

2022年3月31日

報告書

実施期間 2021年4月1日～2022年3月31日

ASR回収プラスチックのアップグレード リサイクル技術研究報告(第五報)

福岡大学工学部教授 機能・構造マテリアル研究所所長

八尾 滋

日産自動車材料技術部

美藤洋平、端野直輝、森 直樹

概要

名称

ASR 回収プラスチックのアップグレードリサイクル技術研究報告(第五報)

実施期間

2021年4月1日～2022年3月31日

開発/調査 代表者

福岡大学工学部教授 機能・構造マテリアル研究所所長 八尾 滋

実施者

福岡大学工学部教授 機能・構造マテリアル研究所所長 八尾 滋
日産自動車株式会社 材料技術部 美藤洋平、端野直輝、森 直樹

目的

ASR 発生量削減を目的に、ASR 回収プラスチック (PP) の物性改質技術を確立し、自動車用部品へのリサイクル材適用を拡大する

実施内容

2020 年度までの成果により、ASR が福岡大学の樹脂溜まり付き二軸押出機を用いることにより、比較的生産量の低い条件で、引張特性での破断伸びならびにタフネス（破断エネルギー・靱性）向上が確認でき、またアイゾット衝撃試験値も大きく向上することが見いだされた。2021 年度はこれらの成果をもとに、より生産速度を上げた条件下で物性向上が見込まれるかの検討を行った。さらに昨年度から継続的な課題である顔料のリサイクル物性に与える影響についても検討を行った。

成果

昨年度から傾向が見えていた樹脂溜まり部の温度を低く設定する条件でリペレタイズ実験を行った。その結果、シリンダー温度 200℃、樹脂溜まり温度 140℃の条件において、スクリュウ回転数を 300rpm と高回転にし、なおかつフィード量を上げる高生産モードで、ASR の引張特性はより高性能化することを見出した。また同条件下でアイゾット衝撃試験値は高い水準を維持することも確認できた。さらに TEM 観察によりメソ領域内部構造に変異が観察され、高生産量の条件に

においても効率的な物理再生が実現したと考えられる。即ち、樹脂溜まり付き押出機を用いることで、高生産モードでの ASR の物性向上・マテリアルリサイクルが可能と考えられる結果を得た。

但し、今回用いた ASR は非常に選別レベルの高いペレタイズ品であるために、今後採算性のとれる ASR のリペレタイズが可能か、ASR の選別あるいは異物の除去レベル依存性を検討することが必要と考えられる。

一方顔料種依存性に関しては、顔料種により、破砕品の段階で伸び特性が大きく低下する結果となった。特に濃い色でその傾向が高いことが明らかとなった。さらに伸び特性は、樹脂溜まりの有無を問わず、今回の条件ではリペレタイズで改善はしなかった。またアイゾット衝撃強さは、顔料種・リペレタイズにあまり依存せず、やや低めの値で安定していた。

これら試料について、SEM により顔料の分散状態を観察した結果、破砕品で伸び特性の良かった白色においては、リペレタイズで顔料の凝集が起きていることが観察された。また破砕品段階で伸び特性が落ちていた黒色は、初期段階から顔料の凝集がみられていた。さらに 100 μ m のフィルムをプレス成形した結果では、灰色および黒色は、破砕品段階で顔料の分散状態が非常に悪く、均質に顔料分散ができていないことが観察された。

即ち、灰色や黒色の系では顔料種ならびに着色プロセスの見直しを行うことが必要と考えられる。また実務的な側面では、顔料の凝集を防ぐあるいは除去できるプロセスと樹脂溜まりなどを用いた物性回復が達成できる最適なりペレタイズ条件探索が必要である。

添付資料 2021年度 ASR高度化ペレタイズ

福岡大学 工学部
機能・構造マテリアル研究所

ASRの高性能化リペタイトイズの高生産性検討

使用樹脂

VPP(BC03BSW)



