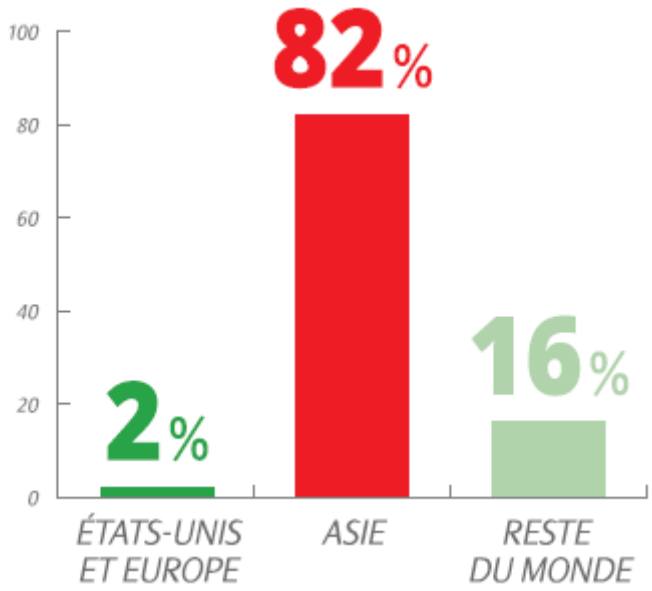
Le recyclage des matières plastiques

Jacques Thébault[1], Patrice Dole[2], Catherine Loriot[3]
[1]IPC Clermont, Biopôle Clermont-Limagne, 2 Rue Michel Renaud, 63360 Saint-Beauzire
[2] CTCPA, Technopole Alimentec, Rue Henri de Boissieu, 01000 Bourg-en-Bresse
[3] LNE, 29 Avenue Roger Hennequin, 78190 Trappes

- **Un contexte réglementaire qui se durcit**

Les matériaux plastiques, et en particulier les emballages qui en sont issus, font l'objet ces derniers mois d'une attention particulière pour ne pas parler d'un « plastic bashing » pesant sur les producteurs et les utilisateurs de ces mêmes emballages.

Si le plastique est montré du doigt c'est en particulier en raison de son impact sur les océans, considéré comme catastrophique par le grand public, les ONG, tels que la Fondation Ellen MacArthur, et les politiques qui leur emboîtent le pas.

