

# コンパウンディングによるリサイクルポリエチレンの改質

## *Recycled Polyethylene Modified by Compounding Method*

奥村 俊彦\*  
Toshihiko Okumura

(2003年7月16日 受理)

Modification of recycled high-density polyethylene (HDPE) by compounding method was reported in this paper. HDPE was modified with recycled low-density polyethylene (LDPE) or recycled linear low-density polyethylene (LLDPE). Elongation at breakdown point of compounding polyethylene indicated from 6 to 10 times as large as that of recycled HDPE in case of HDPE/LDPE system. In HDPE/LLDPE system, elongation at breakdown point of the compounding polyethylene was from 4 to 7 times as large as that of recycled HDPE. Thermal properties of the compounding polyethylene were maintained that of recycled HDPE whichever of LDPE and LLDPE was used for modification of HDPE. In this investigation, it was cleared that modified HDPE with LDPE or LLDPE has excellent tensile properties, keeping good thermal properties of recycled HDPE.

キーワード：コンパウンディング，ポリエチレン，材料改質，混練性，引張特性，熱的性質，  
マテリアルリサイクル

### 1. はじめに

プラスチック材料の高機能化ならびに高性能化を達成する方法として、プラスチック材料に酸化防止剤、帯電防止剤、充填材などの配合剤を機械的に混練する技術がコンパウンディング技術である。例えば、異種プラスチック材料を機械的に混ぜ合わせることで機能改良を図るポリマーアロイ化(ブレンド)技術は、コンパウンディング技術をベースとした材料開発方法といえる<sup>1)</sup>。

プラスチック材料のリサイクルの推進が現在の重要な社会的ニーズとなっている<sup>2)</sup>。中でも、マテリアルリサイクル(材料再利用)が最も推進されるべき課題とされている。単一のプラスチック材料のみからなる再生製品化は、廃プラスチックの回収の性質上、あるいはコスト的に合わないことが多い。このような場合、複数の材質のブレンドを前提とした製品開発において

は、コンパウンディング技術の役割は大きい。

本報では、コンパウンディング技術によるマテリアルリサイクルの一例として、リサイクルポリエチレンの材料改質をとりあげる。ブロー成形品(容器)や成形の過程で発生する「団子」やミスショット品の粉砕物を細鋼線の被膜材として用途展開させるためのコンパウンディング事例について報告する。

### 2. 改質の目標

細鋼線の被膜材に求められる性能は以下の3つである。

- 1) 耐熱性を低下させないこと。
- 2) 伸びの大きい材料に調製すること。
- 3) 押出成形に適した成形性を有すること。

改質の対象とする樹脂は高密度ポリエチレン(以下HDPE)で、ブロー成形に使用されたものである。一般にブロー成形で使用される成形材料は、その成形加工性の要求から、分子量の大きい、熔融粘度の高い材

\* 生産技術部 プラスチック技術グループ

料である。この材料は耐熱性には優れているが、伸びが比較的小さく、製品の二次加工時に割れ等の問題が発生することが欠点となっている。そこで、HDPEと比較して耐熱性は劣るが破断時の伸びの大きい材料である低密度ポリエチレン(以下LDPE)および直鎖状低密度ポリエチレン(以下LLDPE)をHDPEとコンパウンドすることにより、上述の3つの目標を満足する材料への改質方法について検討した結果について報告する。

### 3. 実験

#### (1) 材料および評価用試験片の作成

実験に使用した材料は3種類のリサイクルポリエチレン(HDPE, LDPE, LLDPE)である。これらはいずれも回収品を5mm角程度に破碎したものであり、材料グレード等は混合物であることなどから不明である。ここでは商品開発にそのまま各種のデータが活用できることを第一とした。HDPEについては上で説明したとおりである。LDPEおよびLLDPEはシート材をそれぞれ粉碎したものを実験に使用した。これらも回収品であり、グレード等は不明である。回収商品名のみが分かっている。

