


藤森科学技術振興財団 研究実施概要報告書

(西暦) 2026 年 5 月 4 日

公益財団法人藤森科学技術振興財団
理事長 藤森 行彦 殿

藤森科学技術振興財団の助成金による研究が終了しましたので、下記のとおり報告をいたします。

所属機関 横浜国立大学
職 名 准教授
氏 名 大久保光 

【提出書類】

- (1) 研究実施概要報告書(本紙)
添付書類(A4 版 3 枚以内): 研究状況を示す写真等の資料
- (2) 収支報告書
添付書類: 助成金を充当した経費の領収書
領収書を添付しない場合: 支払一覧表と支払部門担当者記名捺印

④

(1)テーマ

※スペースが足りない場合は、枠を追加いただいて構いません。

マルチモーダル同時計測に基づくマテリアルリサイクル高分子の摩擦励起の劣化と再生の学理構築に向けた基礎研究

(2)本研究の期間

(西暦) 2025年4月～2026年3月

(3)本研究の目的

我々の日常生活にあふれる様々な材料の中でも、利便性、経済性、汎用性に優れる材料と言えば「プラスチック」であろう。現代社会の基盤材料とも言えるプラスチックの歴史は意外にも浅く、一般に広く普及したのは1950年代以降である。今日に至るまで、指数関数的に生産量を拡大することで我々の生活を支えてきたプラスチックであるが、その廃棄物処理問題が世界規模で深刻化している。GEYERらは、1950年から2015年までの間で約83億トンのプラスチックが生産され、そのうち約76%はごみとして廃棄されたとする試算を示している【1】。これは、現在のプラスチック製品の50%を占める容器包装プラスチックが、その使用目的から「使い捨て」を想定して生産されていることが一つの要因である。このような背景から、世界各国で容器包装プラスチックに関する「リデュース：生産量の減少」・「リサイクル：再利用」・「リプレイス：生分解性材料による代替」等の取り組みが広がっている。「リサイクル」に着目すれば、そのプロセスは3つに大別される。廃棄物から熱・エネルギー回収を行う「サーマルリサイクル」、原料油として分解回収する「ケミカルリサイクル」、ならびに再溶融・再成形する「マテリアルリサイクル」である。これらのリサイクルプロセスの中でも、循環型経済の推進・処理工程における使用エネルギーの観点から、マテリアルリサイクルの発展が重要視されてきた。しかしながら、日本国内における現状として、マテリアルリサイクルの占める割合は30%程度で停滞している。この要因の一つとして、リサイクル製品の力学物性劣化が挙げられる。一般的にリサイクルプラスチックの力学物性は製品相当品と比較して大幅に低下することが知られている。申請者は、この力学物性劣化の機構が、マテリアルリサイクルプロセスにおいて、プラスチックが「摩擦」による力学的せん断場に晒されることで、高分子の高次構造がバージン品から大きく変容することを発見した(Okubo, Journal of Material Cycles and Waste Management)。このことは一方で、マテリアルリサイクルプロセスにおいて「適切な摩擦プロセス」により廃棄高分子の高次構造を制御することで、リサイクル品の力学物性をバージン品相当に回復可能であるものと考えた。

本研究では、前年度における本助成事業により開発した「マルチモーダルオペランド計測装置」をリサイクルプロセスを模擬した溶融高分子・固体高分子の摩擦せん断場における構造の可視化に応用する。最終的には、リサイクルプラスチック成型品の力学強度と摩擦せん断場の高次構造を結びつけることで、力学物性回復、すなわち「力学物性の再生」を可能とするリサイクル技術を開拓する。

