

2025年度 JPECフォーラム

触媒分解によるケミカルリサイクルプロジェクトの成果

2025年5月13日

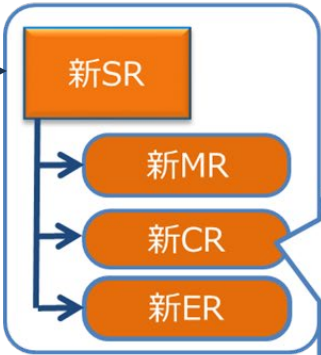
早稲田大学
松方正彦

研究全体の概要

CR適合型プラスチック開発

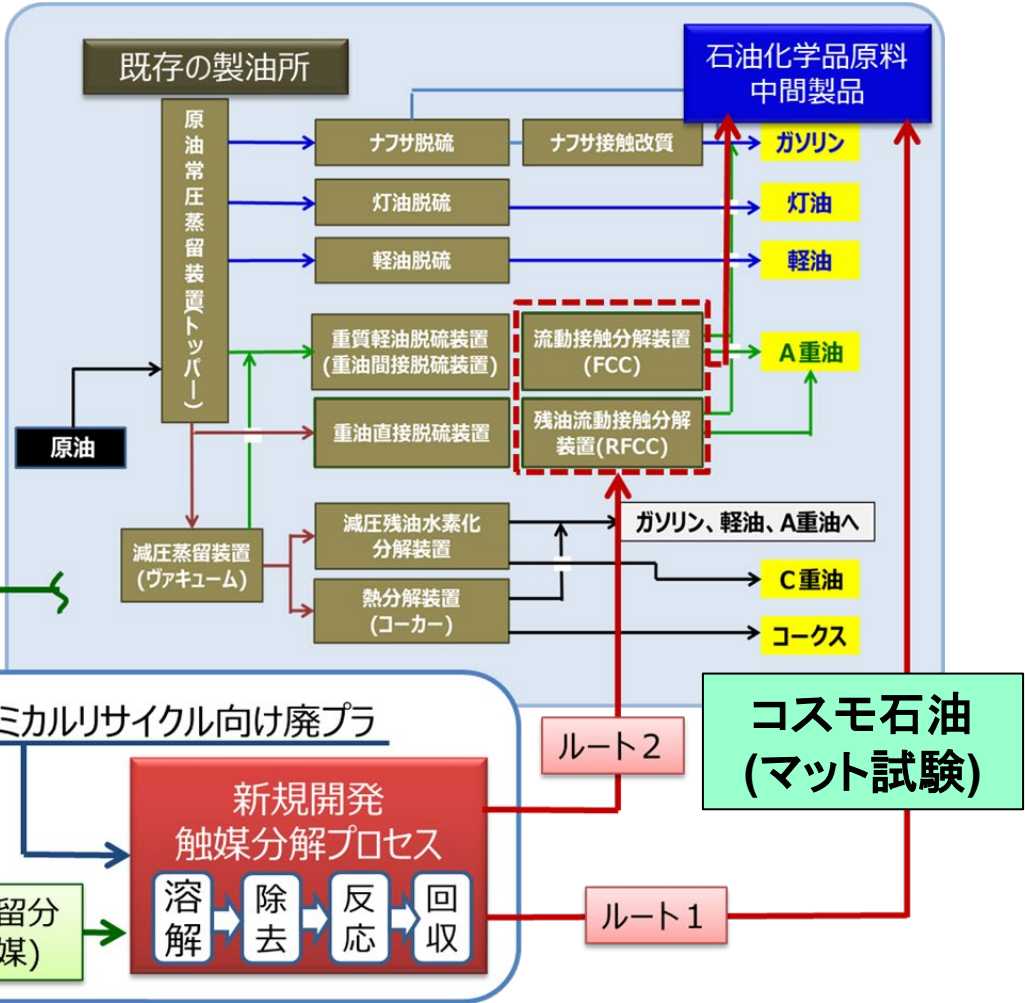


DNP
(ケミカルリサイクルに適した包装容器の開発)

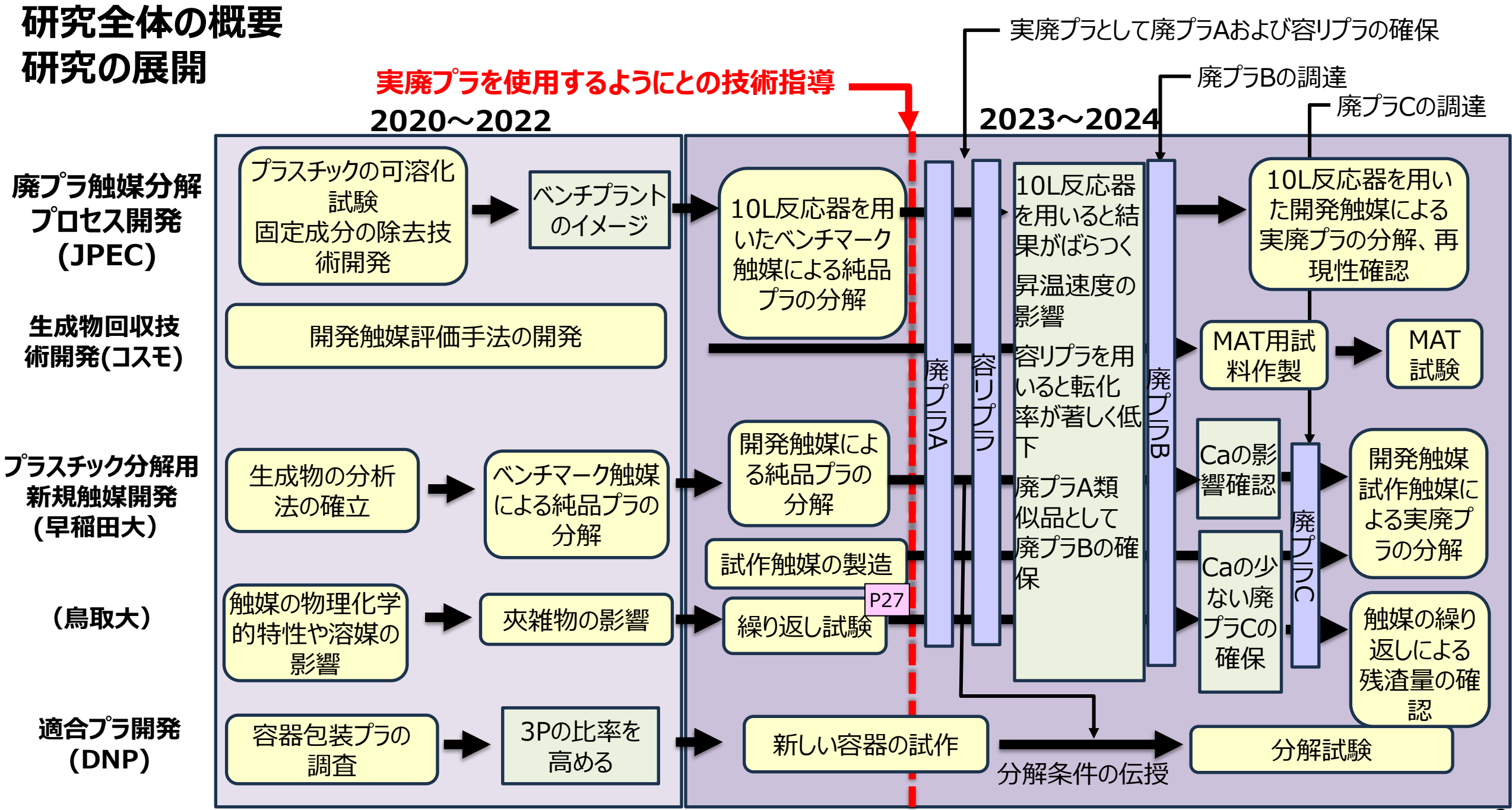


JPEC
(プロセス設計, 開発触媒の検証)

早稲田大学, 鳥取大学
(新規触媒開発)



研究全体の概要 研究の展開

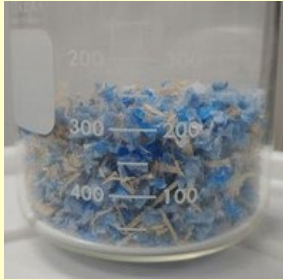


使用したプラスチック試料

プラスチック純品試料

	Mw	Mn	Mw/Mn	グレード
HDPE	340,000	25,000	13.0	中空成形
LDPE	215,638	66,002	12.985	Sigma Aldrich
PP	370,000	32,000	12.0	射出成型
PS	210,000	15,000	14.0	標準 (JPEC)

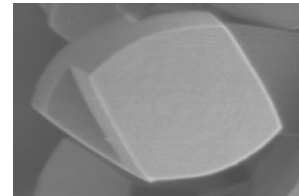
廃プラスチック試料

	産廃プラA	産廃プラB	産廃プラC	容リプラ
PE (%)	63.2	62.4	64	62
PP (%)	21.1	21.2	20	30
PS (%)	15.8	16.4	16	1.7
PET (%)				0.3
不溶分 (%)				6
	PE(軟質フィルム,ブルーシート,硬質ボトル) PP(フレコンバック) PS(発泡スチロール)	PE(軟質フィルム,ブルーシート,硬質ボトル) PP(フレコンバック) PS(発泡スチロール)	PE(軟質フィルム,硬質ボトル) PP(養生シート,硬質容器) PS(発泡スチロール)	光学選別工程で回収し、破碎、洗浄、比重選別、圧搾脱水したもの。
			ブルーシート・フレコンバッグを除いた産廃 	

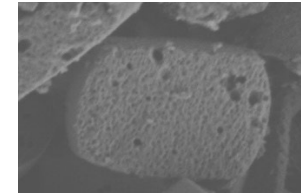
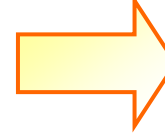
プラスチック分解触媒開発のコンセプト