材料の改質には混練試験機であるラボプラストミル(株)東洋精機製作所製30C150)を使用した。コンパウンド材料の構成を表1に示す。ここで、LD10という表記はHDPEとLDPEが90/10(重量比)の組成の混合物である。表1に示すコンパウンド材料を各50g用意し、混練温度250℃、回転数50rpm、混練時間10min.の条件で混練を行った。なお、ここでは同種樹脂の混練のため、相溶化剤などの配合剤は使用していない。所定の時間の混練により得られたコンパウンド材料をシート成形用金型に移し、真空圧縮成形機(株)神藤金属工業所製VSFA30)により気泡等の混入しない厚さ1mmのシートを成形した。成形温度は混練温度と同じ250℃とした。圧縮成形により得られたシートから長さ70mm、幅10mmの短冊形状の試験片を切り出し、引張試験を行った。

#### (2) 測定

引張試験はインストロン材料試験機(5582型)を使用し、試験温度23℃、湿度50%で行った。つかみ具間距離は40mmとした。クロスヘッド速度は、試験片の降伏が生じる測定初期段階(変位量10mm未満)では10mm/min、それ以降は100mm/minとした。熱的性質の評価には示差走査熱量計(以下DSC)(株)セイコーインスツルメンツ製DSC220CU)を用いた。測定

用試料は引張試験片用のシートから切り出したものを使用した。DSC曲線の融解吸熱ピーク温度を融点とした。なお、測定条件は窒素気流下(流量50ml/min)、昇温速度10℃/minである。

表1 コンパウンド材料の構成  
Component of compound materials.

	HDPE (wt%)	LDPE (wt%)	LLDPE (wt%)
LD10	90	10	—
LD20	80	20	—
LD30	70	30	—
LD40	60	40	—
LD50	50	50	—
LL10	90	—	10
LL20	80	—	20
LL30	70	—	30
LL40	60	—	40
LL50	50	—	50

### 4. 結果および考察

#### (1) 混練性

図1に原材料(破碎品)における混練時間とトルクの関係を示す。実験に用いた3種類の材料の中ではHDPEの混練トルクが最も高い。言い換えれば熔融粘度が高い。混練トルクが最大値に到達した後は、HDPEおよびLDPEでは時間の経過とともに混練トルクは若干低くなるが、LLDPEは混練トルクが増加する傾向を示した。

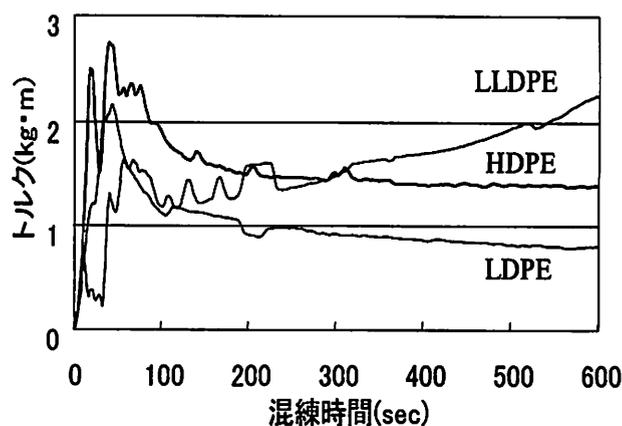


図1 ポリエチレンのトルク-時間曲線  
Torque-time curves of recycled PEs.

プラスチック材料を溶融混練する場合、材料の溶融が進んでいる段階では混練トルクは上昇するが、溶融が完全なものとなり、樹脂温度が一定になると、樹脂の粘度が低下し、混練トルクはほぼ一定値に到達する<sup>3)</sup>。混練トルクが上昇する原因としては樹脂の架橋反応や高粘度の樹脂の混在などが考えられるが、現在のところ確認できていない。今回使用したLLDPEのような混練時間の経過とともに混練トルクの上昇が見られる樹脂については、高温での長時間滞留には注意が必要である。

