



## **Coextrudierte PE/PA-Mehrschichtfolien sind recyclingfähig!**

Dr. Rolf-Egbert Grützner\*, Dr. Roland Bothor\*\*

\* BASF SE, D-67056 Ludwigshafen/Rhein; \*\* Institut cyclos-HTP GmbH, D-52076 Aachen

---

### Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung.....	2
2. Basisuntersuchungen BASF-Gemeinschaftsprojekt mit Dow, RW Plast und W&H .....	4
3. Forschungsprojekt bei Institut cyclos-HTP .....	16
4. Schlussfolgerungen und Ausblick .....	28
5. Literatur / Referenzen .....	32



## 1. Einleitung

Aliphatische Polyamide wie z. B. Polyamid 6 (PA6) und auch die Co-Polyamide aus PA6- und PA6.6-Monomeren (PA6/6.6) haben sich über Jahrzehnte zu einem festen Bestandteil von flexiblen Verpackungslösungen etwa für fetthaltige, sauerstoffempfindliche Lebensmittel oder diverse medizinische Artikel entwickelt.

Zwar ist der Einsatz von Polyamiden (PA) auf diesem Gebiet im Vergleich zu konventionellen Verpackungspolymeren wie Polyethylen (PE), Polypropylen (PP) oder Polyethylenterephthalat (PET) mengenmäßig wesentlich geringer und eher den Spezialitäten zuzurechnen<sup>(#1)</sup>, durch die Integration von PA lassen sich jedoch wegen dessen Eigenschaften im Hinblick auf mechanische Festigkeit und Barrierewirkung in polyolefinbasierten Verpackungen ökologisch vorteilhafte Verpackungsstrukturen designen. Diese sind dünner (Stichwort: „downgauging“) und kommen somit ressourcenschonend mit einer geringeren Polymermenge aus. Das führt zu einem kleineren CO<sub>2</sub>-Fußabdruck für diese Strukturen und zu weniger Verpackungsmüll, und zwar ohne dabei Abstriche an einem effektiven Langzeitschutz von verpackten Lebensmitteln machen zu müssen.

Diesen positiven Einflüssen von Polyamiden (PA) auf die Nachhaltigkeit von Mehrschichtverbundfolien steht gegenüber, dass diese aktuell noch immer als Störfaktoren beim mechanischen Recycling der PE-Folienfraktionen aus den Sammlungen von Haushaltskunststoffabfällen angesehen werden. Nach wie vor wird davon ausgegangen, dass Polyamide mit dem PE-Abfallstrom unverträglich sind, somit eine Verunreinigung darstellen und aussortiert werden müssen. Mittel- und langfristig sollen Polyamide sogar generell aus den Verpackungsstrukturen verschwinden, da sie inakzeptabel für die heutigen mechanischen Recyclingverfahren sind<sup>(#2-4)</sup>.

Die Klassifizierung von Verpackungsmaterialien in Bezug auf ihre Recyclingfähigkeit ist sehr stark von politischen und wirtschaftlichen Interessen durchdrungen. Deshalb ist ein ganzheitlicher Betrachtungsansatz von Vor- und Nachteilen einzelner Polymere und den damit verbundenen Verpackungslösungen unter Berücksichtigung pragmatischer Rahmenbedingungen nicht nur unmöglich, sondern in Einzelfällen auch nicht erwünscht.

Wenn von Verbänden, ohne technische Grundlagen einzubeziehen, von vornherein sogenannte „Ampellösungen“ propagiert werden, in denen das Vorhandensein von 95 % Polyolefin (Recyclclass<sup>(#5)</sup>) als Basiskriterium für das Erreichen der Kategorie „grün = volle Recyclingfähigkeit“ verankert ist, muss an objektiven Rahmenbedingungen im Sinne von Wettbewerbsgleichheit gezweifelt werden.

Diese Einstufungen sind nicht nur aus technischer Sicht fragwürdig, da sie den aktuellen Stand der Technik nicht realistisch wiedergeben. Sie unterstützen sogar den Ersatz von optimierten PE/PA-basierten Mehrschichtfolienstrukturen durch Polyolefin-Lösungen oder kunststoffbeschichtete Papierstrukturen, obwohl diese in vielen Fällen weniger nachhaltig sind. Darüber hinaus hat die Klassifizierung von PA als „unverträglich“ bereits massiven Einfluss auf die Empfehlungen der Gesetzgebung (z. B. Mindeststandard zum VerPackG der Zentralen Stelle Verpackungsregister (ZSVR)<sup>(#2)</sup>) oder auf Design Guidelines von Verbänden und Assoziationen (z. B. RecyClass, CEFLEX, EllenMacArthur Foundation<sup>(#5-7)</sup>) genommen. Viele dieser Empfehlungen dienen wiederum als grundlegende Orientierungsbasis für den Einzelhandel (z. B. Discounter, Handelsketten<sup>(#8, 9)</sup>), der wiederum über seine eigenen Designrichtlinien massiv Druck auf die Wertschöpfungskette ausübt, um Verpackungslösungen nach seinen Vorstellungen zu schaffen.

Grundlage für die Bemessung der Recyclingfähigkeit nach § 21 VerpackG ist der Mindeststandard der ZSVR<sup>(#2)</sup>. Die Anlage 3 des Mindeststandards bildet die Grundlage für die Ermittlung von Unverträglichkeiten gemäß Ziffer 4.3. „PA-Barrieren“ sind hier bislang als „Unverträglichkeit“ in den Verpackungsgruppen „Folie und LDPE“ bzw. „PP“ aufgeführt. Eine Differenzierung, beispielsweise nach PA-Typen oder Haftvermittlerkomponenten, wird nicht vorgenommen.

Diese Einstufung beruht auf verschiedenen Eigenschaften von Polyamiden beim Einsatz in PE-basierten Verpackungen. Insbesondere unterscheiden sich die Schmelzpunkte von PA und PE signifikant. PA besitzt im Gegensatz zu PE eine ausgeprägte Polarität, was theoretisch zu Abstoßungseffekten zwischen diesen beiden Werkstoffen und zu hygroskopischen Eigenschaften von PA führt.

Für eine abweichende Feststellung, etwa die, dass PA die Recyclingfähigkeit nicht negativ beeinflusst, muss aktuell nach Ziffer 4.3. des Mindeststandards ein Einzelnachweis erbracht werden.

Zur Führung eines solchen Einzelnachweises sind umfangreiche Untersuchungen sowohl bei BASF als auch bei Institut cyclos-HTP als unabhängigem Unternehmen zur Klassifizierung und Testierung der Recyclingfähigkeit von Verpackungen und Materialien durchgeführt worden, über die nachfolgend berichtet wird. Das Konzept der vorliegenden Untersuchungen basiert auf folgenden Grundlagen:

- PE und PA sind thermodynamisch unverträglich, aber bei Einsatz geeigneter Aufbereitungs- und Extrusionstechnik in einem Konzentrationsbereich von PA  $\ll$  10 % homogen dispergierbar und weiterverarbeitbar.<sup>(#10)</sup>
- PA-Konzentrationen von  $\geq$  10 % lassen sich mittels Verträglichmacher, sogenannte Compatibilizer, über kovalente Verknüpfungen zum PE zu homogenen Blends dispergieren.<sup>(#11–13)</sup>
- Zur Regranulierung wurden standardmäßig kommerziell verfügbare Aufbereitungsmethoden eingesetzt (Kombination von Mühle/Stopfwerk mit Einschneckenextruder und Unterwassergranuliersystem).
- Der PA-Anteil in gemischten Kunststoffverpackungsabfällen aus Haushalten liegt in der EU unter 4 %<sup>(#14)</sup> und in Deutschland unter 3 %<sup>(#15)</sup> und beinhaltet sowohl PA6 als auch die niedriger schmelzenden PA6/6.6-CoPolyamide.
- Neben der Evaluierung typischer PE/PA-Mehrschichtfolienstrukturen mit 20–30 % PA-Anteil wurden diese Originalrezepturen sowohl mittels systematischer Verdünnungsreihen als auch durch den Einsatz unabhängiger Teststandards, die die aktuelle Recyclingpraxis widerspiegeln<sup>(#13)</sup>, auf realistische Konzentrationen, vergleichbar denen im gemischten Kunststoffabfall, angepasst.
- Neben der PA-Konzentration standen Temperaturprofil(e) sowie Feuchtigkeitsaufnahme bzw. notwendige Trocknungsschritte während der Regranulierung und der finalen Verarbeitung zu Blasfolien und/oder Spritzgussartikeln im Fokus der Untersuchungen.

## 2. Basisuntersuchungen BASF-Gemeinschaftsprojekt mit Dow, RW Plast und W&H

Die Arbeiten, die ursprünglich nur der Unterstützung unserer Kunden bei der Schließung ihres internen Materialkreislaufs dienen sollten, entwickelten sich schnell zu einer Basis für weitere, unabhängige Untersuchungen. Die grundlegenden Aussagen dieser Phase 1 werden deshalb vorab zusammengefasst.

Abbildung 1 illustriert das Versuchskonzept dieser Arbeiten.



Abb. 1: Übersicht Arbeitskonzept interne BASF-Untersuchungen

Als Basismaterial dienen coextrudierte PE/PA-Mehrschichtfolien mit 20 % PA-Anteil, wobei dieser sowohl von Polyamid 6 (PA6, Ultramid B40LN), als auch von einem Co-Polyamid 6/6.6 (PA6/6.6, Ultramid C40L) abgedeckt wurde. Der Schwerpunkt der Untersuchungen lag dabei auf dem PA6, das mit seinen Eigenschaften für das Worst-Case-Szenario steht: Schmelzpunkt = 220°C, hochviskos und hochkristallin, da eine nukleierte Rezeptur (Ultramid B40LN mit N = Nukleierungsadditiv) zum Einsatz kam. Zusätzlich zu der coextrudierten Basisrezeptur (Struktur B, Abb. 2) wurden bereits hier zwei unterschiedliche Compatibilizer in die Primärfolienstruktur integriert, um deren Wirksamkeit hinsichtlich einer homogenen Morphologie unverdünnter PA-Konzentrationen von > 10 % beurteilen zu können.

Abbildung 2 veranschaulicht am Beispiel der genutzten PE/PA6-Folienstruktur diese Rezepturvielefalt.

### PE/PA6-Mehrschichtfolienstrukturen

- **Referenz:** PE/PE/PE/PE/PE/PE/PE/PE/PE
- **Struktur B:** PE/PE/PE/HV#/B40LN/HV#/PE/PE/PE (20 % Ultramid® B40LN\*)
- **Struktur R:** PE/PE(inkl. CompR)/PE/HV/B40LN/HV/PE/PE(inkl. CompR)/PE  
(20 % B40LN, 2 x 2,5 % CompR = Retain 3000\*\*)
- **Struktur F:** PE/PE(inkl. CompF)/PE/HV/B40LN/HV/PE/PE(inkl. CompF)/PE  
(20 % B40LN, 2 x 2,5 % CompF = Fusabond E226\*\*\*)

#HV = Haftvermittler; \* Ultramid® B40LN = hochviskos (RV = 4,0), nukleiertes PA6, Quelle: BASF SE  
\*\* & \*\*\* verschiedene Compatibilizertypen, Quelle: Dow/DuPont

Abb. 2: Ausgewählte Beispiele untersuchter Mehrschichtfolienstrukturen

Alle Regranulierungen erfolgten unter praxisrelevanten Verarbeitungsbedingungen auf einer S Gran 95 (NGR) bei der RW Plast GmbH & Co. KG. Diese Maschine verfügt über eine Schredder-Stopfwerk-Einschneckenkombination, die ursprünglich für die Verarbeitung von reinen Polyolefin-Reststoffen konzipiert wurde, wobei die Schmelze standardmäßig mit einem Vakuum von max. -1 bar bei Durchsätzen von ca. 350 kg/h beaufschlagt wird. Die mittels Unterwassergranulierung gewonnenen Folienregranulate wurden nicht explizit getrocknet und auch nicht in feuchtigkeitsgeschützter Verpackung gelagert.

An den Regranulaten lassen sich mit geeigneten mikroskopischen Untersuchungsmethoden bereits gravierende Unterschiede hinsichtlich der Morphologie der jeweiligen Blends feststellen. Hierzu wurden Mikrotomschnitte der jeweiligen Regranulate angefärbt, mit polarisiertem Licht mikroskopiert und die Farbunterschiede mittels einer speziellen Kontrastmethode sichtbar gemacht. Alle polyolefinischen Komponenten werden grün visualisiert, alle Polyamiddomänen erscheinen auf den vorliegenden und allen nachfolgenden Abbildungen als rötlich-orange Bereiche.

Die Abbildungen 3a–c veranschaulichen diese Effekte im direkten Vergleich.

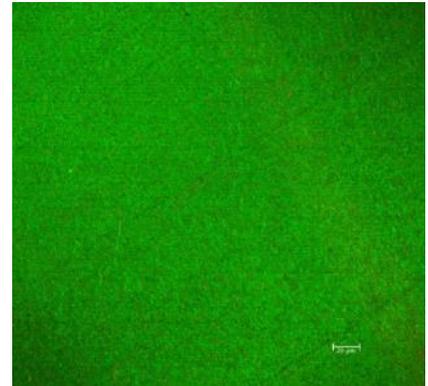
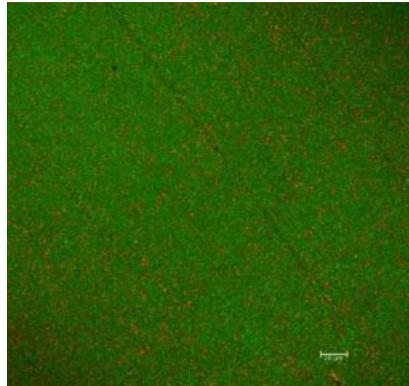
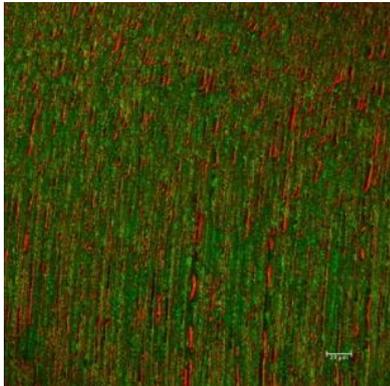


Abb. 3a: Morphologie Regranulat B    Abb. 3b: Morphologie Regranulat R    Abb. 3c: Morphologie Regranulat F

Während in Abbildung 3a die Unverträglichkeit der 80 % PE-/20 % PA6-Mischung durch die inhomogene Verteilung der PA-Blendkomponente (orange) in der PE-Matrix (grün) deutlich sichtbar ist, zeigen die Abbildungen 3b und 3c bereits zwei Beispiele für sehr effektive Kompatibilisierung. Die Verträglichmachung erfolgte im Verlauf einer standardmäßigen Regranulierung anhand von exzellenter Komponentenverteilung und -anbindung in einer homogenen Morphologie der vorliegenden PE-/PA-Blends.

