

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年9月16日(16.09.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/181532 A1

(51) 国際特許分類:

C08J 11/10 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2020/010352

(22) 国際出願日:

2020年3月10日(10.03.2020)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(71) 出願人: マクセルホールディングス株式会社 (MAXELL HOLDINGS, LTD.) [JP/JP]; 〒6188525 京都府乙訓郡大山崎町大山崎小泉1番地 Kyoto (JP).

(72) 発明者: 遊佐 敦(YUSA, Atsushi); 〒6188525 京都府乙訓郡大山崎町大山崎小泉1番地 マクセル株式会社内 Kyoto (JP). 後藤 敏晴(GOTO, Toshiharu); 〒6188525 京都府乙訓郡

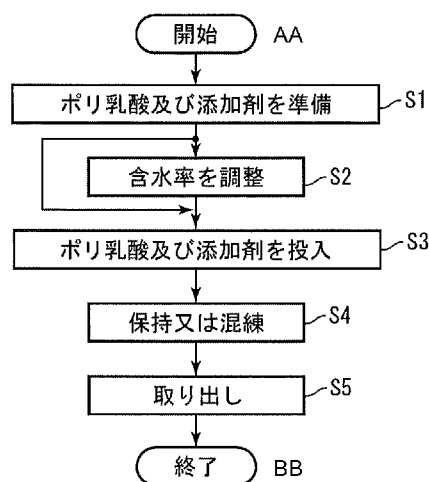
大山崎町大山崎小泉1番地 マクセル株式会社内 Kyoto (JP). 孫 吟(SUN, Yin); 〒6188525 京都府乙訓郡大山崎町大山崎小泉1番地 マクセル株式会社内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 上羽 秀敏, 外(UEBA, Hidetoshi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島1丁目1番5号 ザイマックス梅田新道ビル インテリクス国際特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,

(54) Title: POLYLACTIC ACID DECOMPOSITION METHOD

(54) 発明の名称: ポリ乳酸の分解方法



S1 Prepare polylactic acid and additive
S2 Adjust moisture content rate
S3 Introduce polylactic acid and additive
S4 Retain or knead
S5 Remove
AA Start
BB End

(57) Abstract: Provided is a polylactic acid decomposition method with which polylactic acid can be decomposed while suppressing energy consumption. This polylactic acid decomposition method comprises: a step for introducing, in a reaction device, polylactic acid and an additive which is a mixture of one or more types of compounds selected from the group consisting of alkali metal salts, alkaline-earth metal salts, alkali metal oxides, and alkaline-earth metal oxides (step S3); and a step for retaining or kneading said polylactic acid and said additive under a condition where the moisture content expressed by the following equation is 0.15-3.0% (step S4). Moisture content = Mass of moisture in the reaction device/(Mass of the polylactic acid + Mass of the additive + Mass of moisture added from outside). Herein, the mass of moisture in the reaction device includes the mass of moisture adhering to the polylactic acid and the additive and also the mass of moisture added from outside, and the mass of the polylactic acid, as well as the mass of the additive, is the mass including the mass of moisture adhering thereto respectively.

MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：エネルギー消費を抑えながらポリ乳酸を分解することができる、ポリ乳酸の分解方法を提供する。ポリ乳酸の分解方法は、ポリ乳酸と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、アルカリ金属の酸化物、及びアルカリ土類金属の酸化物からなる群から選択される1種、又は2種以上の混合物である添加剤とを反応装置に投入する工程（ステップS3）と、下記の式で表される水分含有量が0.15～3.0%となる条件で、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程（ステップS4）とを備える。水分含有量＝反応装置内の水分の質量／（ポリ乳酸の質量＋添加剤の質量＋外部から添加する水分の質量）ただし、反応装置内の水分の質量は、ポリ乳酸及び添加剤に吸着している水分の質量並びに外部から添加する水分の質量を含み、ポリ乳酸の質量及び添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。

明 細 書

発明の名称：ポリ乳酸の分解方法

技術分野

[0001] 本発明は、ポリ乳酸の分解方法に関する。

背景技術

[0002] 樹脂廃棄物による環境汚染が社会的な問題となる中、ポリ乳酸に代表される生分解性樹脂が注目されている。近年、生分解性樹脂を分解して再利用するケミカルリサイクルに関する技術が開発されている。

[0003] 特開平 6－2 7 9 4 3 4 号公報には、アルカリ金属塩を触媒として、ヒドロキシ酸系オリゴマーの熱分解を行うメソ体含有ラクタイド類の製造方法が開示されている。特開 2 0 0 7－2 1 0 8 8 9 号公報には、ステレオコンプレックス型ポリ乳酸を 1 7 0～3 3 0℃の高温下で、5～2 4 0 分間処理するステレオコンプレックス型ポリ乳酸のモノマー化方法が開示されている。

[0004] 特開 2 0 1 7－1 3 2 7 3 0 号公報には、減圧下に保持されたベント室に通じる押出機にポリ乳酸及び解重合触媒を投入し、該押出機でポリ乳酸と解重合触媒とを熔融混練し、該熔融混練物をベント室内に供給し、該ベント室内でポリ乳酸の解重合を行い、生成したラクチドをガス化して該ベント室から回収するラクチド回収方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平 6－2 7 9 4 3 4 号公報

特許文献2：特開 2 0 0 7－2 1 0 8 8 9 号公報

特許文献3：特開 2 0 1 7－1 3 2 7 3 0 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特開平 6－2 7 9 4 3 4 号公報に記載の方法は、減圧環境下での反応であり、装置が大掛かりになる上にバッチ処理せざるを得ないという問題がある

。また、原料にするヒドロキシ酸の分子量が低いものを用いる必要がある。

[0007] 特開2007-210889号公報には、ポリ乳酸を分解して乳酸を得る方法が提案されている。しかし、乳酸から直接ポリ乳酸を合成する方法は、分子量が上がらないといった問題があり実用化されていない。一方、ラクチドを生成するためには、ポリ乳酸と水とを分離する必要がある。この工程には多くのエネルギーが必要であり、環境負荷を低減するという生分解性樹脂のリサイクルの趣旨に反することになる。

