード                                       | 製品名                                                                     | 使用量                              | 単位                | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位]   |
| 材料                                     | 水酸化テトラエチルアンモニウム (40 wt%)                                               | 0.0588                   | kg                | —                                               | 水酸化テトラエチルアンモニウム (40 wt%)                                                | 5.88E-02                         | kg                | 2.20E+00                         |
|                                        | アルミン酸ナトリウム (Al2O3 56%)                                                 | 0.0019                   | kg                | 231311000pGLO                                   | アルミナ, IAI, 2015, GLO                                                    | 1.90E-03                         | kg                | 1.54E+00                         |
|                                        | 脱イオン水                                                                  | 0.0584                   | kg                | 169919200pJPN                                   | 純水, イオン交換膜法, JPN                                                        | 5.84E-05                         | m3                | 1.94E+00                         |
| 加熱/攪拌                                  | 約80℃に加熱し、<br>完全に溶けるまで攪拌                                                | 0.6<br>0.15              | kWh<br>kWh        | 331131022pJPN<br>331131022pJPN                  | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 6.00E-01<br>1.50E-01             | kWh<br>kWh        | 5.33E-01<br>7.99E-02             |
|                                        | コロイダルシリカ (LUDOX HS, SiO2 40%)                                          | 0.0375                   | kg                | —                                               | コロイダルシリカ (LUDOX HS, SiO2 40%)                                           | 3.75E-02                         | kg                | 1.30E+00                         |
| 添加                                     | 添加後、さらに攪拌                                                              | 0.05                     | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 5.00E-02                         | kWh               | 5.33E-01                         |
| 懸濁液                                    | pH 14 の均質な懸濁液が得られる                                                     | 0.1566                   | kg                | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 1.57E-01                         | kWh               | 5.33E-01                         |
| 水熱合成/結晶化                               | 懸濁液をスチール製のオートクレーブ中に排出し、<br>150℃の水熱条件下で 10日間結晶化させ、<br>静置条件下、且つ自然圧下に放置する | 0<br>153.6<br>0          | kWh<br>kWh<br>kWh | 331131022pJPN<br>331131022pJPN<br>331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0<br>1.54E+02<br>0               | kWh<br>kWh<br>kWh | 5.33E-01<br>8.18E+01<br>0        |
|                                        | 結晶化した生成物を濾過して分離                                                        | 0.0017                   | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 1.67E-03                         | kWh               | 5.33E-01                         |
|                                        | 濾過                                                                     | 0.0017                   | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 1.67E-03                         | kWh               | 5.33E-01                         |
| 再分散/濾過                                 | 脱イオン水（脱イオン水中に再分散させて）<br>追加：再分散するために、攪拌が必要とした<br>再び濾過する                 | 0.0584<br>0.05<br>0.0017 | kg<br>kWh<br>kWh  | 169919200pJPN<br>331131022pJPN<br>331131022pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN      | 5.84E-05<br>5.00E-02<br>1.67E-03 | m3<br>kWh<br>kWh  | 1.94E+00<br>2.66E-02<br>8.88E-04 |
| 中間生成物                                  | 有機触媒型であるテトラエチルアンモニウム、及び<br>ナトリウムを含有する、湿った板状のゼオライト                      | ?                        | kg                |                                                 |                                                                         |                                  |                   |                                  |
| 再分散<br>イオン交換                           | 酢酸アンモニウム水溶液（水200 g）<br>酢酸アンモニウム水溶液（酢酸アンモニウム16 g）                       | 0.2<br>0.016             | kg<br>kg          | 169919200pJPN<br>—                              | 純水, イオン交換膜法, JPN<br>酢酸アンモニウム                                            | 2.00E-04<br>1.60E-02             | m3<br>kg          | 1.94E+00<br>2.00E+00             |
|                                        | この懸濁液を、攪拌しながら<br>約 1 時間加熱して 80℃にする                                     | 0.45<br>0.10             | kWh<br>kWh        | 331131022pJPN<br>331131022pJPN                  | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 4.50E-01<br>1.00E-01             | kWh<br>kWh        | 5.33E-01<br>5.33E-02             |
| 濾過                                     | 懸濁液を濾過                                                                 | 0.002                    | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 1.67E-03                         | kWh               | 5.33E-01                         |
| 再分散/洗浄<br>濾過                           | 脱イオン水（得られた固体を再分散させて洗浄）<br>懸濁液を再び濾過                                     | 0.15<br>0.002            | kg<br>kWh         | 169919200pJPN<br>331131022pJPN                  | 純水, イオン交換膜法, JPN<br>電力, 日本平均, 2022年度, JPN                               | 1.50E-01<br>1.67E-03             | m3<br>kWh         | 1.94E+00<br>8.88E-04             |
| 中間生成物                                  | アンモニウム/アルキルアンモニウムの形の<br>湿った板状のゼオライト                                    | ?                        | kg                |                                                 |                                                                         |                                  |                   |                                  |
| 触媒調製                                   | 実施例 3 に従って作った構成していないベータゼオライトと、ポ<br>ヘマイトの形のアルミナとをベースとして触媒を調製する          | 0                        | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 0                                | kWh               | 5.33E-01                         |
| 押出し                                    | この触媒を、ヨーロッパ特許第 847,802 号明細書の<br>実施例 4 に記載されている手順に従って押出す                | 0                        | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 0                                | kWh               | 5.33E-01                         |
| 触媒調製                                   | 実施例 4 に記載した手順に従って調製し、<br>70～100メッシュの篩（ふるい）にかけた、                        | 0                        | kWh               | 331131022pJPN                                   | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                                   | 0                                | kWh               | 5.33E-01                         |
| 生成物（触媒）                                | リガンド(Al2O3)を50重量%含む押出した<br>ベータゼオライト 10 cm <sup>3</sup>                 | 10                       | cm <sup>3</sup>   | —                                               | 押出したベータゼオライト 10 cm <sup>2</sup>                                         | 10                               | cm <sup>3</sup>   | 8.314                            |

試算の結果、ゼオライト触媒の LCA は、83.142 kg-CO<sub>2</sub>/kg であった。次に、この触媒を用いてメチレンジアニリンの LCA を試算した。その製造プロセスフローと LCA 試算結果を以下の図に示す。なお、ゼオライト触媒は通常繰り返し利用できるものであるため、100回繰り返し利用するものと仮定して試算した。

【実施例 19】

【0036】

触媒調製

実施例 4 に記載した手順に従って調製し、  
70～100メッシュの篩（ふるい）にかけた、  
リガンド( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )を50重量%含む押出しした  
ベータゼオライト10  $\text{cm}^3$ を、

0 [kWh]

仕込み

直径 12.5mm、長さ 390mmの管状の反応器に仕込む

0 [kWh]

↓

反応器に供給

アニリン 中に  
アミナール を 10体積%含む混合物

231.3 [g]

↓  
活性相

温度 180℃、

18.9 [g]

↓  
7時間反応

圧力 4 バール、

1.23 [kWh]

及び LHSV(液空間速度) 3.6  $\text{h}^{-1}$  で反応器に供給

0.21 [kWh]

↓

【0038】

供給速度の変更

7 時間反応させてから供給速度を変え (LHSV= 1  $\text{h}^{-1}$ )

1266.8 [g]

↓

138時間反応

反応混合物を、t.o.s.(time on stream、送り込み時間)が  
合計 145 時間となるまで供給

103.4 [g]

24.15 [kWh]

4.14 [kWh]

↓

【0040】

供給速度の変更

145 時間反応させてから供給速度をLHSV=3.6  $\text{h}^{-1}$  とし、

1553.3 [g]

↓

47時間反応

反応混合物を、t.o.s. が合計 192 時間となるまで供給

126.7 [g]

8.23 [kWh]

1.41 [kWh]

↓

【0042】

溶液の組成変更

192 時間反応させてから アミナール  
の 20 体積%アニリン溶液を供給して組成変更

1410.0 [g]

↓

48時間反応

供給速度は変えずに、反応混合物を  
t.o.s. が合計 240 時間となるまで供給

258.9 [g]

8.40 [kWh]

1.44 [kWh]

図 5-2-2 製造プロセスフロー



表 5-2-2 LCA 試算結果

| 工程                               | 原料項目                              | 活動量<br>(使用量) | 単位              | IDEA製品コード         | 製品名                               | 使用量      | 単位              | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|----------------------------------|-----------------------------------|--------------|-----------------|-------------------|-----------------------------------|----------|-----------------|--------------------------------|-----------------------------------|
| 材料 (触媒)                          | 触媒：ベータゼオライト (10 cm <sup>3</sup> ) | 10           | cm <sup>3</sup> | —                 | 触媒：ベータゼオライト (10 cm <sup>3</sup> ) | 10       | cm <sup>3</sup> | 8.31E-02                       | 8.31E-01                          |
| 仕込み                              | 直径 12.5mm、長さ 390mmの管状の反応器に仕込む     | 0            | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 0        | kWh             | 5.33E-01                       | 0                                 |
| 反応器に供給<br>↓<br>活性相<br>↓<br>7時間反応 | アニリン (供給体積：0.252[L]の90体積%)        | 0.231        | kg              | 163417000pj<br>PN | アニリン, JPN                         | 2.31E-01 | kg              | 3.00E+00                       | 6.95E-01                          |
|                                  | アミナール (供給体積：0.252[L]の10体積%)       | 0.019        | kg              | —                 | ビス (ジメチルアミノ) メタン                  | 1.89E-02 | kg              | 2.98E+00                       | 5.62E-02                          |
|                                  | 保温エネルギー (180°C) 0.175 kW/h        | 1.225        | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 1.23E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 6.52E-01                          |
|                                  | 圧力 4 バール：液送 (高圧定量ポンプ) 0.03 kW/h   | 0.21         | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 2.10E-01 | kWh             | 5.33E-01                       | 1.12E-01                          |
| 供給速度の変更<br>↓<br>138時間反応          | アニリン (供給体積：1.38[L]の90体積%)         | 1.267        | kg              | 163417000pj<br>PN | アニリン, JPN                         | 1.27E+00 | kg              | 3.00E+00                       | 3.81E+00                          |
|                                  | アミナール (供給体積：1.38[L]の10体積%)        | 0.103        | kg              | —                 | ビス (ジメチルアミノ) メタン                  | 1.03E-01 | kg              | 2.98E+00                       | 3.08E-01                          |
|                                  | 保温エネルギー (180°C) 0.175 kW/h        | 24.15        | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 2.42E+01 | kWh             | 5.33E-01                       | 1.29E+01                          |
|                                  | 圧力 4 バール：液送 (高圧定量ポンプ) 0.03 kW/h   | 4.14         | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 4.14E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 2.20E+00                          |
| 供給速度の変更<br>↓<br>47時間反応           | アニリン (供給体積：1.692[L]の90体積%)        | 1.553        | kg              | 163417000pj<br>PN | アニリン, JPN                         | 1.55E+00 | kg              | 3.00E+00                       | 4.67E+00                          |
|                                  | アミナール (供給体積：1.692[L]の10体積%)       | 0.127        | kg              | —                 | ビス (ジメチルアミノ) メタン                  | 1.27E-01 | kg              | 2.98E+00                       | 3.78E-01                          |
|                                  | 保温エネルギー (180°C) 0.175 kW/h        | 8.225        | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 8.23E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 4.38E+00                          |
|                                  | 圧力 4 バール：液送 (高圧定量ポンプ) 0.03 kW/h   | 1.41         | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 1.41E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 7.51E-01                          |
| 溶液の組成変更<br>↓<br>48時間反応           | アニリン (供給体積：1.728[L]の80体積%)        | 1.410        | kg              | 163417000pj<br>PN | アニリン, JPN                         | 1.41E+00 | kg              | 3.00E+00                       | 4.24E+00                          |
|                                  | アミナール (供給体積：1.728[L]の20体積%)       | 0.259        | kg              | —                 | ビス (ジメチルアミノ) メタン                  | 2.59E-01 | kg              | 2.98E+00                       | 7.71E-01                          |
|                                  | 保温エネルギー (180°C) 0.175 kW/h        | 8.4          | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 8.40E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 4.47E+00                          |
|                                  | 圧力 4 バール：液送 (高圧定量ポンプ) 0.03 kW/h   | 1.44         | kWh             | 331131022pj<br>PN | 電力、日本平均、2022年度、JPN                | 1.44E+00 | kWh             | 5.33E-01                       | 7.67E-01                          |
| GHG排出量 計：                        |                                   |              |                 |                   |                                   |          |                 |                                | 41.954                            |

ゼオライト触媒を繰り返し利用すると仮定して生成物すべてが目的物である場合のLCAは41.95 kg-CO<sub>2</sub>eq/kg であった。ここで、本反応での収率を考慮し、目的の 4,4-メチレンジアニリン (収率 51%) とその構造異性体 2,4-メチレンジアニリン (25%) に GHG 排出量を配分した場合、4,4-メチレンジアニリンの LCA は 54.99 kg-CO<sub>2</sub>eq/kg となった。

表 5-2-3 収率を考慮した LCA

| GHG排出量の配分結果 (触媒：100 回使用) (単位：kg-CO <sub>2</sub> eq/kg) |         |         |        |        |
|--------------------------------------------------------|---------|---------|--------|--------|
| 生成物名：                                                  | 4,4'MDA | 2,4'MDA | トリマー   | 重生成物   |
| 転化率：                                                   | 51.51%  | 24.78%  | 19.38% | 4.31%  |
| 混合物 4 種 に配分                                            | 41.954  | 41.954  | 41.954 | 41.954 |
| 4,4'MDA と 2,4'MDA に配分                                  | 54.993  | 54.993  | —      | —      |
| 4,4'MDA にすべて配分                                         | 81.449  | —       | —      | —      |

## 5.2.2 DDS の推定現行製法

次に DDS の現行製法を推定し、その LCA を試算した。

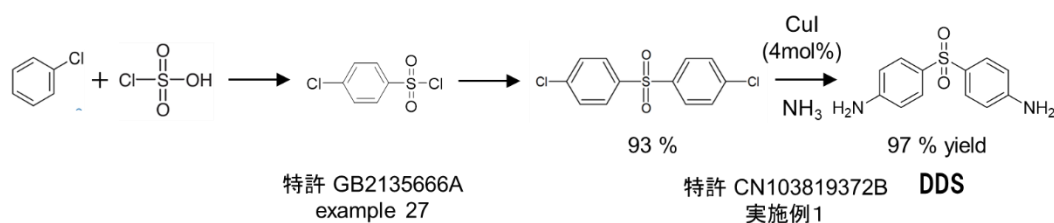


図 5-2-3 DDS の推定製造スキーム

次に、推定製造スキームに基づき、その LCA を試算した。まず、DDS の前駆体であるジクロロジフェニルスルホンの試算結果を示す。試算の結果は、22.23 kg-CO<sub>2</sub>eq/kg であった。

表 5-2-4 ジクロロジフェニルスルホンの試算結果

| 工程                    | 原料項目                         | 活動量<br>(使用量) | 単位  | IDEA製品コード     | 製品名                   | 使用量      | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|-----------------------|------------------------------|--------------|-----|---------------|-----------------------|----------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| 副資材 (溶媒)              | 1,2-ジクロロエタン (二塩化エチレン)        | 0.25         | kg  | 163223000pJPN | 二塩化エチレン, JPN          | 1.25E+00 | kg  | 2.34E+00                       | 2.93E+00                          |
| 原料                    | クロロスルホン酸 (3.0モル)             | 0.349        | kg  | —             | クロロスルホン酸              | 1.75E+00 | kg  | 1.68E+00                       | 2.95E+00                          |
|                       | 塩化ナトリウム (0.3モル)              | 0.0175       | kg  | 162411000pJPN | 工業塩 (塩化ナトリウム), JPN    | 8.78E-02 | kg  | 2.57E-02                       | 2.25E-03                          |
| 懸濁                    | 投入・混合・攪拌                     | 0.05         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 5.99E-02 | kWh | 5.33E-01                       | 2.66E-02                          |
| 保温(55~60℃)<br>滴下(3時間) | クロロベンゼン (1.0モル)              | 0.1125       | kg  | —             | クロロベンゼン               | 5.64E-01 | kg  | 2.22E+00                       | 1.25E+00                          |
|                       | 懸濁液を55~60℃に保温                | 0.875        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 1.05E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 5.59E-01                          |
|                       | 懸濁液を3時間かけて滴下                 | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
|                       | 懸濁液を攪拌しつつ                    | 0.3          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 3.60E-01 | kWh | 5.33E-01                       | 1.92E-01                          |
| 反応(5時間)               | 滴下終了後、55~60℃に保温              | 1.25         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 1.50E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 7.98E-01                          |
|                       | 懸濁液をさらに5時間攪拌                 | 0.5          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 5.99E-01 | kWh | 5.33E-01                       | 3.19E-01                          |
| 冷却                    | 室温まで冷却                       | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| 水洗/ろ過<br>1回目          | IW(イオン交換水) 1L                | 1            | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN      | 5.02E-03 | m3  | 1.94E+00                       | 9.73E-03                          |
|                       | IW 1Lを加えて激しく攪拌               | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
|                       | 攪拌後に有機層を分液回収                 | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| 水洗/ろ過<br>2回目          | IW(イオン交換水) 1L                | 1            | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN      | 5.02E-03 | m3  | 1.94E+00                       | 9.73E-03                          |
|                       | 再度 IW 1Lを加えて激しく攪拌            | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
|                       | 攪拌後に有機層を分液回収                 | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| 溶媒留去・結晶化              | 有機層を加熱し、1,2-ジクロロエタンを留去       | 1.50         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 1.80E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 9.58E-01                          |
| 中間生成物                 | 4-クロロベンゼンスルホンクロリドの結晶         | ?            | kg  |               |                       |          |     |                                |                                   |
| 添加                    | クロロベンゼン (1.9 mol)            | 0.214        | kg  | —             | クロロベンゼン               | 1.07E+00 | kg  | 2.22E+00                       | 2.38E+00                          |
|                       | 塩化鉄 (FeCl <sub>3</sub> )     | 0.0031       | kg  | 162933000pJPN | 塩化第二鉄, 38% 水溶液, JPN   | 1.55E-02 | kg  | 6.45E-01                       | 2.64E-02                          |
| 反応(15時間)              | 添加後、145~155℃に保温              | 8            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 9.59E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 5.11E+00                          |
|                       | 15時間攪拌                       | 1.5          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 1.80E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 9.58E-01                          |
| 追加                    | クロロベンゼン (? mol)              | 0.25         | kg  | —             | クロロベンゼン               | 1.25E+00 | kg  | 2.22E+00                       | 2.78E+00                          |
| 冷却                    | 反応混合物を 70° C に冷却             | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| 洗浄/分離                 | IW(イオン交換水) 1L                | 1            | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN      | 5.02E-03 | m3  | 1.94E+00                       | 9.73E-03                          |
|                       | IW 1Lを加えて洗浄                  | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
|                       | 有機層を分離                       | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| 溶媒除去                  | 有機層からクロロベンゼンを蒸気蒸留により除去       | 1.5          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | 1.80E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 9.58E-01                          |
| 生成物                   | 4,4'-ジクロロジフェニルスルホン (DDS) 結晶化 | 0.239        | kg  |               |                       |          |     | GHG排出量<br>計:                   | 22.226                            |

さらにこの値を用いて、DDS の試算を行った。結果を以下の表に示す。試算の結果、34.01 kg-CO<sub>2</sub>eq/kg であった。

表 5-2-5 DDS の試算結果

| 工程                 | 原料項目                             | 活動量<br>(使用量) | 単位  | IDEA製品コード     | 製品名                                            | 使用量      | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|--------------------|----------------------------------|--------------|-----|---------------|------------------------------------------------|----------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| ① 原料の供給<br>高圧連続反応  | 4,4'-ジクロロジフェニルスルホン<br>(溶融)       | 1.192        | kg  | —             | 4,4'-ジクロロジフェニルスルホン<br>(DDS) 結晶化                | 1.19E+00 | kg  | 2.22E+01                       | 2.65E+01                          |
|                    | アンモニア水 (濃度 25 wt%)               | 6.763        | kg  | 161112000pJPN | アンモニア, 天然ガス原料, NH <sub>3</sub><br>100% 換算, JPN | 6.76E+00 | kg  | 7.45E-01                       | 1.26E+00                          |
|                    | 塩化第一銅 (CuCl)                     | 0.048        | kg  | —             | 塩化第一銅 (CuCl)                                   | 4.77E-02 | kg  | 3.02E+00                       | 1.44E-01                          |
|                    | 以上の原料を高圧ポンプで配管型<br>リアクターに注入      | 0.05         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 5.00E-02 | kWh | 5.33E-01                       | 2.66E-02                          |
| ② 連続アンモ<br>リシス反応   | 反応方式: 高圧バイブライン (連<br>続流)         | 20           | MJ  | 351316015pJPN | 自家用蒸気発生, 化学工業, 2015年<br>度, JPN                 | 2.00E+01 | MJ  | 7.68E-02                       | 1.54E+00                          |
|                    | 制御・補機                            | 0.094        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 9.40E-02 | kWh | 5.33E-01                       | 5.01E-02                          |
| ③ 減圧               | 反応混合物を減圧弁で減圧放出                   | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| ④ 分析               | 液体クロマトグラフィーで分析                   | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| ⑤ 回収               | 生成物を回収装置へ送る                      | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 0        | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| ⑥ 過剰アンモ<br>ニアを蒸留除去 | 過剰アンモニア+同伴水の蒸発                   | 16           | MJ  | 351316015pJPN | 自家用蒸気発生, 化学工業, 2015年<br>度, JPN                 | 1.60E+01 | MJ  | 7.68E-02                       | 1.23E+00                          |
|                    | 攪拌・ポンプ・冷却                        | 1.2          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 1.20E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 6.39E-01                          |
| ⑦ 分離               | 残渣から粗製 4,4'-ジアミノジ<br>フェニルスルホンを分離 | ?            | kg  |               |                                                |          |     |                                |                                   |
| 中間生成物              | 粗製 4,4'-ジアミノジフェニルス<br>ルホン (粗DDS) | ?            | kg  |               |                                                |          |     |                                |                                   |
| ① 溶解               | 粗DDSを塩酸溶液に溶解し、30<br>°Cに加熱        | 0.5          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 5.00E-01 | kWh | 5.33E-01                       | 2.66E-01                          |
|                    | 塩酸 (濃度: 10 wt%)                  | 4.998        | kg  | 162114000mJPN | 塩酸, 35% 換算, JPN                                | 5.00E+00 | kg  | 8.72E-01                       | 4.36E-01                          |
| ② 脱色               | 活性炭                              | 0.02         | kg  | 162928000pJPN | 活性炭, JPN                                       | 2.00E-02 | kg  | 7.16E+00                       | 1.43E-01                          |
| ③ ろ過               | 濾過                               | 0.002        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 1.67E-03 | kWh | 5.33E-01                       | 8.88E-04                          |
| ④ 冷却・結晶化           | 温度: 30°C                         | 0.3          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 3.00E-01 | kWh | 5.33E-01                       | 1.60E-01                          |
| ⑤ pH調整             | 炭酸ナトリウム水溶液 (10<br>wt%)           | 3            | kg  | 162112000pJPN | ソーダ灰, JPN                                      | 3.00E+00 | kg  | 7.62E-01                       | 2.29E-01                          |
| ⑥ 固液分離             | 遠心分離                             | 0.6          | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 6.00E-01 | kWh | 5.33E-01                       | 3.20E-01                          |
| ⑦ 水洗               | プロセス水                            | 8            | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN                               | 8.00E-03 | m3  | 1.94E+00                       | 1.55E-02                          |
| ⑧ 乾燥               | 乾燥加熱・真空ポンプ                       | 2            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                          | 2.00E+00 | kWh | 5.33E-01                       | 1.07E+00                          |
| 最終製品               | 4,4'-ジアミノジフェニルスルホン<br>(DDS)      | 1            | kg  |               |                                                |          |     | GHG排出量<br>計:                   | 34.008                            |

### 5.2.3 エポキシ樹脂分解物有価物変換の LCA 推定

TGDDM/DDS からなるエポキシ樹脂の分解物を、不均一系触媒 (Pd<sub>1</sub>Ni<sub>1</sub>/CeO<sub>2</sub>) を用いた水素化分解によりメチレンジアニリンと DDS に変換するプロセスを想定、(i) 不均一系触媒 (Pd<sub>1</sub>Ni<sub>1</sub>/CeO<sub>2</sub>) の LCA を試算し、(ii) この触媒を用いて一定の収率が得られる場合のメチレンジアニリンと DDS の LCA を試算した。以下にまず、不均一系触媒の試算結果を示す。

まず、IDEA データベースに収載のない塩化パラジウム、塩化ニッケル、酸化セリウムの試算を行った。なお、塩化パラジウムは、文献<sup>28)</sup>を参考に、再生パラジウムの GHG 排出量を採用し、塩化パラジウムの値を試算した。

表 5-2-6 塩化パラジウムの試算結果

| 工程 | 原料項目                | 活動量<br>(使用量) | 単位  | IDEA製品コード     | 製品名                                 | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|----|---------------------|--------------|-----|---------------|-------------------------------------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| ↓  | 金属パラジウム（スポンジ Pd など） | 665.0        | g   | —             | Secondary production<br>(Palladium) | kg  | 497                            | 3.30E+02                          |
| ↓  | 300-500℃まで加熱        | 0.379        | MJ  | 341111801pJPN | 都市ガス 13Aの燃焼エネルギー, JPN               | MJ  | 6.49E-02                       | 2.46E-02                          |
| ↓  | 加熱装置の電力             | 3.158        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN               | kWh | 5.33E-01                       | 1.68E+00                          |
| ↓  | 塩素ガス                | 443.1        | g   | 162119100pJPN | 塩素ガス, 100%, JPN                     | kg  | 1.17E+00                       | 5.19E-01                          |
| ↓  | 塩素ガス吹き込みの電力         | 2.105        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN               | kWh | 5.33E-01                       | 1.12E+00                          |
| ↓  | 冷却器の電力?             | 0            | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN               | kWh | 5.33E-01                       | 0.00E+00                          |
| ↓  | 回収して完了              | 1            | kg  | GHG排出量<br>計:  |                                     |     |                                | 333.831                           |

表 5-2-7 塩化ニッケルの試算結果

| 工程 | 原料項目              | 活動量<br>(使用量) | 単位                | IDEA製品コード     | 製品名                        | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|----|-------------------|--------------|-------------------|---------------|----------------------------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| ↓  | ニッケル              | 273.61       | g                 | 231919248pJPN | 電気ニッケル, MCLE法, JPN         | kg  | 8.93E+00                       | 2.44E+00                          |
| ↓  | 塩化水素              | 339.93       | g                 | 162114120pJPN | 塩化水素, 100%, TDI副生 HCl, JPN | kg  | 3.33E+00                       | 1.13E+00                          |
| ↓  | 溶解→精製→濃縮/蒸発→結晶→乾燥 | 1.42         | kWh               | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN      | kWh | 5.33E-01                       | 7.57E-01                          |
| 他  | 薬品・廃水処理           | 0.89         | kgCO <sub>2</sub> | —             | 薬品・廃水処理                    | —   | —                              | 8.95E-01                          |
| ↓  | 塩化ニッケル(II)六水和物    | 1            | kg                | GHG排出量<br>計:  |                            |     |                                | 5.226                             |

表 5-2-8 酸化セリウムの試算結果

| 工程 | 原料項目                                           | 活動量<br>(使用量) | 単位  | IDEA製品コード     | 製品名                   | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|----|------------------------------------------------|--------------|-----|---------------|-----------------------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| ↓  | セリウム塩：硝酸セリウム：Ce(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> | 1994.57      | g   | —             | 硝酸セリウム（希土類硝酸塩製造）      | kg  | 6.00E+00                       | 1.20E+01                          |
| ↓  | 水に溶解                                           | 1000         | g   | 169919100pJPN | 蒸留水, JPN              | m3  | 4.26E+02                       | 4.26E-01                          |
| ↓  | アルカリ：水酸化ナトリウム                                  | 400          | g   | 162111000pJPN | 水酸化ナトリウム, 100%, JPN   | kg  | 1.18E+00                       | 4.72E-01                          |
| ↓  | ろ過→水洗→乾燥                                       | 1.25         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | kWh | 5.33E-01                       | 6.66E-01                          |
| ↓  | 焼成（700℃、2時間）                                   | 3.00         | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN | kWh | 5.33E-01                       | 1.60E+00                          |
| ↓  | 酸化セリウム（CeO <sub>2</sub> ）                      | 1            | kg  | GHG排出量<br>計:  |                       |     |                                | 15.129                            |

以上の値をもとに、不均一触媒の値を試算した。結果を次の表に示す。不均一系触媒（Pd<sub>1</sub>Ni<sub>1</sub>/CeO<sub>2</sub>）の LCA を試算した結果、36.3 kg-CO<sub>2</sub>/kg であった。

表 5-2-9 不均一触媒の試算結果

| 工程          | 原料項目                                                          | 活動量<br>(使用量) | 単位  | IDEA製品コード     | 製品名                                                     | 単位  | [kg-CO <sub>2</sub> eq<br>/単位] | GHG排出量<br>[kg-CO <sub>2</sub> eq] |
|-------------|---------------------------------------------------------------|--------------|-----|---------------|---------------------------------------------------------|-----|--------------------------------|-----------------------------------|
| 材料          | PdCl <sub>2</sub> (0.5mmol) 塩化パラジウム(II)                       | 0.047        | kg  | —             | 【塩化パラジウムの製造】パラジウムの塩素化プロセス                               | kg  | 3.34E+02                       | 1.56E+01                          |
|             | KCl (1.0mmol) 塩化カリウム                                          | 0.039        | kg  | 162923200pGLO | 塩化カリウム, GLO                                             | kg  | 1.43E-01                       | 5.62E-03                          |
|             | NiCl <sub>2</sub> ・6H <sub>2</sub> O (0.5mmol) 塩化ニッケル(II)六水和物 | 0.063        | kg  | —             | 【塩化ニッケル(II)六水和物の製造】NiCl <sub>2</sub> ・6H <sub>2</sub> O | kg  | 5.23E+00                       | 3.27E-01                          |
|             | イオン交換水                                                        | 42.105       | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN                                        | m3  | 1.94E+00                       | 8.17E-02                          |
| 攪拌          | 室温で1 h 攪拌する                                                   | 0.126        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 6.73E-02                          |
| 材料・投入       | CeO <sub>2</sub> (酸化セリウム) 酸化セリウム(IV)                          | 1.053        | kg  | —             | 【酸化セリウムの製造】モナザイト鉱石からの酸化セリウム分                            | kg  | 1.53E+01                       | 1.61E+01                          |
| 材料・調整       | 1M NaOH aq. (1モルの水酸化ナトリウム溶液)                                  | 0.0005       | kg  | —             | 【試薬調製ノード】水酸化ナトリウム水溶液                                    | kg  | 4.73E-01                       | 2.49E-04                          |
|             | pHを10±0.5に調整                                                  | 0.0002       | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 9.16E-05                          |
| 攪拌          | 室温で24h攪拌                                                      | 3.032        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 1.61E+00                          |
| ろ過          | 析出固体をろ過                                                       | 0.002        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 9.34E-04                          |
| 洗浄/ろ過<br>4回 | IW(イオン交換水) 300mL×4回分                                          | 1.263        | kg  | 169919200pJPN | 純水, イオン交換膜法, JPN                                        | m3  | 1.94E+00                       | 2.45E-03                          |
|             | 常温のイオン交換水中で攪拌(10分程度)×4回                                       | 0.084        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 4.48E-02                          |
|             | 攪拌後に固体をろ過×4回                                                  | 0.007        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 3.74E-03                          |
| 乾燥          | 室温、真空乾燥3 hで乾燥                                                 | 4.500        | kWh | 331131022pJPN | 電力, 日本平均, 2022年度, JPN                                   | kWh | 5.33E-01                       | 2.40E+00                          |
| 製品          | 回収して完了                                                        | 1            | kg  | GHG排出量<br>計:  |                                                         |     |                                | 36.253                            |

次に、本触媒を用いて、メチレンジアニリンとDDSが収率 90%で得られ、本触媒を 5 回繰り返し利用できると仮定し、本プロセスによるメチレンジアニリンとDDSの LCAを試算した結果、それぞれ 28 と 32 kg-CO<sub>2</sub>/kg であった。以上の結果から、現行製品対比、GHG 排出量でメリットが生じる可能性があることがわかった。