Die im Anschluß durchgeführten systematischen Verdünnungsreihen mit Fokus auf den PE/PA-Blendregranulaten mit jeweils 20 % PA6 (Ultramid B40LN) bzw. 20 % PA6/6.6 (Ultramid C40L) bauten auf diesen ersten Erkenntnissen auf. Hierzu wurden einfache physikalische („Salz & Pfeffer“-)Mischungen direkt zu Monoblasfolien verarbeitet. Tabelle 1 fasst die Rezepturen dieser Versuche zusammen.

Während die schwarz hervorgehobenen Konzentrationsangaben (z. B. Regr**B** oder Regr**C**) den absoluten Anteil quantifizieren, repräsentieren die rot hervorgehobenen Konzentrationsdaten den absoluten Anteil des jeweiligen Polyamids (PA) bezogen auf die Gesamtstruktur (ebenfalls in %).

Tabelle 1: Versuchsübersicht Verdünnungsreihen PE/PA-Folienblends

Nr.	RegrB*(PA6 <sup>***</sup> ) % (%)	RegrR*(PA6 <sup>***</sup> ) % (%)	RegrF*(PA6 <sup>***</sup> ) % (%)	RegrC**(PA6/6.6 <sup>***</sup> ) % (%)	PE Ref (%)	Comp <sup>#</sup> (%)
1.0	-		-	-	100	-
1.1	100/20		-	-	-	-
1.2	-	100/20	-	-	-	-
1.3	-	-	100/20	-	-	-
2.5	-	-	-	100/20	-	-
3.1	50/10	-	-	-	50	-
3.2	37,5/7,5	-	-	-	62,5	-
3.3	25/5	-	-	-	75	-
1.4	95/19	-	-	-	-	5
4.2	50/10	-	-	-	45	5
4.3	37,5/7,5	-	-	-	57,5	5
4.4	25/5	-	-	-	70	5
3.8	-	-	-	50/10	50	-
3.9	-	-	-	37,5/7,5	62,5	-
3.10	-	-	-	25/5	75	-
4.10	-	-	-	97/19	-	3
4.12	-	-	-	50/10	27	3
4.13	-	-	-	37,5/7,5	59,5	3
4.14	-	-	-	25/5	72	3

\* siehe Abb. 1; \*\* 80 % PE/20 % Ultramid® C40L, \*\*\* % PA in Gesamtstruktur, # Compatibilizer Fusabond E226

Alle Monofolien wurden auf einer Technikumsmaschine vom Typ Weber 30 (Düse Ø 80 mm, BUR von 1:2,5, Durchsätze von ca. 5–7 kg/h) gefahren. Die verwendeten Temperaturprofile wurden in Verbindung mit geänderten Mischungsverhältnissen modifiziert und optimiert. Während für die Originalrezepturen mit 20 % PA-Anteilen Schmelzetemperaturen von 240°C (PA6) bzw. 220°C (PA6/6.6) notwendig waren, konnten bei Mischungsverhältnissen mit PA-Anteilen ≤ 10 % bis zu 20°C geringere Schmelzetemperaturen auf dem Extruder realisiert werden.

Die Analyse der resultierenden Monoblasfolien umfasste in erster Linie mechanische Kennwerte, während die Einschätzung der optischen Performance visuell vorgenommen wurde. Unterschiede bezüglich der Rheologie (Schmelzedruck etc.) ließen sich anhand der Fahrprotokolle feststellen. Ein Vergleich oder ein Monitoring etwa von Schmelzindexdaten verschiedener PE/PA-Blendrezepturen erfolgte in dieser Frühphase nicht.

Der Zugversuch wurde gemäß ISO 527-3:2017 durchgeführt und lieferte unter anderem Werte zur Zugfestigkeit und Reißdehnung sowie die Daten zum Zug-E-Modul.

Die Messung der Durchstoßfestigkeit (Puncture resistance) erfolgte nach DIN EN 14477 und die der Weiterreißfestigkeit (Elmendorf-Test) in Übereinstimmung mit DIN EN ISO 6383-2:2004. Die nachfolgenden Abbildungen 4 bis 6 – jeweils a (Maschinenrichtung = längs) bzw. b (Querrichtung = quer) veranschaulichen die gemessenen mechanischen Kennwerte mittels repräsentativer Vergleichsszenarien. Dies erfolgt in prozentualer Vergleichsdarstellung in Bezug auf einen jeweiligen 100 %-Referenzwert, gemessen an der polyamidfreien PE-Referenz.

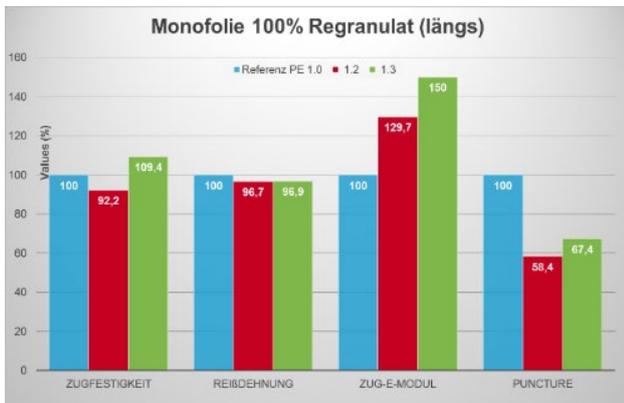


Abb. 4a: Folienmechanik 3 Basisrezepte (längs)

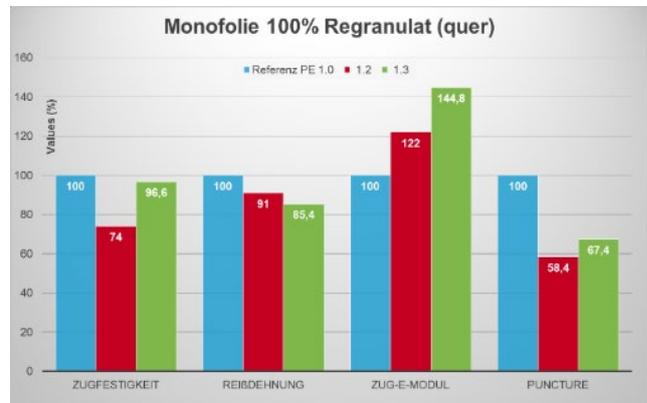


Abb. 4b: Folienmechanik 3 Basisrezepte (quer)

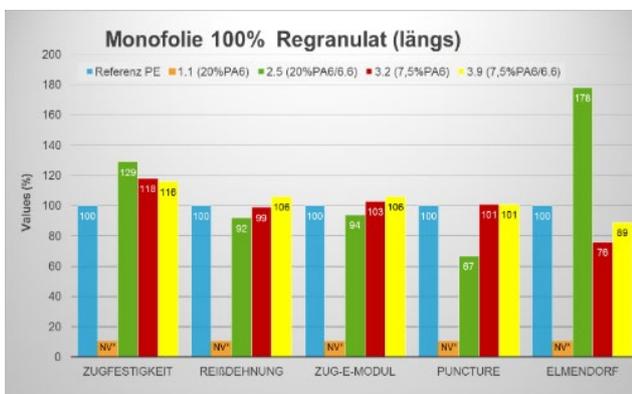


Abb. 5a: Folienmechanik, Verdünnung ohne Compatibilizer (längs)

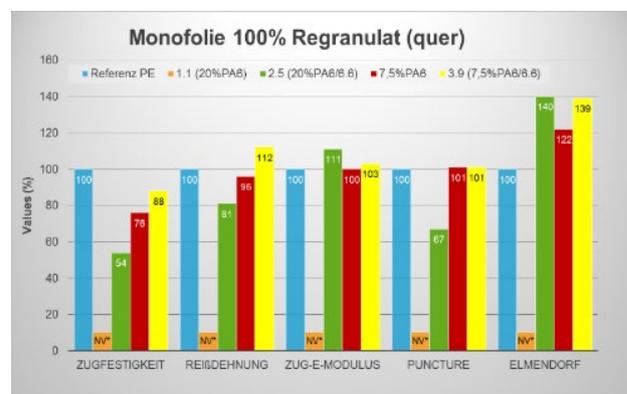


Abb. 5b: Folienmechanik, Verdünnung ohne Compatibilizer (quer)

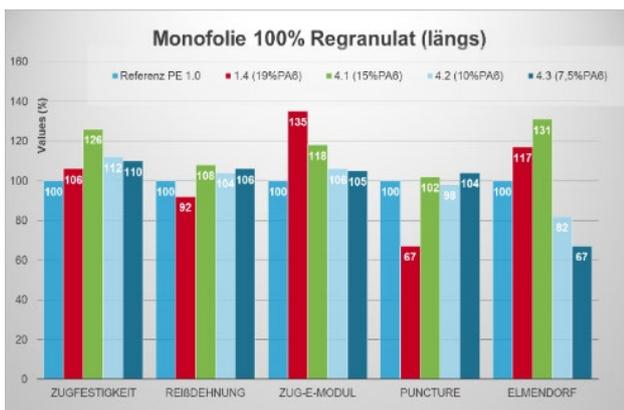


Abb. 6a: Folienmechanik PE/PA6, Verdünnung mit Compatibilizerzusatz (längs)

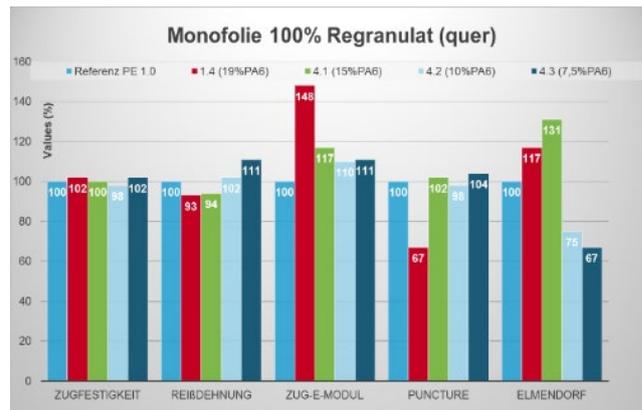


Abb. 6b: Folienmechanik PE/PA6, Verdünnung mit Compatibilizerzusatz (quer)

Die Abbildungen 4a/b veranschaulichen den Effekt einer Vorkompatibilisierung in der Primärfolie und bestätigen die Wirksamkeit. Trotz des hohen PA-Anteils von 20 % werden fast identische Festigkeits- und Dehnungswerte an den Folien aus 100 % Regranulat gemessen, der E-Modul zeigt sogar deutlich erhöhte Werte. Die Durchstoßfestigkeit nimmt zwar signifikant ab, doch stellt dies den Worst Case ohne jegliche Optimierung oder

Verdünnung dar. Dieses Ergebnis liegt weitab jeglicher Realität und ist deshalb irrelevant für die Praxis bei der Aufarbeitung sogenannter Post-Consumer-Kunststoffabfälle.

Die Abbildungen 5a/b repräsentieren mechanische Schlüsselkennwerte verdünnter PE/PA-Blends ohne den Einsatz von Compatibilizern. Hier zeigt sich eindrucksvoll, dass im Bereich  $< 10\%$  PA (hier:  $7,5\%$ ) bei praktisch allen gemessenen Kennwerten, inklusive der sensibleren Parameter Durchstoßfestigkeit und Elmendorf-Weiterreißfestigkeit, Daten generiert werden konnten, die zur Referenzprobe aus  $100\%$  PE-Neuware ausgezeichnet vergleichbar sind. Dies gilt sowohl für PA6 als auch für PA6/6.6-CoPolyamide, wobei PA6/6.6 offensichtlich leichter homogenisiert werden kann, denn es läßt sich im Gegensatz zum getesteten PE/PA6-Blend bereits mit einem PA-Anteil von  $20\%$  ohne zusätzlichen Compatibilizer verarbeiten. Dies bestätigt die Erwartungen aufgrund des niedrigeren Schmelzpunktes und des geringeren Kristallitanteils von PA6/6.6-Co-Polyamiden.

Kommt ein wirksamer Compatibilizer zum Einsatz, lassen sich auch PE/PA-Mischungen mit PA-Konzentrationen von  $> 10\%$  sehr effektiv homogenisieren. Die Abbildungen 6a/b veranschaulichen dies an ausgewählten PE/PA6-Blends.

Obwohl die gemessenen mechanischen Kennwerte, wie bereits in den vorangegangenen Abbildungen gezeigt, indirekte Schlussfolgerungen hinsichtlich der Qualität der erzeugten Blendmorphologien zulassen, wurden zusätzlich mikroskopische Untersuchungen unter Nutzung der bewährten Anfärbe-/Kontrasttechnologie in das Evaluierungsprogramm aufgenommen. Die Abbildungen 7 bis 12 illustrieren verschiedene Morphologiestrukturen anhand repräsentativer Proben von Monoblasfolien.

Im Unterschied zu den bereits vorgestellten Regranulatmorphologien wurde in den nachfolgenden Abbildungen eine andere Darstellungsweise gewählt. Während in der Reflexionsaufnahme im jeweiligen linken Teil der Abbildungen lediglich die grüne PE-Matrix visualisiert wird, zeigt die im rechten Teil separierte Fluoreszenzaufnahme den Polyamidanteil als rote Domänen.

