

## 2.1.4.2-1 添付資料-2 PETボトル回収チップの分析

### 1. 試料

- (1)URRC UNPET 747 (チップ)
- (2)PTI (チップ)
- (3)回収フレーク (前回分析試料 81221)

(株) 東洋紡総合研究所  
分析物性研究センター

### 2. 分析項目

- (1)チップおよびフレークの無機分析
- (2)チップおよびフレークの揮発成分分析
- (3)チップおよびフレークの溶出試験
- (4)チップおよびフレークの溶出物揮発成分分析
- (5)チップの紡糸工程濾過圧評価

### 3. 分析方法

#### (1)チップおよびフレークの無機分析

各試料約 5g をサンプリングし、そのまま熔融成形して分析試料とした。蛍光X線分析装置を用いて多元素同時測定で 9F~92Uの無機元素の定性分析を行った。さらに PET 検量線を用いて半定量分析を行った。

<蛍光X線>

装置：リガク 3270、Rh 管球

各試料約 0.7g を精秤し、灰化、酸溶解後、原子吸光法により Na の定量を行った。

<原子吸光>

装置：島津 原子吸光 AA-640-12

#### (2)チップおよびフレークの揮発成分分析

各試料 4g を固体 P&T により 100℃で 10 分間パージし、そのまま GCMS に導入して揮発成分の定性および半定量を行った。

<固体 P&T>

装置：日本分析工業製 JHS-100

温度条件：試料部…100℃×10 分

キャリアー：He 20ml

<GCMS>

装置：HP5973

分析カラム：HP-1 φ0.25mm×30m

温度条件：50℃ (2min) ~220℃、10℃/min

(3)チップおよびフレークの溶出試験

チップは冷凍粉碎したもの、フレークはそのままを溶出試料とした。各試料約20gを精秤し、800mlの食品疑似溶媒で溶出試験を行った。この浴比は食品衛生法等で定められている浴比(2ml/1cm<sup>2</sup>)に相当する。(厚さ約0.7mmのPETフィルムとして)

表1 溶出条件

疑似溶媒	水	20%エタノール	n-ヘプタン
温度(℃)	95(95)	90(60)	60(25)
時間(分)	30(30)	30(30)	60(60)

( )内は食品衛生法の溶出条件である

(4)チップおよびフレークの溶出物揮発成分分析

分析方法(3)と同様の条件で得られた溶出液をエバポレーターを用いて減圧下で3mlに濃縮しGC試料液とした。GC分析により検出された主な成分をGCMSにより定性した。

<GC>

装置：HP5890 II  
カラム：HP-INNOWAX φ0.53mm×30m  
温度：80℃(2分)→250℃(6分) 10℃/min  
検出器：FID

<GCMS>

装置：HP6890  
カラム：HP-1 φ0.25mm×30m  
温度：50℃(3分)→250℃(5分) 15℃/min  
検出器：MDS

(5)チップの紡糸工程濾過圧評価(フィルトレーションテスト)

試料(1)、(2)のチップについてのみ紡糸実験を行った。

<紡糸実験>

装置：小型紡糸機(押出機内径20mmφ)  
条件 i) 吐出量：5g/min  
ii) 口金温度：285℃  
iii) 紡糸口金：0.4(D)–0.8(L)–8H  
iv) フィルタ構成：#50–#100–#2400–#100(メッシュ)

#### 4. 結果

##### (1) チップおよびフレークの無機分析

表2 チップおよびフレークの無機定性分析結果 (蛍光X線法 オーダー分析)

試料	蛍光X線 (オーダー分析 単位 : ppm)											
	Na	Al	Si	P	S	Cl	Ca	Fe	Co	Ge	Sb	他
URRC			60	60	10			10	10	30	30	
PTI		180	250	30	20	30		10	10	20	30	
81221 フレーク	150		40	50			10	10		30		

空欄は不検出を意味する。

オーダー分析では右側の重元素になるほど、数値が低めにでる傾向がある。特に、Sb (Sb-K α線) ではSbの数値は低めであり、明らかに信頼性に欠けている。参考までにPETの定量用検量線を用いて半定量分析を行った結果を以下に示す。

表3 チップおよびフレークの無機半定量分析結果 (蛍光X線法 PET 検量線)

