

# Eindrapport GESORT

OPENBAAR

## Gegevens project

Regeling: RvO TSE Industrie 2021 - Topsector Energie
Projectnaam: GESORT
Projecttitel: Geavanceerde solvent-based recycling technologie voor de closed loop recycling van engineering kunststoffen ABS en HIPS alsmede zacht PVC
RVO referentienummer: TESN221018
Soort studie: haalbaarheidsstudie voorafgaand aan een mogelijk pilotproject
Begindatum van het project: 20-10-2021 Einddatum van het project: 31-01-2023
Locatie waar het project is uitgevoerd: Chemelot Campus, Geleen, Nederland
Deelnemers: ReSolved Technologies B.V. (penvoerder) Shin-Etsu PVC B.V. Alpha Pro Tech B.V. (vervallen) Takenaka Europe GmbH Netherlands Branch (vervanger van Alpha Pro Tech B.V.) SolSep B.V. Deltapore Systems B.V. (vervallen) GEA Westfalia Separator Nederland B.V.

## Gegevens van de contactpersoon (intermediair)

Voorletters: P.H.J. Tussenvoegsel(s): Achternaam: Paumen e-mailadres voor ontvangstbevestiging: <a href="mailto:p.paumen@benedictpeax.com">p.paumen@benedictpeax.com</a> Telefoonnummer: 06-53894454
--

# Inhoudelijk eindrapport

## Samenvatting

EU-wetgeving stimuleert de transitie naar een duurzame en circulaire economie door zowel recycling te bevorderen als het gebruik van schadelijke stoffen in grondstoffen en producten toenemend aan banden te leggen. Voor sommige grondstoffen zijn deze twee doelstellingen echter tegenstrijdig, zoals voor kunststoffen met legacy additieven (vlamvertragers, weekmakers, stabilisatoren, etc.). Veel van deze additieven zijn inmiddels verboden, maar komen in afvalstromen nog op grote schaal voor. Dit is met name een probleem voor de kunststoffen ABS, HIPS en PVC. Producenten en importeurs worden in toenemende mate verantwoordelijk gesteld voor de recycling van grondstoffen die in hun producten verwerkt zijn. De huidige stand der techniek is gebaseerd op mechanische recycling, waarmee additieven echter niet verwijderd kunnen worden.

De solvent-based technologie van ReSolved Technologies biedt een oplossing voor dit probleem. Met deze technologie worden kunststoffen in een vloeistof opgelost, waarna de additieven met geavanceerde filtratietechnieken verwijderd kunnen worden. Dit maakt het mogelijk om grote hoeveelheden kunststofafval terug te voeren in de materiaalkringloop als hoogwaardig recyclaat.

In dit project is de technische en economische haalbaarheid van membraanfiltratie voor de verwijdering van legacy additieven uit opgeloste kunststoffen onderzocht en gevalideerd. De focus in dit project lag op de verwijdering van weekmakers en stabilisatoren op basis van lood in zacht PVC en broomhoudende vlamvertragers in ABS en HIPS. Het verwijderen van stabilisatoren uit zacht PVC met behulp van membraanfiltratie kon in het tijdsbestek van het project niet onderzocht worden.

Op basis van de huidige prijzen genereert een solvent-based recycling plant met additiefverwijdering en een output capaciteit van 4.000 ton/a een positieve EBITDA

De winstgevendheid van een vergelijkbare plant voor zacht PVC afval is complexer en hangt mede af van de afzetprijzen of afvoerkosten van de afgescheiden additieven. Deze prijzen zijn op dit moment nog niet bekend. Uit voorlopige berekeningen blijkt dat de breakeven grens voor zacht PVC afval bij een plantcapaciteit van tussen 15.000 en 20.000 ton/a ligt.

Een logische vervolgstap is het realiseren van een pilot plant. De pilot plant zal uitgerust worden met additiefverwijderingsmodulen gebaseerd op de in dit project onderzochte membraantechniek. Het doel is om recyclaat van een dusdanig hoge kwaliteit (near-virgin) te produceren, dat dit gebruikt kan worden in toepassingen in gesloten kringloop. Dat betekent dat het recyclaat in dezelfde categorie producten toegepast wordt als het afval waarvan het is afgeleid.

## Inleiding

EU-wetgeving stimuleert de transitie naar een duurzame en circulaire economie door aan de ene kant recycling te bevorderen en aan de andere kant de verwerking van schadelijke stoffen in grondstoffen en producten toenemend aan banden te leggen (zie Annex II en REACH). Voor sommige grondstoffen pakt deze duale doelstelling echter tegenstrijdig uit, zoals voor kunststoffen met legacy additieven, denk aan vlamvertragers, weekmakers, stabilisatoren, etc. Dit zijn additieven die ten tijde van de productie van het betreffende kunststofproduct toegestaan waren, maar inmiddels verboden of verdacht zijn door voortschrijdend inzicht over hun schadelijkheid voor mens en milieu. De industrie is reeds enkele jaren geleden omgeschakeld naar duurzamere alternatieven, maar in het afval zijn legacy additieven nog volop aanwezig – met name in ABS, HIPS en PVC-afvalstromen. Daarnaast is de kans reëel dat het gebruik van sommige thans toegestane additieven in de toekomst ook aan banden worden gelegd. Op dit moment zijn de meest problematische legacy additieven vlamvertragers op basis van aromatische broomverbindingen in engineering plastics, met name ABS en HIPS, stabilisatoren op basis van lood en weekmakers op basis van ftalaten in PVC. Aangezien deze kunststofsoorten voornamelijk in producten met een lange levensduur toegepast worden, zoals elektrische en elektronische apparatuur, voertuigen, kabelisolatie, vloerbedekking, raamkozijnen en buizen, zit in het ingezamelde afval een breed scala aan legacy additieven.

Mechanische recycling is niet in staat om (schadelijke) additieven uit kunststoffen te verwijderen. De bestaande verwerkingscapaciteit voor ABS, HIPS en PVC afval is echter uitsluitend op mechanische recycling gebaseerd. Legacy additieven vormen daarom een groot en toenemend obstakel voor het sluiten van de materiaalkringloop voor deze kunststofsoorten. Dit probleem is door de wetgever onderkend. Daarom werd voor stabilisatoren in PVC-producten met een lange levensduur tot voor kort een uitzondering gemaakt. Onder druk van het Europees parlement is deze wetgeving echter recentelijk aanzienlijk aangescherpt. De toepassing van kunststoffen met legacy vlamvertragers is in de EU al langer verboden.

De solvent-based technologie van ReSolved Technologies biedt een oplossing voor dit probleem. In deze technologie worden kunststoffen in een geschikt oplosmiddel geheel opgelost, waarna de additieven met geavanceerde (filtratie)technieken verwijderd kunnen worden. Deze technologie maakt het mogelijk om grote hoeveelheden thans niet of slechts laagwaardig gerecycled kunststofafval terug te voeren in de materiaalkringloop als hoogwaardig recyclelaat. Met geavanceerde filtratietechnieken kunnen ook andere soorten contaminanten uit kunststofafval verwijderd worden, zoals geurstoffen en oplosmiddelen die tijdens de gebruiksfase van een kunststofproduct in de kunststof kunnen worden opgenomen, zoals het bijvoorbeeld gebeurt in het verpakkingsmateriaal van schoonmaakmiddelen. Dergelijke contaminanten verlagen de kwaliteit van het recyclelaat en beperken de toepasbaarheid ervan. Deze groep contaminanten kan via mechanische recycling ook niet of slechts gedeeltelijk verwijderd worden.