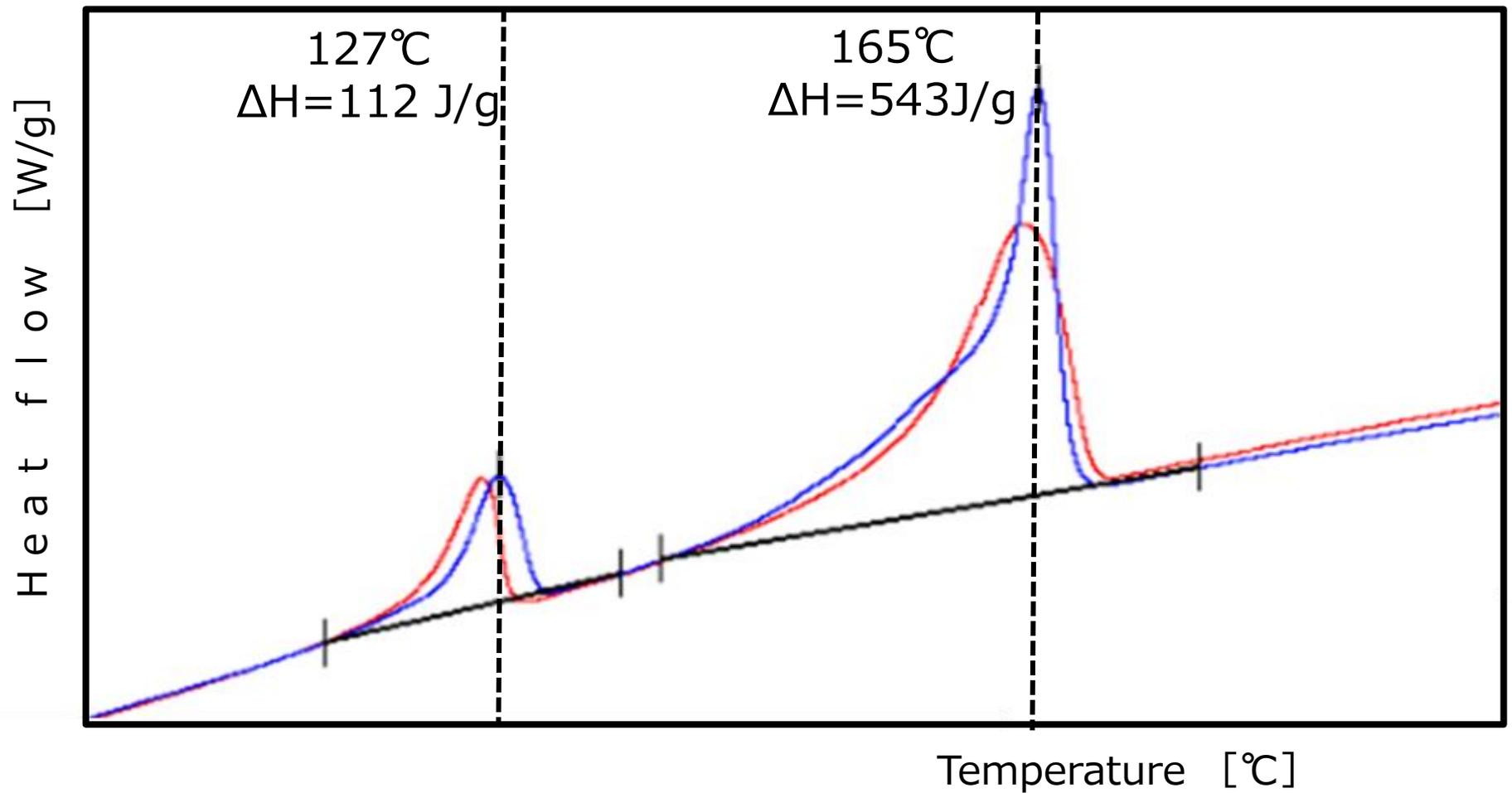
MFR 30g/10min

ASR



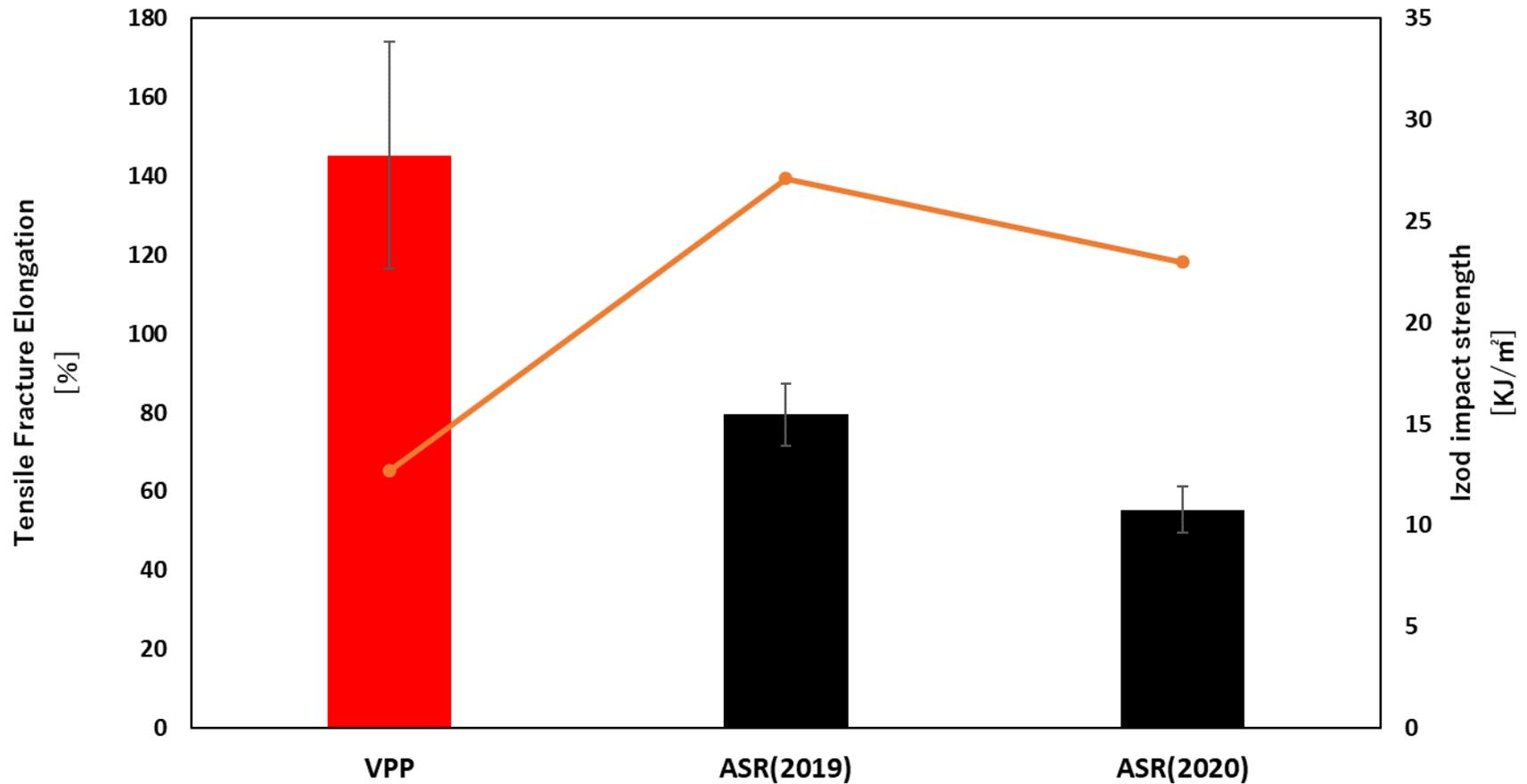
MFR 20g/10min

ASRの組成 DSCによる評価



結晶量でPP=約80%, PE=約20%

本研究における留意点

