

氏 名	おがさはら みのる 小笠原 稔
学位(専攻分野)	博 士 (学 術)
学 位 記 番 号	博 甲 第 567 号
学 位 授 与 の 日 付	平成 22 年 3 月 25 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 先端ファイブロ科学専攻
学 位 論 文 題 目	高周波加熱を用いたリサイクル PET の高機能化
審 査 委 員	(主査)教授 濱田泰以 教授 藤井善通 教授 喜多泰夫 京都市産業技術研究所工業技術センター研究部長 北川和男 日本ポリプロ株式会社第一材料開発センター長 藤田祐二

論文内容の要旨

ポリエチレンテレフタレート (PET) は、飲料用ボトルに多く使用されている。近年の環境に対する社会情勢からも PET ボトルの回収は、他のプラスチック製品と比較して進んでおり、高い回収率となっている。しかしながら回収 PET は、流通経路で水分を含むことから、ペレット成形時の加熱溶融により PET の原料であるテレフタル酸およびエチレングリコールに加水分解し、分子量が低下し、分子量に相関のある IV (Intrinsic Viscosity : 固有粘度) 値も低下する。その結果、射出成形に使用する場合、成形条件の調整が難しくまた成形品の衝撃強度等の力学的特性も小さくなる。それゆえ、回収 PET の適用領域を拡大するには物性の低下した回収 PET の分子量をバージン PET レベルまで効率的に増加させる新たなプロセスが必要である。その手法の一つとして、分断された分子鎖を繋ぎ合わせる固相重合法が考えられる。高温のイナートガス中で加熱する外部加熱法による固相重合が適用されてきているが、外部加熱による固相重合法では IV 値向上は非常に困難であった。それゆえ、新たな手法を見出すことは今後の産業発展においても非常に重要であると言える。本研究では高周波 (High Frequency : HF) が PET 分子内の自己発熱をもたらすことに着眼し、回収 PET の固相重合への適用を検討している。

第 1 章では、プラスチックリサイクルの社会的・技術的背景を述べ、中でも PET リサイクルの現状と課題を明確にしている。さらに本研究で着目した技術である HF 法およびそのリサイクルへの応用の可能性を説明している。第 2 章では、固相重合反応において必須である前処理乾燥に関し、従来の除湿乾燥技術と HF 法の乾燥特性を比較している。その結果、HF 法では従来法と比較してより短時間での乾燥が可能であることを示している。第 3 章では、HF 法による PET の IV 値向上の効果を明らかにするために、加熱温度と加熱時間の影響を検討している。その結果、従来法では 230°C 以上必要であった温度が、HF 法では 200°C で IV 値が増加することを明らかにし、さらに同一温度での比較では HF 法での固相重合速度が大きいことを示している。第 4 章では、第 3 章で得られた HF 処理 PET の構造解析を行い、平均分子量測定の結果より、HF 処理による分子量の増加が確認され、固相重合が生じていること

を示している。第5章では第3章および第4章のバージンPETと回収PETを比較検討している。HF処理では短時間でIV値が増加し、その増加速度は回収PETの方が大きいことを示している。一方、従来法では回収PETの固相重合が観察されず、HF法が従来法より、回収PETリサイクルプロセスとして、より有効であることを明らかにしている。第6章では、HF処理された回収PETの射出成形品への適応性を検証するため、回収PET射出成形品の成形性および力学的特性を評価している。回収PETの成形品における力学的特性はバージンPETと同等の値を示すことを明らかにした。第7章では、この研究の成果をまとめ、さらにそれらの結論の意味するところを吟味している。

本論文において、HF法を回収PETに応用することにより、分子量を増加させ、バージンPETと同等の物性を示すことを明らかにしている。さらに、従来よりも低温度かつ短時間で加熱処理できることから、リサイクルPET成形品を作製する上で効率的な手法であり、リサイクルプロセスに非常に有用であることを示した。

論文審査の結果の要旨

本論文では、回収PETボトルのリサイクル時に問題となっている分子量低下を解決する方法を検討、評価している点に特長がある。従来法では、回収PETボトルの成形時の分子量低下を抑える目的で外部加熱方式が用いられていたが効果は低く、新たな手法としてHF処理装置を開発し、回収PETボトルへの応用を提案している。この研究では従来の加熱法と比較して、低温度かつ短時間で加熱処理することを可能としており、さらにバージンPETと同等の力学的特性を持った回収PET成形品の作製に成功している。

このことは、工業的にも学術的にも大変意義があり、さらに環境負荷軽減という観点からも評価できる。また、回収PETを用いたHF法でバージンPETと同等の分子量および性能を有することを示したことは、今後のPETのリサイクルプロセスへの大きな指針となるものである。

本論文の内容は次の3報に報告されており、3報すべて申請者を筆頭著者とするものである。

- (1) M.Ogasahara, M.Shidou, S.Nagata, H.Hamada, L.Y.Wei; Improvement of Intrinsic Viscosity of Recycled PET by Radio Frequency Heating, SPE-ANTEC Technical Papers, 55, 3056-3059 (2009)
- (2) M.Ogasahara, M.Shidou, S.Nagata, H.Hamada, L.Y.Wei; Improvement of Intrinsic Viscosity of Recycled PET by Radio Frequency Heating, SPE-ANTEC Technical Papers, (2010) (Accepted)
- (3) M.Ogasahara, M.Shidou, S.Nagata, K.Yamada, H.Hamada, L.Y.Wei, H.Hamada; Effectiveness of High Frequency Heating on Drying and Intrinsic Viscosity Enhancement of Recycled Poly(ethylene terephthalate), Journal of Applied Polymer Science, (Submitted)

以上の結果より、本論文の内容には十分な新規性と独創性ならびに高い学術的な価値があることを全審査員が認めた。