アルカリ水溶液処理による

ゼオライトの階層構造化
(ミクロ、メソ孔性の両方を付与)
Hierarchical zeolite

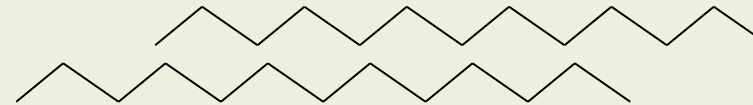
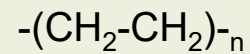


階層構造化



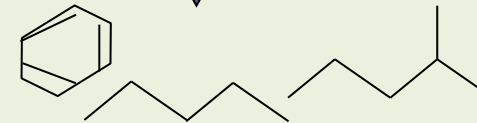
第1ステップ プラスチックの分解(低分子化)

- ・ゼオライトの外表面(近傍)における分解



第2ステップ 基礎化学品(原料・中間製品等)の生成

- ・ゼオライトのミクロ細孔内酸点での反応



実験に使用した触媒

東ソー社製	Si/Al	比表面積 (m ² /g)	外表面積 (m ² /g)	ミクロ孔体積 cm ³ /g	メソ孔体積 cm ³ /g	
931-HOA	14	638	105.9	0.207	0.0773	ベンチマーク触媒

協力会社製			Si/Al	比表面積 (m ² /g)	外表面積 (m ² /g)	アルカリ処理	
早稲田大学	鳥取大学	JPEC					
MKB-136	MKB-141		23	951	118	0.03M, 60℃, 10 min	開発触媒
MKB-137	MKB-142		24	643	106	0.02M, 80℃, 10 min	
		MKB-143	25	613	74	0.02M, 80℃, 10 min	
MKB-146	MKB-147	MKB-148	25	622	102	0.02M, 80℃, 10 min	
MKB-152			25.1	541	103	0.03M, 60℃, 10 min	試作触媒
MKB-152			16.8	682	254	0.1M, 60℃, 10 min	

プラスチックの融点による触媒分解プロセス処理の難易度イメージ

1, 本プロセスはAグループを対象

忌避物質、夾雑物（充填材など）

を含まない原料を対象に開始

2, Bグループのプラスチックも存在比率が無視できず、充填材も相応に含まれている

3, これらの混入にも対処できるプロセス開発を目指す

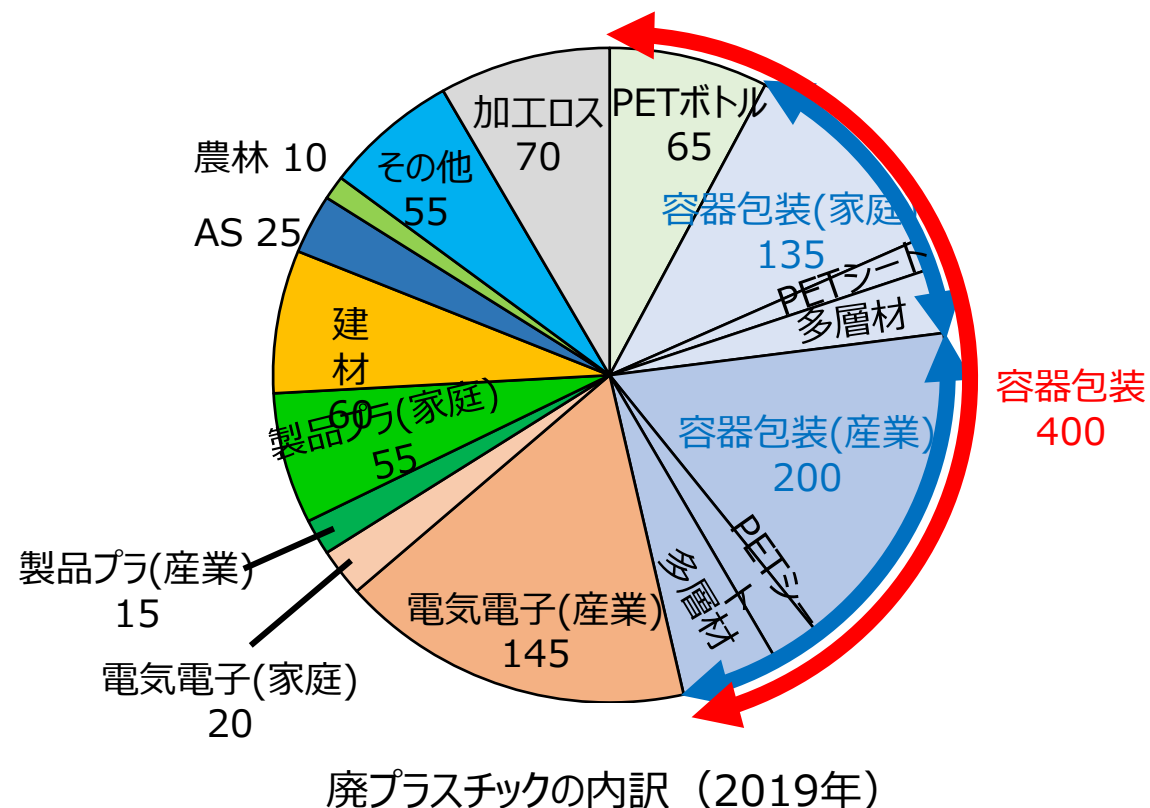
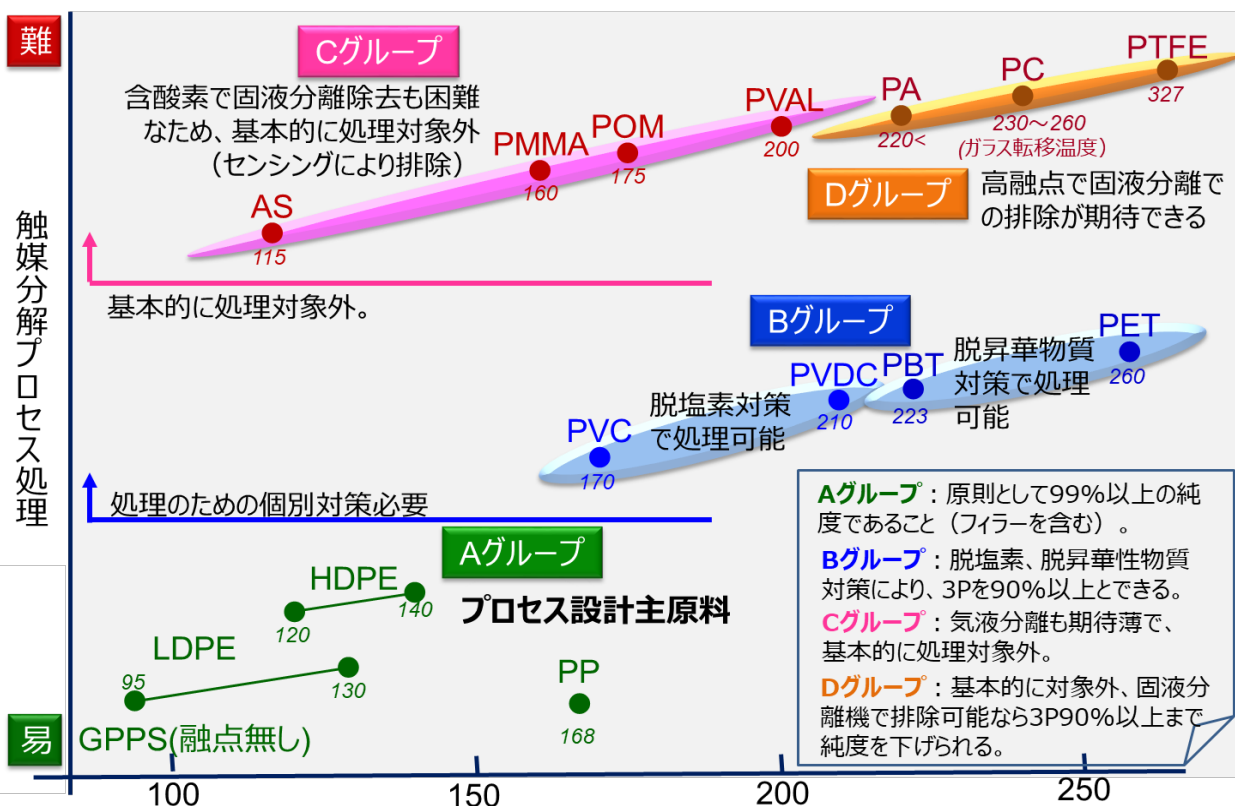
1, ミニパイロットを導入し、以下の実験結果をパイロットプラントの設計に反映