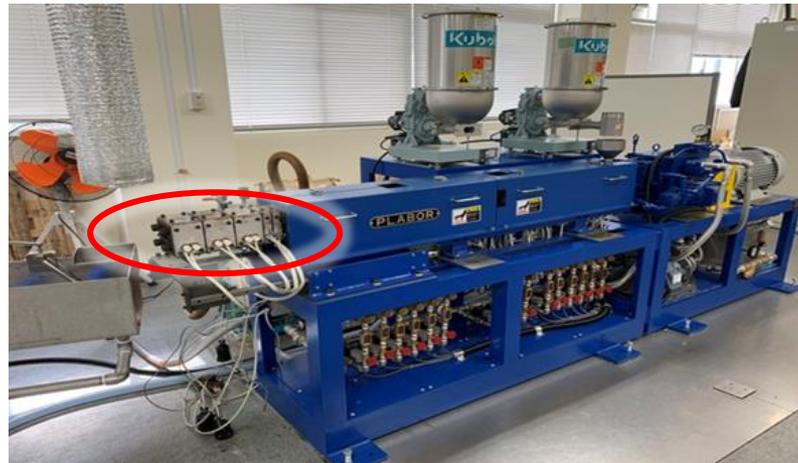


本年度研究に用いたASRは2020年度供給品であり
これまで使用してきた2019年度供給品よりも物性が低い

実験条件



ASR



樹脂溜まり無・有でリペルタイズ

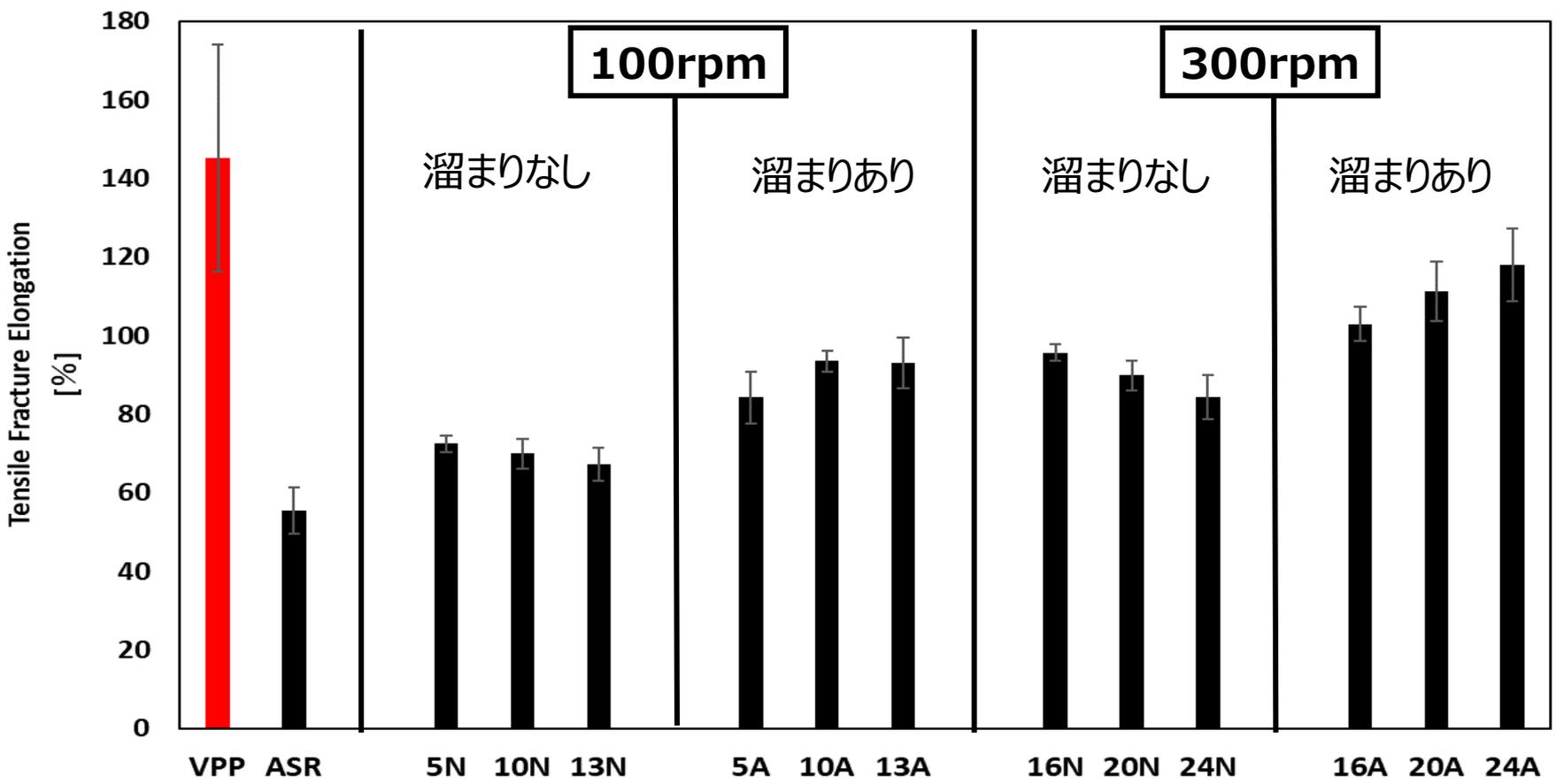


リペルタイズ
ASR

