

Prof. dr hab. inż. Elżbieta Bociąga
Politechnika Częstochowska
Wydział Inżynierii Mechanicznej i Informatyki
Instytut Technologii Mechanicznych
Zakład Przetwórstwa Polimerów
42-201 Częstochowa, Al. Armii Krajowej 19c

Częstochowa, 17.07.2018 r.

Recenzja
rozprawy doktorskiej mgr inż. Krzysztofa Królikowskiego
pt. „Separacja mieszanin tworzyw polimerowych na podstawie różnicy
dwóch twardości”

Recenzja została opracowana na wniosek Rady Wydziału Inżynierii Mechanicznej Uniwersytetu Technologiczno-Przyrodniczego w Bydgoszczy z dnia 12 czerwca 2018 r., zgodnie z pismem Dziekana tego Wydziału Pana prof. dr hab. inż. Janusza Semprucha. Po zapoznaniu się z treścią przesłanej mi rozprawy stwierdzam, że mogę podjąć się opracowania jej recenzji. Jednocześnie oświadczam, że nie prowadziłam z Doktorantem wspólnych badań naukowych oraz że nie jesteśmy współautorami żadnej publikacji naukowej.

Zakres rozprawy

Recenzowana rozprawa doktorska mgr inż. Krzysztofa Królikowskiego obejmuje 170 stron. Składa się z 8 rozdziałów, poprzedzonych spisem ważniejszych oznaczeń i akronimów oraz wstępem, spisu cytowanej literatury i części zatytułowanej załącznik. Zawiera ponadto streszczenie rozprawy w języku polskim i angielskim. Spis cytowanej literatury obejmuje 96 pozycji, z których 6 zostało opracowanych przy współudziale Doktoranta.

W części wstępnej Doktorant przedstawił regulacje prawne obowiązujące w Polsce i krajach Unii Europejskiej w zakresie gospodarki odpadami, w tym również odpadami z tworzyw polimerowych. Wskazał na znaczenie recyklingu materiałowego tworzyw, w którym proces separacji składników odpadów jest etapem decydującym o jego efektywności.

Rozdział pierwszy jest poświęcony analizie literatury i aktualnego stanu techniki w zakresie zagadnień rozpatrywanych w rozprawie. Zawiera omówienie stosowanych obecnie sposobów separacji tworzyw polimerowych oraz przegląd opatentowanych metod i urządzeń do separacji. W rozdziale 1.3. opisano zagadnienia związane z oceną

twardości tworzyw polimerowych, bliżej przedstawiono dwie metody oznaczania twardości: metodę Shore'a i metodę kulkową.

W rozdziale drugim Doktorant opisał nowe urządzenie do separacji tworzyw na podstawie różnicy ich twardości, zastrzeżone w Urzędzie Patentowym w 2013r.

Na podstawie analizy literatury oraz wcześniejszych badań własnych Doktorant sformułował hipotezę badawczą oraz wyznaczył cele i zakres rozprawy (rozdział 3). Przedstawiony został program badań, który obejmował badania rozpoznawcze, modernizację stanowiska badawczego na podstawie wniosków z badań wstępnych oraz badania zasadnicze przy zastosowaniu zmodernizowanego stanowiska.

Opis przebiegu i wyników badań rozpoznawczych jest treścią rozdziału czwartego. Badania te dotyczyły określenia wpływu wybranych zmiennych procesu: siły nacisku igieł, prędkości obrotowej walców, warunków termicznych i udziału masowego segregowanej mieszaniny na efekty separacji. Wnioski z przebiegu i wyników badań rozpoznawczych posłużyły do opracowania zakresu modernizacji konstrukcji badawczego separatora igłowego (rozdział 5).

W rozdziałach szóstym i siódmym zaprezentowane zostały wyniki badań zasadniczych, w których określono wpływ zmiennych warunków procesu separacji (siły nacisku igieł, prędkości obrotowej walców, temperatury mieszaniny) na dokładność i efektywność separacji dziesięciu dwuskładnikowych mieszanin PVC, PET, PE, ABS i PP. W rozdziale 7.3. i 7.5 przedstawiono modele matematyczne opisujące efekty separacji, wyznaczone przy zastosowaniu programu Statistica 10.

