

# 自動車業界において再生樹脂を循環させるための課題 と今後の展望について

福岡大学研究推進部 機能構造マテリアル研究所 特命研究教授／名誉教授 八尾 滋

## 1. はじめに

私事ではあるが、大学院の博士課程を無事修了し、化学メーカーの研究所で働き始めたちょうどそのころ、自動車のバンパーをプラスチック化する研究が隣のグループで開始された。いわゆる TSOP (Toyota Super Olefin Polymer) である。直接開発に携わったわけではないが、電子顕微鏡写真などを見ながらの力学特性発現メカニズムに関する議論には参加することができた。このようにプラスチックの自動車への展開が始まった黎明期にちょうど立ち会えたことは非常に幸運であったと感じている。

この開発が一段落したころ、担当した部長と技術情報雑誌編集者との会談に立ち会う機会があった。その時、編集者から使用済のバンパーなどどのような処理が考えられるか、再利用は可能か、という質問がなされた。特にバンパーからの使用済プラスチックは塗装が施してあるために、再利用が難しいのではないかと、いう趣旨であった。まだ 1990 年代の初頭であり、使用済プラスチックの処理問題などが一般に議論されるような時代ではなかったが、今思い返すと使用済プラスチックをどう処理するかは、常に大きな問題であり続けていたことが理解できる。また処理に伴う課題も、今現在とほとんど変わっていないことが分かる。その時の部長の回答も明確に覚えており、「塗料を剥がすことなくそのまま微粉碎して練り込めば補強効果が発現され、再利用が可能になる」というものであった。今ここにその発言を記載したのは、特に責任を問う意図からではない。逆に高分子の物性を深く理解していたからこそ出てきた回答であると、プラスチックのマテリアルリサイクルの研究を始めてみて、深く感じ入るところである。

その時代から 30 年以上が経過しているが、自動車業界においてマテリアルリサイクルされたプラスチックの使用が進んでいるとはいいい難い状況である。しかし一方では、欧州において自動車に使用するプラスチックの 25% を再生プラスチックとし、さらにその 25% は自動車由来とする規制が検討されている<sup>1)</sup>。本報では再生プラスチックの利用が自動車業界を含め多くの分野でなぜ進んでいないのかに関して考察するとともに、その利用展開を進めるために技術面からどのような取り組みができるのかに関して述べる。

## 2. 化学劣化という常識による呪縛

---

使用済プラスチックの再使用が普及していない原因はいろいろあるが、一番根源的な原因は物性がバージン品と比較して著しく低下していることにある。またその原因が、紫外線や熱などにより高分子鎖が短く切断され、低分子量化する化学劣化であるとされていたことが、さらに問題解決を遠ざけるものとなっていたと考えられる。

上述した化学劣化による分子鎖切断は再生が不可能な現象である。そのため、「使用済プラスチックは本質的に物性が低下したものである。そのため、いくらきれいに洗浄しても、異物を取り除いても、その努力は報われることはない。使用済プラスチックは焼却処分し、製品製造はバージン品を用いる一方通行のマテリアルフローが、消費者に対しても最善の方法である。」というロジックが40年近く常識とされてきた。2000年代から自動車リサイクル法などの規制により、一応一定量はマテリアルリサイクルに処されていたが、その基本思想は廃棄物処理であり、減容を目的としたサーマルリサイクルが日本では主たるリサイクル法として位置づけられてきた。また、マテリアルリサイクルに本格的に取り組もうとする研究者は皆無であった。

さらに深刻な問題は、工程内廃棄プラスチックに対しても化学劣化が生じているために再利用できない、と思われてきたことである。使用済プラスチックは汚れがひどく、選別して廃棄されていないために異物も多く、これらを取り除く洗浄・再生処理には大きなコストが生じる。一方で工程内廃棄プラスチックはほぼ製品と同じレベルの清浄さを持つものである。従って粉碎処理を施し、再度生産ラインに投入することで、原料コストの低減が可能になる。しかし、実際に上記処理を行うと、おおよそ20%程度の添加で製品物性が低下を示す。これまでこの原因は明確にされておらず、コストと物性の関係からくるジレンマは、長年生産現場を悩ませてきた。そして、「工程内廃棄プラスチックも再生不能な（化学）劣化を起こしている」という思い込みが企業・大学間の共通認識として確立されていた。