バレル温度200℃、巻き取り速度13.5m/min、樹脂溜まり温度140℃は固定

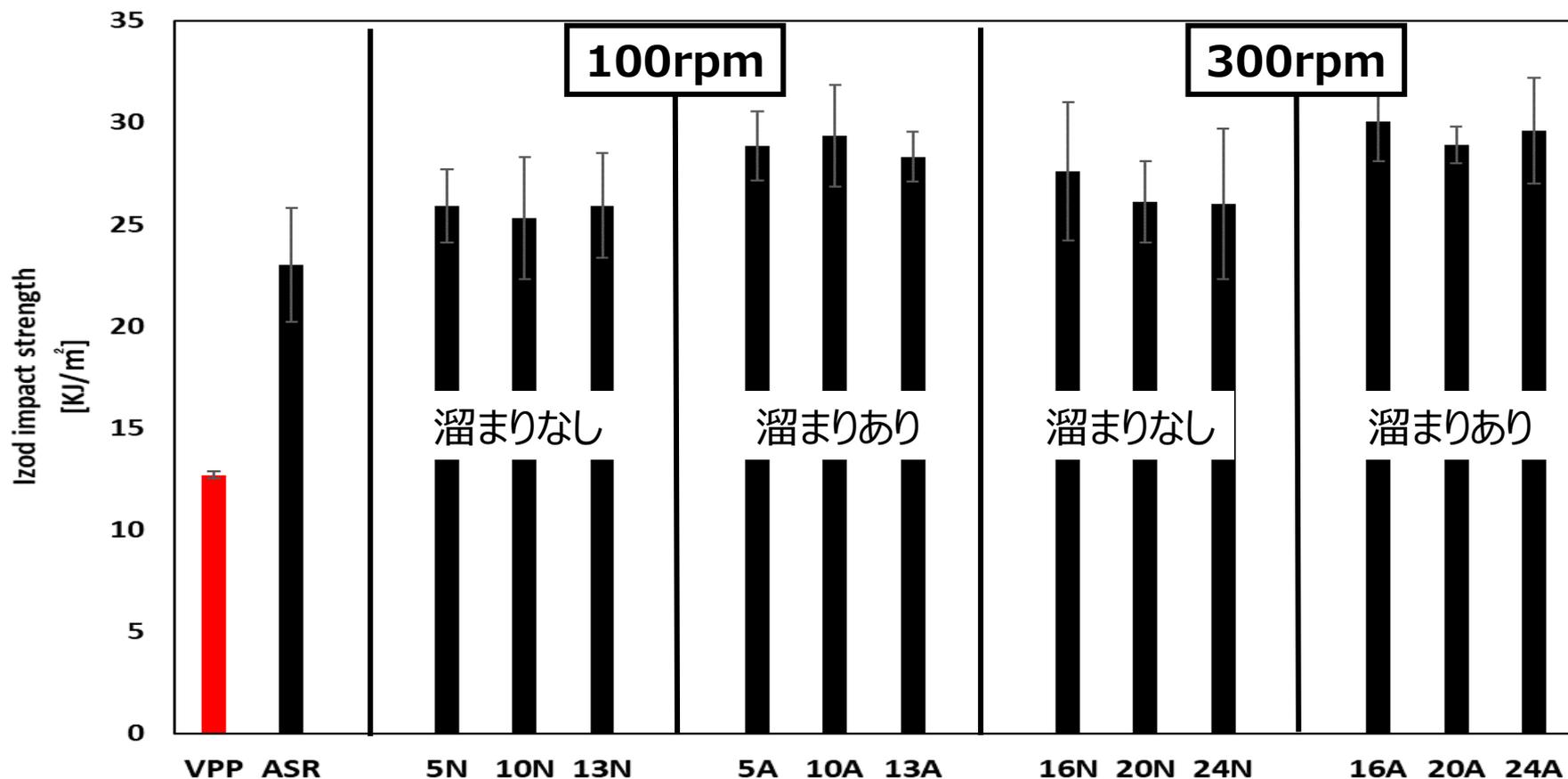
回転数 (rpm)	フィード量 (kg/h)	サンプルコード	
		樹脂溜まり無し	樹脂溜まり有
100	5	5N	5A
	10	10N	10A
	13	13N	13A
300	16	16N	16A
	20	20N	20A
	24	24N	24A

ASR-延性結果2



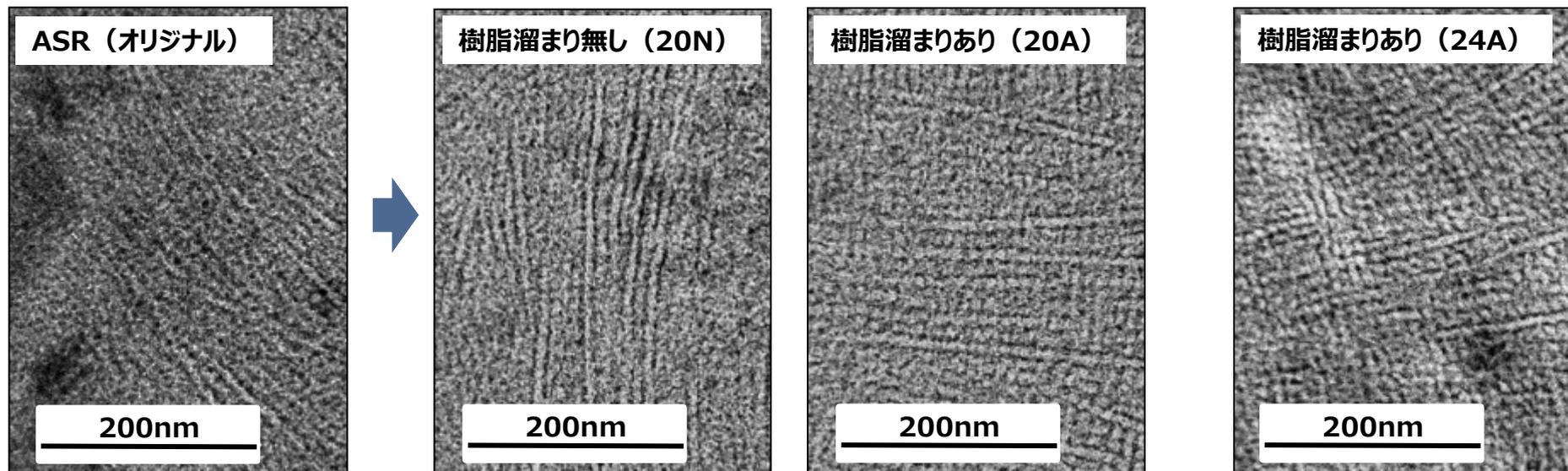
より生産量の高い24kg/hのフィード量において、スクリー回転数を上げることで2倍強の高性能化を達成

ASR-アイゾット評価-結果2



アイゾット衝撃強度においても低下することはなく
高性能を維持

TEMを用いたラメラ構造観察



オリジナルあるいは樹脂溜まり無しで見ていた筋状の構造が
樹脂溜まりをとすことでハッチ状の構造へと変異
→ 構造と物性との関連性の解明が今後必要

- シリンダー温度200℃、樹脂溜まり温度140℃の条件において、スクルー回転数を300rpmと高回転にし、なおかつフィード量を上げる高生産モードで、ASRの引張特性はより高性能化する
- 同上条件下でアイゾット衝撃試験値は高い水準を維持する
- メソ領域内部構造に変異が観察され、効率的な物理再生が実現したと考えられる