Podsumowanie i wnioski końcowe z przeprowadzonych rozważań oraz badań eksperymentalnych zawiera rozdział ósmy.

Treść rozprawy jest zgodna z jej tematem, kolejność rozdziałów została ustalona prawidłowo. Praca zawiera liczne tabele, rysunki i fotografie. W załączniku zamieszczono 57 tabel z wynikami badań eksperymentalnych oraz obliczeń statystycznych. Cytowana literatura obejmuje krajowe i zagraniczne publikacje naukowe, akty prawne, patenty, normy oraz informacje zamieszczone na stronach internetowych.

Znaczenie tematyki rozprawy

Recenzowana rozprawa doktorska dotyczy aktualnej i ważnej problematyki związanej z zagospodarowaniem odpadów tworzyw polimerowych. Stosowane są różne sposoby postępowania z odpadami tych materiałów, takie jak składowanie, spalanie z odzyskiwaniem energii, niekiedy ponowne wykorzystanie elementów np. po ich naprawie, recykling chemiczny umożliwiający odzyskiwanie surowców oraz recykling materiałowy (mechaniczny), celem którego jest otrzymanie recyklatu przeznaczonego do ponownego przetwórstwa. Każdy z tych sposobów

zagospodarowania odpadów polimerowych ma zarówno zalety jak i wady. Składowanie jest najprostszą metodą, jednak w tym przypadku konieczne jest zapewnienie odpowiednio dużej powierzchni do przetrzymywania odpadów, przez długi okres związany z czasem degradacji tworzyw. Z kolei spalanie tworzyw powoduje emisję szkodliwych gazów do atmosfery, może być realizowane jedynie w specjalnych spalarniach. Recykling chemiczny jest prowadzony w ograniczonym zakresie. Najpowszechniejszym sposobem zagospodarowania odpadów tworzyw jest recykling mechaniczny, z uzyskiwaniem materiałów wtórnych. Recykling mechaniczny obejmuje szereg operacji, wśród których oddzielenie poszczególnych rodzajów tworzyw ze strumienia odpadów jest procesem trudnym, jednak koniecznym do uzyskania materiałów możliwych do wykorzystania w dalszym ich przetwórstwie. Separację tworzyw odpadowych na skalę przemysłową można prowadzić metodą ręczną bądź automatyczną, stosując np. skanowanie odpadów detektorami optycznymi, metody wykorzystujące różnicę gęstości tworzyw, właściwości hydrofilowych lub hydrofobowych, właściwości elektrostatycznych, temperatury topnienia i inne. Zwiększająca się ciągle, wraz ze zużyciem tworzyw, ilość odpadów wymusza działania, których celem jest doskonalenie metod separacji tworzyw, zarówno ze względów ekonomicznych jak i obciążenia dla środowiska. Zatem uzasadnione są badania w tym zakresie. W niniejszej rozprawie przedstawiono nowatorski sposób rozdziału mieszanin polimerowych na podstawie różnicy twardości ich składników. Zaprojektowane i wykonane urządzenie do separacji tworzyw oraz wyniki badań procesu separacji różnych mieszanin mają nie tylko znaczenie użytkowe, ale również wnoszą wkład w rozwój nauki w dyscyplinie budowa i eksploatacja maszyn.

Hipoteza badawcza i cele rozprawy

Hipoteza badawcza rozprawy została sformułowana następująco: „Różnicę twardości materiałów można skutecznie wykorzystać do rozdziału zmieszanych tworzyw polimerowych. Przypuszcza się, że skuteczność rozdziału zależy od siły nacisku igieł, prędkości obrotowej układu rozdzielającego oraz temperatury mieszaniny rozdzielanej”. Tak przedstawioną hipotezę uważam za merytorycznie poprawną.

Jako cel poznawczy rozprawy przyjęto przedstawienie aktualnego stanu wiedzy z zakresu metod separacji tworzyw polimerowych, dokonanie zgłoszenia patentowego nowej metody rozdzielania tworzyw w oparciu o różnicę ich twardości.