[0008] 特開2017-132730号公報に記載された方法は、反応の再現性が低く、生成物の分子量や反応率を安定的に制御できない。

[0009] 本発明の目的は、エネルギー消費を抑えながらポリ乳酸を分解することができる、ポリ乳酸の分解方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明の一実施形態によるポリ乳酸の分解方法は、ポリ乳酸と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、アルカリ金属の酸化物、及びアルカリ土類金属の酸化物からなる群から選択される1種、又は2種以上の混合物である添加剤とを反応装置に投入する工程と、下記の式で表される水分含有量が0.15～3.0%となる条件で、前記ポリ乳酸及び前記添加剤を保持又は混練する工程とを備える。

$$\text{水分含有量} = \frac{\text{反応装置内の水分の質量}}{(\text{ポリ乳酸の質量} + \text{添加剤の質量} + \text{外部から添加する水分の質量})}$$

ただし、前記反応装置内の水分の質量は、前記ポリ乳酸及び前記添加剤に吸着している水分の質量並びに外部から添加する水分の質量を含み、前記ポリ乳酸の質量及び前記添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、エネルギー消費を抑えながらポリ乳酸を分解することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。

[図3]図3は、本発明の第3の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。

[図4]図4は、ポリ乳酸の分解装置の一例の模式図である。

[図5]図5は、ポリ乳酸の分解装置の他の例の模式図である。

[図6]図6は、水分含有量と分解生成物の数平均分子量及び消費エネルギーとの関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0013] 従来、ポリ乳酸の分解反応を促進するためには多量の水が必要であると考えられていた。例えば、上述した特開2007-210889号公報には、ポリ乳酸1質量部に対して、水5～100質量部を共存させることが記載されている。

[0014] 本発明者らは、所定の添加剤を添加した条件下においては、水を非常に少量にしても、ポリ乳酸の分解反応が進むことを見出した。

[0015] 本発明は、この知見に基づいて完成された。以下、図面を参照し、本発明の実施の形態を詳しく説明する。図中同一または相当部分には同一符号を付してその説明は繰り返さない。各図に示された構成部材間の寸法比は、必ずしも実際の寸法比を示すものではない。

[0016] [第1の実施形態]

図1は、本発明の第1の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。本実施形態によるポリ乳酸の分解方法は、ポリ乳酸及び添加剤を準備する工程（ステップS1）、ポリ乳酸及び添加剤の含水率を調整する工程（ステップS2）、ポリ乳酸及び添加剤を反応装置に投入する工程（ステップS3）、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程（ステップS4）、及び分解生成物を取り出す工程（ステップS5）を備えている。

- [0017] 原料となるポリ乳酸、及びポリ乳酸に加える添加剤を準備する（ステップ S 1）。ポリ乳酸は、粉末状又はペレット状に前処理されたものが好ましい。あるいは、反応装置の原料投入口に粉碎装置を設けて、後述する原料投入工程（ステップ S 3）と同時にポリ乳酸を含む原料（例えば廃棄物等）が粉碎されるようにしてもよい。
- [0018] 添加剤は、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、アルカリ金属の酸化物、及びアルカリ土類金属の酸化物からなる群から選択される 1 種、又は 2 種以上の混合物である。添加剤は、炭酸水素ナトリウム（重曹）、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、及び酸化マグネシウムからなる群から選択される 1 種、又は 2 種以上の混合物であることが好ましく、重曹が特に好ましい。
- [0019] 必要に応じて、ポリ乳酸及び添加剤の含水量を調整する（ステップ S 2）。添加剤は、吸湿性があり、水分が吸着している場合がある。ポリ乳酸も、水分が吸着している場合がある。そのため、ポリ乳酸及び添加剤を反応装置に投入する前に、予めこれらの含水率を調整しておいてもよい。
- [0020] 含水率を調整する工程（ステップ S 2）は任意の工程であり、投入されるポリ乳酸及び添加剤の含水率が安定している場合には省略してもよい。含水率を調整する場合、ポリ乳酸及び添加剤の少なくとも一方の含水率を調整すればよい。
- [0021] 含水率を調整する具体的な方法としては、ポリ乳酸及び添加剤を乾燥機で乾燥することや、恒温恒湿槽に所定時間保持すること、霧吹き等で湿らせること等が挙げられる。
- [0022] また、反応装置の投入口の湿度を制御することで、ポリ乳酸及び添加剤の含水率を調整してもよい。上述のとおり、特に添加剤には吸湿性があるため、ポリ乳酸及び添加剤の含水率は、反応装置の投入口の湿度の影響を受ける。ポリ乳酸及び添加剤の含水率を低くしたい場合には、反応装置の投入口の湿度を低くすればよく、ポリ乳酸及び添加剤の含水率を高くしたい場合には、反応装置の投入口の湿度を高くすればよい。反応装置の投入口の湿度を制御する装置としては、空調設備のほか、噴霧装置が挙げられる。

[0023] ポリ乳酸及び添加剤を反応装置に投入する（ステップS 3）。本実施形態では、後述するように、反応装置内の水分を制御した状態でポリ乳酸を分解させる。そのため、反応装置は、原料の投入口や取出口、ガスの導入口や排出口（ベント口）、水分の注入口等を除いて、内部を密閉できる構造であることが好ましい。反応装置は、金属製、ガラス製、又はセラミック製であることが好ましく、金属製であることが特に好ましい。反応装置は、後述するような押出機であってもよい。

[0024] 添加剤の量は、ポリ乳酸100質量部に対して0.2～20質量部とすることが好ましい。ただし、ポリ乳酸の質量及び添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。以下、この（添加剤の質量（吸着している水分の質量を含む））／（ポリ乳酸の質量（吸着している水分の質量を含む））×100の値を「添加剤濃度」という。

[0025] 添加剤濃度が低すぎると、ポリ乳酸の分解速度が遅くなる。添加剤濃度の下限は、より好ましくは0.50質量部であり、さらに好ましくは1.0質量部であり、さらに好ましくは2.0質量部である。一方、添加剤濃度が高すぎると、加熱に必要なエネルギーが大きくなる。添加剤濃度の上限は、より好ましくは18質量部であり、さらに好ましくは15質量部であり、さらに好ましくは10質量部である。