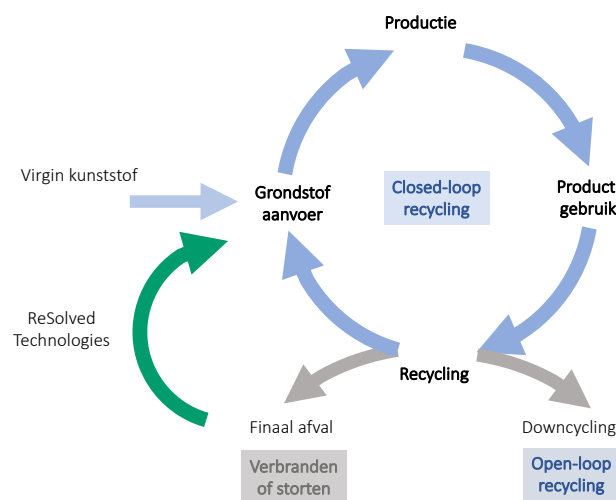
Het probleem van legacy additieven in kunststofafval raakt in toenemende mate de hele kunststofketen omdat producenten en importeurs steeds meer verantwoording moeten dragen voor hun (kunststof)producten na de gebruiksfase. Aan de ene kant vormen legacy additieven in kunststofafval een toenemend obstakel voor het sluiten van de materiaalkringloop in de context van een circulaire economie, omdat de toepassing van kunststofrecyclelaat met legacy additieven grotendeels verboden is of binnen enkele jaren verboden wordt in de EU. Daarnaast liggen de kosten van verantwoord afvalbeheer voor kunststoffen met legacy additieven in het algemeen aanzienlijk hoger dan voor kunststoffen zonder deze additieven. Het besef groeit daarom dat een adequate oplossing van deze problemen om een samenwerking tussen de verschillende spelers in de grondstofketen vraagt. Onze gesprekken met recyclers, uitvoerders van de uitgebreide producentenverantwoordelijkheid en kunststofproducenten bevestigen dit beeld. Deze partijen tonen een grote bereidheid om gezamenlijk aan oplossingen te werken.

De solvent-based technologie van ReSolved Technologies maakt het mogelijk om grote hoeveelheden thans niet of slechts laagwaardig gerecycled kunststofafval terug te voeren in de materiaalkringloop als hoogwaardig recyclaat. Tegelijkertijd kunnen de afgescheiden additieven onder gecontroleerde omstandigheden worden vernietigd en daarmee aan de materiaalkringloop worden onttrokken. Weekmakers kunnen bijvoorbeeld in een thermisch kraakproces omgezet worden in reguliere olie- of gasvormige producten. Lood en broom uit de afgescheiden additieven kunnen worden teruggewonnen in respectievelijk een metallurgisch en een thermisch kraakproces. ICL-IP Terneuzen BV heeft reeds belangstelling getoond voor de residufractie uit het ReSolved proces waarin legacy vlamvertragers geconcentreerd zijn om het broom in een speciale productiefaciliteit van ICL-IP terug te winnen en als grondstof te gebruiken voor nieuwe producten.

## Doelstelling

Dit project heeft de volgende doelstellingen:

1. Het primaire doel is de validatie van de technische haalbaarheid van membraantechnologie op laboratoriumschaal voor de verwijdering van legacy weekmakers en legacy stabilisatoren op basis van zware metalen uit zacht PVC en broomhoudende legacy vlamvertragers uit ABS en HIPS.
2. Een tweede doelstelling is de validatie van de economische haalbaarheid van membraantechnologie voor alle drie genoemde soorten legacy additieven (vlamvertragers, weekmakers en stabilisatoren) en het bepalen van de benodigde engineeringparameters voor de opschaling naar pilot schaal.
3. Een derde doelstelling is om te testen of de kwaliteit van het recyclaat aan de hoge eisen van vervanging van virgin plastic in gesloten kringloop voldoet, waarbij het recyclaat in dezelfde categorie producten toegepast wordt als het afval waarvan het is afgeleid (closed-loop recycling), zie Figuur 1.



*Figuur 1: De doelstelling van ReSolved Technologies is om finaal kunststofafval, dat thans verbrand of gestort wordt, in closed-loop te recyclen*

ReSolved Technologies is van plan om met een consortium van industriële partijen een solvent-based pilot plant te bouwen om de verwijdering van legacy additieven, met name weekmakers en stabilisatoren uit zacht PVC alsmede broomhoudende vlamvertragers uit ABS en HIPS, op pilot schaal te valideren.

## Projectuitvoering

De uitvoering van het project is onderverdeeld in zes werkpakketen:

WP1: Voorbereidingen door deskstudie en raadplegen van experts
WP2: Quick-scan tests membraanfiltratie op microschaal  WP2.1: Productie van artificiële samples van opgeloste kunststof (zacht PVC) met legacy additieven WP2.2: Uitvoering van quick-scan filtratietests op microschaal bij een leverancier van membraanfilters WP2.3: Bepaling van het scheidingsrendement via analyses
WP3: Ontwerp en bouw van een geavanceerde solvent-based testopstelling op laboratorium schaal  WP3.1: Ontwerp en bouw van de solvent-based testopstelling op laboratorium schaal WP3.2: Ontwerp en vervaardiging van de benodigde membranen
WP4: Validatie van de technische haalbaarheid van membraanfiltratie met reële kunststof samples  WP4.1: Opstellen van een testprogramma met verschillende soorten membranen, kunststoffen en legacy additieven WP4.2: Selectie en verzameling van samples van kunststoffen met legacy additieven uit post-consumer afval WP4.3: Testen van verschillende procesopties voor de afscheiding van (ultra)fijne vaste stof deeltjes WP4.4: Uitvoering van membraanfiltratie tests WP4.5: Testen van de mechanische eigenschappen van geselecteerde samples van gezuiverde kunststoffen
WP5: Evaluatie van de economische haalbaarheid
WP6: Rapportage

In de volgende hoofdstukken zijn de uitgevoerde werkzaamheden per werkpakket beschreven en een toelichting gegeven op eventuele technische en organisatorische knelpunten in de uitvoering en de gekozen oplossingen. De resultaten zijn eveneens per werkpakket behandeld.

<b>Toelichting op de projectuitvoering</b>
<b>Wijzigingen ten opzichte van het projectplan</b> Door een aantal factoren heeft de projectuitvoering vertraging opgelopen. Op 22 juli 2022 hebben de projectpartners daarom verlenging van het project aangevraagd, zie aanvraag 'Wijziging in project, uitvoering en of organisatie', formuliernummer: 27193516. Hierin zijn alle wijzigingen ten opzichte van het oorspronkelijk projectplan en verschillen tussen de begroting en de gemaakte kosten beschreven.
<b>Bekendmaking en Kennisverspreiding</b> In de projectperiode werden een aantal artikelen over het onderwerp van dit project gepubliceerd:

Titel: Closing the loop for engineering plastic waste using advanced physical recycling methods

Type publicatie: conferentie presentatie

Publicatie: Circular Chemistry Conference, Brightlands Chemelot Campus

Datum: 8 maart 2022

Bron: <https://circular.jakajima.eu/previous-editions/>

Titel: Advanced solvent-based recycling - Yet another step towards the circular supply of engineering plastics

Type publicatie: presentatie

Publicatie: ISC3 and Friends Pitch Wednesday op de vakbeurs Achema 2022 in Frankfurt/D

Datum: 24 augustus 2022

Titel: Met alleen mechanische recycling gaan we de EU-richtlijnen niet halen

Type publicatie: online artikel

Datum: 13 december 2022

Bron: <https://innovationorigins.com/nl/fraunholcz-met-alleen-mechanische-recycling-gaan-we-eu-richtlijnen-niet-halen/>

Titel: Advanced solvent-based technology for the closed-loop recycling of engineering plastics

Type publicatie: conferentie presentatie

Publicatie: Circular Chemistry Conference, Brightlands Chemelot Campus

Datum: 29 maart 2022

Bron: <https://circular.jakajima.eu/previous-editions/>

#### Externe ontwikkelingen tijdens de projectperiode

Het besef onder kunststofproducenten, brand owners en andere stakeholders in de kunststof waardeketen groeit dat mechanische recycling niet toereikend zal zijn om de ambitieuze nationale en Europese doelstellingen ten aanzien van de circulariteit van kunststoffen te bereiken. Dit besef heeft de interesse van marktpartijen in geavanceerde recyclingtechnieken, waaronder de solvent-based technologie, in grote mate aangewakkerd. In 2022 is de verschuiving van aandacht naar deze geavanceerde technologieën in een stroomversnelling gekomen.

De vraag met name van brand owners naar hoogwaardig recycklaat voor closed-loop toepassingen is in de afgelopen jaren sterk toegenomen. Het substantieel verhogen van het aanbod via de gangbare mechanische recyclingroute blijkt echter lastig, omdat hiermee het gevraagde hoge kwaliteitsniveau veelal niet gehaald wordt.