上述のような「常識」が40年近く維持されていたなか、我々は使用済プラスチックの物性低下の主原因が分子鎖切断・低分子量化による化学劣化ではないことを見出した。また成形プロセスの最適化で物性再生が可能であることも明らかにし、実用的な再生プロセスの提案を行っている。以下の節でその経緯と成果について述べる。

## 3. 物理劣化・物理再生という新常識

---

### 1) 化学劣化ではなく物理劣化

図 1 は射出成形グレードのバージン PP (VPP) と、その工程内廃棄プラスチックであるスプールやランナーからの再生品 (Pre-RPP) を試料として用い、プレス成形で作製したフィルムの引張試験結果である<sup>2)</sup>。この時のプレス成形条件は (210°C、2min) である。図から VPP が極めて良い延性を示すのに対し、Pre-RPP はこれまでの常識通りに著しい脆性を示していることが分かる。一方図 2 は高温 GPC によるこれらの分子量分布のプロファイルである。その他にも熔融粘弾性や酸化劣化度の指標である赤外分光法での  $1733\text{cm}^{-1}$  と  $1165\text{cm}^{-1}$  の吸光度の比率を比較してもほぼ変化はなく、これらの分子物性値からは VPP と Pre-RPP は同一の高分子と判断される。この結果はしかし当たり前で、仮にスプールやランナーで高分子が化学劣化を起こし低分子量化した結果として物性が低下したのであれば、その先で成形される製品も物性が著しく悪化したものになるはずである。しかし通常我々は製品が化学劣化しているとは認識していない。また、実際に製品の分子量は良好に維持されていることから、工程内廃棄プラスチックが化学劣化をしては矛盾が生じることになる。すなわち、Pre-RPP の物性が著しく低下している原因は化学的なものではなく物理的な要因によると考えられる。

## 2) 「物理劣化・物理再生理論」

結晶性高分子の力学的な物性、特にリサイクルプラスチックで低下している靱性は、ラメラ結晶が積層しているメソ領域での構造において、ラメラ結晶間に力の伝達性を保証しているタイ分子に大きく依存し、また一方で、このタイ分子の生成には、熔融状態での高分子間の絡み合いが大きく寄与していると考えられる。我々はこれらを踏まえ、リサイクルプラスチックの力学物性の低下ならびに再生に関し、高分子の代表的な内部構造のエネルギー準位と温度との関係に基づいた、図 3 に示すような物理劣化・物理再生理論を提案した。

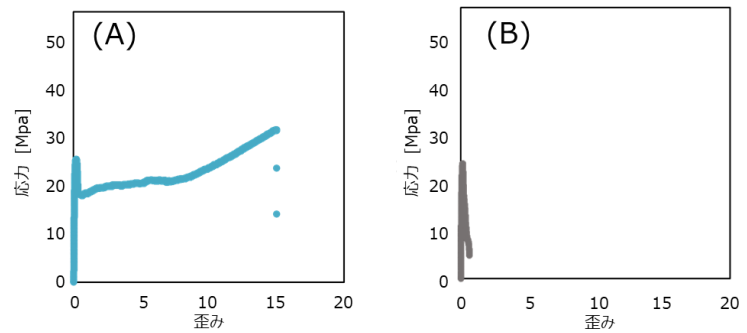


図 1 VPP および Pre-RPP の引張試験での応力—歪み曲線 (A):VPP(210°C, 2min), (B):Pre-RPP(210°C, 2min)