[0026] ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する（ステップS 3）。この保持又は混練する工程（ステップS 3）は、下記の式で表される水分含有量が0.15～3.0％になるようにする。

水分含有量＝反応装置内の水分の質量／（ポリ乳酸の質量＋添加剤の質量＋外部から添加する水分の質量）

ただし、反応装置内の水分の質量は、ポリ乳酸及び添加剤に吸着している水分の質量並びに外部から添加する水分の質量を含み、ポリ乳酸の質量及び添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。

[0027] この保持又は混練する工程（ステップS 3）において、反応装置の外部から水分を添加して、反応装置内の水分を調整してもよい。外部からの水分の

添加は例えば、反応装置の投入口や、投入口とは別途に設けられた注入口から水分を供給することで行うことができる。水分は、液体として供給してもよいし、加湿気体として供給してもよい。もっとも、外部から水分を添加することは必須ではなく、外部から添加する水分の質量は0であってもよい。また、乾燥気体を供給することで水分を低下させてもよい。

[0028] 水分含有量が低すぎると、ポリ乳酸の分解速度が遅くなる。水分含有量の下限は、好ましくは0.20%であり、さらに好ましくは0.50%であり、さらに好ましくは1.0%である。一方、水分含有量が高すぎると、加熱に必要なエネルギーが大きくなる。水分含有量の上限は、好ましくは2.8%であり、さらに好ましくは2.5%であり、さらに好ましくは2.0%である。

[0029] この保持又は混練は、反応装置内を加熱して行うことが好ましい。加熱温度は、好ましくは120～340℃である。加熱温度が高い程、反応が進みやすくなる。加熱温度の下限は、より好ましくは160℃であり、さらに好ましくは180℃である。一方、加熱温度が高すぎると、エステル結合以外の部分の結合が切れ、所期の分解生成物の収率が低下する。加熱温度の上限は、より好ましくは300℃であり、さらに好ましくは280℃であり、さらに好ましくは260℃である。

[0030] この保持又は混練は、反応装置内を加圧して行うことが好ましい。反応装置内の圧力は、好ましくは0.15～20.0MPaである。反応装置内の圧力の下限は、より好ましくは0.5MPaであり、さらに好ましくは1.0MPaであり、さらに好ましくは3.0MPaである。反応装置内の圧力の上限は、より好ましくは15.0MPaであり、さらに好ましくは10.0MPaであり、さらに好ましくは5.0MPaである。

[0031] 保持又は混練する時間は、特に限定されないが、好ましくは1秒間以上であり、例えば1秒間～12時間である。保持又は混練する時間の下限は、より好ましくは30秒間であり、さらに好ましくは1分間であり、さらに好ましくは2分間である。保持又は混練する時間の上限は、より好ましくは6時

間であり、さらに好ましくは2時間であり、さらに好ましくは30分間である。混練する場合、剪断速度を 500 s^{-1} 以下にすることが好ましい。

[0032] 所定時間保持又は混練した後、ポリ乳酸が分解されて形成された分解生成物を反応装置から取り出す（ステップS5）。この分解生成物は、乳酸のオリゴマー、乳酸、ラクチド等を含む。

[0033] 以上、本発明の第1の実施形態によるポリ乳酸の分解方法を説明した。本実施形態によるポリ乳酸の分解方法は、水分含有量が0.15～3.0%となる条件で、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程を含む。この構成によれば、水の加熱に必要なエネルギーの消費を抑制しつつ、ポリ乳酸を分解することができる。また、本実施形態によれば、乳酸のオリゴマー及び乳酸だけではなく、ラクチドを回収することもできる。

[0034] [第2の実施形態]

図2は、本発明の第2の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。本実施形態によるポリ乳酸の分解方法は、第1の実施形態（図1）の各工程に加えて、反応装置内の水分を測定する工程（ステップS6）と、測定された水分に基づいて、反応装置内の水分を調整する工程（ステップS7）とをさらに備えている。

[0035] 本実施形態では、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程（ステップS4）と併行して、反応装置内の水分を測定する（ステップS6）。反応装置内の水分の測定は、例えば、反応装置に設けたベント口から反応装置内のガス成分を採取し、採取したガス成分を水分計で分析することで行うことができる。水分計は例えば、カールフィッシャー水分計や赤外水分計である。

[0036] 測定された水分に基づいて、反応装置内の水分を調整する（ステップS7）。具体的には、測定された水分と予め設定された水分下限とを比較し、測定された水分が水分下限未満である場合には、反応装置内の水分を上げる操作を行う。反応装置内の水分を上げる具体的な操作としては例えば、反応装置内に液体の水を注入したり、反応装置内に加湿気体を導入したりすることが挙げられる。

[0037] 反応装置内の水分を調整する工程（ステップS 7）として、上記の操作に代えて、又は上記の操作に加えて、測定された水分と予め設定された水分上限とを比較し、測定された水分が水分上限を超えている場合には、反応装置内の水分を下げる操作を行ってもよい。反応装置内の水分を下げる具体的な操作としては例えば、反応装置内への注水を停止したり、反応装置内に乾燥気体を導入したりすることが挙げられる。

[0038] 本実施形態では、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程（ステップS 4）、反応装置内の水分を測定する工程（ステップS 6）、及び反応装置内の水分を調整する工程（ステップS 7）を、所定の時間が経過するまで繰り返す。これによって、水分含有量が所定の範囲になるように制御した状態で、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練することができる。

[0039] [第3の実施形態]

図3は、本発明の第3の実施形態によるポリ乳酸の分解方法のフロー図である。本実施形態では、ポリ乳酸及び添加剤の投入から分解生成物の取り出しまでを連続的に行う。このような処理として例えば、投入口及び取出口を有する反応装置を用いて、投入口からポリ乳酸及び添加剤を投入しながら、これと併行して取出口から反応生成物を取り出して、ポリ乳酸を連続的に分解する処理が挙げられる。