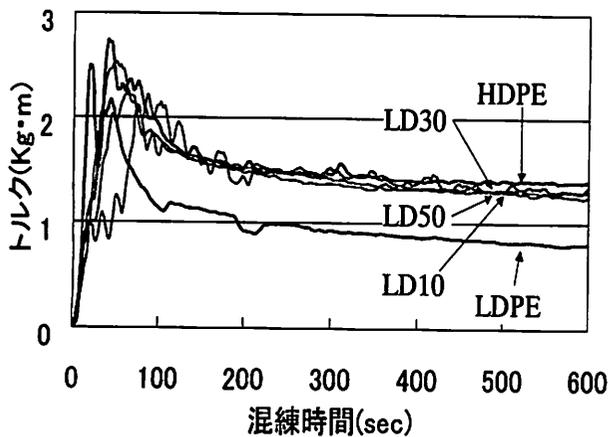
図2に各コンパウンド材料における混練時間とトルクの関係を示す。HDPE/LDPE系(図2(a))では、LDPEを添加することにより混練終了時の混練トルクは減少するが、LDPEの添加量による大きな違いは見られなかった。これに対し、HDPE/LLDPE系(図2(b))では混練終了時の混練トルクはLLDPEの添加

量が増加するにつれて高くなる傾向を示した。混練トルクの変化は成形性にも大きく影響することから、コンパウンド材料の組合せとして望ましいものではない。故に、リサイクルHDPEの改質にはLLDPEよりLDPEの方が適しているといえる。

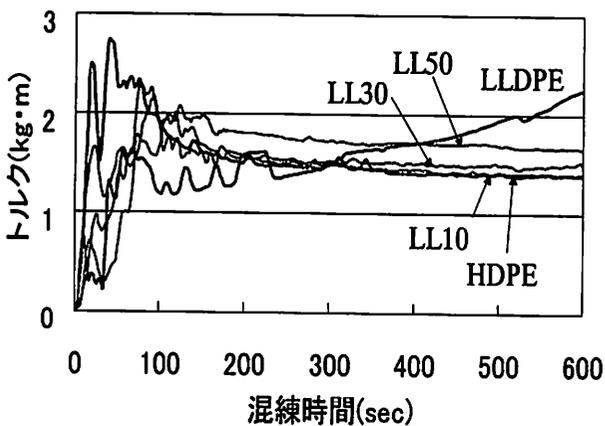
(2) 引張特性

各種の割合で調製したコンパウンド材料の応力-ひずみ曲線を図3に示す。HDPE/LDPE(図3(a))およびHDPE/LLDPE(図3(b))いずれの材料系においても材料の降伏が生じている。HDPEでは降伏後は大きく伸びることなく破断に至るが、コンパウンド材料では降伏後はほぼ一定の強度を保ちながら伸び続け、最終破断に至っている。

表2に全てのコンパウンド材料の引張強度と弾性率を示す。降伏強度はHDPE単体が最も高い値を示しており、LDPEおよびLLDPEの添加量が増加するに

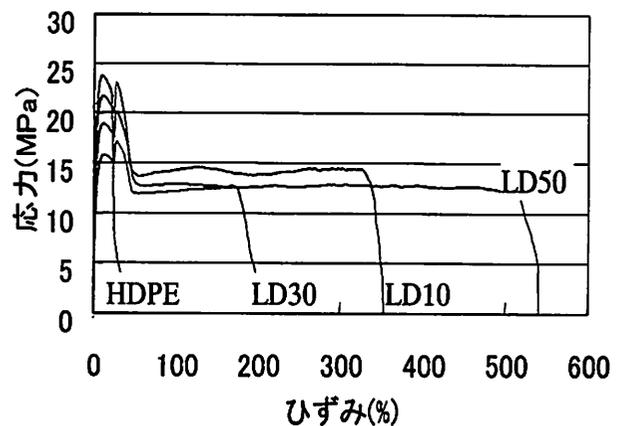


(a) HDPE/LDPE

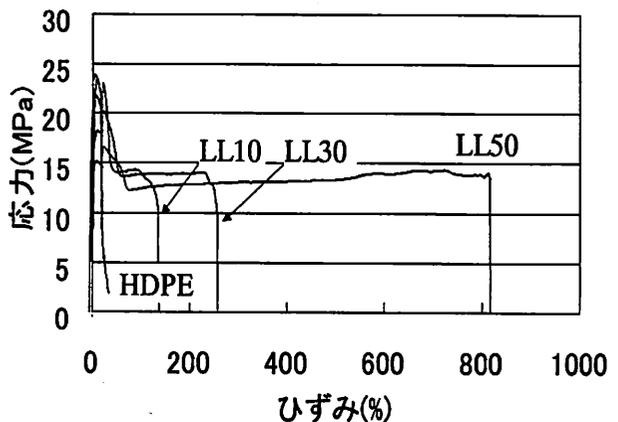


(b) HDPE/LLDPE

図2 コンパウンド材料のトルク-時間曲線  
Torque-time curves of compound materials.