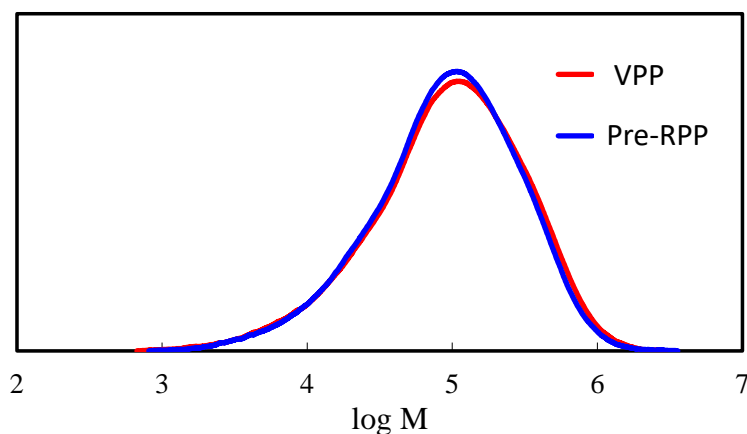


図 2 高温 GPC による VPP および Pre-RPP の分子量分布

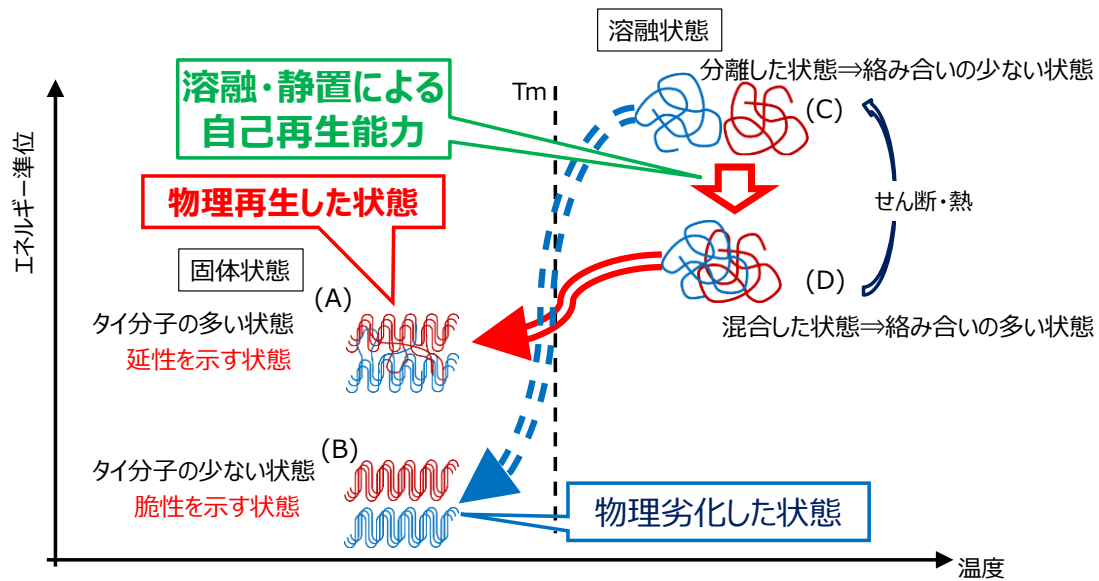


図3 物理劣化・物理再生理論のコンセプト

ここでは高分子の固体状態ならびに熔融状態で取りうる様々なメロ構造を、主要な4種類に分類している。まず固体状態では、結晶ラメラ積層構造が不完全で多くのタイ分子がある状態（図3(A)）と、完全結晶化が進んだ状態（図3(B)）を取ると考えることができる。そしてこの両者のエネルギー準位は、図3(B)の方が低い。この図3(B)の状態は、ラメラ層間の力の伝達が断絶しており、伸び特性が大きく低下し、これを物理劣化した状態とみなすことができる。

他方熔融状態においては、図3(C)で示す絡み合いの少ない分離した状態よりも図3(D)で示す高分子鎖が互いに侵入し合った相溶状態の方がエネルギー準位は低い。そのため初期分離した状態にある系でも、熔融状態に保持することで絡み合いが増加する「自己再生能力」が備わっている。しかし図3(D)の状態の系に、ペレタイズに伴う強いせん断変形や熱が加えられると、エネルギーが与えられることから高分子鎖間の絡み合いが減少した図3(C)の状態を取るようになる。その結果、高分子鎖のラメラ結晶層への移行がスムーズになり、固化後の構造は力学的な特性に劣る図3(B)の状態の構造になると考えられる。