試料	蛍光X線 (半定量分析 PET 検量線 単位 : ppm)											
	Mg	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	P	Ca	TiO <sub>2</sub>	Mn	Co	Zn	Ge	Sb	
URRC	ND	160	Tr	60	2	ND	ND	8	ND	28	83	
PTI	12	630	420	28	3	5	ND	8	ND	27	87	
81221 フレーク	12	66	ND	46	9	ND	ND	2	ND	32	38	

表4 チップおよびフレークのNa 定量結果 (原子吸光法)

試料	Na 濃度 ppm
URRC	16.23
PTI	7.24
81221 フレーク	20.10

##### (2) チップおよびフレークの揮発成分分析

表5 チップおよびフレークの検出揮発成分およびトルエン換算による半定量値

成分	試料	URRC (ppb)	PTI (ppb)	81221 フレーク (ppb)
クロロホルム		—	—	3
フェノール		—	—	21
エチレングリコール		—	—	33
リモネン		—	—	10
ジエチレングリコールモノメチルエーテル		—	—	5
フェノキシエタノール		—	—	11
BHT		—	—	9
トルエン		—	2	—
キシレン		—	4	—

—は 1ppb 以下で不検出を表す

(3)チップおよびフレークの溶出試験

表6 チップおよびフレークの溶出量

疑似溶媒	温度 (℃)	時間 (分)	URRC (mg/1溶出液)	PTI (mg/1溶出液)	81221 フレーク (mg/1溶出液)
水	95	30	3.0	2.6	3.9
20%エタノール	90	30	3.0	2.4	4.3
n-ヘプタン	60	60	0.1	0.2	0.3

n-ヘプタンの溶出量は非常に少なく、定量精度は低い

(4)チップおよびフレークの溶出物揮発成分分析

表7 チップおよびフレークの水溶出液中検出揮発成分

成分	試料	URRC	PTI	81221 フレーク
エチレングリコール		++	++	++

++は微量レベルでのピーク強度比を示す。

++++>++++>+++>++>+>- 「-」は不検出

表8 チップおよびフレークの20%エタノール溶出液中検出揮発成分

成分	試料	URRC	PTI	81221 フレーク
エチレングリコール		++	+++	+++++
スクワレン		-	+	++
フタル酸ジブチル		-	-	++

表9 チップおよびフレークのn-ヘプタン溶出液中検出揮発成分

成分	試料	URRC	PTI	81221 フレーク
アセトフェノン		-	++	-
2-メチルプロピオン酸ヘキシル		+	+	+
酪酸ブチル		+	+	+
アジピン酸ジ2-メチルプロピル		++	+	++
ミリスチン酸イソプロピル		+	+	++
フタル酸ジブチル		+	+	+

・水溶出液についてはエチレングリコールを主として検出したが、試料間に差は見られない。

・20%エタノール溶出液は81221回収フレークに見られる成分のうち、URRCはスクワレン、フタル酸ジブチルが検出されず、PTIはフタル酸ジブチルが検出されなかった。

・n-ヘプタン溶出液についてはURRCと81221回収フレークと同成分を検出したが、PTIは81221回収フレークで検出された成分以外にアセトフェノンを検出した。

(5)チップの紡糸工程濾過圧評価 (フィルトレーションテスト)

