

氏名	ねごろ たかのり 根来 孝式
学位(専攻分野)	博士(学術)
学位記番号	博甲第818号
学位授与の日付	平成28年9月26日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 先端ファイブ科学専攻
学位論文題目	Design and Applications of Recycled poly(ethylene terephthalate) (リサイクルポリエチレンテレフタレート改質と応用利用)
審査委員	(主査)教授 濱田泰以 教授 西村寛之 准教授 奥林里子 一般社団法人新技術連携支援機構代表理事 居野家博之 大学戦略推進機構先端ものづくり・繊維研究推進拠点 伝統みらい教育研究センター特任研究員 THUMSORN SUPAPHORN

論文内容の要旨

リサイクルポリエチレンテレフタレート (RPET) は、プラスチックのリサイクル分野において、その高い費用対効果と環境保護の観点からリサイクル原料として積極的に使用されてきた。しかし RPET は、一般的に再生加工時の熱分解、および加水分解により分子量が低下し、その結果、機械的特性が低下する。そのため、再生原料として利用出来る対象の範囲は限られてきた。この論文では、その機械的特性の低下を防ぐために、RPET への充填剤のブレンド、RPET とその他のポリマーとのブレンドを試みた。そして得られた結果をもとに応用利用の可能性を示す。

この論文は3つの部と8つの章で構成されている。第1章では、研究の背景と目的、およびこの研究に関連した文献調査について報告した。

第1部では、充填剤としてタルクとガラスビーズ、ポリエチレングリコール (PEG) をブレンドした RPET 複合材の開発について述べた。まず、第2章では、充填剤と PEG をブレンドした RPET 複合材の固有粘度、分子量、結晶化度、水分吸収性、ならびにレオロジー特性の相関関係を示した。固有粘度と分子量は充填剤や PEG のブレンド率が高いほど低下し、結晶化度は充填剤のブレンド率が高いほど高くなり、PEG は逆にブレンド率が高いほど低下した。固有粘度の高い物ほど結晶化度は低く、水分吸収性を高める結果となった。

第3章では、RPET 複合材の結晶化度を上げるため、コンパウンド作成時の熱風徐冷工程が有効な手段であることを確認した。RPET ポリマーは押し出し機から吐出された後に冷水で急冷し、結晶化度の低いペレットとするのが一般的であるが、熱風徐冷工程では熱風で徐冷することにより RPET ポリマーを結晶化温度に保ち、結晶化を促進させることができる。本章では、冷水急冷条件と熱風徐冷条件でのタルク、ガラスビーズのブレンドが結晶化度、水分吸収性、機械的特性へ与える影響を示した。第4章では、RPET 複合材の難燃性を高めるため、充填剤と難燃剤のブレンドが物性に与える影響を示した。タルク、ガラスビーズ、ポリリン酸アンモニウム (APP) のブレンドは、RPET 複合材の機械的特性と難燃性を高める相乗効果が見られた。

第2部では、ポリカーボネート (PC) を RPET にブレンドすることによる物性の向上について

て述べた。第 5 章では、吸湿条件下でブレンドした RPET/PC 複合材をベント式射出成形機で成形し、物性へ及ぼす影響を調査した。ベント式射出成形は、予備乾燥工程無しでブレンドした RPET/PC 複合材が優れた物性を得るために有効であることが分かった。RPET/PC 複合材の引張特性、衝撃強さ、および破壊靱性は、PC ブレンド率が増加するとともに増加した。

第 3 部では、RPET 繊維の改質と応用利用について述べた。第 6 章では、ポリアミド 6(PA6) が RPET/PA6 複合繊維の特性に及ぼす影響を調査するため、PA6 のブレンド率を変えた RPET/PA6 混合繊維、芯鞘構造複合繊維、およびサイドバイサイド構造複合繊維の物性を測定した。その結果、RPET/ PA6 混合繊維、および複合繊維の繊度、機械的特性は RPET と PA6 の間で推移した。第 7 章では、RPET 繊維の染色性を向上させるために PEG をブレンドした RPET/PEG 混合繊維の物性を示した。PEG をブレンドすることにより繊度は細くなり強度が増した。また染色性は PEG をブレンドすることにより向上することが確認された。

