



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 103 24 098 A1** 2004.12.16

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **103 24 098.5**

(22) Anmeldetag: **27.05.2003**

(43) Offenlegungstag: **16.12.2004**

(51) Int Cl.7: **C08G 63/183**
B29B 17/00

(71) Anmelder:

**Schoeller Plast Industries GmbH, 82049 Pullach,
DE**

(74) Vertreter:

Grosse, Bockhorni, Schumacher, 81476 München

(72) Erfinder:

**Schoeller, Martin, 82343 Pöcking, DE; Fredl,
Rüdiger, 65549 Limburg, DE**

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht zu
ziehende Druckschriften:

DE 197 10 098 A1

US 55 03 790 A

EP 09 66 344 B1

WO 98/40 194 A1

WO 01/21 372 A1

JP 2001-0 18 223 A

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Rechercheantrag gemäß § 43 Abs. 1 Satz 1 PatG ist gestellt.

(54) Bezeichnung: **Verfahren zum Recyceln von Polyethylen-Terephthalat**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zum Recyceln von Polyethylen-Terephthalat (PET) mit den Verfahrensschritten

- Extrudieren und/oder Granulieren unter im wesentlichen Vakuum (Entgasung) mit oder ohne "Strippen" zur Entfernung flüchtiger Kontaminationen, insbesondere von Azetaldehyd von Oligomeren;

- Durchführen einer Feststoffnachkondensation unter im wesentlichen Vakuum mit oder ohne "Strippen" zur Entfernung restlicher Kontaminationen, wobei ein Trocknungsschritt vor dem Extrudieren/Granulieren und/oder ein Kristallisationsschritt zwischen Extrusion/Granulation und Feststoff-Nachkondensation vorgesehen ist.

Beschreibung**Aufgabenstellung**

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zum Recyceln von Polyethylen-Terephthalat (PET) nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

[0002] Polyethylen-Terephthalat (PET) erfreut sich zunehmender Beliebtheit für die Verwendung bei Getränkeflaschen, medizinischen Geräten, als Fasern oder Folien usw. Aufgrund des stark gestiegenen Einsatzes von PET besteht auch ein starkes Bedürfnis, PET-Produkte, z.B. PET-Mehrwegflaschen, nach dem Ende ihrer Lebenszeit zu recyceln und so einen geschlossenen Wertstoffkreislauf für das PET-Material zu installieren.

Stand der Technik

[0003] Aus der EP 966 344 ist ein Verfahren zum Recyceln von PET bekannt, bei dem das zu recycelnde PET-Material, beispielsweise ausgediente Getränkeflaschen, zunächst zu sogenannten PET-Flakes zerkleinert, von metallischen oder anderen Fremdstoffen, wie z.B. Verschlusskappen, getrennt und durch eine Vorwäsche von grobem Schmutz gereinigt werden. Die so erhaltenen PET-Flakes werden nach einem weiteren Waschprozess einem speziellen Extruder, nämlich einem Doppelschneckenextruder oder einem ähnlich gearteten Extruder zugeführt, wobei in dem Extruder Entgasungszonen vorgesehen sind, die zu einem Entfernen von flüchtigen Kontaminationen dienen. Beispielsweise werden hier Azetaldehyde und Oligomere entfernt, die beim weiteren Recycling oder bei der Verarbeitung zu neuen PET-Produkten störend sind. Während des Extrudierens wird das Material zusätzlich üblicherweise einem weiteren „Strippen“ unterzogen, was soviel bedeutet, dass Inertgas, wie Stickstoff und/oder Wasserdampf unter homogener Verteilung eingedüst wird, so dass sich die flüchtigen Kontaminationen besser verteilen können und dadurch besser eliminiert werden können.

[0004] Neben dem Extrudieren und damit verbundenem bzw. nachfolgendem Granulieren wird das zu recycelnde PET-Material in einem weiteren Verfahrensschritt, einer sogenannten Feststoff-Nachkondensation unterzogen, bei der das Material in einem Taumeltrockner Temperaturen von 220 bis 250°C bei nahezu Vakuumbedingungen, also im Druckbereich von 0,1 bis 0,01 mbar, ausgesetzt wird. Hier werden die restlichen Kontaminationen nahezu vollständig dem Material entzogen.