[0040] 本実施形態の分解方法も、第1の実施形態（図1）の分解方法と同様に、ポリ乳酸及び添加剤を準備する工程（ステップS 1）、ポリ乳酸及び添加剤の含水率を調整する工程（ステップS 2）、ポリ乳酸及び添加剤を反応装置に投入する工程（ステップS 3）、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練する工程（ステップS 4）、及び分解生成物を取り出す工程（ステップS 5）を備えている。上述したように、本実施形態では、ポリ乳酸及び添加剤の投入から分解生成物の取り出しまでを連続的に行う。具体的には、ポリ乳酸及び添加剤を準備する工程（ステップS 1）から分解生成物を取り出す工程（ステップS 5）までを、所定の時間が経過するまで繰り返す。

[0041] 本実施形態の分解方法も、第2の実施形態（図2）の分解方法と同様に、

反応装置内の水分を測定する工程（ステップS 6）と、測定された水分に基づいて、反応装置内の水分を調整する工程（ステップS 7）とをさらに備えている。ただし、本実施形態の分解方法では、反応装置内の水分を調整する工程（ステップS 7）を実施するタイミングが、第2の実施形態と異なっている。

[0042] 本実施形態では、反応装置に投入するポリ乳酸及び添加剤の少なくとも一方の含水率を調整することによって、反応装置内の水分を調整する。すなわち、本実施形態では、ポリ乳酸及び添加剤の含水率を調整する工程（ステップS 2）が、反応装置内の水分を調整する工程（ステップS 7）を兼ねている。

[0043] 具体的には、第2の実施形態の場合と同様に、測定された水分と予め設定された水分下限とを比較し、測定された水分が水分下限未満である場合には、反応装置内の水分を上げる操作を行う。本実施形態では、反応装置内の水分を上げる操作として、反応装置に投入するポリ乳酸及び添加剤の少なくとも一方の含水率を上げる操作を行う。より具体的には例えば、ポリ乳酸及び添加剤の乾燥温度を低くする、乾燥時間を短くする、霧吹き等で湿らせる、反応装置の投入口の湿度を高くするといった操作が挙げられる。

[0044] 第2の実施形態の場合と同様に、上記の操作に代えて、又は上記の操作に加えて、測定された水分と予め設定された水分上限とを比較し、測定された水分が水分上限を超えている場合には、反応装置内の水分を下げる操作を行ってもよい。本実施形態では、反応装置内の水分を下げる操作として、反応装置に投入するポリ乳酸及び添加剤の少なくとも一方の含水率を下げる操作を行う。より具体的には例えば、ポリ乳酸及び添加剤の乾燥温度を高くする、乾燥時間を長くする、霧吹き等で湿らせることを停止する、反応装置の投入口の湿度を低くするといった操作が挙げられる。

[0045] 上記の操作に加えて、あるいは上記の操作に代えて、反応装置内への水の注入や、加湿気体又は乾燥気体の導入によって反応装置内の水分を調整するようにしてもよい。すなわち、反応装置に投入するポリ乳酸及び添加剤の少

なくとも一方の含水率を調整することによって反応装置内の水分を調整することに加えて、あるいはこれに代えて、第2の実施形態の場合と同様に、反応装置内への水の注入や、加湿気体又は乾燥気体の導入によって反応装置内の水分を調整するようにしてもよい。

[0046] 本実施形態によっても、水分含有量が所定の範囲になるように制御した状態で、ポリ乳酸及び添加剤を保持又は混練することができる。

[0047] [ポリ乳酸の分解装置の構成]

次に、ポリ乳酸の分解装置の構成を説明する。以下に説明する分解装置はあくまでも例示であって、本実施形態によるポリ乳酸の分解方法を限定するものではない。

[0048] [構成例1]

図4は、ポリ乳酸の分解装置の一例である分解装置1の模式図である。分解装置1は、押出機10、フィーダ20、水分調整装置25、ガス分析装置30、及び制御装置40を備えている。ポリ乳酸及び添加剤は、フィーダ20によって押出機10に投入され、押出機10によって混練されて、最終的に押出機10の吐出口（取出口）11cから低分子量の分解生成物として取り出される。

[0049] フィーダ20は、ポリ乳酸及び添加剤を所定の供給量で押出機10に投入する。フィーダ20は、ポリ乳酸及び添加剤の供給量をそれぞれ独立に制御できる構造であることが好ましい。フィーダ20は、モータ21を備えており、モータ21の回転数を制御することによって、ポリ乳酸及び添加剤の供給量を制御することができる。フィーダ20として、より具体的には例えば、スクリューフィーダやベルトコンベアを用いることができる。

[0050] 押出機10は、シリンダ壁11（反応装置）、スクリュー12、加熱装置13、シール部材14、ダイス15等を備えている。

[0051] シリンダ壁11は、後述する開口部（投入口11a、ベント口11b、吐出口11c）を除き、内部が密閉された構造を有しており、ポリ乳酸の分解反応の反応装置として機能する。