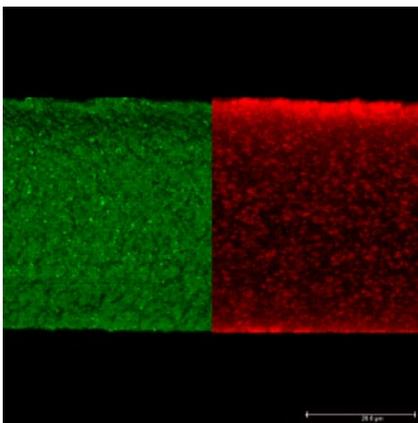


Abb. 7: Morphologie Folie 1.2  
(enthält  $20\%$  PA6 und  $5\%$  E226  
vorkompatibilisiert)

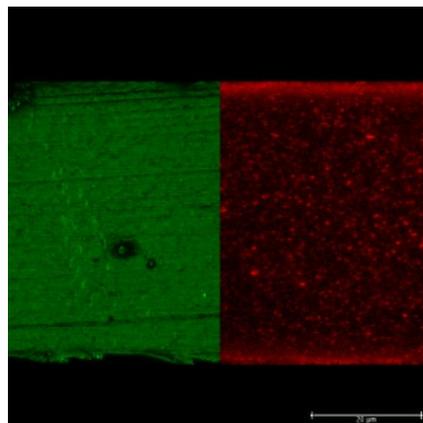


Abb. 8: Morphologie Folie 4.2  
(enthält  $10\%$  PA6 und  $5\%$  E226  
kompatibilisiert via Vormischen)

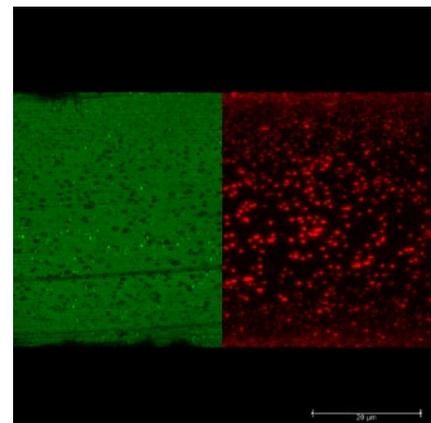


Abb. 9: Morphologie Folie 3.3  
(enthält  $5\%$  PA6/6.6)

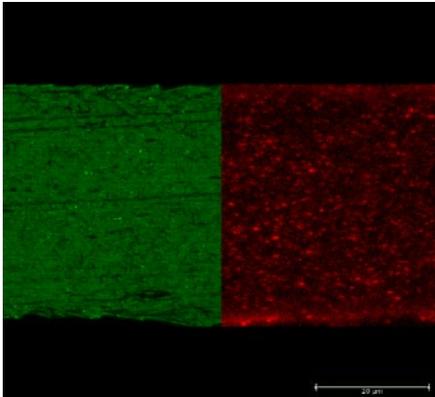


Abb. 10: Morphologie Folie 4.10  
(enthält 15 % PA6/6.6 und 3 % E226)

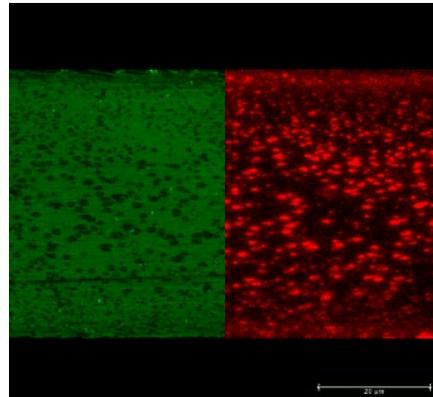


Abb. 11: Morphologie Folie 3.8  
(enthält 10 % PA6/6.6)

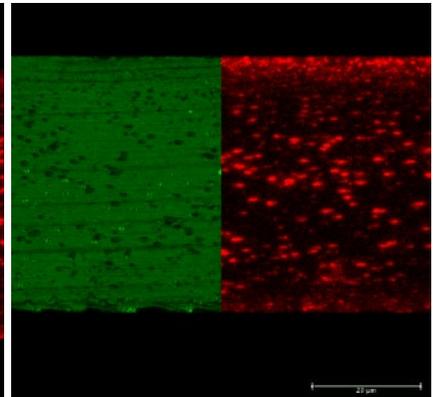


Abb. 12: Morphologie Folie 3.10  
(enthält 5 % PA6/6.6)

Während die exzellente Homogenität der bereits in der Primärfolie vorkompatibilisierten Monofolie (siehe Abb. 7) nicht überrascht, bestätigen verschiedene Rezepturen, die direkt vor der Blasfolienherstellung durch einfache physikalische Mischung („Salz & Pfeffer“-Blends) vorbereitet wurden, darüberhinaus eine sehr effektive Kompatibilisierung von Polyamidanteilen  $\geq 10\%$  durch Fusabond E226 auch in diesen Fällen (siehe Abb. 8 und 10).

Die Verdünnung auf PA-Konzentrationen im Bereich 5–10 % bringt trotz fehlender chemischer Kopplung des PA an das PE eine gleichmäßige Dispergierung und Verteilung der Minderkomponente(n) in der Matrix (siehe Abb. 9 (5 % PA6) sowie Abb. 11 und 12 (10 % bzw. 5 % PA6/6.6)).

Die regranulathaltigen Mehrschichtfolien wurden als 3-Schichtstruktur mit einer Gesamtdicke von 70  $\mu\text{m}$  und dem Aufbau



sowohl auf einer Varex II-Blasfolienanlage von Windmüller & Hölscher (W&H) (Düse  $\varnothing$  400 mm, Flachlegung 1700 mm dlf, 400 kg/h Durchsatz, Schmelzetemperatur ca. 245°C, Folienproben Multi 0–5) als auch auf einer Mehrschichtblasfolienanlage von Dr. Collin (Flachlegung 800 mm dlf, Durchsatz 30 kg/h, Schmelzetemperatur ca. 225°C, Multi 6) hergestellt. Die Variation des PA-Anteils mit Hilfe verschiedener Regranulattypen und -konzentrationen erfolgte ausschließlich in der Mittelschicht, wobei die nicht vorkompatibilisierten Einstellungen Multi 4–6 ebenfalls durch einfaches Vormischen der Komponenten Regranulat und Compatibilizer im jeweiligen Konzentrationsverhältnis („Salz & Pfeffer“-Blends) realisiert wurden.

Auf beiden Anlagen lief darüber hinaus jeweils eine Referenzfolie aus 100 % PE, die zur Beurteilung der mechanischen Kennwerte als 100 %-Basis verwendet wurde.

Tabelle 2 veranschaulicht eine Übersicht repräsentativer Rezepturen unter Nutzung von PE/PA-Regranulaten. Während die schwarz hervorgehobenen Konzentrationsangaben (z. B. Regr**B** oder Regr**C**) den absoluten Anteil der gewählten Regranulate in der Mittelschicht (in %) quantifizieren, repräsentieren die rot hervorgehobenen Konzentrationsdaten den absoluten Anteil des jeweiligen Polyamids (PA) an der Gesamtstruktur (ebenfalls in %).

Tab. 2: Übersicht ausgewählter Mehrschichtfolienstrukturen mit PE/PA-Regnanulaten in der Mittelschicht

Nr.	RegrB* (PA6 <sup>***</sup> ) (%) (%)	RegrR* (PA6 <sup>***</sup> ) (%) (%)	RegrF* (PA6 <sup>***</sup> ) (%) (%)	RegrC** (PA6/6.6 <sup>***</sup> ) (%) (%)	PE Ref (%)	Comp <sup>#</sup> (%)
Multi 0	-	-	-	-	100	-
Multi 1	32/4	-	-	-	68	-
Multi 2	-	32/4	-	-	68	-
Multi 3	-	-	32/4	-	68	-
Multi 4	78/10	-	-	-	20	2
Multi 5	98/12,5	-	-	-	-	2
Multi 6	-	-	-	78/10	20	2

\* siehe Abb. 2, % nur in Mittelschicht; \*\* 80 %PE/20 % C40L; \*\*\* % PA in Gesamtstruktur; # Comp Fusabond E226

Die Abbildungen 13a/b veranschaulichen ausgewählte mechanische Kennwerte repräsentativer Mehrschichtfolien (in Längs- und Querrichtung), in deren Mittelschicht Regnanulate diverser Konzentrationen integriert sind.

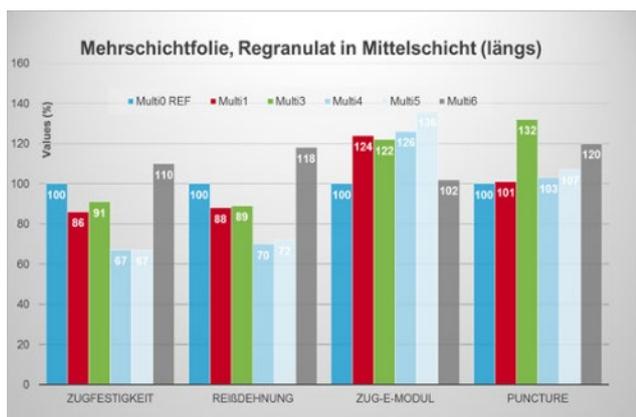


Abb. 13a: Mechanik regnanulathaltiger Mehrschichtfolien (längs)

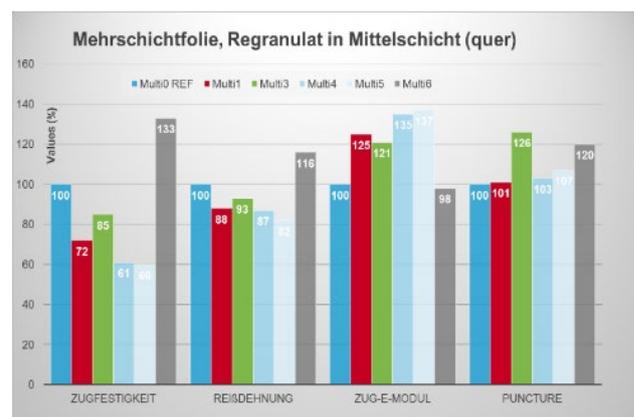


Abb. 13b: Mechanik regnanulathaltiger Mehrschichtfolien (quer)

Die Vergleichsgrafiken der gemessenen mechanischen Kennwerte bestätigen die Ergebnisse, die bereits an Monofolien aus 100 % Regnanulat gewonnen wurden: Vorkompatibilisierte PE/PA6-Blends (Multi 3) lassen sich sehr gut in eine neue Mehrschichtfolie integrieren, was auch für PE/PA6/6.6-Mischungen (Multi 6) zutrifft, wobei der letztgenannte Versuch deutlich mehr PA6/6.6-Anteil enthält und der Compatibilizer erst während der finalen Folienherstellung zugesetzt wurde. Dies ist eine weitere Bestätigung der leichteren bzw. einfacheren Homogenisierbarkeit der niedriger schmelzenden und niedriger kristallinen CoPolyamide der PA6/6.6-Reihe. Steht kein Compatibilizer zur Verfügung, genügt auch eine simple Verdünnung des PA-Anteils auf <10 % (hier Multi 1 mit 4 % PA6), um akzeptable mechanische Kennwerte zu erzielen.

Auch im Falle der Mehrschichtfolienstrukturen lässt sich mit Hilfe der Kontrast-Lichtmikroskopie an eingefärbten Mikrotomschnitten ein repräsentativer visueller Eindruck von den Morphologien der PE/PA-Blends in den Mittelschichten erzielen. Stellvertretend veranschaulichen dies die mikroskopischen Abbildungen 14–16. So zeigt Abb. 15 im direkten Vergleich zu Abb. 14 sehr klar die Wirksamkeit der Vorkompatibilisierung. Bei gleicher

Konzentration an PA6 in der Mittelschicht sind die Domänen bei Einsatz des Compatibilizers fast nicht mehr zu erkennen (Multi 3, Abb. 15). Eine Erhöhung des PA6-Anteils auf knapp 20 % in der Mittelschicht lässt sich bei Einsatz eines Compatibilizers sehr gut realisieren, obwohl dieser „erst“ während der finalen Folienherstellung zugesetzt wird (Multi 5, Abb. 16)

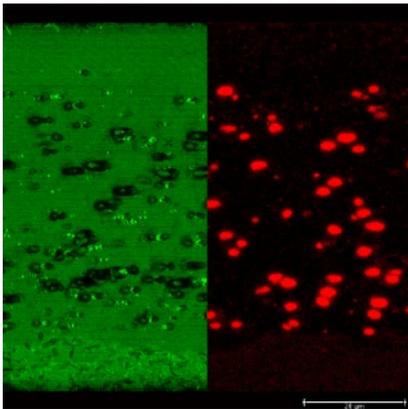


Abb. 14: Morphologie Multi 1  
(6,4 % PA6 Mittelschicht)

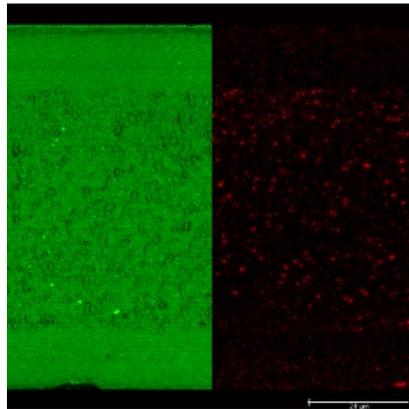


Abb. 15: Morphologie Multi 3  
(6,4 % PA6 Mitte, vorkompatibilisiert)

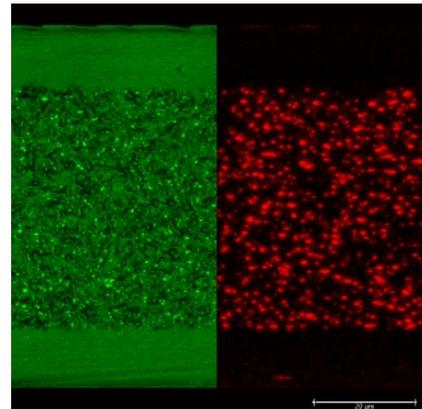


Abb. 16: Morphologie Multi 5  
(19,6 % PA6 Mitte, 2 % Retain3000)

Da die optische Qualität von Folien im Allgemeinen und von rezyklierten bzw. regranulathaltigen Strukturen im Besondern von außerordentlichem Interesse für die Anwendungen ist, erfolgte im Rahmen der Versuche auf der Varex II von W&H auch die Quantifizierung des Stippenlevels bzw. der erfassbaren Verunreinigungen („black spots“) verschiedener regranulathaltiger Mehrschichtfolien. Darüber hinaus wurden die Stippenlevel verglichen, wenn der Kompatibilisierungsschritt in drei verschiedenen Stadien des Prozesses erfolgt: Vorkompatibilisierung der Primärfolie, Zugabe des Modifikators während der Regranulierung, „Salz & Pfeffer“-Vormischungen der Einzelkomponenten unmittelbar vor der finalen Blasfolienherstellung.