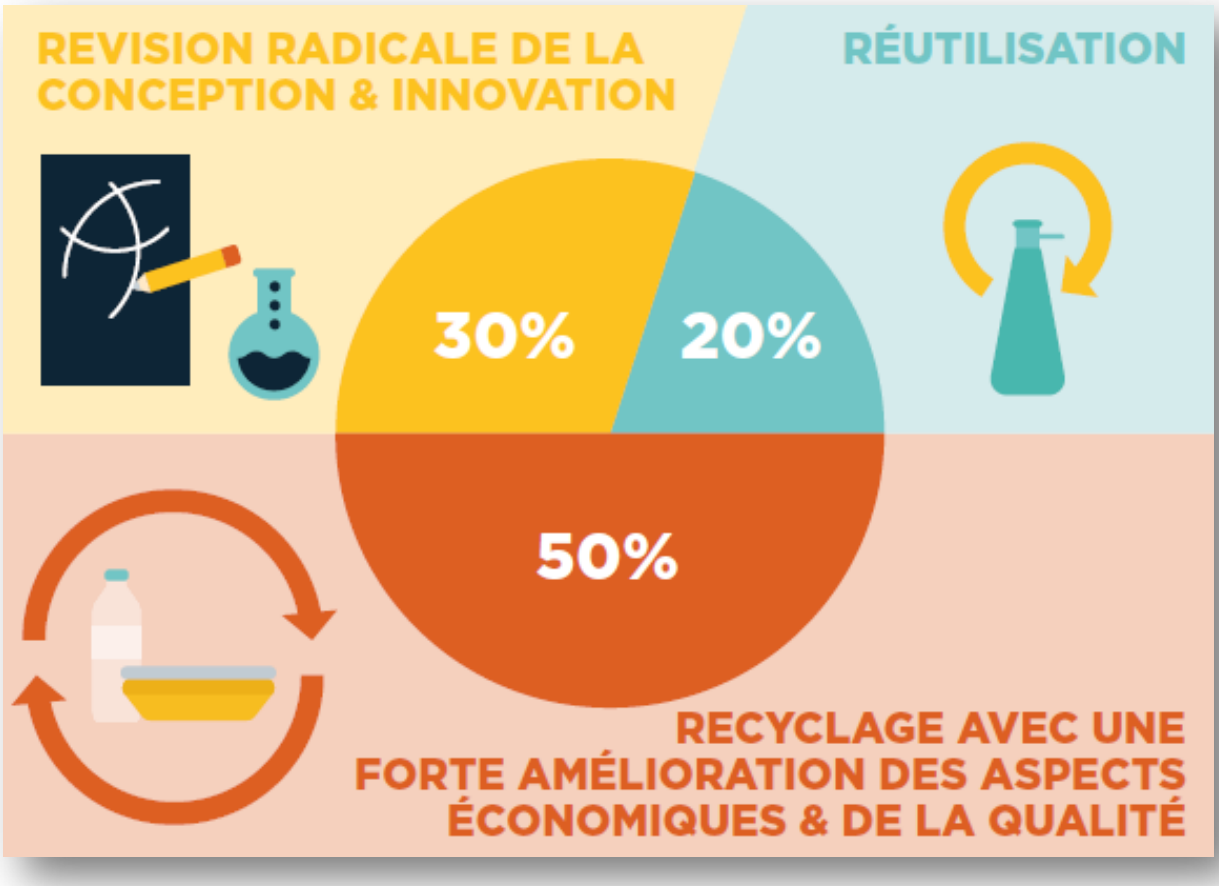


Répartition géographie des fuites de plastiques vers les océans

Source :

Fondation Ellen MacArthur

Pour une nouvelle économie des plastiques, 2017



Source : Fondation Ellen MacArthur

Pour une nouvelle économie des plastiques, 2017

La préoccupation des emballages et de leurs déchets n'est pourtant pas récente puisque la première Directive européenne sur le sujet date de 1994 (Directive 94/62 CE). Force est de constater que malgré ces différents amendements, cette réglementation a sans doute manqué d'ambition, d'applications et de contrôles chez les industriels qui, il y encore peu de temps, en ignoraient les exigences et par conséquent les responsabilités qui en découlent.

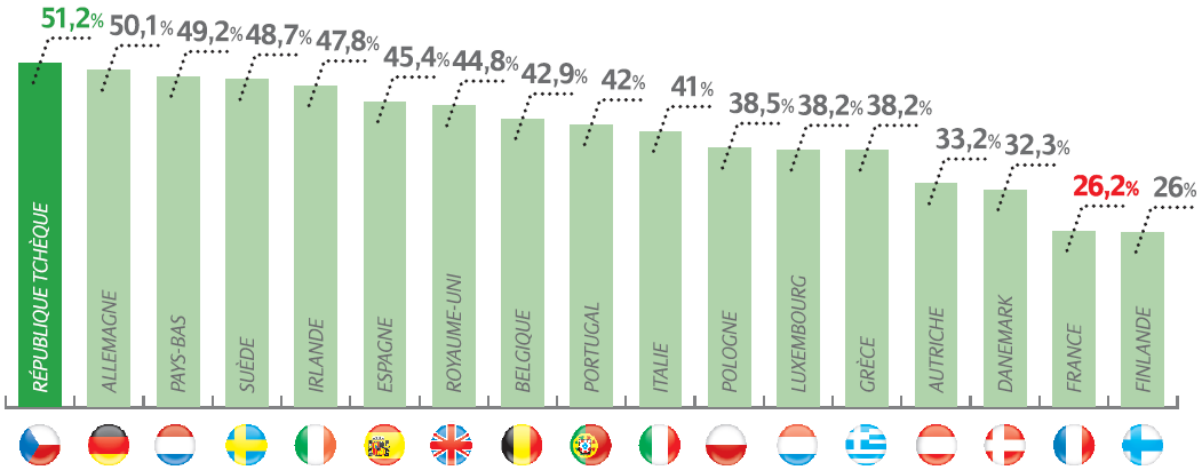
Rappelons que cette directive se fixait comme objectif la réduction des impacts des déchets d'emballage sur l'environnement en définissant trois exigences essentielles : réduction à la source, réutilisation et valorisation. Cette dernière peut prendre la forme de trois alternatives : valorisation matière (recyclage), valorisation énergétique (incinération), valorisation organique (compostage).

Transposée dans le droit français par de nombreux textes dont le Décret 98-638 portant sur les exigences environnementales dans la conception et la fabrication des emballages, elle a été complétée au niveau nationale lors de la mise en place

des lois faisant suite au Grenelle de l'environnement et du code de l'environnement.

Dès 1992 par son Décret 92-377, la France impliquait les entreprises dans la gestion des déchets d'emballage et instituait par la même la REP (Responsabilité élargie des producteurs) qui a par exemple donné naissance pour les emballages ménagers à Eco-Emballage devenu récemment CITEO.

Dans ce contexte le recyclage des matières plastiques est un enjeu important mais les taux européen (30%) et français (26%) restent largement insuffisants.



Taux de recyclage des emballages plastiques au niveau européen en 2016

Source : Plastic Europe

Par sa nouvelle Directive « Economie circulaire » (UE) 2018/852 l'Europe fixe de nouveau objectifs : recycler 50% des déchets d'emballages plastiques en 2025 et 55% en 2030.

A cela s'ajoute la Directive dite **« Single-use Plastics » (Sup)** qui valide définitivement l'interdiction de certains plastiques à usage unique : assiettes, couverts ou encore pailles seront concernés par cette interdiction qui entrera en vigueur au plus tard début 2021.

Elle fixe, en outre, un objectif de collecte des bouteilles en plastique de 90 % des volumes d'ici à 2029, et un objectif de 25 % de contenu recyclé dans les bouteilles en plastique d'ici à 2025, et de 30 % d'ici à 2030.

Et pour compléter la tableau la loi française **« EGALIM »** durcit le ton en réduisant l'utilisation du plastique dans le domaine alimentaire par les interdictions suivantes :

- les contenants alimentaires de cuisson, de réchauffe et de service en plastique en restauration collective des collectivités locales en 2025 ;
- les touillettes et pailles en plastique dans la restauration, la vente à emporter, les cantines et les commerces alimentaires en 2020 ;
- les bouteilles d'eau en plastique dans les cantines scolaires en 2020.

La feuille de route pour l'économie circulaire (FREC) décline de manière opérationnelle la transition à opérer pour passer d'un modèle économique linéaire « fabriquer, consommer, jeter » à un modèle circulaire qui intègrera l'ensemble du cycle de vie des produits, de leur écoconception à la gestion des déchets, en passant bien évidemment par leur consommation en limitant les gaspillages. Elle se traduit en cinquante mesures dont un grand nombre porte sur le tri, la valorisation des déchets et l'éco-conception.

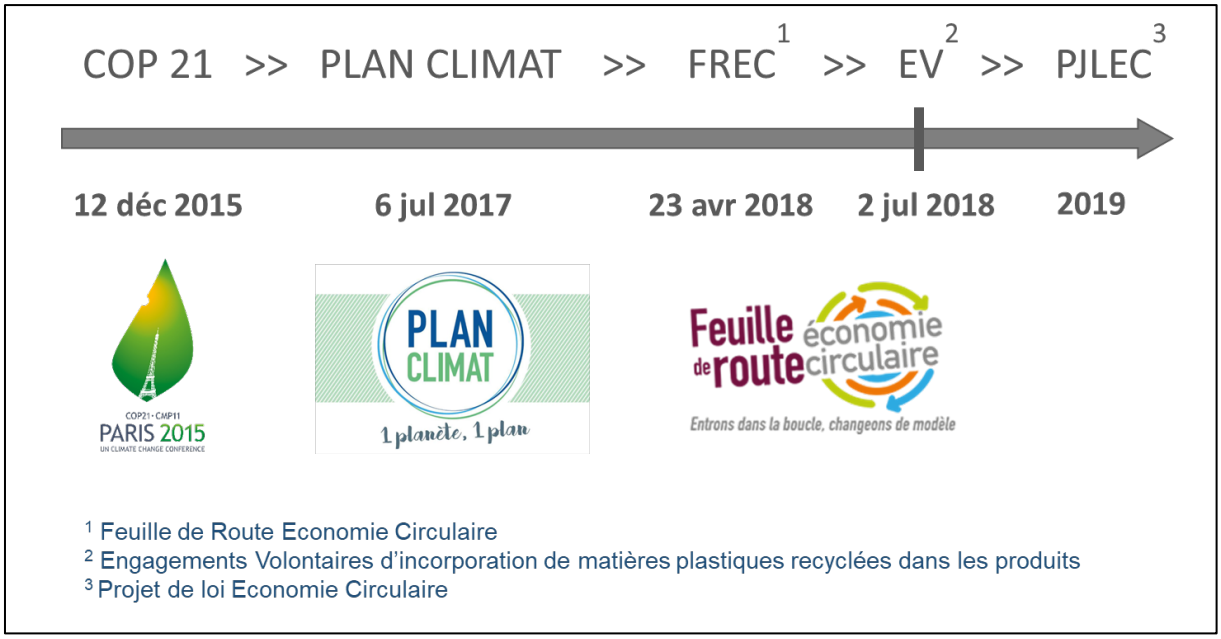
Source: MTES, 2018.

La Fédération de la Plasturgie et des Composites a répondu positivement par un engagement volontaire de la profession afin d'accélérer cette transition, et atteindre un objectif d'intégration d'1 million de tonnes de plastiques recyclés d'ici à 2025, soit 20% des plastiques consommés par les plasturgistes.

Cette même fédération vient de s'engager (20 septembre 2019) au niveau européen dans la **Circular Plastics Alliance** qui, sous l'impulsion de la Commission européenne et d'EuPC (European Plastics Converters), a pour **objectif d'intégrer 10 millions de tonnes de plastiques recyclés dans la conception des produits en Europe en 2025.**

Il s'agit d'une feuille de route qui rassemble les acteurs publics et privés des filières plastiques pour promouvoir des actions et des engagements volontaires en faveur du recyclage des plastiques. Elle définit cinq axes prioritaires :

- La collecte et le tri des déchets plastiques
- La conception de produits pour le recyclage
- L'utilisation de plastiques recyclés dans le contenu des produits
- La R&D et les investissements, y compris pour le recyclage chimique
- La surveillance des plastiques recyclés vendus dans l'Union Européenne



Accélération de l'agenda politique

- **Des contraintes technico-économiques fortes**

Selon un rapport publié par l'ADEME en 2016, les plastiques recyclés représentaient seulement 6% de la consommation totale de plastiques en France, alors que les papiers-cartons recyclés représentaient 66% de la

consommation totale (chiffres 2014). Comment peut-on expliquer une telle différence ?

