

2020年3月12日 終了課題成果報告会資料

研究代表者： 八尾 滋

所属： 福岡大学 工学部

3-1705

研究実施期間：2017年4月1日～2020年3月31日

廃プラスチックの高付加価値化リサイクル技術創製 および実用化研究

研究代表者： 八尾 滋

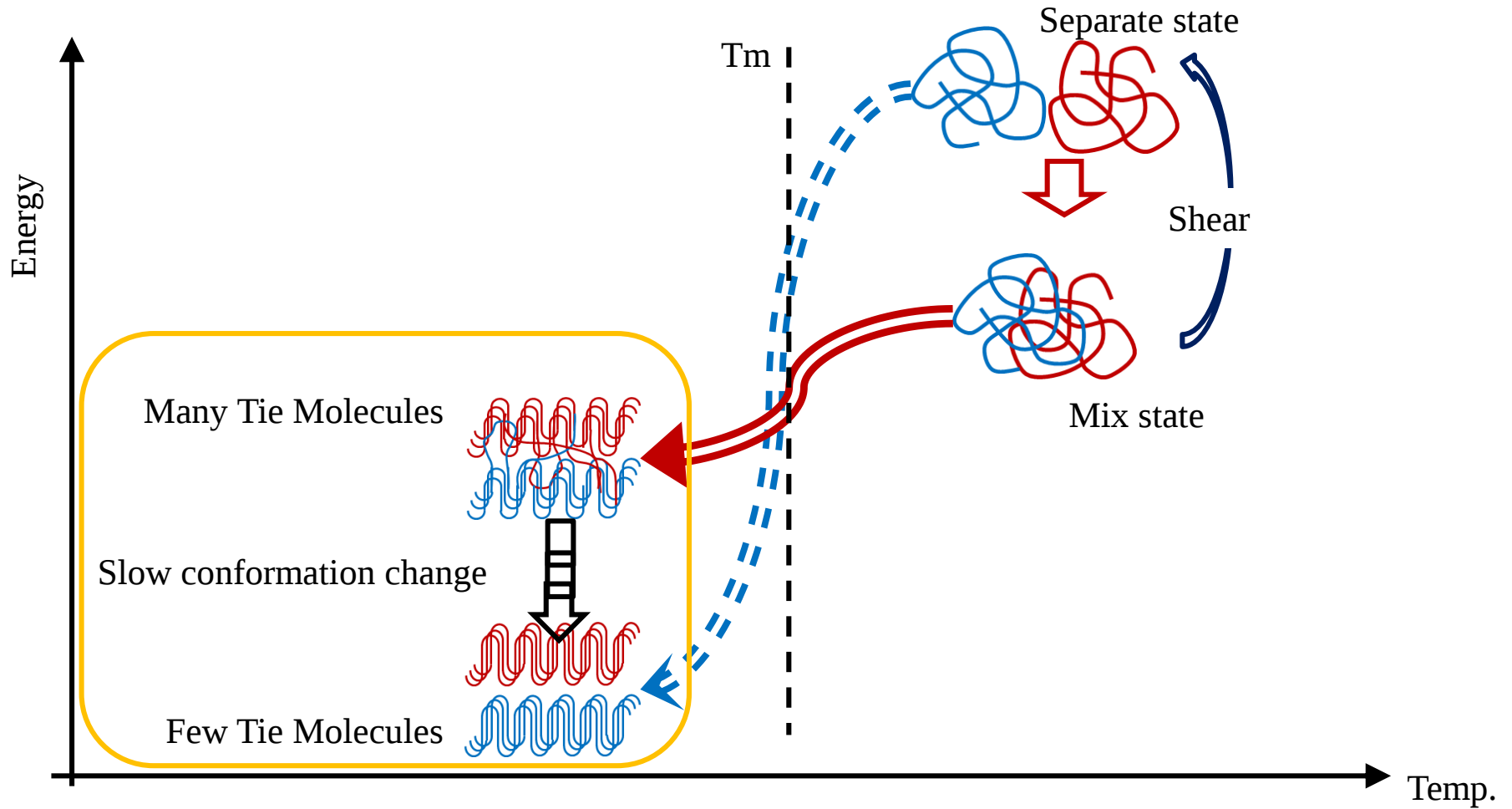
所 属： 福岡大学工学部

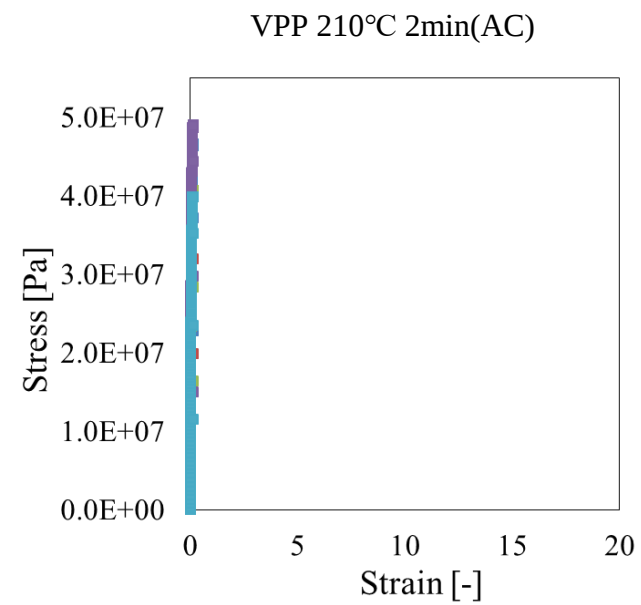
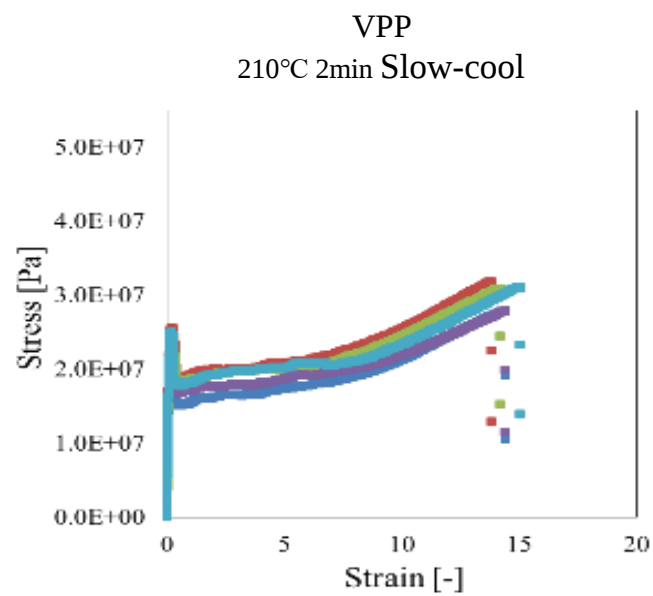
研究期間： 平成29年4月1日～令和2年3月31日

累積予算額： 83,276千円(間接費を含む)

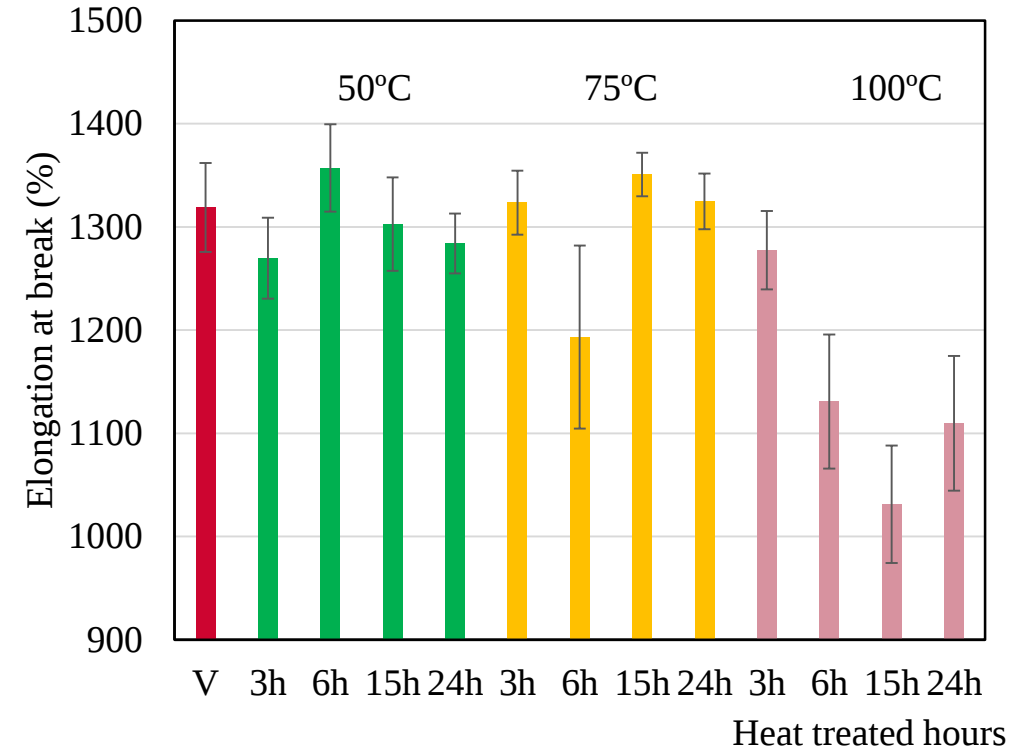
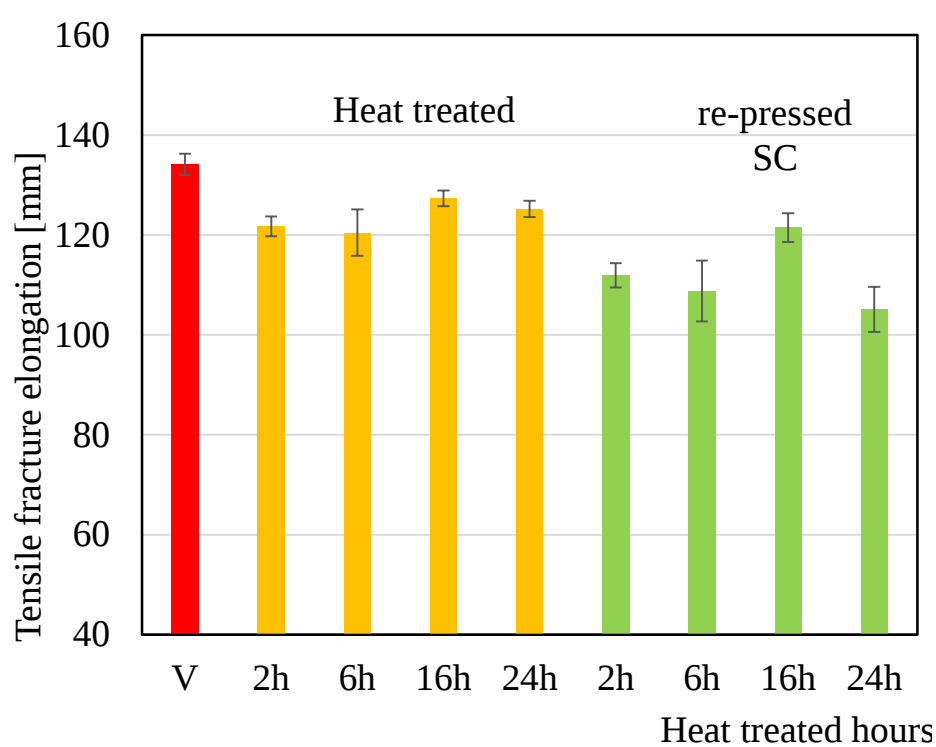
研究開発目標

基礎研究	• バージンプラスチックを用いた、物理劣化発現メカニズムの解明 ← 熱やせん断履歴の影響評価 • メゾ領域の構造解析手法の検討 ← SAXS、TEMなどの適用性 • リサイクルプラスチックの物性評価への応用
実機を用いた 適用基礎研究	• 樹脂溜まり効果の再現性評価 • リサイクルプラスチックの高性能化とメゾ領域内部構造との関連性の評価 • 新規樹脂溜まりの検討 • 高性能化ペレット特性を活かす射出成形条件
研究成果の 普及と実用化	• 学会発表、論文発表 • ネットワーク構築を目指した講演会活動の実施 • 協力企業のネットワーク構築





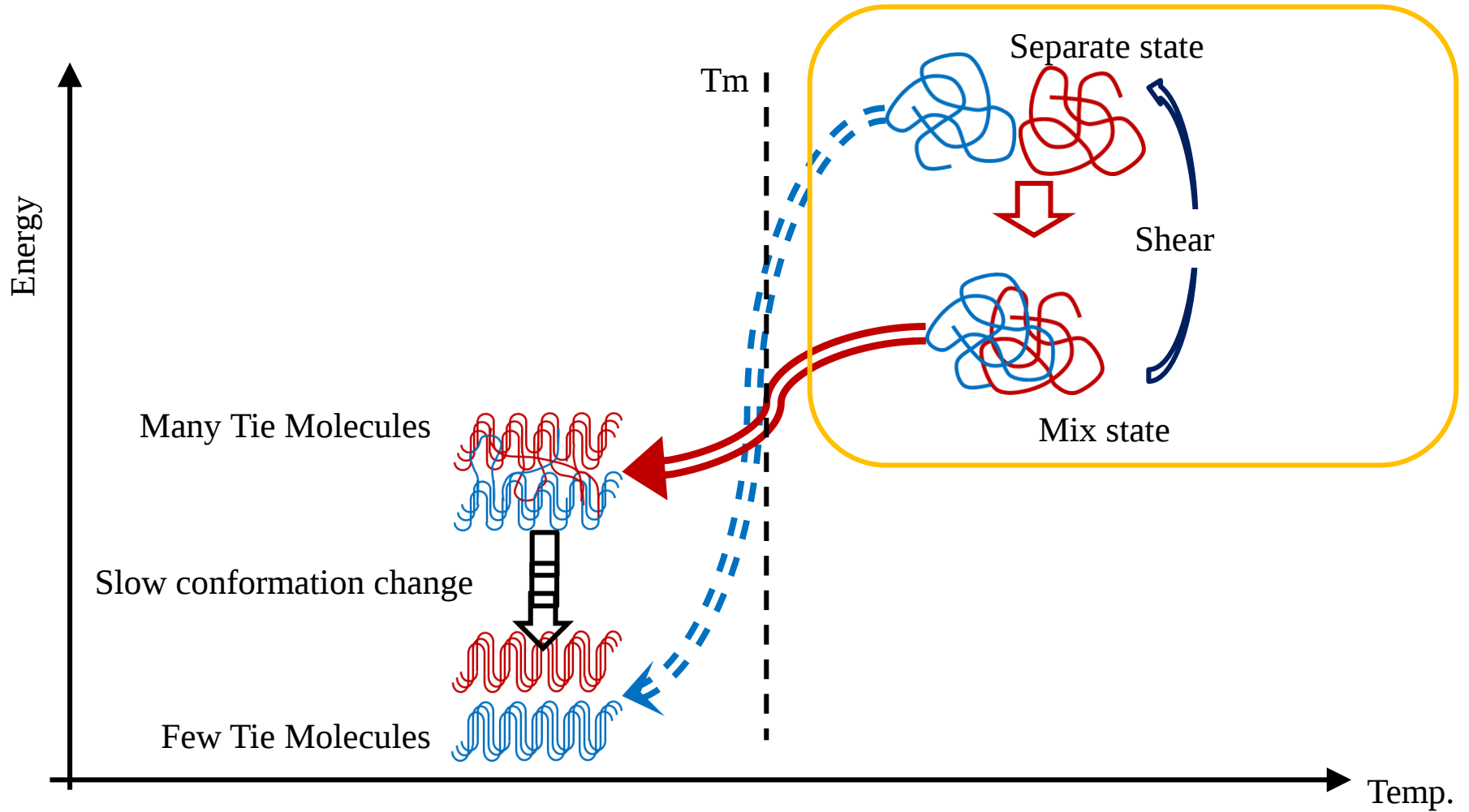
研究成果 基礎研究① 熱履歴の影響



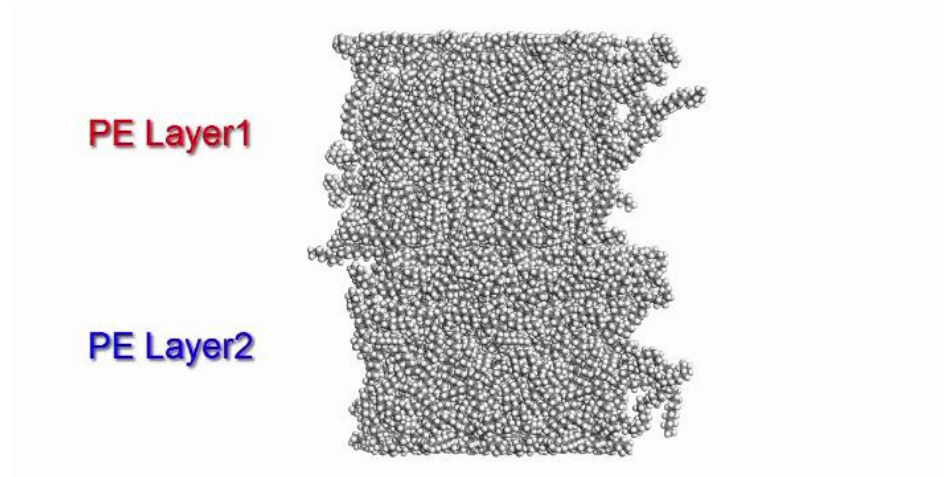
PP: 破断伸びの75°C熱処理と再成形依存性

LDPE: 破断伸びの種々の熱処理依存性

単純な熱処理のみでも伸長破断伸びは低下を示すようになる

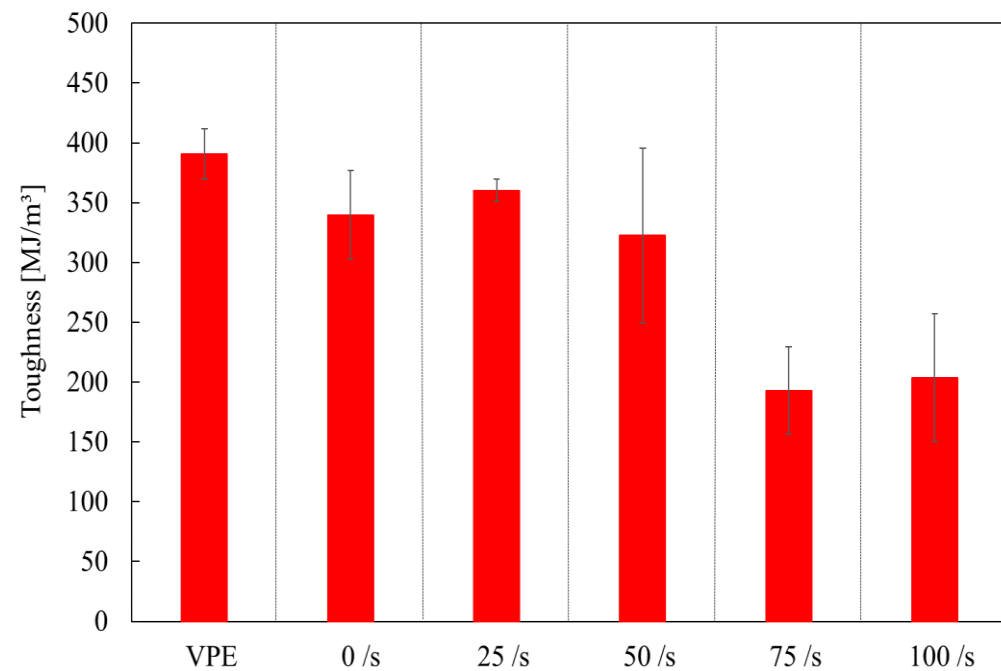
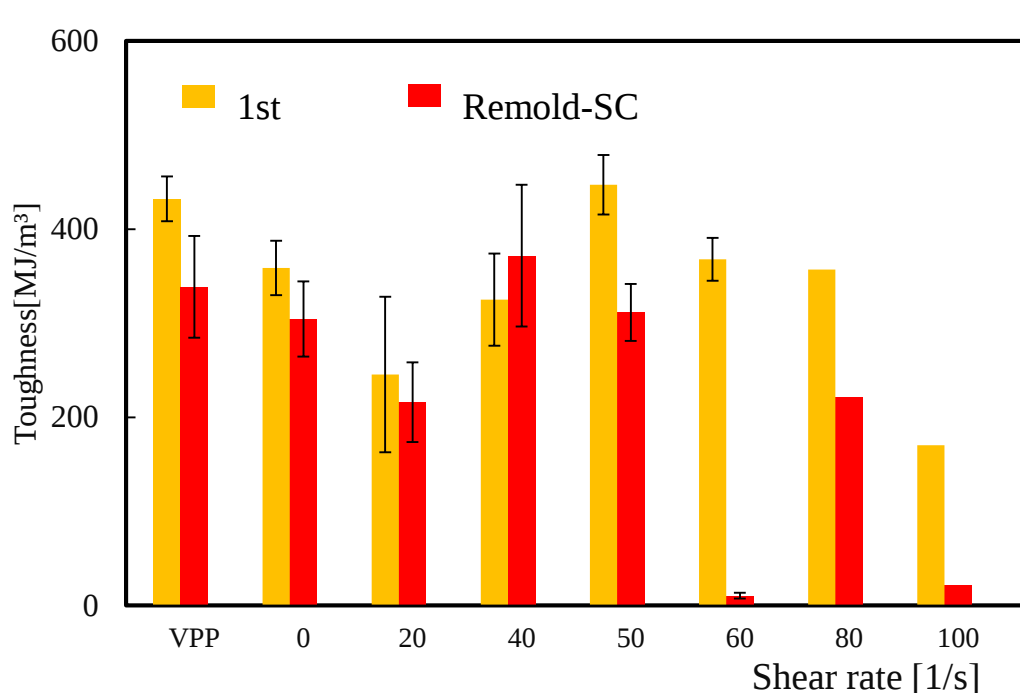


Interface Formation and Degradation by Shear



- The interaction of polymer chains between two SMMs are reduced by shear, and stress decreases

研究成果 基礎研究① せん断履歴の影響



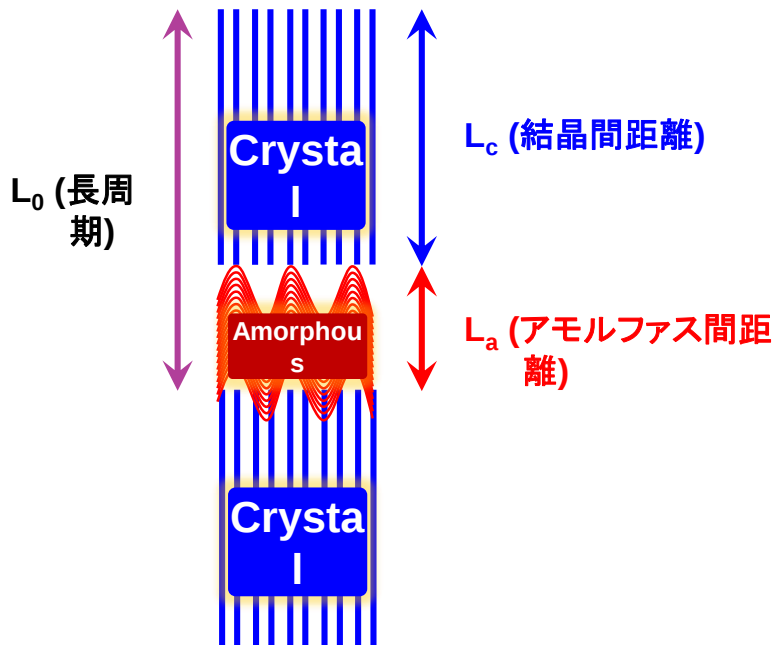
PP: 破断エネルギーのせん断履歴・再成形依存性

PE: 破断エネルギーのせん断履歴依存性

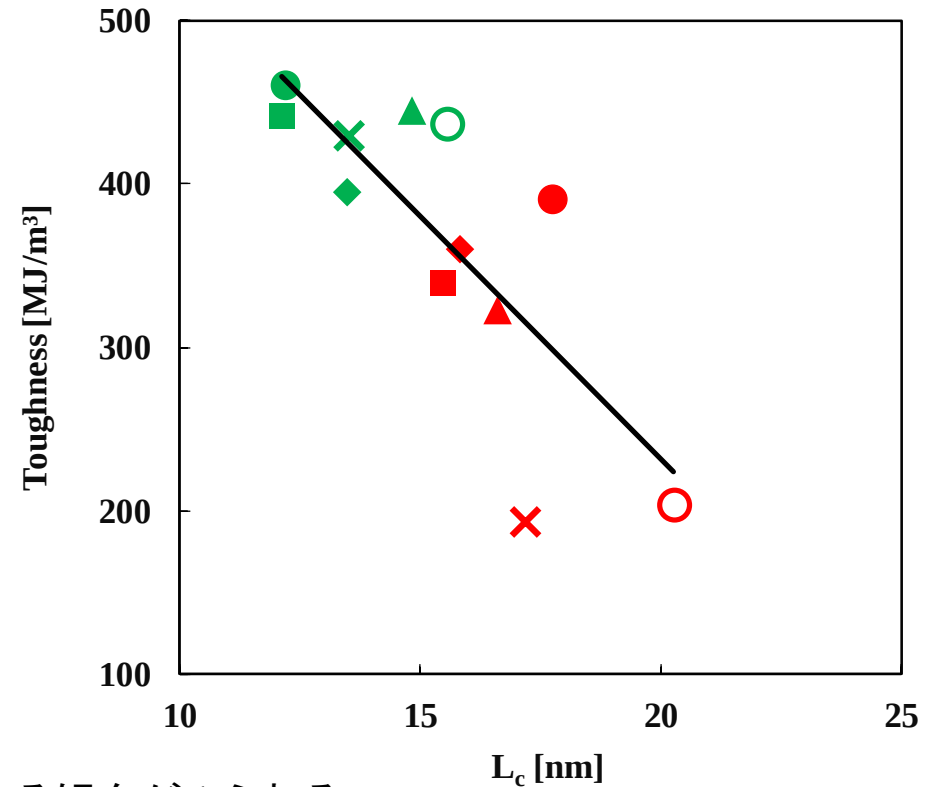
破断エネルギーのせん断履歴依存性には閾値が存在する

最長緩和時間との関連性

SAXSを用いたメゾ領域での解析例



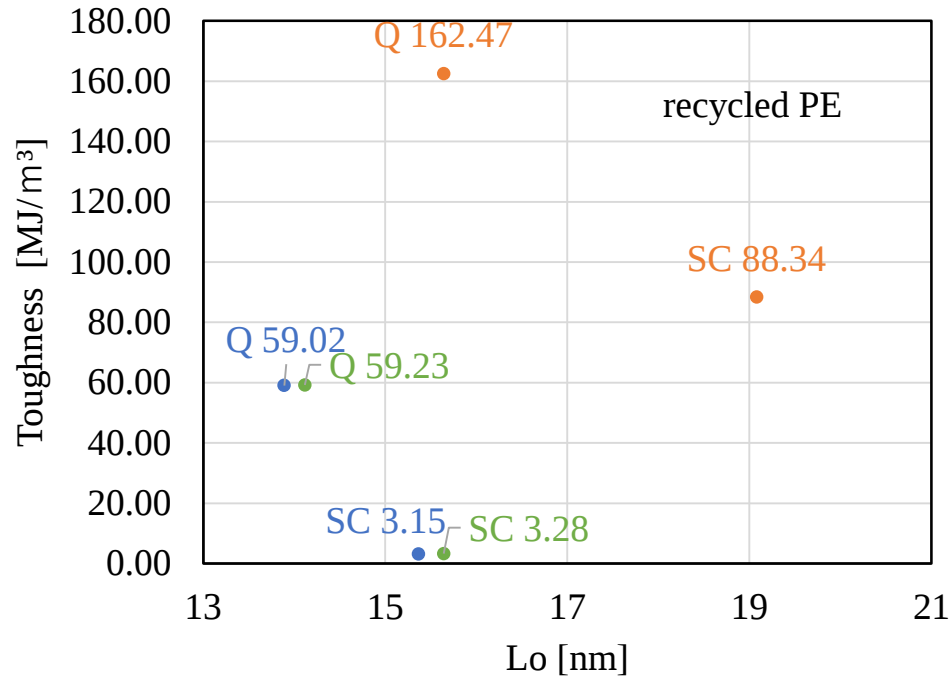
HDPEでのラメラ層厚みと破断エネルギーとの関係



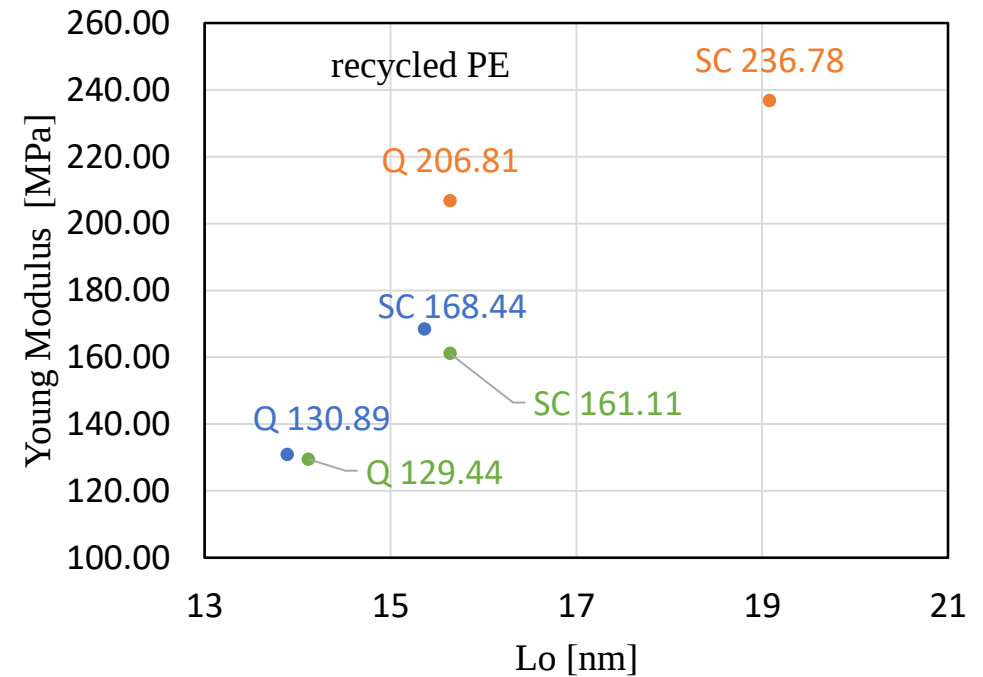
ラメラ層厚みが増すほど、脆くなる傾向がみられる

同様の関係が、容器包装リサイクルプラスチックでも成立することを確認

富山環境整備製各種リサイクルPEの物性値と長周期との関係



破断エネルギーと長周期



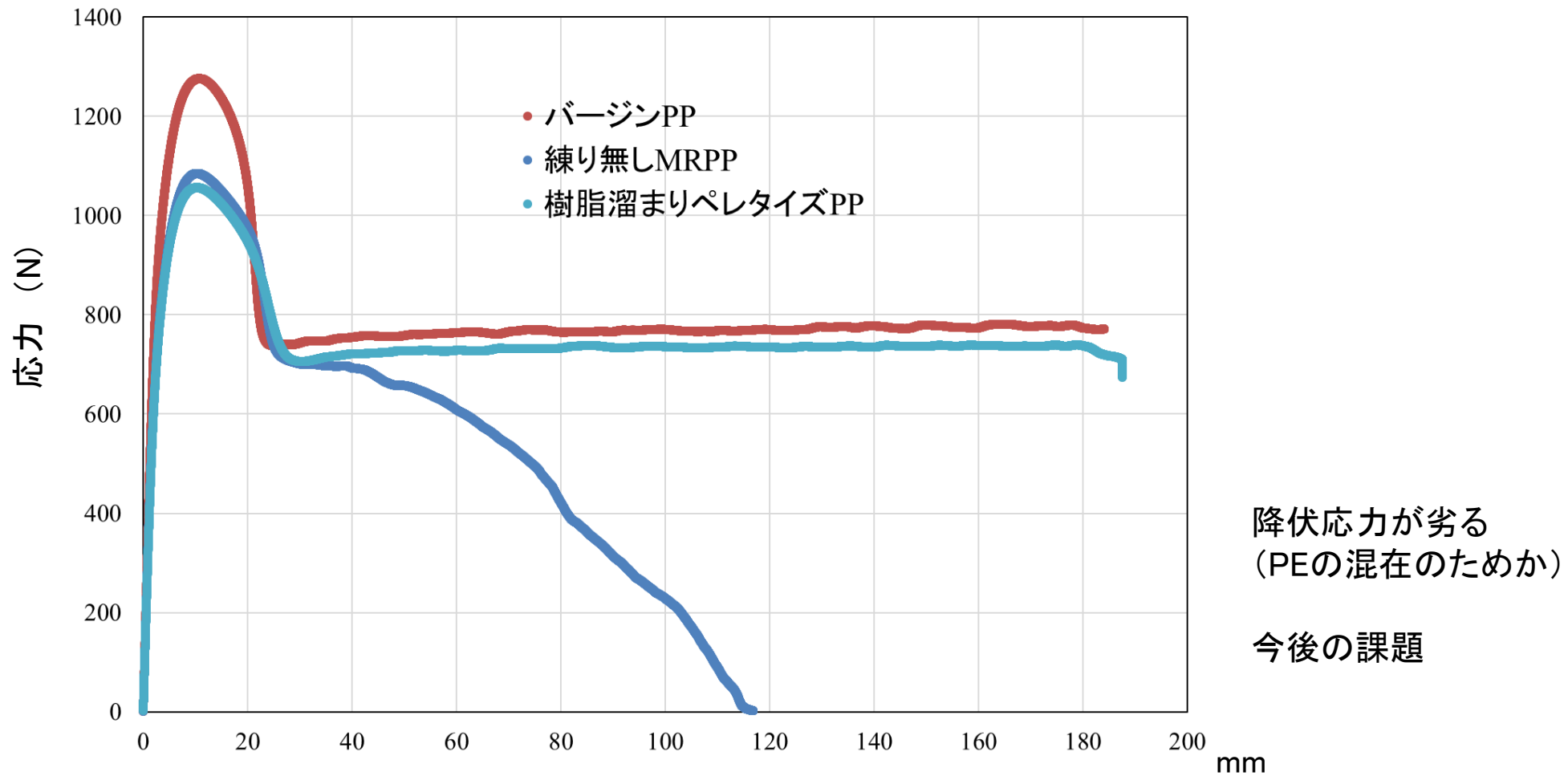
ヤング率と長周期

●: 軟質、●: 硬質、●: 混合