[0005] Obwohl dieses Verfahren zu zufriedenstellenden Ergebnissen führt, besteht weiterhin ein Bedarf, dieses Verfahren hinsichtlich der wirtschaftlichen Durchführbarkeit und der Recyclingergebnisse, d.h. der Qualität der Recyclingprodukte, zu verbessern und zu optimieren.

[0006] Es ist deshalb Aufgabe der vorliegenden Erfindung, das Verfahren der anfangs genannten Art dahingehend zu verbessern, dass es wirtschaftlicher und effizienter durchgeführt werden kann und dass das recycelte Material gleichzeitig eine zumindest gleichbleibende Qualität, vorzugsweise eine höhere Qualität aufweist.

[0007] Diese Aufgabe wird gelöst durch ein Verfahren mit den Merkmalen des Anspruchs 1. Vorteilhaft ausgestaltungen sind Gegenstand der abhängigen Ansprüche.

[0008] Gemäß der vorliegenden Erfindung wird das bekannte Verfahren zum Recyceln von PET dahingehend verbessert, dass vor dem Extrudieren/Granulieren ein Trocknungsschritt und/oder zwischen Extrudieren/Granulieren und Feststoff-Nachkondensation ein Kristallisationsschritt eingefügt wird. Diese beiden Maßnahmen, die alternativ oder in Kombination miteinander in das Verfahren eingebaut werden, bewirken sowohl für sich alleine als auch in Kombination miteinander eine effizientere und damit kostengünstigere Durchführung des Verfahrens und eine höhere Produktqualität.

[0009] Durch den Trocknungsschritt, der vorzugsweise eine Heißluftbehandlung des insbesondere zerkleinerten, gewaschenen und von Fremdstoffen getrennten PETs umfasst, führt zu einem geringeren Wasser- bzw. Wasserdampfgehalt im Extruder, was dazu führt, dass die Viskosität des PET-Materials beim Extrudieren nicht so stark absinkt bzw. das recycelte Material eine höhere Viskosität aufweist, was wiederum die Weiterverarbeitung beispielsweise zu Getränkeflaschen begünstigt.

[0010] Außerdem fördert der verringerte Wasserdampfgehalt im Extrusionsprozess die Entgasung des Azetaldehyds, so dass durch die durch das Azetaldehyd verursachte Gelbfärbung beim recycelten PET-Material leichter verhindert oder beseitigt werden kann.

[0011] Der Trocknungsschritt wird bei geeigneten Temperaturen durchgeführt, und zwar vorzugsweise über 4 bis 6 Stunden, insbesondere 5 Stunden. Bei diesen Prozessparametern ergibt sich ein wirtschaftlicher Vorteil dadurch, dass die Verweildauer des Materials bei der Nachkondensation deutlich verringert werden kann, so dass der Aufwand für die anfängliche Heißlufttrocknung in dem besagten Temperatur- und Zeitintervall vertretbar ist. Hierbei ist besonders zu bedenken, dass die PET-Flakes einfacher getrocknet werden können, als das PET-Granulat im Taumeltrockner, kondensiert werden kann.

[0012] Der zusätzliche Kristallisationsschritt führt

dazu, dass sich bei dem extrudierten/granuliertem PET eine Teilkristallinität einstellt, die dazu führt, dass der Feststoff-Nachkondensationsprozess besser und/oder schneller durchgeführt werden kann. Insbesondere führt die Teilkristallinität des PET dazu, dass es bei den folgenden Verarbeitungsschritten, insbesondere der Feststoff-Nachkondensation, nicht zu einer Verklebung des PET-Granulats kommt. Auch dadurch kann die notwendige Zeit für den Feststoff-Nachkondensationsprozess verringert werden.

[0013] Vorzugsweise wird der Kristallisationsschritt in einem erhitzten Rüttelbett durchgeführt.