## 6. 学会等での収集情報

### 6.1 ジャパンモビリティショー2025 東京

リサイクル CFRP の開発に関する情報を収集するため、ジャパンモビリティショー2025 東京に参加した。マツダ車のビジョンモデル2台のクラッティングという外装部材にリサイクル炭素繊維不織布が採用され、下部全周に搭載されている。またインナーハンドルという内装の三角形形状の部分や、その他、ブース内のスケボーや机にも採用されていたことを確認した。

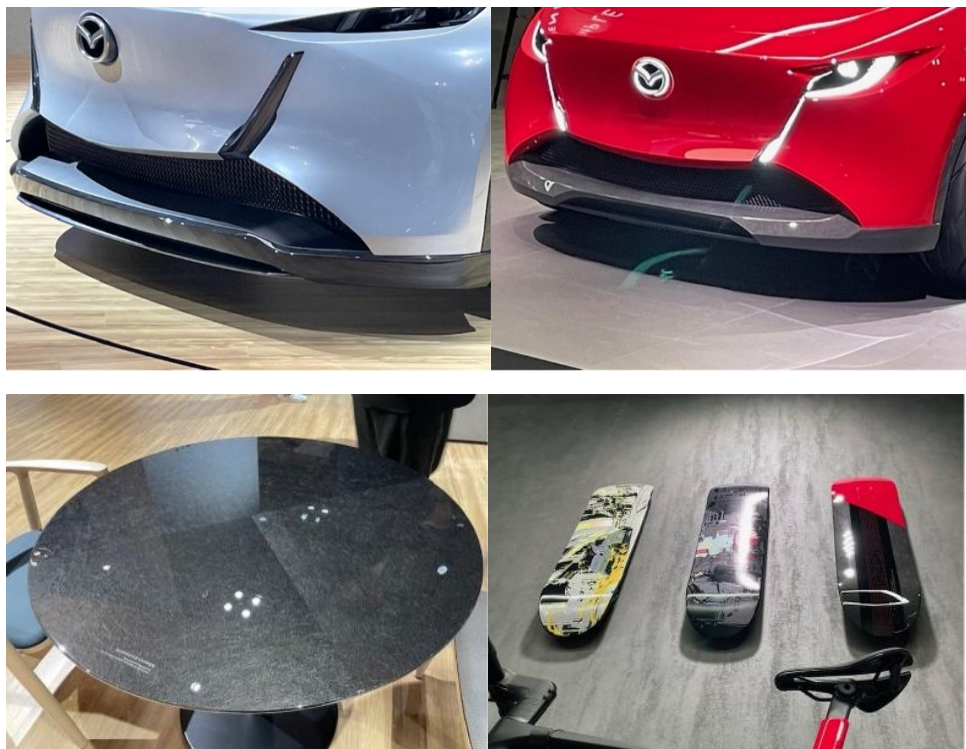


図 6-1-1 マツダ車ブース内の写真

### 6.2 高機能素材 week 東京

リサイクル CFRP の開発に関する情報を収集するため、高機能素材 Week 東京に参加した。高機能素材 Week 東京は、機能性フィルム・プラスチック・セルローズ・炭素繊維複合材・金属・セラミックスなどの最先端の素材技術が一堂に出展する世界最大規模の展示会であり、今回は特にサステナブルマテリアル展、リサイクルテックジャパン、高機能プラスチック展のエリアを中心に情報収集した。

#### ・山陽化工社の展示

佐久間特殊鋼が販売するrCF 射出品の展示があり、熱分解法rCF の開発情報を確認した。

#### ・豊田通商/豊通マテックス社の展示

rCF を使った射出品やrCF と熱可塑繊維との混紡不織布、およびプレス成型品などが展示され、不織布基材用途の開発情報を収集した。



- ・日本ポリマー産業社

同社が開発するチョップドファイバー製品やカラー着色した射出品などの開発品に関する情報を収集した。

### 6.3 SAMPE Japan 2025

SAMPE Japan は、一般社団法人先端材料技術協会が日刊工業新聞社と共同で開催する複合材料を始めとする先端材料と加工技術に関する展示会である。今回は、本会に参加し、リサイクル炭素繊維の市場動向について調査した。

- ・三菱ケミカル株式会社

三菱ケミカル株式会社からは、SMC や高剛性糸、UD テープ、ハニカムコア成形、バイオ樹脂、GDL、リサイクルなど、幅広い技術が紹介されていた。リサイクルの分解方法については特に制限はなく、熱分解や溶媒分解のいずれも外注先から購入しているとのこと。また、同社は6mm または25mm の綿状リサイクル炭素繊維 (Fiberseed™) を束化する技術を有しており、束化した炭素繊維は射出成形や SMC への応用が検討されている。なお、SMC 化には不連続繊維を均一に散布する必要があり、現在はその装置を含めて技術検討が進められているとのこと。

- ・ミライ化成株式会社

ミライ化成株式会社では、該社独自の炭素繊維のリサイクル方法について紹介されていた。樹脂分解時には槽内を攪拌せず、原資となる CFRP を上下で抑えて振盪させるバッチ方式を採用しており、これにより CF 詰まりや CF うねりが解消されるとのこと。



図 6-3-1 炭素繊維のリサイクル方法の図

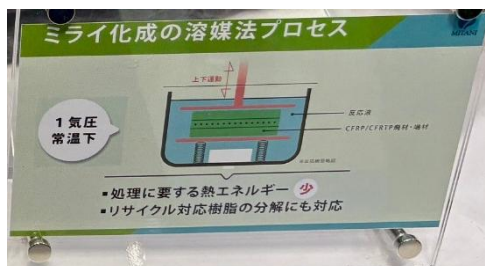


図 6-3-2 ミライ化成株式会社の溶媒法プロセス



また、乾式不織布とナイロン繊維を混織したプレス成形品が紹介されていた。さらに、乾式不織布に熱可塑エポキシを含浸させ人工皮革のような触感を発現する材料も展示されていた。



図 6-3-3 rCF プレス成形品



図 6-3-4 rCF 人工皮革加工品

#### ・旭化成株式会社

旭化成株式会社では、熱可塑 UD 材の活用方法、ワインディングによるパイプ成形やインサート成形による構造補強、チョップし散布したフォージド加工を紹介していた。また、炭素繊維のリサイクル方法として、電界硫酸法をポスター展示していた。圧力タンクからリサイクル炭素繊維を得る際には、高張力巻き故の巻き戻し時の擦過毛羽の課題があるとのこと。