濾過圧上昇推移

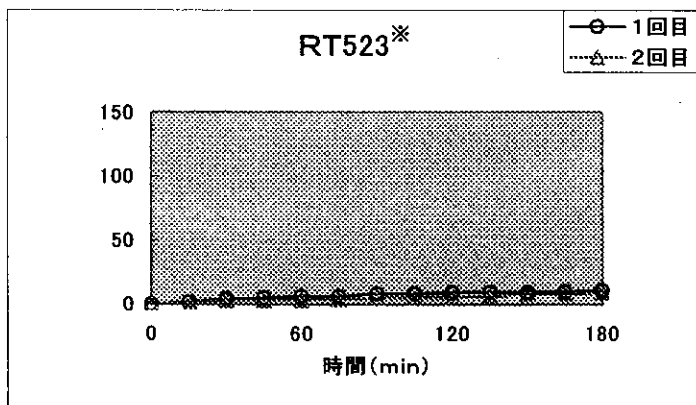
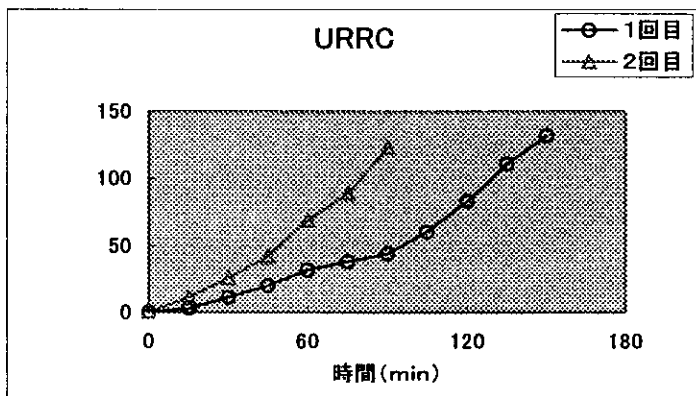
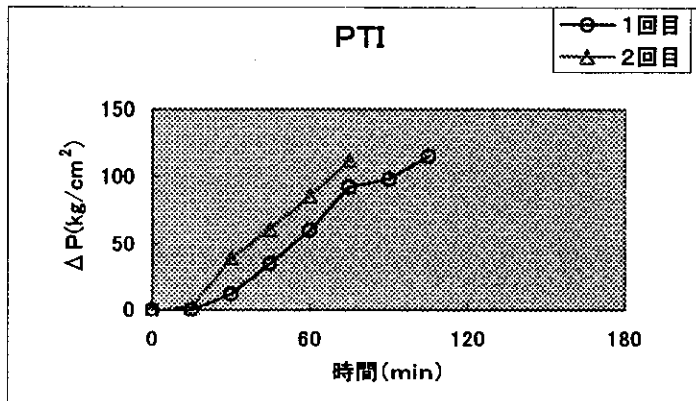


表10 チップの濾過圧および極限粘度

試料	紡糸温度 (°C)	濾過圧(kg/cm <sup>2</sup> )		極限粘度(dl/g)	
		1回目	2回目	レジン	繊維
RT523P*	285	11	9	0.599	0.586
URRC	285	132	123	0.719	0.655
PTI	285	115	112	0.821	0.684

- ・評価用レジン（チップ）は丸みを帯びており、エクストルーダーへの供給が懸念されたが、問題はなかった。
- ・両試料共に約60～120分以内で、初期圧から100kg/cm<sup>2</sup>以上の濾過圧の上昇が起こった。
- ・特に“PTI”の上昇が顕著である。
- ・レジン中に存在すると見られる異物がフィルターに堆積していると考えられる。
- ・評価で採取したサンプルの分析によって、異物の特定はできると考えている。
- ・繊維の極限粘度の減少度合いが大きく、熱劣化が激しい。

2.1.4.2-1 添付資料-3 フィルトレーションテスト (第2回)

①紡糸実験

小型紡糸機 (押出機内径20mmΦ)

条件 i) 吐出量 : 5 g/min

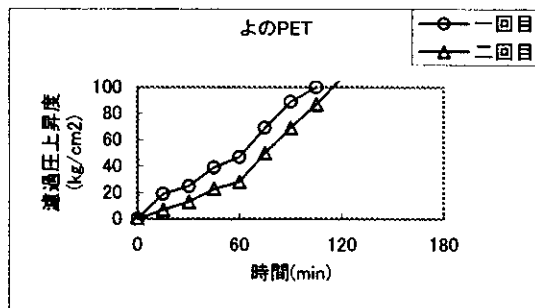
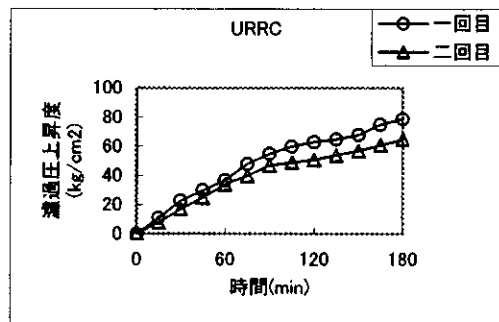
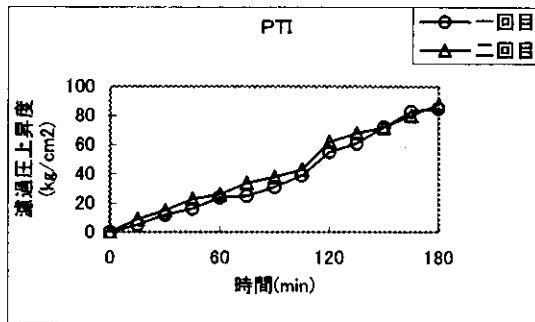
ii) 口金温度 : 285℃

iii) 紡糸口金 : 0.4 (D) - 0.8 (L) - 8H

iv) フィル構成 : #50 - #100 - #2400 - #100 (メッシュ)