リサイクルプラスチックに関しても、同様の関連性が見られることを確認

研究開発目標

基礎研究	• バージンプラスチックを用いた、物理劣化発現メカニズムの解明 ← 熱やせん断履歴の影響評価 • メゾ領域の構造解析手法の検討 ← SAXS、TEMなどの適用性 • リサイクルプラスチックの物性評価への応用
実機を用いた 適用基礎研究	• 樹脂溜まり効果の再現性評価 • リサイクルプラスチックの高性能化とメゾ領域内部構造との関連性の評価 • 新規樹脂溜まりの検討 • 高性能化ペレット特性を活かす射出成形条件
研究成果の 普及と実用化	• 学会発表、論文発表 • ネットワーク構築を目指した講演会活動の実施 • 協力企業のネットワーク構築



Virgin PP



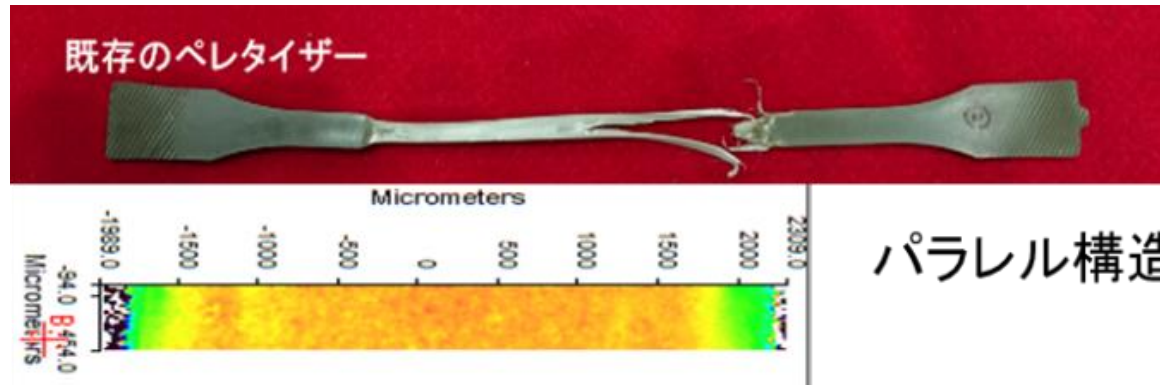
Ordinary pelletizer



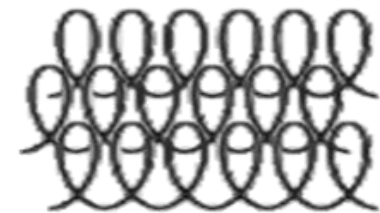
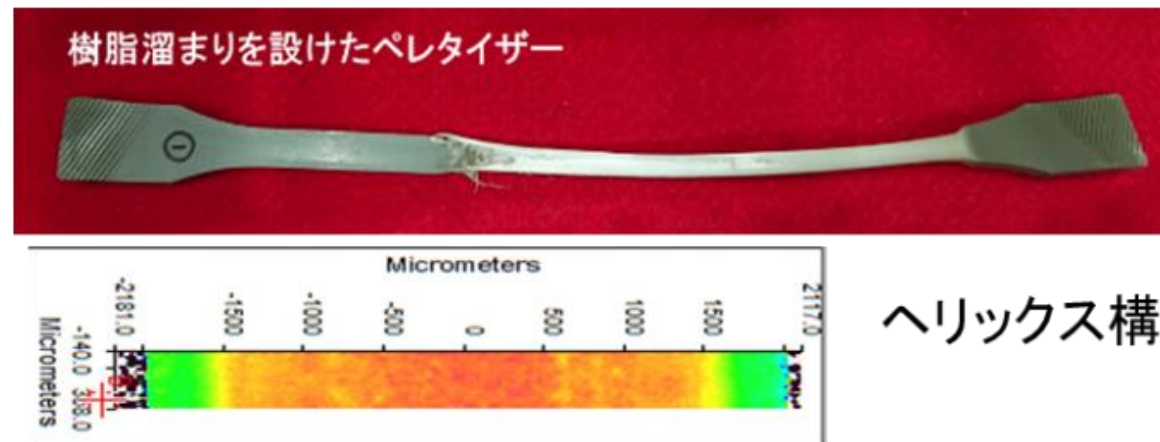
New type pelletizer



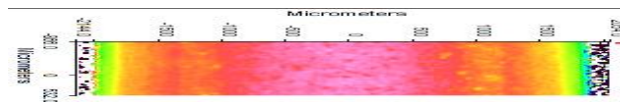
イメージングIRによる構造同定



平行構造が多
→伸びしろがなく、脆性

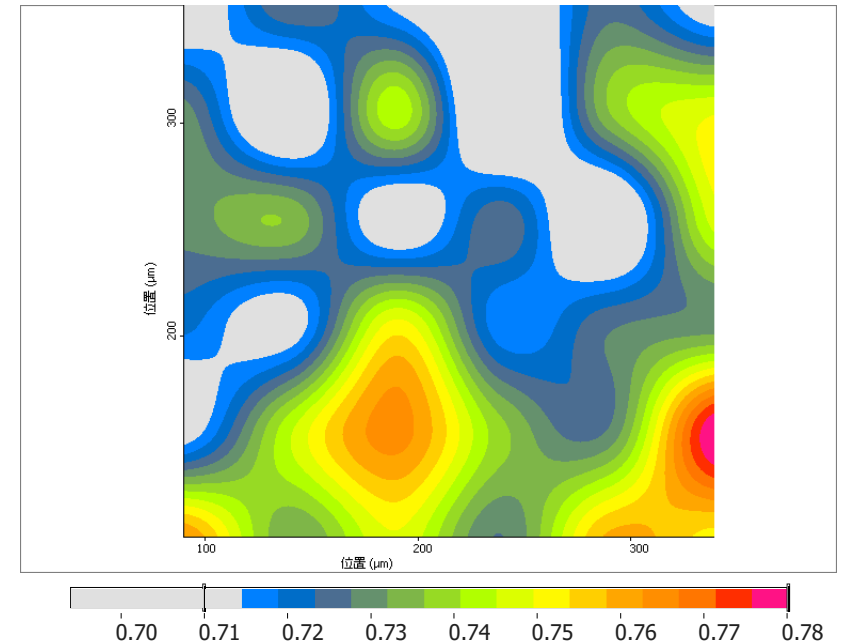
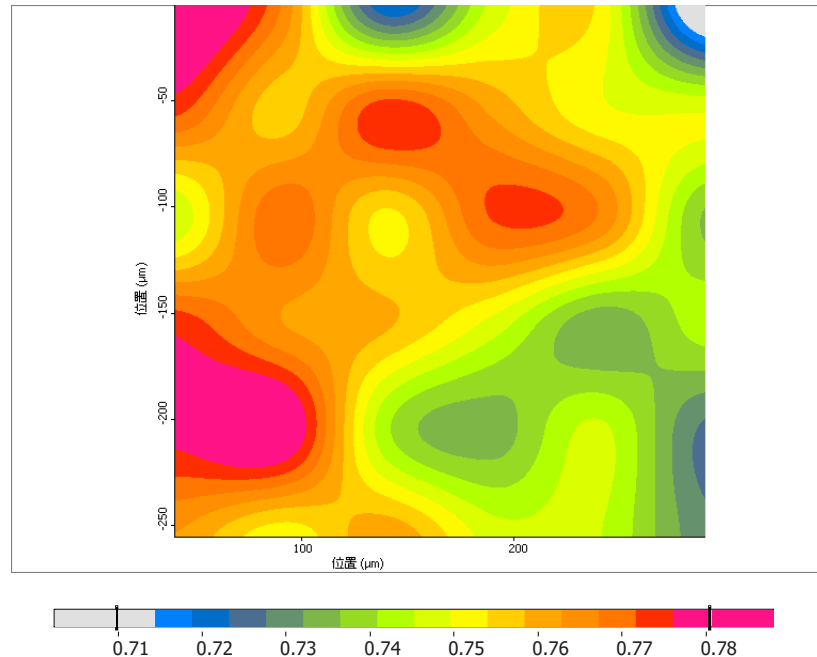


ヘリックス構造が多
→伸びしろがあり、延性



← バージン樹脂の場合

イメージングIRによるペレットの構造同定

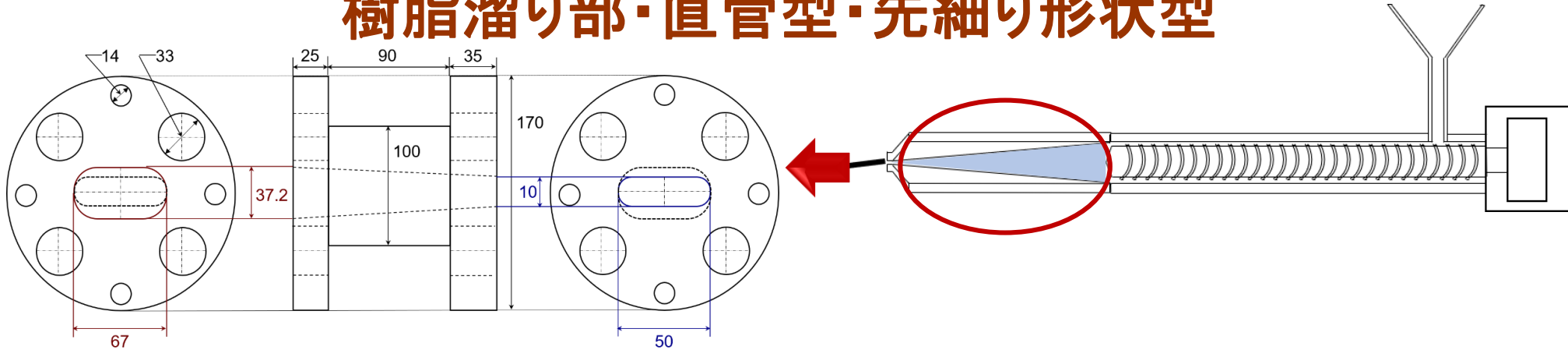


◆ペレットの内部構造は、ペレタイズ条件により変化する

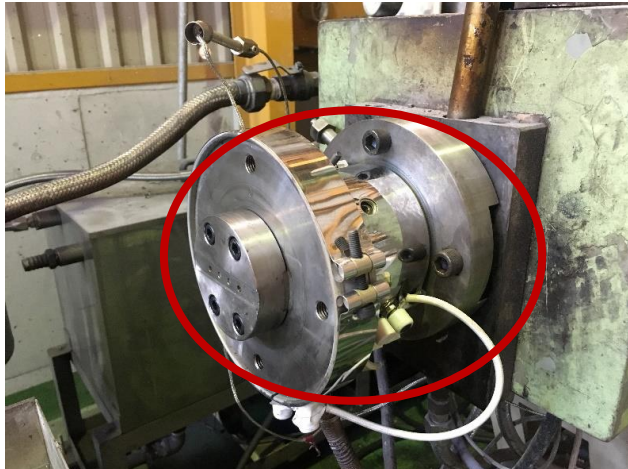
◆射出成形後も、その構造は維持される

ペレタイズの重要性

新技術の特徴・従来技術との比較 樹脂溜り部・直管型・先細り形状型

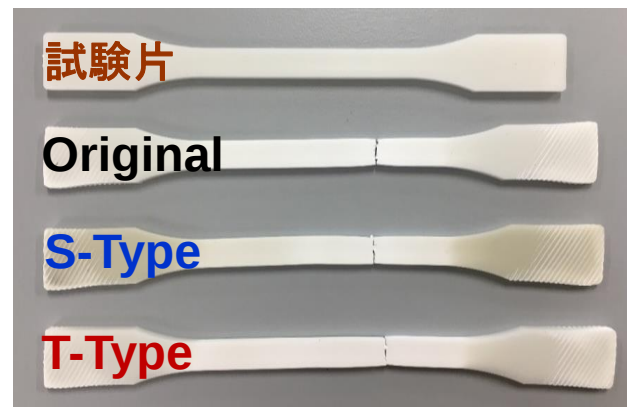
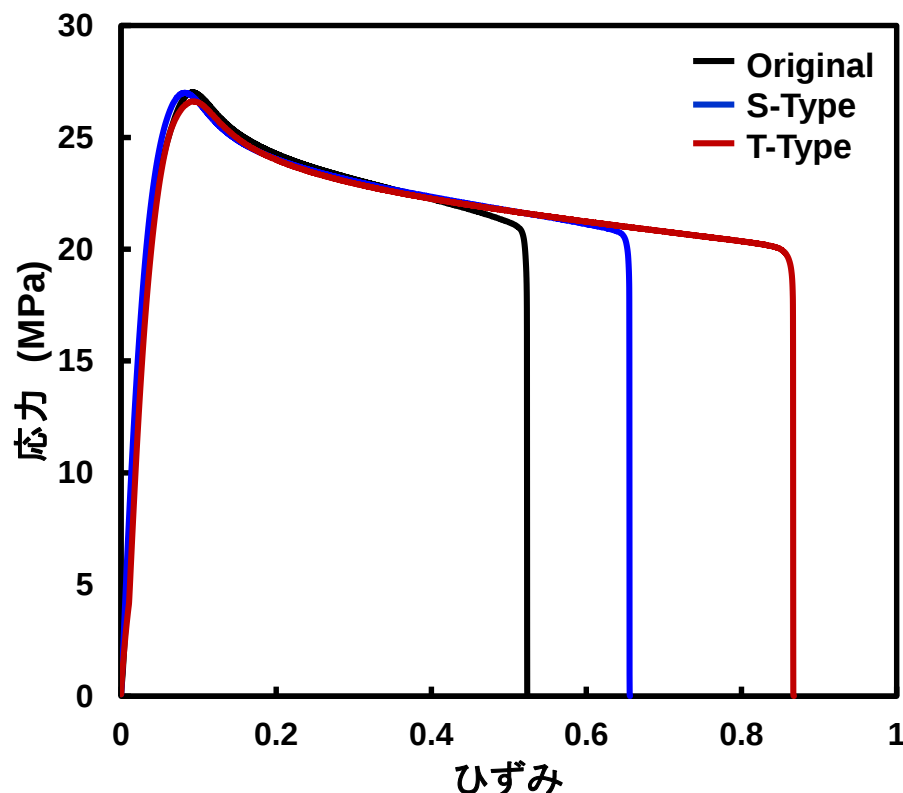