(4) 本研究の概要

課題1 | 溶融高分子の摩擦せん断場のマルチモダール同時オペランド計測手法の開発

本課題では、成形加工機における溶融樹脂の混練過程を「摩擦試験機」で模擬し、せん断過程における高分子の内部構造を「Raman 分光分析」でその場観察することを可能とした「マルチモダールオペランド Raman 分光分析—摩擦試験機」を運用する(図 1)。本装置により、溶融高分子に付与されるせん断が溶融状態及び結晶状態における高次構造に与える影響を「Raman 波形:分子情報」と「粘弾性応答:力学情報」により明らかとする。

模擬りサイクル過程について説明する。まず、バージン原料をタブレット状に成形する。その後、図 1 に示した開発摩擦試験機により、成形タブレットにせん断過程を与えつつ、その内部構造と粘弾性特性を Raman 分光分析と加振応答計測により観察する。この時、種々のせん断条件により、高分子にせん断を負荷する。とりわけ、溶融高分子へのせん断の負荷方法を「定常せん断(一方向せん断)」及び「往復動せん断」と使い分けることで、模擬りサイクル成形品の高次構造(配向・結晶化度:両パラメータは Raman 計測によりその場で算出)や粘弾性に与える影響を調査する。

課題2 | 成形品の力学物性と内部構造の関係

開発摩擦試験機により、生成したリサイクルフィルム試験片をダンベル状に加工することで、その力学物性を引張試験機により確認する。引張試験機において計測する「応力ひずみ線図」から、せん断方法の異なる各リサイクルフィルム試験片の力学物性を評価する。その後、各摩擦せん断条件により成形品の力学物性とオペランド計測の結果について、その相関を確認し、力学物性回復のための最適な摩擦せん断条件について検討する。

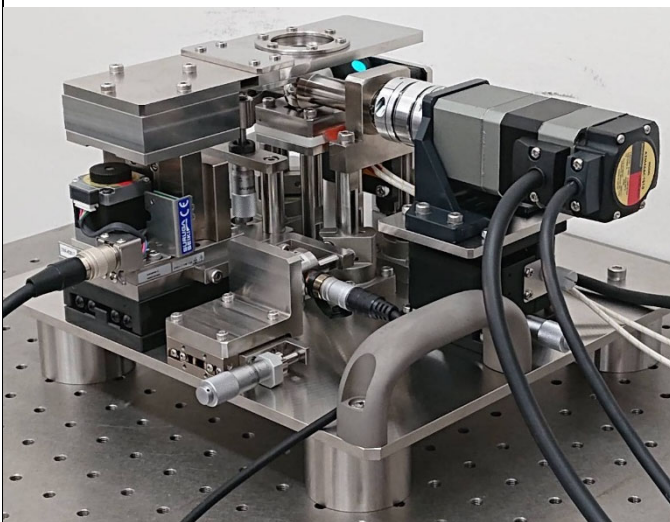


図 1 マルチモダールオペランド摩擦試験機

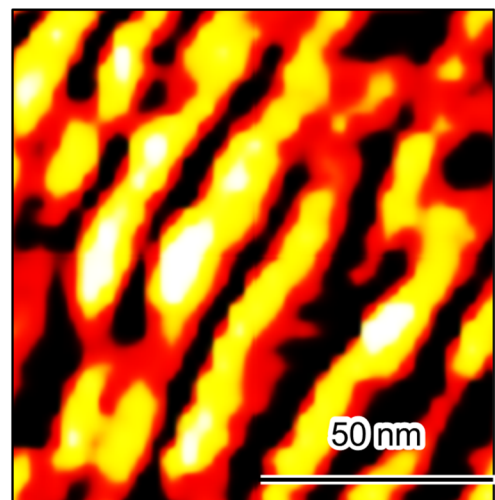
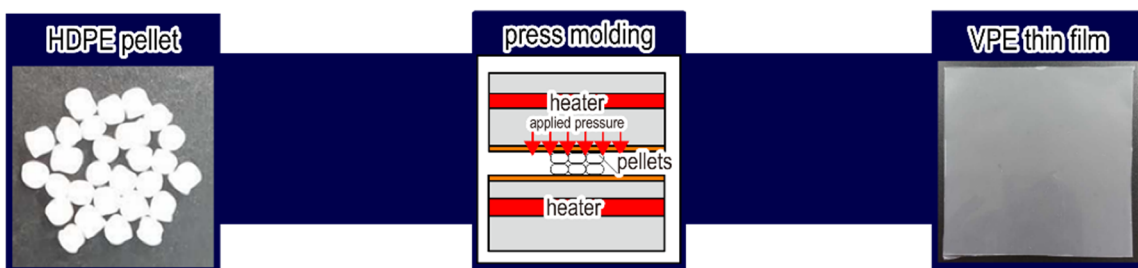