- [0052] スクリュー 1 2 は、シリンダ壁 1 1 の内容物を混練する。シリンダ壁 1 1 内に投入されたポリ乳酸及び添加剤は、スクリュー 1 2 によって混練されながら吐出口 1 1 c に向かって搬送される。スクリュー 1 2 は、モータ 1 2 1 を備えており、モータ 1 2 1 の回転数を制御することによって、剪断速度を調整することができる。
- [0053] 加熱装置 1 3 は、シリンダ壁 1 1 を加熱して、シリンダ壁 1 1 の温度を調整する。図 4 の例では、シール部材 1 4 によって画された三つの領域の周りに加熱装置 1 3 を分割して配置し、それぞれの領域の温度を独立して制御できるようにしている。これによって例えば、搬送方向の上流側の領域を熔融遷移ゾーン、中央の領域を分解ゾーン、下流側の領域を脱気・冷却吐出ゾーンとして、分解ゾーンを最も高温にした温度分布を形成することができる。
- [0054] シリンダ壁 1 1 には、開口部として、投入口 1 1 a、ベント口 1 1 b、及び吐出口 1 1 c が設けられている。
- [0055] 投入口 1 1 a は、シリンダ壁 1 1 の搬送方向の最も上流側に設けられている。投入口 1 1 a には、フィーダ 2 0 からポリ乳酸及び添加剤が投入される。
- [0056] ベント口 1 1 b は、シリンダ壁 1 1 の搬送方向の下流側に、ガス成分のみが通過できるように設けられている。ベント口 1 1 b は、吐出口 1 1 c の近傍に設けられていることが好ましい。図 4 の例では、ベント口 1 1 b は、シール部材 1 3 によって画された三つの領域のうち、下流側の領域（脱気・冷却吐出ゾーン）に配置されている。ベント口 1 1 b は、ガス分析装置 3 0 に接続されている。
- [0057] 吐出口 1 1 c は、シリンダ壁 1 1 の搬送方向の最も下流側に設けられている。吐出口 1 1 c には、ダイス 1 5 が配置されている。シリンダ壁 1 1 内で混練されて形成された分解生成物は、ダイス 1 5 によって所定の形状に成型されて吐出口 1 1 c から押し出される。
- [0058] 水分調整装置 2 5 は、シリンダ壁 1 1 内の水分を調整する。水分調整装置 2 5 は例えば、投入口 1 1 a の湿度を調整する噴霧装置である。水分調整装

置 2 5 は、シリンダ壁 1 1 内に水を注入するポンプや、シリンダ壁 1 1 内に乾燥気体や加湿気体を導入する装置であってもよい。

[0059] ガス分析装置 3 0 は、図示しない水分計を含んでいる。ガス分析装置 3 0 は、ベント口 1 1 b から採取されたガス成分を分析し、シリンダ壁 1 1 内の水分を測定する。測定された水分の値は、制御装置 4 0 に送信される。

[0060] 制御装置 4 0 は、ガス分析装置 3 0 からシリンダ壁 1 1 内の水分の値を受け取り、この値に基づいて、水分調整装置 2 5 を制御する。これによって、シリンダ壁 1 1 内の水分を調整する。すなわち、分解装置 1 は、制御装置 4 0 によって、シリンダ壁 1 1 内の水分を調整する工程を自動で行うことができるように構成されている。

[0061] 上記の例では、分解装置 1 が制御装置 4 0 を備え、制御装置 4 0 によってシリンダ壁 1 1 内の水分を調整する工程を自動で行う場合を説明した。しかし、水分を調整する工程は手動で行ってもよく、分解装置は制御装置 4 0 を備えていなくてもよい。

[0062] [構成例 2]

図 5 は、ポリ乳酸の分解装置の他の例である分解装置 2 の模式図である。分解装置 2 は、分解装置 1 (図 4) の押出機 1 0 に代えて、反応設備 6 0 を備えている。反応設備 6 0 は、反応装置 6 1、スクリー 6 2、及び加熱装置 6 3 を備えている。

[0063] 反応装置 6 1 は、本体 6 1 1 と蓋 6 1 2 とを含んでいる。蓋 6 1 2 には、原料投入口 6 1 2 a、ガス導入口 6 1 2 b、ベント口 6 1 2 c が設けられており、それぞれ、フィーダ 2 0、水分調整装置 2 5、及びガス分析装置 3 0 に接続されている。

[0064] スクリー 6 2 は、反応装置 6 1 の内容物を混練する。加熱装置 6 3 は、反応装置 6 1 を加熱する。

[0065] 分解装置 2 においても、制御装置 4 0 は、ガス分析装置 3 0 から反応装置 6 1 内の水分の値を受け取り、この値に基づいて、水分調整装置 2 5 を制御する。これによって、反応装置 6 1 内の水分を調整する。すなわち、分解装

置 2 は、制御装置 40 によって、反応装置 61 内の水分を調整する工程を自動で行うことができるように構成されている。なお、この例においても、水分を調整する工程は手動で行ってもよく、分解装置は制御装置 40 を備えていなくてもよい。

実施例

[0066] 以下、実施例によって本発明をより具体的に説明する。本発明はこれらの実施例に限定されない。

[0067] 図 4 で示した装置に準じた分解装置を用いて、水分含有量、圧力、添加剤の種類、及び添加剤濃度を変えて、数平均分子量 78000 のポリ乳酸の分解を行い、分解生成物の数平均分子量を測定した。結果を表 1 及び表 2 に示す。

[0068] [表1]

	原料	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
温度/°C	—	200	200	200	200	200
水分含有量/%	—	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
圧力/MPa	—	5	5	5	0.1	5
時間/min	—	3	3	3	3	3
添加剤	—	NaHCO ₃	Na ₂ CO ₃	K ₂ CO ₃	NaHCO ₃	NaHCO ₃
添加剤濃度/phr	—	4	4	4	4	0.1
数平均分子量	78000	2200	4000	5000	30000	46000
消費エネルギー/J	—	5586.3	5598.2	5292.5	5586.3	4854.2

[0069] [表2]

	実施例6	実施例7	実施例8	比較例1	比較例2	比較例3
温度/°C	200	200	200	200	200	200
水分含有量/%	1.5	0.16	1.5	0.09	5	20
圧力/MPa	5	5	5	5	5	5
時間/min	3	3	3	3	3	3
添加剤	NaHCO ₃	NaHCO ₃	MgO	NaHCO ₃	NaHCO ₃	NaHCO ₃
添加剤濃度/phr	50	1	4	4	4	4
数平均分子量	5000	21000	2600	26000	10000	6600
消費エネルギー/J	14221.1	737.8	5655.4	1077.1	16779.3	64749.3

[0070] 表 1 及び表 2 の「消費エネルギー」の欄の値は、100g のポリ乳酸、添

加剤、及び水を室温（20℃）から反応温度（200℃）まで加熱するのに必要なエネルギー（ポリ乳酸及び添加剤の融解熱、並びに水の蒸発熱を含む）の計算値である。

[0071] 図6は、実施例1及び比較例1～3から作成した、水分含有量と分解生成物の数平均分子量及び消費エネルギーとの関係を示すグラフである。

[0072] 表1及び表2、並びに図6に示すように、比較例1の条件では、分解生成物の数平均分子量が十分に下がらなかった。これは、水分含有量が低すぎたことにより、分解速度が著しく低下したためと考えられる。