しかし一方で、図3(C)と図3(D)の関係からは、静的熔融状態に保持できれば、高分子の持つ自己再生能力が発揮され、残留していたせん断履歴が解消されるとともに、系中の絡み合いの数が多くなる。その結果としてタイ分子数が増加することで力学的な特性が回復できる可能性が示唆されている。

図4はPre-RPPの試料の熔融プレス成形時間を6minと長くしたときの引張試験の結果である。図から熔融時間を延ばしたことにより試料が著しく延性を示すように力学物性が変化したことが分かる。すなわち、使用済プラスチックからのマテリアリ

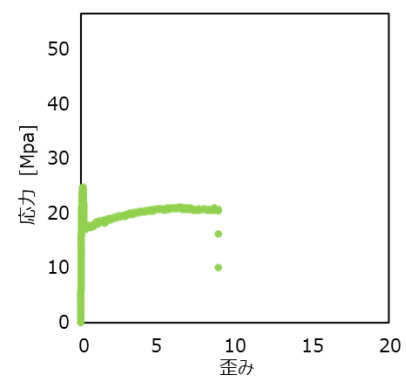


図4 プレス時間6minでのPre-RPPの引張試験応力—歪み曲線

サイクル品であっても、「物理劣化・物理再生理論」が示唆するように、その力学物性は再生できることを示している。また X 線小角散乱法によるメソ領域での構造観察から、ラメラ層間距離に変化が生じていること、また破断エネルギーとタイ分子数との関係性から導き出した理論解析により、タイ分子数が増加していることを示唆する結果を得ている<sup>3)~9)</sup>。

### 3) 「物理劣化・物理再生理論」の実践的応用

前節の非常に基礎的な結果から導かれた自己再生メカニズムを実際のプロセスに再現したのが、図 5 に示す溶融樹脂溜まり部を設置した押出機である。また図 6 にはこの押出機を用い、ポリプロピレン成分を選別した市販の容器包装リサイクルペレットを用いたダンベル(A)と、そのペレットに再生処理を行った試料

から作成したダンベル(B)の引張試験後の結果を示す<sup>10),11)</sup>。明らかに、再生前の原料では著しく脆性な物性しか示さなかった試験片が、溶融樹脂溜まり部付きの押出機で再ペレタイズ処理を行うことで、良好な延性を示すように物性が大きく変化することが分かる。樹脂溜まり部の基本構造は単なる空洞である。しかしこの空洞領域を設けることで、押出機のスクリーによるせん断履歴を緩和することができ、この領域で自己再生により絡み合いの数が増加し、物性再生が実現したと考えることができる。



図 5 溶融樹脂溜まり部（図中赤丸）を備えた押出機



図 6 引張試験後の各ダンベルの状態  
(A):原料からのダンベル、(B):再生処理試料からのダンベル

現在ここに挙げたポリプロピレン以外の種々の使用済プラスチックだけでなく、バージンプラスチックに対してもこの樹脂溜まり部効果の検証を行っており、汎用性が高いことが見いだされている。さらに実生産レベルに生産量をスケールアップしても、一定の効果があることを見いだしている。

### 4) 「物理劣化・物理再生理論」の成形分野への拡張

「物理劣化・物理再生理論」では、成形中に高分子鎖が緩和できないような過度なせん断履歴により物性が低下することが示唆されている。すなわち、成形時の流動履歴は成形品の初期物性に大きく影響するとともに、リサイクル時の物性にも波及する。図 7(A)に示す、射出成形により作成した平板のゲート側(Near Gate : NG) とゲートから離れた側(Far Gate : FG)から採取した試験片の伸長破断伸びの