(株) 東洋紡総合研究所  
分析物性研究センター

②濾過圧上昇の推移



	紡糸温度 (℃)	濾過圧 kg/cm <sup>2</sup>		極限粘度 dl/g	
		1回目	2回目	レジン	繊維
よのPET	285	74	67	0.631	0.624
URRC	285	79	65	0.724	0.659
PTI	285	85	88	0.83	0.691

- ①紡糸前のレジン水洗によって、ファインがなく濾過圧の上昇度が低減した。
- ②上記により所定の3時間の試験が可能となった。
- ③しかし、依然濾過圧上昇度は大きく、基準値以内には収まらない。

## 2.1.4.2-1 添付資料-4 回収チップ紡糸テストフィルター詰まり物分析

東洋紡総合研究所  
分析物性研究センター

### 1. 試料

回収チップ 3点

(UNPET、PTI、よのPET)

紡糸テスト後フィルター 5点

(UNPET、UNPET洗浄後、PTI、PTI洗浄後、よのPET)

### 2. 目的

(1)各回収チップの分子量分布の比較を行う。

(2)紡糸テスト後フィルター詰まり物の特定を行う。

### 3. 分析方法

(1)試料約5mgをHFIP/クロロホルムに溶解後、クロロホルムで20mlに定容し、0.5μmのメンブランフィルターで濾過し、濾液をGPCに供した。

#### GPC分析

##### 測定条件

Column: GMH<sub>XL</sub>・GMH<sub>XL</sub>・G2000H<sub>XL</sub> (TOSOH)

Mobile phase: HFIP / Chloroform = 2 / 98 (v/v)

Flow rate: 0.7 ml/min

Column Temp.: 40℃

Detection: UV-254nm

Injection Vol.: 200μl

##### 測定に用いた装置

GPC: SYSTEM-21 (Shodex)

データ処理: SIC-480 (SIC, システムインストルメント)

(2)紡糸後フィルターをHFIPに浸漬して付着したPETを溶解させ、クロロホルムで洗浄後、フィルターを分解した。最も目の細かいフィルター表面付着物(比較的大きな付着物)とフィルターの目に詰まった物質(細かい詰まり物)を取り出し、それぞれのIRスペクトルを測定した。

測定方法 FT-IR 顕微透過法

装置 FT-IR: BIO-RAD 社製 FTS-40、

赤外顕微鏡: BIO-RAD 社製 UMA 300A

また、最も細かいフィルターのSEM二次電子像写真を撮影した。

・試料調製 カーボン蒸着

・形態観察 走査電子顕微鏡 日立 FE-SEMS4500

加速電圧: 2kV



#### 4. 結果および考察

##### (1)回収チップの分子量分布測定結果

試料	Mw	Mn	Mw/Mn
UNPET	64000	18000	3.5
PTI	80000	22000	3.6
よのPET	55000	17000	3.3

Mw：ポリスチレン換算重量平均分子量

Mn：ポリスチレン換算数平均分子量

よのPETのチップに比べてUNPETチップ、PTIチップは分子量が高く、分子量分布が広い。特にPTIチップは分子量が高い。UNPETチップ、PTIチップのクロマトには低分子量側にショルダーが見られる。このようなショルダーは固相重合品に見られる。

##### (2)紡糸テスト後のフィルター詰まり物分析結果

フィルター圧力の上昇は最も目の細かいフィルターの詰まり物の影響を強く受けると考えられることから、今回は最も目の細かいフィルターの詰まり物についてのみ分析を行った。いずれの試料にもフィルター表面には黒茶色～白色の付着物（比較的大きな樹脂状物）が点在していた。しかし、フィルターの目には細かい粒状物が詰まっており、この詰まり物が圧力の上昇に強く影響していると思われる。以下にIR分析の結果を示す。