第 8 章では、リサイクルポリエチレンテレフタレート改質と応用利用についてまとめた。

論文審査の結果の要旨

我が国の使用済み PET ボトルの回収率は年々増加し、大量の RPET が製造、供給されるようになったが、一方でその利用方法は一般的な繊維やシートなどの付加価値の低いものが大半である。この論文では付加価値の高い分野への RPET の利用を目指し、RPET の物性を向上させるブレンド技術に注目している。RPET にタルク、ガラスビーズ、PEG をブレンドすることや PC、PA6 のブレンドによる影響を調査し、材料科学としての成果を挙げている。さらに物性の向上には再生加工時の加水分解を抑制する必要があり、RPET の水分吸収率とペレットの結晶化度に着眼し、ペレット作成時の冷却温度を RPET の結晶化温度付近に保つことにより、結晶化度が高く、吸水率の低い RPET ペレットが得られることを明らかにした。このことはペレット作成を成形加工の一つとして捉えたところに独自性の高さが窺え、得られた結果は工学上有益である。また、APP をブレンドすることによる難燃性 RPET を開発したこと、さらに PEG のブレンドが RPET 繊維の染色性を向上させることを確認したことも工業上大いに評価できる。

この論文は、ペレットの結晶化度と水分吸収率に注目して RPET の物性向上を図っており、結晶化の仕組みとその構造が及ぼす物性への影響など、今後の更なる研究に繋がる興味深い研究であると認められる。また、RPET の利用を高次化させるため経済的合理性にかなったブレンド手法でのアプローチ、開発は、速やかな実用化への移行が期待され、RPET に留まらずリサイクル素材の新たな開発に繋がる極めて独自性の高い意義深い成果であると認められる。

本論文の内容は次の 5 報に報告されている。

1. **RELATIONSHIP BETWEEN MOISTURE ABSORPTION, CRYSTALLIZATION AND RHEOLOGICAL PROPERTY OF RECYCLED PET FILLED PELLETS WITH TALC AND GLASS BEAD**

Takanori Negoro, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Jian Jun Liu, Supaphorn Thumsorn, Hiroyuki Inoya and Hiroyuki Hamada

Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings, Rheology and Kinetic session, pp. 2417-2422, March, 2015

2. **Role of crystallinity on moisture absorption and mechanical performance of recycled PET compounds**
Takanori Negoro, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Yoko Takada, Supaphorn Thumsorn, Hiroyuki Inoya and Hiroyuki Hamada
Energy Procedia 89 (2016) pp.323-327
3. **Effect of ammonium polyphosphate and fillers on flame retardant and mechanical properties of recycled PET injection molded**
Supaphorn Thumsorn, Takanori Negoro, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Hiroyuki Inoya, Masayuki Okoshi and Hiroyuki Hamada
Polymers Advanced Technologies 2015, Volume 26, issue 2
4. **OPTIMIZATION OF MECHANICAL PERFORMANCE AND MISCIBILITY OF RECYCLED PET AND PC BLENDS BY VENTED INJECTION MOLDING**
Takanori Negoro, Rutchaneekorn Wongpajan, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Jitlada Boonlertsamut, Supaphorn Thumsorn, Hiroyuki Inoya and Hiroyuki Hamada
Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings, Alloys and Blends session, pp. 95-99, May, 2016
5. **Optimizing of Vented Injection Molding on Mechanical Performance and Miscibility of Recycled Poly (ethylene terephthalate) and Polycarbonate Blends**
Takanori Negoro, Rutchaneekorn Wongpajan, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Jitlada Boonlertsamut, Supaphorn Thumsorn, Hiroyuki Inoya and Hiroyuki Hamada
Journal of Polymer Engineering (accepted)

以上の結果より、本論文の内容は十分な新規性と独創性、さらに工業的な意義があり、博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。