S'il existe différents types de papiers-cartons, le polymère de base reste la cellulose. Dans le domaine du plastique il existe un certain nombre de polymères différents qui peuvent être aussi bien à l'état de mono-matière que mélangés ou complexés entre eux. Cette association confère aux emballages plastiques les nombreuses fonctionnalités que l'on connaît : mise en forme, soudabilité, imperméabilité, transparence ou non, etc.

Il existe un grand nombre de résines et de nombreuses formulations qui font appel également à de multiples additifs nécessaires à la mise en œuvre et à la protection des matériaux (antioxydants, plastifiants, agents glissants,..)

Dans le cas des polyoléfines, polymères les plus souvent utilisés dans le secteur de l'emballage (Polyéthylène, Polypropylène) il existe des « grades » différents correspondant à des technologies de transformation : le grade « extrusion » (bas MFI*) produira des films ou des emballages souples, le grade « injection » (MFI* élevé) sera à l'origine d'emballages plus rigides et volumiques.

Pour un même polymère on distinguera aussi, en fonction de la formulation, des grades dit « alimentaires » et « non alimentaires ».

**MFI = Melt Flow Index*

A cela s'ajoute des éléments de décor tels que les pigments et les encres déposées en surface ou au sein du matériau (opacifiants, impression sandwich, étiquette dans le moule) qui vont ensuite complexifier le tri et la séparation lors du recyclage.

L'utilisation des emballages en plastique est également une étape supplémentaire où des contaminations physico-chimiques vont intervenir du fait de la mise au contact avec des produits de toute nature (aliments, produits cosmétiques, lessives). Ce contact voulu ou accidentel va donc occasionner des résidus dans l'emballage, des adsorptions en surface ou encore des absorptions au cœur de la matière, c'est le cas notamment des matières grasses et des composés aromatiques. Ces phénomènes peuvent être à l'origine de dégradations même du matériau.

Dans le cadre de la filière REP « déchets d'emballage » à l'origine des consignes de tri, l'emballage, passé au stade de déchet, va se retrouver mélangé à d'autres

matériaux, plastiques ou non. Ce mélange peut également être à l'origine de contaminations croisées.

Pour un polymère de même grades (exemple des bouteilles d'eau et de boissons gazeuses en PET) la couleur peut constituer un perturbateur du tri ultérieur et de la valorisation matière. Le cas de la bouteille de lait en PET opaque illustre bien la difficulté : au-delà de 8-10% massique de ce type de PET dans la filière de valorisation sous forme de fibres, la présence d'opacifiant nuit à leur fabrication.

La mise en place actuelle de l'extension des consignes de tri va bien évidemment compliquer le tri des différents matériaux plastiques entre eux du fait de leur diversité (type de résines, grades, usages,…).

On comprend aisément que l'ensemble de ces opérations de tri et de récupération a un coût sur la matière finale que représentent les MPR (Matières plastiques recyclées) pouvant entrer en concurrence avec des résines vierges soumises au cours fluctuant du pétrole. D'autant que ces opérations peuvent aboutir à des matières dégradées qu'il sera nécessaire de reformuler avec des additifs ou d'autres matières vierges, cette opération supplémentaire réalisée par le régénérateur ou un compoundeur constitue un surcoût.

La filière de tri et de recyclage des emballages plastiques est donc soumise à des contraintes économiques fortes, dans un contexte de fluctuation des sources et des cours des matières. L'équilibre économique est fragile et pourrait être déstabilisé par des décisions politiques hâtives telles que la consigne faisant débat aujourd'hui.

La production de MPR à plus forte valeur ajoutée nécessite donc des opérations de tri pour aboutir à des gisements plus homogènes, condition indispensable pour orienter ces matières vers des usages sélectifs et sûrs pour les consommateurs.

