現場生産性向上を図る高機能プラスチック製品の開発（第１２報）

－リサイクルプラスチックの物性向上技術の開発(3)－

足立　隆浩*

Development of advanced feature plastics to improve productivity（Ⅻ）
- Development of technology for improving properties of recycled plastics（Ⅲ）-

ADACHI Takahiro*

現場生産性の向上、および使用済み容器包装プラスチック等から再生されたリサイクル材製品の用途拡大を目指し、リサイクルペレットの各種物性の改善に取り組んでいる。今年度も主に流動性向上を目的に、製品の原料となるリサイクルペレットの処理手法と溶融粘度との関係、および実型による射出成形により流動性を評価した。前者では、添加剤として滑剤の効果を検討し、長鎖カルボン酸系金属滑剤の中でも、特に一価金属塩が溶融粘度低下への効果が大きいことが分かった。また、比較的安価なステアリン酸亜鉛についても同様の効果があることを確認した。一方実型による評価では、ステアリン酸亜鉛添加により流動長の改善が見られ、さらに現場生産性の改善の可能性も示唆された。

1　はじめに

本研究では、現場生産性の向上とリサイクル製品の用途拡大を目指しているが、原料となるリサイクルペレットの物性向上が大きな課題である。そこで特に重要な加工時における流動性や、強度や伸び等の各種物性の低下に対する改善を目指し研究を行う。既報においては、工場廃材と異なり、詳細な成分が不明である一般家庭ゴミとして分別回収された使用済み容器包装プラスチック等から作製したリサイクルペレット(以下、RP)について、RP の主成分であるポリプロプレン(PP)とポリエチレン(PE)に着目し、その新材 PP,PE との物性の比較を行い、RP は新材と比較して流動性や伸びが低下していることを確認した[1)]。また、RP をバッチ式にて再加熱混練するだけでも、流動性の重要な指標である溶融粘度が低下することを確認した。さらに RP への滑剤の添加により、溶融粘度の低減効果があることを確認した[2)]。本年度も引き続き RP 流動性の向上に主眼を置き検討を行うとともに、実際の射出成形機による流動性の評価を行った。

2　実験

2.1　材料

実験に使用する材料として、株式会社岐阜リサイクルセンターより提供いただいた RP を使用した。

2.2　滑剤による溶融粘度への影響

前報[2)]に引き続き、RP へ滑剤を添加することによる溶融粘度への影響を評価した。実験手順は、Brabender 社製 PL2000 混練機を使用し、バッチ式にて RP 30 g と滑剤 0.3 g（RP に対し 1 wt%）を 200 ℃、30 rpm において 30 分間混練した。得られた混練サンプルを粉砕機（㈱伊藤製作所製、RT-34）により小片化し、流動性評価に使用した。ここでの流動性の評価は、溶融粘度で行った。評価のための測定は、キャピラリーレオメータ（㈱東洋精機製作所製、PMD-C)を使用し、測定温度 200 ℃にて押出速度を 10, 20, 50, 100 mm/min として、各条件での溶融粘度を測定した。

2.3　押出混練による溶融粘度への影響

これまでの研究では多数の試験条件で検討が行えるよう、小ロットで試料の作製が行えるバッチ式により RP の再加熱処理や滑剤の混練について検討を行ってきたが、実際の製造現場において樹脂ペレットと添加剤の混合はタンブラー等による乾式撹拌および押出成形によるペレタイズが一般的である。そこで、ここでは押出成形による滑剤の混練が溶融粘度に与える影響について検討した。なお使用する滑剤は、2.2 の実験結果に加えて調達性を考慮し、ステアリン酸亜鉛およびステアリン酸リチウムの二種とした。

押出混練の原料作製のための RP と滑剤の乾式混合は、アズワン株式会社製アイボーイに RP と滑剤を規定量取り、ポットミルで 30 分間回転して乾式混合した。得られた滑剤付着 RP を押出混練の原料として供した。