a)PVC系、PET系の触媒分解挙動

b)充填材が触媒分解反応に及ぼす影響

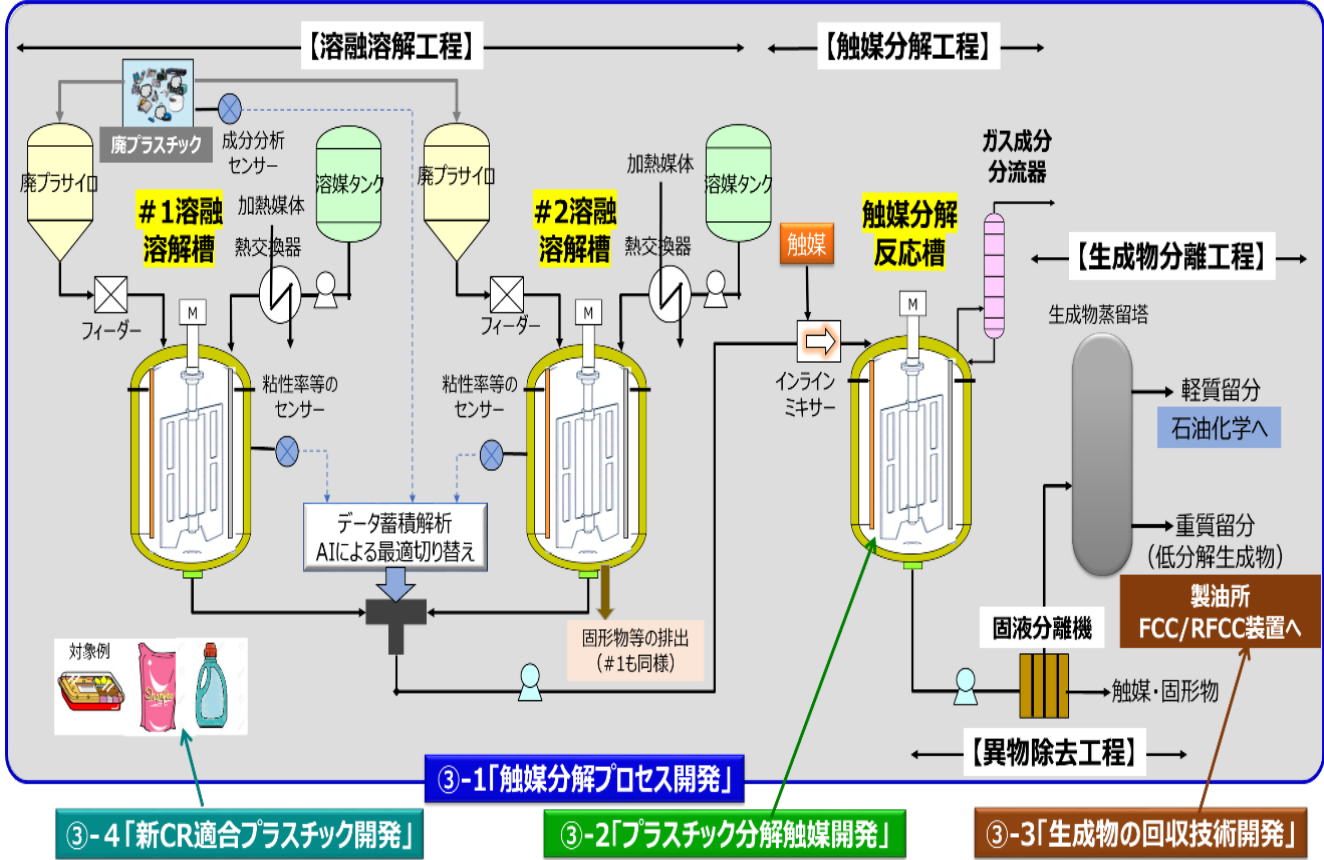
c)PA（ナイロン）の触媒分解反応挙動

2, 研究開発「新CR適合プラ開発」において、PAの使用比率低下を進め、その効果を評価



触媒分解プロセス開発（JPEC）

- ・本プロセスを特徴づけるエンジニアリング上のポイントは、a)溶融溶解槽は2基の切り替え方式（スウィング方式）を採用、b)反応器はスラリー床を採用、c)溶媒異物除去（固液分離）装置は反応器下流に設置、の3点
- ・分散媒による平均粒径の違いは酸化チタンではほとんどないが、タルクではエタノール<n-ヘキサデカン<1-MNの順番



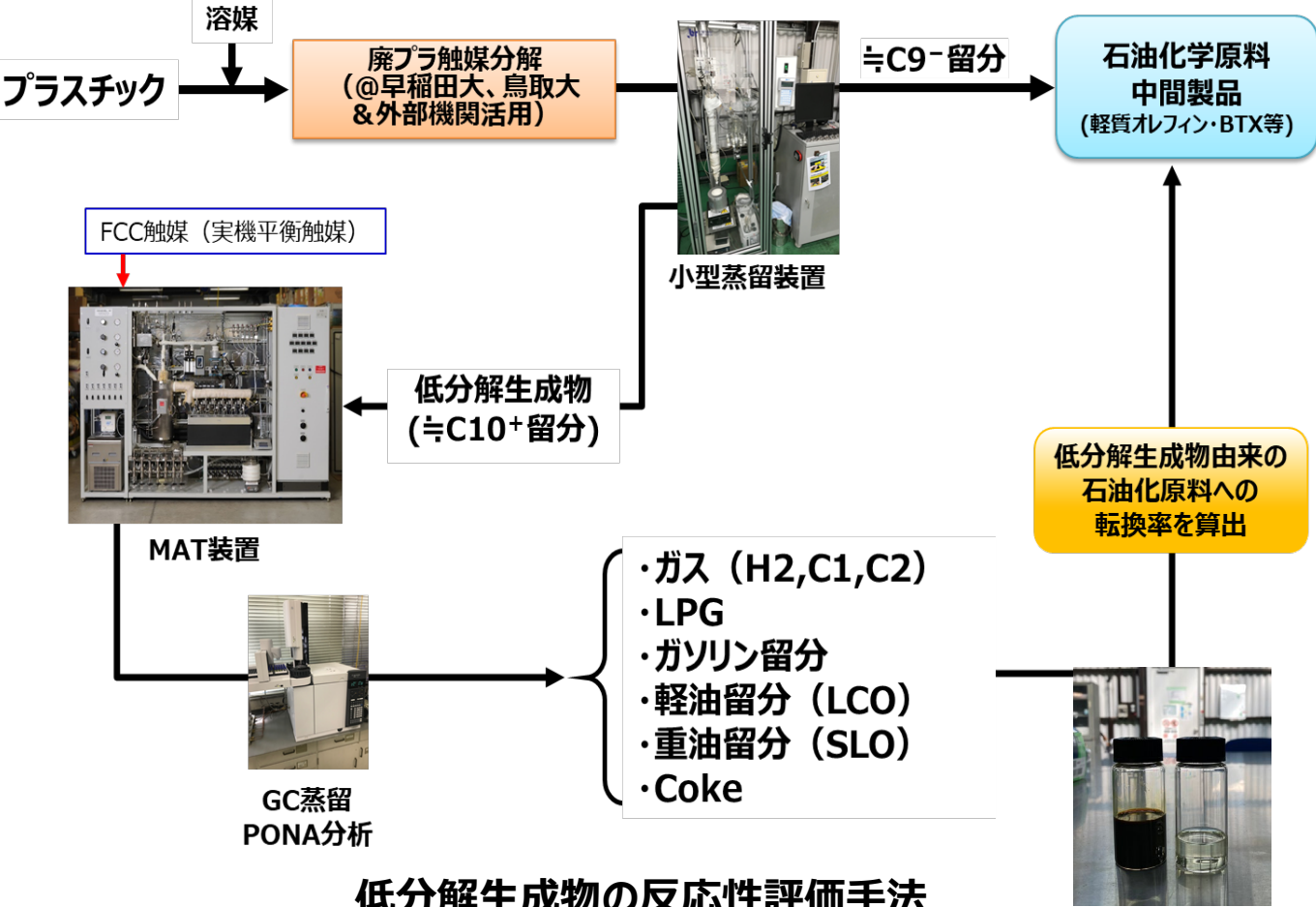
充填材の粒径分布測定

供試サンプル*1	測定対象	各種分散媒中での平均粒径D ₅₀ *2 [μm]			考察等
		イタノール	1-メチル2-プロパノール	n-ヘキサデカン	
TiO ₂ 単体	TiO ₂	0.42	0.53	0.54	◇配合プラや分散媒の影響を受けず、殆ど同じ粒径
GPPS&TiO ₂ *3		0.52	0.54	0.53	
HDPE&TiO ₂ *3		0.53	0.52	0.55	
LLDPE&TiO ₂ *3		0.52	0.54	0.54	
PP&TiO ₂ *3		0.52	0.53	0.55	
タルク単体		14.7	17.7	15.1	
GPPS&タルク*3	タルク	13.4	18.2	16.8	◇分散媒の影響が多少あり、1-MNが最大の傾向あり ◇但し、n-C16との差異は僅か
HDPE&タルク*3		12.2	16.5	15.1	
LLDPE&タルク*3		13.8	17.4	16.1	
PP&タルク*3		12.1	15.7	15.1	
実廃プラ (比重<1.00) *3*4		2.9	1.8	4.9	
実廃プラ (比重: 1.14~1.25) *3*4	充填材	9.1	17.6	11.4	◇酸化チタンより小さく、タルクより大きい充填材は含まれていないと推測
ベンチマーク触媒	触媒	3.2	3.4	4.2	

パイロットプラント概念設計

生成物の回収技術開発（コスモ石油）

- ・プラスチック触媒分解油から重質油留分（低分解生成物）に対し、MAT評価による評価手法を整備・構築
- ・ヘキサデカンを溶媒としたPEの触媒分解油（早大サンプル）から得られた低分解生成物は、石油系に比較してFCC分解性はやや低い、懸念されたコーク生成や生成物性状には大きな違いは認められなかった



低分解生成物の反応性評価手法

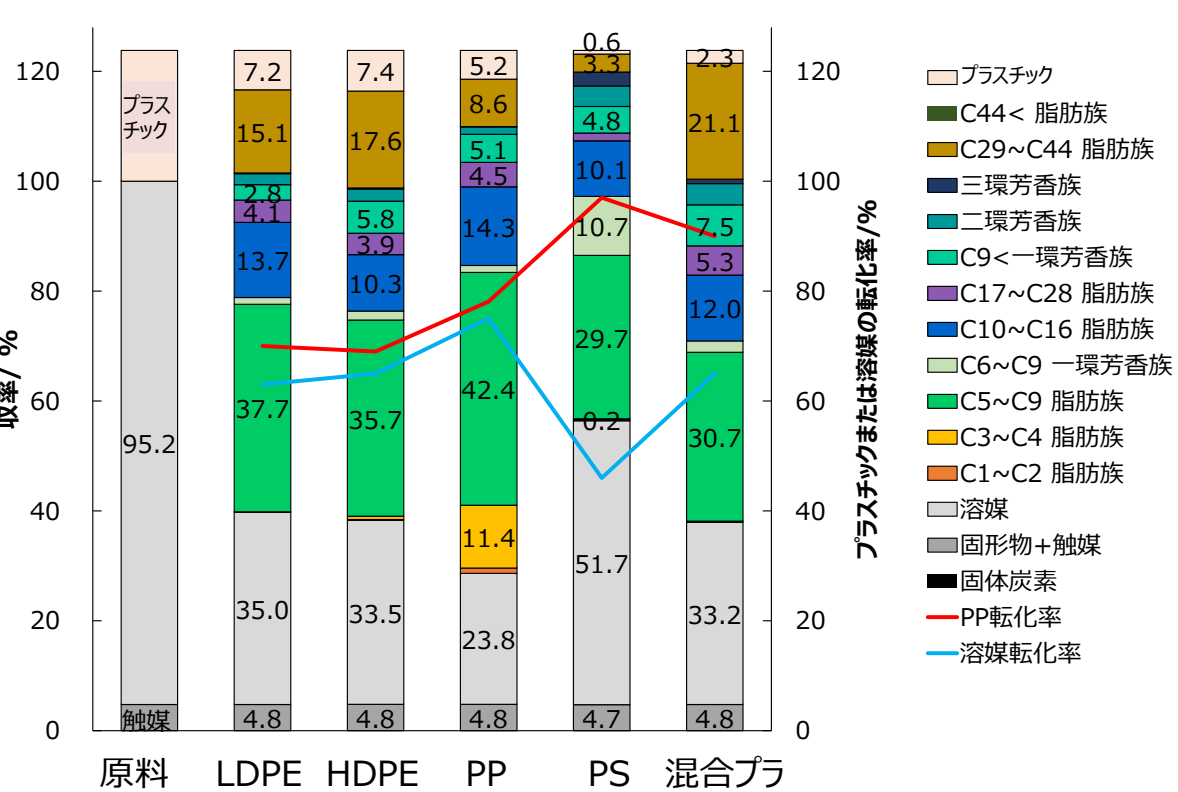
プラスチック分解油@早大
（左：低分解生成物 右：C9-留分）

低分解生成物のMAT評価結果

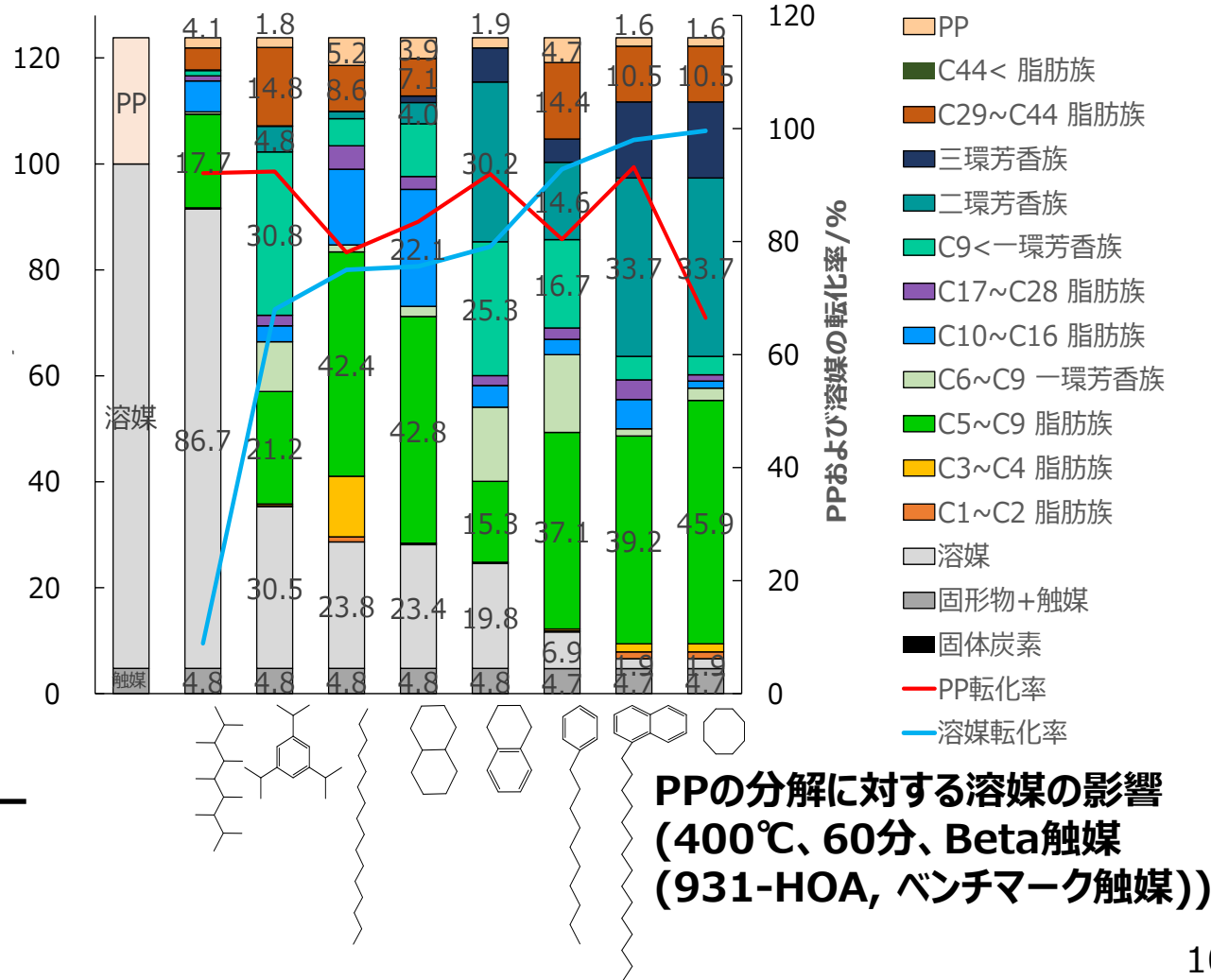
	早稲田大サンプル （低分解生成物）		一般的な石油系
Temp.(°C)	510		
Catalyst-to-Oil (wt/wt)	5.0		
Conv., wt%	53.5		71.5
Dry Gas(C1-2)	1.9		1.9
LPG(C3-4)	14.0		18.3
ナフサ留分(C5-190°C)	34.0		46.5
軽油留分(190-350°C)	41.1		20.8
重油留分(350°C+)	5.4		7.8
コーク	3.6		4.8
TOTAL	100.0		100.0
ナフサ留分PONA分析			
RON-GC	92.3		92.2
Density (g/cm3)	0.727		0.732
n-Para (vol%)	3.8		3.1
i-Para	36.2		38.0
Olefin	33.0		26.8
Naphthene	3.5		7.5
Aroma	23.5		24.6

プラスチック分解触媒開発（早稲田大、鳥取大）

- ・GC-FID、蒸留GC、GC-GC-MS、GPC、高温GPC、TG-DTAを用い、生成物の97%以上を同定・定量することに成功
- ・n-ヘキサデカン溶媒中、触媒(Beta)を添加すると、PEやPPは溶媒と同程度に分解し、PSはほぼ完全に分解
- ・Beta触媒を用いた場合、溶媒の分子径が小さくなるに従って分解率が増大



各プラスチックをn-ヘキサデカン中Beta触媒(931-HOA, ベンチマーク触媒)を用いて分解した場合の生成分布(400℃、60分)



PPの分解に対する溶媒の影響(400℃、60分、Beta触媒(931-HOA, ベンチマーク触媒))

新CR適合型プラスチック開発 (DNP)

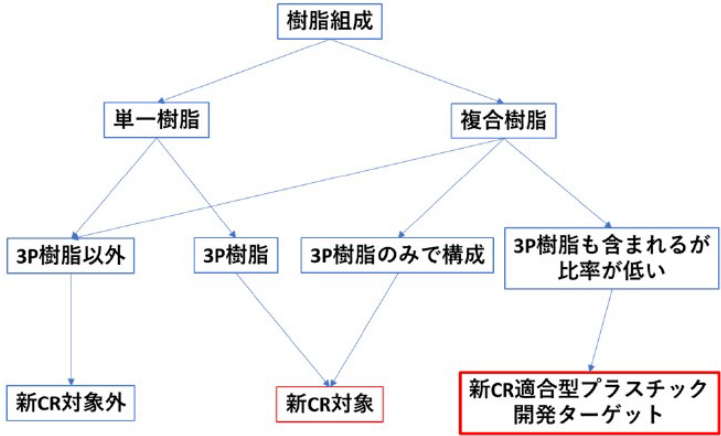
- ・プラスチック製容器包装の3 P樹脂の含有比率、副資材（インキなど）の使用状況、アルミニウムや紙などの使用量を調査
- ・複合樹脂から成り、3 P比率を高めることで新CRによって処理できるようになり、さらに転換率の向上も期待できることから新CR適合型プラスチック開発のターゲットとして適切

調査対象における品種別重量比率（@2019fy、出荷量）

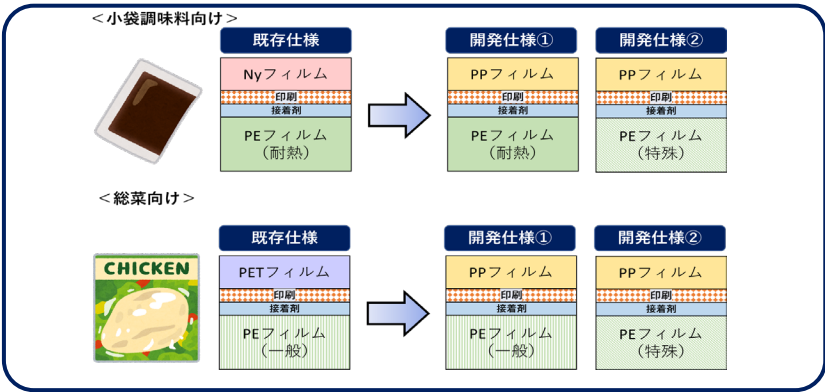
分類			全体比率	3P比率
飲料容器	飲料容器	A1.PETボトル	18.60%	0.00%
		A2.ボトルキャップ	1.65%	93.37%
	その他飲料カップ	A3.チルド飲料カップ	0.40%	93.94%
		A4.透明素材	0.85%	41.81%
	軟包装	A5.スパウトパウチ（飲料用）	0.24%	71.75%
	その他	A6.バッグインボックス	0.49%	93.13%
		A7.ガロンボトル	0.02%	0.00%
食品・非食品容器	B1.PPシート		3.99%	81.22%
	B2.A-PET・O-PETシート		7.97%	0.00%
	B3.C-PETシート		0.04%	0.00%
	B4.PSPシート		3.69%	99.02%
	B5.HIPS		2.07%	88.60%
	B6.BOPS		3.35%	100.00%
	B7.PLA		0.07%	0.68%
	B8.無菌米飯		0.24%	95.81%
	B9.低発泡PSシート		0.32%	96.04%
	B10.中発泡PSシート		0.04%	95.63%
	B11.軟質ウレタンシート		0.06%	0.00%
	B12.EVOH系容器		0.06%	91.46%
食品系パウチ	C1.食品系パウチ		0.78%	73.60%
非食品系パウチ	C2.非食品系パウチ		0.49%	67.22%