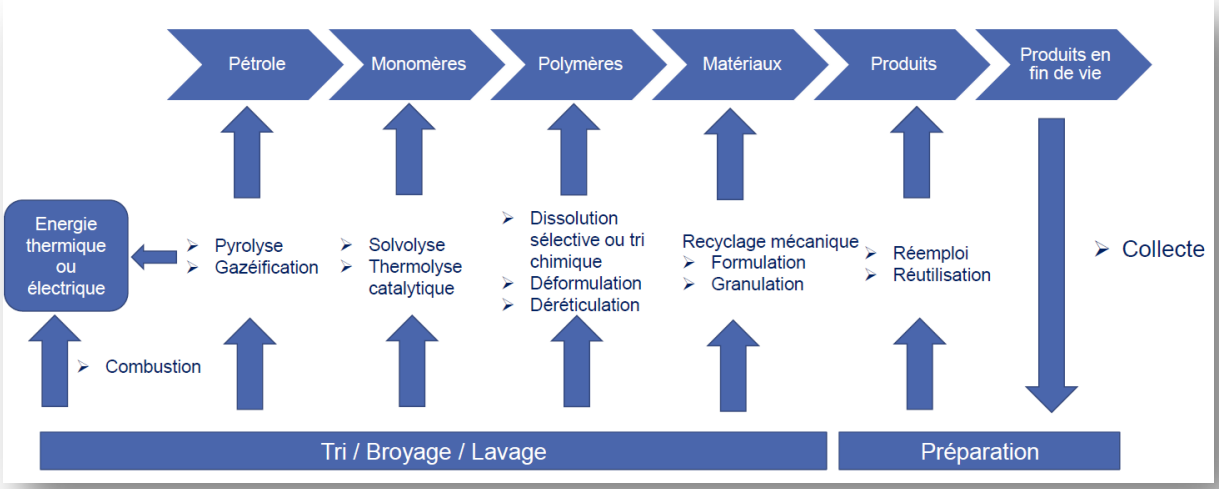


Schéma de Recyclage des plastiques – Source : 2ACR

- **Recyclage mécanique versus recyclage chimique**

Face à l'enjeux de doubler le taux de recyclage des matières plastiques d'ici 2022 (actuellement à 55%) tout en favorisant une économie circulaire la plus « noble » possible, il est nécessaire de développer différentes alternatives de recyclage de façon complémentaire et non concurrentielle.

Aujourd'hui la majeure partie des plastiques (99%) est recyclée mécaniquement.

Toutefois avant de parler de recyclage il faut concevoir les emballages en intégrant dès le début cette étape clé du cycle de vie : on parlera d'écoconception, d'éco-design ou encore plus particulièrement de « Design for recyclability ».

Les critères à prendre en compte pour le recyclage sont :

- la nature et caractéristique des matières plastiques utilisées
- la compatibilité physico-chimique des matériaux entre eux
- la Facilité de séparer voir de délaminer (séparation des couches en cas de multicouches)
- La compatibilité des compositions de matériaux avec le processus de recyclage
- les caractéristiques physiques des matériaux en vue de leur séparation dans le processus de recyclage

L'exemple des colorants et opacifiants souvent utilisés dans la formulation des matériaux d'emballage est à ce titre intéressant puisque que ces composés perturbent les outils de tri optique des polymères basés sur des techniques spectrales. Des solutions existent aujourd'hui afin de remplacer le noir de carbone et autres pigments (Colour Tone Masterbatch, BASF, Colour Matrix group).

Le recyclage mécanique est basé sur une succession d'opérations de tri dimensionnel, tri matière, nettoyage et séparation pour aboutir à une nouvelle matière la plus homogène possible de pureté de l'ordre de 99%. Le taux d'impuretés restant n'est parfois pas suffisant pour garantir certains usages tels que l'emballage alimentaire.

Il faut donc soit améliorer les technologies mise en œuvre au niveau du recyclage mécanique, soit envisager un retour à des molécules plus courtes voir au monomère de base, on parlera alors de recyclage chimique.

Ainsi différentes méthodes sont proposées pour augmenter l'efficacité du tri ou optimiser la valorisation de MPR :

- Tri par flottation : utilisé pour séparer des plastiques de densité proche mais qui peuvent avoir des caractères hydrophobes/hydrophiles différents. Ce procédé est basé sur l'injection de bulles d'air permettant d'isoler l'un des matériaux. Type d'application : séparation PS/ABS

- Intégration de traceurs optiques : encore à l'étape de développement cette technologie consiste à incorporer au matériau de base des additifs à faible concentration pour le rendre détectable par des outils de tri optique. Type d'application : séparation PP chargé/PP non chargé

- Dissolution sélective : elle peut être mise en œuvre pour séparer des matériaux les uns aux autres (cas des emballages multicouches plastique/plastique, plastique/métal). C'est le cas des films PA/PE très utilisés dans le domaine alimentaire notamment pour des opérations de cuisson dans l'emballage. C'est sur cette technologie qu'est basée le projet d'incorporation de PS issu du recyclage des pots de yaourt à des fins de matériau isolant. (Projet Total/Saint-Gobain/Syndifrais/Citeo)

La dissolution sélective peut également être utilisée pour désodoriser et dépigmenter des plastiques (procédé PureCycle Technologies)

Sous cette même rubrique on peut citer également le projet de délamination programmée par l'utilisation d'enzymes au niveau des colles associant différents films (**voir encadré projet TERMINUS**)

Le projet H2020 TERMINUS est financé par l'Union Européenne (H2020-NMBP-ST-IND-2018).
Grant agreement : 814400

