

環境研究総合推進費 令和元年度終了課題成果報告会

研究課題名3-1706:

ナノセルロース系廃材を利用したリサイクル樹脂の改質

研究代表者:

遠藤貴士[国研 産業技術総合研究所 機能化学研究部門]

研究分担者:

伊藤弘和(事業実施担当)、岩本伸一郎[国研 産業技術総合研究所 機能化学研究部門]

寺本好邦[国大 京都大学大学院 農学研究科]

山内恒生[国大 岐阜大学 応用生物科学部]

大峠慎二[トクラス株式会社]

合田公一[国大 山口大学大学院創成科学研究科]

研究実施期間:

平成29年度～令和元年度

研究経費:

75百万円(3カ年累計)

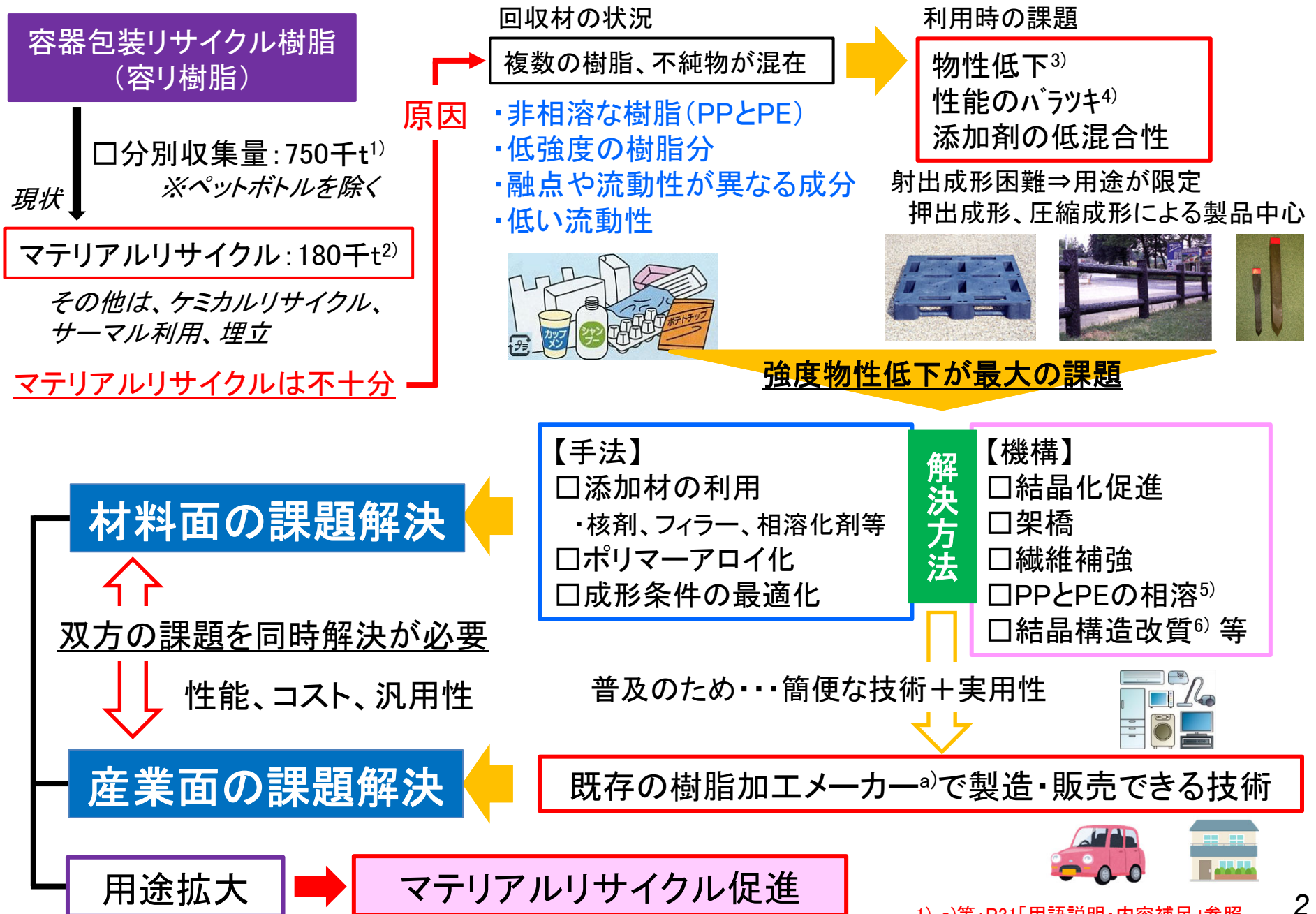
行政ニーズ

申請時:【重点課題⑨】3Rを推進する技術・社会システムの構築

終了時:【重点課題④】環境問題の解決に資する新たな技術シーズの発掘・活用

【重点課題⑪】ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発

研究開発の背景(容リ樹脂のマテリアルリサイクル拡大に向けて)



課題解決方法(容リ樹脂の強度物性向上)

樹脂補強の従来技術

= 繊維・無機フィラーによる補強

課題

- ◇流動性低下
- ◇金型・装置の摩耗
- ◇マテリアルリサイクル困難

新素材による樹脂補強

ナノセルロース(CNF)の活用

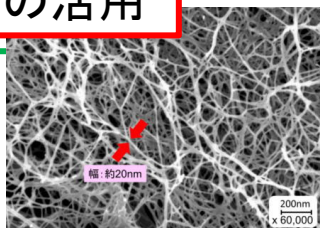
CNF補強樹脂の特徴

□CNFの特徴

- ・高強度なナノ繊維
- ・結晶核剤の役割

□補強材の特徴

- ・少量添加で効果発現(高流動)
- ・フレキシブルな有機物(低摩耗)
- ・超微細で破断しにくい(高リサイクル)



補強 + α の性能

注目ターゲット: 軽量化

自動車用途CNF補強樹脂: 2030年: 27万t⁷⁾



NCV

CNFによる容リ樹脂改質

非相溶な樹脂

強度物性低下の主要因

低強度樹脂成分

繊維補強

+

結晶化促進

バージン樹脂同等以上の強度

材料面の課題解決方法

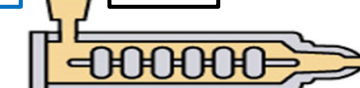
CNFを活用した
樹脂改質用添加剤

既存樹脂加工メーカーで
容易に導入できる技術で

⇒容リ樹脂再ペレット化時に添加

改質用
添加剤

容リ
樹脂



汎用再ペレット化装置

改質容リ樹脂

簡便な製造手法

バージン樹脂同等以下のコスト

産業面の課題解決方法

サブテーマ構成と開発テーマ(用語解説)

研究課題名3-1706:

ナノセルロース系廃材を利用したリサイクル樹脂の改質

サブテーマ1: 産業技術総合研究所
CNF複合材製品廃材から高相容化補強材の合成



CNF補強樹脂廃材からの
補強添加剤の開発

サブテーマ2: 京都大学/岐阜大学
CNF製造廃材(脱水スラッジ)から界面結晶核剤の合成



CNF脱水廃液からの
結晶核剤の開発

サブテーマ3: トクラス(株)
リサイクル樹脂の改質(コンパウンド/実用性評価)



補強添加剤と結晶核剤による
容リ樹脂の改質実証

サブテーマ4: 山口大学
リサイクル樹脂の改質(成形評価)

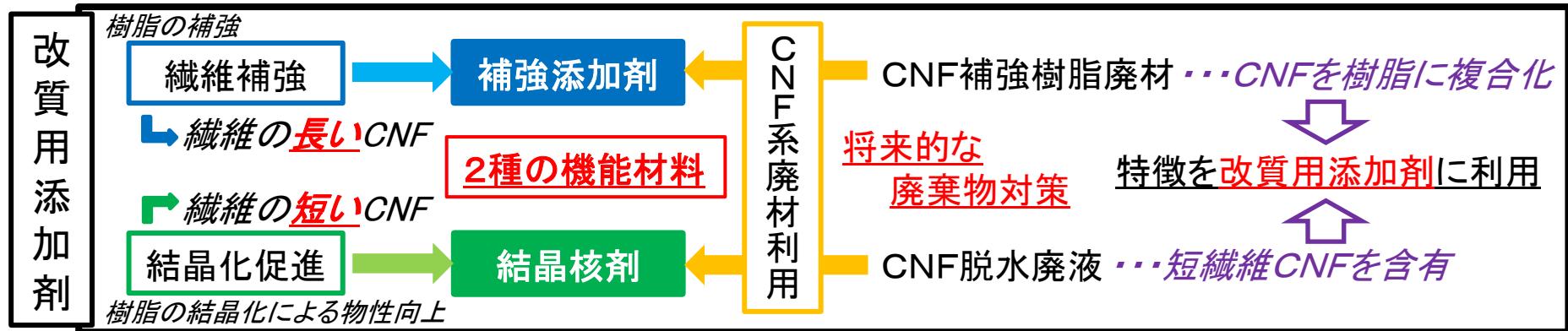


改質容リ樹脂の特性評価

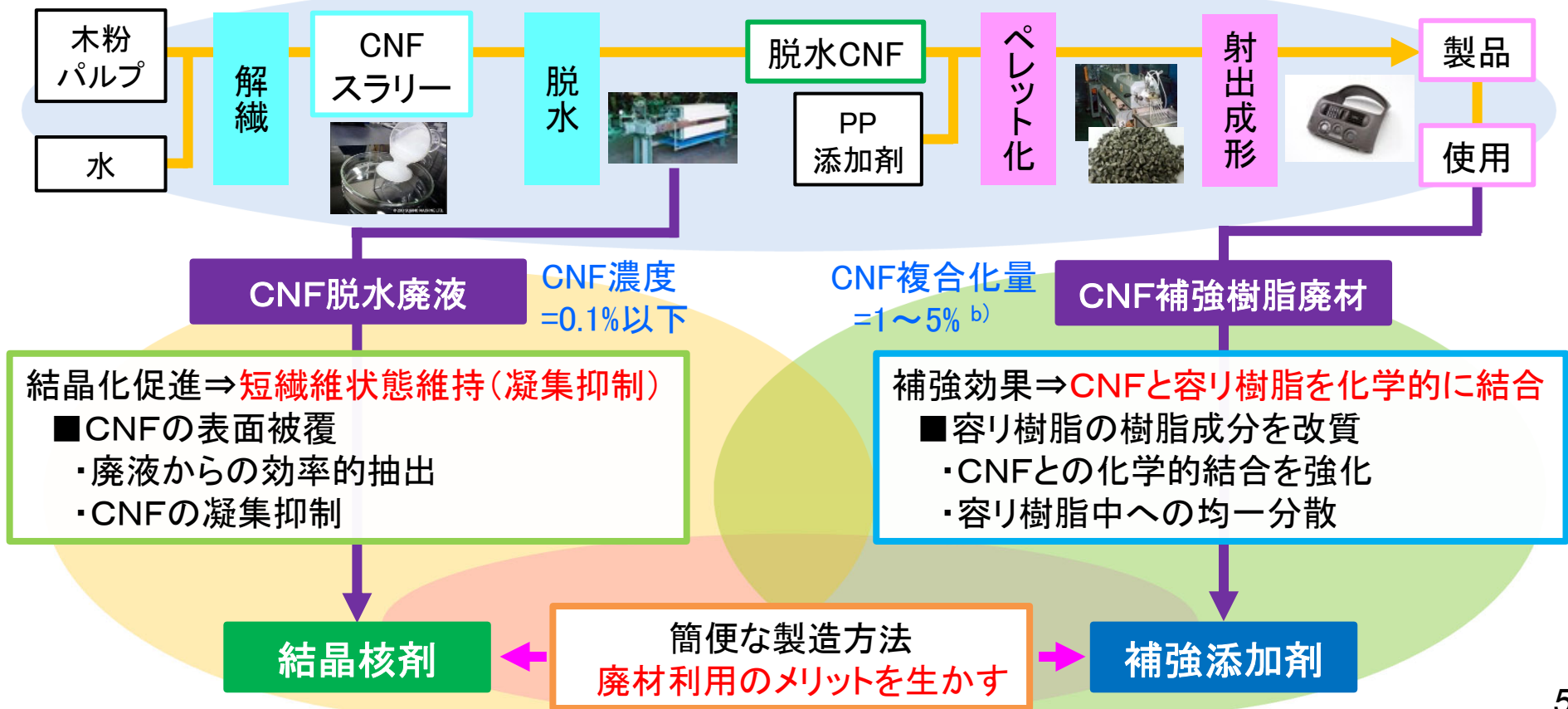
用語解説

- 容リ樹脂・・・容器包装リサイクル樹脂(本研究で性能向上の主対象としたリサイクル樹脂)
- CNF補強樹脂廃材・・・CNF複合材製品廃材中の樹脂部材の廃材
- CNF脱水廃液・・・メーカーにてCNF製造時に脱水工程で排出される短繊維CNFを含む廃液
- 補強添加剤
 - ・・・CNF補強樹脂廃材を用いて製造した容リ樹脂の補強および流動性改質用の添加剤
- 結晶核剤
 - ・・・CNF製造時の脱水廃液スラッジ中の(低質)短繊維CNFを用いた容リ樹脂の結晶核剤

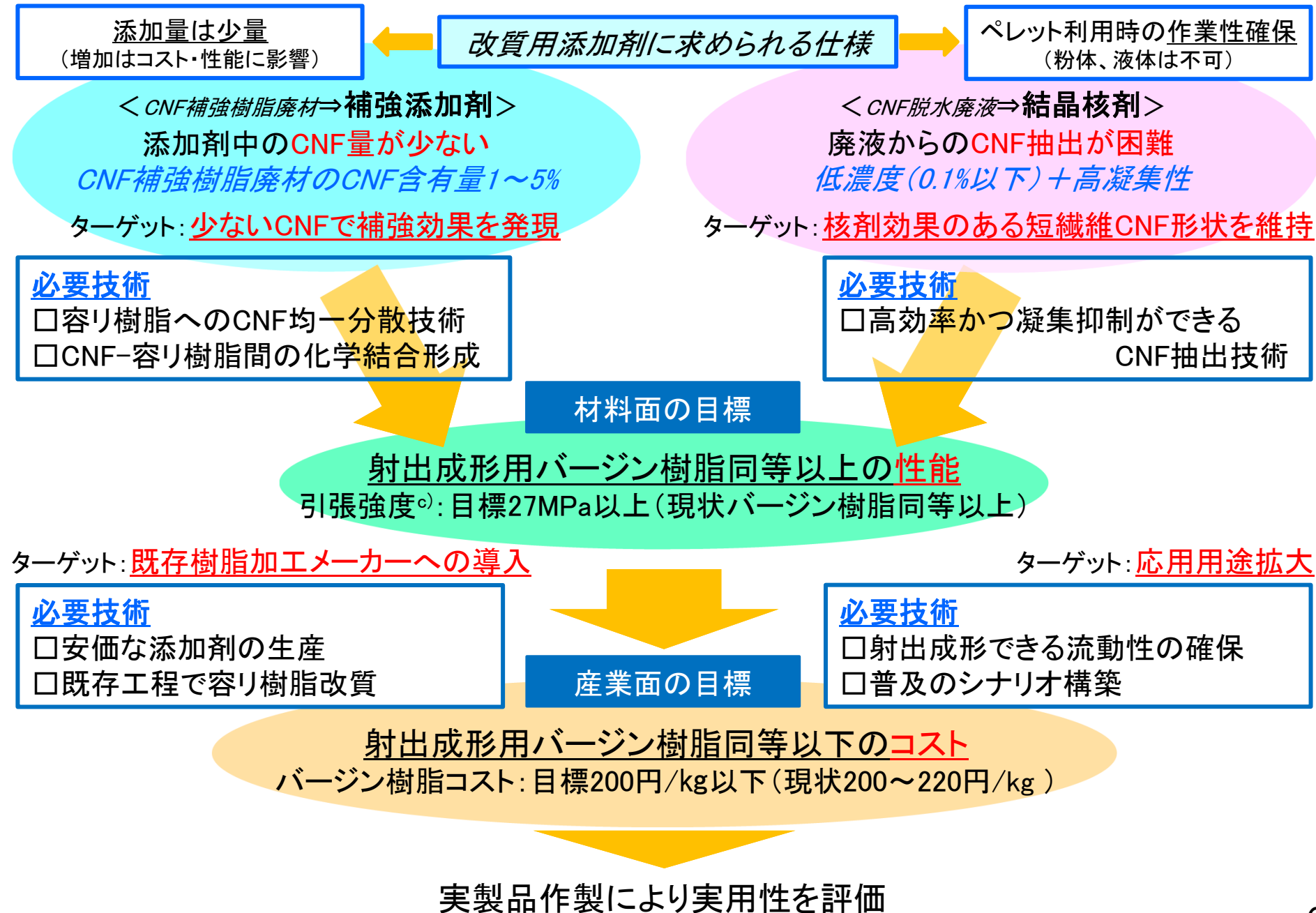
容リ樹脂を改質するCNF利用添加剤のコンセプト



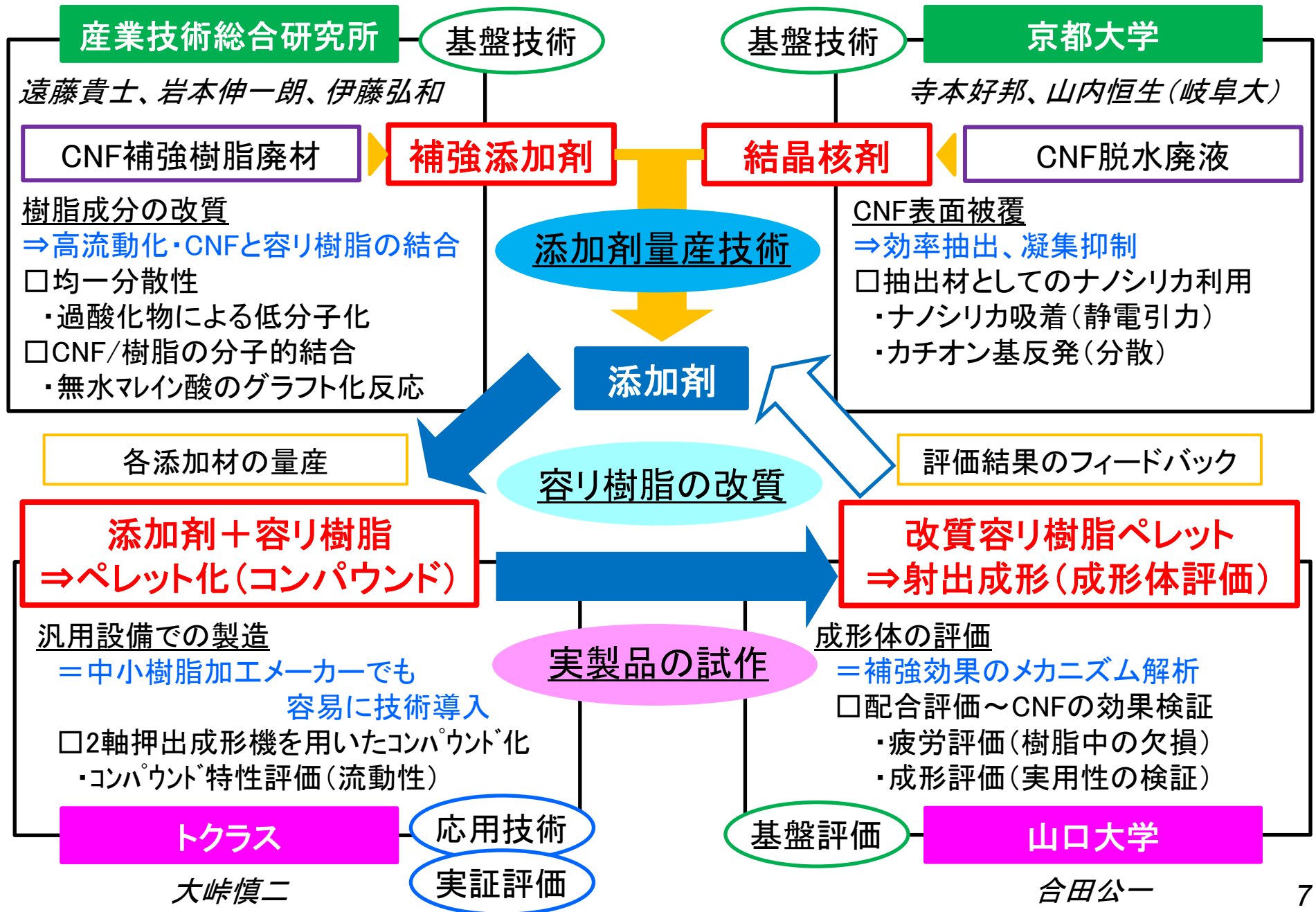
一般的なCNF補強樹脂製品の製造プロセス例



本研究の目的と目標(値)