押出混練は、Thermo Fisher Scientific 社製 Process11 を使用し、回転速度 50 rpm とした。押し出されたストランドをペレタイザーで小片化し、流動性評価に使用した。流動性の評価は 2.2 と同様に溶融粘度で行った。

2.4　スパイラルフローによる流動性の評価

滑剤添加処理 RP について、実際の加工で使用される射出成形機による流動性の評価を行った。RP とステアリン酸亜鉛およびステアリン酸リチウムを 2.3 と同様に乾式混合した原料について、そのままのもの、およびさらに 220 ℃、50 rpm にて押出成形を行ったものをそれぞれ射出成形に供し、無処理 RP との流動性の比較を行った。

＊ 化学部

流動性の評価は、スパイラルフローにより行った。スパイラルフローは一定の成形条件の下で射出成形を行った際に樹脂がどれだけの長さを流れるかで評価する手法であり、成形品は図１のように中心部の樹脂注入口よりアルキメデス螺旋状に流動していく形状となる。この螺旋の長さを測定し、試料ごとに比較することで流動長の評価を行い、流動長が長いものが流動性が高い原料であると評価する手法である。

使用したスパイラルフロー金型は、製品部の形状が幅5 mm、厚さ1 mm のものを使用した。本金型については一般的なスパイラルフロー金型に比べ厚さが薄いと考えられるが、一般的に厚物よりも薄物のほうが成形が困難であり、用途拡大のための課題となっている。このため、薄物成形を目標として設定した。また成形に使用した射出成形機は芝浦機械株式会社製 EC75SXⅢ-2A を使用した。成形においては共通の条件として、シリンダー温度 220 ℃、金型 40 ℃、計量値を 15 mm、射出速度 20 mm/s、射出圧 220 MPa、保圧 120 MPa とした。そのうえで、使用する各種滑剤添加 RP ごとに V（速度）-P（保圧）切り替え位置について可能な限り流動長が長くなる位置を検討して決定し、その同条件で無処理 RP を成形し、それぞれについて流動長の比較を行った。

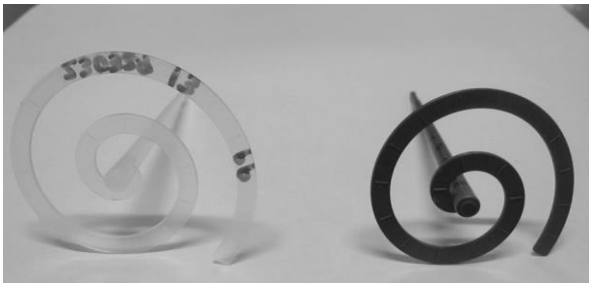


図１　スパイラルフロー成形品

3　結果及び考察

3.1　滑剤による溶融粘度への影響

表１に、各種滑剤を RP へバッチ式にて混練した試料について各押し出し温度における溶融粘度を示す。また対照として滑剤を添加せず RP のみを同様の条件で混練した試料を「リサイクル材のみ」とした。さらに図２に、押し出し速度 100mm/min における溶融粘度を、上から溶融粘度の高い順に示す。

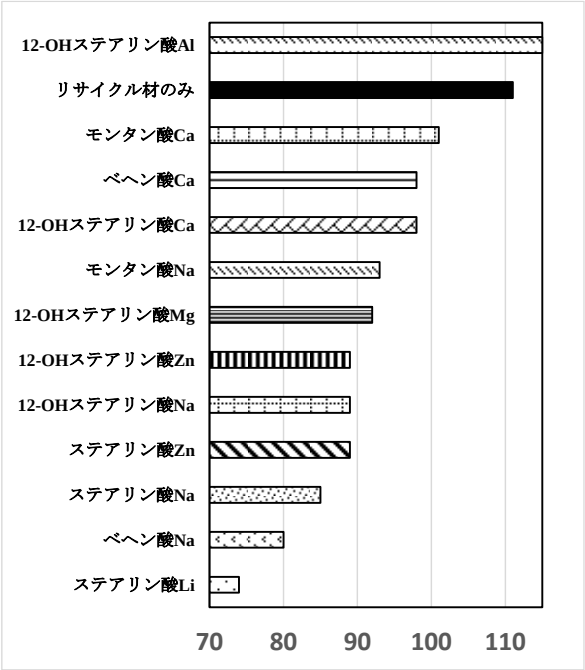
今回使用した滑剤はいずれも長鎖カルボン酸系金属塩であるが、図２を見ると三価金属塩であるアルミニウム塩を除き、いずれの場合も無処理 RP にくらべ溶融粘度が下がっており、その中でも一価金属であるリチウムやナトリウムの金属塩滑剤を使用した場合に、特に溶融粘度が大きく低下する場合があることが分かった。また、比較的安価な滑剤であるステアリン酸亜鉛についても大きな効果があることが分かった。