[0014] Gemäß eines bevorzugten Ausführungsbeispiels wurden lose bzw. in Ballen gepresst angelieferte PET-Flaschen vorgewaschen, damit die Getränke- und sonstige anhaftende Verschmutzungen vom PET entfernt werden können. Hierzu wird vorzugsweise ein mit etwas Natronlauge versetztes Spülwasser verwendet. Dies führt auch dazu, dass Klebstoffe, die beispielsweise von aufgeklebten Etiketten herrühren, weitgehend bzw. vollständig entfernt werden können. Auch werden die PET-Flaschen zerkleinert und sogenannte PET-Flakes hergestellt, wobei in diesem Verfahrensschritt auch eine Trennung durchgeführt wird, beispielsweise von den der schwimmenden von den sinkenden Materialien, Verschlusskappen aus Polyäthylen oder sonstigen Fremdstoffen wie anderen Kunststoffen, Metallteilen und dergleichen. Danach wird das PET, d.h. die PET-Flakes noch einmal sauber gewaschen, bevor sie einem Heißlufttrockner zugeführt werden, bei dem sie bei geeigneten Temperaturen etwa 5 Stunden getrocknet werden. Danach werden sie einem Doppelschneckenextruder mit einer Schnecken-drehzahl von 1350 bis 1450 U/min und einem Durchmesser von 100 mm zugesetzt, der 3 Entgasungszonen, mit 2 Flüssigkeitsringpumpen und einem Wälzkolbenpumpenstand aufweist und bei dem das Material unter nahezu Vakuum bei einer Temperatur von 280°C unter gleichzeitigem „Strippen“ extrudiert wird. Nach der Extrusion und der Granulation des PET wird das Material einem erhitzten Rüttelbett (Kristallisationsator) zugeführt, wobei das Material bei einer geeigneten Temperatur einige Stunden im Rüttelbett verbleibt, bis eine gewisse Teilkristallinität sich einstellt, die insbesondere ein Verkleben des PET bei der weiteren Verarbeitung verhindert.

[0015] Nach dem Kristallisationsschritt wird das Recyclingmaterial der Feststoff-Nachkondensation durchgeführt, die in einem Taumeltrockner bei Temperaturen von 220 bis 250 °C und einem Druck von 0,1 bis 0,01 mbar zwischen 6 und 18 Stunden durchgeführt wird, wobei der Taumeltrockner 2 Umdrehungen pro Minute durchführt. Auch hier wird ebenfalls, wie beim Extrudieren ein „Strippen“ des Materials durchgeführt wird, d.h. Inertgas und/oder Wasserdampf eingedüst.

[0016] Bei dem so erzeugten PET-Recyclat hat sich ergeben, dass nur noch Spuren von Kontamination im ppm-Bereich nachgewiesen werden konnten oder dass das Recyclat Kontaminationen nur noch unter der Nachweisgrenze enthielt.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Recyclen von Polyethylen-Terephthalat (PET) mit den Verfahrensschritten
– Extrudieren und/oder Granulieren unter im Wesentlichen Vakuum (Entgasung) mit oder ohne Strippen zur Entfernung flüchtiger Kontaminationen, insbesondere von Azetaldehyd und Oligomeren;
– Durchführen einer Feststoff-Nachkondensation unter im Wesentlichen Vakuum mit oder ohne Strippen zur Entfernung restlicher Kontaminationen;
gekennzeichnet durch
einen Trocknungsschritt vor dem Extrudieren/Granulieren und/oder einem Kristallisationsschritt zwischen Extrusion/Granulation und Feststoff-Nachkondensation.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das PET zur Entfernung erster Kontaminationen insbesondere mit laugenhaltigem Wasser, insbesondere Natronlauge-haltigem Wasser gewaschen wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass insbesondere vor dem Waschen des PET das PET durch Zerkleinern, Vorwaschen und/oder Separieren vorbereitet, gereinigt und/oder von grobem Schmutz und Fremdstoffen getrennt wird und insbesondere PET-Flakes erzeugt werden.

4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Trocknungsschritt mittels Heißluft erfolgt.

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Trocknungsschritt 4 bis 6 Stunden andauert.

6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Kristallisationsschritt so lange durchgeführt wird, bis das PET eine Teilkristallinität erreicht, die insbesondere eine Verklebung bei der weiteren Verarbeitung verhindert.

7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Kristallisationsschritt in einem erhitzten Rüttelbett durchgeführt wird.

8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Strip-

pen nur mit Inertgas durchgeführt wird.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen