

# ●生分解樹脂、複合リサイクル樹脂用 EVA 系改質材

高分子材料研究所 フィルムラミグループ

釘本 大資神谷 晃基幸田 真吾

#### 1. はじめに

プラスチックごみによる環境汚染問題は年々深刻化しており、持続可能な社会を実現するためには低環境負荷なプラスチック素材や技術開発が望まれている<sup>1)</sup>。

このような状況の中、生分解樹脂が注目されている。 生分解樹脂は土壌などに存在する微生物の作用により 水と二酸化炭素に分解され、環境中に残存しないこと から低環境負荷な材料である<sup>2)</sup>。しかしながら、石油 由来の樹脂に比べ課題も多い。例えば代表的な生分解 樹脂であるポリ乳酸(PLA)は、非常に脆く、機械的 な強度が乏しいため、PLA単独で使用することは難し い<sup>3)</sup>。また、フィルムや押出ラミネートのような大変 形を伴う成形加工性に乏しいため、使用用途が限られ ている。そのため、目的に応じて改質剤を添加してい るが、機械物性と成形加工性の両者を改善できる改質 剤は少ない。

また、プラスチックごみ問題を解決するもう一つの 方法として、リサイクルが注目されている。プラスチッ クのマテリアルリサイクルでは、異種プラスチックが 混在するとリサイクルされた樹脂の物性が低下するこ とから、回収したプラスチック廃棄物を分別(および 洗浄・破砕)したのち熱溶融して再度ペレットに戻す か、物流用パレットなどの消耗品にリサイクルされて いる 4-6)。しかしながら、包装材料に代表的な多層フィ ルムなどの複合プラスチック製品は、異種の樹脂が貼 合されているので簡単に分別することができず、リサ イクルすることが困難であった。そこで、リサイクル 適性を高めるために包装材料の単一素材化(モノマテ リアル化)が世界的に検討されている 7。しかし、モ ノマテリアル化は、物性維持のためにプラスチック使 用量が増加するといった問題の他、高価なガスバリア 材料の使用などの大幅なコスト上昇を招く。一方、多 層フィルムのような複合プラスチックは、低コスト、 プラスチック使用量削減に最も有効であり、そのマテ リアルリサイクル技術の開発に対するニーズは高い。

当社は、プラスチックごみ低減への貢献を目指し、 生分解樹脂および複合プラスチックリサイクル樹脂の 改質剤として有用なメルセンSを開発した。本稿では その性能の一部を紹介する。

# 2. メルセンSの特長

当社では機能性ポリオレフィンとして「メルセン」 を生産、販売している。PETやPPなどの各種被着体 への接着性に優れる「メルセン M」、エチレン一酢酸 ビニル共重合体 (EVA) のケン化物である「メルセ ンH」、合わせガラス用の接着材料である「メルセン G|をラインナップしているが、今回、新たに「メル センS」を開発した。「メルセンS」はEVA系の樹脂 改質剤であり、生分解性ポリエステルとの相溶性に優 れ、機械物性と成形加工性の向上に有効である。また、 ポリオレフィンや高極性樹脂(エチレンービニルアル コール共重合体 (EVOH)、ポリエチレンテレフタレー ト (PET)、ポリアミド (PA)、他) などの複数の樹脂 への相溶化剤としても有効である。更に、非反応性で あることから押出成形において増粘や黄変が生じにく く、プラスチックリサイクルにおける「繰り返しリサ イクル性」に優れるといった特長も有している。

# 3. 生分解樹脂の改質

メルセンSは、従来の生分解樹脂改質剤相当の物性改質効果を発現させるだけでなく、フィルムやラミネート成形性を大幅に向上させることができる。

# [1] 機械物性

表1に、メルセン S8125 を添加した PLA の物性を示す。PLA は硬く脆いことから、軟包材のような柔軟性や耐久性を求められる用途への使用が難しい材料であるが、メルセン S を配合することにより弾性率が低下(柔軟性向上)し、破断伸びや衝撃強度が大幅に改善する。

