PE/PET リサイクル樹脂とその物性

加藤 真理子^{*1}・川口 隆文^{*1}・川崎 真一^{*1}・西村 寛之^{*1}・
神原 肇^{*2}・柳瀬 広美^{*2}・佐藤 正洋^{*2}

1. はじめに

近年、従来の鋼管や鋳鉄管に代わり、ポリエチレン管(以下 PE 管)をガス供給のために使用することが多くなっている。それに伴い、水道等の他工事による移設時の仮配管の廃材や、施工時の切れ端として排出する PE 管廃材の量が増加してきた(図 1)。これまで、これら PE 管廃材は回収の後、供給管位置の明示杭などの用途に 100% リサイクルされてきた。しかしながら、いずれも低品位な方向へのリサイクルであるため、より高品位なマテリアルリサイクルが望まれてきた。

また一方で、市民生活に多く活用されている飲料容器などの多くはポリエチレンテレフタレート(以下 PET)製であり、それに伴って PET ボトル廃材の排出量が増えてきている。平成 12 年度の PET ボトル生産量は約 37 万トンであるが、それに対して平成 12 年に回収され、リサイクルされた PET ボトル量は約 7 万トンにすぎず、用途も繊維製品などに限られていた(図 2)¹⁾。

そこで、本研究では PE 管廃材と PET ボトル廃材を、新規相溶化剤を用いて高品位方向へのマテリアルリサイク

ルする方法について検討したので報告する。また、比較する対象の樹脂として、ガスコンロのつまみ部分に使用されている材料の ABS/PBT 樹脂を使用した^{2),3)}。

2. 試 作

2.1 試料

試料として、PE 管廃材(ガス管用: $M_w = 4.17 \times 10^5$, $M_w/M_n = 10.62$ PE 管の原料樹脂の混在比率によって、多少変動する)、PET 廃材(よのペットボトル社製クリアペレット)、アイオノマー系相溶化剤(A, B)そして比較対象として、ABS/PBT(三菱レーヨン社製 XTB-583)を使用した^{4),5)}。試験片は引張試験では JIS K-7113 に準拠した 1 号試験片、衝撃試験では JIS K-7113 に準拠した幅 1/4 インチ、厚さ 1/2 インチ、ノッチ形状 45° V ノッチの試験片を用いた。また、曲げ弾性率は JIS K-7171 および JIS K-7203 に準拠した試験片を使用した⁶⁾。

2.2 試作条件

コンパウンドの作製はプラスチック工学研究所製二軸押出機を使用し、混練部温度 260℃~300℃、モータ回転約 50 rpm~200 rpm でおこなった。また、試験片の作製は日本製鋼所製射出成形機を使用し、ノズル温度 240℃~280℃、射出圧力 35~40 kg/cm² でおこなった。

2.3 機械的強度の測定条件

引張試験は雰囲気温度 23℃、相対湿度 50%、引張速度 50 mm/min で実施した。衝撃試験は雰囲気温度 23℃、相対湿度 50%、ハンマー回転軸の周りのモーメント 50 J で

図 1 大阪ガスのポリエチレン管廃材の排出量とリサイクル用途(平成 12 年度)

大阪ガス管内年間排出量		105 t
リサイクル量		105 t
(内訳)	自社利用	35 t
	既設供給管明示杭	10 t
	新設供給管先行ボール	10 t
	導管明示テープ	7 t
	暖房樹脂管用鞘管	8 t
他社使用		70 t

^{*1} Kato, Mariko/Kawaguchi, Takafumi
Kawasaki, Shinichi/Nishimura, Hiroyuki
大阪ガス(株) 開発研究部
大阪市此花区西島(〒554-0051)

^{*2} Kanbara, Hajime/Yanase, Hiromi/Sato, Masahiro
(株)関西新技術研究所アドバンストマテリアル研究部
京都市下京区中堂寺南町(〒600-8813)
2001. 9. 23 受理

図 2 PET ボトルの精算量とリサイクル量の推移(国内)

実施した。曲げ弾性率は雰囲気温度 23℃，試験速度 2 mm/min，スパン間距離 64 mm，曲げ弾性率の計算は JIS K-7171 に準拠した。

3. 検討結果

3.1 PE/PET 配合割合について

PE 管廃材と PET ボトル廃材各単体の強度の間に ABS/PBT 樹脂の引張強度が存在することが図 3 よりわかる。図 3 より，PE 管廃材が 20～30%，PET ボトル廃材が 70～80% のところに ABS/PBT 樹脂の強度が該当することから，この配合割合を目標にして検討した。

3.2 相溶化の考え方

一般的に，PE と PET は極性の違いから均一には混ざり合わないと言われている。PE と PET をそれぞれ溶融させ，混合した時の SEM 写真が図 4 に示されている。この場合の配合割合は先に決めた PE/PET (20/80) であり，SEM 写真中に PE が島構造となっははっきり分離している姿が確認できる。ところが，少量の相溶化剤を添加して，PE/PET 混合物を溶融混練すると図 5 のように島構造が顕著には確認できない。相溶化した樹脂の細部にわたる構造は明らかではないが，おそらく図 6 のような形で部分的に結合していると考えられる。すなわち，相溶化剤の中には，PE のように低極性の物質と親和性がある部分と，PET のように高極性の物質と親和性のある部分が存