樹脂溜まり付き押出機を用いることで、**高生産モードでのASRの物性向上・マテリアルリサイクルが可能**と考えられる

採算性のとれるASRのリペレタイズが可能か



ASRの選別あるいは異物の除去レベル依存性を検討することが必要

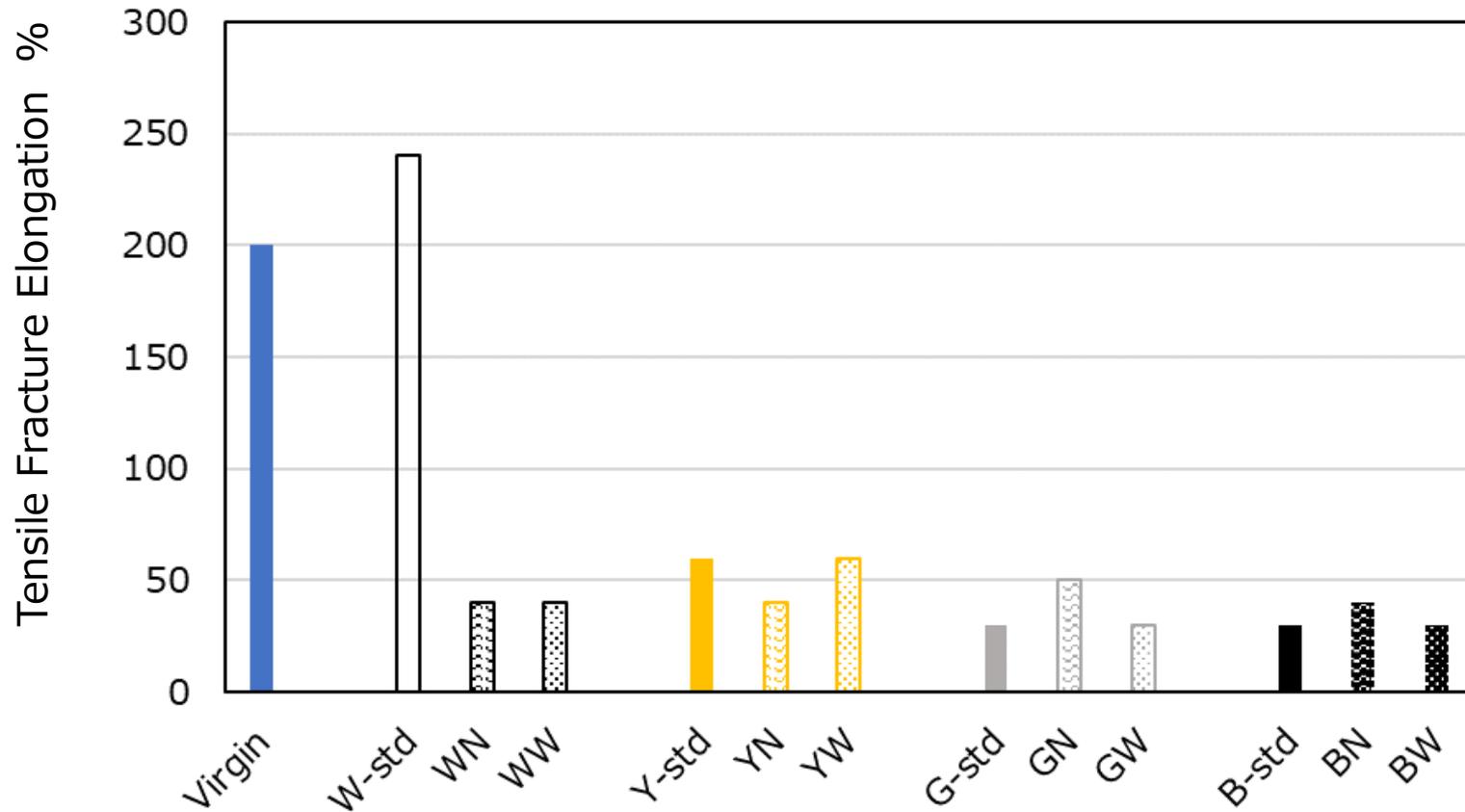
顔料種のリペレタイズに及ぼす影響の検討

ペレットサイズ条件

フィード量 kg/h	スクリー 回転数 rpm	樹脂溜まり 温度 ℃	顔料種別サンプルコード			
			白 (White)	黄色 (Yellow)	灰 (Glax)	黒 (Black)
--	--	--	W-std	Y-std	G-std	B-std
10	200	無し	WN	YN	GN	BN
10	200	有り : 140	WW	YW	GW	BW

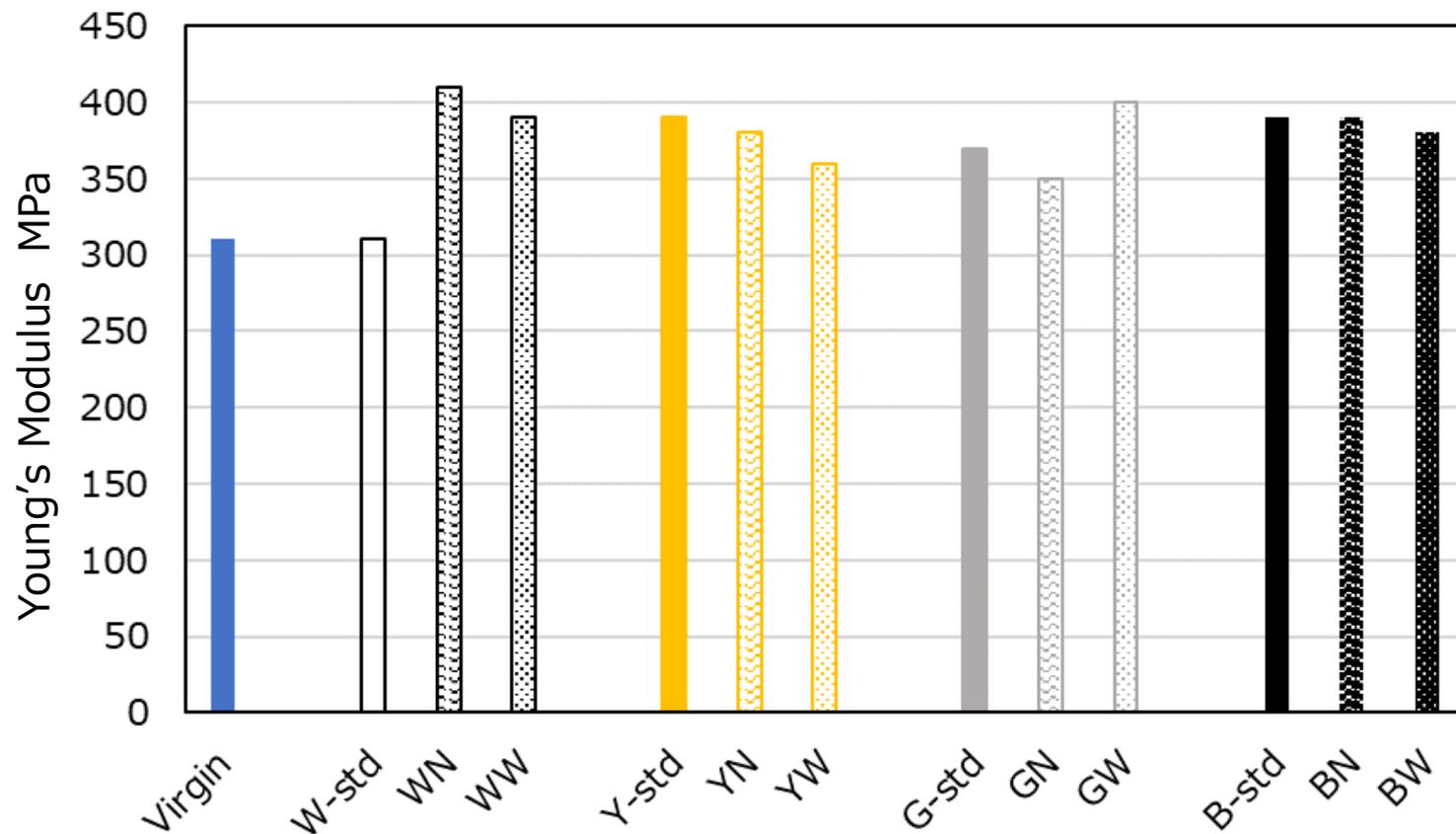
各顔料で着色した成形品の破砕品を基準(std)
 それぞれの色の頭文字(白 : White、黄色 : Yellow、灰色 : Glax、黒 : Black)
 樹脂溜まりの無し(Non)と有り(With)からサンプルコードを定めた