- ・スピック株式会社

スピック株式会社では、プレス成形の受託が可能とのこと。熱可塑 UD や熱硬化プリプレグのチョップ材を散布しランダムシート化する技術を保有。



図 6-3-5 ランダムシートの成形材



図 6-3-6 ランダムシートの外観図

- ・日精株式会社

日精株式会社では、プリプレグ化の受託が可能とのこと。

- ・郷製作所

郷製作所では、大型／高圧のプレス成型が受託対応可能。熱可塑 UD の端材をチョップ／散布しプレスした成形品が多く展示されていた。

- ・金井重要工業株式会社

金井重要工業株式会社では、炭素繊維の乾式不織布化の受託が可能。

- ・レイズファクトリー

レイズファクトリーでは、VaRTM の受託が可能。

・サカイ産業

サカイ産業では RIM 成形、プレス成形、オートクレーブ成形の受託が可能。

・SUNAOYA

SUNAOYA(いおう化学研究所)では、光反応性分子接合剤を紹介。該接合剤はトリアジン環に金属等の無機物と反応する官能基と有機物と反応する光反応性官能基を有する材料。ソブエクレ株式会社がりサイクル CF の Sz 剤に適用し、PPS 強化樹脂の引張強度が20%向上したとのこと。

・サンコロナ小田株式会社

サンコロナ小田株式会社では、ナガセ産業の熱可塑エポキシを用いて UD テープを作成。そのままワインディングしてゴルフシャフト等に展開し、チョップ／散布してプレス成形。特徴は従来の熱可塑樹脂や熱硬化樹脂を用いた UD テープからのチョップドプレス成形品と比べて、賦形性が良好。細かなリブも可能。



図 6-3-7 サンコロナ小田株式会社のポスター展示



図 6-3-8 成形品

・ミズノテクニクス株式会社

CFRP 取り扱いメーカーの動向も調査した。ミズノテクニクス株式会社は、多種多様な製品を「変種変量生産」する仕組み。ヒットした製品はミズノ株式会社で本格生産へ移行。ミズノテクニクス社のコンポジット事業部門は CFRP を担当し、G-SHOCK バンドや車いすホイールやバレーボール支柱、野球バット、ゴルフクラブ、バドミントンラケット、弓矢など幅広く展開していた。

6.4 nano tech 2026

リサイクル炭素繊維に関する発表および他社の関連技術調査のため nano tech 2026 に参加した。

・帝人株式会社

帝人株式会社では炭素繊維を用いた湿式不織布を紹介していた。均一性を特徴としており、水処理分野や燃料電池分野、インフラ分野などへの展開を志向しているとのこと。また、ゴム材料の表層に貼ることで表面は導電性、裏面は絶縁性を発現した材料の展示も行っていた。

## 7. まとめ

本事業の本年度の目標および達成状況について以下の表にまとめた。

|   | 項 目  | 本年度の目標                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | 本年度の達成状況                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |
|---|------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 0 | 全体目標 | <p>仕様書3. (1)①項に対応(以下同様)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・プロセスの課題抽出及びrCF数量確保のためのスケールアップ試作実施</li> <li>・CFRP解重合条件の最適化や、プロセス検討による、本法LCAの精緻化</li> </ul> <p>3. (1)③、④</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCFの不織布化検討</li> <li>・リサイクルCFRPの開発</li> <li>・リサイクルCFRPの用途探索</li> </ul> <p>3. (2)①、②</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・フェノール類やアニリン類への選択的変換技術の開発</li> <li>・出口アイテムの設定</li> </ul> <p>3. (3)②</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・LCAの試算に向けた調査</li> <li>・フェノール類、あるいはアニリン類等変換プロセスのLCA試算</li> </ul> | <p>3. (1)①:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・200～2600L装置で試作を実施し、用途開発用rCFを確保。</li> <li>・ NMPロス削減に向けた蒸留工程の検討とNMPロス削減時のLCAを試算。</li> </ul> <p>3. (1)③、④:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCFの乾式／湿式不織布化に成功。</li> <li>・rCF乾式不織布のプレス基材を開発し、その物性を評価。</li> <li>・rCF湿式不織布がマツダ社ビジョンモデルに採用。</li> </ul> <p>3. (2)①、②:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ビスフェノールA型エポキシ樹脂分解物を4-イソプロピルフェノールに、航空機用エポキシ樹脂をDDSとメチレンジアニリンに変換可能なことを確認。</li> <li>・ターゲット化合物としてIPMP、DDSとメチレンジアニリンを設定。</li> </ul> <p>3. (3)②:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ DDSとメチレンジアニリンのLCAを試算した。</li> </ul> |

|   |                    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |
|---|--------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1 | 新規溶媒溶解法による解重合技術の開発 | <p>3. (1)①</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・コスト、LCAの最小化を目指したCFRP解重合の条件検討</li> <li>・プロセスの課題抽出及びrCF数量確保のためのスケールアップ試作実施</li> </ul> <p>3. (1)②</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCF各種特性の分析による、新規溶媒溶解法ポテンシャルの評価</li> </ul> <p>3. (3)①</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・CFRP解重合条件の最適化や、プロセス検討による、本法LCAの精緻化</li> </ul> | <p>3. (1)①:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ラボにてDMIを溶媒に用いた低温常圧反応条件を確立。200～2600L装置で試作を実施し、用途開発用rCFを確保。</li> <li>・プロセス化に向けた装置検討を実施し、PVミキサーを反応装置の候補に選定。</li> </ul> <p>3. (1)②:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・本法rCFは、樹脂残渣量が低く、表面状態もバージンCF同等であることを確認。</li> </ul> <p>3. (3)①:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・NMPロス削減に向けた蒸留工程の検討とNMPロス削減時のLCAを試算。LCA精緻化を進めた。</li> </ul> |
| 2 | リサイクルCFRPの開発       | <p>3. (1)③</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCFのサイジング処理／束化検討</li> <li>・rCFの不織布化検討</li> </ul> <p>3. (1)④</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCFと熱可塑樹脂のコンパウンド試作実施と物性評価</li> <li>・rCF不織布のプリプレグ化実施および、リサイクル熱硬化CFRPの開発</li> <li>・リサイクル熱可塑／熱硬化CFRPの用途探索、ユーザー企業との連携</li> </ul>                                                      | <p>3. (1)③:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・種々の装置でわた状rCFのサイジング処理／束化を検討した。</li> <li>・本法rCFの乾式不織布化、湿式不織布化に成功した。</li> </ul> <p>3. (1)④:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・rCFとPPSのコンパウンドを検討し、コンパウンド品の物性を評価した。</li> <li>・rCF湿式不織布のプリプレグ化を実施した。また、rCF乾式不織布のプレス基材を開発し、その物性を評価した。</li> <li>・本取り組みを展示会で紹介し、用途探索を進めた。rCF湿式不織布がマツダ社ビジョンモデルに採用。</li> </ul>                                     |