[0073] 一方、実施例1と比較例2及び3とを比較すると、水分含有量を1.5%程度まで低下させても、分解速度はそれほど低下しないことが分かる。この例では、実施例1の反応速度は、比較例2及び3の反応速度よりもむしろ大きくなっている。一方、水分含有量を低下させることで、消費エネルギーを大きく削減できることが分かる。

[0074] 以上、本発明についての実施形態を説明したが、本発明は上述の実施形態のみに限定されず、発明の範囲内で種々の変更が可能である。

符号の説明

[0075] 1, 2 ポリ乳酸の分解装置、10 押出機、11 シリンダ壁（反応装置）、12 スクリュー、13 加熱装置、14 シール部材、15 ダイス、20 フィーダ、25 水分調整装置、30 ガス分析装置、40 制御装置、60 反応設備、61 反応装置、62 スクリュー、63 加熱装置

請求の範囲

[請求項1] ポリ乳酸と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、アルカリ金属の酸化物、及びアルカリ土類金属の酸化物からなる群から選択される1種、又は2種以上の混合物である添加剤とを反応装置に投入する工程と、

 下記の式で表される水分含有量が0.15～3.0%となる条件で、前記ポリ乳酸及び前記添加剤を保持又は混練する工程とを備える、ポリ乳酸の分解方法。

 水分含有量＝反応装置内の水分の質量／（ポリ乳酸の質量＋添加剤の質量＋外部から添加する水分の質量）

 ただし、前記反応装置内の水分の質量は、前記ポリ乳酸及び前記添加剤に吸着している水分の質量並びに外部から添加する水分の質量を含み、前記ポリ乳酸の質量及び前記添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。

[請求項2] 請求項1に記載のポリ乳酸の分解方法であって、

 前記ポリ乳酸及び前記添加剤を前記反応装置に投入する前に、前記ポリ乳酸及び前記添加剤の少なくとも一方の含水率を調整する工程をさらに備える、ポリ乳酸の分解方法。

[請求項3] 請求項2に記載のポリ乳酸の分解方法であって、

 前記反応装置の投入口の湿度を制御することによって、前記ポリ乳酸及び前記添加剤の少なくとも一方の含水率を調整する、ポリ乳酸の分解方法。

[請求項4] 請求項3に記載のポリ乳酸の分解方法であって、

 前記投入口の湿度を調整する装置が噴霧装置である、ポリ乳酸の分解方法。

[請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載のポリ乳酸の分解方法であって、

 前記反応装置内の水分を測定する工程と、

前記測定した水分に基づいて、前記反応装置内の水分を調整する工程とをさらに備える、ポリ乳酸の分解方法。

[請求項6] 請求項5に記載のポリ乳酸の分解方法であって、
前記反応装置に投入する前記ポリ乳酸及び前記添加剤の少なくとも一方の含水率を調整することによって、前記反応装置内の水分を調整する、ポリ乳酸の分解方法。

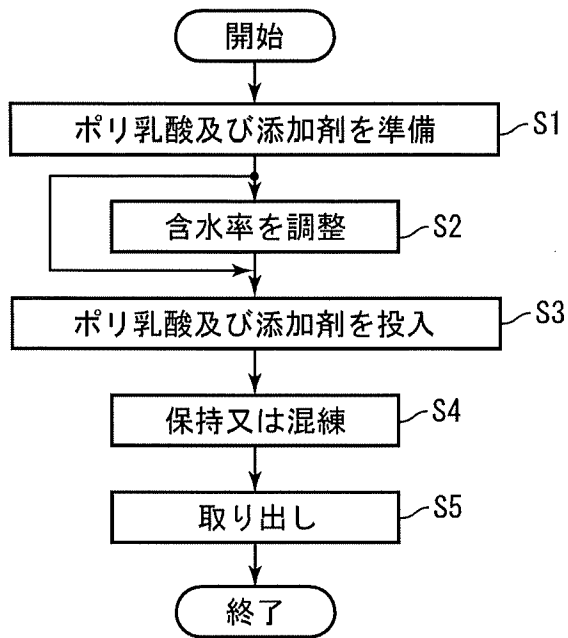
[請求項7] 請求項1～6のいずれか一項に記載のポリ乳酸の分解方法であって、
、
前記添加剤は、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、及び酸化マグネシウムからなる群から選択される1種、又は2種以上の混合物である、ポリ乳酸の分解方法。

[請求項8] 請求項7に記載のポリ乳酸の分解方法であって、
前記添加剤は、炭酸水素ナトリウムである、ポリ乳酸の分解方法。

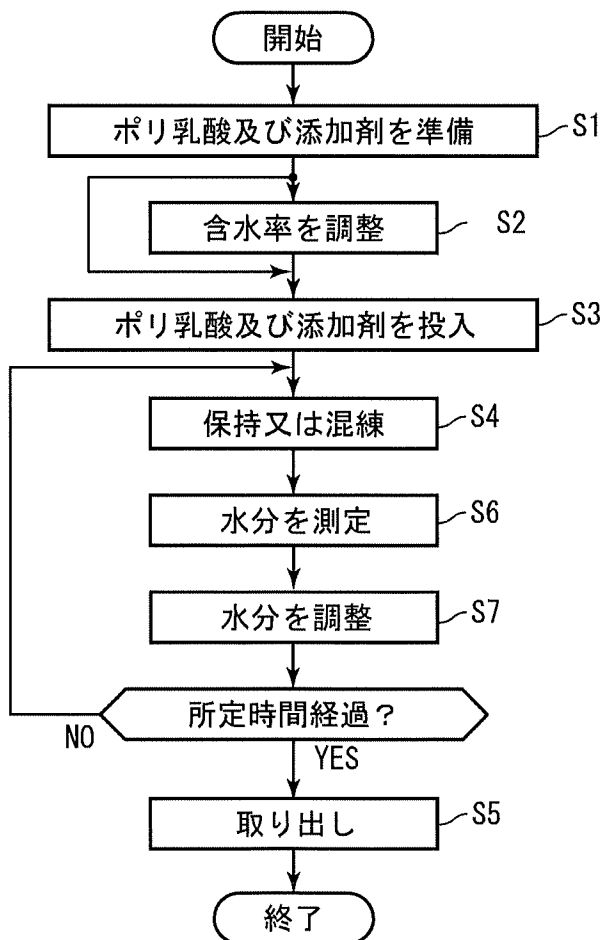
[請求項9] 請求項1～8のいずれか一項に記載のポリ乳酸の分解方法であって、
、
前記添加剤の量が、前記ポリ乳酸100質量部に対して0.2～20質量部である、ポリ乳酸の分解方法。
ただし、前記ポリ乳酸の質量及び前記添加剤の質量は、それぞれに吸着している水分の質量を含む質量とする。

