Ein Überblick zum Recycling und zur Verwertung glasfaserverstärkter Kunststoffe

Magdalena Milek und Sindy Fuhrmann*

DOI: 10.1002/cite.202300202

This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution License, which permits use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

Faserverbundmaterialien sind Schlüsselkomponenten in Zukunftstechnologien. Daraus resultiert eine stark ansteigende Nachfrage und es sind steigende Abfallmengen zu erwarten. Das Faserverbundmaterialrecycling ist seit einigen Jahren ein intensiv erforschtes Themengebiet. Den größten Anteil bilden mit 95 Gew.-% glasfaserverstärkte Kunststoffe. In diesem Übersichtsartikel liegt der Fokus auf der Wiederverwertung glasfaserverstärkter Kunststoffe. Deren Effektivität und Anwendbarkeit werden beurteilt und der aktuelle Stand der Forschung wird zusammengefasst.

Schlagwörter: GFK, Glasfaser, glasfaserverstärkter Kunststoff, Kreislaufführung, Recycling

Eingegangen: 19. Oktober 2023; *revidiert:* 11. April 2024; *akzeptiert:* 12. April 2024

A Review on Recycling and Reuse of Glass Fiber-Reinforced Plastics

Fiber composite materials are key components of numerous future technologies. This results in a strongly increased demand and also in increasing amounts of waste in the upcoming years. Thus, recycling of fiber composite materials has become an intensively researched topic. At 95 wt %, glass fiber-reinforced plastics make up the largest part. This review article will provide an overview of the state of the art of common recycling strategies and technologies, with particular focus on the advantages and challenges of glass fiber-reinforced polymer recycling.

Keywords: Circularity, Fiberglass, GFRP, Glass fiber-reinforced polymer, Recycling

1 Einleitung

Im Laufe der vergangenen Jahre und Jahrzehnte ist das Bewusstsein und Interesse an einer nachhaltigen Ressourcennutzung gestiegen, wodurch Möglichkeiten des Recyclings bzw. der Kreislaufwirtschaft zunehmend in den Fokus geraten sind. Gleichzeitig kommen für nachhaltigere Prozesse, beispielsweise der Energieerzeugung oder des Transports, immer mehr und neue Verbundwerkstoffe zum Einsatz. Durch ihre einzigartige Kombination verschiedener Materialeigenschaften eröffnen sie neue technische Möglichkeiten und deutliche Effizienzsteigerungen wie z.B. in Windkraftanlagen, im Gütertransport oder in der Luftfahrt. Durch die Kombination verschiedener Materialien und deren tiefgreifende Verbindung ist das Recyceln eine Herausforderung. Eine einfache Trennung in Einzelkomponenten ist meist nicht mehr möglich.

Weltweit ist ein steigender Einsatz von Faserverbundmaterialien zu beobachten [1]. Der Ausbau erneuerbarer Energien mit Windkraftanlagen ohne den Einsatz dieser Materialien in den Windradflügeln ist aktuell nicht denkbar. Es wird daher in den kommenden Jahren mit einem beschleunigten Anstieg der Produktion gerechnet. Damit werden auch die zukünftigen Abfallmengen von Faserverbundwerkstoffen verstärkt zunehmen [2, 3]. Die Gesetzgeber erkennen weltweit das Abfallproblem und haben unter anderem in Deutschland, Finnland, den Niederlanden, Österreich und Großbritannien [4–6] bereits mit Deponierungsverboten reagiert. Eine entsprechende EU-weite Regelung wird angestrebt [7].

Um dem Ziel einer Kreislaufwirtschaft im Bereich der Faserverbundmaterialien näher zu kommen, widmen sich seit einigen Jahren verstärkt Forschungsvorhaben deren Recycling.

[1,2]Magdalena Milek, [1,2]Jun.-Prof. Dr.-Ing. Sindy Fuhrmann
https://orcid.org/0000-0001-5289-784X
(sindy.fuhrmann@igt.tu-freiberg.de)
[1]Technische Universität Bergakademie Freiberg, Institute of Glass Science and Technology, Leipziger Straße 28, 09599 Freiberg, Germany.
[2]Technische Universität Bergakademie Freiberg, Center for Efficient High Temperature Processes and Materials Conversion, Winklerstraße 5, 09599 Freiberg, Germany.