|   |                        |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |
|---|------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 3 | エポキシ樹脂分解物の有用化合物変換技術の開発 | <p>3. (2)①</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・フェノール類やアニリン類への選択的変換技術の開発</li> <li>・開発手法の実用性と経済性の検証</li> </ul> <p>3. (2)②</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・フェノール類、あるいはアニリン類の有用化合物変換に関する技術検討、出口アイテムの設定</li> </ul> <p>3. (3)②</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・フェノール類、あるいはアニリン類等変換プロセスのLCA試算</li> </ul> | <p>3. (2)①:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・不均一触媒を用いて、ビスフェノールA型エポキシ樹脂分解物を63%収率で4-イソプロピルフェノールに、航空機用エポキシ樹脂分解物をメチレンジアニリンとDDSに、それぞれ変換できることがわかった。</li> <li>・対象化合物は比較的価格の高い化合物であり、収率が向上すれば経済的に競争可能と判断した。</li> </ul> <p>3. (2)②:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・4-イソプロピルフェノールをIPMPに変換するルートを選定、その合成検討を進めた。</li> <li>・DDSと、メチレンジアニリンから得られるTGDDMはエポキシ樹脂原料として価値があることを確認した。</li> </ul> <p>3. (3)②:達成</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・DDS、およびメチレンジアニリンの現行製法を推定、そのLCAを試算した。また、本法でのLCAも試算した。</li> </ul> |
|---|------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|



[引用・参考文献]

- 1) Nemessanyi, C., Brief History of Fiber Reinforced Polymers as Structural Material, Periodica Polytechnica Architecture, Vol. 54, No. 3, pp. 193-206 (2023).
- 2) Bisheh, H.; Abdin, Y., Carbon Fibers: From PAN to Asphaltene Precursors; A State-of-the-Art Review, C, Vol. 9, Article 19 (2023).
- 3) Xu, H.-T.; Guo, J.-G.; Li, W.-L.; Li, X.-K., The Effect of the Molecular Structure of Naphthalene-Based Mesophase Pitch on the Properties of Carbon Fibers Derived from It, New Carbon Materials, Vol. 38, No. 2, pp. 370-376 (2023).
- 4) 株式会社富士経済, 炭素繊維複合材料(CFRP/CFRTP)関連技術・用途市場の展望 2022 — カーボンニュートラル/LCA、マルチマテリアル化開発動向において注目される炭素繊維複合材料市場の現状と将来市場 —, 2022 年 5 月 19 日.
- 5) 株式会社矢野経済研究所, 2023 年版 リサイクル炭素繊維市場の展望と戦略, 2024 年 1 月 30 日.
- 6) 株式会社矢野経済研究所, リサイクル炭素繊維の利用・評価手法等に関する国際動向調査, 2021 年 3 月 26 日.
- 7) 富士加飾株式会社, H.P. URL:<https://fuji-d.jp/business/>
- 8) 株式会社新菱, H.P. URL:<https://ce3r.shinryo-gr.com/carbonfiber>
- 9) カーボンファイバーリサイクル工業株式会社, H.P. URL:<https://cfri.co.jp/technologies/superiority/>
- 10) 株式会社ミライ化成, H.P. URL:<https://www.miraikasei.com/business/cfrp/>
- 11) 公益財団法人 中部科学技術センター, 「リサイクル炭素繊維の現状と事業創出に向けた取り組み」, 講演資料(講演者:株式会社ミライ化成), 2022 年.
- 12) 旭化成株式会社, H.P. URL: <https://www.asahi-kasei.com/jp/news/2022/ze221214.html>
- 13) Gen 2 Carbon Limited, About Gen 2 Carbon, H.P. URL:<https://www.gen2carbon.com/about/>
- 14) Mitsubishi Chemical Advanced Materials, Case Study: H.P. URL:<https://www.mcam.com/en/case-studies/recycled-carbon-fiber>
- 15) Vartega Inc H.P. URL:<https://www.vartega.com/>
- 16) Vartega Inc., Method for Recycling Carbon Fiber Composite Materials, U.S. Patent US10487191B2.
- 17) CompositesWorld, Posco International Invests in Catack-H Carbon Fiber Recycling, URL:<https://www.compositesworld.com/news/posco-international-invests-in-catack-h-carbon-fiber-recycling>
- 18) 特許第 7386304 号公報.
- 19) 特許第 7359405 号公報.
- 20) Nickel-Catalyzed C(sp<sup>3</sup>)-O Hydrogenolysis via a Remote-Concerted Oxidative Addition and Its

Application to Degradation of a Bisphenol A-Based Epoxy Resin, Journal of the American Chemical Society, pp. 2419-2425 (2024).

- 21) 株式会社東レリサーチセンター, H.P. URL:[https://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/surface/sur\\_002.html](https://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/surface/sur_002.html)
- 22) 株式会社東レリサーチセンター, H.P. URL:[https://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/surface/sur\\_005.html](https://www.toray-research.co.jp/technical-info/analysis/surface/sur_005.html)
- 23) T. Skydstrup et al., Green Chem., 26, 815-824 (2024)
- 24) A. Ahrens, et al., Nature, 617, 730-737 (2023)
- 25) 「省エネ型熱分解法による長繊維リサイクル炭素繊維回収技術」, 廃棄物資源循環学会誌, pp. 371-378 (2013).
- 26) 資源エネルギー庁, 「エネルギー源別標準発熱量・炭素排出係数」.
- 27) 炭素繊維協会, 「炭素繊維の LCI データの概要」, 技術情報, URL:<https://www.carbonfiber.gr.jp/tech/lci.html>
- 28) The Life Cycle Assessment of Platinum Group Metals, Reference Year 2022.

[特許、展示会出展、プレスリリース等の実績]

- ・炭素繊維不織布基材、炭素繊維強化複合材料用成形材料、炭素繊維強化複合材料, 特願 2025-129113
- ・抄紙用改質炭素繊維, 特願 2025-185313
- ・プレスリリース実施, 炭素繊維の力学特性・表面品位を維持可能なリサイクル新技術を創出  
～炭素繊維不織布などから用途展開を推進～, 2025/10/31
- ・展示会出展, nano tech 2026 第 25 回 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議, 2026/1/28-30
- ・展示会出展, 第1回高機能素材 week 名古屋, 2026/2/18-20