Die Abbildungen 17 und 18a/b visualisieren die optische Folienqualität im Foto, Abbildung 19 den Vergleich des gemessenen Stippenlevels in Korrelation zu verschiedenen Zugabekonzepten des Compatibilizers. Während die reine Verdünnung in Multi 1 (Abb. 17) noch Stippen und Schlieren enthält, zeigt sich auch bei der Optik der resultierenden Folie der positive Effekt der Vorkompatibilisierung (Multi 2, Abb. 18a/b).



Abb. 17: Multi1 visuell



Abb. 18a: Multi 2 visuell



Abb. 18b: Multi 2, Blase

(Quelle Abbildungen 17 & 18: mit freundlicher Genehmigung von Windmüller & Hölscher)

[12]

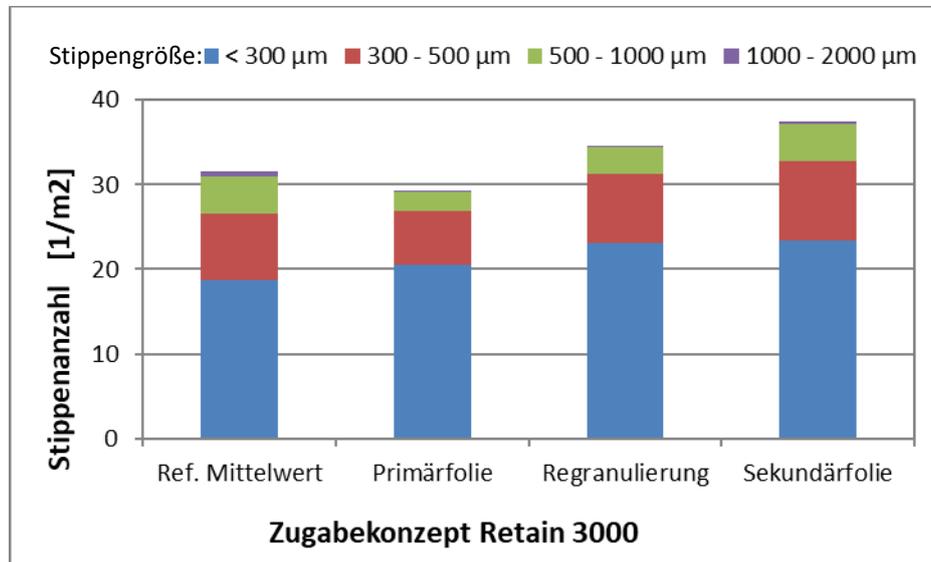


Abb. 19: Stippenanzahl in regranulathaltigen Mehrschichtfolien als Funktion des Zugabeortes am Beispiel Compatibilizer Retain 3000  
(Quelle Abbildung 19: mit freundlicher Genehmigung von Windmüller & Holscher)

Abbildung 19 veranschaulicht die Entwicklung des Stippenlevels der hergestellten Folien in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der Zugabe der Compatibilizer nicht nur absolut, sondern auch bezogen auf verschiedene Stippengrößeklassen. Es wird deutlich, dass eine Vorkompatibilisierung das Stippenniveau im Vergleich zur Referenz sogar verringert, während eine „verspätete“ Zugabe des Compatibilizers leicht erhöhte Stippenwerte nach sich zieht. Grundsätzlich bewegen sich aber alle vermessenen Stippenniveaus in einem vergleichbaren Bereich, sodass die drei genannten Möglichkeiten zur Kompatibilisierung für die praktische Umsetzung in Betracht gezogen werden können.

Für ein erfolgreiches mechanisches Recycling der Abfälle von coextrudierten PE/PA-Mehrschichtfolien lassen sich somit folgende reproduzierte Rahmenbedingungen zusammenfassen:

1. Wenn PE/PA-Abfallmischungen zu PA-Konzentrationen (PA6 oder PA6/6.6) < 10 % verdünnt werden, lassen sich PE/PA-Folienabfälle ohne zusätzlichen Compatibilizer bereits mit standardmäßiger Regranuliertchnik mittels Einschneckenextrudern problemlos dispergieren.
2. Erhöht sich der Polyamidanteil in den zu verwertenden Mischungen auf  $\geq 10\%$  ist die Zugabe eines Compatibilizers notwendig. Hier haben sich mit Maleinsäureanhydrid gepropfte PE-basierte Modifikatoren, wie etwa Fusabond E226 oder Retain 3000, besonders bewährt. Anteilige Zugabemengen des Compatibilizers von 2–5 %, je nach PA-Typ und -Konzentration werden empfohlen.
3. Die Zugabe der notwendigen Menge an Compatibilizern kann auf verschiedene Art und Weise erfolgen. Die Einarbeitung bereits in die Primärfolie, die sogenannte Vorkompatibilisierung, ist eine elegante Lösung, da während der Regranulierung (auch mit einfachster Ausrüstung) eine effektive Homogenisierung der an sich unverträglichen Komponenten stattfindet. Darüber hinaus können die Additive auch während der Regranulierung (Sicherstellung einer gleichmäßigen Dosierung der Zielkonzentration während des gesamten Prozesses vorausgesetzt) oder als einfache physikalische Blends („Salz & Pfeffer“-Mischungen) vor der finalen Verarbeitung, beispielsweise zu Blasfolien, beigemischt werden.

4. Die zu wählenden Temperaturprofile hängen von der vorhandenen Polyamidkonzentration und den jeweils eingesetzten Typen ab. Während PA6-Anteile von 20 % und mehr idealerweise mit Schmelztemperaturen von mindestens 240°C extrudiert bzw. verarbeitet werden sollten, können die wesentlich niedriger schmelzenden PA6/6.6–CoPolyamide bereits bei Temperaturen von 210–220°C verarbeitet werden. Berücksichtigt man bei gemischten Verpackungsabfällen aus Haushalten ein Mischungsverhältnis von PA6 und PA6/6.6 von ca. 1:1 bei Konzentrationen von < 4 %, sind typische Temperaturprofile für PE-Recyclingprozesse als sehr realistisch einsetzbar anzusehen.
5. Da PA bekanntermaßen Feuchtigkeit aufnimmt, muss eine Vortrocknung unter Umständen in Betracht gezogen werden. Diese ist, analog zu den bereits genannten Temperaturprofilen, ebenfalls von vorhandenen PA-Typen sowie -Konzentrationen abhängig. Im Rahmen der hier zusammengefassten Versuche wurden Mischungen mit PA-Konzentrationen  $\geq 20\%$  vor der Verarbeitung zu Blasfolien vorgetrocknet. PE/PA-Reggranulate bzw. daraus hergestellte Blends mit PA-Anteilen  $\leq 20\%$  wurden dagegen generell ungetrocknet, d. h. wie aus der Reggranulierung bzw. aus einer notwendigen Zwischenlagerung in einfachen Oktabinern/Boxen mit normalem PE-Inliner gewonnen, verarbeitet. Die Abbildungen 20 und 21 veranschaulichen grundlegende Aussagen aus der ersten Untersuchungsphase in konzentrierter Form.

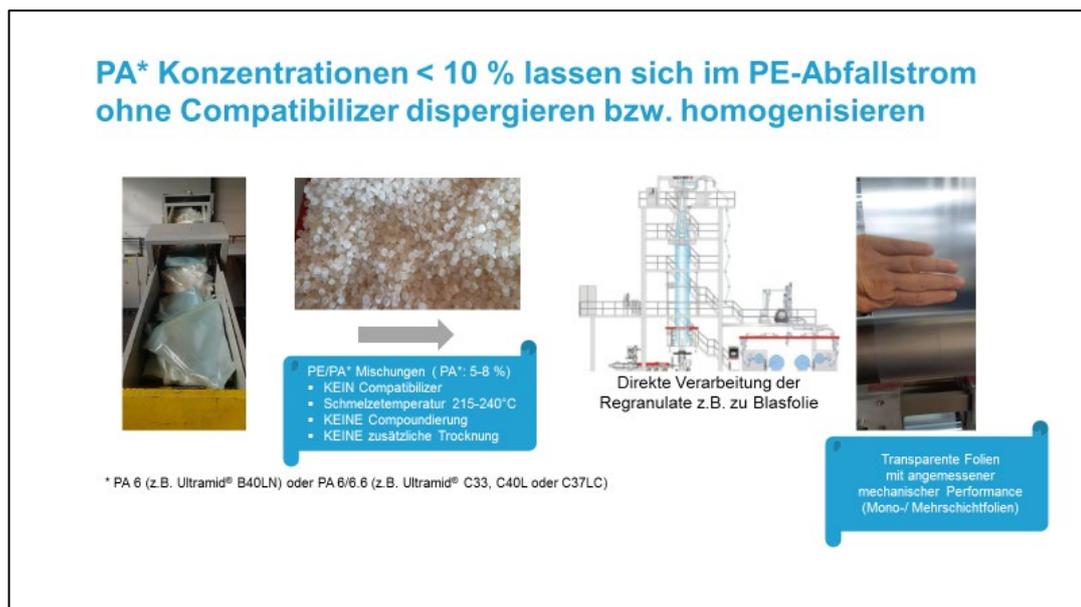


Abb. 20: Zusammenfassung Prozessempfehlung PE/PA-Mischungen mit PA < 10 %

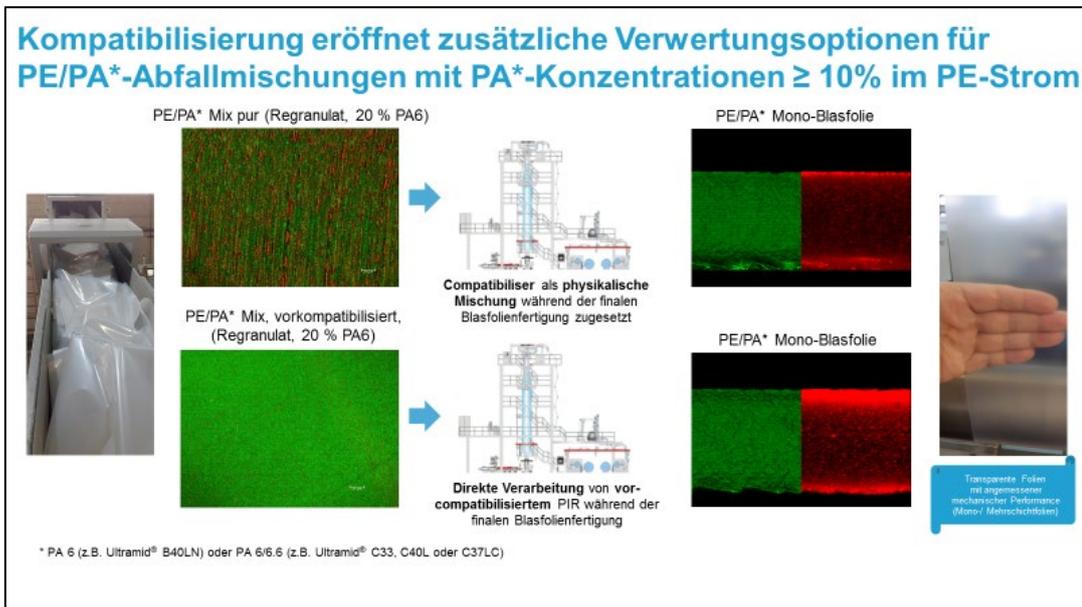


Abb. 21: Zusammenfassung Prozessempfehlung PE/PA-Mischungen mit PA  $\geq 10\%$

Diese Ergebnisse dienen als Grundlage, um weitere Kooperationen zu initiieren. Das Ziel dabei war, die Recyclingverträglichkeit und -fähigkeit durch unabhängige und zertifizierte Institutionen in Übereinstimmung mit offiziell anerkannten Teststandards zu bestätigen und idealerweise zu zertifizieren.

Institut cyclos-HTP wurde letztendlich mit der unabhängigen Evaluierung der Recyclingmöglichkeiten von polyamidhaltigen flexiblen Mehrschichtfolienabfällen beauftragt. Es folgen die Ergebnisse dieser Untersuchungen.

### 3. Forschungsprojekt bei Institut cyclos-HTP

Polyamide sind als kleiner, aber essenzieller Bestandteil in flexiblen Mehrschichtfolien etwa für Lebensmittel-, Medizin- oder technische Verpackungen sowohl in sogenannten coextrudierten (über den Aufschmelzprozess verbundenen) Mehrkomponentenverbunden als auch in kaschiierten (verklebten) Laminatstrukturen enthalten und mit anderen Polymeren, wie beispielsweise PE, PP, EVOH, PET, kombiniert. Nur dadurch lassen sich optimale Eigenschaften in der Zielanwendung realisieren. Auch das sogenannte „downgauging“-Potenzial, die Möglichkeit immer dünnere und trotzdem leistungsfähigere Folienstrukturen zu kreieren, ist nur auf diese Weise realisierbar.

Für die nachfolgend zusammengefassten Untersuchungen zur Bewertung der Recyclingfähigkeit bei der Nutzung von mechanischen Recyclingverfahren lag der Fokus auf coextrudierten PE/PA-Mehrschichtfolien. Neben den beiden Hauptkomponenten PE (mit verschiedenen Varianten wie z. B. LDPE, LLDPE oder mLLDPE) und PA enthalten derartige Coextrudate auch sogenannte Haftvermittler (engl.: tie layer). Hierbei handelt es sich um chemisch modifizierte Polyethylene, welche an die Haupt-PE-Kette angepfropfte Maleinsäureanhydridgruppen enthalten. Diese funktionellen Gruppen ermöglichen via Hydrolyse und der Freisetzung von Carbonsäuregruppierungen eine chemische Ankopplung des Haftvermittlers an die benachbarte PA-Schicht, was eine stabile und feste Haftung zwischen den an sich schlecht haftenden Nachbarschichten aus PE bzw. PA garantiert.