IR分析結果

試料		色	主成分組成
UNPET フィルター	付着物	茶色	PET 熱劣化物
		薄茶色	PET 熱劣化物
		白色	金属酸化物、ケイ酸塩、PET
	目詰まり物	白色～茶色	ケイ酸塩、炭酸塩、ポリエチレン
UNPET 洗浄後フィル ター	付着物	茶色	PET 熱劣化物
		白色	ポリブチルアクリレート
	目詰まり物	白色～茶色	ケイ酸塩、炭酸塩
PTI フィルター	付着物	茶色	ポリエチレン
		薄茶色	ポリエチレン
		白色	ポリエチレン、SiO <sub>2</sub>
	目詰まり物	白色～茶色	金属酸化物、ケイ酸塩、炭酸塩、PET 熱劣化物
PTI 洗浄後 フィルター	付着物	茶色	ポリエチレン
		薄茶色	ポリブチルアクリレート
	目詰まり物	白色～茶色	金属酸化物、ケイ酸塩、炭酸塩、PET 熱劣化物
よのPET フィルター	付着物	黒茶色	ポリエチレン、PET 熱劣化物
		白色	ポリブチルアクリレート
	目詰まり物	白色～茶色	ケイ酸塩、金属酸化物、炭酸塩、PET 熱劣化物

いずれのフィルターも目詰まり物は白色～茶色の多数の粒子であった。その粒子を集めて分析を行ったため、目詰まり物は多成分の混合物となっている。

この目詰まり物がフィルターの圧力上昇を引き起こしていると考えられる。いずれの資料も目詰まり物の主成分は土砂の類であると考えられる。

## 2.1.4.2-1 添付資料-5 URRC, PTI処理リサイクルPET水洗浄後の物性分析

三井化学分析センター

### 1 目的

リサイクルPET製品中にPETの微粉末の混入があり、透明性に悪影響が推定される。  
確認として水で洗浄し微粉末を除去し段付きプレートを作成してHAZEを分析する。

### 2 物性評価

特性	段付きプレート 厚み	URRC品		PTI品社	
		洗浄前	洗浄後	洗浄前	洗浄後
HAZE (%)	3mm	2.2	2.3	4.2	4.3
	4mm	16.8	18.7	7.3	7.4
	5mm	86.0	87.6	36.2	39.4
	6mm	93.6	93.6	84.7	86.5

### 3 リサイクルPET樹脂の熱特性 (DSC)

サンプル	Tg (°C)	TC-1 (°C)	Tm (°C)	TC-2 (°C)
URRC品、洗浄品	79.7	137.5	251.7	193.7
URRC品、未洗浄品	79.6	137.5	251.5	193.0
PTI品、洗浄品	79.5	134.5	249.7	185.7
PTI品、未洗浄品	79.8	134.4	250.0	186.5

### 4 分析結果

- ・ 洗浄の有無で基本物性に变化はない。
- ・ PTIの方がHAZEで優れているが、TC-2の値からも理解される。

2.1.4.2-2 別表-1 検査機による検査結果 (検査総数: 205,128本)

	検出した異物			合計
	黒色異物	白色異物	その他	
検出数量 (本数)	471	133	38	642本
検出率 (%)	0.23	0.06	0.02	0.31%

2.1.4.2-2 別表-2 検査機で検出した異物の大きさ (最大~最少: mm)

	黒色異物	白色異物	その他異物
検出機	1.8×2.8 (5.04)	2.5×1.8 (4.50)	2.7×2.9 (7.83)
	~ 0.1×0.1 (0.01)	~ 0.2×0.5 (0.10)	~ 0.9×0.9 (0.81)

2.1.4.2-2 別表-3 検査機通過ボトルの抜き取り目視検査結果

	検出した異物			合計
	黒色異物	白色異物	その他異物	
検出数量 (本数)	39	2	2	43本
検出率 (%)	1.13	0.03	0.03	1.24%

2.1.4.2-2 別表-4 異物の材質分析(異物を外観で分類し、代表的な8種類を分析)

異物	分析結果
黒色異物 1	石片
黒色異物 2	木片
白色異物	シリコンゴム
白色異物 (繊維状)	テフロン
茶色異物	ニトリルゴム
緑色異物	ABS
青色異物	PET
金属片	アルミニウム