引張試験：破断伸び



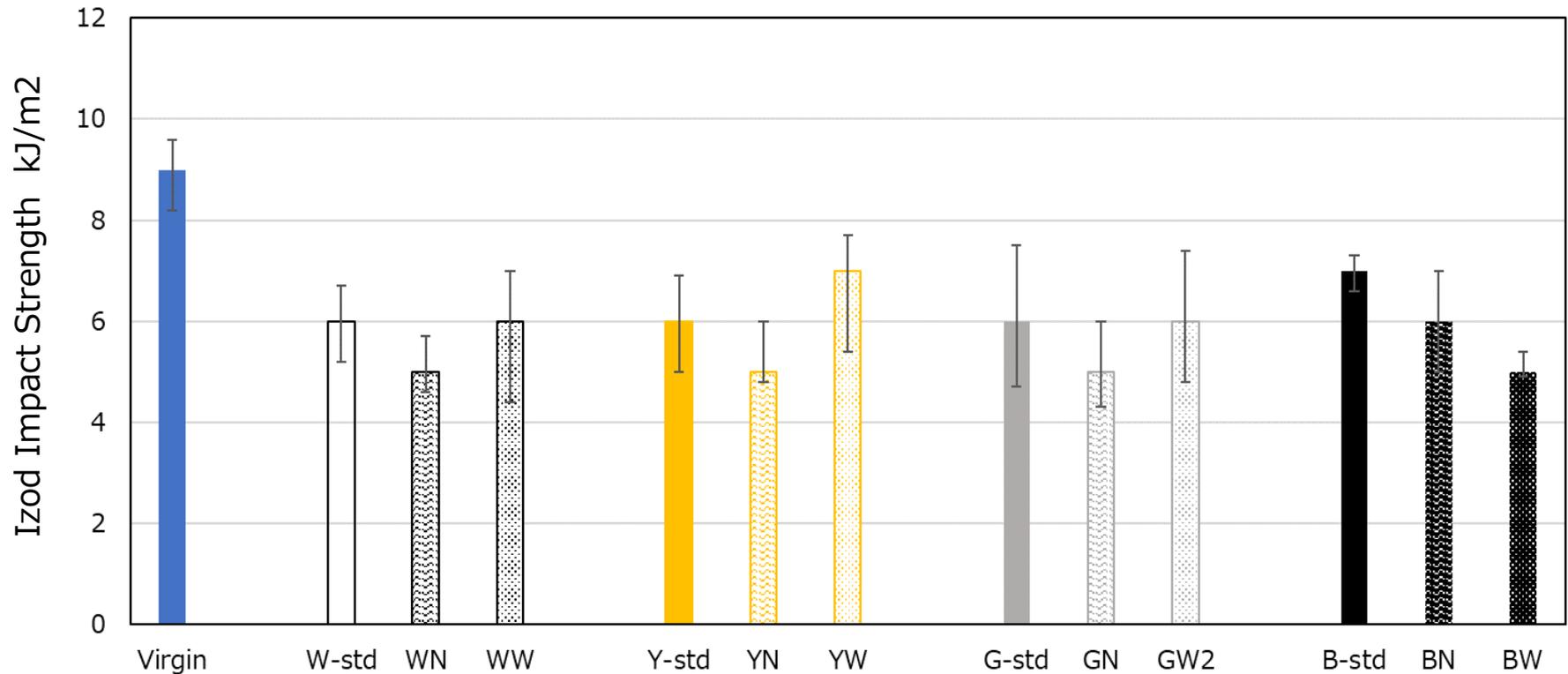
白色のstdは比較バージン品よりも良好な伸びを示したが、他は大きく低下した
特に色が濃くなるほど悪くなる傾向がみられた
またリペタイズで回復する傾向は示されなかった

引張試験：弾性率（ヤング率）



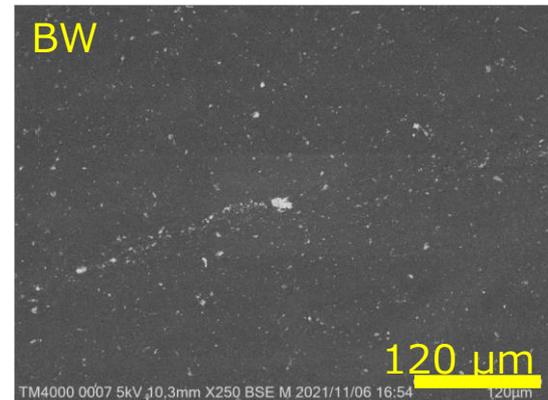
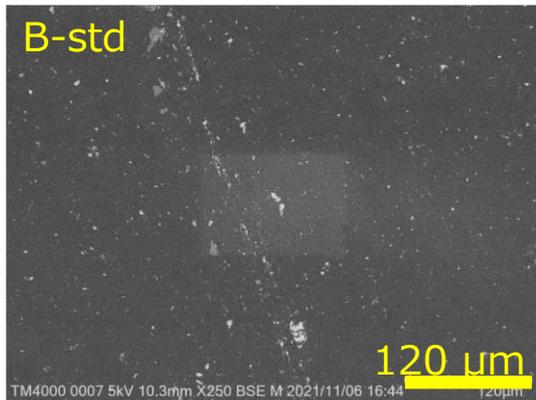
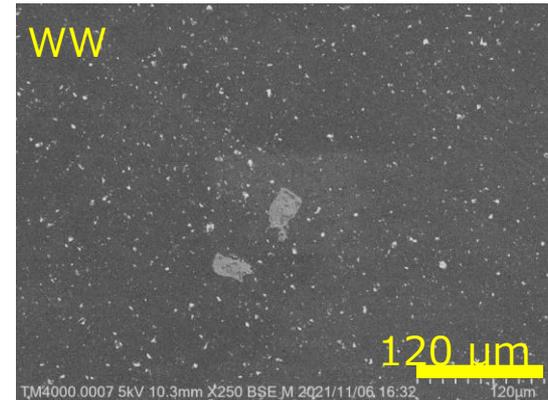
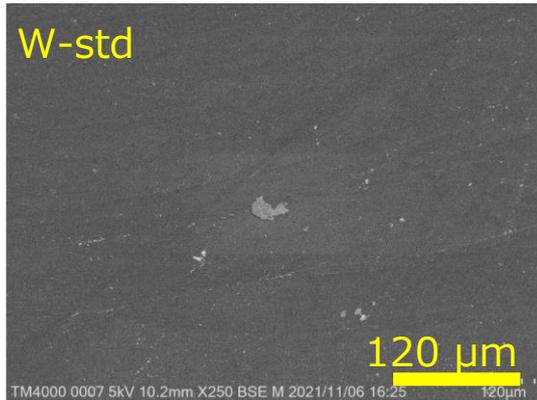
ヤング率は全般的に高くなる傾向が示された
これは混練の有無あるいは樹脂溜まりの有無の影響はそれほど表れていない