Le projet TERMINUS a pour ambition de relever le défi du recyclage et de la réutilisation des matériaux d'emballage souples multicouches utilisés dans les aliments, boissons, cosmétiques, aliments pour animaux domestiques, engrais at autres denrées périssables en général. Ces plastiques d'emballage n'étant pas conçus au départ pour être recyclés, ils sont actuellement incinérés ou mis en décharge. TERMINUS développera un emballage multicouche intelligent doté d'une fonction intrinsèque d'auto-délamination des couches. L'innovation principale du projet consiste à inclure des enzymes à activité contrôlée et stimulable dans les adhésifs et interphases entre les différentes couches de polymère composant le matériau d'emballage. Après utilisation, la dégradation enzymatique de l'adhésif et de la couche de liaison est déclenchée par le biais d'une solution aqueuse, d'UV et de cyclodextrines. La délamination survient alors, ce qui permet de récupérer, de recycler et de réutiliser les matériaux monocouches, répondant ainsi aux objectifs d'économie circulaire et d'environnement de l'Union Européenne. La technologie sera appliquée aux adhésifs biodégradables à base de PUR utilisés pour le laminage à froid, ainsi qu'aux polymères et couches de liaison (PBS, PLA, PPC ou PCL) en extrusion-soufflage.

Pour atteindre ses objectifs innovants et ambitieux, TERMINUS s'appuie sur une équipe multidisciplinaire d'institutions renommées de 8 pays européens (France, Belgique, Allemagne, Italie, Suisse, Norvège, Suède, Lituanie) ayant une expertise dans la sélection des enzymes, la protection thermique et l'activation des enzymes, la biodégradation enzymatique des polymères, la formulation avancée de polymères, la fabrication d'emballages en plastique multicouches, le recyclage des plastiques.

SIGMA Clermont est le coordinateur du projet et le leader de deux lots de travail. Le projet a débuté le 1er janvier 2019 et durera 49 mois. Le centre technique français de la plasturgie et des composites IPC est partenaire de ce projet.

- Désencrage de surface : par dissolution des encres le procédé permet de revenir à des matières décolorées et ainsi de favoriser leur valorisation (Procédé Cadel E-inking)

- Décontamination : l'usage, la récupération hétérogène des matériaux plastiques, leur post transformation sont susceptibles de générés des polluants ou des composés néoformés qui rendent inaptes les MPR au contact alimentaire. En effet les procédés de recyclage des plastiques sont soumis au Règlement (CE) 282/2008 et doivent aboutir à une accréditation de l'EFSA. Le procédé doit démontrer son efficacité en matière de dépollution. Seul le rPET obtenu par un procédé de thermodésorption est actuellement autorisé. Pour les polyoléfines, résines hydrophobes, la décontamination est plus difficile du fait des nombreuses substances de poids moléculaire variable susceptibles de s'y absorber.

  Un procédé utilisant le CO2 supercritique est actuellement à l'étude dans le cadre du projet SUPErPE cofinancé par CITEO (**voir encadré SUPrPE**).

SUPErPE

Faire progresser l'intégration de matières recyclées dans les emballages

Les déchets plastiques en polyéthylène PE et en polypropylène PP sont aujourd'hui recyclés. Néanmoins l'utilisation de cette matière recyclée dans des applications nécessitant une aptitude au contact alimentaire n'est pas possible car les procédés de décontamination existants ne sont pas en mesure de purifier suffisamment ce type de polymères. Le projet a pour but de valider un procédé de purification du PE et PP recyclés permettant de recouvrir l'aptitude au contact alimentaire, associé à la définition d'une procédure d'accréditation (challenge test) inédite auprès des autorités compétentes. Le projet constitue une suite à un projet « FUI » REPALI 2. Nom du projet : SUPErPE Porteur du projet : Barbier (leader dans la fabrication de films en polyéthylène destinés à l'agriculture, l'industrie et le commerce) et Albéa (solutions de packaging), IMP (laboratoire d'ingénierie des matériaux polymères), IPC (centre technique industriel de la plasturgie et des composites), CTCPA (centre technique agroalimentaire), Innovation fluides supercritiques (centre de ressources techniques pour le développement des fluides supercritiques).

https://bo.citeo.com/sites/default/files/2019-06/Projets_RD_2019_Citeo_20190614.pdf

Le recyclage des matières plastiques est parfois limité du fait de la dégradation de leurs propriétés mécaniques. Il est alors nécessaire de les « booster » en y intégrant de nouveaux additifs ou en les rendant compatibles avec d'autres résines.

Des technologies d'extrusion élongationnelle ont également été proposées pour recycler des matériaux complexes à base d'EVOH par exemple tout en leur attribuant de bonnes qualités mécaniques (**voir encadré procédé METEOR**).