Kolejnym celem było przeprowadzenie badań eksperymentalnych efektywności separacji składników mieszanin dwu- i trójskładnikowych, przy wykorzystaniu dwóch wersji stanowiska badawczego: pierwszego stosowanego w badaniach rozpoznawczych oraz zmodyfikowanego w badaniach zasadniczych, w funkcji

zmiennych parametrów procesu separacji. Celem było również opracowanie modeli matematycznych badanych obiektów oraz weryfikacja osiągnięcia założonego celu poprzez sprawdzenie spełnienia zdefiniowanego kryterium skuteczności.

Założono również cel użyteczny, którym była budowa prototypowego stanowiska badawczego – separatora igłowego oraz określenie warunków skutecznego prowadzenia separacji.

Ocena merytoryczna rozprawy

Ciągły rozwój inżynierii materiałowej w zakresie tworzyw polimerowych, wytwarzanie materiałów spełniających coraz wyższe wymagania ich odbiorców, a także postęp w technologiach ich przetwarzania powoduje szybko zwiększające się zużycie tych materiałów. Zwiększone zapotrzebowanie na materiały polimerowe we wszystkich dziedzinach gospodarki skutkuje jednocześnie rosnącą ilością odpadów i koniecznością opracowania jak najbardziej efektywnych sposobów ich zagospodarowania. W procesie odzyskiwania tworzyw polimerowych w celu przeznaczenia ich do ponownego przetworstwa bardzo ważnym etapem jest skuteczna segregacja odpadów, umożliwiająca identyfikację i wyodrębnienie poszczególnych tworzyw z mieszaniny zawierającej różne materiały. Z tego względu można uznać tematykę badawczą opiniowanej rozprawy jako aktualną i zasadną.

W analizie literatury Doktorant przedstawił znane Mu metody separacji tworzyw polimerowych, począwszy od sortowania ręcznego i automatycznego dużych odpadów do metod, w których wykorzystuje się specyficzne cechy polimerów, takie jak gęstość, właściwości hydrofilowe lub hydrofobowe, właściwości elektrostatyczne, rozpuszczalność, temperaturę topnienia. Wskazał zalety i wady każdej z metod oraz możliwości ich wykorzystania do separacji różnych odpadów. Przedstawiony został ponadto przegląd 5 opatentowanych metod separacji odpadów.

Krótki rozdział 1.3 zawiera podstawowe informacje o twardości tworzyw polimerowych i najczęściej stosowanych metodach wyznaczania twardości.

W części rozprawy poświęconej analizie literatury Doktorant korzystał z 86 pozycji zamieszczonych w spisie literatury, z czego 43 opracowania zostały zacytowane we wstępie (str. 11-13). W cytowanej literaturze uwzględniono nowsze publikacje, z lat 2000-2017, ale również starsze, głównie polskie podręczniki. Kilka pozycji stanowią informacje podane na stronach internetowych – w takich przypadkach dobrze byłoby podać tytuł publikacji, ewentualnie autorów, a nie tylko adres strony. Brakuje podsumowania przeglądu literatury, określenia przesłanek, które skłoniły Doktoranta do podjęcia określonej tematyki rozprawy.

W rozdziale drugim opisano budowę i zasadę działania separatora igłowego, prototypowego urządzenia umożliwiającego rozdzielanie składników mieszaniny

tworzyw na podstawie różnicy ich twardości (zgłoszenie patentowe PL 2013/405364 [87]). Urządzenie to jest wyposażone w układ dwóch walców, z których jeden, tzw. przebijający, ma igły rozmieszczone w rzędach. Igły wbijają się, przy odpowiednio dobranej sile nacisku, tylko w elementy z tworzywa o mniejszej twardości. Układy zbierające i zgarniające kierują tworzywa o różnej twardości do oddzielnych pojemników. Urządzenie to wykorzystano w badaniach rozpoznawczych (rozdział 4).

Hipoteza badawcza rozprawy i cele rozprawy są treścią rozdziału 3. Wymienione cele rozprawy podzielono na poznawcze i użytkowe (rozdział 3.2). Do celów poznawczych zaliczono analizę stanu wiedzy z zakresu metod separacji tworzyw, przeprowadzenie badań eksperymentalnych przy różnych warunkach separacji, opracowanie modeli matematycznych badanych obiektów oraz weryfikację osiągnięcia założonego celu poprzez sprawdzenie spełnienia kryterium skuteczności. Wydaje się, że cel określony jako „przeprowadzenie badań eksperymentalnych” nie można nazwać celem poznawczym, raczej należało określić co chciano wykazać w badaniach. Celem użytkowym było zbudowanie prototypowego separatora igłowego oraz określenie warunków skutecznego prowadzenia procesu separacji.