[請求項10] 請求項1～9のいずれか一項に記載のポリ乳酸の分解方法であって、
、
前記保持又は混練する工程は、0.15～20.0MPaで1秒間以上保持又は混練する工程である、ポリ乳酸の分解方法。

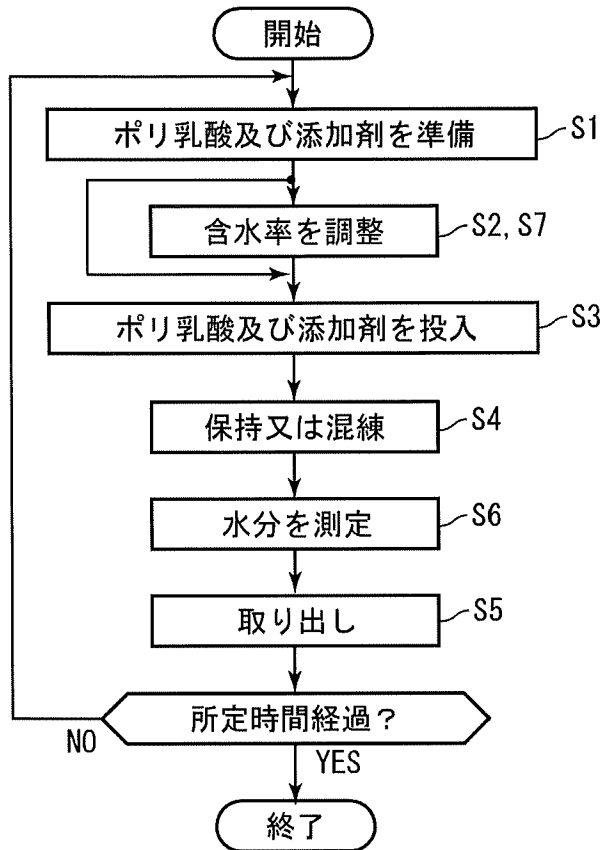
[図1]



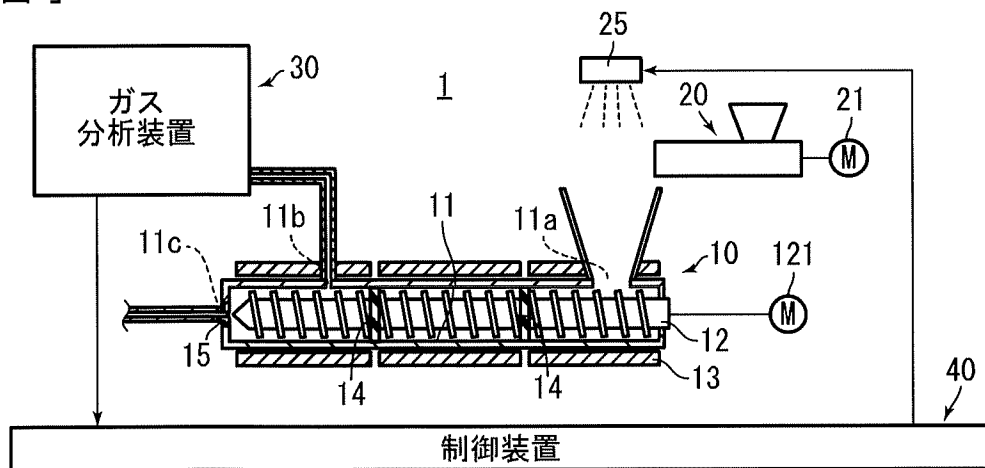
[図2]



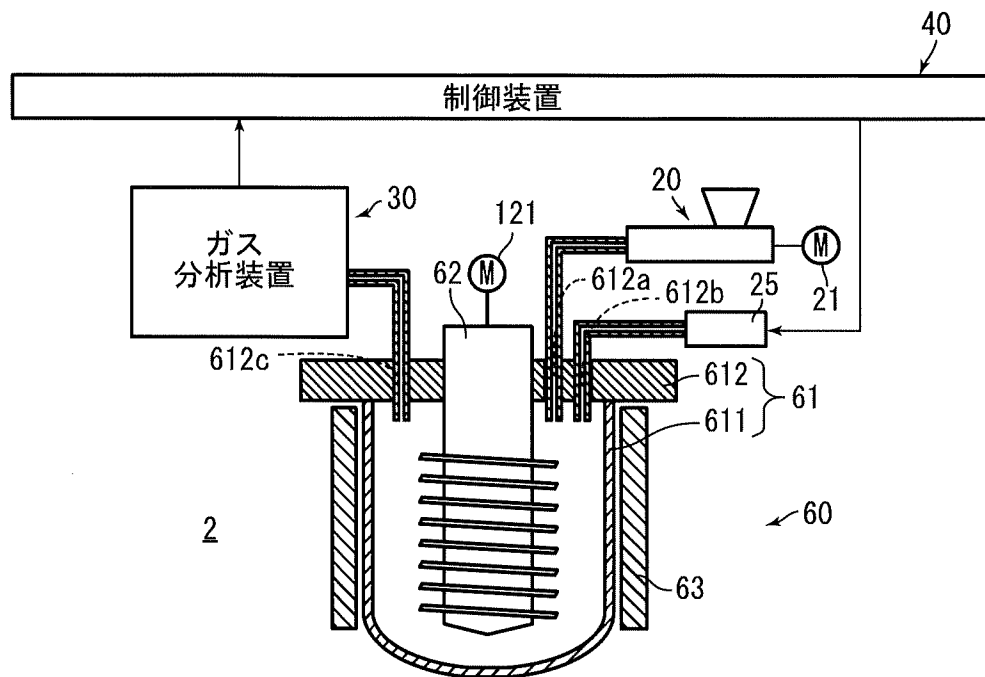
[図3]