Abbildung 22 illustriert das Grundprinzip der Haftvermittlung zwischen unpolaren (z. B. Polyethylen PE) und polaren (z. B. Polyamid, PA6 oder auch PA6/6.6) Polymeren.

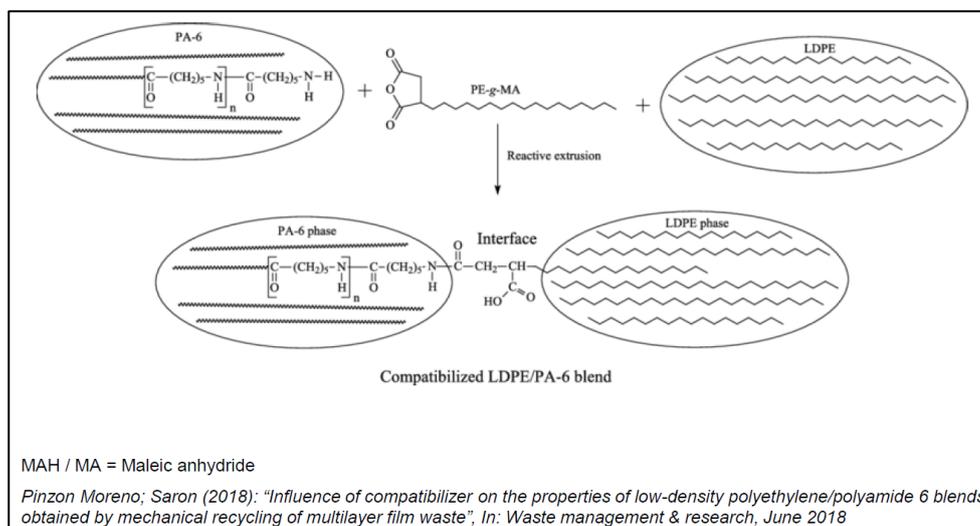


Abb. 22: Grundprinzip der Haftvermittlung zwischen Polyethylen und Polyamid

Die Bewertung der prinzipiellen mechanischen Rezyklierbarkeit PA-haltiger flexibler Verpackungen (coextrudierte PE/PA-Mehrschichtfolien mit PA6 und PA6/6.6) wurde bei Institut cyclos-HTP gemäß der CHI-Standard-Prüfmethode CHI-C8-PEF-1 „Recyclingverträglichkeitstest für PE-basierte flexible Verpackungen“ durchgeführt. Dabei handelt es sich um eine transparente Prüf- und Bewertungsmethode für Verpackungen und Materialien, die wissenschaftliche Grundprinzipien und den Stand der Technik bzw. die praktischen Erfahrungen während des industriellen Recyclingprozesses berücksichtigt.<sup>(#16)</sup> Die Bewertungsmethode von Institut cyclos-HTP berücksichtigt sämtliche Länder in Europa, in denen die Infrastruktur und das wertstoffliche

Recycling im industriellen Maßstab etabliert ist. Die relevanten Länder werden auf den Zertifikaten von Institut cyclos-HTP zur Recyclingfähigkeit oder -verträglichkeit aufgeführt.

Dies ist eine wichtige Basis, um gegebenenfalls weiterführende Aktivitäten zu initiieren, beispielsweise eine Änderung der Einstufung von PA aus coextrudierten PE/PA-Mehrschichtverbundfolien in den Standards und Guidelines von relevanten Institutionen in diesen Ländern.

Während Abbildung 23 den prinzipiellen Prüfablauf zeigt, veranschaulicht Abbildung 24 die genutzten PE/PA-Mehrschichtfolienstrukturen mit bis zu 30 % PA6 (Ultramid® B40LN) und PA6/6.6 (Ultramid® C40L bzw. C33L) am Beispiel der eingesetzten PA6-Teststrukturen.

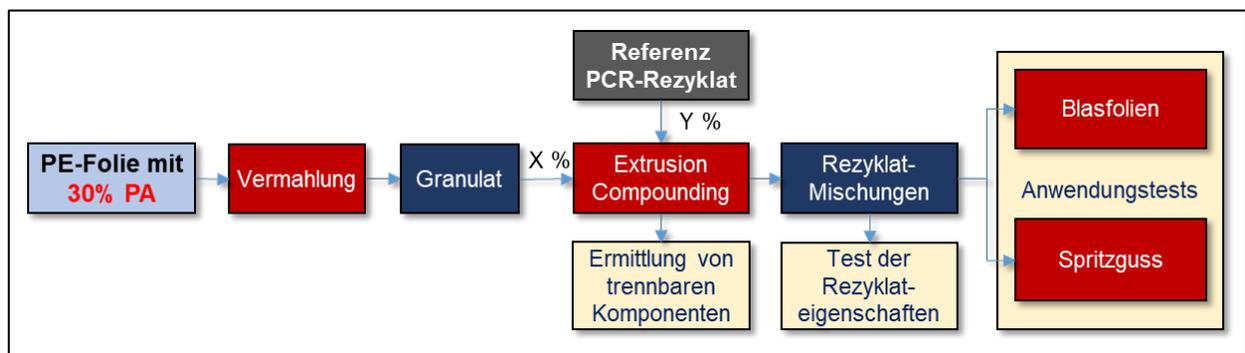


Abb. 23: Schema der CHI-Standard-Testmethode CHI-C8-PEF-1

Die Untersuchung der Recyclingfähigkeit gemäß dem in Abbildung 23 gezeigten Prüfablauf erfolgt anhand von Rezyklat-Mischungen im Vergleich zum Referenzmaterial REF:

- **CHI5** – „Realistisches Szenario“ für eine leicht erhöhte Konzentration eines Verpackungsmaterials im Recyclingstrom  
= 5 % Probe + 95 % Referenz | Vergleichbar mit REF ✓ → Kompatibilität von PA in PE-Folien?
- **CHI30** – „Worst-Case-Szenario“ für eine sehr hohe Konzentration eines Verpackungsmaterials im Recyclingstrom  
= 30 % Probe + 70 % Referenz | Vergleichbar mit REF ✓ → 100 % Recyclingfähigkeit der gesamten Verpackung?
- **REF** – „Referenz“, kommerzielles PCR-Rezyklat für die entsprechenden Anwendungen (Spritzguss, Blasfolie) aus dem zu untersuchenden Recyclingstrom
- optional **PE30** – „PE-Referenz“ für ein typisches PE-basiertes Verpackungsmaterial ohne PA im Recyclingstrom  
= 30 % Vergleichsprobe ohne PA + 70 % Referenz

<p>Zielstruktur: symmetrische medium Barriere 7-Schicht-Blasfolie (100 µm)</p> <p><b>FB0</b> – PE / PE / PE / PE / PE / PE / PE</p> <p><b>FB1</b> – PE* / HV** / <b>PA6***</b> / HV / <b>PA6</b> / HV / PE</p> <p><b>FB2</b> – PE + <b>Comp****</b> / HV / <b>PA6</b> / HV / <b>PA6</b> / HV / PE + <b>Comp</b></p>		
<p>Zu testende “<b>Recycling-kritische</b>” Materialien:</p> <p>LDPE-basierte Folie mit <b>30% PA6</b> und <b>15% Haftvermittler</b></p> <p>LDPE-basierte Folie mit <b>15% PA6</b> und <b>7.5% Haftvermittler</b></p> <p>LDPE-basierte Folie mit <b>30% PA6</b> und <b>15% Haftvermittler</b> und <b>5% Compatibiliser</b></p> <p>* <i>Typische Mischung aus 70% LLDPE / 30% LDPE (z.B. Dowlex GM8090/Dow 410E)</i></p> <p>** <i>maleinsäureanhydridgepfropftes PE (Standardtype für PE/PA6 coextrusion, z.B. Bynel 41E687)</i></p> <p>*** <b>PA6, Ultramid® B40LN, BASF SE</b></p> <p>**** <i>maleinsäureanhydridgepfropftes PE (Spezialtype, z.B. Fusabond E226, Dow o.ä.)</i></p>		

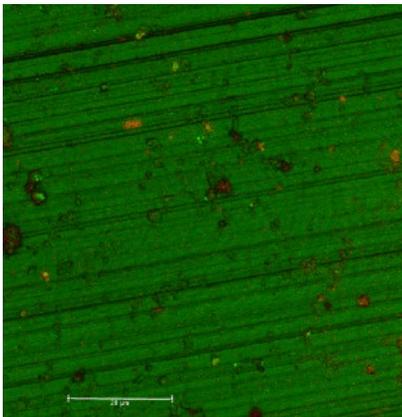
Abb. 24: Übersicht der Teststrukturen Teilprogramm PE/PA6 (Ultramid B40LN)

Die drei in Abbildung 24 definierten Folienstrukturen wurden auf einer Varex II (luftgekühlte Blasfolienanlage, Düse Ø 400 mm, BUR 1:2,5, Flachlegung 1400 mm dlf, Durchsatz 450 kg/h) bei Windmüller & Hölscher unter Nutzung typischer Temperaturprofile für die einzelnen Polymere (PE-Typen: ca. 210, PA6: ca. 250°C) hergestellt und anschließend bei RW Plast auf einer für die Verarbeitung von eingeschränkt schüttfähigen Folienabfällen konzipierten Recyclinganlage von NGR (Durchsatz ca. 350 kg/h, Temperaturprofil bei PE/PA6-Blends 235–240°C, Vakuum max. –1 bar, Unterwassergranulierung) zu PE/PA6-Regranulaten umgearbeitet. Die erzeugten Regranulate wiesen (Oberflächen)feuchtigkeiten zwischen 0,2 und 0,3 % auf, wurden nicht zusätzlich getrocknet, sondern in Oktabinern mit normalen PE-Inlinern zwischengelagert und ohne weitere Vortrocknung nach unterschiedlichen Lagerzeiträumen weiterverarbeitet. Abbildung 25 gibt einige Schritte des Regranuliertvorgangs wieder.

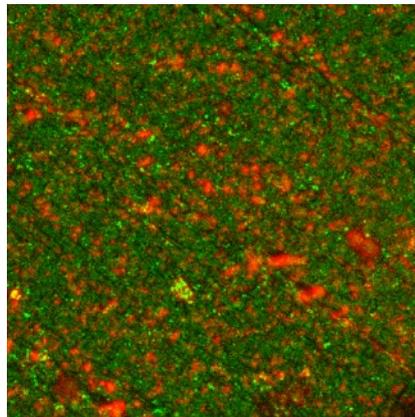


Abb. 25: S Gran 95 Impressionen (von links: Materialzufuhr, Schneidwerk, Schnecke)

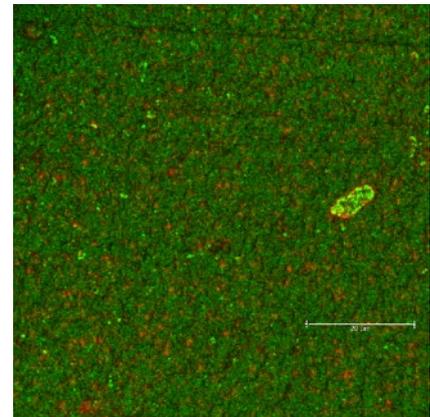
Auch hier lässt sich die während der Regranulierung realisierte Homogenität der einzelnen Morphologien sehr gut mittels der Kontrast-Lichtmikroskopie unter Nutzung angefärbter Mikrotomschnitte der Regranulate nachweisen und vergleichen. Abbildung 26 zeigt den direkten Vergleich der reinen PE-Referenz, der nicht kompatibilisierten Probe mit 30 % PA6-Anteil sowie der vorkompatibilisierten Vergleichsvariante mit analoger PA6-Menge im Regranulat.



FB0, PE Referenz



FB1, 30 % PA6



FB2, 30 % PA6, 5 % Fusabond E226

Abb. 26: Vergleich von Regranulatmorphologien (Nomenklatur siehe Abb. 24)

Die sehr effektive Wirkung einer Vorkompatibilisierung (hier 5 % Fusabond E226 in der Primärfolie) bei hohen PA-Konzentrationen im Gemisch (hier 30 % PA6) wird auch bei diesen Versuchseinstellungen eindrucksvoll und reproduzierbar nachgewiesen.

Zentraler Bestandteil des CHI-Testprotokolls war die Compoundierung zu den finalen Materialmischungen mit Schwerpunkt auf den definierten „Benchmark“-Rezepturen CHI 5 und CHI 30 (siehe Abb. 23). Diese Versuche erfolgten bei der Polymer Service GmbH auf einem Doppelschneckenextruder (Leistritz). Dabei wurden folgende drei Basisregnanulate genutzt: ein industrielles Polyolefinrezyklat (PCR, Ecoplast NAV 104) aus einer realen Folienfraktion, basierend auf sortierten Folienresten aus gemischten Haushaltskunststoffabfällen; eine Neuwaremischung von 70 % LLDPE/30 % LDPE analog der Typenauswahl und eine Zusammensetzung für die Ausgangsfolien auf Basis einer PE/PA6-Kombination zur Realisierung der standardmäßig üblichen Verdünnungen. Alle Mischungen wurden ohne zusätzliche Vortrocknung bei einem vorgegebenen Temperaturprofil verarbeitet, welches im CHI-Standard als repräsentativ für die Extrusion von PE-Folienabfallfraktionen festgeschrieben ist.<sup>(#16)</sup>

Die Abbildung 27 vermittelt einen visuellen Eindruck der Versuchsanlage und fasst die Prozessbedingungen zusammen.