在し，それぞれを結び合わせる働きをする。また，相溶化剤は，リサイクル時に混入する異物を包み込んで影響を低減することが期待できる。

3.3 相溶化剤の選定

先の章で決定した PET ボトル廃材/PE 管廃材 (80/20) の混合樹脂に添加するアイオノマー系相溶化剤を何種類か検討した。そのうち，相溶化剤 A,B を添加した場合の引張強度を示したのが図 7 である。これより，相溶化剤 B を添加した場合には ABS/PBT 樹脂よりも引張強度が優れていることが確認できる。また，相溶化剤 B についてその他の機械的強度を ABS/PBT 樹脂と比較すると，相溶化剤を添加したリサイクル樹脂のほうが ABS/PBT 樹脂よりも機械的強度が優れていることがわかった (図 8)。

次に，相溶化剤 B の添加量について検討を行った。先に示した図 3 上で，それぞれ相溶化剤 B を 1%，2%，5% 添加した樹脂複合材の物性比較を行った。これより 1% 添加した場合に引張強度の内挿線上に乗っていることから，相溶化剤 B に関して，1% が適正な添加率であると言える。

3.4 成形条件について

一般的に，非相溶の樹脂を相溶化剤によって均一混合する場合には混練温度が相溶性，成形物の物性に大きく影響する場合が多い。そこで，PET の融点の直上である 260℃ から 20℃ ずつ温度を上げて検討をおこなった。その結果が図 9 である。これより 300℃ を超えると引張強度破断伸

図 3 各コンパウンドにおける引張および衝撃強度比較

図 4 相溶化剤添加なし (顕微鏡写真)

図 5 相溶化剤添加あり (顕微鏡写真)

図6 相溶化概念図

図7 新規リサイクル樹脂のABS/PBT樹脂に対する性能比較 (相溶化剤A, Bの比較)

図8 新規リサイクル樹脂のABS系樹脂に対する性能比較 (各機械的強度の比較)

図9 混練温度と機械的強度の比較検討

びおよび衝撃強度が明らかに低下していることがわかる。これはPEの耐熱性によるものと考えられる。また、260℃と280℃はどちらもABS/PBT樹脂と同等またはそれ以上の強度を有していることがわかった。

図10 混練時間と機械的強度の比較検討

図11 成形加工温度と機械的強度の比較検討

また、実用化を考慮した場合、混練時間が短い方が望ましい。そこで混練温度を280℃に統一し、混練時間を1分、2分、4分間と3種類について検討をおこなった。その結果が図10である。これより混練時間による機械的特性の変化は小さく、最短時間の1分間でも十分に相溶していることがわかった。

次に射出成形温度についても検討をおこなった。280℃での射出成形温度はエンプラの成形温度範囲になるため、汎用性プラスチックを扱う工場では敬遠されることが多い。そこで、ABS樹脂の射出成形領域である240℃から20℃ずつ温度を上げて280℃まで検討をおこなった。その結果が図11である。これより、射出成形は240℃では引張強度および破断伸びが低下しており、成形品の表面も荒れていることがわかった。このリサイクル材を成形するには少なくともPET相がもう一度溶融する温度が必要であることがわかった。

4. おわりに

PE廃材、PETボトル廃材に相溶化剤を配合することにより、ABS/PBT樹脂と同等またはそれ以上の強度を持つPE/PETリサイクル樹脂を作製できたと共に、有効な成形条件を確認することができた。また、今回得られたリサイクル樹脂はPE由来の性質であるの伸びの良さや衝撃強さとPET由来の性質であるの引張強さを同時に併せ持っており、リサイクルの形態としてとても興味深いと言える。

参考文献

- 1) 厚生省第7回容器包装リサイクルシステム検討会発表：包装容器リサイクルシステム検討会報告書
- 2) 日本ガス、石油機器工業会：ガス、石油機器自主統計

図12 リサイクルの工程

- 年報 (1999)
- 3) 化学工業日報社：13700 の化学商品 (2000)
- 4) 島健太郎：99 年度高分子添加剤市場，135 (1999)，
(株)シーエムシー
- 5) 日本プラスチック工業連盟：2000 年プラスチック原材料販売実績

- 6) 財団法人規格協会：JIS プラスチック I 試験 (2001)
- 7) 化学工業日報社：プラスチック成形材料商取引便覧 (1999)
- 8) 加藤真理子，川口隆文，川崎真一，西村寛之，曾 祥生，神原 肇，柳瀬広美，佐藤正洋：2000 年度プラスチック成形加工学会年次大会，293 (2001)

書 評

「ポリエチレン技術読本」

松浦和夫，
三上尚孝 編著

(株)工業調査会
2001 年 7 月 1 日発行
A 5 判・290 頁
定価 (本体 4,300 円 + 税)

本書を読んだ時，非常に読みやすく，また内容豊富で，LLDPE を中心としたポリエチレン工業の進歩の過程を納得しながら読み進むことができた実感した。高分子化学専攻の学生時代に受けた授業では，高分子化学工業を構成する触媒/プロセス/構造/加工/物性といった要素についてそれぞれ講義をうけたが，なかなか各要素間の繋がりが実感できず，企業に入社した後も各要素間の連携の重要さに気が付くまでかなり時間がかかった記憶がある。本書では，単にポリエチレンの技術に関する分野にとどまらず，各要素技術の進歩が他の要素に影響を与えあいながら，それぞれの要素技術がより高度に進歩し

た緻密な工業体系として進化する過程が実例を持って判りやすく解説されており，これから化学工業に入ろうとする学生および企業の技術者にとっても有用な技術書と考える。また，Column として，所々に配置された小文には豊富な開発の実戦経験から出てきた話が掲載され，企業の研究者として自らの経験も思い出しながら非常に興味深く読ませていただいた。近年，ポリエチレンを取り巻く環境は大きく変わりつつあり，さらなる進化が求められている時代である。こうした中で，この本が新しい世代に何がしかのインパクトを与えることを期待したい。
(住友化学工業(株) 鈴木靖朗)