

氏名	とっどさらっとぴーやーくん ういらんぱと THODSARATPREEYAKUL WIRANPHAT
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第886号
学位授与の日付	平成30年3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 バイオベースマテリアル学専攻
学位論文題目	UTILIZATION OF THE VENTED BARREL INJECTION MOLDING PROCESS FOR DEVELOPMENT OF POLYETHYLENE TEREPHTHALATE (ベント式射出成形を利用した高機能リサイクル PET 成形品の開発)
審査委員	(主査)教授 小原仁実 教授 山根秀樹 教授 櫻井伸一

論文内容の要旨

本論文は、ベントバーレル式射出成形法による射出成型時におけるペレットの予備乾燥の省略化、異種ペレットのブレンド、および長繊維のコンパウンディングをテーマとしており、5章から構成されている。次に各章の要旨を記す。

第1章では、本研究の背景と目的について述べている。その要旨は次のとおりである。回収された poly(ethylene terephthalate) (PET)は水洗浄と熱溶解を経て再ペレット化されリサイクル PET (RPET)となる。しかし、水洗浄工程後に水分が残存していると、熱溶解工程で加水分解反応が進行する。その結果、分子量は低下し、物性の低い RPET しか得られない。本研究では、新規に開発したベントバーレル式射出成形法を用いることにより、この問題の解決を試みた。この装置はベント口から水分を除去するだけでなく、そこから繊維を供給することにより、容易に繊維強化材料が製造可能なことが挙げられる。この方法は繊維直接投入射出成形法と呼ばれ、繊維を含んだマスターバッチペレットを予め製造する必要がなく、プロセスの簡略化が実現する。本研究では、RPET に対して繊維直接投入射出成形法(DFFIM)も試み RPET の物性向上と応用範囲の拡大を図っている。

第2章ではベントバーレル式射出成形法によるポリマーブレンドについて述べている。その要旨は次のとおりである。種々の条件下でベントホールを持たない従来の射出成型法、およびベントバーレル式射出成形法により、RPET、poly(carbonate) (PC)および RPET/PC ブレンドをそれぞれの乾燥ペレット、未乾燥ペレットから試作し、得られたサンプルの混和性、モルフォロジー、熱的・機械的物性を測定した。また、ベントバーレル式射出成形法の RPET、PC、および RPET/PC ブレンドに対する脱揮発性効果を考察した。

第3章では DFFIM について述べている。その要旨は次のとおりである。DFFIM を用いて高機能 glass fiber (GF)/PET コンポジットを製作した。GF/RPET コンポジットを製造するためにチェックリングが取り付けられたベントバーレル式射出を開発した。この装置の効果を評価するために、本装置を用いて製作したサンプルを用いて衝撃落下試験を行った。さらに、スクリーチ

ェックリングの形状、繊維添加量が GF/RPET コンポジットの衝撃落下試験結果に対する影響を検討した。また、コンポジットの強度を決定する重要な変数を調査した。従来、界面剪断強度の正確な測定は高価で精巧な測定機を用いていた。そこで、本研究では、変更した Kelly-Tyson 式を用い、正確で経済的な界面剪断強度の測定法を提案した。ナノインデンテーション法による測定結果を比較することにより、変更 Kelly-Tyson 式を用いた測定方法の正確性を評価した。その結果、変更 Kelly-Tyson 式の誤差が発生する要因を明らかにし、誤差の発生を防ぐ方法を検証した。

第4章の要旨は次のとおりである。繊維強化コンポジットにおいて、繊維の長さは物性に大きな影響を与えるので、より長い長繊維を DFFIM に供給した。一方、より長い繊維を供給するには、繊維の供給に困難が伴う。DFFIM では、長繊維をペレットのコンパウンド工程で分散させることが可能である。従来の射出成型機で GF/PET、および DFFIM で GF/CF/PET コンポジットをも製造した。GF および CF の占める体積が、繊維供給速度、繊維の配向、繊維の長さを与える影響を考察した。繊維の分布状態は繊維分布指数を用いて定量的に測定した。繊維が凝集するという問題が、走査型電子顕微鏡による観察の結果から明らかとなった。また、DFFIM で製造した GF/CF/PET において、少量の CF の添加が機械的物性を飛躍的に向上させることが明らかとなった。さらに、GF の比率が高すぎると CF 添加の効果が低減する。これは、繊維の分散性が低下し、繊維の破断が進むためと考えられる。この結果から、DFFIM で GF/CF/PET コンポジットを製造する場合の GF と CF の理想的な供給率を求めることができた。

第5章では、本研究のまとめを行い、その成果の製品への応用と、今後の課題を述べている。

論文審査の結果の要旨

わが国におけるペットボトルのリサイクルは、ケミカルリサイクルおよびマテリアルリサイクルが試みられてきた。ケミカルリサイクルは、モノマーにまで分解し再利用するため品質の劣化はほぼないが、コストがアップし、また投入するエネルギーを考慮すると必ずしも環境負荷が低いとは言えない。一方、我国のペットボトルは品質が非常に高いため、マテリアルリサイクルにより品質が多少劣化しても高い機械的強度が求められない一部の製品には利用が進んでいる。

本研究では、リサイクルペットの用途を広げるため機械的物性の向上を三方法と、その組合せにより企図している。第一にベントバーレル式射出成型機によりリサイクル時の加水分解を低減することである。第二に poly(carbonate)とのブレンドである。そして、第三に glass fiber とのコンポジットである。さらに、機械的物性の評価に関しても新たな方法を提案している。

本論文は、PET のマテリアルリサイクルにおける物性劣化の問題を産業上のニーズを配慮した上で、学術的に考察し解決を試みており、博士論文に値すると考えられる。

本博士論文の内容は申請者を筆頭とする論文3報で既に公開済みである。さらに、申請者を筆頭とする参考論文1報が受理されている。

1. Properties of recycled-polyethylene terephthalate/polycarbonate blend fabricated by vented barrel injection molding, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Putinun Uawongsuwan, Takanori Negoro, Materials Science and Applications, 2018, 9, 174–190
2. The Determination of Interfacial Shear Strength in Short Fiber Reinforced Poly Ethylene

Terephthalate by Kelly-Tyson Theory, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Putinun Uawongsuwan, Akio Kataoka, Takanori Negoro, Hiroyuki Hamada, Open Journal of Composite Materials, 2017, 7, 218–226

3. Mechanical properties and fiber characteristics of glass fiber/carbon fiber reinforced polyethylene terephthalate hybrid composites fabricated by direct fiber feeding injection molding, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Putinun Uawongsuwan, Akio Kataoka, Takanori Negoro, and Hiroyuki Hamada, Journal of Polymer Engineering, Published Online: 2017-12-19 | DOI: <https://doi.org/10.1515/polyeng-2017-0193>

參考論文

1. Damage behaviour of low velocity impact test on glass fiber reinforced poly(ethylene terephthalate) composites, Wiranphat Thodsaratpreeyakul, Putinun Uawongsuwan, Akio Kataoka, Takanori Negoro, Hiroyuki Inoya, Hiroyuki Hamada, Materials Today: Proceedings (2017) of The 10th Thailand International Metallurgy Conference, (Accepted)