2.1.4.2-2 別表-5 リサイクルボトルの材質分析

単位：ppm

評価項目		A (0%) バージン材のみ	B (10%)	C (30%)	D (100%) リサイクル材のみ
金属分析	P	24			24
	Ge	40			28
	Sb	5以下			35
	Si	0.5以下			2.0
	Fe	0.9			3.6
	Co	0.5以下			4.5
材質分析	AA	5.8	4.5	3.3	2.5
	EG	3.3	4.4	3.4	2.3
	DEG	0.4	0.5	0.5	0.3
	TPA	3	3	4	7
	MHET	23	17	20	18
	BHET	31	29	33	25
	MMT	<1	<1	<1	<1
	DMT	<1	<1	<1	<1
	CT	3050	3040	3270	3690
	C4~C8	1920	2020	2090	2460

(略語) AA(Acetaldehyde), EG(Ethylene glycol), DEG(Diethylene glycol),  
 TPA(Terephthalic acid), MHET(Monohydroxyethyl terephthalic acid),  
 BHET(Bishydroxyethyl terephthalate), MMT(Monomethyl terephthalic acid)  
 DMT(Dimethyl terephthalate), CT(Cyclic trimer)

2.1.4.2-2 別表-6 サンプル調整

溶出溶液	充填温度	保存条件
水	85℃±2℃	50℃ - 30日間
45% エタノール	25℃±5℃	
25% エタノール	55℃±2℃	
4% 酢酸	40℃±2℃	

2.1.4.2-2 別表-7 水での溶出分析

単位 : ppb (wt/wt)

項目	ブランク	A (0%)		B (10%)		C (30%)		D (100%)	
AA	ND<100	200	<200	<200	<200	<200	<200	<200	<200
EG	10~20	198	215	236	235	154	253	181	180
DEG	ND<10	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
TPA	ND	<1	1	1	1	1	<1	1	1
MHET	ND	3	2	2	2	2	2	2	2
BHET	ND	2	1	1	1	1	1	1	1
MMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
DMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
CT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
C4~C8	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Ge	0.028							2.2	2.2
Sb	0.019							0.5	0.5
Co	0.003							<0.1	<0.1
Fe	—							<0.5	0.7

(注) ブランクは、溶出溶液だけで溶出条件は同じ。

2.1.4.2-2 別表-8 45%エタノールでの溶出分析

単位 : ppb (wt/wt)

項目	ブランク	A (0%)		B (10%)		C (30%)		D (100%)	
AA	200	200	300	200	200	200	200	200	200
EG	10~20	259	251	229	206	247	217	254	223
DEG	ND<10	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
TPA	ND	<1	1	1	<1	1	<1	1	1
MHET	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
BHET	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
MMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
DMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
CT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
C4~C8	ND	13	18	9	8	20	14	18	18
Ge								5.1	6.0
Sb								0.5	0.5
Co								<0.1	<0.1
Fe								<0.5	<0.5

2.1.4.2-2 別表-9 20%エタノールでの溶出分析

単位：ppb (wt/wt)

項目	ブランク	A (0%)		B (10%)		C (30%)		D (100%)	
AA	200	300	200	200	200	200	200	300	300
EG	10~20	269	264	269	295	232	235	180	216
DEG	ND<10	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
TPA	ND	1	1	1	1	1	1	1	1
MHET	ND	5	4	4	4	4	4	3	3
BHET	ND	4	3	3	3	3	3	2	2
MMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
DMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
CT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
C4 ~ C8	ND	5	4	4	4	4	4	5	4
Ge								3.4	3.2
Sb								0.6	0.5
Co								<0.1	<0.1
Fe								1.2	<0.1

(注) D の分析値 Ge, Sb, Co, Fe は、ブランクを差し引いた値。

2.1.4.2-2 別表-10 4%酢酸での溶出分析

単位：ppb (wt/wt)

項目	ブランク	A (0%)		B (10%)		C (30%)		D (100%)	
AA	1600	1900	1900	2300	900	300	1500	800	1200
EG	10~20	143	150	176	152	160	129	139	132
DEG	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
TPA	ND	1	ND	<1	ND	<1	<1	<1	<1
MHET	ND	3	2	2	2	2	2	2	2
BHET	ND	2	1	1	1	1	1	1	1
MMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
DMT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
CT	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
C4 ~ C8	ND	ND	ND	ND	ND	2	ND	ND	ND
Ge								2.3	2.3
Sb								0.7	0.7
Co								<0.1	<0.1
Fe								6.9	6