表１　滑剤による
リサイクルペレットの溶融粘度への影響

押出速度(mm/min)	10	20	50	100
リサイクル材のみ	386	272	166	111
ステアリン酸亜鉛	251	194	128	89
ステアリン酸リチウム	209	158	108	74
ステアリン酸ナトリウム	243	184	121	85
12-OHステアリン酸アルミニウム	414	288	174	115
12-OHステアリン酸カルシウム	309	227	142	98
12-OHステアリン酸マグネシウム	266	210	134	92
12-OHステアリン酸亜鉛	258	198	128	89
12-OHステアリン酸ナトリウム	272	203	127	89
ベヘン酸カルシウム	294	217	141	98
ベヘン酸ナトリウム	232	174	114	80
モンタン酸カルシウム	325	239	147	101
モンタン酸ナトリウム	300	220	136	93

単位：Pa･s

※表中 12-OH は 12-ヒドロキシ～をいう



単位：Pa･s

図２　滑剤による溶融粘度への影響

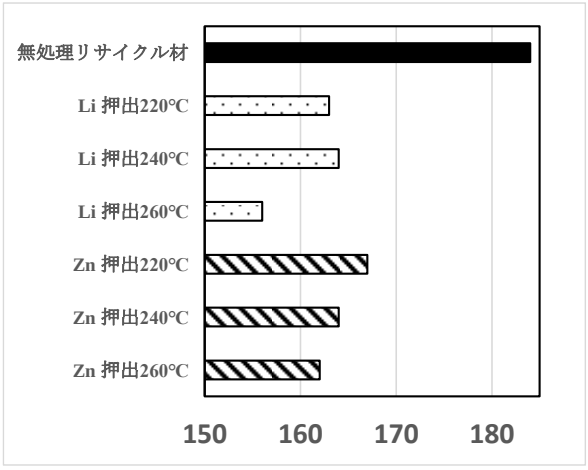
3.2　押出混練による溶融粘度への影響

表２に、RP とステアリン酸リチウムおよびステアリン酸亜鉛を RP に対し 1 wt%乾式混合して、220 ℃、240 ℃、260 ℃にて押出混練した試料の溶融粘度を示す。ここでは、滑剤を混合せず押出成形も行わない無処理の RP を「無処理リサイクル材」とした。また図３は、押し出し速度 100mm/min における溶融粘度を滑剤種ごとに並べて比較したものである。

表２　滑剤を押出混練することによる
リサイクルペレットの溶融粘度への影響

押出速度(mm/min)	10	20	50	100
無処理リサイクル材	705	485	287	184
Li 押出220℃	625	422	249	163
Li 押出240℃	612	417	251	164
Li 押出260℃	579	396	235	156
Zn 押出220℃	624	426	253	167
Zn 押出240℃	619	419	247	164
Zn 押出260℃	635	426	248	162

単位：Pa･s



単位：Pa･s

図３　押出温度による溶融粘度への影響

押出混練においても、どちらの滑剤でもバッチ式の場合と同様に、溶融粘度の低減効果があることが確認できた。また押出混練温度を上昇させても大幅な溶融粘度低下は見られないことも確認できた。