平板厚み依存性を図 7(B)に示しているが、1.5mm 以上の厚みがあると NG と FG での破断伸びはほぼ同じである。しかし 1mm と平板が薄くなった場合、NG が極端に低下している。<sup>12)</sup><sup>13)</sup>。さらに図 7(C)は NG ならびに FG からの試料を細断し、プレス成形した試験片（リサイクル品）の伸長破断伸びを示したものである。図から、元の射出成形品では物性に差がなかった

2mm 以上の平板においても、NG から採取したものは物性が大きく低下していることが分かる。また FG においても、元の平板の厚さが薄くなるとリサイクル特性が大きく低下していることが明らかに示されている。これらの結果からは、成形時にはスキン層の影響が顕在化されていない場合でも、実際には物性低下を及ぼす構造が内包されており、平板厚みが薄い場合にはリサイクル時にそれが顕在化し、大きな物性低下を引き起こしたと考えられる。

このような成形品部位での不均一性ならびにリサイクル時の物性低下を避けるためには、成形過程でのせん断速度あるいは流動履歴を均一化することが必須であると考えられる。またそのためには、シングルゲートではなく、吐出タイミングや流量を制御したマルチゲート成形が効果があると想定される。

図 8 はこのような構想のもと、三光合成において従来のシングルゲートと流速を制御したマルチゲートで作製した成形品の部位ごとの物性評価を行った結果である<sup>14)~16)</sup>。ゲートはこれまで通常の成形で用いら

れていたような平板の一端にあるもの(ゲート①)に加え、新たに平板中央部(ゲート②)に設けている。(①)のみのシングルゲート成形では平板の部位ごとの物性の不均一性が甚だしいのに対し、(①)と(②)の両方を用い、流速を制御したマルチゲートでは、部位ごとの物性の不均一性が解消しているのが分かる。特に驚くべきことには N3 のようにシングルゲート