Verarbeitungsparameter:

- Extruder-Temperatur (Düse) = 210°C
- Schmelzetemperatur gemessen = 220 - 224°C
- Massedruck = 50 – 60 bar
- Vakuumentgasung nach 6 von 8 Zonen
- Einsatz einer Schmelzpumpe

Abb. 27: Überblick Extruder und Verarbeitungsbedingungen Compoundierungen

Eine detaillierte Rezepturübersicht zur Realisierung der definierten Schlüsselproben (siehe auch Definitionen in Abb. 23 und 24) liefert die nachfolgende Tabelle 3.

Tab. 3: Übersicht der Rezepturen für die Schlüsselproben CHI 5 und CHI 30

Nr.	Blendkomponenten				Zusammensetzung		
	FB0* (%)	FB1 (%)	FB2 (%)	RECY** (%)	PA6 (%)	Comp <sup>#</sup> (%)	PCR RECY (%)
REF (PCR Rezyklat)	-		-	100	0	0	100
CHI5: 30% PA6	-	5	-	95	1,5	0	95
CHI5: 30% PA6 + Comp	-	-	5	95	1,5	0,3	95
PE30: PE film	30	-	-	70	0	0	70
CHI30: 30% PA6	-	30	-	70	10	0	70
CHI30: 30% PA6 + Comp	-	-	30	70	10	1,6	70
CHI30: 15% PA6	15	15	-	70	5	0	70
CHI30: 15% PA6 + Comp	15	-	15	70	5	0,8	70

\* Nomenklatur siehe Abb. 24, \*\* PCR Referenz: Ecoplast NAV 104, # Comp Fusabond E226

Es gab bei der Compoundierung keinerlei Probleme, weder mit Feuchtigkeit noch mit Entmischungen bzw. anderweitigen Inhomogenitäten aufgrund des repräsentativen, aber für die Verarbeitung von PA6 deutlich abgesenkten Temperaturprofils. Darüber hinaus gemessene Kennwerte mit verfahrenstechnischer Relevanz sind in Tabelle 4 zusammengefasst.

Tab. 4: Übersicht physikalischer Kennwerte repräsentativer Compoundproben

Rezyklatblend	Extrusion	Rezyklattests		Zusammensetzung		
	Druckanstieg (%)	MFR (190°C/5kg)	Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	PA (%)	Comp <sup>#</sup> (%)	PCR RECY (%)
REF (PCR Rezyklat)	51	2,63	0,934	0	0	100
PE30: PE film	42	2,36	0,93	0	0	70
CHI30: 30% PA6	30	1,86	0,947	10	0	70
CHI30: 30% PA6 + Comp	13	1,9	0,947	10	1,6	70
CHI5: 30% PA6/6.6 (C40L)	-	2,66	0,932	1,5	-	95
CHI30: 30% PA6/6.6 (C40L)	-	2,46	0,942	10	-	70

# Comp Fusabond E226

Der bei den hier diskutierten Untersuchungen genutzte Bewertungsstandard CHI-C8-PEF-1-2.0 orientiert sich nicht nur hinsichtlich der Auswahl des Referenzmaterials an der realen Praxis, sondern berücksichtigt darüber hinaus auch die relevanten Anwendungen in Verbindung mit den standardmäßig eingesetzten Technologien bzw. gebräuchlichen Verfahrensabläufen.

Die in Tabelle 3 zusammengefassten Materialproben wurden sowohl bezüglich ihrer Eignung für Spritzgussanwendungen (z. B. Baueimer) als auch für typische Blasfolienanwendungen (z. B. Müllbeutel, Gelbe Säcke) (#17) evaluiert. Während für den Spritzgussprozess die vorliegenden CHI5- und CHI30-Rezyklate direkt zum Einsatz kamen, erfolgte für die finale Blasfolienfertigung eine weitere Verdünnungsstufe mit PE-Neuware im Verhältnis 1:1. Dies entspricht nicht nur dem aktuellen Stand der Technik, sondern auch der praktizierten Verfahrensweise in der Recyclingindustrie, und ist derzeit unabdingbar, um eine blasfoliengerechte Rezyklatqualität aus gemischten Haushaltskunststoffabfällen generieren zu können.

Die Abbildung 28 veranschaulicht repräsentative mechanische Eigenschaften, ermittelt an standardisierten Spritzgussprüfkörpern, und zugleich die Bewertungsgrundlage der vorliegenden Proben hinsichtlich ihrer Einsetzbarkeit für Spritzgussanwendungen.

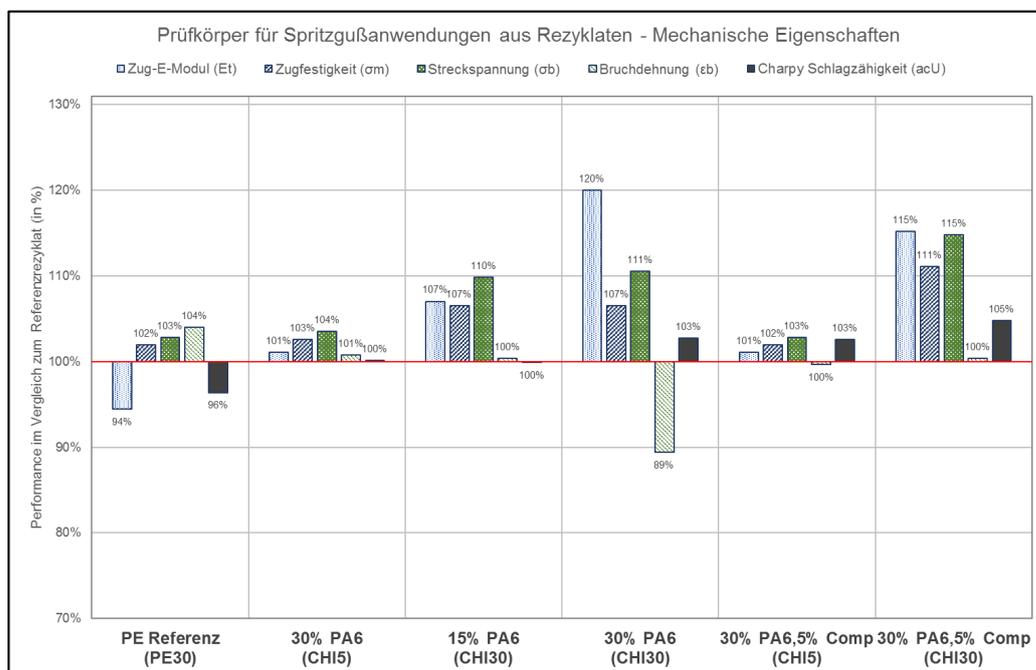


Abb. 28: Mechanische Kennwerte verschiedener Rezyklatproben, gemessen an Spritzgusskörpern

Während die CHI 5-Proben in beiden Fällen (mit und ohne Fusabond E226) den Test bestanden haben, ist dies bei den CHI 30-Proben nur für die kompatibilisierte Variante mit 30 % PA6-Ausgangskonzentration der Fall. Von den getesteten CHI 30-Proben ohne bereits eingearbeiteten Verträglichmacher besteht lediglich die Variante mit einem Ausgangslevel von 15 % PA6 den Test, während die 30 %-Version signifikant schlechtere Bruchdehnungswerte zeigt und den Test somit nicht besteht. Diese Ergebnisse bestätigen die Erkenntnisse aus der internen Untersuchungsphase (siehe S. 11/12 dieser Veröffentlichung) wonach ab ca. 10 % Polyamidanteil im PE-Materialstrom der Einsatz eines Compatibilizers zur Realisierung einer verwertbaren homogenen Morphologie der resultierenden Polymermischung unumgänglich wird.

Eine Übersicht über das umfangreiche Versuchsprogramm zur Generierung von Monoblasfolien aus zu 100 % rezyklierten Materialien verschiedener Zusammensetzung würde den Rahmen der vorliegenden Veröffentlichung sprengen. Details dazu finden sich im Projektbericht(#18). Die Abbildungen 29a–c bieten stellvertretend einige repräsentative optische Eindrücke von der Blasfolienverarbeitung.

Während PA6-Konzentrationen < 10 % mit typischen PE-Extrusionstemperaturen von ca. 215°C gefahren werden können (Abb. 29a), ist oberhalb dieser Grenze eine Temperaturanpassung notwendig (von 215°C, Abb. 29b auf mindestens 235°C, Abb. 29c). Auch hier zeigt sich die einfachere Verarbeitbarkeit von PA6/6.6-CoPolyamiden an einer CHI 5-Blasfolienprobe (Abb. 29d). Diese notwendigen Temperaturanpassungen stellen aber kein grundsätzliches Problem dar, da im Rahmen der Aufbereitung von Post-Consumer-Abfallmischungen die realistischen PA-Konzentrationen deutlich im Bereich < 10 % liegen und somit nicht relevant sind.



Abb. 29a–d: Optik der Monofolienblase (Schmelztemperatur):

a) 5 % PA6 (215°C)      b) 15 % PA6 (215°C)      c) 15 % PA6 (235°C)      d) 0,75 % PA6/6.6 (210°C)

Die Abbildungen 30 bis 32 zeigen ergänzend die Morphologie verschiedener Monoblasfolien unter Nutzung der bewährten Kontrastmikroskopie an eingefärbten Querschnitten der jeweiligen Rezyklatfolie. Auch hier wird in bewährter und bereits diskutierter Weise (siehe z. B. Abb. 10–12 bzw. 14–16) der effektive Einfluss von Verdünnung und/oder Kompatibilisierung auf die Morphologien der erhaltenen PE/PA-Blends überzeugend dargestellt. Interessanterweise werden auch in der offiziell PA-freien Referenzprobe (PCR-Material, Abb. 30) deutlich rote Domänen in der rechten Hälfte der Fluoreszenzdarstellung sichtbar, die sich polaren Polymeranteilen (z.B. PA) zuordnen lassen und definitiv kein PE oder PP repräsentieren.

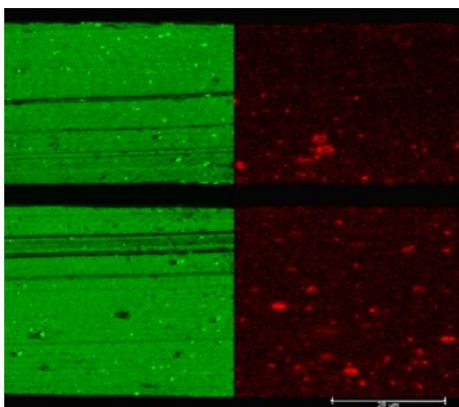


Abb.30: REF PCR-Recyclat (0 % PA6)

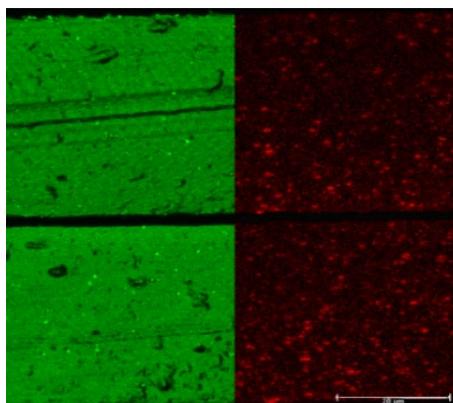


Abb. 31: CHI 5-30 % PA6 (0,75 % PA6)

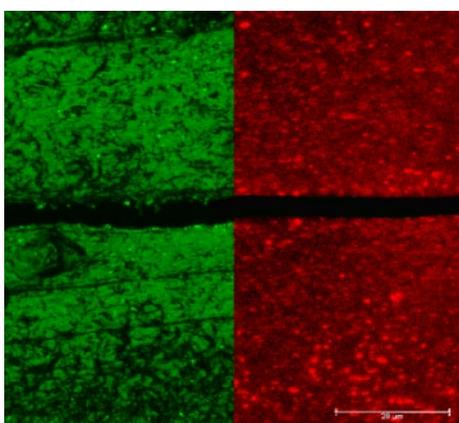


Abb. 32: CHI 30-30 % PA (5 % PA6)

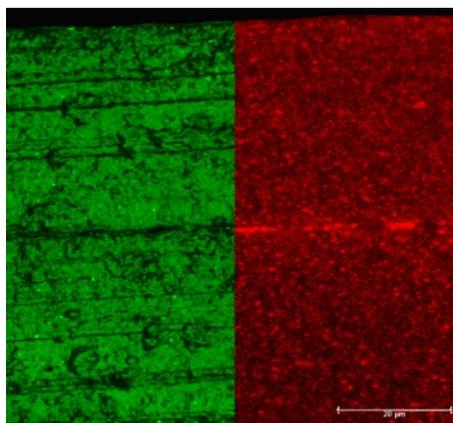


Abb. 33: CHI 30-30 % PA + Comp (5 % PA6)

Im Rahmen der Blasfolienfertigung wurden die compoundierten Rezyklatproben (Rezepturen siehe Tabelle 3) nochmals im Verhältnis 1:1 mit frischer PE-Neuware abgemischt. Dies entspricht sowohl der standardisierten Bewertungsmethode<sup>(#17)</sup> als auch dem praktizierten Stand der Technik in der Recyclingindustrie. Daraus resultieren die in den Abbildungen 29 bis 33 angegebenen Polyamid-Konzentrationen, die denen in der hergestellten Monofolie nach den beiden genannten Verdünnungsschritten entsprechen.

Eine vergleichende Übersicht repräsentativer mechanischer Kennwerte, inklusive der Siegelnahtfestigkeit der aus den Blasfolienmustern hergestellten Beutel, findet sich in Abbildung 34.

Der vergleichende Überblick verschiedener PA-haltiger Mischungen in Abb. 34 veranschaulicht erneut, dass bei Sicherstellung von PA-Konzentrationen < 10 % auch ohne Einsatz eines zusätzlichen Compatibilizers exzellente mechanische Eigenschaften an den resultierenden Blasfolien gemessen wurden.