続いて、表３に RP とステアリン酸リチウムおよびステアリン酸亜鉛を RP に対し各種の重量比で混合し、220 ℃で押出混練した試料の溶融粘度を示す。また図４は押し出し速度 100mm/min における溶融粘度を滑剤種ごとに並べて比較したものである。

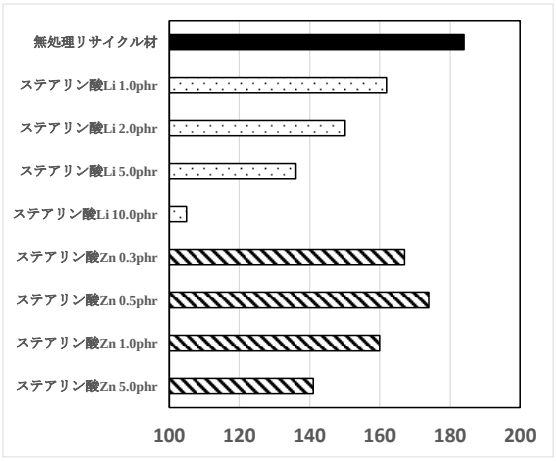
なお、ここでの重量混合比は、ステアリン酸リチウムが 1.0 ～ 10.0 wt%であるのに対し、ステアリン酸亜鉛が 0.3 ～ 5.0 wt%となっている。これは前者が内部滑剤として作用すると考えられ、後者は外部滑剤として作用すると考えられていることから、この混合比を採用した。一般的に内部滑剤にくらべ外部滑剤の必要量は少ないと考えられている。

ステアリン酸リチウム混合 RP については、重量比が増えるほど溶融粘度が低下することが確認できた。ただ、ステアリン酸リチウムは比較的高価であり、実用においては必要に応じた添加量の検討が必要である。一方

表３　押出混練の際の滑剤量による
リサイクルペレットの溶融粘度への影響

押出速度(mm/min)	10	20	50	100
無処理リサイクル材	705	485	287	184
ステアリン酸Li 1.0phr	614	417	247	162
ステアリン酸Li 2.0phr	548	372	222	150
ステアリン酸Li 5.0phr	518	348	206	136
ステアリン酸Li 10.0phr	402	271	161	105
ステアリン酸Zn 0.3phr	687	454	259	167
ステアリン酸Zn 0.5phr	702	469	272	174
ステアリン酸Zn 1.0phr	629	421	246	160
ステアリン酸Zn 5.0phr	550	369	213	141

単位：Pa･s



単位：Pa･s

図４　押出混練における
滑剤量による溶融粘度への影響

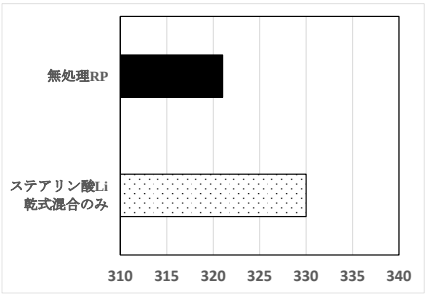
でステアリン酸亜鉛を使用した場合、少量では安定した効果が得られなく、1.0 wt%以上の添加が必要であると考えられる。

3.3　スパイラルフローによる流動性の評価

図５、図６、図７に、それぞれの V-P 切り替え位置条件ごとのスパイラルフロー流動長について、未処理 RP と各種処理 RP との比較を示す。

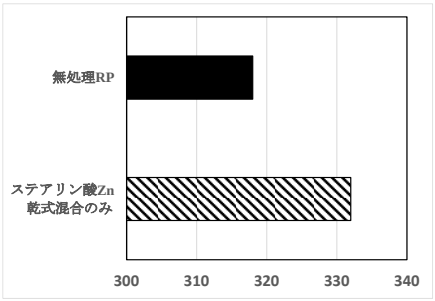
いずれの条件においても、滑剤添加、およびその後の押出混練によるリペレタイズにより流動長が増加することが確認できた。