2.1.4.4 添付資料-1 ビューラー社の試験結果報告(1)

Classification:	For general use: <b>X</b> Confidential: <b>O</b>	For internal use only: <b>O</b> Secret: <b>O</b>	Filed at: <b>TP51/Christel</b>
Title:	<b>Bottle-to-bottle processing trials for JPBA</b>		
Requested by:	<b>H.Hara / BYOK</b>	Subject Code(s): <b>Laboratory Test</b>	
Author:	<b>TP51/Christel; PTR41/Schweikle; PTR32/Pfister; PTR3/Borer</b>	Phone No.: <b>++41 71 955 1229</b>	
Customer:	<b>The Council for PET Bottle Recycling</b>		
Circulation, Complete Report:	<b>The Council for PET Bottle Recycling H. Hara / BYOK,  QL22/Widmer; Authors</b>		
Circulation, Title Page only:	<b>PTR12, TP1, TP2/Blumer</b>		
Key-Words:	<b>Crystallization, SSP, extrusion, recycling, PET, RPET, JPBA</b>		

**Summary**

For an evaluation of the decontamination efficiency of the Buhler bottle-to-bottle process four different materials with different types of contaminants and contamination levels were processed on the Buhler pilot plant extrusion and SSP equipment.

A pretest was run with uncontaminated product to establish optimal running conditions for the pilot equipment.

The products were extruded at 290rpm, 180kg/h. Although different in flake contaminant level, the extruded pellets had similar properties: IV between 0.698 and 0.716; color b\* between 4.71 and 5.81.

The products were crystallized at 175°C and upgraded over 10 hours at 215°C in the SSP to an IV between 0.811 and 0.837.

The trials were attended by five members of the Japanese Bottle Association (JPBA).

Samples were taken to allow monitoring of each process step. Samples and all finished products were returned for analysis of contamination concentrations.



**Content**

Content .....	38
1. Introduction.....	38
2. Flake: Materials and Properties.....	38
2.1 Materials : .....	38
2.2 Flake Properties : .....	39
3. Extruder Test .....	39
3.1. Pretest : .....	39
3.2. Challenge tests : .....	40
4. Crystallization Test (LOTWG) .....	41
5. SSP Test (LOKTN) .....	41
6. SSP Pilot Plant Run.....	42
7. Customer Samples .....	43
8. Conclusions .....	43

- Attachments:
1. Extrusion conditions
  2. SSP conditions
  3. Fraunhofer contamination procedure
  4. Sample plan
  5. Table of results
  6. Graph – IV
  7. Graph – color L
  8. Graph – color b\*
  9. Sample Plan

**1. Introduction**

Bühler AG is offering a comprehensive technology for bottle-to-bottle recycling suitable for applications with direct food contact.

Food approval petitions have been file in various countries including the USA (FDA).

To evaluate the decontamination efficiency specifically from Japanese material, a decontamination trial was carried out by Buhler with materials provided by JPBA.

The contamination of the flakes was performed according to the guidelines published by the Fraunhofer Institute and an additional protocol developed for JPBA. To evaluate the influence of the washing step two materials were washed before reprocessing. The washing step was performed for JPBA in Japan The washing conditions were selected by JPBA and are representative for the Japanese market.

**2. Flake: Materials and Properties**

**2.1 Materials :**

Material 1

110kg of Material 4 contaminated at Buhler to 1000ppm level according to Fraunhofer contamination procedure. (see attachment 3)

Material 2

50kg of flakes contaminated by JPBA to 1000ppm level according to Fraunhofer contamination procedure and washed in hot water with 3% NaOH.

<b>Technical Report</b> DS No.: <b>DS 516 565</b>	Version: <b>01/05/30</b> Page 39 of 5	<b>B</b>
	Dept. Int. Code: <b>Ref. Nr. 00-476</b>	

**Material 3**

50kg of flakes contaminated by JPBA with trichloroanisol and motor oil and washed in hot water with 3% NaOH.

**Material 4**

800kg of clear washed flakes from Japanese collection.