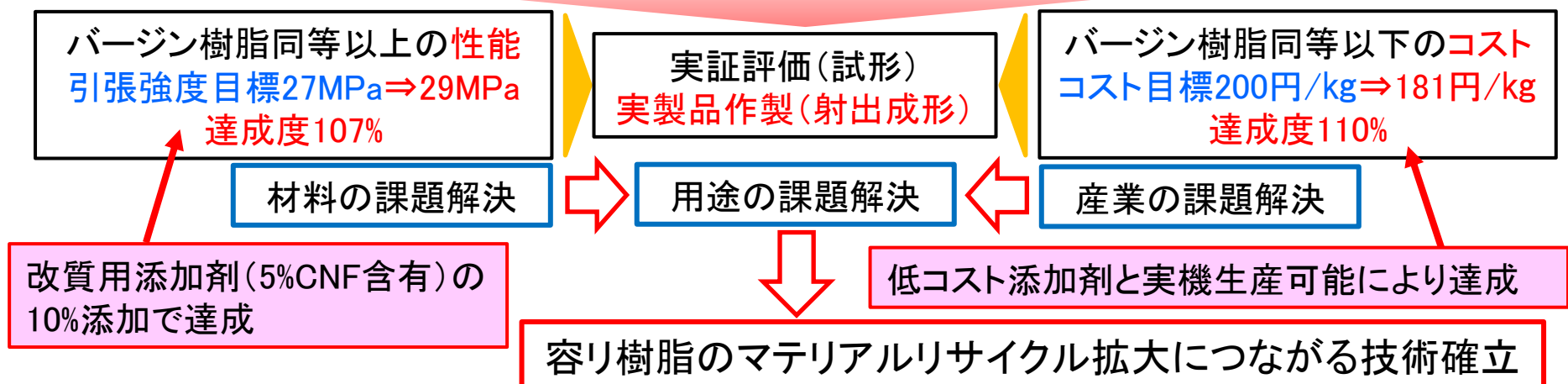
研究体制(目標達成に向けた各機関の役割)



目標と達成度(各サブテーマの目標と年度別成果)

全てのサブテーマで目標(計画)達成⇒**研究目標達成**

	平成29年度	平成30年度	令和元年度
補強 添加材	CNFの均一分散 流動性(MFR ^d): 100g/10min 以上⇒536g/10min	CNFと容リ樹脂の結合 CNFと結合する接点の割合 (グラフト率 ^e): 1.0%以上⇒1.7%	補強添加剤の量産 製造条件確立 ～汎用設備での量産
結晶核剤	核剤効果のメカニズム解析 短CNFによる結晶化促進 効果を確認	廃液より効率的抽出(脱水) 簡易+効率抽出+凝集抑制 となるCNF表面処理法確立	結晶核剤の量産 製造条件確立 ～汎用設備での量産
改質 容リ樹脂	ペレット化条件の確立 添加剤の配合評価～目標性能を確保する製造条件の確立 +射出成形ができる流動性確保(MFR: 10g/10min以上)		改質容リ樹脂ペレットの量産 押出成形機(汎用設備)での 量産
	成形性・成形体の評価 汎用射出成形機での成形～改質効果のメカニズム検証⇒(射出成形による実製品試作)		



研究成果(研究課題全体)

CNF補強樹脂廃材⇒補強添加剤

容リ樹脂改質の添加剤

CNF脱水廃液⇒結晶核剤

非相溶な樹脂の補強

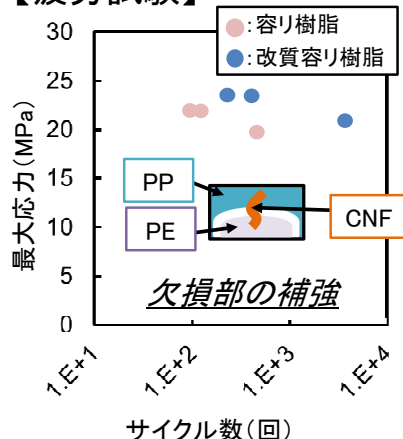
2種の添加剤を容リ樹脂に添加

低強度樹脂分の結晶化

CNFによる**繊維補強**

CNFによる**結晶化促進**

【疲労試験】



結合点の増加(高グラフト率)
⇒少量添加で効果発現

CNF複合材廃材50円/kg・量産時原価

150円/kg

⇒市販の補強材

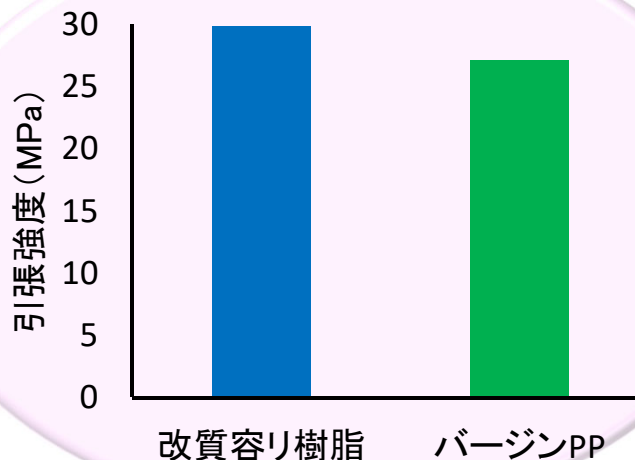
マスターバッチより安価

市販品:300~500円/kg



建材用途(排水溝カバー)

バージン樹脂同等以上の強度



バージン樹脂同等以下のコスト

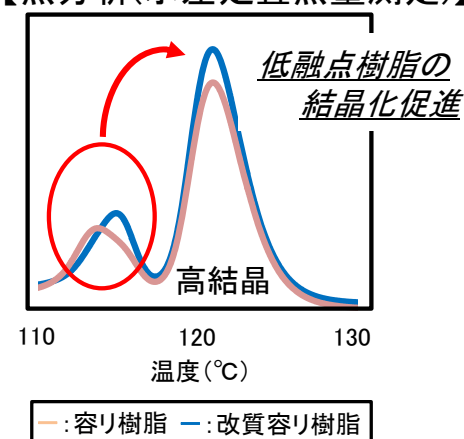
汎用設備(2軸押出成形機)でペレット化

改質容リ樹脂	バージンPP
181円/kg*	200円/kg

実製品(射出成形)での実証

* 製造原価・・・実用化時には126円/kgまで低コスト化試算

【熱分析(示差走査熱量測定)】



効率抽出+凝集抑制(同時)
⇒樹脂への複合工程の簡素化

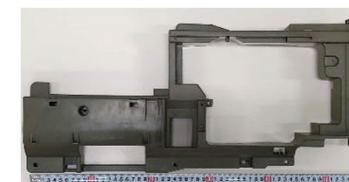
量産時

661円/kg

⇒市販の結晶核剤

より安価

市販品:1,000~5,000円/kg



家電用途(複写機部品)

研究成果(CNF脱水廃液⇒結晶核剤)

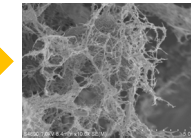
CNF脱水廃液利用

廃液CNFは低濃度(0.1%以下)

↳ CNFの効率的な抽出

CNFは易凝集性

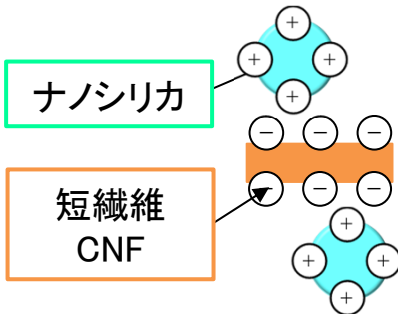
↳ 短繊維形状の維持



廃液中の超微細CNF

再利用が困難

京都大学考察モデル



CNFにナノシリカが吸着

静電的引力

CNFの重量増⇒沈降・分離

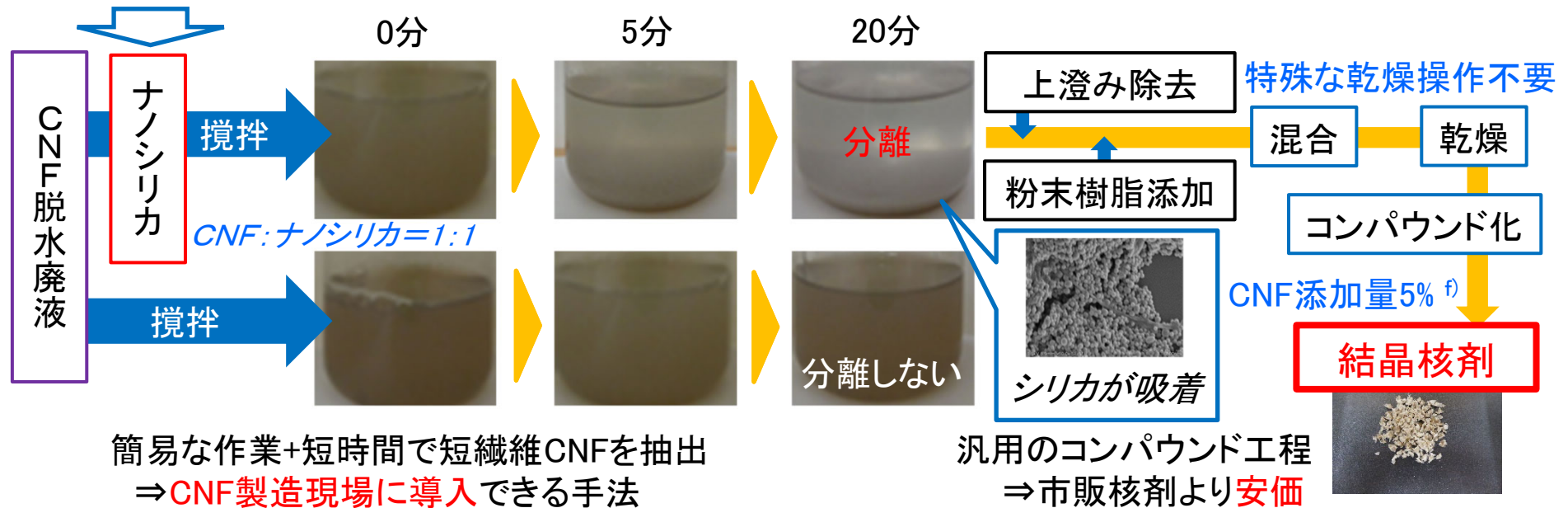
CNF表面を凝集性の低い

シリカで被覆

⇒CNFの凝集抑制

表面電位の異なるナノシリカ利用

※ゼータ電位(pH7): セルロース=-6、ナノシリカ=57



ナノシリカの活用＝抽出と凝集抑制の2つの効果を発揮するCNFの表面処理技術確立

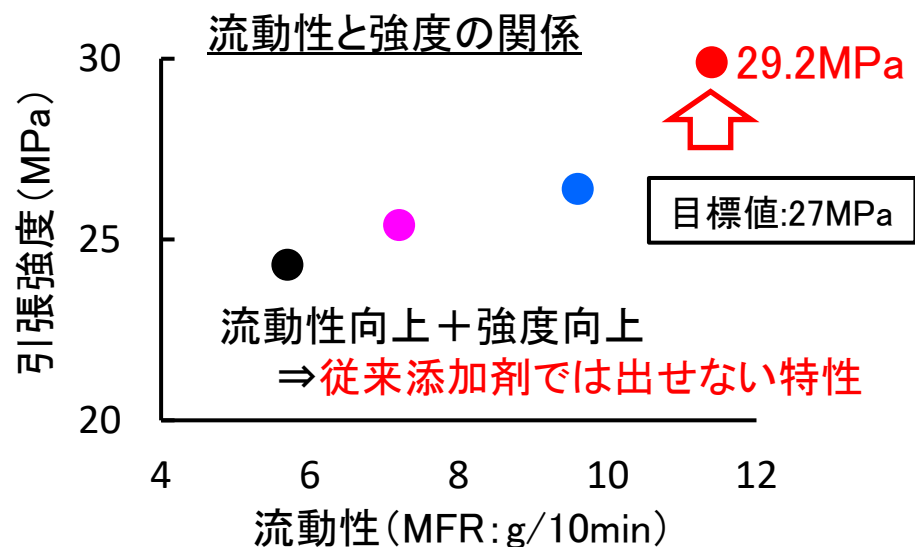
研究成果の実証(実製品での試作)