溶融樹脂を一時滞留させる溶融樹脂溜り部
 (先細り形状型 : T-Type)を設置



新技術の特徴・従来技術との比較

樹脂溜り部・直管型・先細り形状型



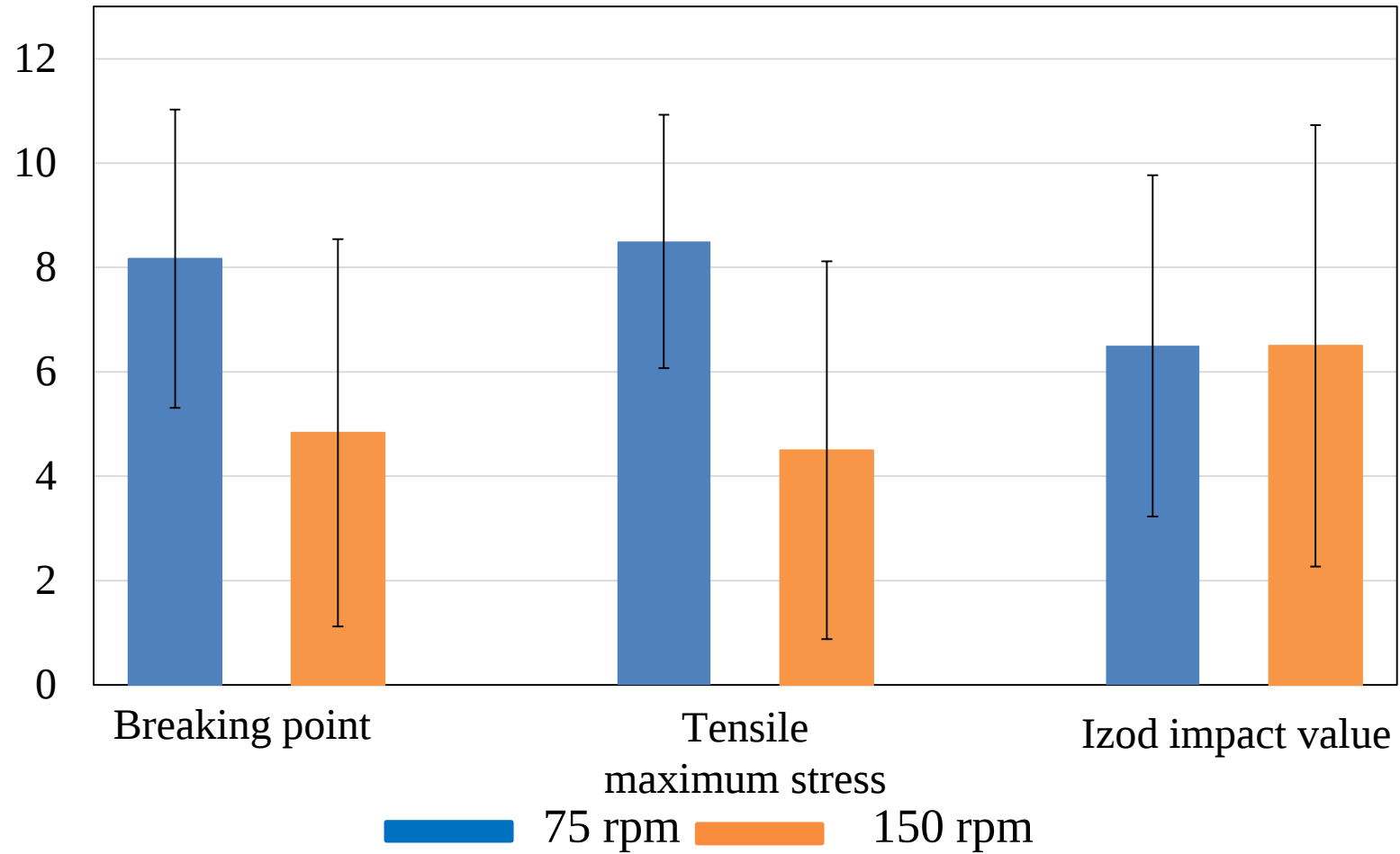
機械的性質	Original	S-Type	T-Type
降伏点 (MPa)	27.0	27.0	26.6
ヤング率 (MPa)	594.5	799.1	423.1
衝撃エネルギー吸収能力 (MJ/m ³)	11.8	14.7	18.9
破断点 (MPa)	21.2	20.8	19.9
破断伸び (%)	427.6	510.2	642.3
アイゾット衝撃値 (kJ/m ²)	5.8	5.5	5.5

- T-type (先細り形状型樹脂溜り)は靱性や破断伸びが S-type (直管型樹脂溜り)や Original (樹脂溜り無し)に比べて良好な値を示した
- 適切な樹脂だまりを設けることにより複合樹脂の物性を向上させることに成功した

射出成形条件および得られた試験片の物性値

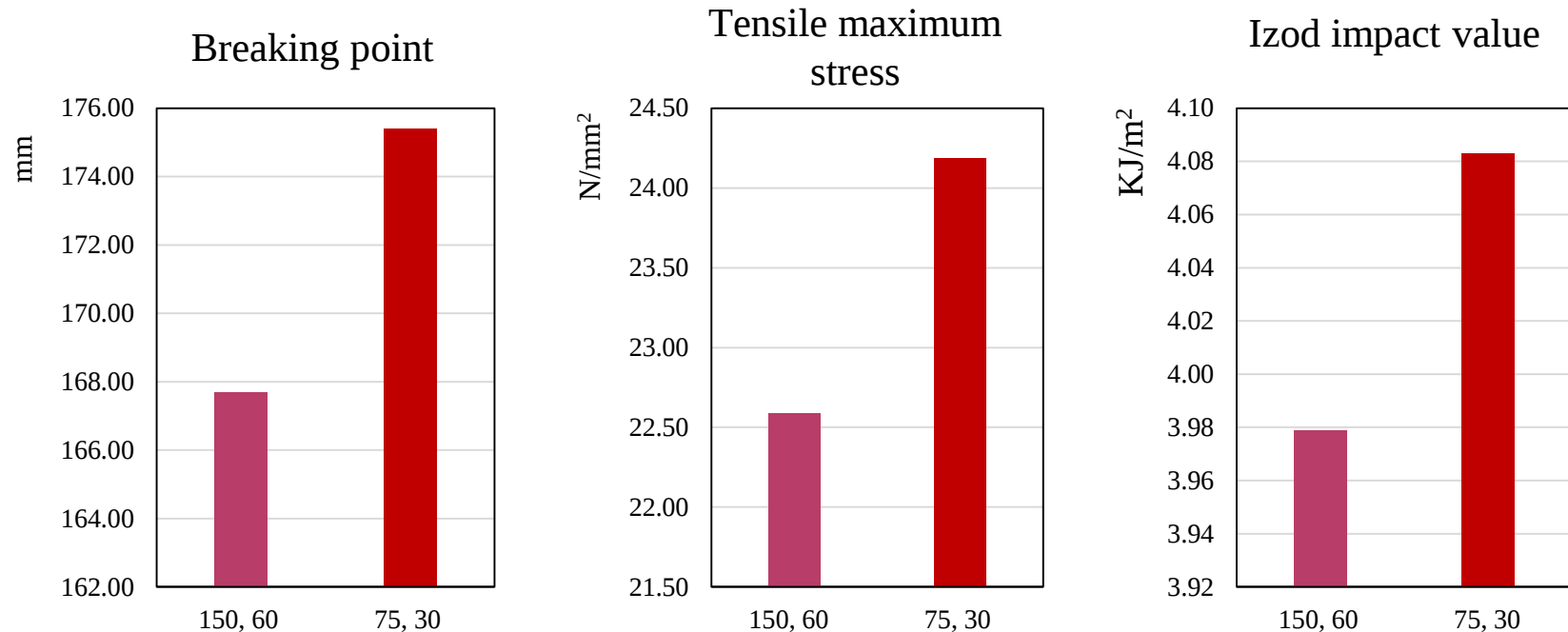
射出成形条件			物性値		
シリンダー 温度	スクリー 回転速度	射出成形速度	引張最大応力	破断点	Izod衝撃強度
℃	min ⁻¹	mm/s	N/mm ²	mm	KJ/m ²
200	75	30	23.73	174.72	4.16
200	75	60	23.64	187.38	4.14
200	150	30	23.99	175.59	4.34
200	150	60	23.60	153.60	4.14
230	75	30	24.19	175.41	4.08
230	75	60	23.71	178.80	4.04
230	150	30	23.19	175.22	4.21
230	150	60	22.59	167.68	3.98
250	75	30	23.96	181.60	4.20
250	75	60	23.54	180.68	3.92
250	150	30	22.80	141.41	3.98
250	150	60	22.58	182.49	3.95