De vraag naar hoogwaardig recycklaat groeit veel sneller dan het aanbod. De prijzen van hoogwaardig recycklaat zijn daardoor met name in de afgelopen jaren sterk gestegen, terwijl die van gangbare kwaliteit achterblijven.

## WP1: Voorbereidingen door deskstudie en raadplegen van experts

In dit project zijn de volgende legacy additieven onderzocht: lood stabilisatoren en weekmakers in zacht PVC en broomhoudende vlamvertragers in ABS en HIPS (high-impact polystyreen). De voor de EU wetgeving relevante soorten, fysische eigenschappen en gebruikelijke concentraties van deze additieven in belangrijke toepassingen (bijv. zacht PVC in kabelafval en ABS en HIPS in elektrisch en elektronisch afval) zijn in een desk studie in kaart gebracht. Naast het bestuderen van de beschikbare literatuur zijn ook experts geraadpleegd. De studie naar legacy additieven in zacht PVC is door ReSolved Technologies en Shin-Etsu gezamenlijk uitgevoerd. De studie naar vlamvertragers in ABS en HIPS is door ReSolved Technologies uitgevoerd.

In een volgende stap zijn experts in membraanfiltratie geraadpleegd over de huidige stand der techniek en potentieel geschikte membranen voor filtratie in voor het solvent-based proces relevante organische oplosmiddelen. Naast de bekende keramische membranen zijn sinds enkele jaren ook polymeren membranen op de markt die bestand zijn tegen organische oplosmiddelen. Er zijn slechts enkele leveranciers van dergelijke polymeren membranen in Europa, waarvan één in Nederland (SolSep BV). De eerst beoogde leverancier van keramische membranen (Deltapore BV) heeft zich in de loop van het project tijdelijk teruggetrokken, omdat het de toen beoogde membranen op dat moment niet kon leveren. Later (november 2022) is overigens gebleken dat ook keramische membranen van standaard series voor onze toepassing geschikt zijn, waardoor Deltapore weer in beeld kwam. Toch is in dit project op het gebied van keramische membranen uiteindelijk gekozen voor een samenwerking met de Duitse leverancier van membraanfiltratie installaties gekozen, met name omdat deze meer relevante kennis heeft over de opschaling van membraanfiltratie en kan complete installaties op industriële schaal leveren. Een concrete samenwerking is na een eerste contact in mei 2021 overigens pas vrij laat in het project in oktober 2022 op gang gekomen.

Over de geschiktheid van membraanfiltratie voor de verwijdering van opgeloste contaminanten (in dit geval de genoemde legacy additieven) zijn de volgende experts geraadpleegd: SolSep BV en Deltapore BV. Op basis van de beschikbare data en positieve feedback van experts over de technische haalbaarheid is besloten om in eerste instantie testseries met verschillende polymeren membranen bij SolSep op te zetten.

Daarnaast zijn gesprekken gevoerd met GEA Westfalia, een Duitse leverancier van geavanceerde industriële centrifuges, over de technische mogelijkheden voor de verwijdering van vaste stofdeeltjes uit de kunststofoplossing. Vaste stofdeeltjes (bijv. metaaldeeltjes uit de verkleining van het afval, maar ook in kunststoffen toegepaste fillers) kunnen het membraanfiltratie proces verstoren door verstopping en/of slijtage van de membranen. Zelfs hele kleine vaste stofdeeltjes van enkele microns moeten daarom zoveel mogelijk uit de kunststofoplossing verwijderd worden. Experts van GEA hebben de technische haalbaarheid hiervan bevestigd en hebben testseries op labschaal en vervolgens op pilotschaal voorgesteld.

## WP2: Quick-scan tests membraanfiltratie op microschaal

### WP2.1: Productie van artificiële samples van opgeloste kunststof (zacht PVC) met legacy additieven

#### *Werkwijze en uitvoering*

In overleg tussen ReSolved en Shin-Etsu is besloten om artificiële zacht PVC samples te produceren op basis van een typische samenstelling van kabelisolatie, omdat kabelafval een belangrijke potentiële toepassing is van de solvent-based technologie.

Shin-Etsu heeft verschillende sample batches van zacht PVC geproduceerd:

1. Serie 1: kunststof samples (vaste stof) met een typische legacy weekmaker (DOP, ook wel DEHP genoemd) in 4 verschillende concentraties. Deze samples (4x500 gram) zijn in de quick-scan membraanfiltratie tests gebruikt, zie WP2.2.
2. Serie 2: kunststof samples van verschillende additieven samenstellingen op basis van een typische formulering van kabelisolatie, om het scheidingsrendement per type additief te kunnen bestuderen. Deze samples zijn door GEA Westfalia in centrifuge tests op labschaal gebruikt.
3. Serie 3: kunststof oplossingen van verschillende additieven samenstellingen voor labschaal centrifuge tests ter voorbereiding op geplande pilot schaal testen (2x1 liter).
4. Serie 4: industrieel geproduceerd kunststof sample (1x100 kg vaste stof) met een mengsel van een bekende, representatieve samenstelling. Dit sample is vervolgens gebruikt om 500 liter oplossing te maken voor centrifuge tests op pilot schaal bij GEA Westfalia op basis van door Shin-Etsu aangeleverde instructies.

#### *Resultaten*

De artificiële samples zijn geproduceerd tbv verschillende tests door en bij specialisten op het gebied van membraanfiltratie en centrifugeren. Series 1 t/m 3 zijn door Shin-Etsu zelf bereid in haar laboratorium in Pernis. Artificiële PVC samples worden bereid door de noodzakelijke ingrediënten af te wegen, handmatig te mengen en vervolgens te verwerken tot een folie op een laboratorium wals. Hierbij is gebruik gemaakt van de ruimte ervaring die binnen Shin-Etsu voorhanden is met betrekking tot het maken van dit soort folies. Geproduceerde folies kunnen worden gezien als voldoende representatief voor werkelijke zacht PVC producten/afvalstromen.

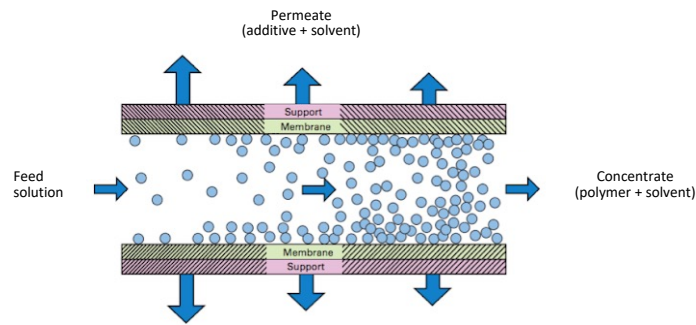
Vanwege de benodigde (grote) hoeveelheid monster voor pilot schaal centrifugetesten, is het monster van serie 4 industrieel geproduceerd door een compounding bedrijf. Hierbij zijn de noodzakelijke ingrediënten in een industriële mixer gemengd en vervolgens geëxtrudeerd tot granulaat.

### WP2.2: Uitvoering van quick-scan filtratietests op microschaal bij een leverancier van membraanfilters

#### *Werkwijze en uitvoering*

De scheiding in membraanfiltratie vindt plaats doordat de fijne fractie (legacy additieven) samen met het oplosmiddel door het membraan gevoerd worden, terwijl de grove fractie (basis polymeer van de kunststof) in dit geval door het membraan wordt tegengehouden. De poriegrootte van het membraan moet daarom tussen de grootte van de te scheiden componenten liggen. De fractie die door het membraan wordt gevoerd wordt permeaat genoemd. De fractie die door het membraan wordt tegengehouden noemt men concentraat (of retentaat), zie Figuur 2.





*Figuur 2: Principe van membraanfiltratie. Permeaat: fractie die door het membraan gevoerd wordt; Concentraat: fractie die door het membraan tegengehouden wordt*

### Membraanfiltratie tests

De quick-scan filtratietests op microschaal zijn door SolSep BV met hun bestaande testopstelling uitgevoerd. Voor deze tests zijn artificiële samples van zacht PVC van Serie 1 gebruikt.