容リ樹脂用途⇒押出、圧縮成形中心

樹脂製品の多くは射出成形

容リ樹脂は流動性が低い⇒大型や複雑形状の射出成形製品には不向き

本研究成果⇒容リ樹脂の流動性向上



射出成形用途へ展開
⇒容リ樹脂の用途拡大

研究成果の応用性実証

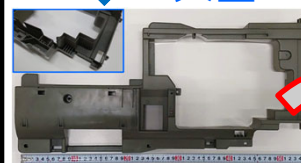
無機フィラー添加による剛性(ヤング率)改善

無機フィラー添加⇒流動性低下

	MFR
容リ樹脂	5.7g/10min
容リ樹脂+タルク20%	4.5g/10min
本研究成果+タルク20%	10.1g/10min

流動性向上

※タルク: 汎用樹脂補強無機フィラー
大型+複雑形状の射出成形可能



実製品試作

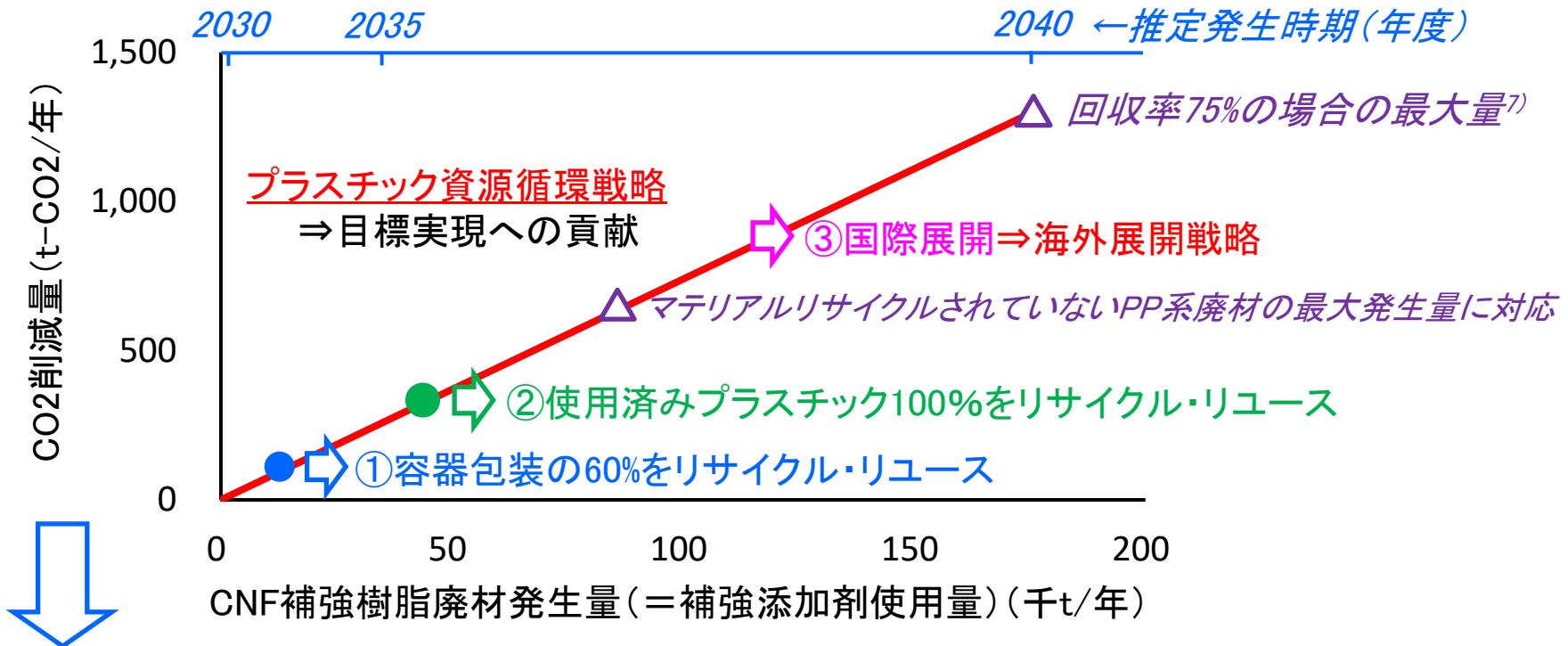
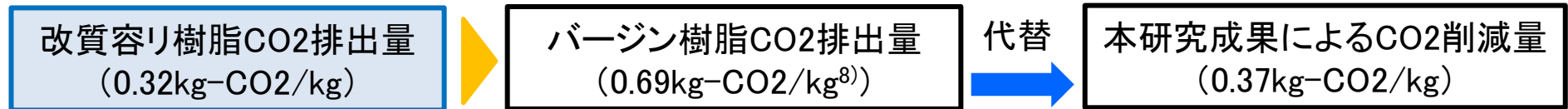


コニカミノルタ社製
複合機(bizhub501)
⇒内部装置カバー

さらなる用途拡大の可能性

フィラー添加容リ樹脂の射出成形を実現

環境政策への貢献



本研究成果の
最大ポテンシャル
⇒130万t-CO2/年の削減

※補強添加剤を
5%添加とした場合

国内プラスチック廃材マテリアルリサイクルにおけるCO2削減量見込み

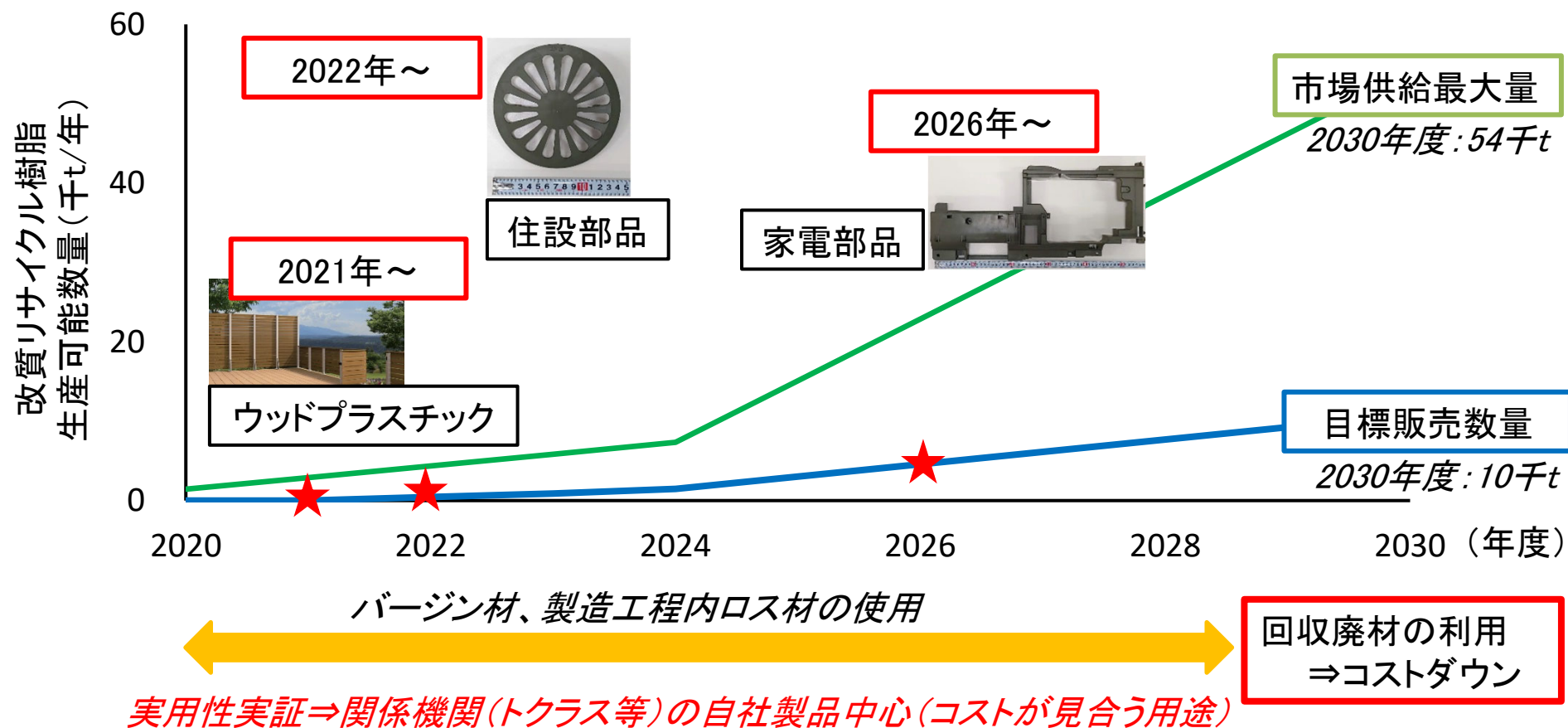
対象	発生量	CO2削減量
マテリアル利用されていない 容器包装樹脂廃材	57万t	最大20万t/年
マテリアル利用されていない PP系廃材	145万t	最大53万t/年

2030年度以降⇒補強添加剤の供給可能量増加
※CNF補強樹脂廃材量が増加見込み
自動車用途への普及推定⁷⁾⇔自動車部品の耐久年数⁹⁾

2030年までの
有用性実証が重要

事業化計画(2030年までの製品戦略)

実用性実証⇒容リ樹脂が普及できていない用途を中心(+既存環境省事業との連携)



製品	ポイント	本成果の役割
ウッドプラスチック製品	添加剤の量産製造実証	容リ樹脂利用比率の増大
住宅設備部材(トクラス部材)	バージン材使用での採算性	複雑形状(射出成形)への対応
家電部材(限定機種)	環境貢献部品の拡大	大型/複雑製品(射出成形)への対応

研究成果の公表

□イベント・セミナーにおける成果・取り組み紹介(国民との科学・技術対話)