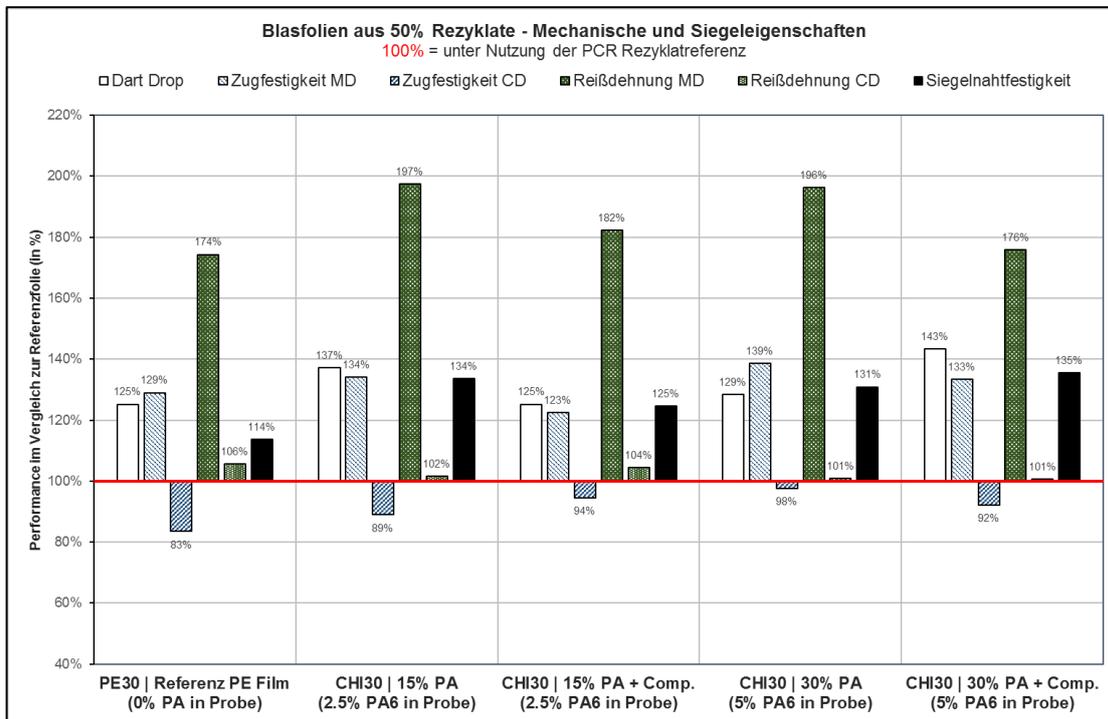


Abb. 34: Mechanische Kennwerte verschiedener Rezyklatproben, gemessen an Blasfolien

Eine sehr wichtige Prüfung ist die der Dichtigkeit bzw. der Siegelnahtfestigkeit verschweißter Rezyklatfolien, welche ebenfalls Bestandteil des CHI-Standards zur Bewertung von Blasfolienqualitäten ist (#19). Dazu wurden die zu prüfenden Folienmuster zu Beuteln mit einer Siegelnahtbreite von 2,4 mm verschweißt und anschließend gemäß ihrem Durchmesser von 11 cm und einer Füllhöhe von 20 cm mit ca. 1,8 l Wasser gefüllt. Die befüllten Beutel wurden aufgehängt und mindestens 10 Minuten lang beobachtet, ob aufgrund von Undichtigkeiten Wasser austritt oder evtl. die Siegelnaht sogar reißt.

Treten pro Minute weniger als zwei Tropfen Wasser aus, gilt der Test als bestanden. Alle getesteten Blasfolien haben, unabhängig vom Polyamid- bzw. Compatibilizer-Anteil, diesen Dichtigkeitstest sicher bestanden. Nachfolgende Tabelle 5 gibt einen Überblick über die Testergebnisse der vermessenen Proben.

Tab. 5: Dichtigkeitstest an rezyklathaltigen Monoblasfolien – Übersicht

Rezyklatblend im Gemisch*	Zusammensetzung			Dichtetest (Tropfen/Min)
	PA (%)	Comp# (%)	PCR RECY (%)	
REF (PCR Rezyklat)	0	0	50	0
CHI5: 30% PA6	0,8	0	47,5	0
CHI5: 30% PA6 + Comp	0,8	0,15	47,5	0
PE30: PE film	0	0	35	0
CHI30: 30% PA6	5	0	35	1
CHI30: 30% PA6 + Comp	5	0,8	35	0
CHI30: 15% PA6	2,5	0	35	0
CHI30: 15% PA6 + Comp	2,5	0,4	35	0
CHI100**: 30% PA6 + Comp	15	2,5	0	0
CHI5: 30% PA6/6.6 (C40L)	0,8	0	47,5	0
CHI30: 30% PA6/6.6 (C40L)	5	0	35	1

\* jeweils 50 % mit 50 % PE-Neuware gemischt, \*\* Basisprobe bei +20°C Extrusionstemperatur (235°C) zum Vergleich

CoPolyamide aus PA6 und PA6.6, sogenannte Random PA6/6.6-CoPolyamide verfügen über einen deutlich abgesenkten Kristallitschmelzpunkt im Vergleich zum wichtigsten Polyamid, dem PA6. Daraus resultieren nicht nur eine langsamere Kristallisation und ein geringerer Kristallitgehalt in der hergestellten Folie (bei vergleichbarer Kühlrate während der Verarbeitung), sondern auch wesentlich bessere zähelastische Eigenschaften, wie Durchstoßfestigkeit, Zähigkeit und Dehnung. Abbildung 35 visualisiert die Korrelation zwischen dem Gehalt an Co-Monomeren und den daraus resultierenden Schmelzpunkten der Co-Polyamidvarianten. Alle technisch verfügbaren PA6/6.6-Co-Polyamide weisen Schmelzpunkte zwischen 182 und 196°C auf.

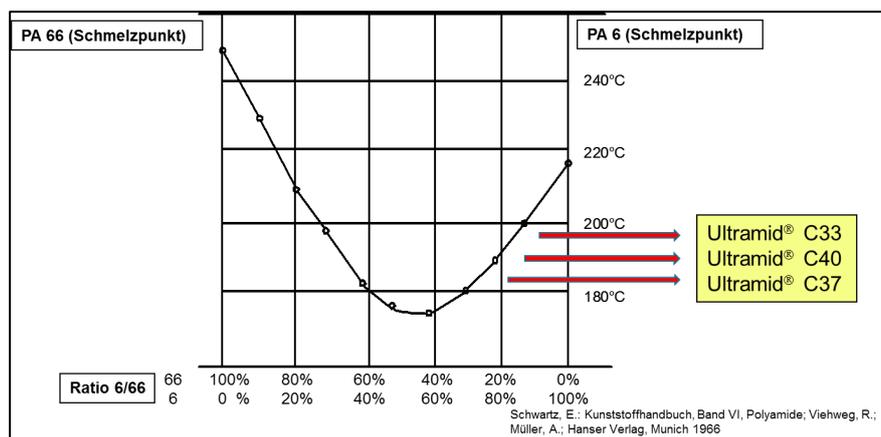


Abb. 35: Korrelation der Schmelzpunkte von PA6/6.6-Co-Polyamiden

Somit sprechen mehrere Faktoren für eine leichtere Verarbeitung und Dispergierung in einer PE-Matrix: Sie passen sehr gut in das übliche Temperaturprofil bei der Extrusion von 180–210°C; aufgrund des niedrigeren Kristallitanteils schmelzen sie schneller auf und lassen sich einfacher dispergieren und nicht zuletzt bringen sie wesentlich bessere zähelastische Eigenschaften in den PE-Abfallfolienstrom ein.

Deshalb wurden zwei repräsentative PA6/6.6-Co-Polyamide mit einem leicht vereinfachten Prüfablauf evaluiert. Ultramid C33 (Fp 196°C, mittlere Viskosität) und Ultramid C40L (Fp. 189°C, hohe Viskosität) wurden ebenfalls mit einer Konzentration von 30 % in Kombination mit 15 % eines vergleichbaren Haftvermittlers in einer PE-Matrix dispergiert. Anstelle der regranulierten Mehrschichtfolien wurde jedoch ein 30%iges „Stammcompound“ hergestellt, welches im Anschluss mit analogem Ablauf gemäß CHI-C8-BFPE-2.0 (#17) mittels CHI 5- sowie CHI 30-Prüfabmischungen einerseits zu normgerechten Spritzgussprüfkörpern und andererseits, kombiniert mit einer weiteren Verdünnungsstufe, zu finalen Monoblasfolien verarbeitet wurde.

Die Evaluierung der mechanischen Kennwerte der hergestellten Monoblasfolien verlief in Analogie zu den untersuchten PA6-haltigen Mischungen erwartungsgemäß positiv.

Repräsentative Beispiele verschiedener Messergebnisse bzw. Verarbeitungsverhältnisse wurden in die jeweiligen Abbildungen und Tabellen integriert, beispielsweise der optische Eindruck einer Monoblasfolie in Abb. 29d, die Dichte- und MFI-Werte in Tabelle 4, sowie Dichtigkeitswerte hergestellter Beutel in Tabelle 5.

Abschließend sollen Überlegungen zu einer möglichen Feuchteaufnahme PA-haltiger Abfälle bzw. Rezyklate die hier vorgestellten Untersuchungen abrunden.

Im Zusammenhang mit der Beurteilung der Recyclingfähigkeit von PE/PA-Mehrschichtfolien wird, unabhängig davon, ob sie mittels Haftvermittler coextrudiert oder via Klebstoff kaschiert sind, immer wieder das Argument der Wasseraufnahme von Polyamiden als K.-o.-Kriterium angeführt. Dabei handelt es sich allerdings um zwei verschiedene Aspekte:

1. PA-haltige Folienflakes nehmen während der Wasch- und Dichtentrennstufen im Verlauf des Recyclingprozesses zu viel Feuchtigkeit auf, sodass eine effektive Trocknung im normalen Recyclingprozess nicht mehr gewährleistet ist. Das führt wiederum zu Problemen bei der Herstellung und zu einer schlechteren Qualität von Rezyklaten.
2. PA-haltige Rezyklate nehmen unter üblichen Lagerbedingungen so viel Feuchtigkeit auf, dass eine finale Verarbeitung zu Spritzgussartikeln und insbesondere zu Blasfolien nicht mehr möglich ist.

Zum ersten Aspekt lässt sich feststellen, dass die Verweilzeit im Wasch- bzw. Dichttrennschritt nicht ausreichend lang ist, um eine komplette Migration von Wasser in die PA-Schicht(en) zu erlauben, die zudem überwiegend von PE-Schichten umschlossen sind. Somit handelt es sich bei der vorhandenen Feuchtigkeit in erster Linie um Oberflächenfeuchtigkeit, die im ebenfalls integrierten Trocknungsprozess bereits vor der Extrusion größtenteils entfernt wird. Darüber hinaus verfügen Recyclingextruder nach aktuellem Stand der Technik über (Vakuum-)entgasungen, die zusätzlich zur Entfernung flüchtiger Komponenten zum Einsatz kommen.

Tabelle 6 zeigt die Feuchteaufnahme von PE/PA6-Regranulaten mit sehr hohen PA6-Anteilen (20 bzw. 30 %) bei einer einstündigen (!) direkten Wasserlagerung. Dies wäre der theoretische Worst Case, der in der Praxis jedoch höchst unwahrscheinlich ist.

Tab. 6: Feuchteaufnahme verschiedener Granulate bei einstündiger Wasserlagerung

Nr.	Typ	Rezept	Feuchtigkeit (%)	
			Start	1h in Wasser
FB0	Regranulat	PE	0,093	0,1
FB1	Regranulat	30%PA6/PE	0,11	0,3
FB2	Regranulat	30%PA6/PE + Comp	0,11	0,31
B40LN	Neuware	PA6 (B40LN)	0,1	0,65

Zum zweiten Aspekt lässt sich feststellen, dass Recyclinganlagen mit dem Fokus auf PE-basierten Folienrezyklaten in der Regel über Unterwassergranulierungen (UWG) verfügen. Diese Technologie erzeugt ein Kugelgranulat ohne sichtbare Schnittkanten. In der vorliegenden Studie konnte gezeigt werden, dass die



PA-Anteile sogenannte Domänen in der PE-Matrix des Rezyklats bilden, die stets komplett von hydrophobem PE umgeben sind. Aufgrund der guten Dispergierung der geringen PA-Anteile ( $\ll 5\%$ ) in praxisrelevanten PE-Rezyklaten in Kombination mit der Geometrie eines Kugelgranulats ist die Feuchtigkeitsaufnahme während der Lagerung unter üblichen klimatischen Bedingungen erschwert. Sie stellt somit für die weitere Verarbeitung zu Endprodukten kein Risiko dar.

Während der Untersuchungen wurden die Materialien teilweise über längere Zeiträume unter verschiedenen klimatischen Bedingungen in Standard-Verpackungseinheiten (Kartonboxen mit einfachen PE-Inlinern) gelagert, aber niemals getrocknet. Gleichwohl wird dieses Thema und der hier vorgestellte theoretische Ansatz durch weitere Testreihen, teilweise auch unter Berücksichtigung längerer Lagerzyklen, an realistischen PE/PA-Rezyklaten eingehender untersucht.

#### 4. Schlussfolgerungen und Ausblick

Die Recyclingverträglichkeit von PA als Material im Allgemeinen und die Recyclingfähigkeit von PA-haltigen PE-Folienstrukturen im Speziellen konnten reproduzierbar nachgewiesen werden. Dies gilt unabhängig von der Vorgehensweise im Detail und der Qualität der genutzten Referenzproben sowohl für Polyamid 6 (PA6) als auch für die Co-Polyamide aus PA6 und PA6.6 (PA6/6.6).

Abhängig von der in der jeweiligen Mischung vorhandenen Polyamid-Konzentration sind unterschiedliche Rahmenbedingungen einzuhalten, wobei insbesondere die Dispergiergrenze von 10 % im Rezyklat eine zentrale Rolle spielt. In einem üblichen Recyclingstrom aus Haushaltsabfällen ist es sehr unwahrscheinlich, dass diese Grenze auch nur annähernd erreicht wird. Lässt man diesen Aspekt außer Acht, ist unterhalb dieses Grenzwertes eine relativ einfache Homogenisierung in einer PE-Matrix möglich. Oberhalb der 10 %-Marke ist der Einsatz eines Compatibilizers zur Realisierung einer homogenen Blend-Morphologie unumgänglich. Die eleganteste Variante der Zugabe eines Compatibilizers ist bereits die Integration in eine Mehrschicht-Primärfolie, die sogenannte Vorkompatibilisierung. Aber auch durch die Einarbeitung während der Regranulierung oder auch unmittelbar vor der finalen Verarbeitung zu einer neuen, rezyklatbasierten Anwendung lässt sich der Compatibilizer mittels einer einfachen physikalischen Vormischung („Salz & Pfeffer“) und direkter Dosierung dieses Blends einbringen.