### Centrifugetests

Om verstoppingen te voorkomen en slijtage van de filterelementen te verminderen moet de inputoplossing vrij zijn van grote en abrasieve vaste stofdeeltjes. De belangrijkste opties hiervoor zijn conventionele filtratie en bezinking in centrifugaalveld. Beide opties zijn in deze WP uitvoerig getest. Conventionele filtratie is met behulp van de in WP3 gebouwde solvent-based testopstellingen getest. Conventionele zeving en filtratie dient in meerdere stappen uitgevoerd te worden om overbelading en verstopping te voorkomen. Er zijn daarom zeven en filters van verschillende poriegrootten getest. Hiervoor zijn kunststofoplossingen van reële ABS samples gebruikt. Deze tests zijn in de periode augustus – november 2022 uitgevoerd.

De afscheiding van vaste stofdeeltjes in centrifugaalveld is in twee stappen getest. Eerst werden oriënterende tests of labschaal met een batch-wise werkende centrifuge uitgevoerd om de technische haalbaarheid te toetsen. Deze tests zijn met PVC samples van Serie 2 door experts van GEA Westfalia in februari 2022 uitgevoerd. Vervolgens heeft Shin-Etsu intern aanvullende tests met een vergelijkbare labcentrifuge volgens een uitgebreid testprogramma uitgevoerd en de resultaten in eigen beheer geanalyseerd in de periode mei – september 2022. Het doel van deze aanvullende tests was het optimaliseren van de input- en procesparameters voor een maximaal scheidingsrendement. Uit deze tests is gebleken dat met centrifugeren goed voldaan kan worden aan de voorwaarden van membraanfiltratie ten aanzien van vaste stofdeeltjes in de inputoplossing.

### **Resultaten**

Voorafgaand aan de filtratietests zijn de eigenschappen van de te verwijderen legacy additieven (weekmakers in zacht PVC en broomhoudende vlamvertragers in ABS en HIPS) en het bijbehorende basispolymeer in kaart gebracht om de benodigde filterfijnheid te bepalen. Tabel 1 laat de molecuulgewichten (Mw) van legacy weekmakers zien. Mw is de belangrijkste indicator van de (molecuul)grootte van de te scheiden componenten in membraanfiltratie. Mw wordt in gram/mol of Dalton uitgedrukt, deze eenheden zijn numeriek gelijk.

Tabel 1: Molecuulgewicht van legacy weekmakers in zacht PVC

PLASTICIZERS						
Compound	Abbreviation	CAS No.	Formula	Mw [g/mol=Dalton]	SVHC**	Solubility in solvent
Dibutyl phthalate	DBP	84-74-2	C16H22O4	278	Y	assumed soluble
Diisobutyl phthalate	DIBP	84-69-5	C16H22O4	278	Y	assumed soluble
Butyl benzyl phthalate	BBP	85-68-7	C19H20O4	312	Y	assumed soluble
Diocetylphthalate	DEHP or DOP	117-81-7	C24H38O4	391	Y	soluble

\*\*Alleen laagmoleculaire orto-ftalaten, zoals DEHP, DBP, BBP or DIBP zijn opgenomen in de kandidaatslijst van Substances of Very High Concern (SVHC) volgens de EU Verordening N° 1907/2006 (REACH). Daarom zijn alleen deze stoffen aangemerkt als legacy additieven

Het gemiddelde weekmakergehalte van zacht PVC ligt tussen 30% en 40% en het maximaal toegestane gehalte van legacy weekmakers in nieuwe PVC producten is 1.000 ppm (0.1 %).

Het molecuulgewicht van alle soorten legacy weekmakers is kleiner dan 400 gram/mol (400 Dalton). Het basispolymeer PVC in zacht PVC toepassingen heeft een gemiddeld molecuulgewicht van ca. tussen 70.000 tot 110.000 Dalton. Voor de onderkant van de verdeling kan worden uitgegaan van een waarde van ongeveer 50.000 Dalton (>99%). Dit betekent dat de moleculen van het basispolymeer een orde van grootte groter zijn dan te verwijderende legacy weekmakers. Dit grote verschil tussen de te scheiden componenten is een gunstig uitgangspunt voor membraanfiltratie.

Voor broomhoudende legacy vlamvertragers in ABS en HIPS is een soortgelijke analyse gemaakt.

Op basis van de bovenstaande gegevens heeft SolSep een selectie gemaakt van potentieel geschikte membranen voor de quick-scan filtratietests op microschaal. De eerste serie tests zijn in december 2021 met polymeren membranen van verschillende poriegrootten uitgevoerd. Voor deze tests zijn artificiële samples van zacht PVC van Serie 1/Formulation 4 gebruikt. Samples van deze tests zijn door Shin-Etsu geanalyseerd. De beste resultaten zijn met het membraan met de grootste poriegroote behaald. Met dit membraan is de hoogste flux (debiet van het permeaat in liter/uur/m<sup>2</sup> filtratie oppervlak) behaald. In het permeaat zijn geen sporen van PVC aangetroffen, hetgeen betekent dat PVC voor 100% door het membraan is tegengehouden. Dit betekent dat de selectiviteit van het gebruikte membraan uitstekend is.

De gemeten flux waarden vielen ook ruim binnen de waarden die voor een praktische toepassing als voldoende worden beschouwd. Bij verhoging van de druk neemt de flux normaal gesproken proportioneel toe. Het bleek echter dat in onze tests de flux met toenemende druk niet noemenswaardig toenam. Dit is zowel voor PVC als ook voor ABS oplossingen gevonden. Volgens experts van SolSep is dit een onverwacht resultaat.

Op basis van deze resultaten is besloten om een aanvullende serie membraanfiltratie tests uit te voeren voor zacht PVC. Voor deze tests in juli 2022 zijn nieuwe membranen geselecteerd: (a) een speciaal polymeren membraan en (b) een keramisch membraan, zie Tabel 2.

Met deze membranen zijn weliswaar 60% hogere flux waarden, maar de verhoging van de druk resulteerde hier ook niet in een hogere flux.

Met het keramische membraan is een 40% hogere flux behaald dan met het beste polymeren membraan van SolSep. Het is daarom besloten om alleen met keramische membranen verder te gaan. Verder is besloten om zelf een membraanfiltratie testopstelling te bouwen voor optimalisatie van de flux.

#### Centrifugetests

Op basis van 3 door Shin-Etsu bereide vaste stof samples (serie 2), zijn in het testcentrum van GEA Westfalia in Oelde, Duitsland indicatieve centrifugetests gedaan op labschaal. De belangrijkste

resultaten zijn hieronder opgesomd:

- Niet alle stoffen in de artificiële samples zijn oplosbaar in het oplosmiddel (naar verwachting)
- De niet oplosbare stoffen zijn fillers en andere fijne vaste stofdeeltjes
- Beide zijn goed via centrifugeren te verwijderen
- Na het centrifugeren blijft een troebele vloeistof over, duidend op ultrafijn onopgelost materiaal

Een centrifugestap in het proces voor de verwerking van zacht PVC afval wordt overwogen voorafgaand aan membraanfiltratie. Doelstelling is het verwijderen van vaste stoffen die de membraanfiltratie mogelijk kunnen verstoren. De resultaten geven aan dat vaste stoffen makkelijk verwijderd kunnen worden. Er blijft een deel ultrafijn materiaal over in de vloeistoffase, waarvan wordt verwacht dat het geen of weinig effect zal hebben op de membraanfiltratie omdat het dermate klein is dat uitzakking geen risico vormt.

In navolging van de labschaal testen bij en door GEA Westfalia, zijn door Shin-Etsu aanvullende testen op labschaal uitgevoerd teneinde een beeld te krijgen van de efficiency van centrifugeren. Voor de testen is gebruik gemaakt van artificiële samples met bekende samenstelling. De resultaten geven aan dat verwijdering van fijne deeltjes tot een percentage tot 90% mogelijk is, afhankelijk van de centrifugeer-intensiteit (de combinatie van machine toerental en centrifugeertijd): bij hogere intensiteit is de verwijderingsefficiëntie hoger. Het verwijderingsrendement vlak bij hogere intensiteit steeds verder af en gedraagt zich asymptotisch. Niet vastgesteld kon worden waarom de vaste stofverwijdering begrensd was, maar vermoed wordt dat dit te maken heeft met de vorm en grootte van de deeltjes in het mengsel. De resultaten van deze aanvullende labschaal experimenten door Shin-Etsu heeft geleid tot de conclusie dat voor een pilot-schaal test bij GEA Westfalia gebruik moet worden gemaakt van een centrifuge met hoge G-kracht en maximale temperatuur (N.B. de temperatuur is beperkt tot ongeveer 75°C gezien het kookpunt van het oplosmiddel) t.b.v. een lage viscositeit van het mengsel.

### **WP2.3: Bepaling van het scheidingsrendement via analyses**

Bij SolSep konden de resultaten van membraanfiltratie tests slechts indicatief geanalyseerd worden. Daarom werden testsamples naar Shin-Etsu gestuurd voor uitvoerige analyses om de exacte gehalten aan PVC en weekmaker te bepalen.

In de centrifugetests zijn de scheidingsrendementen indicatief (visueel) bepaald door GEA Westfalia. Voor bepaling van het scheidingsrendement voor de zacht PVC experimenten met membraanfiltratie en centrifugeren zijn de volgende analysetechnieken gebruikt:

- Gel Permeation Chromatography (GPC)
- Inductively Coupled Plasma (ICP)

Door SolSep zijn 13 samples aangeleverd voor analyse bij Shin-Etsu. Via GPC zijn van de monsters zowel het PVC- als het weekmakergehalte bepaald. Deze resultaten zijn door SolSep gebruikt ter bepaling van het scheidingsrendement en het benodigde filtratie oppervlak. Dat laatste is een bepalende factor voor de benodigde investeringskosten.

De resultaten zijn als volgt:

- Er is geen PVC teruggevonden in het permeaat: dit bevestigt dat de PVC de membranen niet passeert, zoals verwacht.
- DEHP passeert het membraan en kan uit het permeaat worden teruggewonnen in redelijk hoge concentraties (+/- 90%) na verdamping van het oplosmiddel

De conclusies van SolSep op basis van de resultaten is dat het verwijderen van DEHP uit oplossingen van zacht PVC technisch mogelijk is. Viscositeit is een belangrijke parameter. Het voorstel is gedaan om bij

een hogere trans-membraan-druk te testen. Deze testen zijn in de zomer van 2022 uitgevoerd door SolSep zonder het gewenste resultaat. Dit heeft geleid tot de conclusie dat de microschaal testopstelling bij SolSep niet geschikt is om aanvullende tests uit te voeren. Op basis hiervan is besloten om een testopstelling te bouwen in aanvulling op de bouw van de labschaal opstelling.

## WP3: Ontwerp en bouw van een geavanceerde solvent-based testopstelling op laboratorium schaal

### WP3.1: Ontwerp en bouw van de solvent-based testopstelling op laboratorium schaal

#### **Werkwijze en uitvoering**

Het conceptuele ontwerp en de bijbehorende procesparameters van de beoogde solvent-based testopstelling met een capaciteit van 20 liter kunststofoplossing zijn door ReSolved Technologies in detail beschreven in een Programma van Eisen (PvE) ontwerpdocument. De definitieve versie hiervan is in december 2021 afgerond. Met behulp van de PvE zijn definitieve offerten opgevraagd bij twee equipment leveranciers (AlphaPro tech BV en Takenaka Europe GmbH Netherlands Branch) die gespecialiseerd zijn in de engineering en bouw van testopstellingen voor de chemische industrie. Beide bedrijven zijn gevestigd in de buurt van de beoogde locatie van de testopstelling bij CHILL Labs (onderdeel van de Brightlands Chemelot Campus) in Geleen. Vanwege personeelsproblemen bij AlphaPro Tech en de lagere offerteprijs van Takenaka is gekozen voor het laatste. De opdracht voor de detailengineering en bouw is op 24 maart 2022 verleend na toekinning van de TEI subsidie (17 maart 2022).

De bouw en oplevering hebben door verschillende oorzaken vertragingen opgelopen ten opzichte van de oorspronkelijke planning. Tijdens de pre-engineering is gebleken dat de afmetingen van de opstelling groter zijn dan de beschikbare ruimte in de bestaande inloopzuurkast (geventileerde ruimte) in de laboratoria van de CHILL Labs, waar de testopstelling eerst geplaatst zou worden. Daarom is besloten om de testopstelling in een andere ruimte van CHILL te plaatsen waar pilot installaties van startup bedrijven staan. Aangezien er bij deze testopstelling met oplosmiddelen gewerkt wordt, dient de opstelling in een geventileerde ruimte geplaatst te worden. De oorspronkelijke opdracht aan Takenaka is daarom uitgebreid met het ontwerp en bouw van een op maat gemaakte geventileerde walk-in box van 3 x 2.5 x 3 meter. Dit heeft tot een aanzienlijke verhoging van de totale bouwkosten geleid. Daarnaast heeft CHILL Labs door deze aanpassingen een uitgebreidere HAZOP (Hazard and Operability) studie geëist dan eerst voorzien.

Ook hebben toeleveringsproblemen van componenten door COVID en aanvankelijke bezettingsproblemen bij de machinebouwer tot een verdere vertraging van de bouw en oplevering van de opstelling geleid. De opstelling is uiteindelijk met 5 maanden vertraging eind oktober 2022 in gebruik genomen.

#### **Resultaten**

De testopstelling is voorzien van veel functionaliteiten, zoals een geroerde en verwarmbare oplostank (tussen ca. 10 tot 95°C), 3 mechanische filters van verschillende grootten, een 2-staps verdampingsmodule met vacuümpomp en een dubbele condensor voor het terugwinnen en regenereren van het oplosmiddel, zie Figuur 3.



*Figuur 3: 20 liter solvent-based testopstelling van ReSolved Technologies die in het kader van dit project is gebouwd*

Naast de 20 liter opstelling is ook een kleine 0,5 liter testopstelling gebouwd, waarmee oriënterende oplos- en filtratie tests met kleine hoeveelheden samples (50 gram/batch) eenvoudig en snel uitgevoerd kunnen worden, zie figuur 4. De kleine testopstelling is in een zuurkast in het chemisch laboratorium van CHILL Labs opgesteld.



*Figuur 4: 0.5 liter solvent-based testopstelling van ReSolved Technologies die in het kader van dit project is gebouwd*

Met de 0.5 liter testopstelling worden sinds juli 2022 tests met verschillende reële samples van kunststofafval van zowel zacht PVC als ABS en HIPS uitgevoerd. De focus van deze tests ligt op het selectief oplossen van de doelkunststof uit gemengde afvalstromen (bijv. ABS-HIPS mengsels uit elektronica schroot) en composietmaterialen (bijv. ABS – zacht PVC uit auto dashboards). Met tests op deze schaal is echter niet mogelijk om voldoende hoeveelheden gezuiverde kunststof te maken voor compounding en voor het produceren van teststaven voor de bepaling van de mechanische eigenschappen. De daarvoor benodigde minimale hoeveelheid ligt bij ca. 2 kg, terwijl met de kleine solvent-based testopstelling maar ca. 50 g per test gemaakt kan worden.

## WP3.2: Ontwerp en vervaardiging van de benodigde membranen

### ***Werkwijze en uitvoering***

Op basis van de inzichten uit de quick-scan membraanfiltratie tests bij SolSep en vanwege de aangescherpte veiligheidseisen van CHILL Labs is besloten om de membraanfiltratie module niet te integreren in de solvent-based testopstelling. In plaats daarvan is voor deze module een ontwerp op een separate skid gemaakt. Deze verrijdbare skid heeft zijn eigen bedieningspaneel en kan geheel los van de solvent-based module gedraaid worden. Voor proefnemingen wordt de skid in de walk-in box geplaatst en na afloop weer verwijderd. Op deze manier kon met de aanwezige ventilatiemogelijkheden in de walk-in box voldaan worden aan de strenge veiligheidseisen van CHILL Labs. Voor het ontwerp en bouw van de membraanfiltratie module is een Duitse leverancier van membraanfiltratie installaties ingeschakeld.

