

# 容器リサイクル再生樹脂の曲げ剛性の改善について

荒堀 康史<sup>\*1)</sup>, 植村 哲<sup>\*1)</sup>, 杉本 恭利<sup>\*2)</sup>

## Improvement Method of Flexural Rigidity about Containers and Packaging Recycling Polymer

ARAHORI Yasushi <sup>\*1)</sup> UEMURA Satoshi <sup>\*1)</sup> SUGIMOTO Kiyotoshi <sup>\*2)</sup>

容器包装に係る分別収集及び再商品化の促進等に関する法律により再商品化された樹脂の柔らかく変形しやすいという欠点を克服するため、曲げ弾性率の向上を目的として、樹脂への各種フィラーの添加やポリマーブレンドについて検討を行った。フィラーの添加についてはタルク、合成雲母、炭素繊維を検討し、同量添加した場合は炭素繊維の添加が最も大きく曲げ剛性向上に寄与した。ポリマーブレンドについてはポリカーボネートとのブレンドで効果は見られたが、添加率を上げる必要があった。

### 1. 緒言

平成9年に施行され、平成18年に改訂された容器包装に係る分別収集及び再商品化の促進等に関する法律（容リ法）により、法律施行前からリサイクルされていたガラス、紙に加えてプラスチック容器についてもリサイクルの対象となり、現在これらの容器包装類は排出量の抑制と共に再商品化義務の対象となっている。再商品化された樹脂（容器リサイクル樹脂）は原料の性質上成分が安定しない、着色していること、曲がりやすいといった問題があるためパレット、標識の杭、車止め等限られた用途にしか用いられていない。しかしながら安価であるため、強度を向上させることが出来れば用途は拡大すると思われる。本研究は、各種フィラー添加やポリマーブレンドといった手法を用いて曲げ剛性の向上を図ることを目的とする。

### 2. 実験方法

#### 2.1 材料

検討対象とした容器リサイクル樹脂は、県内の関係企業より提供を受けた。フィラーとしては、タルク（SG-95：日本タルク<sup>®</sup>製）、合成雲母（ソマシフ MAE：コープケミカル<sup>®</sup>製）を使用した。結晶核剤としてロジン誘導体（パインクリスタル KM-1500：荒川化学<sup>®</sup>製）、樹脂改質剤として相容化剤（ユーメックス 1001 及びユーメックス 1010：三洋化成工業<sup>®</sup>製）を用いた。また、廃棄物の有効利用を検討するため、炭素繊維強化プラスチック（CFRP）成形時にカットされた炭素繊維シートの添加も検討した。

#### 2.2 試料の作製

容器リサイクル樹脂と各種フィラー等の混練は微量

混練分散装置ラボプラストミル（<sup>®</sup>東洋精機製作所製 4C150 型）を用いた。セグメントミキサーは KF70V2 を使用して毎分 50 回転、加熱温度 200℃で 10 分間混練した。試験片成形にはエアークラス式簡易トランスファー成形機（ハイデンタルジャパン社製スルホンジェット 2500）を用い、幅 10mm、厚さ 2.5mm、有効長 78mm の試験片を作製した。シャルピー衝撃試験用の試料はノッチングマシーン NM-1（東測精密工業<sup>®</sup>製）を用いて JIS K7111-1 形状 C に規定するノッチを刻んだ。

#### 2.3 物性試験測定

曲げ弾性率の測定には、万能試験機（インストロン社製インストロン 5582）を用いた。JIS K7171 プラスチック・曲げ特性の求め方に準拠し、測定は 3 点曲げ、支点間距離 40mm、試験速度 1mm/min で行った。シャルピー衝撃値は JIS K7111-1/1eC プラスチックシャルピー衝撃特性の求め方に準拠し、No.258-PC 万能衝撃試験機（安田精機製作所製）を用い、ハンマー容量 2J で行った。

#### 2.4 その他各種測定

容器リサイクル樹脂の成分測定のためフーリエ変換赤外分光分析装置（日本分光<sup>®</sup>製 IMV-4000）、熔融時の流動性測定のためメルトインデクサー T-01（<sup>®</sup>東洋精機製作所製）、構造観察のため<sup>®</sup>日立ハイテクノロジーズ製走査電子顕微鏡 SU3500 を用いた。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 容器リサイクル樹脂の品質確認