Hauptergebnis der systematischen Untersuchungen gemäß CHI-Standard durch das Institut cyclos-HTP ist die offizielle Bestätigung der Recyclingverträglichkeit und -fähigkeit durch mittlerweile fünf Zertifikate sowie die praktische Nutzung dieser neuen Bewertungsrichtlinien bei der Bewertung der Recyclingfähigkeit coextrudierter, PA-haltiger Mehrschichtfolienstrukturen. Die neue Einstufung von PA-Schichten in coextrudierten Strukturen im CHI-Standard erfolgt unter Berücksichtigung bestimmter, hier beschriebener Voraussetzungen und unabhängig vom aktuellen Stand der Klassifizierung in Empfehlungsrichtlinien und Design-Guides verschiedenster Einrichtungen.

Die Abbildungen 36 und 37 zeigen die Zertifikate, welche die Recyclingverträglichkeit sowohl von PA6 (Abb. 36) als auch von PA6/6.6-CoPolyamiden mit Schmelzpunkten < 200°C (Abb. 37) bestätigen.



Abb. 36: Zertifikat Recyclingverträglichkeit PA6    Abb. 37: Zertifikat Recyclingverträglichkeit PA6/6.6

Die Abbildungen 38 bis 40 zeigen die Zertifikate, die PE-basierten Folien mit den beiden genannten Polyamidgruppierungen als coextrudierte Schichten die Recyclingfähigkeit bestätigen, wobei es dabei Abstufungen in Abhängigkeit von der genutzten Rezeptur bzw. Folienstruktur gibt. Hinsichtlich der Bestätigung einer 100%igen Recyclingfähigkeit im Fall der Anwesenheit eines Compatibilizers in der Primärfolie, wurde die Machbarkeit unter Nutzung von PA6 im Rahmen der Untersuchungen nachgewiesen und durch ein damit verbundenes Zertifikat bestätigt. Die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf PA6/6.6-CoPolyamide ist offenkundig angesichts der niedrigeren Schmelzpunkte, des geringeren Kristallisationsniveaus sowie des im Rahmen der Untersuchungen nachgewiesenen vergleichbaren Homogenisierungserfolgs bei der Verarbeitung von nicht vorkompatibilisierten PE/PA-Mischungen. Deshalb wurde die Übertragbarkeit der Ergebnisse lediglich stichpunktartig untersucht und bestätigt.

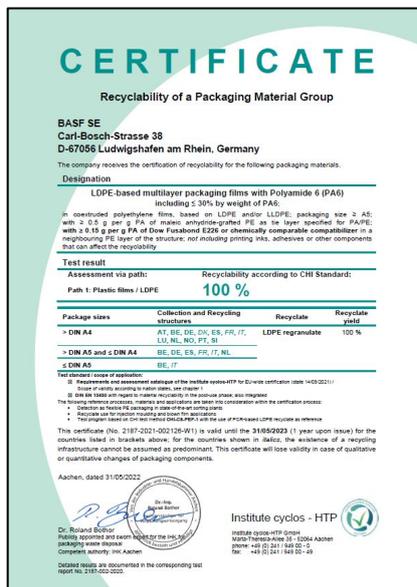


Abb. 38 Zertifikat Recyclingfähigkeit PE/PA ≤ 30 % PA6    Abb. 39: Zertifikat Recyclingfähigkeit PE/PA ≤ 30 % PA6, kompatibelisiert    Abb. 40: Zertifikat Recyclingfähigkeit PE/PA ≤ 30 % PA6/6.6

Im Rahmen der Untersuchungen konnte eindeutig nachgewiesen werden, dass sowohl PA6 als auch PA6/6.6-CoPolyamide in realistischen Mengenverhältnissen problemlos und ohne zusätzlichen Aufwand im anfallenden PE-Folienabfallstrom beim mechanischen Recycling der LDPE-Folienfraktion toleriert werden können. Für das Umschmelzen von vorrangig PE-haltigen Materialmischungen konnten übliche Temperaturprofile (180–210°C) verwendet werden und selbst bei Regranulaten mit einem hohen PA6-Gehalt war eine zusätzliche Trocknung vor oder während der Weiterverarbeitung nicht notwendig.

Das realistische Szenario mit einem niedrigen Gehalt an PE/PA-Folien wurde anhand von Rezyklat-Mischungen mit einem PE/PA-Folienanteil von 5 % und einem PA-Anteil von weniger als 2 % im PE-Folien-Abfallstrom überprüft. Dabei zeigte sich, dass grundsätzlich eine homogene Dispergierung der PA-Partikel in der PE-Matrix ohne Zugabe von Compatibilizern möglich ist.

Die in coextrudierten Mehrschichtfolien enthaltenen Konzentrationen von Haftvermittler fungieren hier bereits im positiven Sinne als „verdünnter“ Compatibilizer und sichern zusätzlich zur praktikablen Dispergierbarkeit eine stabile Morphologie der resultierenden Polymerblends.



Im Worst-Case-Szenario eines stark erhöhten PE/PA-Folienanteils von 30 % und eines PA-Anteils von max. 10 % ist grundsätzlich der Zusatz eines Compatibilizers notwendig, um eine an sich unverträgliche Mischung von PE- und PA-Komponenten zu einem stabil homogenen Blend zu vereinheitlichen. Aufgrund des Ergebnisses unter diesen Voraussetzungen sind Polyamid-Schichten in coextrudierten Strukturen mit Haftvermittler und Compatibilizer in spezifizierten Anteilen sogar als Wertstoff im mechanischen Recycling zu bewerten, da sie hier offensichtlich einen positiven Beitrag zur Qualität im Rezyklat liefern.

Diese grundsätzlichen Aussagen wurden nicht nur mehrfach und mit unterschiedlichen Folienrezepturen bzw. Polyamidtypen und -konzentrationen reproduziert, sondern sie decken sich auch mit anderen mittlerweile vorliegenden Untersuchungen, die beispielsweise von individuellen Kunststoffherstellern durchgeführt wurden. Stellvertretend genannt sei die Evaluierung einer symmetrischen PE/PA-5-Schichtfolie mit einem integrierten PA6/6.6-CoPolyamid durch RecyClass<sup>(#19)</sup>, außerdem eine Untersuchung bezüglich des Einflusses von PA bzw. PP in Polyethylen, durchgeführt im Auftrag von RecyClass am spanischen Kunststoffinstitut AIMPLAS<sup>(#20)</sup> sowie bei Rohstoffherstellern durchgeführte Studien ohne<sup>(#21)</sup>, aber auch mit Berücksichtigung verschiedener Compatibilizer.<sup>(#22)</sup>

Somit liegen mittlerweile vielfältige und belastbare technische Ergebnisse vor, welche die eingangs erwähnte und belegte Klassifizierung von Polyamiden im Allgemeinen als nicht recyclingfähige Verunreinigung widerlegen und eine solide Basis für eine Neubewertung dieser Einstufungen liefern.

Die Erkenntnisse aus den Untersuchungen in Kombination mit den Eigenschaften der Barrierepolymere lassen den Schluss zu, dass die Verträglichkeit von Polyamid höher sein müsste als die von EVOH, welches laut Mindeststandard offiziell als recyclingverträglich gilt.

Bemerkenswert ist der Nachweis von signifikanten Anteilen an PA und EVOH in „offiziell PA-freien“ kommerziellen LDPE-Rezyklaten. Die praktizierte NIR-Sortierung ist aktuell mehr auf die Identifizierung von Polyolefinen und deren Anreicherung in den jeweiligen Zielfractionen, weniger auf die Ausschleusung von Polyamidkomponenten ausgerichtet. Somit unterstützen die vorliegenden Untersuchungsergebnisse die nachträgliche offizielle Akzeptanz PA-haltiger Mehrschichtfolienstrukturen in einem mechanischen Recyclingprozess, der bereits praktiziert wird!

Im Anforderungs- und Bewertungsstandard des Instituts Cyclos-HTP wird nun die nachstehende Bewertung von Polyamid in PE-basierten Verpackungsfolien vorgenommen.

Coextrudierte Folienschichten aus Polyamid 6 (PA6) oder Co-Polyamid 6/6.6 (PA6/6.6) sind „recyclingkompatibel für PE-Folien-Recycling“ in Rezyklaten für Spritzguss- und Blasfolienanwendungen, wenn die folgenden Voraussetzungen erfüllt sind:

- Einsatz von PA in Kombination mit einem maleinsäureanhydridgepropften (MAHg) PE als Haftvermittlerschicht in einem Verhältnis von  $\geq 0,5$  g HV pro g PA in einer coextrudierten Folie
- Der Haftvermittler muss vom Hersteller für den Einsatz für die Coextrusion von PA und PE spezifiziert sein.

Verpackungsfolien mit einer Schicht aus Polyamid 6 (PA6) sind „vollständig recyclingfähig“, wenn *alle* der folgenden Voraussetzungen erfüllt sind:

- Einsatz von PA6 in Kombination mit einem maleinsäureanhydridgepropften PE als Haftvermittlerschicht in einem Verhältnis von  $\geq 0,5$  g HV pro g PA in einer coextrudierten Folie
- Der Folienaufbau muss *zusätzlich* ein Kompatibilisierungsmittel wie z. B. Dow Fusabond E226 (oder vergleichbar) in einem Anteil  $\geq 0,15$  g pro g PA enthalten.

Dies gilt für Folienstrukturen ohne Druckfarben oder andere Komponenten, welche die Recyclingfähigkeit beeinträchtigen. Die entsprechenden Materialien wurden getestet mit  $\leq 30$  Gew.-% PA6 in coextrudierten PE-Folien, basierend auf LDPE und LLDPE.



Eine entsprechende Empfehlung zur Berücksichtigung im Mindeststandard wurde formuliert.

Darüber hinaus sind weiterführende Arbeiten zu den Themenkreisen Langzeituntersuchungen der Feuchteaufnahme unter verschiedenen Bedingungen, coextrudierte Mehrschichtfolien auf Basis PE/PA/EVOH- und PA/PP- sowie PA-haltiger Kaschierverbundstrukturen teils bereits in Bearbeitung, teils vorgesehen. Über die zu erwartenden Ergebnisse wird zu gegebener Zeit an geeigneter Stelle berichtet.

## 5. Literatur / Referenzen

- #1) Diverse Marktstudien AMI Ltd., Bristol, UK, 2015 & 2019
- #2) „Mindeststandard für die Bemessung der Recyclingfähigkeit von systembeteiligungspflichtigen Verpackungen gemäß § 21 (3) VerpackG“; Stiftung Zentrale Stelle Verpackungsregister, 09/2021
- #3) <https://recyclclass.eu/recyclability/online-tool/>: test the recyclability of your plastic packaging
- #4) [www.cotrep.fr](http://www.cotrep.fr): General Notice 70 “Impact of PA on the regeneration of flexible PE household packaging”, 12/2021
- #5) <https://recyclclass.eu/guidelines/natural-pe-flexible-films/>;  
<https://recyclclass.eu/guidelines/coloured-pe-flexible-films/>
- #6) <https://guidelines.ceflex.eu>: D4ACE Guidelines – An Introduction, 06/2020
- #7) [www.plastics.ellenmacarthurfoundation.org/upstream](http://www.plastics.ellenmacarthurfoundation.org/upstream): Upstream innovations: A guide to packaging solutions
- #8) Leitfaden für nachhaltigere Verpackungen, Version 2.0, Aldi/Reclay Group, 2020
- #9) <https://i2.wp.com/www.circularonline.co.uk/wp-content/uploads/2020/03/Screenshot-2020-03-05-at-09.59.57.png?ssl=1>, Part of Tesco’s 2 4R strategy
- #10) Erfahrungswerte/Marktstudien BASF SE (Folienrezepte 2016, Recyclingblends 2019/2020)
- #11) Illing, G.: Makromolekulare Mehrstoffsysteme. Schlagfeste PA-PO-Legierungen, ein Beitrag zur Strukturaufklärung. Die Angew. Makrom. Chemie 95, 1 (83-108) 1981
- #12) DE19502819 “Tough PA 6 moulding composition produced from entirely recycled materials”; Grützner, R. E.; Koine, A. (1996)
- #13) Jiang C.; Filippi S.; Magagnin P.: Reactive compatibilizer precursors for LDPE/PA 6 blends, part II: Maleic anhydride grafted polyethylenes. Polymer 44, 8 (2411-2422) 2003
- #14) Projekt REFLEX, Abschlussbericht 2016
- #15) Marktstudie Conversio, durchgeführt im Auftrag der BASF SE, 2018
- #16) [www.cyclos-htp.de](http://www.cyclos-htp.de): Standard CHI-C8-PEF-1 “Recycling application compatibility test for Polyethylene-(PE)-based flexible packaging”
- #17) [www.cyclos-htp.de](http://www.cyclos-htp.de); CHI-C8-BFPE-2.0 “Preparation & Application of PE-based blown films”
- #18) Abschlussbericht „Mechanisches Recycling von PE- und PP-basierten Mehrschicht-Verpackungsfolien mit Polyamid“; Institut cyclos-HTP GmbH, Aachen 09/2021
- #19) <https://recyclclass.eu/wp-content/uploads/2021/03/2020-PO-011-UBE-technology-approval-letter.pdf>, 2021
- #20) <https://recyclclass.eu/news/recyclability-of-flexible-polyethylene-with-pp-pa-novel-findings>, 2021
- #21) <https://ube.es/wp-content/uploads/2021/03/PIP-02-21-025-v2.pdf>, Plastics in Packaging 2021; Recycling of multilayer films containing Polyamides, Joint presentation BASF & Ube, CEFLEX General Meeting 03/2021
- #22) PA Recyclability Assessment Film Evaluation, Dow, 2021