### ***Resultaten***

De membraanfiltratie testopstelling is medio januari 2023 geleverd, zie figuur 5. Met de installatie zijn keramische membranen van verschillende poriegrootten meegeleverd. De installatie heeft een verwarmbare voorraadtank van 4.5 liter en aanzienlijk meer technische mogelijkheden dan de testopstelling van SolSep.



*Figuur 5: Membraanfiltratie testopstelling van ReSolved Technologies op lab schaal die in het kader van dit project is gebouwd*



## WP4: Validatie van de technische haalbaarheid van membraanfiltratie met reële kunststof samples

### WP4.1: Opstellen van een testprogramma met verschillende soorten membranen, kunststoffen en legacy additieven

Bij de opstelling van het oorspronkelijke projectplan was ervan uitgegaan dat de selectie van geschikte membranen voor een deel in WP4 zou plaatsvinden. In de loop van de projectuitvoering is echter gebleken dat het meer voor de hand liggend is om de selectie in de quick-scan tests in WP2 te doen. Daarom is de uitvoering van WP4.1 grotendeels verplaatst naar WP2.

### WP4.2: Selectie en verzameling van samples van kunststoffen met legacy additieven uit post-consumer afval

#### Zacht PVC

Reële samples van zacht PVC afval zijn betrokken van een Nederlandse recycler van met name kabelafval. Om een representatief beeld te krijgen, zijn in totaal 11 samples ontvangen uit verschillende afvalbatches. De samples zijn onderzocht op de aanwezigheid van legacy additieven op basis van het gehalte aan diverse metalen en weekmakers. Vastgesteld is dat de samples inderdaad legacy additieven zoals lood en DOP (DEHP) bevatten in aanzienlijke concentraties, zoals mag worden verwacht op basis van in het verleden toegepaste samenstellingen, zie Tabel 2.

*Tabel 2: Eigenschappen en additieven concentraties in commercieel beschikbaar PVC kabelafval*

ID	Shape	Colour	Cu conc. (ppm)	Pb conc. (ppm)	Zn conc. (ppm)	DEHP conc. (ppm)	DIDP+DHP conc. (ppm)
1	Regrind	Jazz	2210	6890	620	6.2%	15.4%
2	Powder	Jazz	4410	3780	960	5.5%	13.4%
3	Powder	Jazz	7930	4000	1050	5.4%	13.0%
4	Powder	Jazz	4930	4160	1060	5.3%	12.8%
5	Powder	Jazz	3356	4640	980	5.6%	13.7%
6	Powder	Jazz	4570	4220	980	5.0%	12.4%
7	Powder	Jazz	4870	4170	1020	5.1%	12.9%
8	Powder	Jazz	2050	4420	870	5.9%	13.0%
9	Powder	Jazz	2210	4330	890	6.0%	13.1%
10	Powder	Jazz	4760	4140	1090	6.2%	12.8%
11	Powder	Jazz	9180	3640	1150	4.8%	12.2%

Naast lood worden in deze samples koper (Cu) en zink (Zn) teruggevonden. De oorsprong daarvan is respectievelijk restanten geleidingsmetaal (Cu) en toegepaste stabilisator/hulpstof tbv PVC kwaliteit (Zn). Op zink gebaseerde stabilisatoren zijn vervangers voor lood stabilisatoren en worden veel toegepast in PVC. Naast DEHP worden ook DIDP (Diisodecyl phthalate) en DPHP (Di(2-propylheptyl) phthalate) teruggevonden. Beide worden gebruikt ter vervanging van of aanvulling op DEHP.

Uit de bovenstaande resultaten kan worden geconcludeerd dat de samples bestaan uit een mengsel van PVC kabelafval van verschillende "leeftijden": er worden mengsels van legacy en niet-legacy additieven teruggevonden en de concentraties aan legacy additieven zijn relatief laag.

#### ABS

Voor de verzameling van reële samples van ABS en HIPS afval is in dit project samengewerkt met MIREC BV, de grootste recycler van elektrische en elektronische apparatuur in Nederland. MIREC



heeft in november 2021 verschillende kunststofonderdelen van afgedankte apparatuur uit hun demontagelijnen in Eindhoven geleverd. Door een defect van hun XRF analyse apparatuur kon echter de aanwezigheid van broom in de gedemonteerde onderdelen niet bepaald worden. In plaats daarvan werden onderdelen geselecteerd die door de fabrikant zijn voorzien van een opschrift over de aanwezigheid van vlamvertragers. In externe analyses van de aangeleverde samples in WP2 in maart 2022 is echter gebleken dat deze samples geen broom bevatten. In het najaar van hetzelfde jaar heeft MIREC een nieuwe productielijn in België in gebruik genomen, waar elektronica afval met onder andere broomhoudende vlamvertragers verwerkt worden. MIREC heeft twee nieuwe sample batches uit deze lijn geleverd in november 2022. Een van deze samples bleek erg inhomogeen en vervuild te zijn, waardoor is het niet verder onderzocht. Het andere sample afkomstig van afgedankte computerbehuizingen is wel geschikt bevonden voor de projectuitvoering. Na demontage van de broomhoudende kunststofonderdelen bij MIREC is het materiaal verkleind op <40 mm, zie figuur 6. Dit sample is gebruikt als input materiaal voor membraanfiltratie tests met reële kunststofsamples.



*Figuur 6: Sample van afgedankte computerbehuizingen van ABS met broomhoudende vlamvertragers geleverd door MIREC BV voor dit project. Dit op <40 mm verkleinde materiaal is gebruikt in de membraanfiltratie tests bij ReSolved Technologies*

Voor de bepaling van het scheidingsrendement van membraanfiltratie diende eerst het broomgehalte van het inputmateriaal bepaald te worden. In eerste instantie is gekozen voor een chemische analyse met behulp van de zogenoemde calorische bom methode. Een serie analyses is door het gecertificeerde lab SGS Intron Culemborg uitgevoerd. De kosten van deze analyse zijn echter hoog (€500 per analyse) en de doorlooptijd lang (4-8 weken). Daarom is gezocht naar een alternatief. In overleg met analyse experts is gekozen voor de XRF methode. ReSolved heeft kalibratiesamples van virgin ABS met het nog steeds verkrijgbare broomhoudende vlamvertrager TBBPA (Tetrabromobisphenol-A) in verschillende concentraties gemaakt in het chemische lab van CHILL. Daarmee zijn kalibratietests met een draagbare XRF analyser van het merk Bruker bij Prodin BV in Rogat uitgevoerd, zie figuur 7. De nauwkeurigheid van de metingen bleek tussen 5% en 10% te liggen, hetgeen voldoende is voor de doelstellingen in dit project.



*Figuur 7: XRF analyser bij Prodin BV. XRF analyse is in dit project gebruikt voor het bepalen van het broomgehalte van kunststoffen met broomhoudende vlamvertragers*

#### **WP4.3: Testen van verschillende procesopties voor de afscheiding van (ultra)fijne vaste stof deeltjes**

##### ***Werkwijze en uitvoering***

Op basis van de positieve resultaten van de centrifugetests op labschaal in WP2 is besloten om vervolgtests met een continu werkende centrifuge op pilotschaal uit te voeren in het testcentrum van GEA Westfalia in Duitsland. Door de grote hoeveelheid aanvragen van klanten bij GEA na opheffing van de Corona maatregelen bleek de wachttijd in het testcentrum opgelopen tot een half jaar. Verder is van onze aanvraag van 2 testdagen maar 1 dag gehonoreerd door GEA, eveneens in verband met de grote drukte. Alternatieve leveranciers waar we aanvraag deden, Flottweg GmbH en Siebtechnik GmbH, hebben niet de geschikte apparatuur en faciliteiten in hun testcentrum om deze pilot tests uit te voeren.

De afscheiding van relatief grove deeltjes en typische concentraties in de kunststofoplossing is volgens experts van GEA op industriële schaal zonder problemen haalbaar. Daarom is besloten om de focus van de pilot tests te leggen op het valideren van de afscheiding van fijne vaste stofdeeltjes op pilot schaal. Verder is besloten om de pilot tests eveneens met artificiële samples met een goed gedefinieerde samenstelling van verschillende soorten vaste stofdeeltjes uit te voeren. In reële afvalsamples is deze samenstelling in onvoldoende detail bekend, hetgeen de interpretatie van de testresultaten onmogelijk maakt.