- 1)寺本好邦、2017年9月、第5回高機能プラスチック展
- 2)伊藤弘和、2017年10月、とくしま高機能素材活用促進フォーラム
- 3)寺本好邦、2017年10月、岐阜大学産学連携フェア2017
- 4)寺本好邦、2017年12月、岐阜県立大垣北高等学校スーパーグローバルハイスクール
- 5)遠藤貴士、2018年6月、石川県次世代サイン業育成講座新技術セミナー
- 6)伊藤弘和、2018年6月、国際ナノセルロースシンポジウム
- 7)伊藤弘和、2018年7月、日本ゴム協会第53回夏期講座
- 8)遠藤貴士、2018年12月、エコプロダクツ展

□学会・シンポジウム等における発表

- 1)Hanis Balqis、合田公一、大峠慎二他、2019年3月、
ナノ繊維・粒子添加複合材料研究に関する若手研究者・学生セッション2019
- 2)金丸淳平、2019年3月、山口大学卒業論文、
セルロースナノファイバーを含有するリサイクル樹脂複合材料の疲労寿命

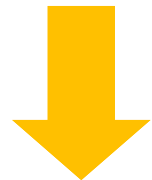
□論文

- 1)S. NIWA, T. OGAWA, S. OGOE, Y. TERAMOTO: *Polymer* 185, 121963 (2019), “Wetting and localization of compatibilizers in biocomposites: A nanoscale evaluation and effects on physical properties”

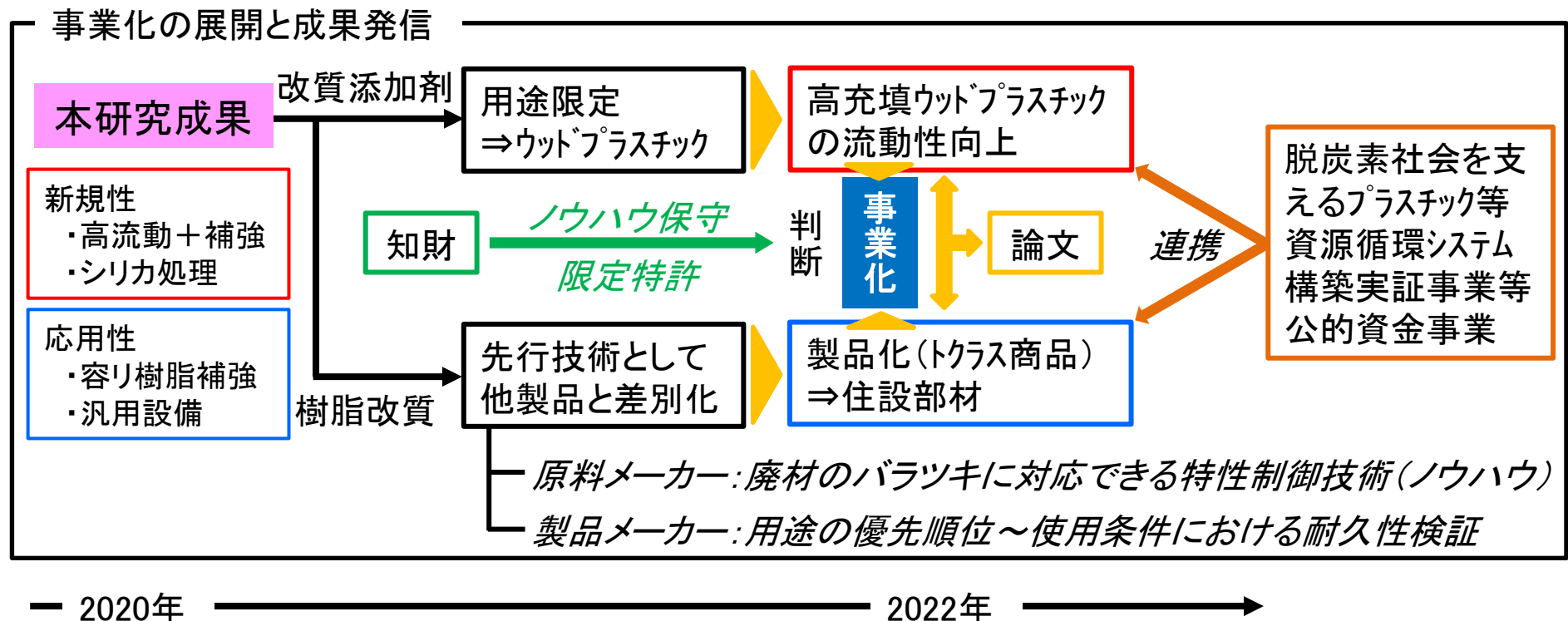
今後：流動性向上と補強の両立やナノシリカによる低濃度CNFの分離・凝集抑制については、従来にはない知見である。これら成果は、実用化時においても技術の裏付けとなる。本研究は、企業の製品開発の推進を中心としていいるため、今後、さらなる論文・特許については、当該事業参画企業および連携企業の事業化計画を考慮して検討する。

成果の発展

本研究: ナノセルローズ系廃材を利用したリサイクル樹脂の改質



ナノセルローズ複合製品の普及(ナノセルローズ系廃材の排出)に限定せずに
容り樹脂の改質による高性能製品開発へ展開



まとめ

CNF系廃材を利用した容リ樹脂の改質

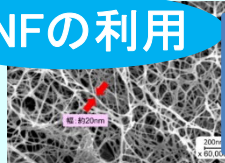
容リ樹脂の課題

物性低下

CNF系廃材の利用

解決手段

CNFの利用



樹脂補強
結晶化

実用化

中小樹脂加工メーカーで
容易に導入
◇改質用添加剤＋汎用設備利用

改質容リ樹脂：性能目標・コスト目標達成

商用を見据えた成果

容リ樹脂の未導入分野へ用途提案

添加剤・改質容リ樹脂ペレットの量産

流動性向上
⇒射出成形可能



実製品で実証

改質容リ樹脂ペレット製造技術

改質容リ樹脂利用製品成形

簡単な製法

実機実証で裏付け

樹脂加工メーカーへ
導入可能

製品メーカーへ
導入可能

容リ樹脂のマテリアルリサイクル拡大

導入促進

プラスチック資源循環戦略
海外展開戦略

環境政策への貢献

環境省事業との連携

成果普及の加速
環境事業の広がり

補足資料

- ☐ その他の成果
- ☐ 指摘事項への対応
- ☐ 補強添加材
- ☐ 結晶核剤
- ☐ 容リ樹脂改質(ペレット化)
- ☐ 容リ樹脂改質(成形・成形体評価)
- ☐ 他事業との連携
- ☐ 参考資料
- ☐ 用語説明・内容補足

成果一覧

□国民との科学・技術対話(研究成果紹介)

- 1)寺本好邦、2017年9月、第5回高機能プラスチック展
- 2)伊藤弘和、2017年10月、とくしま高機能素材活用促進フォーラム
- 3)寺本好邦、2017年10月、岐阜大学産学連携フェア2017
- 4)寺本好邦、2017年12月、岐阜県立大垣北高等学校スーパーグローバルハイスクール
- 5)遠藤貴士、2018年6月、石川県次世代サイン業育成講座新技術セミナー
- 6)伊藤弘和、2018年6月、国際ナノセルロースシンポジウム
- 7)伊藤弘和、2018年7月、日本ゴム協会第53回夏期講座
- 8)遠藤貴士、2018年12月、エコプロダクツ

□学会・シンポジウム等における発表

- 1)Hanis Balqis、合田公一、大峠慎二他、2019年3月、ナノ繊維・粒子添加複合材料研究に関する若手研究者・学生セッション2019
- 2)金丸淳平、2019年3月、山口大学卒業論文、セルロースナノファイバーを含有するリサイクル樹脂複合材料の疲労寿命

□論文

- 1)S. NIWA, T. OGAWA, S. OGOE, Y. TERAMOTO: *Polymer* 185, 121963 (2019), “Wetting and localization of compatibilizers in biocomposites: A nanoscale evaluation and effects on physical properties”

□国際共同研究等の状況

- 1)山口大学留学生(Hanis Balqis: マレーシア)、本研究課題(サブテーマ4)従事期間2018年4月～2019年3月

ご指摘事項への対応(採択時指摘事項)

評価者コメント	対応状況
将来の課題を先行的に解決しようという研究計画であって、有用。	・CNF補強樹脂製品は用途により、使用樹脂やCNF添加量が異なる。樹脂種類は通常の樹脂廃材同様識別は可能であると予想されるが、CNF添加量別の分別に関しては、容易ではない。しかし、連携先の静岡大学¹⁰⁾にて、「CNF添加量が5%を超える樹脂製品は、汎用の識別機での分別法」が実証されている。また、本研究にて、シミュレーション(Kelly-Tysonモデル)より、CNF添加量が5%を超える樹脂製品は、再ペレット化し、マテリアルリサイクルにおいても、バージン樹脂より20%以上の補強効果が発揮できる可能性を確認としている。これらのことから、CNF添加量5%以下のCNF補強樹脂廃材を本研究の対象とした。なお、5%を超える添加量のCNF補強樹脂廃材においては、他樹脂による希釈や改質剤添加量の調整により、本研究成果は適応できると考えられる。 ・CNF利用製品拡大に伴い、CNF製造時に発生する廃液も増大することが見込まれる。大型の廃液処理設備を有していない製紙メーカー以外のCNF製造メーカーでは、廃液の処理費用が課題となる。そこで、本研究で使用したCNF脱水廃液は、処理施設を有していないCNF製造メーカーから入手した脱水廃液を使用した。
一部、基礎的検討が必要であるようであるが、システマティックな戦略が立てられている。	・基礎的検討では、導入現場における品質管理にも活用できることを前提とした。本研究では、廃材で想定されるバラツキを変動因子とし、化学的、物理的評価を行い、メカニズムを解析した。また、基礎的検討では、高度な解析技術を要する評価手法(熱分析による結晶化評価等)により検証したが、これらは、マニュアル化することで、現場での品質管理にも活用が可能である。
3年後の成果を期待する。	・本研究計画は、CNF系廃材を用い、性能およびコスト目標を達成できる容り樹脂改質用の添加剤の開発が目的であったが、企業が参画機関である強みを活かし、実製品試作を実施して実証評価まで進めた。実成形機を用いた実製品の製造が実証できたことで、実用化を見据えた事業化計画を策定した。

ご指摘事項への対応(採択時指摘事項)

評価者コメント	対応状況
この複合材料の再利用がどのくらい効果的なのか。特にコストの面から導入できない可能性がある。プラスチック全体としてのインパクトは？	・自動車用途のCNF補強樹脂製品は、2030年に27万t⁷⁾の需要が見込まれており、この使用済み廃材のリサイクル技術確立は不可欠である。 ・添加剤および改質容り樹脂再ペレット化とも汎用設備での製造方法を確立するとともに、バージンPP市況価格(200円/kg)と比較して、181円/kg(実用化時)となり、コストダウンを実現した。また、コスト試算におけるCNF補強樹脂廃材調達価格は連携先の静岡大学⁹⁾が実証したコストを参考した。 ・本研究では、容り樹脂を対象としているが、バージンPP樹脂の改質剤としても使用可能である。さらに開発した改質添加剤は、流動性向上や変性樹脂(フィラーとプラスチックの結合剤)としての効果も有するため、無機フィラー等充填樹脂への利用が期待できる。本研究においても、フィラー充填樹脂製品(タルク添加樹脂製品)にて、実証した。
種々の検討課題が残されているが、学術的新規性がある。	・流動性向上と補強の両立、ナノリカによる分離・凝集抑制技術は、従来にはない知見である。これら成果は、実用化における技術の裏付けにもなるため、今後、さらに論文等で対外的な発信を予定している。ただし、本研究は、企業の製品開発の推進を中心としていいるため、今後、さらなる論文・特許については、当該事業参画企業および連携企業の事業化計画を考慮して検討する。
コスト削減効果は出るものと期待できるが、脱水スラッジ等中の不純物等の影響や精製に必要な作業が問題となりそうだ。	・平成30年度からは、実際に製造現場で発生するCNF脱水廃液(モリマシナリー社セルフフィルム製造時の廃液)を用い評価を行い、結晶核剤としての性能目標を達成した。また、希薄廃液からのCNF抽出においても、簡易な工程(ナノリカを添加ー攪拌ー短時間の静置)で分離する技術を確認した。この抽出方法は、特殊な装置を必要としないためメーカー等のCNF製造現場への導入は容易である。

ご指摘事項への対応(採択時指摘事項)

評価者コメント	対応状況
CNFのリサイクル戦略を構想する上では興味深いが、基本的にスラッジや廃棄物を扱うセン スが弱いので、これだけピュア でエクセレントな道筋を歩むこと ができるかどうか疑問である。 中間評価でしっかり確認し、 POの指導の下で推進をはかること。	・CNF補強樹脂廃材では、様々な配合の製品が想定されるが、本研究では、最終的な材料の強度物性や成形加工性へ影響が大きいと考えられるCNF添加量については、CNF添加量5%以下の廃材が妥当として評価を実施した。改質添加剤を用いることによる流動性の変化については、CNF添加量に関係なく流動性が向上する結果を得た。補強効果に関しては、CNF5%の改質用添加剤を容リ樹脂に10%添加することで、強度目標を達成した。現状、CNF補強樹脂廃材は、発生していない廃材であり、今後、事業化検討では、トクラス等が実施している環境省関連のプロジェクトと連携し、実態に即した廃材を対象として進める計画である。 ・CNF脱水廃液においては、前述の通り、実際のCNF製造メーカーの現場から入手した廃液を用いて評価を実施した。 ・POの指示のもと、成果を具現化できる、実際の製品(複合機部品、システムバス部品)を実機を用いて試作評価した。また、CNF系廃材発生量に合わせた事業の立上げ計画を立案した。

ご指摘事項への対応(中間評価コメント)

評価者コメント	対応状況
リサイクル樹脂のアップグレードへの効果はあるとしても、CNF系廃材の有効利用における量的影響が見えない。	・CNF補強樹脂は、自動車用途で、2030年に27万t/年が見込まれている⁷⁾。この廃材をすべて本研究成果用に展開した場合、540万tの樹脂添加剤に相当する(容り樹脂に対し、5%添加として)。しかし、発生したCNF補強樹脂のすべてが、廃材として利用できるとは言えないが(本研究では、発生量の75%が利用できる廃材と想定して数量計算を実施)、マテリアルリサイクルされていない包装容器材量(57万t)からみると、十分対応できる量であると考えられる。 ・CNF製造量は、予測通りに市場展開が進んだ場合、2030年に約15～22万t/年が見込まれており⁷⁾、CNF脱水廃液は、1000万t/年以上(短繊維CNF量は1～5万t)発生すると考えられる。この廃液をすべて結晶核剤に展開した場合、計算上、補強樹脂は400万tとなる(1万トン廃液CNFを用い、CNF量5%の結晶核剤を樹脂に5%添加として)。廃材の回収等の課題はあるが、今後のCNF樹脂製品の市場拡大は、本研究成果の展開には重要である。
出口のイメージを具体的に示せるようにしてほしい。	・流動性が向上したことで、容り樹脂がこれまで展開できなかった大型や複雑形状の射出成形製品への利用が期待でき、本研究では、実機での実証も実施した。また、特殊設備を必要とせず、汎用設備で製造可能な技術であるため、中小の樹脂加工メーカーでも導入できる。具体的用途としては、建材や家電部品等の少量多品種製品がターゲットと想定される。本研究は、実証事例として、複写機部品と浴室排水溝ふたの射出成形品を試作した。
具体的な成果にむすびつくか。	・本研究成果の応用分野として想定されるのは、家電や建材用の射出成形製品であるが、現状、容り樹脂が利用されていない分野へ展開するためには、有効性を示す実績が必要となる。そこで、製品の性能面から容り樹脂をバージン樹脂で希釈して利用している用途から展開を図る。具体的には建材用途のウッドプラスチックを初期導入製品とする。ウッドプラスチック製品への利用に関しては、研究分担機関であるトラスが実施する予定。

ご指摘事項への対応(中間評価コメント)

評価者コメント	対応状況
サブテーマ1,2 の技術的な新規性と進捗がみえにくい。	・サブテーマ1では、少量のCNF添加量(0.1~0.5%/改質ポリ樹脂)で補強効果が発現している。さらに、補強と流動性向上を同時に実現する技術は、従来の無機系フィラー添加剤では実現できていなかったが、本研究ではCNF補強樹脂廃材の低分子化とCNFと樹脂の化学的結合を高める手法を導入し、目標性能を達成した。 ・サブテーマ2において、廃液に含まれている繊維長の短いCNFの核剤効果は、計画時点で予想されていた(本研究で検証)。しかしながら、CNFは水分分散状態で発生し、繊維長の短いCNFは、抽出・分に困難であった(懸濁液状態で安定)。一般的な高分子凝集剤を用いた抽出は可能であるが、核剤効果のある繊維長の短い状態のまま凝集を抑制してCNFを抽出することは困難である。本研究では、ナノシリカの表面電位を利用し混合のみでCNF表面を被覆、沈降させる抽出方法を確立した。さらに、凝集性の低いナノシリカの被覆により、脱水・乾燥が容易となり、製造コスト低減にも大きく寄与した。CNFにおいて、このようなシリカ利用は新しい知見である。
コストに関しての説明がほとんどなかった。最終的にはコスト的にも受け入れられることを示して欲しい。特に各原料の安定性とコストが大きく変わる可能性があるのが重要。微細低質スラッジは本当に効果があるのか疑問。	・汎用設備を用い試作した結果を踏まえ試算した結果、目標であるバージン樹脂同等以下の製造コストを実現した(バージンPP市況価格(200円/kg)と比較して、181円/kg(実用化時))。 ・CNF利用製品の市場拡大は現状、途上であるが、製造時に発生する工程内ロス材(射出成形のライナー部分、規格外品等)の使用も可能であり、開発した改質用添加剤は、少量生産でも対応できるため、発生量が少なく再ペレット利用に適していない工程内ロス品も利用可能である。 ・本研究で、繊維長の短いCNFが結晶化を促進することを確認した。さらに、CNF製造メーカーから入手した実際のCNF脱水廃液を用い、新しいナノシリカを用いた技術により結晶核剤を作製し、ポリ樹脂に添加することで、補強効果が発現することを確認した。

ご指摘事項への対応(中間評価コメント)

評価者コメント	対応状況
廃プラの性格をどのようにこのプロセスに組み込んで展開するか、CNFの製造スラッジの回収時の凝集剤の扱いなど、システムとしての技術の評価が不十分である。	・連携先の静岡大学¹⁰⁾にて、「CNF添加量が5%を超える樹脂製品は、汎用の識別機での分別法」が実証されている。分別できれば、廃材に合わせた配合で用改質添加剤は製造可能である。CNF添加量が5%以下の廃材の利用性は確認するため、本研究では、CNF添加量が1%(添加量が少ない製品を想定)と5%(分別ができない最大の添加量)のモデル廃材から補強添加剤を作製し、容リ樹脂への影響を評価した。流動性においては、積極的低分子化により、CNF添加量に関係なく、活用できることを確認した。補強効果においては、CNF量が少ない1%で目標物性を発揮できた。このため、CNF添加量が多種多様な廃材でも利用できることが確認された。 ・CNF脱水廃液からのCNF抽出に用いた抽出剤の除去工程は、経済性や生産性の観点から課題となる。そこで本研究では、結晶核剤中に残存しても、容リ樹脂改質に悪影響を及ぼさない抽出剤に主眼を置いた。その結果、有機系の凝集剤ではなく、ナノリカでCNF表面を被覆し抽出する手法を開発し、CNFを0%しか含有しない廃液からでも、効果的にCNFを分離・抽出でき、さらにCNF特有の凝集性を抑制して樹脂に容易に添加および補強できることを確認した。
ナノセルロース系廃材の物性の変化に対するリサイクル樹脂への汎用性を検討してほしい。	・現時点では、CNF補強樹脂の経時による物性変化についての評価例はない。しかしながら、自動車部品へ採用されるCNF補強樹脂は、長期使用における大きな物性低下がないことが条件であるため、CNF補強樹脂廃材の使用における物性低下は現状のフィラー添加樹脂と同等レベルと予想される。 ・CNF利用時の一般的な課題として、200℃を超える温度で混練すると、セルロース成分の劣化が想定される。したがって、改質用添加剤の製造時には、混練温度の管理が不可欠になる。この点は、市場展開時に改質添加剤の使用メーカー等に対し、製品製造上の注意点として説明する必要がある。

ご指摘事項への対応(中間評価コメント)

評価者コメント	対応状況
目標をもっと明確にすべきである。	・計画時は、広くりサイクル樹脂をターゲットとしたため、対象とする製品が多岐にわたり、目標が明確にできなかった。POの指導のもと、具体的対象を容リ樹脂としたことで、製品目標が明確となった。具体的には、従来、容リ樹脂では展開が難しかった射出成形による大型や複雑形状の製品をターゲットとし、実機を用いた実製品で製造により開発技術の有効性を実証した。これら実証では、少量多品種製品を製造してる中小樹脂加工メーカーにおいても導入できる製造技術であることを確認するため、これらメーカーが保有する同等設備を用い、添加剤や改質容リ樹脂の再ペレットを量産評価した。

補強添加剤

これまでに得ている知見＝木粉と容り樹脂の複合材にて、高流動・低融点の酸変性樹脂で補強効果大
(高流動樹脂はマスターバッチ(顔料系)製造でも有用⁴⁾)

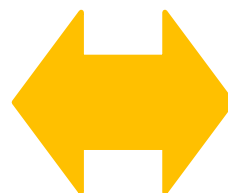


容り樹脂:融点や流動性の異なる樹脂が混在

①容り樹脂へのCNFの均一分散
⇒低分子化による高流動化

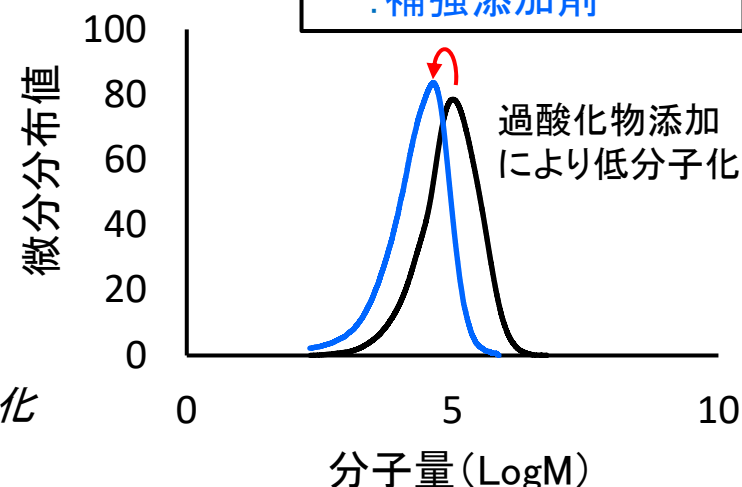
	融点	MFR
CNF補強樹脂廃材	163℃	12g/10min
過酸化合物添加		
補強添加材	146℃	536g/10min

目標値達成



低分子化
⇒高流動化

分子量分布



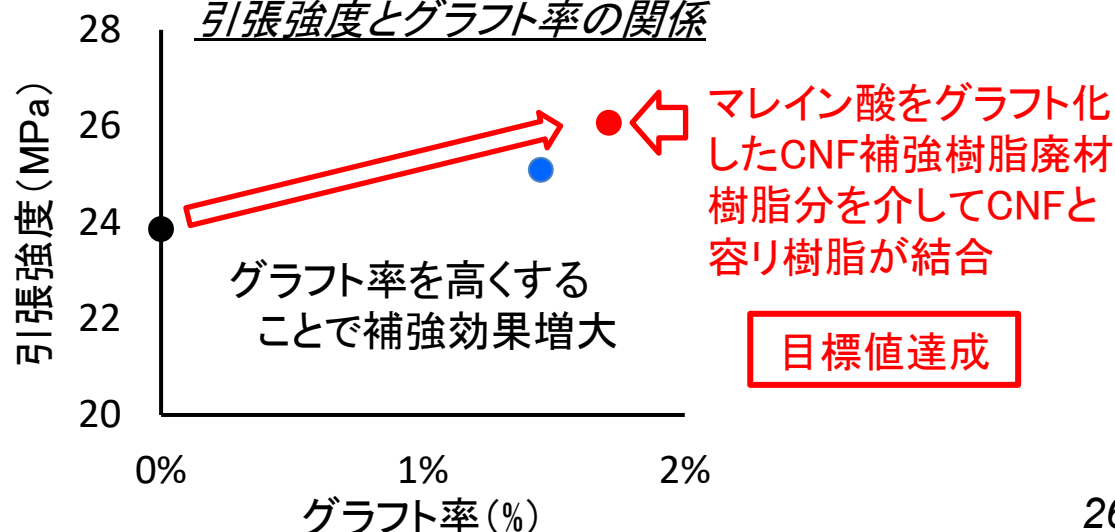
②CNFの補強効果
⇒CNFと容り樹脂を化学的に結合

無水マレイン酸添加

CNF補強樹脂廃材中の
樹脂分子にマレイン酸をグラフト化
⇒CNFと改質樹脂分子が
化学的に結合

グラフト率が高いほど、CNFと結合する
接点が増加、強度が向上する

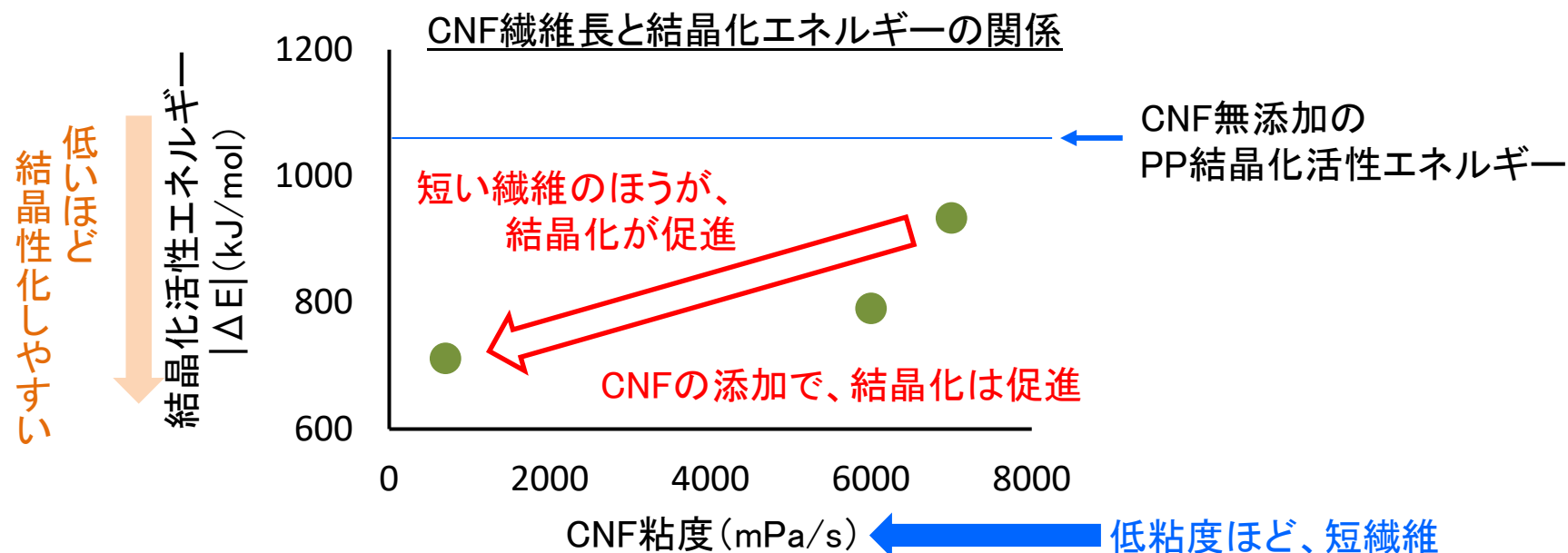
引張強度とグラフト率の関係



目標値達成

結晶核剤

①短いCNFの結晶化促進効果



②効率的抽出＋凝集抑制⇒簡便な工程で添加剤製造

結晶核剤製造コスト試算(中規模生産時[576t/年])

項目	単価	備考
原料費	505円/kg	抽出CNF、ナノシリカ、粉末樹脂
その他変動費	55円/kg	電力、副資材
固定費	101円/kg	人件費、償却費、管理費
計	661円/kg	

量産設備にて試作検証結果

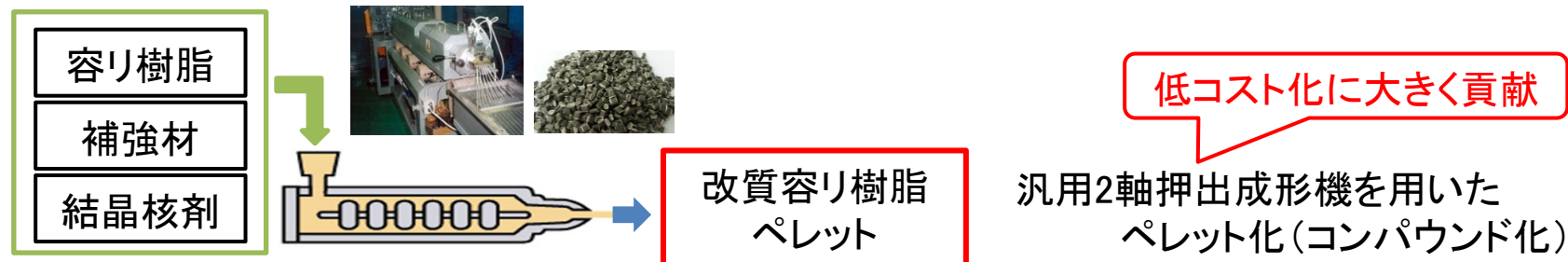
⇒ CNF製造現場での抽出

⇒ コンパウンド設備で製造可能
⇒ 100kg/hの生産規模で算出

市販核剤(1,000～5,000円/kg)より安価

容リ樹脂改質(ペレット化)

①コンパウンドメーカーの設備による生産手法確立



事業開始初期を想定(小型生産機)

容リ樹脂改質ペレット製造コスト試算(単価はペレット1kg当たり)

項目		単価	備考
原料費	補強材	26.8円/kg	@536円/kg(計算原価)、配合量5%
	結晶核剤	54.8円/kg	@1,095円/kg(計算原価)、配合量5%
	容リ樹脂	45円/kg	@50円/kg、配合量90%
その他		17.3円/kg	梱包材2.5円/kg、電力2.1円/kg、消耗資材12.7円/kg
加工費		36.7円/kg	人件費24.3円/kg、償却費10円/kg、管理費2.4円/kg
製造コスト		181円/kg	

製造原価で目標値達成



量産試作結果を踏まえ、さらなるコストダウンの可能性

◇成形トルク=40%減少・・・生産能力の向上

◇結晶核剤CNF高濃度化(5%⇒10%)・・・結晶核剤添加量の削減



さらに

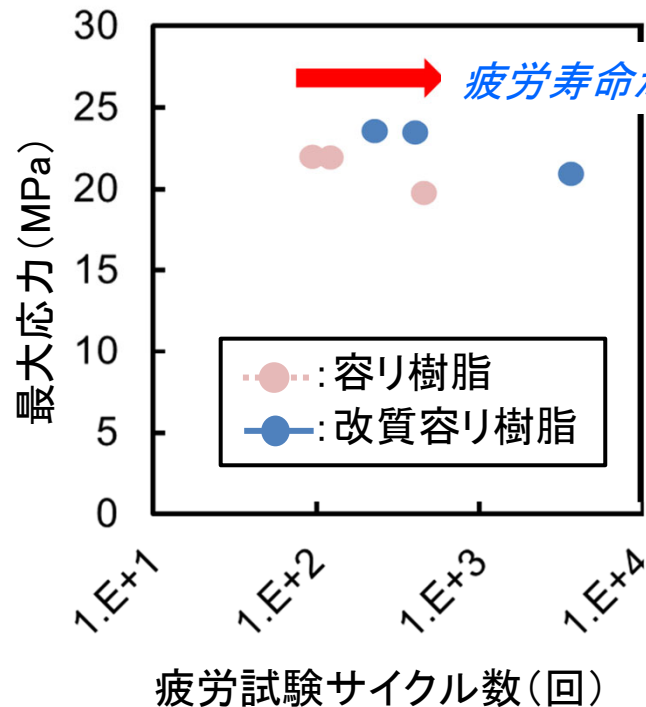
5～20円/kgの
コストダウン可能

⇒実用化時を想定した試算では製造原価126円(販売価格164円)/kgまで低コスト化

容リ樹脂改質(成形・成形体評価)