分類			全体比率	3P比率
チューブ	F1.ラミネートチューブ		0.21%	81.30%
	F2.アルミチューブ		0.19%	0.00%
メディカル包装	G1.PTPシート		0.33%	21.20%
	G2.分包・SP		0.27%	41.95%
硬質系容器	H1.PP・PEインJECTION容器		1.28%	99.40%
	H2.共重合PET容器		0.41%	0.00%
	H3.その他硬質系容器		0.48%	19.89%
ブロー成型容器	I1.多層ブローボトル		0.73%	94.64%
	I2.単層ブローボトル（PP・PE）		0.18%	96.76%
軟包装1	J1.シュリンクフィルム		0.85%	83.22%
	J2.ラベル用シュリンクフィルム		0.89%	69.60%
	J3.ラップフィルム		3.12%	19.41%
	J4.チャックテープ		0.13%	80.70%
軟包装2	K1.イージーピールフィルム		0.21%	83.75%
	K2.アルミ箔ラミネートフィルム		0.06%	16.63%
軟包装3	L1.各種ラミネートフィルム		13.12%	66.18%
	L2.その他プラスチックフィルム		29.60%	97.84%
搬送用容器	M1.PE重袋		0.51%	96.67%
	M2.プラスチックドラム缶		0.63%	98.92%
	M3.IBC		1.07%	98.94%

- : 新CR適性が高い製品（添加剤、副資材は要検討）
- : 適性の高いものが一部含まれる製品
- : 新CR適性の高いプラスチック製容器包装の開発ターゲット



新CR適合型プラスチック容器の選定フロー



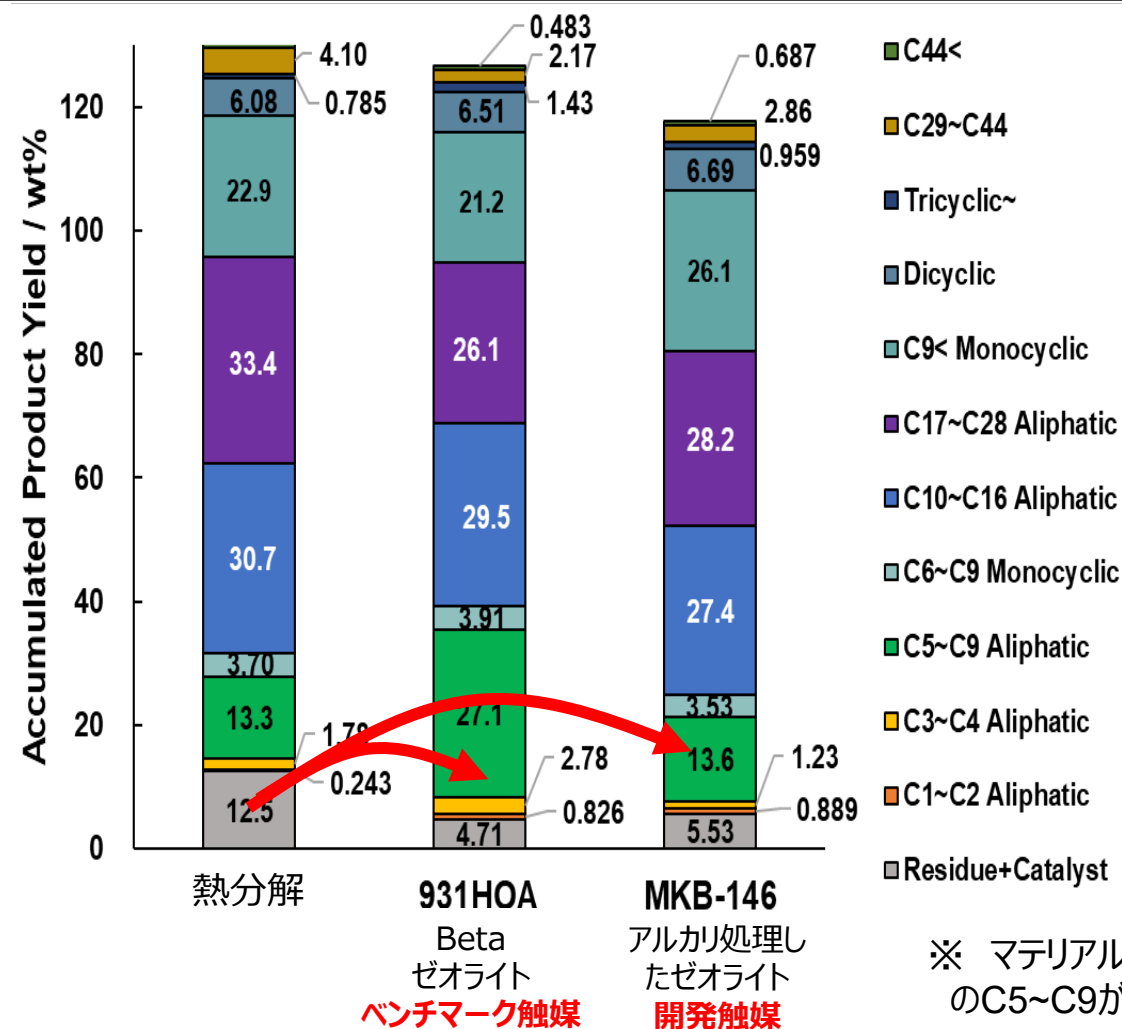
試作仕様

プラスチック分解触媒の開発（早稲田大学、鳥取大学）

産廃プラB 触媒分解試験（開発触媒の性能）

試料：産廃プラB: 5.0 g
溶媒：HDS-LGO 20 g
触媒：Beta（931HOA, ベンチマーク触媒） 0.25 g
400℃, 180 min

- ・産廃プラBを400℃, 180 minで反応させた場合、熱分解に比べて触媒(5wt%)を用いると転化率は大きく向上
- ・ベンチマーク触媒(931- HOA)とアルカリ処理した開発触媒(MKB-146)を用いた場合、プラスチックの転化率はほぼ等しいが、ベンチマーク触媒(931-HOA)のほうがC₃~C₉の収率が高い



産廃プラBの転化率とC₃~C₉収率

触媒	C ₃ ~C ₉ 収率 wt%	転化率 %
熱分解	18.8	53.4
ベンチマーク触媒 931HOA	33.8	91.4
開発触媒 MKB-146	18.4	87.4

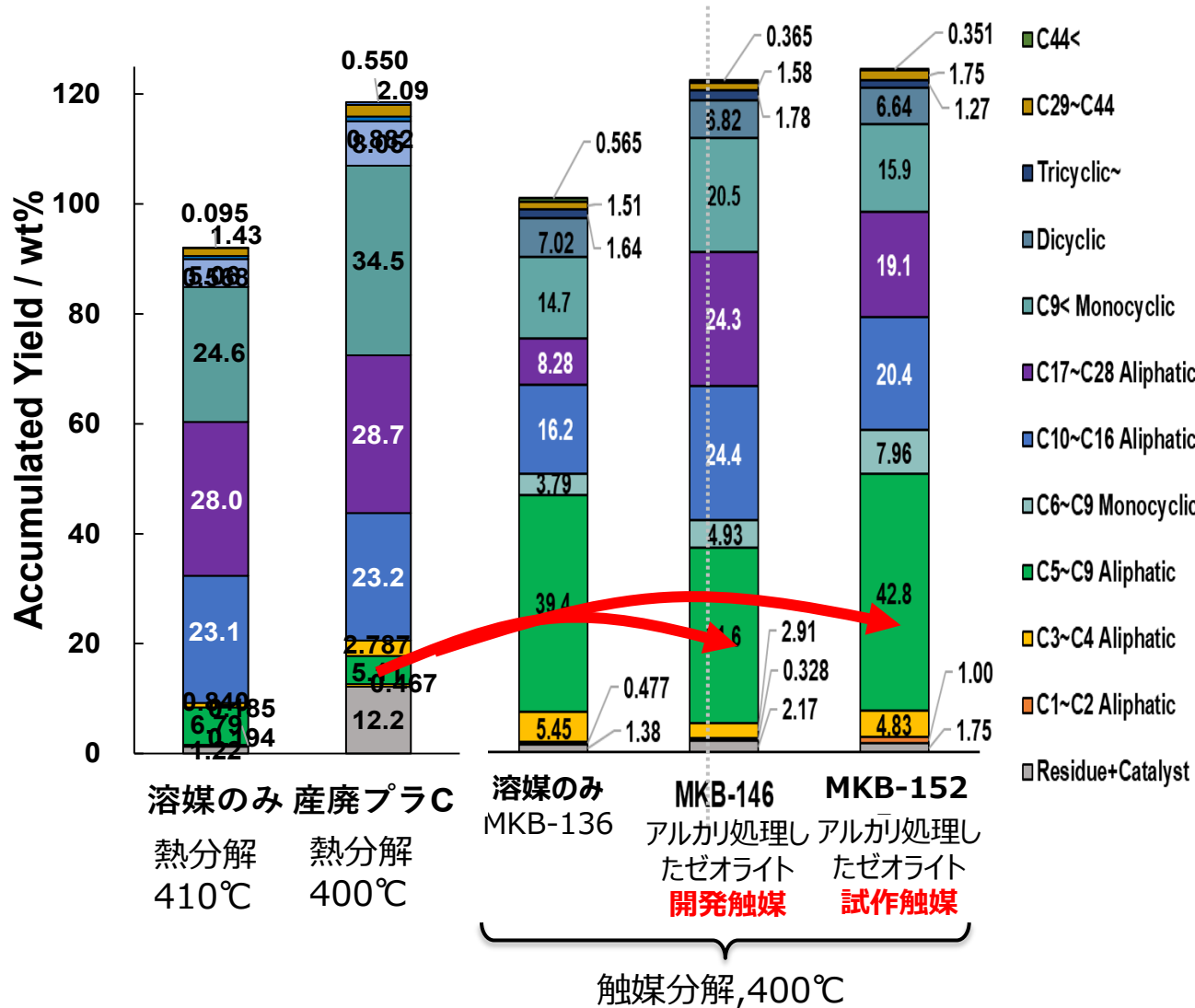
※ マテリアルバランスの関係で931HOAのC5~C9が際立って多く見えています