図 2 原子間力顕微鏡によるナノ構造計測

(5) 本研究の内容及び成果

プラスチックの MR 過程をレオメータにより模擬した。図 3 にその概要図を示す。図 3 に示すように、バージン PE (VPE) ペレット (FX201A, Keiyo polyethylene Co., JP) を熱プレス成型 (180°C , 25MPa , 2min , 空冷) することで、VPE フィルムを得た。一方、VPE ペレットを一度タブレット状に加工し、レオメータ (MCR302, Anton Paar GmbH, AUT) により、定常摩擦剪断 (=STEADY, $V = 100/\text{s}$, 10 min) 及び動的摩擦剪断 (=DYNAMIC, $\Omega = 10\text{ rad/s}$, strain 100% , 10 min) をタブレットに加えた。剪断を加えたタブレットをさらに細かく均一の形状に破碎し、これら破砕片を再度熱プレス成型 (180°C , 25MPa , 2min , 空冷) することで MRPE フィルムを得た。なお、レオメータの破碎の際には、摩擦剪断過程の高分子構造を Raman 分光分析 (Cora5700 Fiber, Anton Paar GmbH, AUT) で評価した。熱プレス成形した各フィルム試験片に対して、引張試験機 (LITTLE SENSTAR LSC-02/30-2, Tokyo Koki Testing Machine Co., JP) を用いた伸張性の評価を実施した。さらに、成型品の高次構造は、原子間力顕微鏡 (AFM, Bruker, nano-wizard, USA) の位相像より評価を実施した。