アイゾット衝撃強さ



アイゾット衝撃強さは、比較バージン品よりも若干劣る傾向となった
白色～灰色までは、樹脂溜まり無しのリペルサイズで低下し、樹脂溜まり有りの
ペルサイズでもとに戻る傾向を示した。

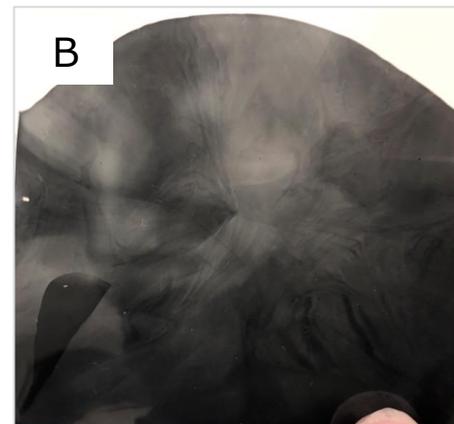
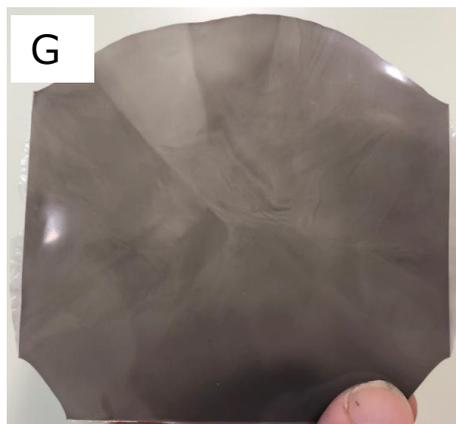
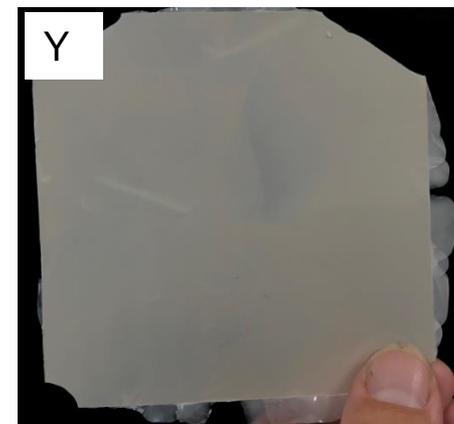
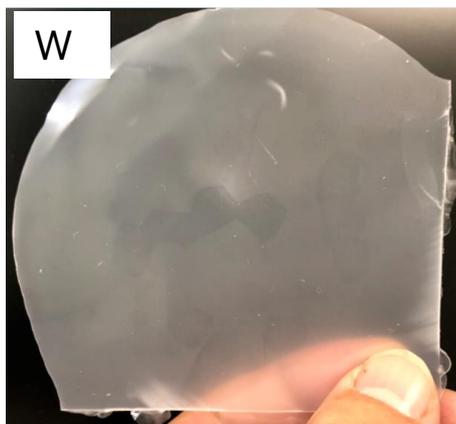
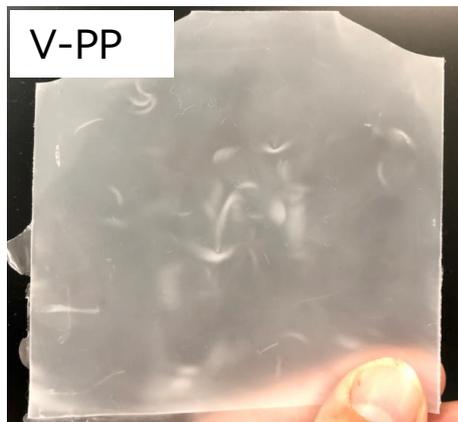
SEM観察結果（露ペレタイズ前後の比較）



伸び特性に優れたW-stdは異物がほとんど見られないが、混練により異物が目立つようになる → 顔料の凝集
黒色はB-std段階から凝集物がみられている

プレス成形フィルムの外観

フィルム厚み 100 μm



100 μm のプレスフィルムでの色むら観察を行った
白色ならびに黄色には色むらはほとんど見られなかったが、灰色・黒色は大きな色むらが見受けられ、均質な顔料分散がこの時点からできていないことがわかる

ASR – MRの高生産量検証結果のまとめ

- 顔料種により、破砕品の段階で伸び特性が大きく低下する結果となった。特に濃い色でその傾向が高い
- 伸び特性は、樹脂溜まりの有無を問わず、リペタイズで改善はしなかった
- アイゾット衝撃強さは、顔料種・リペタイズにあまり依存せず、やや低めの値で安定していた
- 破砕品で伸び特性の良かった白色において、リペタイズで顔料の凝集が起きていることが観察された
- 灰色および黒色は、破砕品段階で顔料の分散状態が非常に悪いことが観察された



- 顔料種ならびに着色プロセスの見直し
- 顔料の凝集を防ぐあるいは除去 + 最適リペタイズ条件探索が必要