(a) HDPE/LDPE



(b) HDPE/LLDPE

図3 コンパウンド材料の応力-ひずみ曲線  
Stress-strain curves of compound materials.

表2 コンパウンド材料の引張特性  
Tensile properties of compound materials.

(a) HDPE/LDPE		
	引張降伏強度 (MPa)	引張弾性率 (GPa)
HDPE	23.8	1.39
LD10	21.6	1.22
LD20	20.7	1.13
LD30	19.2	0.98
LD40	17.3	0.88
LD50	16.0	0.77

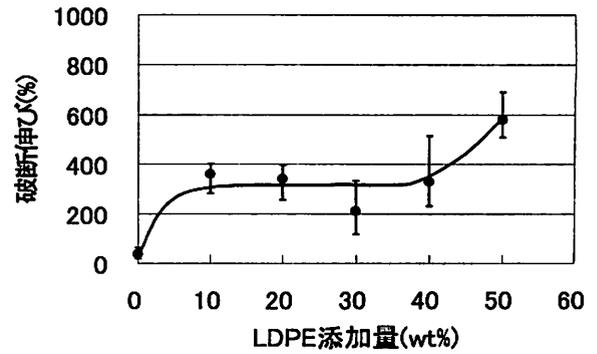
(b) HDPE/LLDPE		
	引張降伏強度 (MPa)	引張弾性率 (GPa)
HDPE	23.8	1.39
LL10	21.7	1.24
LL20	19.9	1.09
LL30	18.3	0.93
LL40	16.6	0.84
LL50	14.9	0.71

つれて減少している。引張弾性率についても同様の傾向が見られた。

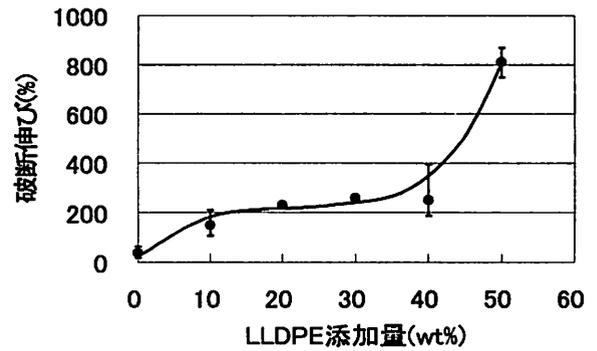
次に、コンパウンド材料における材料組成と破断伸びの関係を図4に示す。HDPEは破断伸びが36%と小さいが、コンパウンド材料では破断伸びが大幅に増加する。添加量10~40wt%においてHDPE/LDPE系では破断伸びはHDPEの6~10倍、HDPE/LLDPE系ではHDPEの4~7倍の値を示す。以上の結果から、材料改質における要求性能として挙げられていた破断伸びについてはHDPEまたはLDPEのどちらを用いても満足することが明らかとなった。

### (3) 熱的性質

図5に原材料およびコンパウンド材料のDSC測定結果を示す。コンパウンド材料については、原材料と同様に全てのケースで吸熱ピークは1ヶ所にのみ現れている。一般に異種プラスチック材料間の相溶性は小さく、単純にブレンドするだけでは完全には混ざらずに相分離構造をとる<sup>4)</sup>。相溶していない材料系においてDSC測定を実施するとそれぞれの材料の融解に起因する吸熱融解ピークが複数確認できる場合が多い。今回作製したコンパウンド材料については吸熱ピークが1ヶ所であることから、良好に混合していると推定