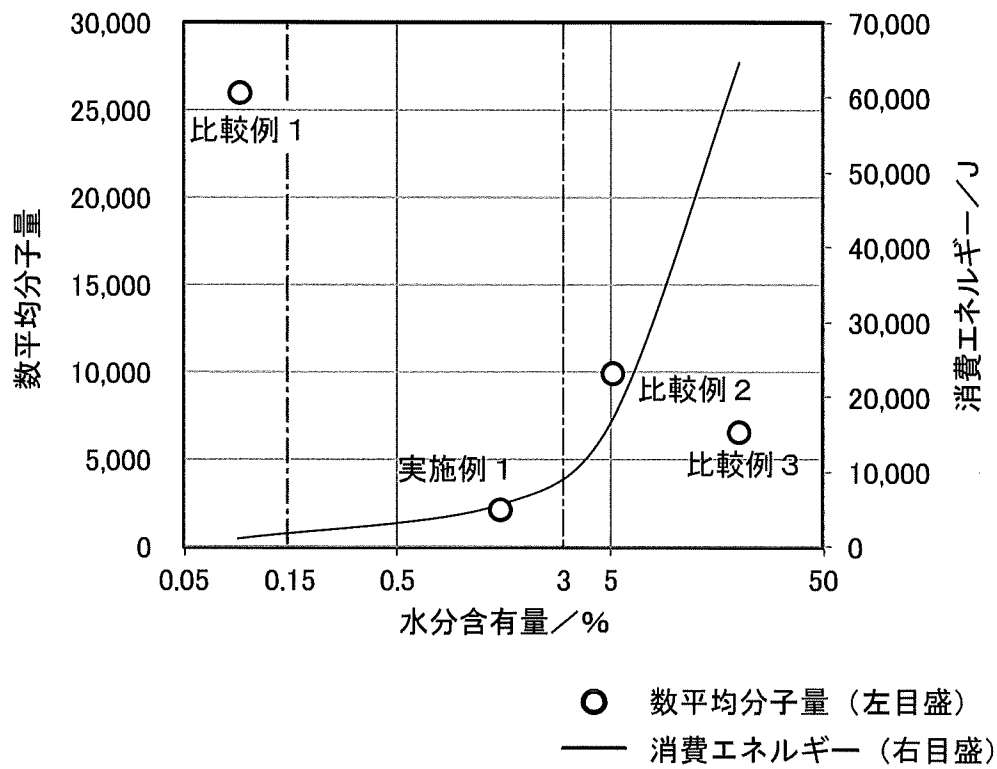
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/010352

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C08J11/10 (2006.01) i

FI: C08J11/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C08J11/10, C08G63/00, C07C51/00, C07D319/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020

Registered utility model specifications of Japan 1996-2020

Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 7-309863 A (THE JAPAN STEEL WORKS, LTD.) 28 November 1995, claim 1, paragraphs [0012], [0013], [0019], same as above	1, 7, 9, 10 2-6, 8
Y A	JP 2008-50351 A (VICTOR COMPANY OF JAPAN, LTD.) 06 March 2008, paragraphs [0021], [0023], same as above	1, 7, 9, 10 2-6, 8
A	JP 2007-224113 A (TEIJIN FIBERS LTD.) 06 September 2007, claims	1-10
A	WO 03/091238 A1 (NISHIDA, Haruo) 06 November 2003, claims	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
11.05.2020

Date of mailing of the international search report
19.05.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/010352

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2016/0311793 A1 (FUTERRO S.A.) 27 October 2016, claims	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/010352

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 7-309863 A	28.11.1995	(Family: none)	
JP 2008-50351 A	06.03.2008	(Family: none)	
JP 2007-224113 A	06.09.2007	(Family: none)	
WO 03/091238 A1	06.11.2003	AU 2003231482 A	
US 2016/0311793 A1	27.10.2016	WO 2015/086614 A1	
		EP 3080095 A1	
		CN 106414424 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08J 11/10(2006.01)i FI: C08J11/10		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08J11/10, C08G63/00, C07C51/00, C07D319/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） WPI		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 7-309863 A（株式会社日本製鋼所）28.11.1995（1995-11-28） 請求項1，段落0012，段落0013，段落0019	1，7，9，10
A	同上	2-6，8
Y	JP 2008-50351 A（日本ビクター株式会社）06.03.2008（2008-03-06） 段落0021，段落0023	1，7，9，10
A	同上	2-6，8
A	JP 2007-224113 A（帝人ファイバー株式会社）06.09.2007（2007-09-06） 特許請求の範囲	1-10
A	WO 03/091238 A1（西田治男）06.11.2003（2003-11-06） 請求の範囲	1-10
A	US 2016/0311793 A1（FUTERRO S.A.）27.10.2016（2016-10-27） 特許請求の範囲	1-10
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 11.05.2020		国際調査報告の発送日 19.05.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 齊藤 光子 4V 3030 電話番号 03-3581-1101 内線 3483

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/010352

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	7-309863	A	28.11.1995	(ファミリーなし)			
JP	2008-50351	A	06.03.2008	(ファミリーなし)			
JP	2007-224113	A	06.09.2007	(ファミリーなし)			
WO	03/091238	A1	06.11.2003	AU	2003231482	A	
US	2016/0311793	A1	27.10.2016	WO	2015/086614	A1	
				EP	3080095	A1	
				CN	106414424	A	