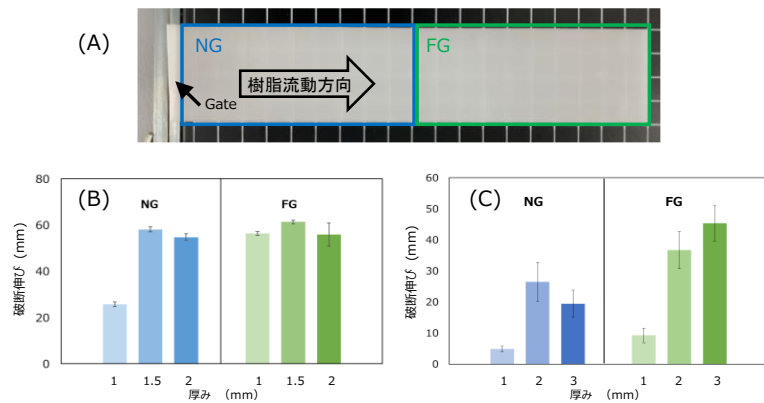


図 7 射出成形平板の成形品ならびにリサイクル品の破断伸びの部位ならびに厚さ依存性

(A):用いた射出成形平板、(B):成形品の破断伸び、(C):リサイクル品の破断伸び

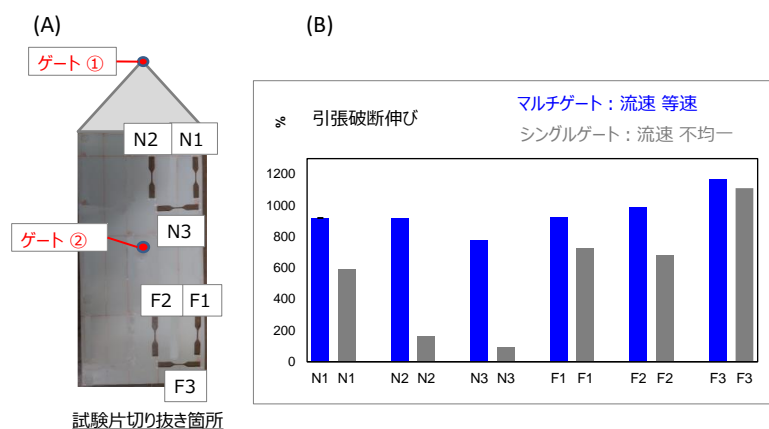


図 8 試験に用いた成形品と各試験部位での破断伸び

(A):設けたゲート位置ならびに試験片採取部位  
(B):マルチゲートならびにシングルゲートでの破断伸びの部位依存性

では TD 方向の引張になるため極めて低い値を示した破断伸びが、MD 方向の試験片とほぼ同じ値になる結果が得られたことである。三光合成ではさらに成形法の違いによるリサイクル特性も評価しており、従来のシングルゲート成形品ではリサイクル品の物性がさらに大きく低下しているのに対し、マルチゲート成形品のように物性が均一化された場合ではリサイクル処理を行ってもバージン並みの物性を維持できていることを示すことが確認されている。

これらの結果は、成形時の流動を制御することで、物性が均質化された高品質の製品が成形できるだけでなく、リサイクル時の特性も向上できることを示している。すなわち、射出成形分野において新たな視点での環境配慮設計が可能であることを示唆するものである。

## 4. おわりに

---

本稿で明らかにしたように、プラスチックの物性は成形履歴、とくに層流的なせん断履歴により大きく低下する。一方で、そのせん断履歴を緩和し、高分子の持つ自己再生能力を活用することで、一度低下した物性を再生することが可能である。すなわちこれまでの「使用済プラスチックの物性低下は再生不可能な分子鎖切断による化学劣化である」という常識は誤りであり、新たな「物理劣化・物理再生」という常識のもと、マテリアルリサイクルシステムを再構築すべきステージに我々は立っていると考えられる。使用済プラスチックであっても、汚れや異物がごく少ない状態であれば、充分複数回のマテリアルリサイクルが可能であるという前提で、サーキュラーエコノミーシステムを設計・構築することが重要である。現状は、使用済プラスチックは廃棄された段階で汚れや異物が多く付着するような状況で収集されている。そのために余計な洗浄工程や溶融時のフィルタリング工程が入り、コストアップや残渣発生の原因となっている。確かに一般家庭から出る使用済プラスチックに関しては、汚れなどの付着は不可避であると思われる。しかし一方で自動車や家電など、ある程度クローズドループでの回収が可能な使用済プラに対しては、解体段階あるいは今後は製品設計段階での工夫によって、異物などによる汚染は回避できる処置システムの構築が可能であると思われる。特に工程内廃棄プラは、すぐにでもこの新しい常識に基づいた再生システムの構築が可能と考えられる。

この問題に対しては、アカデミアには、少し観点を換えれば見出せたはずの解決策を長年放置し続けてきたという責任があると考えている。我々が本研究に着手したばかりのころ、とある教授に共同研究を打診したことがある。その時、「このような定説がない分野は、あまり取り組まない方が良いですよ」という忠告を受けた。ここに現在のアカデミアが置かれている宿痾があるように思われる。アカデミアも再度、ある程度の評価が受けられることが分かっている分野の研究を行うというルールから外れ、しばらくは評価されない可能性があっても、社会が迷惑をこうむっている「常識」に対して挑戦し、次世代に貢献をするという使命を思い返す時期ではないかと考えている。

一方で企業に対して求める姿勢としては、まず水平リサイクルできないものは生産しない、少なくとも工程内廃棄プラスチックはその存在をなくすという姿勢が必須である。また仮に水平リサイクルできない製品を製造販売している場合には、何が水平リサイクルを阻害しているかを明らかにし、他方面への展開用途を責任をもって提示することが求められる。そのためには、まずはこの新しい常識に基づいた挑戦をする勇気を経営陣が示し、研究開発体制を確立し、成果実現に邁進することが重要ではないだろうか。