(a) preparation of virgin PE (VPE) thin film



(b) preparation of model material recycled PE (MRPE) thin film

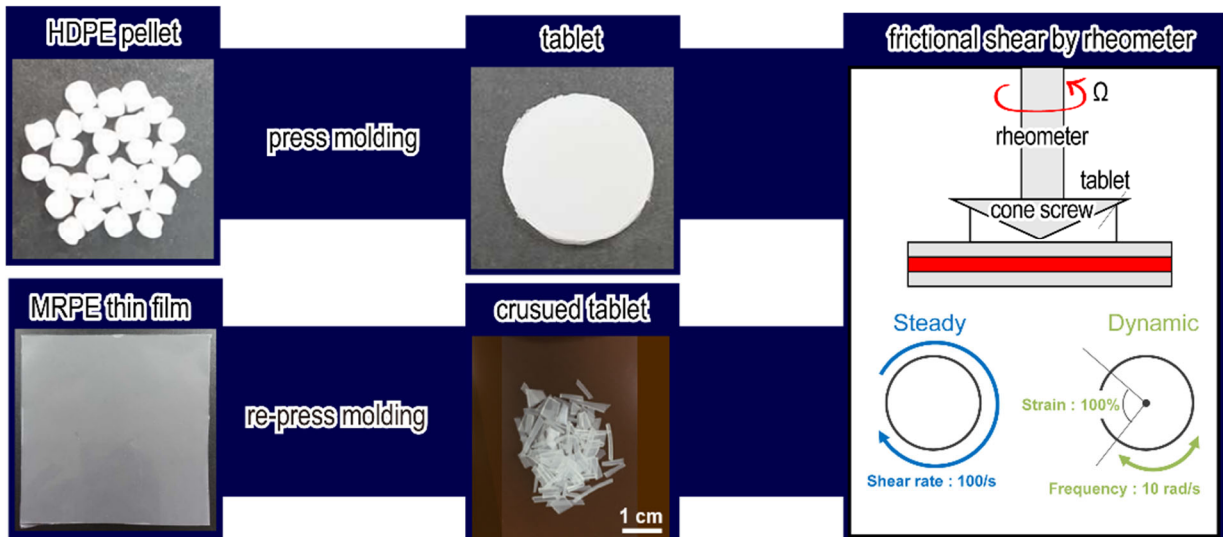


図 3 模擬リサイクル過程の概要図

図 4 に PE 由来の Raman shift を示す。1080 cm^{-1} が C-C 骨格の対称伸縮振動、1303 cm^{-1} が CH₂ の横揺れ振動及び 1440 cm^{-1} が CH₂ の変角振動と帰属した。

図 5 に各せん断過程における各ピークの Raman shift の変化を示す。摩擦せん断過程の違いにより、Raman shift とりわけ 1080 cm^{-1} の時間変化挙動に差異が確認された。DYNAMIC では、1080 cm^{-1} のピーク位置が高波数側に明確にシフトしており、これは、分子間距離が圧縮歪により縮まったことを示唆する。