容器リサイクル樹脂の成分を確認するため、フーリエ変換赤外分光分析装置を用いて樹脂の吸収スペクトル測定を

<sup>\*1)</sup> 繊維・毛皮革・高分子グループ <sup>\*2)</sup> 奈良県景観・環境総合センター

表 1 容器リサイクル樹脂の測定値

項目	条件	容器リサイクル	容器リサイクル	PP(射出成形用) <sup>1)</sup>
		樹脂 1	樹脂 2	
MFR[g/10 分]	230°C 2.16kg	3.2	3.2	10-21
曲げ弾性率[MPa]		748	746	1500-2000
衝撃試験値[kJ/m <sup>2</sup> ]	形状 C のノッチ	6.2	6.2	2.5-3.5

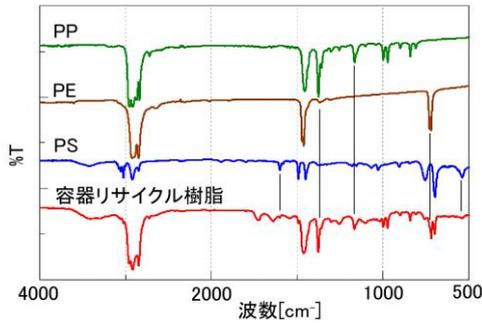


図 1 容器リサイクル樹脂と各樹脂のプロポーショナル測定

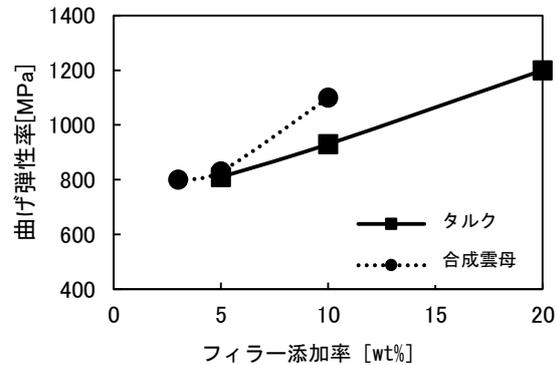


図 2 フィラー添加率と曲げ弾性率

行った。測定結果及び代表的な樹脂の吸収スペクトルを図 1 に示す。ポリプロピレン (PP)、ポリエチレン (PE)、ポリスチレン (PS) 各吸収ピークに特徴的なピークが容器リサイクル樹脂にも見られたため、これらの成分が含まれていると推測される。

容器リサイクル樹脂は原料の性質上品質が不安定であることが懸念されるため、製造時期の異なる二つの樹脂の諸特性を比較した。検討した項目は成形時の流動性比較のメルトフローレート (MFR)、曲げ弾性率、シャルピー衝撃試験値で、結果を表 1 に示す。表 1 の通り、製造時期の異なる二つの樹脂の特性に差はなく、検討した範囲では品質に大きいばらつきは見られなかった。参考として射出成形グレードの PP と比較すると、MFR は PP の 10-21 程度に対して 3.2 であり、流動しにくいこと、曲げ弾性率は PP の 1500-2000MPa に対して 800 弱であり変形しやすいこと、シャルピー衝撃試験値は PP の 2.5-3.5kJ/m<sup>2</sup> に対して 6.2 kJ/m<sup>2</sup> と PP 以上の靱性があることがわかった。

### 3.2 各種フィラーの添加と曲げ弾性率

樹脂の剛性付与の手法として、よく用いられるフィラー添加について検討した。添加するフィラーは、PP の結晶成長核になりやすい特性を持つタルク (SG-95) と剛性付与効果のある合成雲母 (ソマシフ MAE) を用いた。容器リサイクル樹脂にそれぞれの物質を所定の量を添加して微量混練分散装置で混練し、試験片に成形して曲げ弾性率の測定を行った。各フィラーの添加量と曲げ弾性率の関係を図 2 に示す。容器リサイクル樹脂のみを混練・成形した試験片の曲げ弾性率は 800MPa であった。これと比較すると、タルク

については、添加量 5wt% では効果が見られなかったが、添加量 10wt% では曲げ弾性率は 930MPa に向上し、20wt% で 1200MPa への向上が見られた。