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

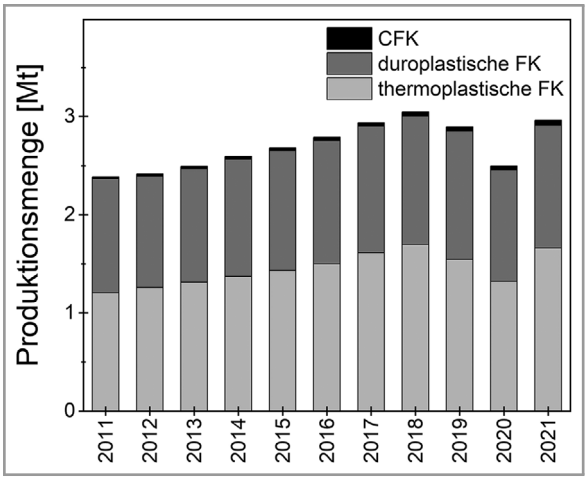

Abbildung 1. Jahresproduktion faserhaltiger Kunststoffe mit Thermoplast- bzw. Duroplastmatrix sowie Anteil CF-verstärkter Kunststoffe in Europa (in 1 000 000 t); Daten aus [8, 10].

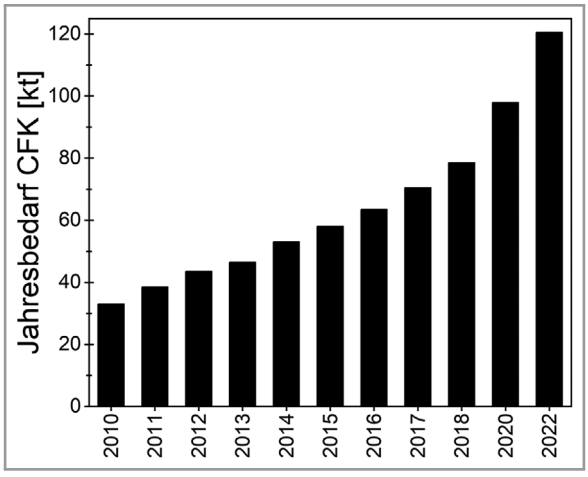

Abbildung 2. Jahresbedarf an CFK weltweit (in 1000 t); Daten aus [9].

In faserverstärkten Kunststoffen (FK) kommen vorrangig Glasfasern (GF), aber auch Carbonfasern (CF) und Naturfasern zum Einsatz. Im Jahr 2021 betrug der Anteil GF-verstärkter Kunststoffe (GFK) am europäischen Gesamtmarkt 95 % [8]. Üblicherweise werden GF mit sogenannter E-Glaszusammensetzung verwendet. Es handelt sich dabei um Calcium-Alumo-Borosilikatglas mit ca. 55,2 SiO_2, 8 Al_2O_3, 7,3 B_2O_3, 18,7 CaO, 4,6 MgO, 0,3 Na_2O, 0,2 K_2O (in Gew.-%). Des Weiteren werden Basalt-GF mit einer ungefähren Zusammensetzung von 50–55 SiO_2, 15 Al_2O_3, 5 MgO, 10–13 Fe_2O_3, 3 Na_2O, 1 K_2O, 1–3 andere (in Gew. %) verwendet. Der Vorteil der Verwendung von GF ist die geringe Dichte (2,5–2,7 cm^{-3}) bei hoher Festigkeit (Zugfestigkeit im Bereich von 1,75–3,5 GPa) und vergleichsweise geringen Herstellungskosten. Jedoch ist das E-Modul mit 70–85 GPa eher niedrig, was dazu geführt hat, dass Kohlenstofffasern und andere die GF teilweise ersetzen. CF- und Naturfaser-verstärkte Kunststoffe (CFK bzw. NFK) haben einen geringen, jedoch steigenden Anteil (Abb. 1) [1].

Der Energieeintrag zur Herstellung von Naturfasern ist eher gering. Dagegen ist der Energieverbrauch bei der Herstellung von GF und CF sehr hoch und trägt durch die Nutzung fossiler Energieträger erheblich zum CO_2-Ausstoß bei. GF werden über das Faserzugverfahren direkt aus der Glasschmelze als Faserbündel bzw. Faden hergestellt. CF werden aus chemischen Precursoren über die Karbonisierung bzw. Pyrolyse bei sehr hohen Temperaturen (> 1300 °C) hergestellt. Wegen der damit einhergehenden hohen Produktionskosten ist das Interesse am Recycling der besonders energieintensiv herzustellenden CF hoch. Darüber hinaus wird mit einem weiterhin steigenden Marktanteil von CFK in den nächsten Jahren gerechnet (Abb. 2) [9].