また、無処理 RP を射出成形する際に、流動性の悪さに起因すると思われる射出不良が生じた。一方、成形品の流動長が無処理 RP より長くなったステアリン酸リチウム含有試料による成形時には、図８のような固定側金型内の製品残りが頻発した。これは、ステアリン酸リチ



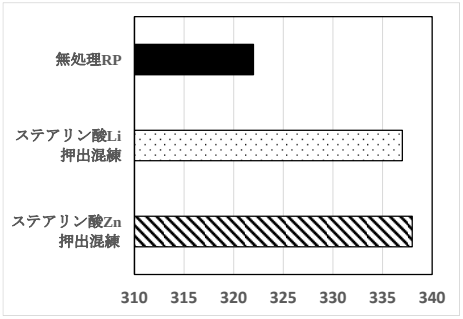
単位：mm

図５　V-P 5.2mm における流動長の違い



単位：mm

図６　V-P 5.0mm における流動長の違い



単位：mm

図７　V-P 4.5mm における流動長の違い

ウムの融点が約 220 ℃と比較的高く、成形完了前にその一部が固化してしまうことで金型に食いついてしまったからではないかと推測される。

以上のような不調が発生した場合、実際の製造現場においては自動の製造ラインを止めて人力にて後処理を行わざるを得なくなり、結果的に現場生産性が悪くなってしまうことが考えられる。従来リサイクル材が薄物成形に適さないとされてきた理由の一つには、このような離型性の問題があると考えられる。

その一方で、ステアリン酸亜鉛含有試料の成形時には上記のような不調は見られなかった。外部滑剤の添加により流動性が増すと同時に、金型との間の滑りもよく、その上融点が約 130 ℃と RP の主成分である PE や PP の融点より低いため離型性がよいと考えられる。またコスト面においてもステアリン酸亜鉛系滑剤は優位と考えられる。

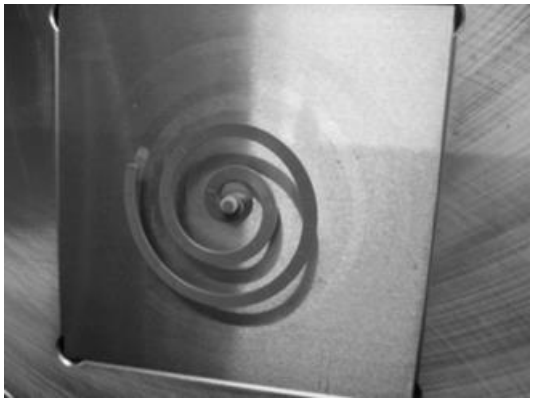


図８　成型後の型内残り
製品が金型の固定側に食いついてしまっている

4　まとめ

使用済み容器包装プラスチック等から再生されたリサイクル材について、今年度も引き続き主に流動性の向上を目的に滑剤添加等の各種の処理を行い、溶融粘度を評価した。また実際に生産現場で用いられている射出成形機を使用し、スパイラルフロー流動長を評価した。

バッチ式の混練による RP への滑剤添加においては、長鎖カルボン酸金属塩のうち一価金属塩の溶融粘度低下効果が高く、また安価なステアリン酸亜鉛も同様の効果を確認した。また押出混練による RP への滑剤添加においても、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸亜鉛ともに溶融粘度の低減効果が確認できた。

一方射出成形機によるスパイラルフロー流動長による評価では、ステアリン酸亜鉛を添加した RP が未処理 RP に比べ、流動長および生産性において優位となる結果を得ることができた。

【謝　　辞】

本研究を実施するにあたり、リサイクル材料を提供いただきました株式会社岐阜リサイクルセンター様に心より御礼申し上げます。

【参考文献】

1)　足立, 岐阜県産業技術総合センター研究報告 No.3, pp49-50, 2022
2)　足立, 岐阜県産業技術総合センター研究報告 No.4, pp39-42, 2023