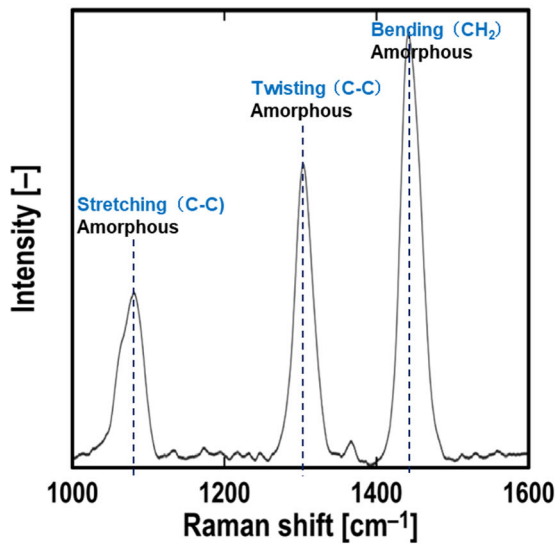


図 4 PE の代表的な Raman 波形

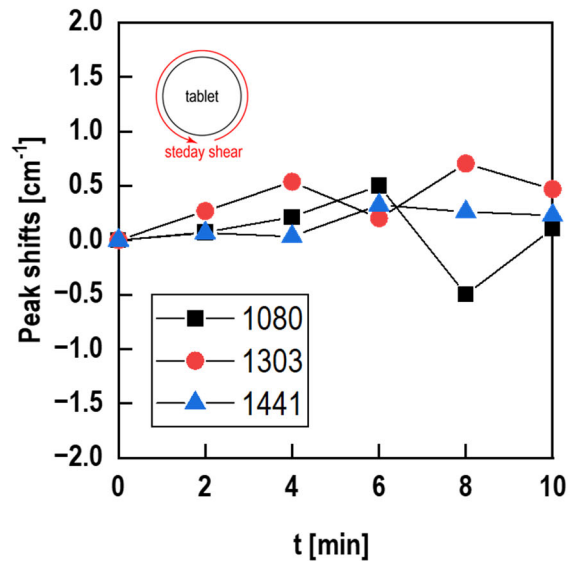


図 5 各せん断過程における Raman shift の変遷
定常せん断

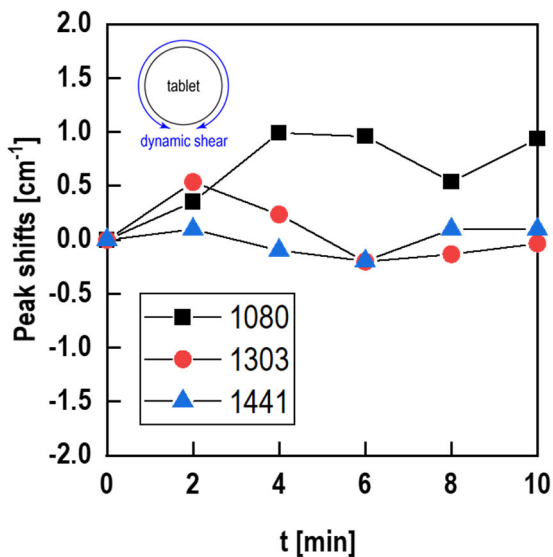


図 5 各せん断過程における Raman shift の変遷
動的せん断

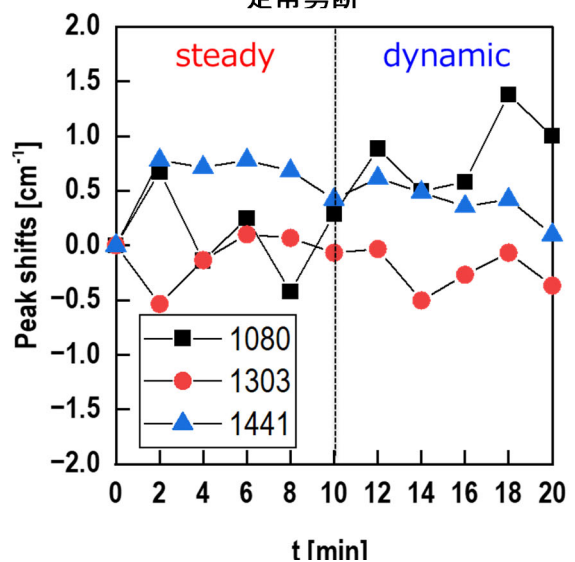


図 5 各せん断過程における Raman shift の変遷
定常せん断から動的せん断

(6) 本研究の考察

図 6 に引張試験における破断伸びの結果を示す。図 6 より、引張試験の破断伸びは、VPE を基準として、STEADY で低下、DYNAMIC 処理を経た成形プロセス増加した。すなわち、破砕時の摩擦剪断の方法により、再生品の力学物性が異なることが示された。

図 7 に、結晶及び非晶部を撮像したと思われる AFM 位相像の例を示す。図 7 に示すように、結晶(橙・黄色・赤の領域)を繋ぐように、PE 分子の架橋領域(画像内の bridge もしくは entailment 領域)が確認された。一般的にタイ分子と呼ばれる架橋領域が増加するほど、結晶性高分子の力学物性が增加することが知られている。したがって、AFM 位相像を 0 次ベッチ数解析することで、各成型品の結晶間の接続数(タイ分子数)をホモロジー学的に特定した。図 8 に 0 次ベッチ数と引張試験の破断伸びの関係を示す。なお、0 次ベッチ数はその数値が減少するほど、連結性が高い(架橋領域数が多い)と見なせる。本結果より、ベッチ数が小さいすなわち連結性が高い成型品であるほど、引張伸びに優れることが明らかとなった。従って、MR プロセスにおける摩擦剪断過程は、高分子の高次構造とりわけ架橋領域の状態に影響を与えていることが明らかとなった。