①CNFの補強効果⇒PPとPEの界面部を補強

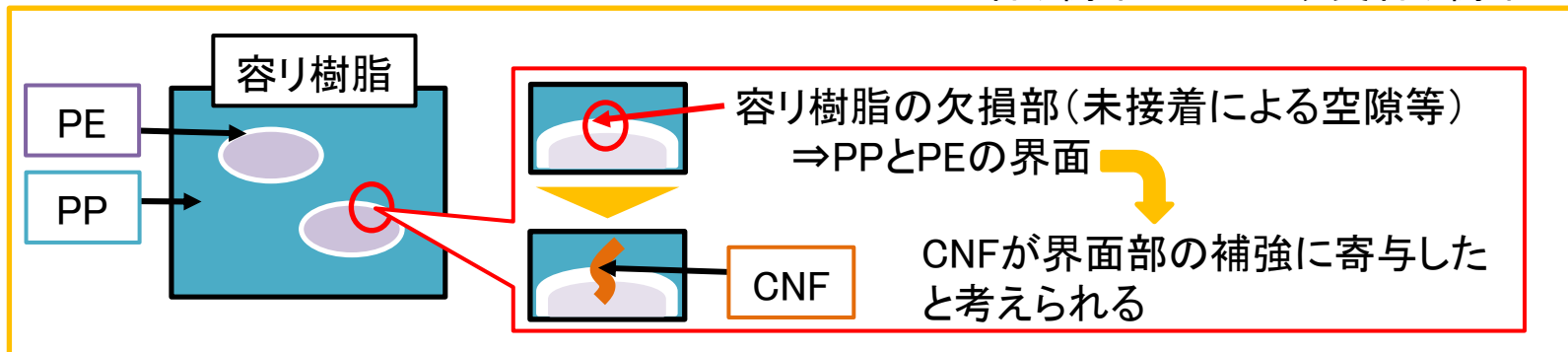
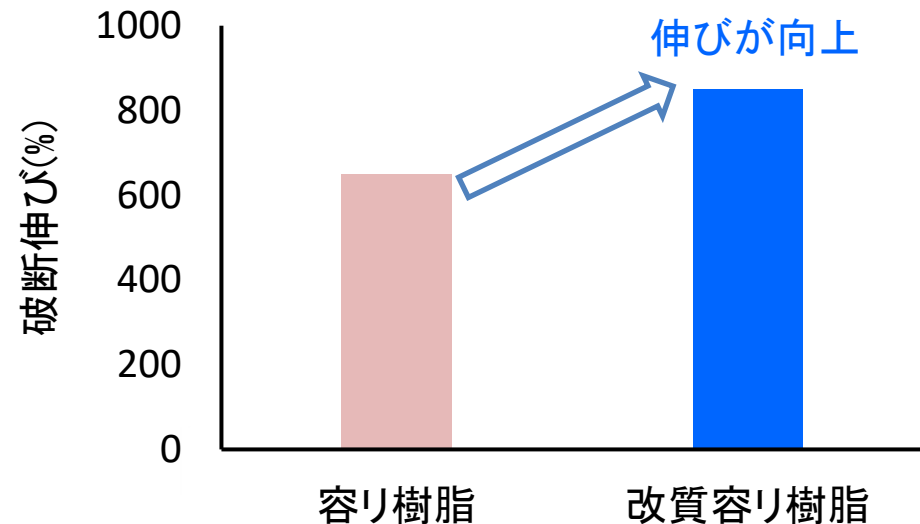
疲労試験評価⇒欠損部(弱いところ)から破壊発生



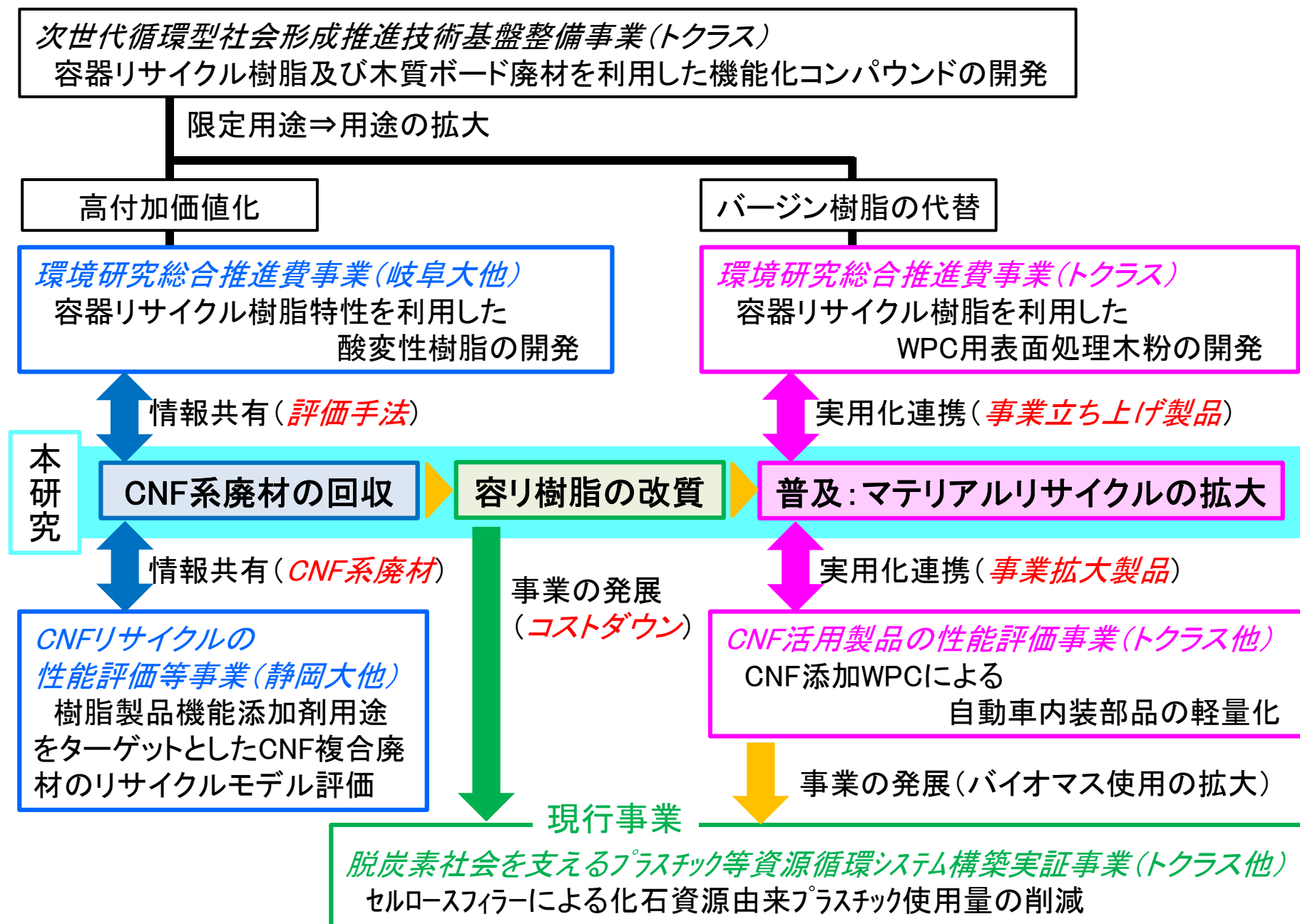
疲労寿命が向上

欠損部がCNFにより補強

強度向上+伸び向上⇒CNFの形状効果
(樹脂中で伸びた状態で存在していない)



他事業との連携（蓄積した成果の活用と現行事業との連携による実用化の加速）



参考資料

- 1)環境省:<http://www.env.go.jp/press/files/jp/104430.pdf>(平成30年度データ使用)
- 2)日本容器包装リサイクル協会:
https://www.jcpra.or.jp/recycle/related_data/tabid/510/index.php#Tab510(平成30年度データ使用)
- 3)高取,日本ゴム協会誌,87(11),2014
- 4)長岡,神戸製鋼技報,58(2),2008
- 5)中村,徳満ら,環境資源工学,54(4),2007
- 6)八尾,富永,廃棄物資源循環学会誌,29(2),2018
- 7)経済産業省:平成25年度製造基盤技術実態等調査報告書
- 8)プラスチック循環利用協会:プラスチックリサイクルの基礎知識
- 9)自動車検査登録情報協会:平成30年度平均使用年数
- 10)環境省:CNFリサイクルの性能評価事業、30年度樹脂製品機能性添加剤用途をターゲットとしたCNF複合廃材のリサイクルモデル評価

用語説明・内容補足

a)	既存の樹脂加工メーカー	本研究では、樹脂と着色剤や添加剤、充填材などの配合剤を押出成形機などで熔融混練（樹脂の溶ける温度で混練）し、ペレットなどに加工（コンパウンド）するメーカーを対象とする。また、樹脂加工メーカーは、中小企業も多く、本研究では、これら中小の樹脂加工メーカーでも導入できることを目標とする。
b)	CNF補強樹脂廃材のCNF添加量	CNF添加量が5%までは、実機の識別装置（ダイオーエンジニアリング製エアロソータ）にて、識別可能であるが、5%以下の場合、高度な分析が必要となる（環境省：CNFリサイクルの性能評価事業、静岡大学）。したがって、リサイクル現場で分別できない5%以下を対象とした。
c)	強度は、同じ樹脂でも成形条件により異なるため、実際の目標は、同一条件で製造したバージン樹脂の強度と同等以上。	
d)	MFR	流動性を評価する試験方法、数字が大きいほど流動性が高い。目標値は、容り樹脂中に含まれる高流動性樹脂分以上の流動性（鈴木、日本ゴム協会誌、56(8)、1983）。
e)	グラフト率	グラフト率は、樹脂の改質の指標、高いほどCNFと容り樹脂の結合が進む。目標値は、混練法で製造した市販変性樹脂の高グラフト製品同等以上。
f)	結晶核剤のCNF添加量	粉末樹脂と混合において、汎用のせん断型混合機（ヘンシェルミキサ等）で混合できる最大の添加量とした。