

木粉配合プラスチックのリサイクル性評価

田中 大策*1

Evaluation of Recyclability of Plastics Containing Wood Powder

Daisaku Tanaka

プラスチックの使用量削減を目的として、プラスチックに廃棄木粉を複合化させた材料が検討されている。これらの木粉配合プラスチックは製品として使用した後に、再び溶融し再成形することも可能であるが、押出成形を繰り返すことで、木粉の微細化や樹脂の低分子量化による材料物性の低下が懸念されている。本研究では、木粉を配合したプラスチックのリサイクルの可能性について検討するため、木粉配合プラスチックに対し、押出成形を繰り返すことによる各種物性の変化について検討した。その結果、今回の材料及び加工条件においては、木粉配合プラスチックをマテリアルリサイクル(水平リサイクル)できる可能性が確認された。

1 はじめに

日本では令和4年4月にプラスチック資源循環促進法が施行され、あらゆる場面でプラスチックの3R (Reduce, Reuse, Recycle) + R (Renewable) への対応が求められている。また、脱炭素化や石油価格高騰などにより、世界的に循環経済(サーキュラーエコノミー)の機運も高まっており、使用したプラスチックを再加工して再利用する、マテリアルリサイクル技術が重要となっている。例えば、欧州においては、新車製造時のプラスチック材料を、少なくとも25%は再生材に義務化することが検討されている¹⁾。しかしながら、マテリアルリサイクルは、熱劣化に伴う高分子の分子鎖切断や、不純物混入による欠陥生成などに起因した機械特性の低下が問題となっている。

また、プラスチックの使用量削減を目的に、バイオマス材料をプラスチックと複合化させたバイオマス配合プラスチックも検討されている。その一例として、プラスチックに廃棄木粉を複合化させたウッドプラスチックコンポジット(WPC)があげられる。プラスチックに熱可塑性樹脂を使用することにより、製品として使用したWPCを、再び溶融し再成形することも可能である。しかし、使用済みの木粉配合プラスチックを再生させるために押出成形を繰り返すと、木粉粒子が微細化され強度が低下することも報告されている²⁾。

ここで我々は、この木粉配合プラスチックに着目し、プラスチックの分子鎖切断や木粉粒子の微細化が生じない条件で再加工ができれば、強度低下は引き起こさ

れず、製品の水平リサイクルも可能であると考えた。

そこで本研究では、木粉配合プラスチックに対し、押出成形による加工を繰り返すことによる物性(機械特性、熱特性、流動特性)への影響を評価し、木粉配合プラスチックのマテリアルリサイクルの可能性について検討した。

2 実験方法

2-1 材料

本研究において、プラスチックには、熱可塑性樹脂である植物由来の高密度ポリエチレン(HDPE)(Braskem A. S., SHC7260)を使用した。

相溶化剤には、ポリエチレン-graft-マレイン酸無水物(Aldrich)を使用した。

木粉には、ホワイトオークの廃棄木材を粒径0.109 mm未満に粉碎したもの((株)井上企画より提供)を80℃×5時間以上乾燥させて使用した。

2-2 木粉配合プラスチックシートの作製

高密度ポリエチレン(HDPE)を67重量%、相溶化剤を3重量%、木粉30重量%の割合で配合したものをボウルで混合(ドライブレンド)した。この混合物を二軸押出機((株)東洋精機製作所、ラボプラストミル2D25S, L/D=25)に投入し、フィーダー回転速度20 rpm、シリンダー温度160℃、スクリュウ回転速度40 rpmの条件で混練、押し出してストランドを作製した。

押し出されたストランドを空冷し、ペレタイザ((株)東洋精機製作所、PETEC3)でペレット化した。

得られたペレットを(株)東洋精機製作所ミニテストプレスMP-SCHを用いて、180℃×6分加熱するこ

*1 化学繊維研究所

とで1 mm厚のシートを作製した（押出1回目）。また、得られたペレットを80℃×5時間以上乾燥させた後、同様に二軸押出機を用いて混練・押し出し、ペレタイザを用いてペレット化し、熱プレスすることで2回目の試料とした。以後、同様に繰り返し、シート化3, 4, 5回目の試料を作製した（図1）。