Badania eksperymentalne podzielono na etapy, obejmujące badania rozpoznawcze realizowane na prototypowym separatorze oraz zasadnicze z wykorzystaniem zmodernizowanego urządzenia. Szczegółowy plan badań został zamieszczony na rys. 3.1.

W badaniach rozpoznawczych (rozdział 4) określono wpływ wielkości siły nacisku igieł, prędkości obrotowej pary walców, temperatury mieszaniny oraz udziału masowego składników mieszaniny na efekty separacji, oceniane za pomocą dwóch wskaźników, określonych jako dokładność separacji D_{XYZ} oraz efektywność separacji E_{XYZ} . Do badań wytypowano dwuskładnikowe mieszaniny PP/PS, o różnym udziale masowym jej składników oraz mieszaninę PP/ABS o udziale składników 50/50 %. Wykazano, że udział składników mieszaniny nie ma istotnego wpływu na efekty separacji, natomiast istotne są pozostałe trzy parametry. Wnioski z badań rozpoznawczych pozwoliły na ocenę poprawności działania separatora i następnie przeprowadzenie jego modernizacji poprzez wprowadzenie rozwiązań konstrukcyjnych zapewniających 100 % trafianie igieł na elementy mieszaniny, wbijanie się igieł w te elementy pod kątem prostym oraz równomierne ogrzewanie mieszaniny.

Przed przystąpieniem do badań zasadniczych wykonano wstępną ocenę efektywności separacji mieszaniny PP/PVC przy zastosowaniu igieł o zmiennej średnicy, w zakresie od 0,2 do 0,4 mm. Stwierdzono, że średnica igieł nie ma znaczącego wpływu na dokładność i efektywność separacji i do dalszych badań wytypowano igły o średnicy 0,3 mm.

Poprawność działania zmodernizowanego separatora oceniano na podstawie rozdzielania trójskładnikowej mieszaniny HDPE/PET/PVC. Separację składników mieszaniny prowadzono w dwóch etapach. W pierwszym etapie separowano HDPE, w temperaturze 24 °C, przy zmiennej sile nacisku igieł i prędkości obrotowej układu rozdzielającego, natomiast w drugim składniki o zbliżonej twardości PET/PVC z mieszaniny tworzyw pozostałej po pierwszym etapie, ogrzanej do temperatury 65 °C (rozdział 5.3). Stwierdzono, że separacja składników mieszaniny na podstawie różnicy twardości, przy wykorzystaniu zaprojektowanego i wykonanego urządzenia, jest efektywnym sposobem rozdzielania tworzyw. Wyniki tych badań oraz badań rozpoznawczych Doktorant opublikował we wcześniejszych pracach [88, 89, 90].