Voor de pilot tests heeft Shin-Etsu een artificieel sample van 100 kg (sample Serie 4) industrieel laten produceren. De tests zijn op 17 november 2022 in het testcentrum van GEA in Oelde/Duitsland uitgevoerd.

##### ***Resultaten***

De resultaten van de indicatieve centrifugetesten door GEA Westfalia en de aanvullende centrifugetesten door Shin-Etsu zijn hierboven onder WP2.2 en WP2.3 beschreven. In dit hoofdstuk worden de resultaten van de centrifugetesten op pilot schaal beschreven.

Voor de testen op pilot schaal is gebruik gemaakt van industrieel geproduceerd zacht PVC granulaat gezien de hoeveelheid benodigd monster. De test is uitgevoerd in het test centrum van GEA Westfalia in Oelde, Duitsland op 17 november 2022.

Op hoofdlijnen is de test uitgevoerd volgens onderstaande beschrijving:

- Er is een oplossing gemaakt aan de hand van een door Shin-Etsu geleverd recept.
- Als centrifuge is gekozen voor een type met hoge G-krachten. Het geselecteerde model is geschikt voor verwerking van het oplosmiddel en is Ex-gecertificeerd.
- Vanuit de voorraadtank is de oplossing door middel van een pomp met variërende debieten aangeboden aan de centrifuge. Filtraat en centraat zijn gescheiden opgevangen.
- Gedurende de test zijn het voedingsdebiet en de scheidingsparameters gevarieerd. Deze zijn aan de hand van visuele observaties van het centraat en op basis van ervaring door de operators van GEA Westfalia geoptimaliseerd.
- Bij verschillende instellingen zijn in totaal 7 monsters van het centraat genomen. Deze zijn later door Shin-Etsu geanalyseerd op vaste stofgehalte om het scheidingsrendement te bepalen.
- De temperatuur is gedurende de gehele test constant geweest.

De kwalitatieve conclusie door GEA Westfalia experts is dat het product makkelijk in een centrifuge kan worden gescheiden en dat het scheidingsrendement afneemt bij hogere debieten. Zonder detailoptimalisatie van scheidingsparameters is berekend dat de centraat-opbrengst ongeveer 97% was. Dit duidt op een efficiënte afscheiding van vaste stoffen.

Op basis van de analyses van Shin-Etsu van de 7 genomen centraat-monsters en het voedingsmonster, kunnen de volgende conclusies worden getrokken met betrekking tot het scheidingsrendement:

- Het verwijderingsrendement van fijne vaste stofdeeltjes is ongeveer 90%
- Hogere debieten leveren wat lagere rendementen op – rond de 85%
- Er wordt nauwelijks weekmaker verwijderd door centrifugeren, zoals verwacht.

#### **WP4.4: Uitvoering van membraanfiltratie tests**

##### ***Werkwijze en uitvoering***

De membraanfiltratietests met reële kunststofsamples zijn met een testopstelling van ReSolved Technologies uitgevoerd, zoals beschreven in hoofdstuk WP3.2. De eerste tests konden door de eerder genoemde vertragingen pas in de tweede helft van januari 2023 uitgevoerd worden. In de loop van de projectuitvoering is gebleken dat reële kunststofsamples met een goed gedefinieerde samenstelling van de te meten legacy additieven moeilijk te verkrijgen zijn. Het is daarom besloten om in eerste instantie ABS met broomhoudende vlamvertragers uit afgedankte computerbehuizingen als inputmateriaal te gebruiken, omdat het broomgehalte relatief eenvoudig en snel te meten kan worden met de XRF methode, zie hoofdstuk WP4.2.

De benodigde kunststofoplossingen zijn met de 20 liter solvent-based testopstelling aangemaakt. Het inputmateriaal is eerst met de hand gesorteerd op niet-kunststof contaminanten, zoals draden, printplaten, etc. Vervolgens is de kunststoffractie in de oplostank geplaatst samen met het oplosmiddel en geroerd om verkleaving van de kunststof flakes te voorkomen. Het oplossen vond plaats bij atmosferische druk bij een licht verhoogde temperatuur. Na het voltooiën van het oplosproces, is de oplossing in 3 stappen mechanisch gefiltreerd. De gefiltreerde oplossing is afgetapt en na afkoelen in een voorraadtank van de opstelling opgeslagen voor gebruik als inputmateriaal in de membraanfiltratie tests. Er is 10 liter oplossing met een kunststofconcentratie van 10 ma-% gemaakt. De concentratie van de oplossing kan eenvoudig door verdamping van het oplosmiddel in de solvent-based testopstelling of door verdunning met extra oplosmiddel aangepast worden.

Membraanfiltratietests met reële kunststofsamples van PVC zijn in de zomer van 2023 gepland.

##### ***Resultaten***

De doelstelling van de membraanfiltratie tests met ABS en vlamvertragers was tweeledig:

- verhogen van de flux voor de economische haalbaarheid van membraanfiltratie voor de beoogde toepassing
- valideren van membraanfiltratie met reële kunststofsamples

Met een combinatie van verschillende technische aanpassingen kon de flux verhoogd worden. Tegelijkertijd is aangetoond dat het membraanfiltratie proces met reële kunststofsamples technisch ook haalbaar is.

In deze opstelling worden het permeaat en het concentraat teruggevoerd in de voorraadtank. Nadat het systeem het evenwicht heeft bereikt, kunnen samples van de input en output stromen (permeaat en concentraat) genomen worden voor analyse.

De resultaten laten zien dat de broomhoudende componenten via het permeaat inderdaad worden afgescheiden in ongeveer dezelfde concentratie als in de input oplossing. Deze waarden zijn in lijn met de verwachtingen en duiden op een goede scheiding. Het verwijderen van stabilisatoren uit zacht PVC met behulp van membraanfiltratie kon in het tijdsbestek van het project niet onderzocht worden.

#### **WP4.5: Testen van de mechanische eigenschappen van geselecteerde samples van gezuiverde kunststoffen**

##### ***Werkwijze en uitvoering***

In december 2022 is een eerste reeks test met de 20 liter solvent-based testopstelling uitgevoerd. Als inputmateriaal is 4 kg productie afval van gelakt ABS uit een automotieve toepassing gebruikt. De samples zijn door Honda Motors Italië geleverd. Met behulp van het oplosproces is het gelukt om de laklaag volledig af te scheiden en een zuivere ABS fractie te maken. 3.6 kg van het gezuiverde plastic fractie is via extrusie tot korrels verwerkt. De korrels zijn in december 2022 teruggestuurd naar Honda Motors voor analyse. Resultaten werden in eerste instantie in februari 2023 verwacht, maar door een ingrijpende reorganisatie bij Honda is de verwachte uitslag verschoven naar juli 2023.

Verdere tests met verschillende reële kunststofsamples in de 20 liter solvent-based testopstelling zijn gepland in de loop van 2023.

Eveneens vanwege de vertraging in de oplevering van de 20 liter testopstelling is het binnen de tijdsspanne van het project niet mogelijk gebleken om een voldoende grote hoeveelheid recycled PVC te produceren om mechanische eigenschappen te testen. Inmiddels is een traject gestart met reëel productie-afval.

Als onderdeel van de bepaling van het scheidingsrendement van de membraanfiltratietesten in WP2.3, is ook een meting gedaan van de ketenlengte van de teruggewonnen PVC. De ketenlengte is de belangrijkste maat voor de mechanische eigenschappen van het product. Bij gelijkblijvende ketenlengte kan worden geconcludeerd dat de mechanische eigenschappen naar verwachting gelijk zijn aan virgin materiaal.

##### ***Resultaten***

Zoals hierboven beschreven is het binnen de tijdsspanne van dit project niet mogelijk gebleken om een definitieve uitspraak te doen over de mechanische eigenschappen van de middels de in dit project toegepaste technologie gezuiverde PVC.