**2.2 Flake Properties :**

Flake properties Material 4 Pretest :

- Color : clear
- Bulk density : 406kg/m<sup>3</sup>
- I.V. : 0.765 thin flakes; 0.729 thick flakes
- Moisture content : 6015ppm
- Color : L = 75.59; a = -0.31; b = 1.29; yellowness = 2.73
- ? Color in heat : from L = 92.87; a = -0.05; b = 3.56; yellowness = 6.86  
to L = 93.37; a = -0.01; b = 3.95; yellowness = 7.61  
measured on powder (1mm screen) before and after heat treatment 30 min at 230°C

Flake properties Material 4 Challenge test :

- Color : clear
- I.V. : 0.747 thin flakes; 0.725 thick flakes
- Moisture content : 5400ppm
- Color : L = 77.61; a = -0.34; b = 1.49; yellowness = 3.07
- Sodium : 24.8 mg/kg

**3. Extruder Test**

**3.1. Pretest :**

The processability of the product was tested at standard running conditions with 290rpm and 180kg/h throughput. After the run the degassing line from the drying vacuum was found to be blocked in a bend of the hose by wet flakes. The problem was corrected by shortening and straightening the vacuum line.

Extruded pellet properties Material 4 Pretest :

- Pellet shape : cylinder, oval
- Pellet size : 2.0 mm x 3.0 mm x 3.0 mm
- Pellet weight : average 16.7 mg
- Color : clear, yellowish
- Bulk density : 770 kg/m<sup>3</sup>
- I.V. : 0.667
- Color : L = 62.7; a = 0.13; b = 5.19; yellowness = 13.77

The relatively large IV drop is assumed to be due to the blockage in the degassing line.

<b>Technical Report</b> <b>DS No.: DS 516 565</b>	Version: 01/05/30 Page 40 of 5 Dept. Int. Code: Ref. Nr. 00-476	<b>B</b>
--	--	----------

### 3.2. Challenge tests :

The extrusion line was started using non-contaminated flake. The contaminated flakes were supplied from a separate feeder. The material change over was performed after stable running conditions were achieved. After a change-over transition material was discarded for about 3 minutes.

The materials were processed in reverse order Material 4, 3, 2, 1 to have the more contaminated products follow the cleaner products.

All products were processed at standard running conditions with 290rpm and 180kg/h.

A summary of running conditions can be found in attachment 1

#### Extruded pellet properties Material 1 :

- Color : clear, yellowish
- I.V. : 0.698
- Color : L = 65.4; a = -0.07; b = 4.80; yellowness = 12.14

#### Extruded pellet properties Material 2 :

- Color : clear, yellowish
- I.V. : 0.713
- Color : L = 64.97; a = 0.21; b = 5.81; yellowness = 15.05

#### Extruded pellet properties Material 3 :

- Color : clear, yellowish
- I.V. : 0.716
- Color : L = 65.58; a = 0.22; b = 4.92; yellowness = 12.72

#### Extruded pellet properties Material 4 :

- Color : clear, yellowish
- I.V. : 0.701
- Color : L = 64.67; a = 0.0; b = 4.71; yellowness = 12.12

<b>Technical Report</b> DS No.: <b>DS 516 565</b>	Version: <b>01/05/30</b> Page 41 of 5	<b>B</b>
	Dept. Int. Code: <b>Ref. Nr. 00-476</b>	

#### 4. Crystallization Test (LOTWG)

Material 4 Pretest was crystallized in the pulsed bed laboratory crystallizer LOTWG at 175°C.

Parameter	Sample
Residence time [min]	20
Weight [g]	3628
Bed Height [mm]	150
Gas flow rate [nm <sup>3</sup> / h]	130
Pulsator [rpm]	130
T <sub>gas,in</sub> [°C] set point	175
T <sub>gas,in</sub> [°C] measured	174
T <sub>gas,out</sub> [°C] measured	143
T <sub>mat</sub> [°C] measured	160
Δp [mbar]	11-22

The stickiness tendency is high.  
After mechanical agitation, the RPET could again be fluidized.

#### 5. SSP Test (LOKTN)

PET from the crystallizer was transferred to the laboratory SSP-reactor and treated. . Samples were taken after 2, 4, 8, 12, 16h residence time.

Parameter	Sample
Residence time [h]	16
Weight [g]	500
Process gas	N2
Gas flow rate [l / h]	1200
T <sub>gas,in</sub> [°C] set point	215
IV 0h [dl/g]	0.667
IV 2h [dl/g]	0.653
IV 4h [dl/g]	0.696
IV 8h [dl/g]	0.737
IV 12h [dl/g]	0.782
IV 16h [dl/g]	0.802