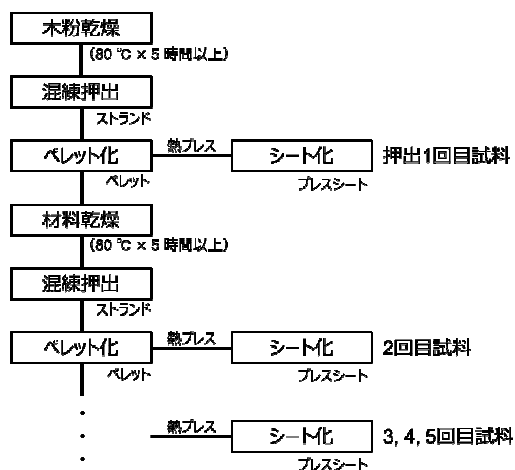


図1 木粉配合プラスチックシート作製のフロー

2-3 木粉配合プラスチック中の木粉粒子サイズ評価

押出成形の繰り返しにより、試料内の木粉粒子のサイズが変化するかを評価するため、X線CT（Computed Tomography）（Bruker, SKYSCAN2214）を用い、加速電圧40 kV、電流130 μA、ピクセルサイズ1 μm/pixelの条件にてプレスシートのX線透過像を観察した。また、得られたX線透過像に対し、三次元再構成ソフトウェア（Bruker, NRecon）にて三次元再構築し、数値解析ソフトウェア（Bruker, CTan）にて木粉粒子を二値化処理し体積球相当径を解析した。

2-4 引張強さ測定

プレスシートからダンベル状2号形（JIS K 6251）に打ち抜いた試験片に対し、万能試験機（島津製作所（株）、AG50kNXplus）を用い、引張速度50 mm/minにて試験し、n=3の平均値を引張強さとした。

2-5 引張弾性率測定

プレスシートから短冊形（5 mm幅）に打ち抜いた試験片に対し、動的粘弾性測定装置（（株）日立ハイテクサイエンス、DMA7100）を用い、歪振幅10 μm、周波数1 Hzにて試験した。

2-6 融点及び結晶化度の測定

示差走査熱量計（（株）日立ハイテクサイエンス、

NEXTA DSC600）を用い、試料（ペレット）を室温から200℃まで昇温した後、0℃まで冷却し、再び200℃まで昇温した際の吸熱挙動を計測した。昇・降温速度は10℃/分に設定した。融点は得られた吸熱ピークの頂点を解析し、結晶化度（ ω_c ）は式（1）から算出した。

$$\omega_c = \Delta H_m / ((1 - \phi) \times \Delta H_m^0) \times 100 \quad \text{式 (1)}$$

ここで、 ΔH_m は試料の融解熱量（J/g）、 ϕ は木粉配合率（0.3）、 ΔH_m^0 はPE完全結晶の融解熱量（293 J/g）³⁾とした。

2-7 熱重量減少測定

試料（ペレット）の熱分解挙動について、熱重量示差熱分析装置（（株）日立ハイテクサイエンス、NEXTA STA300）を用い、室温から550℃までの重量減少を計測した。昇温速度は10℃/分に設定し、窒素雰囲気中で測定した。

2-8 溶融特性評価

メルトインデクサー（（株）東洋精機製作所、G-02）を用い、温度190℃、荷重2.16 kgの条件で、試料（ペレット）のメルトマスフローレート（MFR）を測定することで溶融特性を評価した。

3 結果と考察

3-1 押出成形の繰り返しによる外観変化

作製したプレスシートの外観を図2に示す。色味の変化（例えば、焦げなど）は観察されず、今回の材料及び押出条件では、押出成形の繰り返しによる木粉の熱分解は生じていないと考えられた。

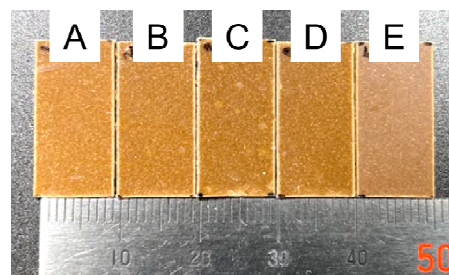


図2 作製したプレスシート（A：押出1回目，B：2回目，C：3回目，D：4回目，E：5回目）

3-2 押出成形の繰り返しによる木粉粒子サイズの変化

押出1回目及び5回目の試料（プレスシート）に対す

る、X線CT観察結果（断層像）を図3に示す。また、単位体積（2 mm×1 mm×0.5 mm）内に存在する木粉粒子の体積球相当径の度数分布を図4に示す。その結果、断層像及び度数分布ともに、1回目と5回目で木粉粒子サイズはほぼ変化がなかった。よって、今回の材料及び押出条件では、押出成形の繰り返しによる木粉粒子の微細化は生じていないと考えられた。

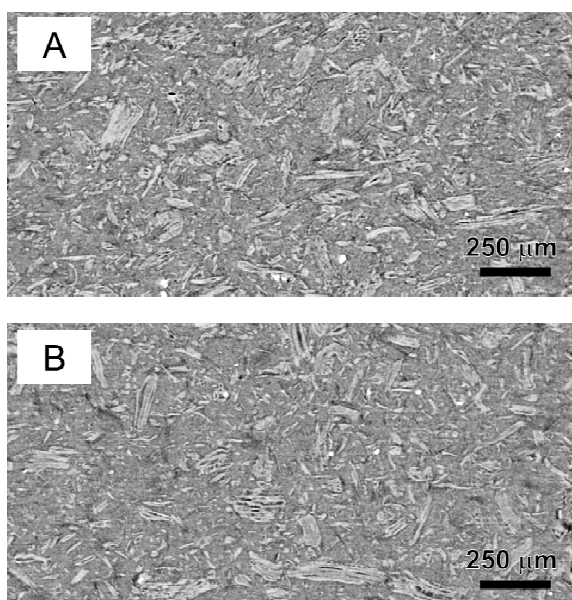


図3 プレスシート内部の断層像
(A：押出1回目，B：5回目)

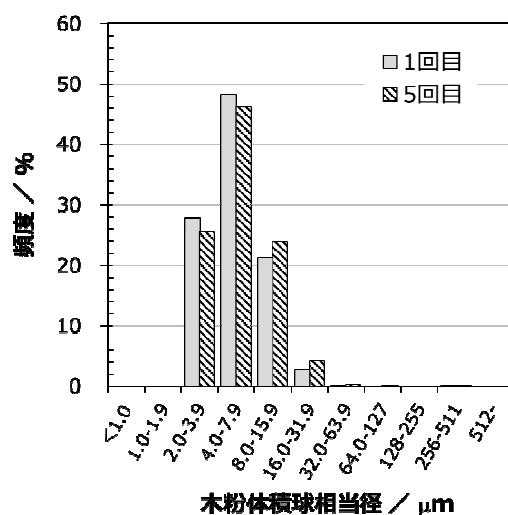


図4 木粉体積球相当径の度数分布

3-3 押出成形の繰り返しによる物性の変化

押出成形の繰り返しによる引張強さと引張弾性率の変化を図5に示す。押出成形を繰り返すことで、引張強さ及び引張弾性率は僅かに変動しているものの、大

きな変化は認められなかった。

押出成形の繰り返しによる、融点と結晶化度の変化を図6に示す。融点は、押出成形回数によらず、ほぼ一定の結果を示した。一方で、結晶化度は、押出成形の繰り返しに伴い、僅かに増加する傾向が認められた。

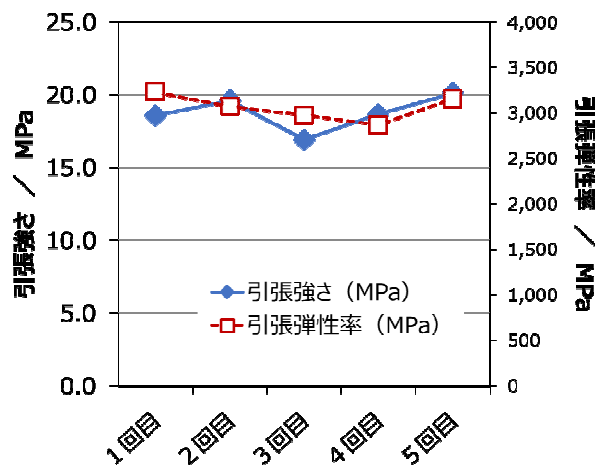


図5 押出成形の繰り返し（1回～5回）による引張強さと引張弾性率の変化

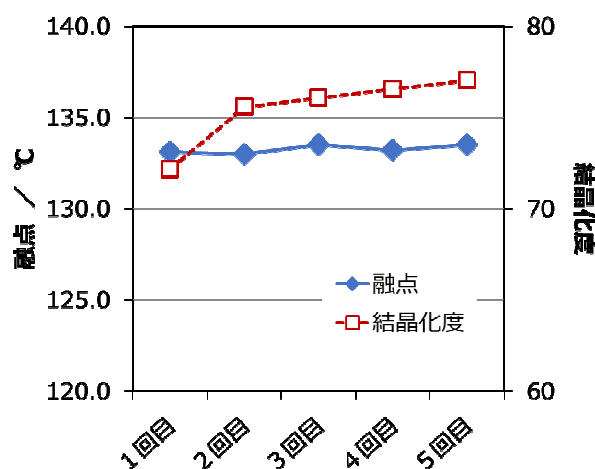


図6 押出成形の繰り返し（1回～5回）による融点と結晶化度の変化

押出成形の繰り返しによる、MFRの変化を図7に示す。押出成形を繰り返すと、MFRが増加することが明らかとなった。MFRの増加は材料の流動性の向上によるものであり、HDPEの分子量低下や木粉とHDPEの相容性向上の可能性が考えられる。