続いて合成雲母の添加については、添加量 5wt% 以下ではタルク同様効果が見られなかったが、10wt% 添加時は 1100MPa とタルク以上の効果が見られた。また、合成雲母の添加時に相容化剤も添加すると更なる効果が見込まれるという報告<sup>2)</sup>があったため、容器リサイクル樹脂にも適用できるかの検討を行った。添加する相容化剤はユーメックス 1001 と 1010 で、両者には分子量等の違いがある。効果を確認するための試験片は、合成雲母及び相容化剤の添加量を段階的に増やしたものを作製した。結果を図 3 及び図 4 に示す。図 3 よりユーメックス 1001 の添加効果は大きく、合成雲母の添加量が 3% でも曲げ弾性率は 1000MPa 近くまで向上し、5% では 1200MPa 以上の結果が得られた。図 4 にユーメックス 1010 の添加効果を示した。こちらも 1001 と同様に曲げ弾性率向上が見られ、合成雲母添加量 5% での曲げ弾性率は 1100MPa 以上となり、相容化剤が物性に大きく影響を与えていることがわかった。相容化剤の添加量については、合成雲母添加量が 5% までの場合、相容化剤添加量が 5% と 10% では差は見られなかったが、合成雲母添加量が 10% になると、相容化剤添加量 10% の方が曲げ弾性率向上が大きくなったことから、効果を最大限に発揮するためには合成雲母と同量程度添加することが望ましいと考えられる。

### 3.3 炭素繊維シートの添加と曲げ弾性率

タルクや合成雲母は層状の構造を持つ添加剤であるが、針状の構造を持った炭素繊維の添加を試みた。炭素繊維と

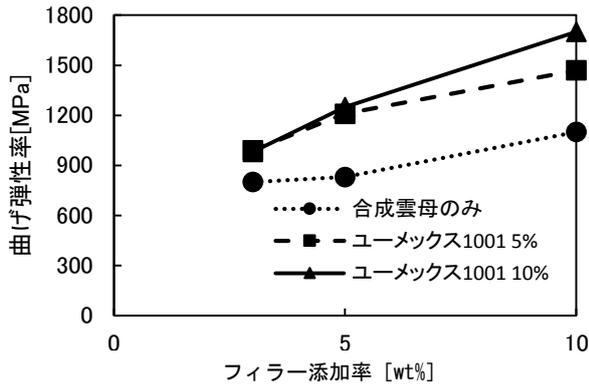


図 3 ユーメックス 1001 の添加と曲げ弾性率

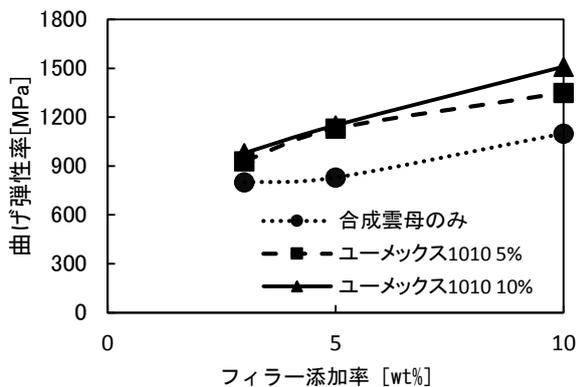


図 4 ユーメックス 1010 の添加と曲げ弾性率

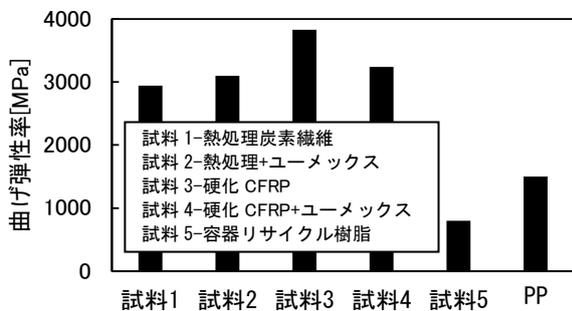


図 5 炭素繊維の添加と曲げ弾性率

して、CFRP 成型時にカットされたシートを 200℃で 5 時間加熱して含まれるエポキシ樹脂分を硬化させた場合 (硬化 CFRP) と、500℃で 2 時間焼成して含まれる樹脂分を除いたもの (熱処理炭素繊維又は熱処理と表記) で検討した。焼成すると樹脂分の減少により元の 70%程度の重量となるが、添加量は樹脂分を含まない炭素繊維分のみの重量に換算して試験片を作製した。炭素繊維の添加量は 10wt%とした。また、炭素繊維の分散性、樹脂との密着性向上を目的として相容化剤 (ユーメックス 1001) を添加した試験も実施した。結果を図 5 に示す。炭素繊維の添加効果は非常に大きく、曲げ弾性率は 3000MPa 近くに達し、同量のタルクや合成雲母を添加した試験を大きくしのぐ結果となった。



図 6 熱処理炭素繊維を混練した容器リサイクル樹脂片の破断面 (1000 倍)



図 7 熱処理炭素繊維および相容化剤を混練した容器リサイクル樹脂片の破断面 (1000 倍)