プラスチック分解触媒の開発（早稲田大学、鳥取大学）

アルカリ処理触媒の効果（試作触媒の性能）

試料：産廃プラC: 5.0 g
溶媒：HDS-LGO 20 g
触媒：Beta（931HOA, ベンチマーク触媒） 0.25 g
400℃, 60 min

- 開発触媒(MKB-146)に比べ、新たに製造した試作触媒(MKB-152)を用いるとC₅～C₉の成分が飛躍的に増加
- 産廃プラCを400℃、60 minで熱分解し、熱分解と試作触媒の実験結果から試作触媒の効果を明らかに



産廃プラCの転化率とC₃～C₉収率

触媒	C ₃ ～C ₉ 収率 wt%	転化率 %
溶媒のみ	48.6	-
MKB-146 開発触媒	39.5	97.2
AT_0.1M_ MKB-152 試作触媒	55.6	97.8

- ◆ 2024年度触媒との活性の比較のため、産廃プラCをAT_0.1M_MKB-152で分解する実験を実施
- ◆ MKB-146ではC3～C9収率が溶媒のみの分解に比べて小さくなるが、AT_0.1M_MKB-152では溶媒のみの場合と同等以上のC3～C9収率となった

熱分解方法と触媒分解の比較

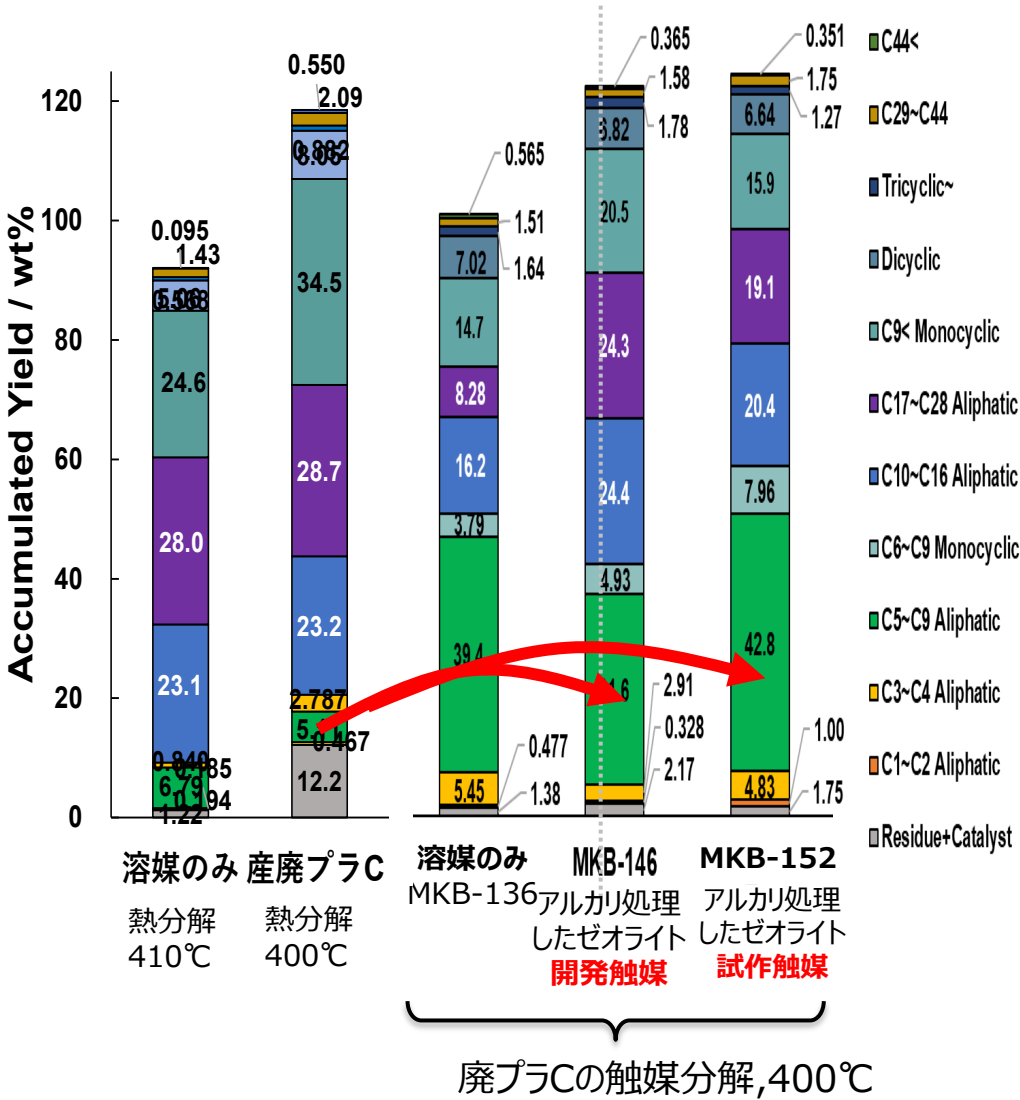
各種ゼオライト触媒を用いた場合の生成物の選択性

	Beta	ZSM-5	MOR	USY	FER
	/ %C	/ %C	/ %C	/ %C	/ %C
C ₁₁ ~	11.59	5.44	12.01	15.39	19.28
C ₁₀	3.98	4.19	1.11	6.49	6.19
C ₈ +C ₉	13.06	13.03	3.47	12.79	15.43
C ₇	9.9	5.47	5.46	9.01	9.74
C ₆	18.07	11.02	19.4	10.46	10.45
C ₅	17.82	19.32	27.43	26.23	15.61
C ₄	22.36	38.45	25.7	15.11	13.63
C ₁ ~C ₃	3.22	3.09	5.42	4.54	9.68

濃度：2.0×10⁵ ppm, 触媒量：50 mg
反応温度：400℃ セタン：1 g, 反応時間：60分

(PP, Aldrich, Isotactic, average Mw ~12,000, average Mn ~5,000)

本プロジェクトでの成果



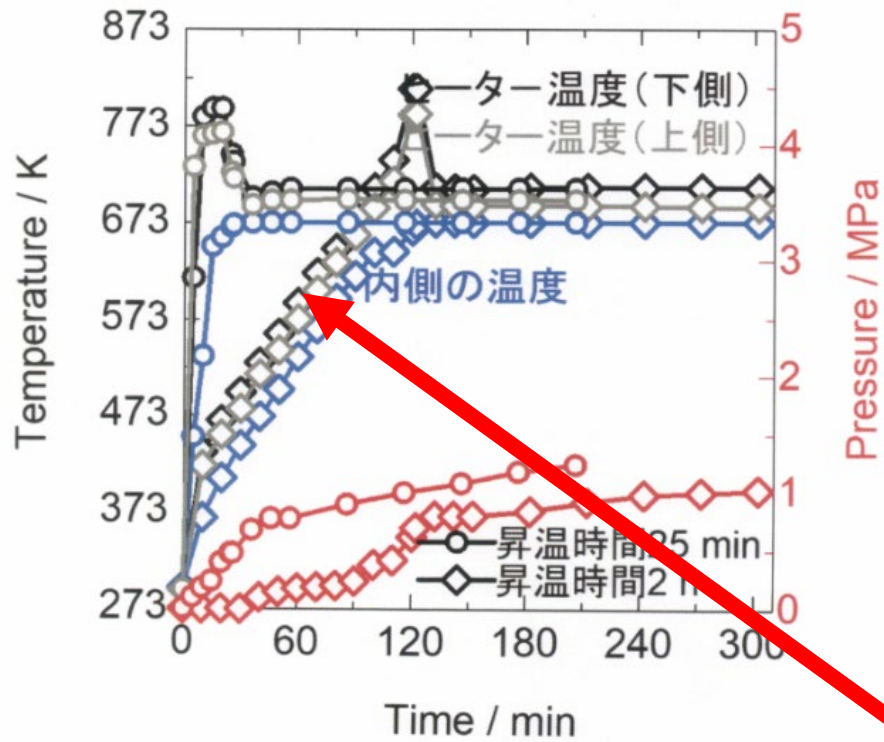
- 1, ZSM-5やMOR等のゼオライト触媒を使用した場合、C₄~C₆の軽質成分の生成が多い
- 2, Betaを用いるとC₆~C₉成分の収率が高く、化学原料製造には適している
- 2, 開発触媒による分解促進効果は小さかった。一方、試作触媒ではプラスチックの分解率およびC₅~C₉の収率が顕著に増加

プラスチック分解触媒の開発 (早稲田大学、鳥取大学)

