

廃棄木材を活用した熱可塑性樹脂複合材のリサイクル性評価

田中 大策^{*1}

Evaluation of Recyclability of Thermoplastic Composite Materials using Waste Wood

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、押出成形の繰り返しによる、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、木粉配合プラスチックのリサイクルについて、材料の粉碎や押出処理による引張強度への影響を検討した。その結果、木粉粒径に応じた粉碎サイズを選択的に使用すること、または木粉粒径が十分小さいもの(約 150 μm 未満)を使用することにより、強度低下を抑制したマテリアルリサイクル(水平リサイクル)が可能であることが示された。

1 はじめに

脱炭素志向の高まり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)の機運が高まっている。プラスチックにおいては、3R(Reduce, Reuse, Recycle)+R(Renewable)への対応が求められており、令和4年4月にはプラスチック資源循環促進法が施行された。

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が検討されている。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、ポプラ木粉を用いたWPCにおいては押出成形を繰り返すと、木粉繊維が微細化(463 μm →218 μm (4-time recycles))し、強度が低下することが報告されている¹⁾。そのため、WPCをマテリアルリサイクル(MR)するには、木粉繊維が微細化されにくいリサイクル条件が必要である。

WPCのMRは、①粉碎、②押出(ペレット化)、③成形工程により構成され、中でも木粉繊維の微細化が懸念される工程は①粉碎及び②押出工程である。①粉碎ではWPCの粉碎に伴う木粉の微粉化が、②押出工程ではスクリーンのせん断力による木粉の微細化が懸念される。また、木材の種類によって木材強度が異なる(表1)ため、樹種が木粉微細化に影響することも懸念される。

そこで本研究ではWPCのMRにおいて強度低下が発生しないリサイクル条件を見出すことを目的とし、WPC粉碎時の粉碎サイズが強度に及ぼす影響、及び木材の強度が異なる木粉において、押出成形を繰り返すことが強度に及ぼす影響を評価した。

表1 各種木材の曲げ強さ
(the modulus of rupture:MOR)

樹種	MOR (MPa)
ホウイトオーク ²⁾	113
アカシアマンギウム ³⁾	102
日本杉 ⁴⁾	64
イエローポプラ ⁵⁾	69

2 実験方法

2-1 材料

本研究において、樹脂は植物由来の熱可塑性樹脂である高密度ポリエチレン(HDPE)(Braskem A.S., SHC7260)を使用した。相溶化剤はポリエチレン-graft-マレイン酸無水物(Aldrich)を使用した。

木粉はホウイトオーク(以降、W0と表記)の廃棄木材を粒径109 μm 未満または粒径109 μm ~350 μm に粉碎したもの((株)井上企画より提供)、及びバイオマス発電用のアカシア(以降、ACと表記)ペレットから発生する廃棄粉末(宮若STM石灰(株)より提供)、杉(以降、CDと表記)木粉150 μm パス品((株)那賀ウッド)を使用した。全ての木粉は80 $^{\circ}\text{C}$ ×5時間以上乾燥させて使用した。

^{*1} 化学繊維研究所

2-2 WPCペレット作製

高密度ポリエチレン(HDPE)を67 重量% (以降, %と記載), 相溶化剤を3 %, 木粉30 %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 °C, スクリュー回転速度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は空冷し, ペレタイザ((株)東洋精機製作所, PETEC3)を用いて3~5 mm長さでカットし, ペレットを作製した。

2-3 WPCの粉砕及びシート作製

得られたペレットを粉砕機(ヴァーダー・サイエンティフィック(株), カuttingミル SM300)を用いて, 1,500 rpm(V字型ロータ)及び目開き2 mmのスクリーンを用いて粉砕した。得られた粉砕品を目開き1 mmのふるいで分級し, 残留物(>1 mm)と通過物(<1 mm)を得た。さらに, 試料をシート化するため, 粉砕前後の試料を加熱プレス機((株)東洋精機製作所, ミニテストプレスMP-SCH)を用いて180 °C×6分加熱することで, 1 mm厚のシートを作製した(図1)。