また、炭素繊維の添加方法についてであるが、熱処理により炭素繊維シートに含まれる樹脂分を除去してから添加するより、除去せず添加した方が曲げ弾性率の向上が大きい結果となった。相容化剤の効果については、曲げ弾性率に関しては今回の検討内容の範囲でははっきりとは認められなかった。但し、樹脂の破壊断面の電子顕微鏡画像からは、図 6 の相容化剤を含まない樹脂片の画像では炭素繊維と樹脂の密着性は見られないが、図 7 の相容化剤を添加した樹脂片の画像では、樹脂が炭素繊維に絡みつ়様子が見られ密着性が向上していることが確認できた。

### 3.4 結晶核剤の添加と曲げ弾性率

結晶核剤について、少量でもタルクの 10 倍量に相当する弾性率向上が見込まれるとの報告<sup>3)</sup>があるため、結晶核剤としてロジン誘導体 (パインクリスタル) についても検討した。結果を図 8 に示す。添加率を 3-10%の間で検討したが、曲げ弾性率は最大でも 950MPa 程度までしか向上せず、容器リサイクル樹脂に対しては他の添加剤と比較して効果が低い結果となった。

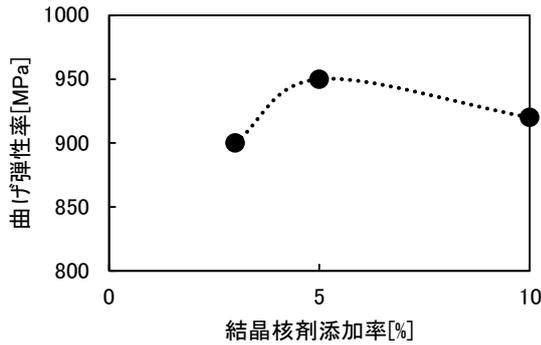


図 8 結晶核剤の添加と曲げ弾性率

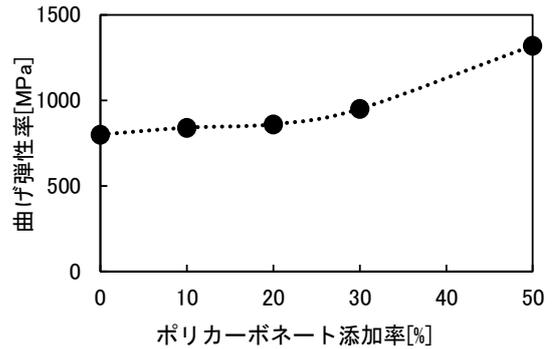


図 9 ポリマーブレンドと曲げ弾性率

### 3.5 ポリマーブレンドと曲げ弾性率

フィラー添加以外の樹脂の特性改善の手法として他の樹脂と混合するポリマーブレンドについて検討した。対象とした樹脂は、PP より曲げ弾性率が高い<sup>4)</sup>ポリカーボネートを用いた。容器リサイクル樹脂に添加したポリカーボネートの割合と曲げ弾性率の関係を図9に示す。ポリカーボネートの割合が上昇すると、曲げ弾性率も上昇し、50%添加時に1320MPaを達成した。

## 4. 結言

容器リサイクル樹脂に各種フィラーの添加やポリマーブレンドを行うことにより、本樹脂の欠点であった曲げ剛性を向上することが出来た。樹脂に対して同量添加した場合、最も大きい効果が得られたのは、炭素繊維の添加で次いで合成雲母、タルクの順であった。添加方法については、相容化剤も同時に添加すると効果は大きくなるが多かつ

た。また、炭素繊維の場合は CFRP のシートに含まれる樹脂を除去しないで添加した方が、強度及びコストの点で有利である。ポリマーブレンドの場合、ポリカーボネートとブレンドすることにより曲げ剛性は向上したが、ポリカーボネートの添加量を50%近くにする必要がある。

### 参考文献

- 1) 日本ポリプロ(株):PP 射出成形グレード物性表  
[http://www.pochem.co.jp/jpp/product/novatec-pp/novatec-p\\_p\\_bussei.pdf](http://www.pochem.co.jp/jpp/product/novatec-pp/novatec-p_p_bussei.pdf)
- 2) 植村哲, 安田則彦, 木村豊恒, 足立茂寛:奈良県工業技術センター研究報告, 34, 1-4, 2008
- 3) 植村哲, 大江和希, 安田則彦:奈良県工業技術センター研究報告, 37, 7-10, 2011
- 4) 伊藤公正編:プラスチックデータハンドブック, 158, (株)工業調査会, 1980