ここで、HDPEの分子量が低下している場合、融点や引張強さも変化することが考えられるが、それらの特性は押出成形を繰り返しても、ほぼ一定の結果であっ

た。

また、試料（ペレット）の熱分解挙動を評価した結果を図8に示す。一般的に、高分子量のPEよりも、低分子量のPEの方が、より低温で重量減少が見られる⁴⁾が、本研究においては、押出成形を繰り返しても、PEの熱分解に由来すると考えられる460℃付近の重量減少挙動に大きな変化が見られなかった。

よって、押出成形の繰り返しによるMFRの増加は、HDPEの分子量低下によるものではないと考えられ、木粉とHDPEの相容性向上に起因するものではないかと推察された。

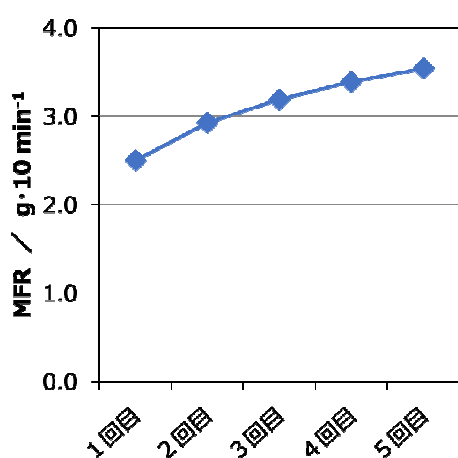


図7 押出成形の繰り返し（1回～5回）によるMFRへの影響

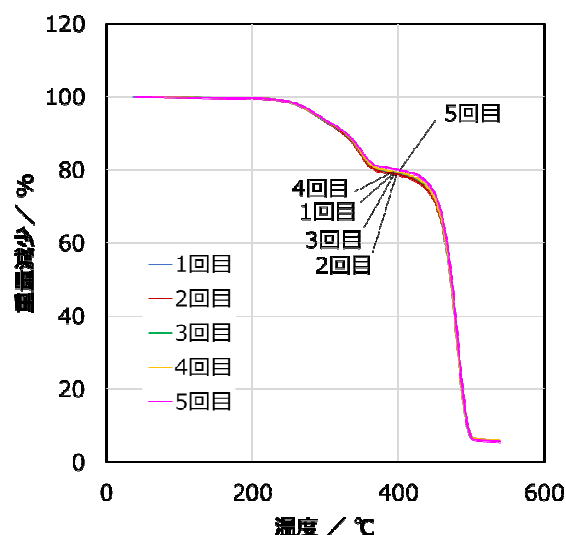


図8 押出成形の繰り返し（1回～5回）による試料（プレスシート）の熱重量減少挙動

4 まとめ

木粉配合プラスチックに対し、押出成形を5回繰り返し、外観や木粉粒子サイズ、各種物性（機械特性、熱特性、流動特性）を評価した。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) 今回の材料及び押出条件では、押出成形を繰り返しても、外観、木粉粒子サイズ、引張強さ、引張弾性率、融点に大きな変化は見られなかった。
- (2) 押出成形を繰り返すことで、MFRが増加し流動性が向上したが、これはHDPEの分子量低下による影響ではなく、木粉とHDPEの相容性向上に起因するものだと推察された。
- (3) 木粉配合プラスチックのマテリアルリサイクル（水やりサイクル）の可能性が確認された。

5 参考文献

- 1) Directorate-General for Environment: End-of-Life Vehicles, (オンライン) https://environment.ec.europa.eu/topics/waste-and-recycling/end-life-vehicles_en (参照2024-3-31)
- 2) Elham Nadali et al., Materials Research, 21(2), e20170301(2018)
- 3) Roger L. Blaine: TN48. Polymer Heats of Fusion, TA Instruments, (オンライン) <https://www.tainstruments.com/pdf/literature/TN048.pdf> (参照2024-3-31)
- 4) 中島江梨香 他, 高分子論文集, Vol. 69, No. 11 pp. 631-638 (2012)