### [2] 伸長粘度特性

インフレーションフィルム成形性や押出ラミネート

表1 各樹脂の機械物性

		引張物性	パンクチャー	
樹脂	弾性率	破断伸び	破断応力	衝撃強度
	[MPa]	[%]	[MPa]	[kJ/m]
PLA	2300	3	75	1
PLA+メルセン S8125(20 部)	1300	210	45	18
PLA+従来改質剤(20部)	1400	150	50	21

※従来改質剤

※0.1mm プレスシートを評価

成形性の指標として伸長粘度特性が挙げられる。図1に、各樹脂の伸長粘度の時間成長曲線を示す。PLAの伸長粘度は概ね一定の値で推移する。これは高密度ポリエチレン(HDPE)などに観測される挙動と同様であり、すなわちフィルム成形性や押出ラミネート成形性に乏しいことが示唆される。従来改質剤を添加した試料についても成形加工性の改質効果は確認できない。一方、メルセンS8125はPLAの伸長粘度の増大、すなわちひずみ硬化を発現させ、成形加工性を大幅に向上させることができる。

# [3] インフレーションフィルム成形

前述の通り、PLA は伸長粘度のひずみ硬化性を示さないことから、インフレーションフィルム成形においてバブルが不安定であり(図2左)、薄膜成形が困難である(表2)。一方、メルセン S8125 を添加した

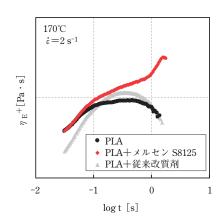


図1 各樹脂の伸長粘度の時間成長曲線

PLA はバブル安定性が向上し(図 2 右)、厚み  $10~\mu$  m においても安定したインフレーションフィルム成形が可能である(表 2)。また、PLA の特長である透明性 (ヘーズ) についても概ね維持することができる。

# [4] 押出ラミネート成形

インフレーション成形と同様に、押出ラミネート成形も伸長粘度特性の影響が顕著に現れる成形法であり、メルセン S8125 の添加効果は大きい。安定した溶融膜が得られる他、ヒートシール強度や耐ピンホール性等の包装材料に要求される物性も向上する(表3)。

# 4. 複合プラスチックのリサイクル

メルセンSは広範な樹脂との相溶性に優れることから、多種の複合プラスチックリサイクル樹脂の相溶化



PLA



PLA+メルセン S8125 (20部)

図 2 インフレーションフィルム成形中のバブル外観 (フィルム厚み 30 μm)

表2 フィルム成形性および透明性

樹脂	フィルム厚み [μm]	バブル 安定性	ヘーズ [%]
PLA	30 10	×	2
PLA+メルセン S8125 (20 部)	30 10	0	6 3

※バブル安定 ○: 安定、△: やや不安定、×:成形できない

表3 押出ラミネートフィルム物性

	溶融膜	ヒートシール強度 [N/15mm]			ピンホール数
/四月	安定性	150℃	160°C	170℃	[個]
PLA		5.0	5.2	5.4	100以上
PLA+メルセン S8125(20 部)		8.0	8.5	9.0	1以下

※クラフト紙に厚み 15 μm 樹脂をラミネート

※溶融膜安定性 ○: 安定、△: 溶融膜の端部が揺れる、×:成形できない

※ピンホール試験 ラミネートフィルムを100回屈曲後、ピンホール数を測定。

剤としても使用でき、特に繰り返しリサイクル性に優れるといった特徴を有する。

#### [1] 繰り返しリサイクル性

繰り返しリサイクルを想定し、押出機にて複数回混練したモデルリサイクル樹脂/相溶化剤ブレンドのメルトマスフローレート(MFR)、黄色度(YI)の変化を図3および図4に示す。反応性相溶化剤である無水マレイン酸変性ポリエチレン(MAH-PE)は混練後にMFRが大きく低下(増粘)し、YIも増加(黄変)している。一方、非反応性相溶化剤であるメルセンS8125では増粘や黄変が小さく、繰り返しリサイクル性に優れていることが分かる。