(a) HDPE/LDPE



(b) HDPE/LLDPE

図4 コンパウンド材料における破断伸びと材料組成の関係

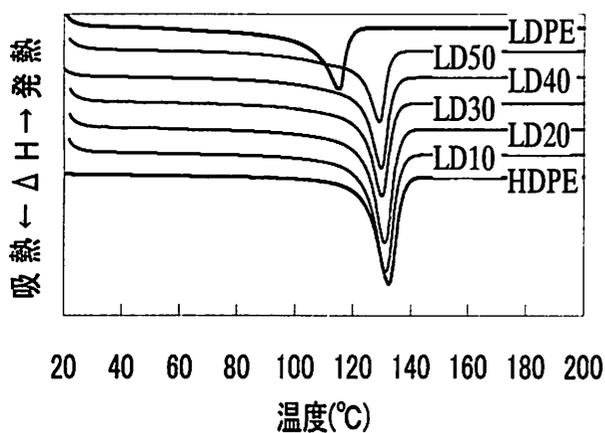
Relationship between elongation at breakpoint and component of compound materials.

できる。

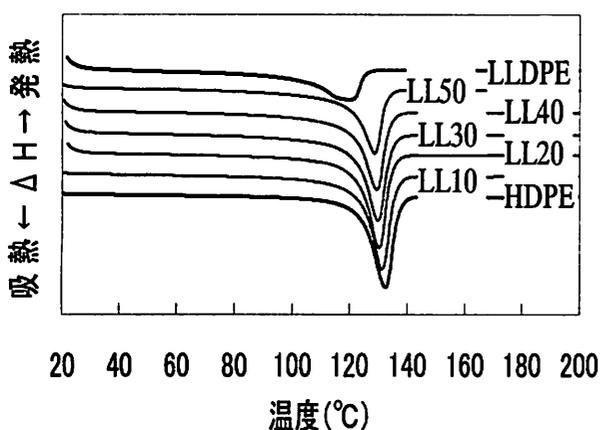
図5のDSC曲線の融解吸熱ピーク値を融点とみなして、各コンパウンド材料の融点を求めると、表4のようになる。今回用いたHDPEの融点は133℃であり、LDPEより18℃、LLDPEより13℃それぞれ高い。コンパウンド材料中のLDPEおよびLLDPEの割合が増加するにつれて融点は低温側にシフトしていることがわかる。一方、コンパウンド材料の融点はLDPEおよびLLDPEの添加量を増加しても急激に低下することではなく、添加量が最大であるLD50とLL50の融点は129℃であり、HDPEと比べて4℃の低下にとどまっている。LDPEとLLDPEで、融点が異なるにもかかわらず、コンパウンド材料の融点には大きな違いは見られなかった。このことから、当初の要求性能であった耐熱性の維持に関しては、いずれの材料を用いても満足することが明らかとなった。

## 5. おわりに

本報では、マテリアルリサイクルを目的としたコン



(a) HDPE/LDPE



(b) HDPE/LLDPE

図5 コンパウンド材料のDSC曲線  
DSC curves of compound materials.

パウンド技術による材料改質をとりあげた。その結果、今回コンパウンディングを実施した同種プラスチックであるHDPE/LDPE系およびHDPE/LLDPE系については、相溶化剤を使用しなくても改質目標として掲げていた混練性・引張特性・熱的性質を満足する材料を調製することができた。

回収材料では組成のばらつきが大きいことから、良

表4 コンパウンド材料の融点  
Melting point of compound materials.

融点(°C)	
HDPE	133
LD10	131
LD20	131
LD30	130
LD40	130
LD50	129
LDPE	115
LL10	131
LL20	130
LL30	130
LL40	130
LL50	129
LLDPE	120

好な性質を示すためのリサイクルのコンパウンド比がなるべく広範囲であることが求められる。今回の実験例では、10~40wt%の広い混合比において満足できる物性を示すことがわかった。

参考文献

- 1) プラスチック読本(第18版), 287, プラスチックス・エージ社(1992)
- 2) 草川 紀之: よくわかるプラスチックリサイクル, 工業調査会(2001)
- 3) やさしいプラスチック配合剤, 123, 三光出版社(2000)
- 4) 現場で役立つ成形技術2002(プラスチック4月号別冊), 5, 工業調査会(2002)