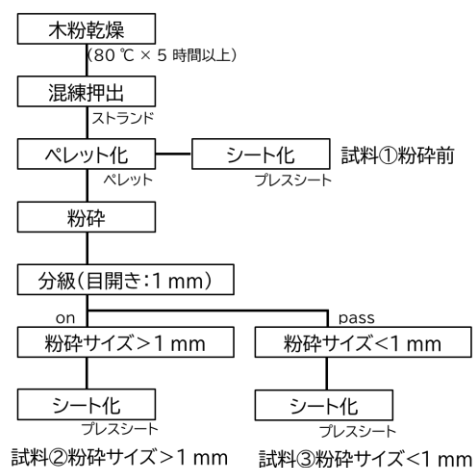


図1 粉砕処理前後の試料作製のフロー図

2-4 木粉配合プラスチックシートの繰り返し押出成形

押出成形により得られたペレットを加熱プレス機((株)東洋精機製作所, ミニテストプレスMP-SCH)を用いて180 °C×6分加熱することで, 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 °C×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・押し出しし, ペレタイザを

用いてペレット化して, 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2)。

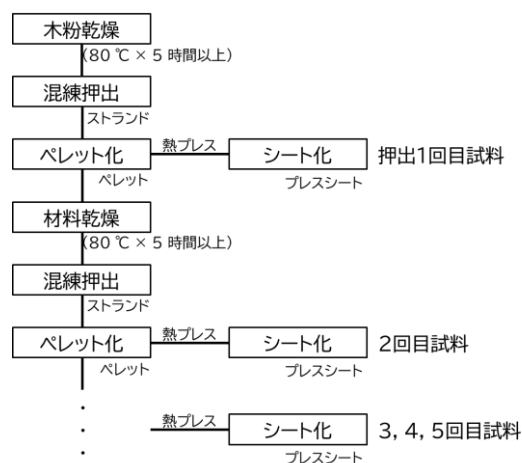


図2 二軸押出機による混練繰り返しのフロー図

2-5 引張強さ試験

プレスシートからダンベル状6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にて引張強さ試験を行い, n=3の平均値を引張強さとした。

2-6 溶融特性評価

メルトインデクサ((株)東洋精機製作所, G-02)を用い, 温度190 °C, 荷重2.16 kgの条件における, 試料(ペレット)のメルトマスフローレート(MFR)を測定することにより溶融特性を評価した。

2-7 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, 室温から200 °Cまで昇温した後, 0 °Cまで冷却し, 再び200 °Cまで昇温した際の吸熱挙動を計測した。昇・降温速度は10 °C/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(292 J/g)⁶⁾である。

2-8 木粉配合プラスチック中の木粉粒子径解析

試料内の木粉粒子径分布を評価するため, X線CT

(Computed Tomography) (Bruker, SKYSCAN2214) を用い、加速電圧40 kV、電流130 μ A、ピクセルサイズ1 μ m/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線透過像は、三次元再構成ソフトウェア (Bruker, NRecon) により三次元再構築し、数値解析ソフトウェア (Bruker, CTan) を用いて任意の5断面における木粉最大径の平均値及び標準偏差を解析した。

3 結果と考察

3-1 粉碎処理による影響評価

W0木粉 (粒径109 μ m未満または粒径109 μ m $\sim$ 350 μ m) を配合したWPCに対し、粉碎処理を実施した。粉碎前 (①)、粉碎後 (②粉碎サイズ>1 mm及び③<1 mm) の試料から作製したプレスシートの引張強さ (図3) 及び融点、結晶化度 (図4) を測定した。その結果、木粉粒径が小さいWPCでは粉碎サイズが小さいものでも、粉碎前と比較して引張強さの変化は認められなかった。一方、木粉粒径が大きいWPCは粉碎サイズが小さくなると、粉碎前と比較して引張強さが低下する傾向が認められた。

WPCの融点及び結晶化度はどちらの木粉粒径によらずほぼ同等であった。すなわち、粉碎による樹脂自身の劣化は生じていないことが推測された。

木粉粒径が大きいWPCのみ、粉碎が引張強さへ影響が認められた要因は、粉碎による木粉粒径の減少の可能性、または、粉碎によって樹脂から木粉が脱離することにより粉碎サイズが小さい試料には木粉が多く配合された可能性があるものと推察された。