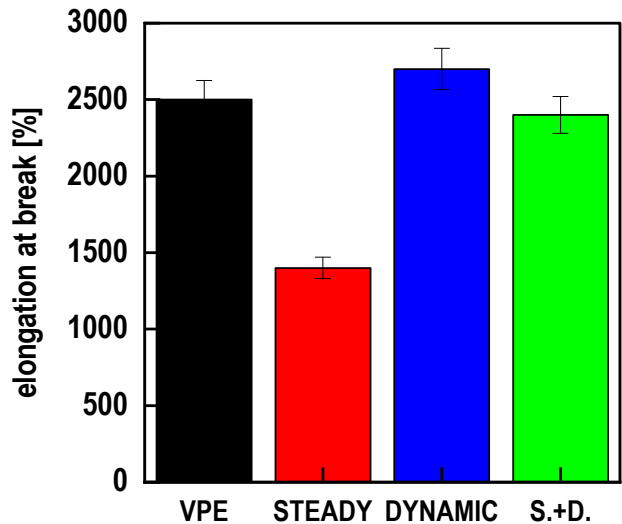
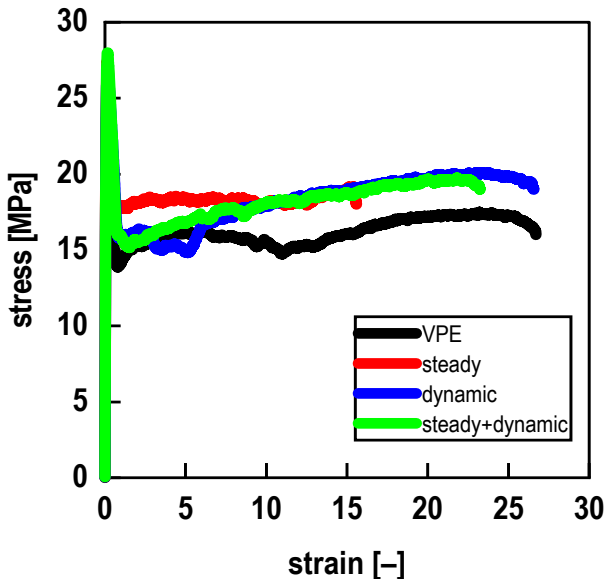


図 6 各せん断過程における引張伸びの結果

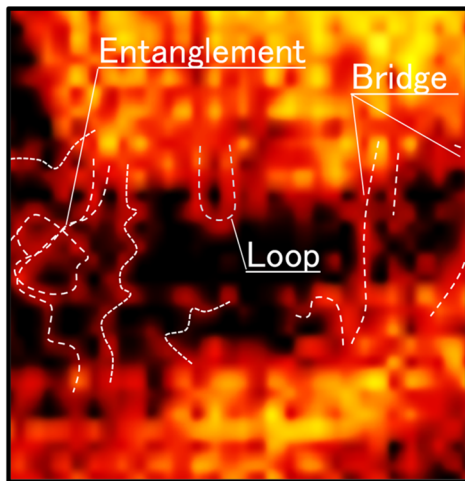


図 7 成形品の AFM 位相像

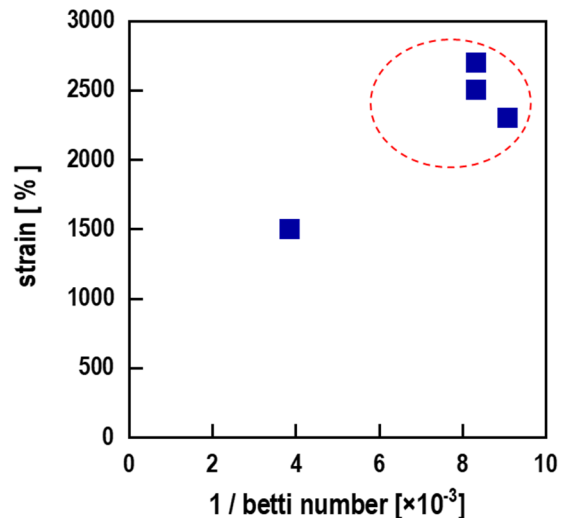


図 8 0 次ベッチ数の逆数と破断伸びの関係

④

(7)共同研究者(所属機関名、役職、氏名)

--

(8)本研究の成果の公表先

現在, Tribology Online への論文投稿を予定中.

--

[注]この報告書を当財団のホームページ等に掲載します。予めご了承ください。