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。

## 参考文献

---

- 1) European Commission Press Release,  
[https://ec.europa.eu/commission/presscorner/detail/en/ip\\_23\\_3819](https://ec.europa.eu/commission/presscorner/detail/en/ip_23_3819) (2024年8月現在)
- 2) 富永垂矢、関口博史、中野涼子、八尾滋、高取永一、2013、「プレコンシューマリサイクルポリプロピレンの高度再生技術」、高分子論文集、70(12)、712-721
- 3) Shigeru Yao, Aya Tominaga, Youhei Fujikawa, Hiroshi Sekiguchi, and Eiichi Takatori, 2013, "Inner structure and mechanical properties of recycled polypropylene", *Nihon Reoroji Gakkaishi*, 41(3), 173-178
- 4) Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, Eiichi Takatori, 2015, "Thermal Process Dependence of Mechanical Properties and Inner Structure of Pre-consumer Recycled Polypropylene", *Proceedings of PPS-30, AIP Conf. Proc.* 1664, 150011-1 - 150011-4
- 5) 高取永一、八尾滋、志村尚俊、2016、「再生ポリプロピレン製品のUV劣化特性と分子量」、*日本レオロジー学会誌*、44(1)、55-60
- 6) Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, and Eiichi Takatori, 2017, "Relationship between the long period and the mechanical properties of recycled polypropylene", *Nihon Reoroji Gakkaishi*, 45(5), 287-290
- 7) Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, Eiichi Takatori, 2019, "Advanced recycling process for waste plastics based on physical degradation theory and its stability", *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 21(1), 116-124
- 8) Haruka Kaneyasu, Patchiya Phanthong, Hikaru Okubo, Shigeru Yao, 2021, "Investigation of Degradation Mechanism from Shear Deformation and the Relationship with Mechanical Properties, Lamellar Size, and Morphology of High-Density Polyethylene", *Appl. Sci.*, 11, 8436



- 9) Hikaru Okubo, Haruka Kaneyasu, Tetsuya Kimura, Patchiya Phanthong, Shigeru Yao, 2021, "Effects of a Twin-Screw Extruder Equipped with a Molten Resin Reservoir on the Mechanical Properties and Microstructure of Recycled Waste Plastic Polyethylene Pellet Moldings", *Polymers*, 13 (7)
- 10) Patchiya Phanthong, Shigeru Yao, 2022, "Revolutionary Plastic Mechanical Recycling Process: Regeneration of Mechanical Properties and Lamellar Structures", *Recycling - Recent Advances*, November
- 11) Patchiya Phanthong, Yusuke Miyoshi, Shigeru Yao, 2021, "Development of Tensile Properties and Crystalline Conformation of Recycled Polypropylene by Re-Extrusion Using a Twin-Screw Extruder with an Additional Molten Resin Reservoir Unit", *Appl. Sci.* 2021, 11 (2736), 1707
- 12) Saki Onishi, Yuki Kawakami, Patchiya Phanthong, Yusuke Miyoshi, Takao Kameda, Shigeru Yao, 2019, "Effect of position and dimension of polypropylene injection molding products on mechanical properties and recycling characteristics-1-", *AWPP 2019*
- 13) Yuki Kawakami, Saki Onishi, Patchiya Phanthong, Yusuke Miyoshi, Takao Kameda, Shigeru Yao, 2019, "Effect of position and dimension of polypropylene injection molding products on mechanical properties and recycling characteristics-2-", *AWPP 2019*
- 14) Takuro Fujii , Yuki Kawakami , Takao Kameda , Shigeru Yao, 2022, "Effect of dimensional changes on polypropylene injection molded products on mechanical properties", *PPS-37*
- 15) Takuro Fujii , Naoto Sugino , Atsushi Kaneko , Miyuki Hashimoto , Takao Kameda , Shigeru Yao, 2023, "Effect of Resin Flow Length on Tensile Breaking Elongation in PP Injection Molded Products", *PPS-38*
- 16) 「プラスチック資源循環の技術開発の取り組み」、三光合成 HP、  
[https://www.sankogosei.co.jp/recycling\\_20230710.pdf](https://www.sankogosei.co.jp/recycling_20230710.pdf) (2024年8月現在)