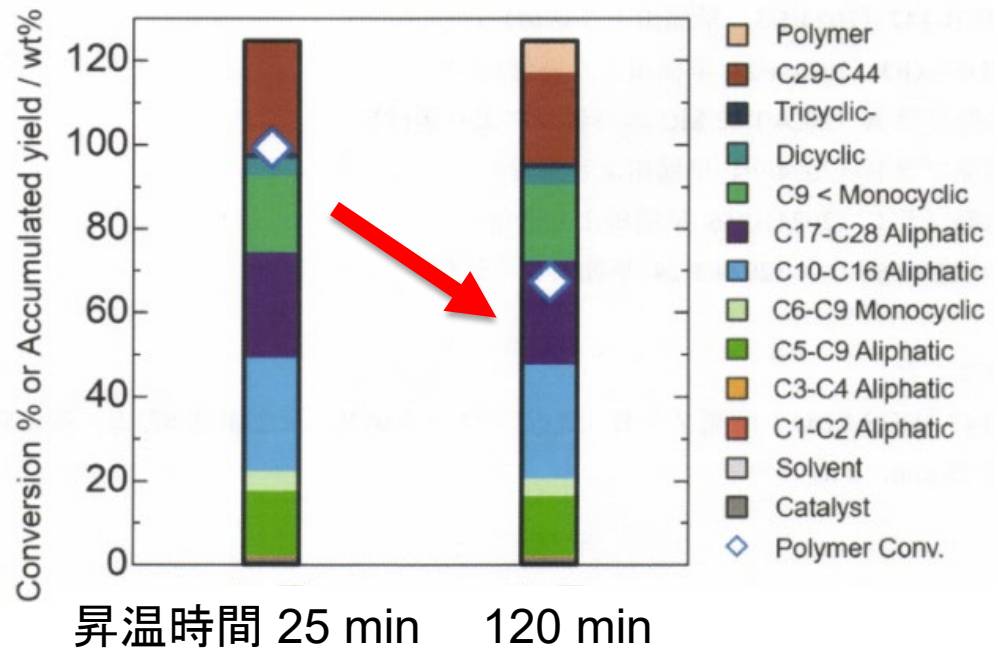
昇温速度の影響

試料：産廃プラC: 4.65 g
 溶媒：HDS-LGO 18.5 g
 触媒：Beta (MBK-147) 0.23 g
 400℃, 180 min

- 昇温時間を25 minから120 minにすると、転化率は低下
- 生成物分布に顕著な変化はない

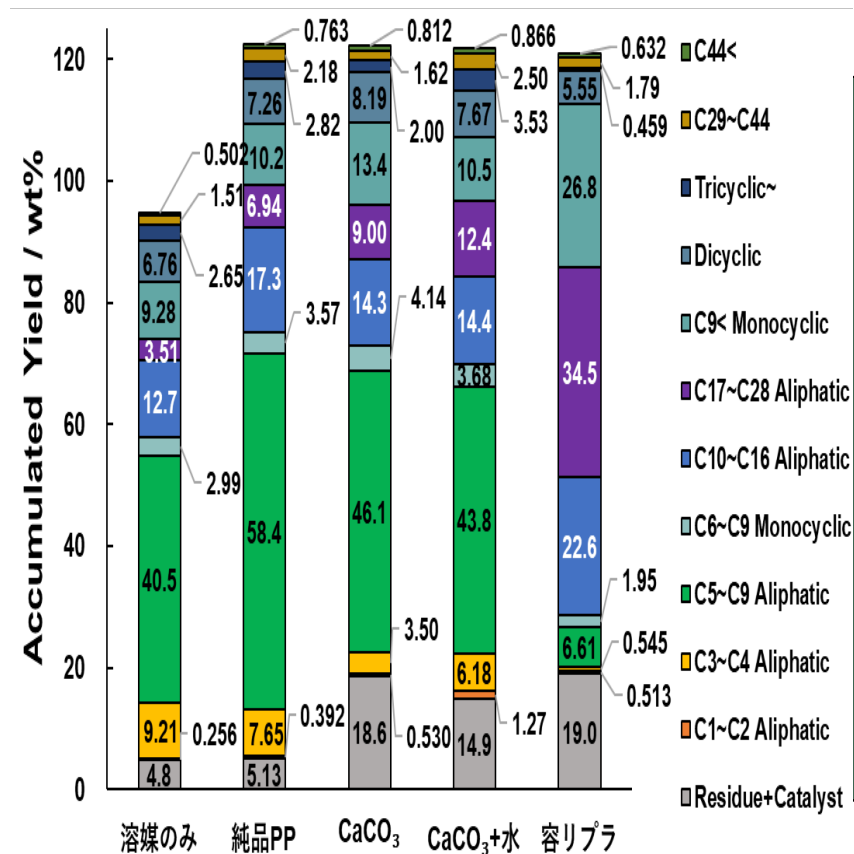
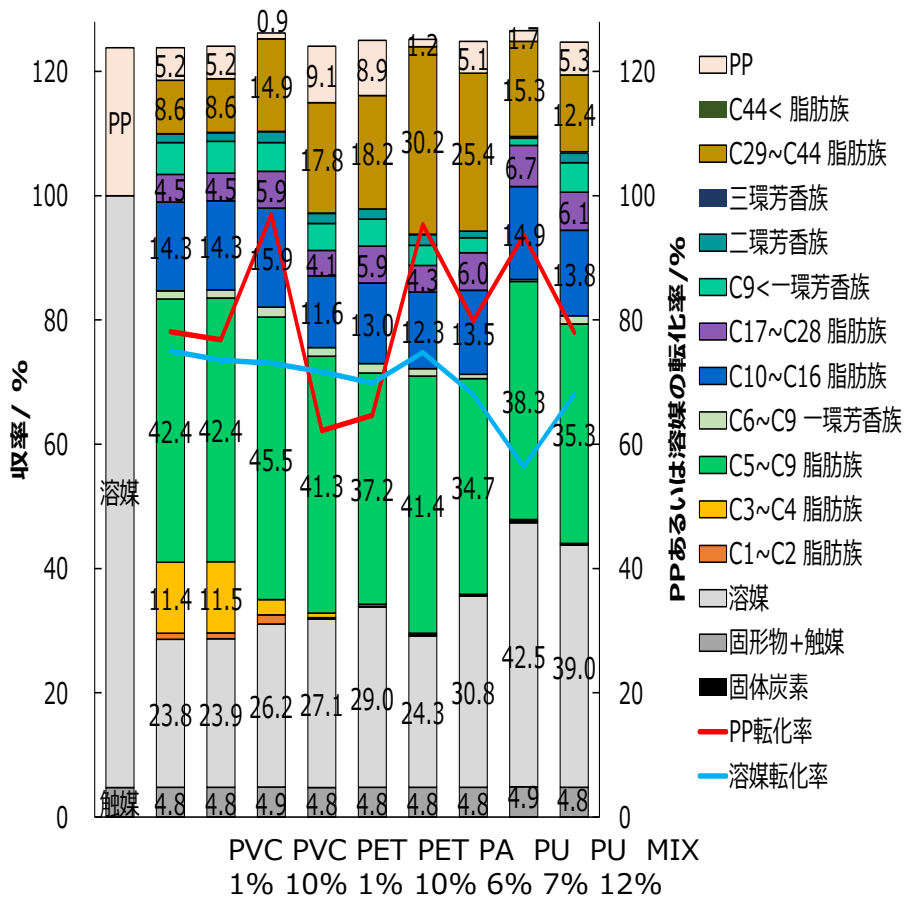


①



ゆっくり昇温しているのに、熱が伝わりにくなる
 昇温が遅いとプラが反応しなくなる
 673 K (400℃) より少し低い温度で生成するスチレンオリゴマーが影響か
 実用化プラントでは槽型連続反応器を検討しており、昇温速度は十分早い
 と考えられる。

触媒分解プロセスでの忌避物質の影響



1, PPの分解に対して、PVCやPET等を添加したが、ウレタン以外に顕著な分解率の低下は観測されず

2, PPの分解に対し、CaCO₃を添加すると、PPの分解率は低下

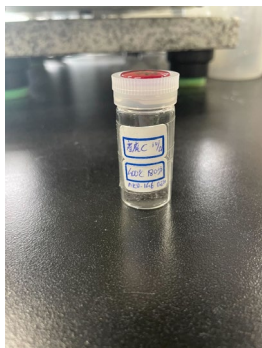
3, 容リプラの分解率は著しく低く、また反応後に回収された触媒の酸点は失われていた(失活)

プラスチック分解触媒の開発 (早稲田大学、鳥取大学)

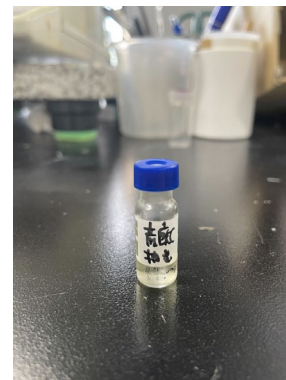
固体残渣からの有機物の抽出

・固体残渣をメタノールやアセトンで抽出するとクロロベンゼンが検出

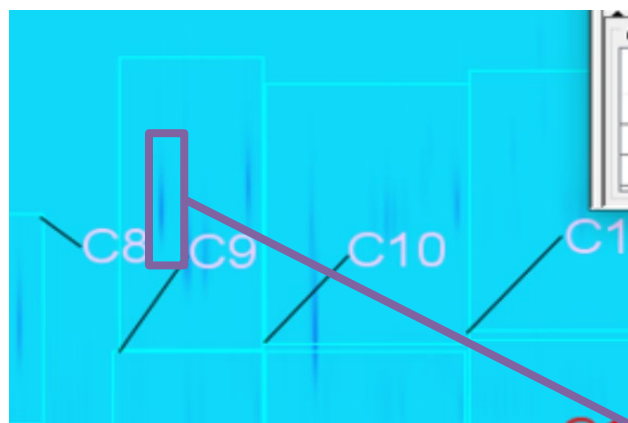
産廃プラC
Catalyst : MKB146
反応温度 : 400 °C
反応時間 : 180 min
触媒分解後の固体残渣
(触媒を含有)