スクリー回転速度依存度



回転速度は遅い方がよい物性となる傾向がある

230°Cでの成形条件依存性



(スクリー回転速度、射出成形速度)では
(75, 30)の両速度が遅い方が明らかに物性値が良い



福岡大学が導入した樹脂溜まりを持つラボ押出機（赤丸内が樹脂溜まり）



引張後試験片(富山環境整備樹脂)



改質後
230,100,10

original

ペレタイズ条件

フィード[kg]	温度[°C]	軸回転速度[rpm]	巻き取り速度[m/min]
5	230	100	6
			10
		200	6
	200	100	6
			10
		200	6
			10

研究開発目標

基礎研究	• バージンプラスチックを用いた、物理劣化発現メカニズムの解明 ← 熱やせん断履歴の影響評価 • メゾ領域の構造解析手法の検討 ← SAXS、TEMなどの適用性 • リサイクルプラスチックの物性評価への応用
実機を用いた 適用基礎研究	• 樹脂溜まり効果の再現性評価 • リサイクルプラスチックの高性能化とメゾ領域内部構造との関連性の評価 • 新規樹脂溜まりの検討 • 高性能化ペレット特性を活かす射出成形条件
研究成果の 普及と実用化	• 学会発表、論文発表 • ネットワーク構築を目指した講演会活動の実施 • 協力企業のネットワーク構築

対外活動状況：論文

- 「L-LDPEの力学的性質の熱履歴依存性」, 上野泰子, パチャ パントン, 山下慶太郎, 関口博史, 中野良子, 八尾 滋, プラスチック成形加工学会誌, 32(4), 144-147 (2020).
- 「未選別廃棄容器包装リサイクルプラスチックの力学特性の成形法依存性」, 山崎奈都美, 竹中希美, 富永亜矢, 道上哲吉, 高取永一, 関口博史, 中野涼子, 八尾滋, 廃棄物資源循環学会論文誌, 30, 122-131, (2019).
- “Advanced recycling process for waste plastics based on physical degradation theory and its stability”, Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, Eiichi Takatori, Journal of Material Cycles and Waste Management, 21(1), 116-124 (2019). [IF 2.004]
- “Relationship between the long period and the mechanical properties of recycled polypropylene”, Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, and Eiichi Takatori, Nihon Reoroji Gakkaishi, 45(5), 287-290 (2017). [IF 0.554]

対外活動状況：学会発表

年度	国内	国際
2017	3	5
2018	5	14
2019	5	7
総計	13	26

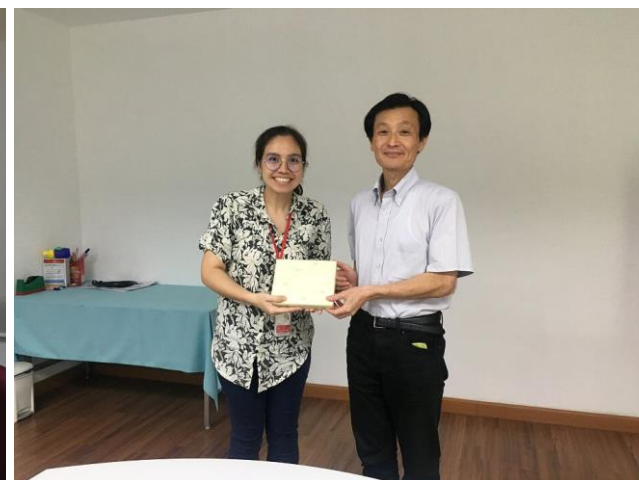
対外活動状況：依頼講演（公開のみ）・学会基調講演

年度	依頼講演	学会基調講演
2017	—	—
2018	2	—
2019	12	4
総計	14	4

9月30日～10月3日:タイ訪問

スケジュール

Oct 1, 2019 (Tuesday)	9:00-11:00	Research collaboration and Lab tour	Department of Chemical Technology, Faculty of Science, Chulalongkorn University	Assoc. Prof. Dr. Prasert Reubroycharoen
	13:30-15:30	Preparation for ISFR2021		
Oct 2, 2019 (Wednesday)	9:00-12:00	Research collaboration and Lab tour	The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University	Assist. Prof. Dr. Manit Nithitanakul
	14:00-16:00	Research discussion	Sankyokasei (Thailand) Co., Ltd.	Hisashi Iwamoto
Oct 3, 2019 (Thursday)	10:00-17:00	Research collaboration and Lab tour	Technical and Research division, SCG Chemicals Co., Ltd.	Dr. Wonchalem Rungswang



- ◆ 国からの委託を受け、大学で分別収集などのFSが始まったばかり(前途多難)
- ◆ 大学でのマテリアルリサイクルの研究はほとんどされていない(国柄バイオマスの関心が高い)
- ◆ 企業(SCG)においては、本年からマテリアルリサイクルプロジェクトが発足した(対処法に苦慮中)

対外活動状況：商業雑誌掲載

2017年 0件、 2018年 3件、 2019年 4件

対外活動状況：新聞・TV

2017年 0件、 2018年 3件、 2019年 4件

対外活動状況：受賞

学生ポスター 4件

レオロジー学会誌論文賞（高取） 1件

「功劳賞」：一般社団法人プラスチック成形加工学会

「研究進歩賞」：プラスチックリサイクル化学研究会

知財関連

- 1) 道上哲吉、パチヤ パントン、八尾 滋、山崎奈都美、山下慶太郎：福岡大学；「熱可塑性樹脂組成物の成形機、および製造方法、ならびに複合樹脂組成物の成形品の製造方法、射出成形品」、特願2019-021401、2019年2月8日
- 2) 八尾 滋、中野涼子、内野智仁：福岡大学；「ポリオレフィンのメッキ成形体およびその製造方法、リサイクルポリオレフィンを含むポリオレフィン成形体をメッキする方法、ならびに、リサイクルポリオレフィンを含むポリオレフィン成形体に電気伝導性または抗菌性を付与する方法」、特願2018-215683、2018年11月16日
- 3) 八尾 滋、中野涼子、冨永亜矢、竹中希美、石黒桂二：福岡大学；「樹脂組成物成形機および樹脂組成物の成形方法」、特許第6608306号、2019年11月1日
- 4) 八尾 滋、中野涼子、冨永亜矢、石黒桂二：福岡大学；「リサイクルポリオレフィンを含む熱可塑性樹脂組成物の再生方法」、特許第6333674号、2018年5月11日

- 2019年度NEDOの先導研究に採択

参画大学・研究機関

産総研、奈良先端、東工大、神戸大、山口大、九工大、
九州市立大

参画企業

いその、三菱電機、花王、ライオン、旭化成、凸版印刷、
メビウスパッケージング、三光合成、富山環境整備、
プラスチック工学研究所

どうもありがとうございました