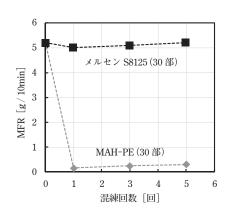


図 3 モデルリサイクル樹脂\*/相溶化剤ブレンドの繰り返し 混練後のMFR (\*PE/PP/EVOH/共重合 PET=25/25/25/25)

# [2] 機械物性

メルセン S8125 は、多様なプラスチックへの相溶性 (混和性)に優れるため、複合プラスチック廃棄物の リサイクルに好適である。表 4 に示す通り、メルセン S8125 はモデルリサイクル樹脂の引張破断伸びや衝撃 強度などの機械物性を向上させ、反応性相溶化剤に匹 敵する改質効果を発現する。また、多成分の樹脂に対 して有効であることから、組成が安定しない複合プラ スチック廃棄物においても、改質効果を発揮する。

#### [3] フィルム成形性

反応性相溶化剤は、被改質プラスチックとの局所的な反応によりフィッシュアイ (FE) の原因となるゲルを生じさせ、フィルム等の成形体の外観や物性を損

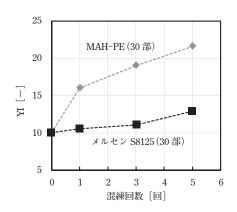


図 4 モデルリサイクル樹脂\*/相溶化剤ブレンドの繰り返し 混練後のYI (\*PE/PP/EVOH/共重合 PET=25/25/25/25)

表4 モデルリサイクル樹脂の改質性能

相溶化剤	引張破断伸び [%]	パンクチャー衝撃強度 [kJ/m]
未添加	3	0.5
メルセン S8125(30 部)	25	2.5
MAH-PE (30 部)	30	3.0

※モデルリサイクル樹脂: PE / PP / EVOH /共重合PET=25 / 25 / 25 / 25 / 20.1mm プレスシートを評価

表5 モデルリサイクル樹脂のフィルム成形

相溶化剤	フィルム成形可否	FE 数 [個/ 100cm <sup>2</sup> ]
未添加	不可	_
メルセン S8125(20 部)	可	8
MAH-PE (20 部)	可	100 以上

※モデルリサイクル樹脂:PE/EVOH/PA6/PET=70/10/10/10 ※小型キャスト成形機にて評価

ねることが多い。メルセン S8125 は非反応性であることから FE が少なく (表 5)、外観良好なフィルム製品にリサイクルすることが可能である。

#### 5. おわりに

本稿ではメルセンSによる生分解樹脂および複合プラスチックリサイクル樹脂の改質について紹介した。メルセンSを用いることにより、生分解樹脂の用途を広げ、また、焼却処理されていた複合プラスチックのマテリアルリサイクルを促進することが期待できる。しかし、プラスチックごみ問題には残された課題も多く、今後も様々な製品開発により環境負荷の低減に貢献していきたい。

# 参考文献

- 1) 田中千秋、プラスチックエージ、66、30 (2020)
- 2) 岩田忠久、マテリアルライフ学会誌、32 (2)、25 (2020)
- 3) 長岡猛、ポリ乳酸における基礎・開発動向と改質 剤・加工技術を用いた高機能化 (2015)
- 4) 公益財団法人日本容器包装リサイクル協会、2018 年年次レポート (2018)
- 5) 一般社団法人プラスチック循環利用協会、プラス チックリサイクルの基礎知識 (2019)
- 6) 竹下満、包装技術、58(5)、40(2020)
- 7) 松浦一雄、プラスチックス、71(1)、11(2020)