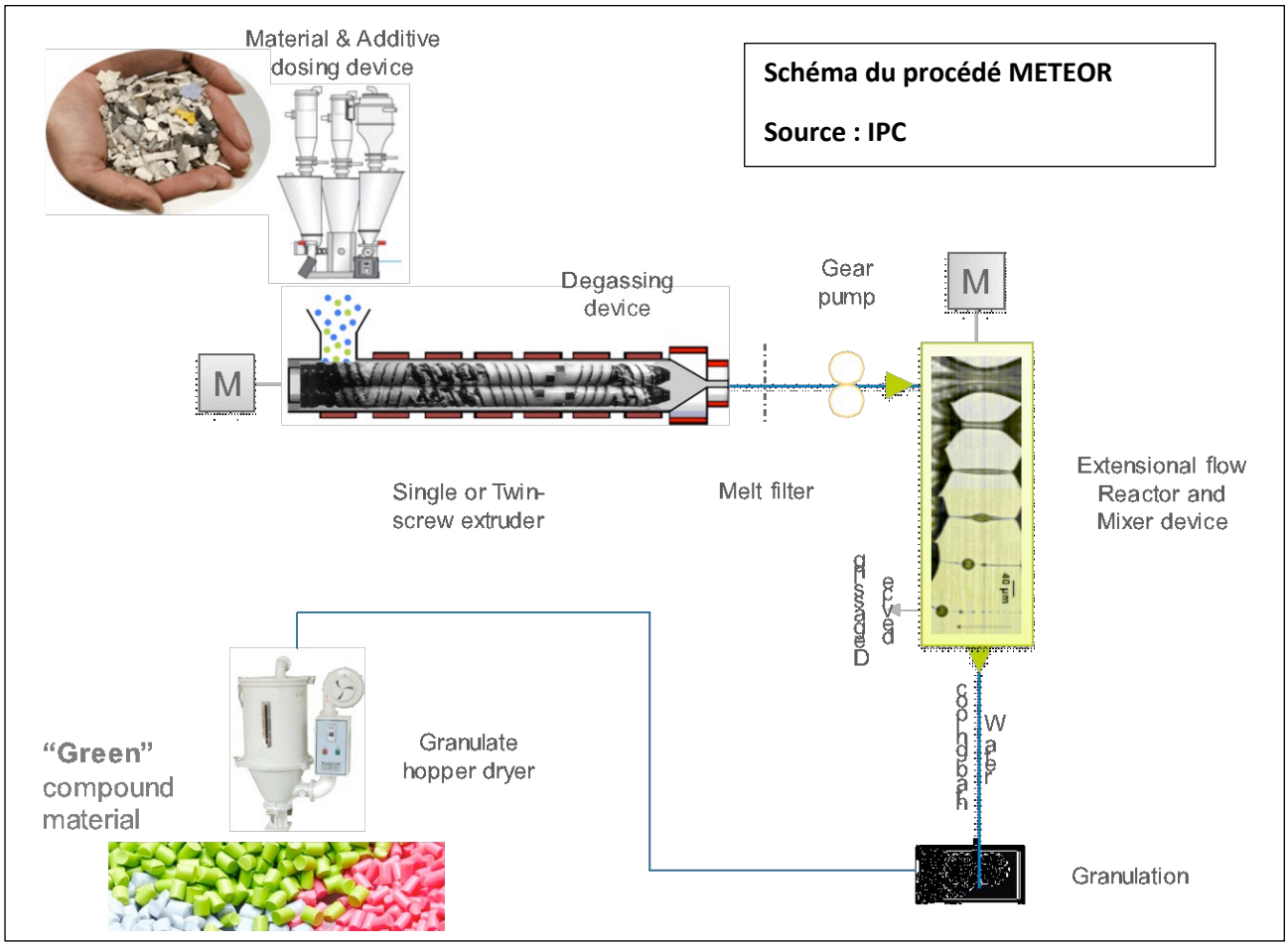


Schéma du procédé METEOR

Source : IPC

Le recyclage chimique ne représente actuellement que 0.8% des matières plastiques recyclées du fait en particulier de son coût et de ses impacts environnementaux. Toutefois les nouveaux objectifs fixés pour le recyclage et la valorisation des déchets plastiques redonnent des couleurs à ce type de valorisation sur laquelle de nombreuses initiatives voient le jour.

Le recyclage chimique est défini comme étant le résultat de la conversion en monomère ou la production de nouvelles matières premières par modification

de la structure chimique des plastiques par cracking, gazéification ou dépolymérisation (norme ISO 15270).

La dépolymérisation peut être partielle ou totale, dans ce dernier cas on revient au monomère de base ou à des précurseurs (cas du PET). Elle peut être réalisée de façon chimique, enzymatique ou thermique.

Le cracking est une voie thermique particulière, issu de rupture de chaînes aléatoire, il aboutit à la formation de mélanges de produits.

La dépolymérisation chimique (ou solvolyse) fait généralement appel à des solvants. Selon le type de solvant utilisé on distinguera la glycolyse, l'hydrolyse la méthanolyse ou l'aminolyse. Les produits qui en sont issus sont de nature chimique différente.

Les initiatives connues à ce jour s'intéressent principalement au PET et diffèrent entre elles par les opérations pratiquées et la pureté des produits obtenus.