抽出
液体:固体残渣
=10 : 1
35°C for 30 min

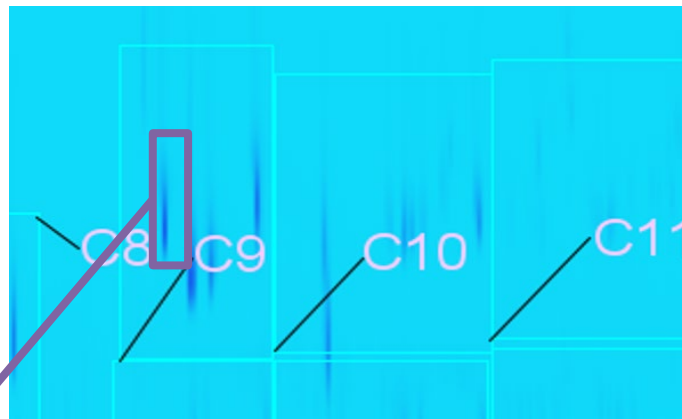


GC×GC/MS

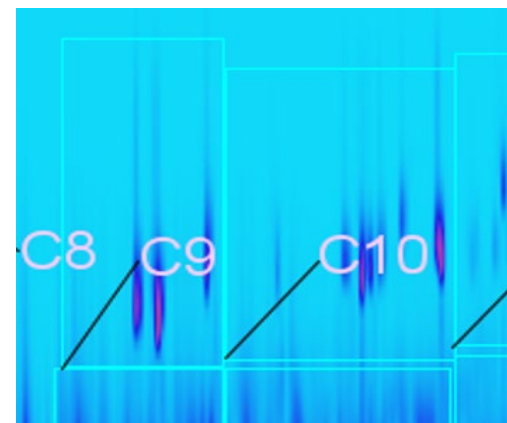


メタノール抽出

クロロベンゼン



アセトン抽出



分解試験後液体生成物

Cl

- クロロベンゼンのピークは通常の液体生成物からは確認されない
- クロロベンゼンが、どのように触媒に影響を与えるかは不明

石油化学原料化プロセス開発 (JPEC) ～実廃プラスチックの触媒分解反応実験～ まとめ

1, 再現性確認

標準的条件(触媒5%・400℃・3h)にて再現性が得られた(⇔コスモ石油様#3)

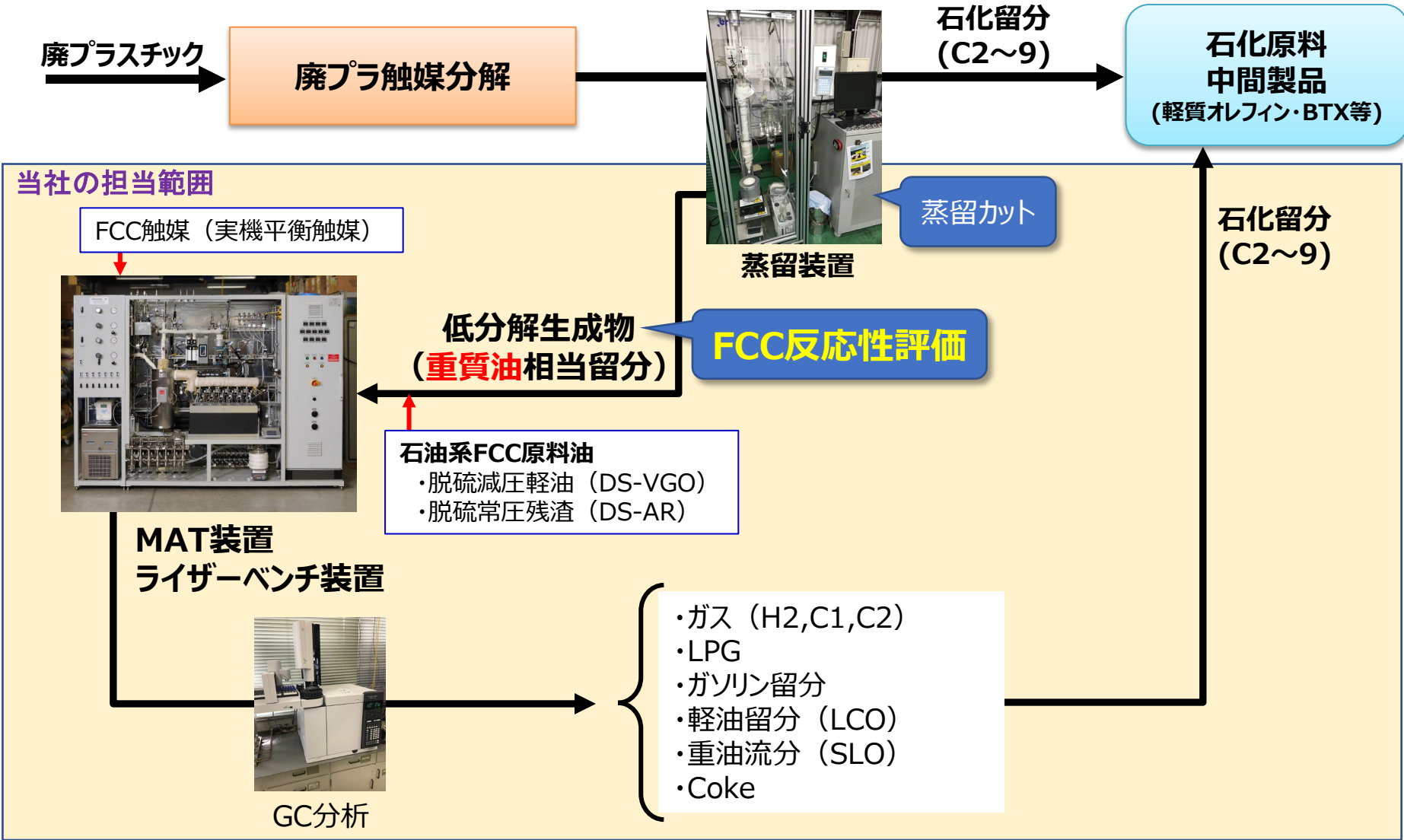
2, コンセプト確認に関しては

開発触媒の実廃プラ分解において、無触媒(熱)・溶媒分解に対して顕著な優位性は見られなかった
(2次分解(FCC)も含めた総合評価はコスモ石油様御報告参照)

3, 実廃プラ

プラ転化率のバラつき大(多くは高転化率(再現性)領域に集中⇔低転化率も頻発)
廃プラの不純物の影響が少量の触媒に対し顕著に発現と推測
(同様の現象は熱分解にも現れている可能性には要注意)

生成物の回収技術開発(コスモ石油)



生成物の回収技術開発(コスモ石油)

低分解生成物のFCC反応性評価 (C₂-C₉収率)

10L反応試験～190℃蒸留～FCC-MATまでのプラ由来C₂-C₉収率

- ・Cat/Oil=5、400℃、4.5hでプラ由来C₂-C₉収率が最大となり、400℃の方が410℃よりもプラ由来のC₂-C₉収率が大
- ・Cat/Oil=6、400℃、4.5hでプラ由来C₂-C₉収率は最大66.3wt%

Cat/Oil=5

反応温度	反応時間(h)	原料プラ(g)*	プラ転化率	C2-9量(溶媒100g換算)					プラ由来C2-9収率
				ガス(g)	軽質分(g)	FCC生成油(g)	合計(g)	プラ有無の差分(g)	
400℃	3	23.7	83.0%	0.7	15.3	54.9	70.9	13.4	56.7%
		—	—	1.5	15.5	40.5	57.5		
	4.5	23.7	94.6%	1.9	21.4	47.7	71.0	15.1	63.7%
		—	—	2.5	19.6	33.7	55.9		
	6	23.7	96.8%	2.1	23.7	44.5	70.3	14.8	62.6%
		—	—	4.4	21.1	30.0	55.5		
410℃	3	23.7	93.1%	2.4	23.4	43.8	69.6	12.6	53.1%
		—	—	2.6	20.6	33.8	57.0		

*溶媒100gとして原料プラと触媒の量を換算。実際の条件は溶媒2000g, 原料プラ500g,触媒25g。

- ✓ 400℃、4.5hで、プラ有無のC2-9差分・プラ由来C₂-C₉収率が最大となった。
- ✓ 反応温度400℃の方が410℃よりもプラ由来C₂-C₉収率大きい。

Cat/Oil=6

反応温度	反応時間(h)	原料プラ(g)*	プラ転化率	C2-9量(溶媒100g換算)					プラ由来C2-9収率
				ガス(g)	軽質分(g)	FCC生成油(g)	合計(g)	プラ有無の差分(g)	
400℃	3	23.7	83.0%	0.7	15.3	56.1	72.1	13.9	58.6%
		—	—	1.5	15.5	41.2	58.2		
	4.5	23.7	94.6%	1.9	21.4	48.9	72.1	15.7	66.3%
		—	—	2.5	19.6	34.3	56.4		
	6	23.7	96.8%	2.1	23.7	45.4	71.2	15.0	63.4%
		—	—	4.4	21.1	30.6	56.2		
410℃	3	23.7	93.1%	2.4	23.4	44.4	70.2	12.4	52.3%
		—	—	2.6	20.6	34.6	57.8		

*溶媒100gとして原料プラと触媒の量を換算。実際の条件は溶媒2000g, 原料プラ500g,触媒25g。

- ✓ FCC条件Cat/Oil=5→6でプラ由来C₂-C₉収率が増加。400℃、4.5hでプラ由来C2-9収率は最大となり66.3wt%。
- ✓ ガスはプラ有無の差分がマイナスとなり、全体のプラ由来C₂-C₉収率が低く見積られる課題あり。

生成物の回収技術開発(コスモ石油)

1, 産廃プラ10L反応試験～蒸留カット～FCC-MATによるプラ由来C₂-9収率の算出

1.1 “プラ+溶媒”と“溶媒のみ”の系を10L反応試験～蒸留～FCC-MATまで同一条件で行い、プラ有無のC₂～C₉量の差分よりプラ由来C₂～C₉収率を算出

1.2 本計算で求めたプラ由来C₂～C₉収率は、400℃,4.5h,190℃蒸留カット,FCC条件Cat/Oil=6で最大で66.3%

1.3 ガスのプラ有無の差分がマイナスとなるため、プラ由来C₂～C₉収率が低く見積られる課題あり

2, 産廃プラ分解油/石油系原料の混合油のFCC-MAT評価・SIM解析

2.1 今回のプラ分解油5 vol%/石油系原料の混合系のMAT結果・SIM結果は、石油系原料とほとんど変わらなかった

2.2 この結果より今回のプラ分解油5vol%の場合、FCC-SIMをそのまま使用可能

ご清聴ありがとうございました

謝辞：この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務（JPNP20012）の結果得られたものです。