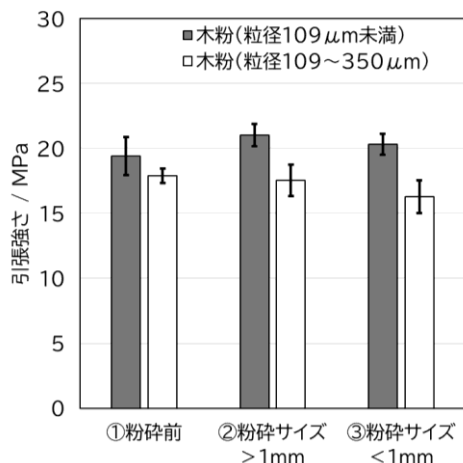


図3 粉碎前後の引張強さの変化

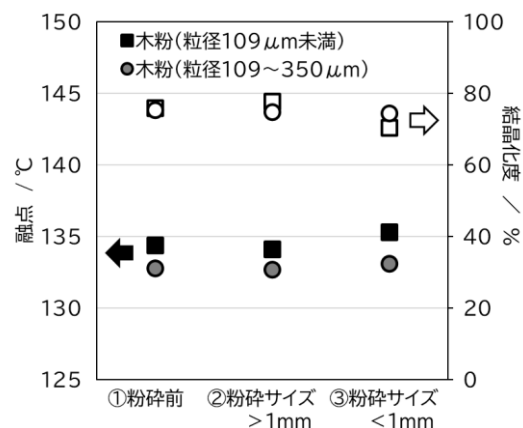


図4 粉碎前後の融点と結晶化度の変化

3-2 押出成形の繰り返しによる影響評価

3-2-1 外観の変化

W0木粉 (粒径109 μ m未満)、AC木粉及びCD木粉を用いて作製したプレスシートの外観を比較した (図5)。どの木粉配合品においても、押出回数増加による色味の変化 (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ものと考えられた。

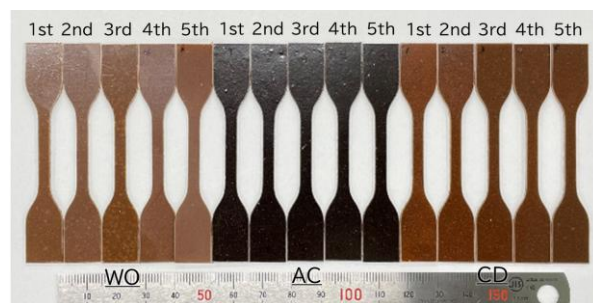


図5 作製したプレスシート (押出1～5回目)

3-2-2 物性の変化

押出成形を1～5回繰り返したWPCに対し、引張強さとMFR (図6)、融点と結晶化度 (図7) を測定した。押出成形を繰り返すことで、引張強さ及び融点と結晶化度に僅かな変動が認められたものの、傾向を有する変化は認められなかった。一方で、MFRについては押出成形を繰り返すことにより増加する傾向が認められた。

このMFRの増加は、HDPEの融点や結晶化度に変化が認められないことを考慮すると、HDPEの分子量低下によるものではなく、木粉とHDPEの相溶性向上 (ペレット内のボイド消失) に起因する可能性が考えられた。

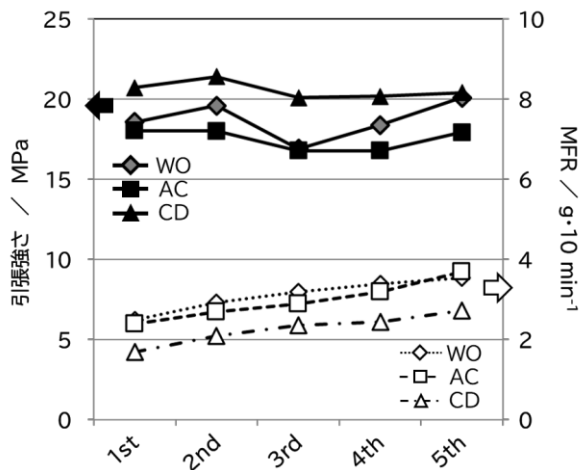


図6 押出成形の繰り返し（1回～5回）による引張強さとMFRの変化

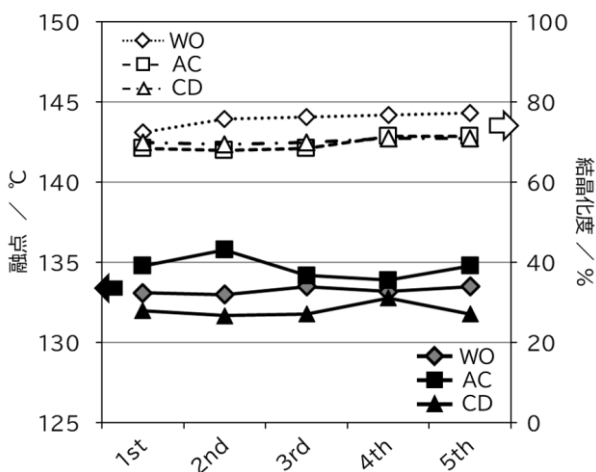


図7 押出成形の繰り返し（1回～5回）による融点と結晶化度の変化

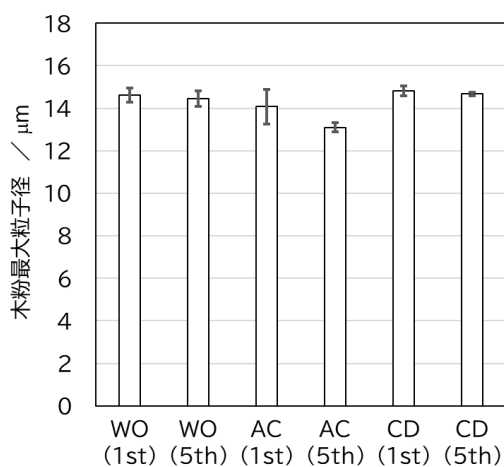


図8 押出成形繰り返し前後（1回目及び5回目）における木粉最大粒子径の平均値

3-2-3 木粉粒子径の変化

押出1回目及び5回目のWPC（プレスシート）の木粉粒子をX線CTにより観察した。その観察結果に対し、任意の5か所の断面（2 mm×1 mm）内に存在する木粉最大径の平均値及び標準偏差を解析した（図8）。

比較の結果、特にWOとCD木粉については、1回目と5回目の木粉粒子径にほぼ変化がなく、木粉粒子の微細化は生じなかった。つまり、今回用いたような粒子径150 μm未満の木粉であれば、今回の加工条件において、樹種の強度に関わらず木粉粒子の微細化は生じないことが示された。

4 まとめ

WPCのリサイクルについて、材料の粉砕や押出処理による引張強度への影響を検討した。その結果、以下の結果及び知見が得られた。

- (1) WO木粉粒径109 μm～350 μmのものは、1 mm未満に粉砕すると強度低下を生じたが、1 mm未満の粉砕物を取り除くことで強度低下が抑えられた。
- (2) WO木粉粒径109 μm未満のものは、1 mm未満に粉砕しても強度低下は生じなかった。
- (3) 木粉粒径150 μm未満のものは木材強度が小さいものでも、5回の押出サイクルによる引張強度の低下及び融点・結晶化度の変化は生じなかった。
- (4) MRにあたって木粉粒径に応じた粉砕サイズを選択的に使用する、または木粉粒径が十分小さいもの（約150 μm未満）を使用することにより、強度低下を抑制したWPCのマテリアルリサイクル（水平リサイクル）が可能であることが示された。

5 参考文献

- 1) Elham Nadali et al.: Materials Research, 21(2), e20170301 (2018)
- 2) Marly G. Carmona Uzcategui, et al.: BioResources, 15(3), pp.4960-4971 (2020)
- 3) Mohd Hamami Sahri et al.: Pertanika J. Trop. Agric. Sci., 21(2), pp.73-81 (1998)
- 4) Yusuke Takahashi et al.: Holzforschung, 75(2), pp.105-113 (2021)
- 5) Marly G. Carmona Uzcategui et al.: Forest Products Journal, 70(3), pp.326-334 (2020)
- 6) Bernhard Wunderlich et al.: Macromolecules, 10(5), pp.906-913 (1977)