Citons quelques exemples les plus avancés :

- Jeplan (japon) procédé par glycolyse
- Loop Industrie (Canada) procédé par méthanolyse et catalyseur spécifique
- Garbo (Italie) procédé par glycolyse et purification
- Ioniqa (Pays Bas) procédé par glycolyse et catalyseur à liquides ioniques
- Soprema (France) dépolymérisation partielle jusqu'au polyols pour la fabrication de mousse en polyuréthane (projet soutenu par l'ADEME et CITEO)

D'autres polymères comme les polyamides (PA) et les polyuréthanes (PUR) peuvent être également dépolymérisés chimiquement mais les volumes de déchets d'emballages et leur hétérogénéité sont un frein à l'industrialisation.

D'autres procédés de recyclage chimique basé sur des voies réductrices sont actuellement à l'étude au CEA sur des matériaux divers (PET, PA, PUR, PC).

La dépolymérisation enzymatique, qui est une voie chimique particulière, suscite un grand intérêt pour un certain nombre d'avantages : sélectivité, technologie « douce », mise en œuvre sécuritaire moins contraignante.

En France, et plus particulièrement à Clermont-Ferrand, la société CARBIOS développe depuis plusieurs années ce type de procédé qui a fait l'objet de nombreux dépôts de brevets dont un aux Etats Unis.

Elle va passer au niveau préindustriel par la mise en place d'un démonstrateur à Saint Fons, près de Lyon, sur le site du chimiste KemOne. En partenariat avec TechnipFMC, CARBIOS a choisi de développer le procédé sur le recyclage du PET.

Cette démarche suscite un grand intérêt de la part des industriels utilisateurs conditionneur d'eau ou de boisson comme l'atteste l'entrée récente (avril 2019) au consortium de Nestlé Waters, Pepsico, Suntory Beverage et Food Europe.

La dépolymérisation thermique et le cracking se réalisent en milieu réducteur, c'est-à-dire en l'absence d'oxygène (pyrolyse, gazéification).

Selon les objectifs retenus ces traitements peuvent s'adresser à des mélanges de polymères ou à des résines bien identifiées.

Dans le premier cas on obtiendra des fractions orientées vers la fabrication de gaz, hydrocarbures et substituts de pétrole (« plastics to fuel »). Ces technologies intéressent bien évidemment les grands chimistes comme BASF (projet ChemCycle) ou les pétroliers comme SABIC (procédé Plastic Energy).

Il faut souligner toutefois que la finalité « plastic to fuel », au même titre que l'incinération, n'est pas reconnue par la réglementation européenne (Directive cadre déchets 2008/98/CE) comme du recyclage. Elle est plus à placer dans la valorisation énergétique.

Dans le deuxième cas on cherche à revenir au monomère de base, ce qui nécessite d'avoir une matière la plus homogène possible et une dépolymérisation contrôlée (« plastics to monomers »)

Ces technologies ne sont pas appropriées à tous les types de résines mais plutôt aux chaines totalement carbonées comme les polyoléfines, les polystyréniques.

Dans la pratique, le PE et PP aboutirons principalement à du cracking pour des raisons de rupture de chaînes aléatoires et de nombreuses réactions non contrôlées.

Des applications existent pour la dépolymérisation du PS : on peut citer la société Agylis en partenariat avec American Styrenics, le canadien Pyrowave en consortium avec Inéos (chimiste) et Revital Polymers (recycleur) pour la mise en place d'un procédé de dépolymérisation catalytique par micro-ondes.

- **Conclusion**

Les nombreuses initiatives prises ces derniers temps en matière de recyclage des plastiques montrent l'intérêt politique et économique porté par les enjeux environnementaux.

Si de nombreuses technologies existent plus ou moins prometteuses, elles ne pourront voir le jour qu'à condition que l'ensemble des acteurs de la chaîne de la valeur de l'économie circulaire soient concernés, partenaires et cohérents.

Ceci implique :

- des décisions politiques claires, non contradictoires et ouvertes aux différentes voies de valorisation ;

- des améliorations au niveau des étapes de tri et de récupération afin d'aboutir à des sélections de matières de plus en plus spécifiques pour des usages donnés ;

- une travail d'écoconception en amont afin de limiter dans la mesure du possible, les composants, les matériaux différents, les substances tout en maintenant les fonctionnalités des emballages ;

- une démarche d'analyse de risques basée sur la connaissance des substances et des technologies, sur la traçabilité, sur des systèmes qualité propres à rassurer les utilisateurs et les consommateurs d'emballages recyclés ;

- l'évaluation économique et environnemental des processus mis en place afin de mesurer leurs impacts et leur efficacité.

Bibliographie et Sources

http://www.2acr.eu/

https://www.ellenmacarthurfoundation.org/fr/economie-circulaire/concept

https://www.emballagesmagazine.com/mediatheque/2/9/0/000035092.pdf

Séminaire Soparco – 25/05/2019 – Présentation IPC