In een eerder stadium is door Shin-Etsu een aantal bepalingen gedaan aan een gezuiverd PVC product dat in het verleden op pilot plant schaal is geproduceerd met behulp van dezelfde technologie, echter zonder het verwijderen van specifieke additieven.

Uit deze tests is het volgende gebleken:

- De samenstelling en eigenschappen van het product zijn naar verwachting:
  - Samenstelling met name PVC, weekmaker en stabilisator – in lijn met typische (historische) formulaties voor zacht PVC kabelommanteling
  - PVC ketenlengte is typisch voor gebruik in kabelommanteling (d.w.z. de PVC K-waarde is rond de 70)
  - Fingerprint (FTIR) is herkenbaar
- Op basis hiervan is de verwachting dat hergebruik mogelijk is zonder relevant verlies van kwaliteit (closed-loop).

Bij de bepaling van het scheidingsrendement van membraanfiltratie op basis van de initiële testen door SolSep is door Shin-Etsu naast de teruggewonnen hoeveelheid PVC ook een bepaling gedaan van de ketenlengte (K-waarde). Voor de geproduceerde artificiële samples (serie 1) is gebruik gemaakt van Shin-Etsu PVC S70-16 met een K-waarde van 70. De gemeten K-waarde van teruggewonnen PVC na membraanfiltratie was in de range van 70.2 – 70.7, waarmee kan worden geconcludeerd dat geen verlies van ketenlengte optreedt door toepassen van membraanfiltratie.

## WP 5: Evaluatie van de economische haalbaarheid

De economische haalbaarheid van de onderzochte solvent-based technologie is voor verschillende kunststofafvalstromen waarbij geen additieven verwijderd hoeven te worden, bijv. productie afval of post-consumer afval zonder legacy additieven, gevalideerd. De minimaal benodigde afzetprijs van het recycklaat voor de economische haalbaarheid ligt volgens onze berekeningen gemiddeld tussen 80% en 90% van de virgin prijs. Aan de andere kant hebben meerdere potentiële klanten aangegeven dat ze bereid zijn een prijs van 120% of meer van de virgin prijs te betalen voor hoogwaardig recycklaat om daarmee te kunnen voldoen aan (eigen) circulariteitsdoelstellingen.

De investerings- en operationele kosten van de onderzochte additiefverwijderingsmodulen kunnen als additionele kosten toegevoegd worden.

Op basis van de verwachte langetermijn afzetprijs voor ABS en HIPS en een gate fee voor het input materiaal met legacy additieven, genereert een solvent-based recycling plant met additiefverwijdering en een output capaciteit van 4.000 ton/a reeds een positieve EBITDA. De winstgevendheid van een full-scale plant met een output capaciteit van 12.000 ton/a ligt aanzienlijk hoger.

De winstgevendheid van een vergelijkbare plant voor zacht PVC afval met legacy additieven is complexer, omdat het totale gehalte aan additieven (met name weekmakers en fillers) doorgaans tussen 40% en 65% ligt. De winstgevendheid hangt daarom mede af van de afzetprijzen of afvoerkosten van de afgescheiden additieven. Deze kosten kunnen aan de hand van samples van deze bijproducten uit de pilot plant bepaald worden. Uit voorlopige berekeningen blijkt dat de breakeven grens voor zacht PVC afval bij een plantcapaciteit van tussen 15.000 en 20.000 ton/a ligt. Als onderdeel van dit project is middels een marktanalyse een eerste beeld gevormd van hoeveelheden, kwaliteiten en prijzen van beschikbaar zacht PVC afval in Nederland en direct omringende landen. Dit werk is gedaan ter ondersteuning van de economische haalbaarheidsanalyse en met het oog op een eventuele initiële investering in een recycling fabriek op demo-schaal.

## Discussie

### Afscheiden van opgeloste stoffen middels membraanfiltratie

In WP2 was de technische haalbaarheid van membraanfiltratie voor de afscheiding van weekmakers uit zacht PVC met artificiële samples op microschaal aangetoond. SolSep heeft bevestigd dat een verlaging van het weekmakergehalte tot het vereiste <math><1.000\text{ ppm}</math> (0,1%) technisch haalbaar is. Door technische beperkingen van de gebruikte opstelling kon echter de flux door het membraan niet geoptimaliseerd worden om ook de economische haalbaarheid te valideren. Het is daarom besloten om een eigen membraanfiltratie testopstelling op een grotere schaal (labschaal) met de benodigde technische mogelijkheden te bouwen en aanvullende membraanfiltratie tests uit te voeren. Met deze opstelling is het gelukt om de flux te verhogen. Voor deze tests zijn reële samples van ABS met broomhoudende vlamvertragers uit afgedankte computerbehuizingen gebruikt. Daarmee is het aangetoond dat membraanfiltratie ook met reële kunststofsamples technisch haalbaar is. Membraanfiltratietests met reële kunststofsamples van PVC zijn in de zomer van 2023 gepland.

Merk op dat de molecuulgewichten van als legacy additief beschouwde broomhoudende vlamvertragers in ABS en HIPS en die van weekmakers in zacht PVC vergelijkbaar zijn. Daardoor is het gedrag van deze verbindingen in membraanfiltratie vergelijkbaar. Dit betekent dat de resultaten met broomhoudende vlamvertragers in membraanfiltratie tests een goede indicatie geven voor de te verwachten resultaten met weekmakers in zacht PVC.

### Afscheiden van vaste stoffen middels centrifugeren

Tijdens het project is gebleken dat centrifugeren een geschikte techniek is om, voorafgaand aan membraanfiltratie, de oplossing te ontdoen van vaste stofdeeltjes. Hieruit bleek dat ook een deel van de (zeer) fijne deeltjes middels centrifugeren te verwijderen is.

In de praktijk, als gewerkt wordt met reële zacht PVC afvalstromen, zal voorafgaand aan centrifugeren ook gebruikt worden gemaakt van een grove filtratiestap (en/of een bezinkstap) om grotere delen niet opgeloste stoffen en verontreinigingen te verwijderen. Vanwege het gebruik van artificiële samples, was dat in dit project niet noodzakelijk.

### Strategie voor verdere ontwikkeling

Om een demo-schaal fabriek te kunnen bouwen, is de toegang tot industrieel afval zonder legacy additieven van voldoende volume en voldoende (en constante) kwaliteit een vereiste. Idealiter vindt het geproduceerde recycled PVC ook weer zijn weg terug naar de applicatie waarvoor het oorspronkelijk werd ingezet in een closed-loop opzet. Uit marktonderzoek is gebleken dat er voldoende volume geschikt zacht PVC afval in de markt beschikbaar is, b.v. in de vorm van kabelafval.

## Conclusies en aanbevelingen

### Conclusies:

1. Het verwijderen van opgeloste componenten van de legacy additieven broomhoudende vlamvertragers in ABS en HIPS en weekmakers in zacht PVC met behulp van membraanfiltratie is technisch haalbaar. Volgens voorlopige berekeningen is deze techniek ook economisch haalbaar op een schaal van vanaf 4.000 ton/a voor ABS en HIPS en ca. vanaf 15.000 ton/a voor zacht PVC. Het verwijderen van stabilisatoren uit zacht PVC met behulp van membraanfiltratie kon in het tijdsbestek van het project niet onderzocht worden.
2. Het verwijderen van fijne vaste stofdeeltjes uit zacht PVC monsters middels centrifuge is technisch mogelijk en bewezen op pilot schaal – een verwijderingsrendement van 90% lijkt haalbaar.
3. Verder onderzoek is nodig om de centrifuge-stap te optimaliseren en daarmee robuust te maken voor een breed scala aan reële zacht PVC afvalstromen.

### Aanbevelingen:

1. Testen van het verwijderen van stabilisatoren uit zacht PVC met behulp van membraanfiltratie op labschaal
2. Testen van op 20 liter schaal geproduceerd recycled PVC op basis van reëel productieafval voor hergebruik in dezelfde applicatie.
3. Realiseren van een pilot plant t.b.v. verdere optimalisatie van de technologie, met name gericht op het verwijderen van legacy additieven
4. Definiëren van mogelijke outlets van reststromen van de solvent based productie-technologie, met name uitgefilterde vaste stoffen (grof), centrifuge-filtraat en membraanfiltratie-permeaat.