Rozdział szósty obejmuje istotną część rozwiązywanego zagadnienia naukowego, sformułowanego w hipotezie rozprawy. Opracowano plan eksperymentu dla trzech zmiennych wejściowych procesu separacji dziesięciu dwuskładnikowych mieszanin, których wartości zmieniały się w zakresach: siła nacisku igieł 3 ÷ 17 N, prędkość obrotowa układu rozdzielającego 15 ÷ 35 min⁻¹, temperatura mieszaniny rozdzielanej 30 ÷ 70°C. Badano rozdzielanie mieszanin PVC, PET, PE, ABS i PP, o udziale masowym poszczególnych składników 50/50 %. Wyznaczono ponadto modele matematyczne obiektu badań, w postaci wielomianu drugiego stopnia, przy zastosowaniu oprogramowania Statistica 10. Obszerne wyniki tych badań zamieszczono w tabelach 7.1 ÷ 7.20. Wskaźniki dokładności (D_{XYZ}) oraz efektywności (E_{XYZ}) separacji składników poszczególnych mieszanin klasyfikowano według trypoziomowej skali skuteczności (S) procesu, przy czym największą skuteczność oznaczono symbolem SIII, średnią SII, a najmniejszą SI. Wykazano możliwość prowadzenia separacji na podstawie różnicy twardości tworzyw dla 9 z 10 badanych mieszanin. Najwyższą skuteczność separacji uzyskano w przypadku mieszaniny ABS/PE, dobrą dla mieszanin PET/ABS, PVC/ABS, PE/PP, PVC/PE, PET/PE. Natomiast wyniki uzyskane dla mieszaniny PVC/PP nie osiągnęły żadnego z założonych poziomów skuteczności. Sformułowano wnioski o zależności pomiędzy różnicą twardości składników a dokładnością i efektywnością separacji, wskazując lepsze efekty rozdzielania tworzyw znacznie różniących się twardością. Drugą cechą tworzyw istotną w tym procesie jest temperatura mięknięcia. Stwierdzono, że w przypadku składników mieszaniny o małej różnicy twardości, ale dużej różnicy temperatury mięknięcia (np. PET/ABS oraz PVC/ABS) rozdzielanie tworzyw można prowadzić skutecznie w wyższej temperaturze 50°C ÷ 70°C. Tłumaczono to możliwym zwiększeniem różnicy twardości tych tworzyw w wyższej temperaturze. Szkoda jednak, że nie przeprowadzono pomiarów twardości w podwyższonej temperaturze.

Celem badań było wyznaczenie wpływu wybranych wielkości: siły nacisku igieł, prędkości obrotowej układu rozdzielającego, temperatury mieszaniny, natomiast w podsumowaniu wyników eksperymentu (str. 91-94) brak jest oceny wpływu tych wielkości na efekt rozdzielania tworzyw. Podane są tylko ich wartości, przy których

osiągnięto określony poziom skuteczności, dla poszczególnych mieszanin. Czy nie można sformułować ogólnych zaleceń odnośnie do wartości tych zmiennych procesu?

Rozszerzeniem badań eksperymentalnych jest opracowanie modeli matematycznych opisujących proces separacji składników mieszanin, poparte sprawdzeniem zgodności danych modelowych z wynikami badań eksperymentalnych (rozdział 7.5). Na podstawie analizy tych modeli wykazano, że najbardziej istotnymi wielkościami wejściowymi procesu są siła nacisku igieł i temperatura mieszaniny oraz interakcja między nimi. Natomiast mniej istotna jest prędkość obrotowa układu rozdzielającego. Opracowane modele matematyczne oraz ich analiza są istotne ze względów poznawczych oraz z uwagi na sformułowane cele pracy. Nasuwa się jednak pytanie, czy na ich podstawie można np. przewidzieć skuteczność separacji różnych mieszanin.

Zaprezentowane badania eksperymentalne oraz analiza ich wyników, a także wyznaczone modele matematyczne opisujące proces separacji mieszanin tworzyw polimerowych były podstawą do sformułowania końcowych wniosków poznawczych, potwierdzających słuszność przyjętego celu pracy oraz stanowiących wyczerpującą weryfikację hipotezy rozprawy.

Sformułowano ponadto wnioski o charakterze użytkowym, stwierdzając, że zaproponowany nowatorski sposób separacji składników mieszaniny tworzyw polimerowych na podstawie różnicy ich twardości może być skuteczną, stosowaną na skalę przemysłową metodą rozdzielania tworzyw. Opracowana konstrukcja prototypowego separatora igłowego oraz badania eksperymentalne wykonane przy jego wykorzystaniu mogą być pomocne przy projektowaniu urządzenia przemysłowego.

Uzyskane wyniki badań są oryginalne i stanowią znaczący wkład w rozwój wiedzy o procesach recyklingu tworzyw polimerowych. Jest to praca o znaczącej wartości poznawczej i użytkowej. Doktorant wykazał się umiejętnością planowania i prowadzenia eksperymentu oraz dobrą znajomością zagadnień teoretycznych niezbędną do realizacji założonych celów, co świadczy o jego dobrym przygotowaniu do samodzielnej pracy naukowej.

Uwagi szczegółowe

Po zapoznaniu się z rozprawą nasuwają się następujące uwagi krytyczne:

- str.8-9: w spisie oznaczeń podano: FF - żywica fenolowo-formaldehydowa oraz PF - żywica fenolowo formaldehydowa; zamiast gadolinum oxide można było podać polską nazwę - tlenek gadolinu, tak jak przy pozostałych materiałach.

- str. 11: podano wartość globalnej produkcji tworzyw polimerowych w 2014 r., a są już nowsze dane.

- str. 33, linie 9-10 od dołu: „Twardość zależy także od grubości próbki oraz rodzaju podłoża na jakim dokonywany był pomiar.” Pomiar twardości jest określony normą, podającą wymiary próbek i warunki prowadzenia pomiarów.

- str. 51, 52, rys.5.1: lepiej byłoby zamieścić schemat stanowiska zamiast zdjęcia – łatwiej byłoby zrozumieć działanie separatora.

- str. 53, p. 5.2 ”Pomiar siły nacisku oraz wybór kształtu i średnicy igieł” – zmieniano tylko średnicę igieł.

- str. 53, 54: napisano, że rozdzielana mieszanina miała postać kwadratów lub prostokątów o grubości 2 mm; były to raczej elementy w postaci prostopadłościanów lub płytek o wymiarach 17x17x2 mm.

- str. 54, 55, podpisy pod rysunkami 5.3 ÷ 5.6: „Przebieg zmian ... w funkcji siły nacisku o różnej średnicy igieł” – czy siła nacisku może mieć różną średnicę igieł?

- str. 56, tabela 5.1, rys. 4.1, 4.2, 4.7-4.10, w opisie wyników: używa się określenia „siła nacisku igieł”, podając jej jednostkę N/mm²; jednostką siły jest N.

- str. 56, tabela 5.1: co to jest siła nacisku urządzenia?

- str. 57, rys. 5.7: w opisie na osi odciętych powinna być prędkość obrotowa; pokazana jest jedna linia – dla jakiej siły nacisku? Brak krzywych wyznaczonych przy różnej sile nacisku igieł.

- str. 90, tabela 7.21: poziomy skuteczności lepiej byłoby określić dla wartości D_{XYZ} oraz E_{XYZ} w określonych zakresach, a nie dla konkretnych wartości, np. SI dla $D_{XYZ} < 60$, SII dla $D_{XYZ} = 60-80$, a SIII dla $D_{XYZ} > 80$.

- Tytuł rozprawy brzmi „Separacja mieszanin tworzyw polimerowych na podstawie różnicy dwóch twardości” – w tytule niepotrzebne słowo „dwóch”; co w przypadku rozdzielania trzech składników w mieszaninie?

Przedstawione uwagi krytyczne nie obniżają jednak merytorycznej wartości rozprawy, która zawiera wyniki ciekawych, obszernych i pracochłonnych badań.

Wniosek końcowy

Recenzowana rozprawa doktorska ma charakter oryginalnej pracy naukowej, odznacza się szeregiem wartościowych osiągnięć poznawczych z zakresu recyklingu tworzyw polimerowych. Zagadnienia poruszane w rozprawie są aktualne i ważne zarówno z naukowego jak i praktycznego punktu widzenia.

Opracowanie nowego sposobu rozdzielania składników mieszanin polimerowych na podstawie różnicy ich twardości, zbudowanie nowatorskiego separatora igłowego oraz obszerne badania wpływu warunków separacji na efekty procesu stanowią znaczący wkład w rozszerzenie wiedzy z zakresu jednego z najważniejszych etapów

zagospodarowywania odpadów polimerowych. Wyniki badań stanowią cenny materiał źródłowy dla firm przemysłowych zajmujących się recyklingiem tworzyw.

Uważam, że recenzowana praca spełnia warunki stawiane rozprawom doktorskim, zgodnie z Ustawą o stopniach naukowych i tytule naukowym. W związku z powyższym stawiam wniosek do Rady Wydziału Inżynierii Mechanicznej Uniwersytetu Technologiczno-Przyrodniczego w Bydgoszczy o przyjęcie rozprawy mgr inż. Krzysztofa Królikowskiego pt. „Separacja mieszanin tworzyw polimerowych na podstawie różnicy dwóch twardości” i dopuszczenie jej do publicznej obrony.



Prof. dr hab. inż. Elżbieta Bociaga