Da GFK jedoch auch über die nächsten Jahre hinaus den mengenmäßig größten Abfallanteil unter den Faserverbundwerkstoffen stellen werden und Prognosen eine ebenfalls weiter steigende GFK-Abfallmenge vorhersagen, sollte besonders deren effiziente und qualitativ hochwertige Wiederverwendung im Mittelpunkt stehen. Die im Vergleich zu CF deutlich geringeren Produktionskosten von GF machen ein Recycling von GFK bzw. den Einsatz recycelter GF (rGF) wirtschaftlich oft weniger attraktiv, weshalb sich viele Forschungsvorhaben vorrangig den Recyclingmöglichkeiten für CFK und der Verbesserung der Eigenschaften recycelter CF (rCF) widmen. Erkenntnisse daraus lassen sich nur zum Teil auf das GFK-Recycling übertragen.

Daher fasst dieser Artikel den aktuellen Stand der Technik für Recyclingmöglichkeiten und deren Probleme speziell für GFK zusammen. Im Gegensatz zu anderen Reviews [6, 10–13] werden insbesondere die rGF in den Mittelpunkt gestellt.

2 Recyclingverfahren

Etwa die Hälfte der in GFK als Matrix verarbeiteten Kunststoffe sind Duroplaste [14], da sie im Vergleich zu Thermoplasten deutlich günstigere Materialeigenschaften aufweisen: Die am häufigsten eingesetzten Polyester, Polyvinylester oder Epoxidharze besitzen neben ihrer höheren Temperaturstabilität meist bessere mechanische Eigenschaften und lassen sich einfach und vielfältig formen. Durch die niedrige Viskosität des ungehärteten Duromers kann leicht eine gute Benetzung der GF erzielt werden. Im Gegensatz zu Thermoplasten ist es jedoch nicht möglich, ausgehärtete Duromere später wieder zu erweichen. Eine Duromermatrix kann daher nur aufwändig und eher unvollständig von GF abgetrennt werden.

Außerdem beeinflussen die angewendeten Trennverfahren die Faserqualität der resultierenden rGF. Vor allem die mechanische Stabilität der recycelten Fasern ist jedoch

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

entscheidend für die Konkurrenzfähigkeit der rGF zu frisch produzierten GF und bestimmt maßgeblich deren Einsatzmöglichkeiten. Ein weiterer entscheidender Einflussfaktor ist die Faserlänge. Lange Fasern stabilisieren FK deutlich besser als kürzere [15]. In komplexen GFK-Bauteilen kommen daher meist Gewebe, Gelege oder Stränge aus Endlosfasern zum Einsatz, um höchste mechanische Stabilitäten zu erzielen [16].

Die Recyclingverfahren, die aktuell für GFK infrage kommen, lassen sich in drei prinzipielle verfahrenstechnische Richtungen unterteilen: mechanische, thermische und chemische Verfahren. In den folgenden Abschnitten werden die jeweiligen Verfahren dargestellt.

2.1 Mechanisches Recycling

Die einfachste Art der Wiederverwendung besteht im mechanischen Recycling. Das Ziel dabei ist nicht die vollständige Trennung von Polymermatrix und GF, sondern die Verarbeitung des FK zu einem homogeneren Materialgemisch, das für weitere Einsatzzwecke geeignet ist. GFK mit thermoplastischer Kunststoffmatrix können pulverisiert oder zu Granulat verarbeitet werden, woraus sich durch Wiederaufschmelzen direkt neue GFK-Produkte herstellen lassen. Durch die starke Zerkleinerung der Fasern geht jedoch ein Großteil des stabilisierenden Effektes auf die mechanischen Eigenschaften des FK verloren.

Da Duromere nicht wieder aufgeschmolzen werden können, muss im Falle der Duromermatrix das GFK-Mahlgut mit anderen Materialien angereichert werden, um eine erneute Formgebung zu ermöglichen. Dies kann durch Zugabe von (recyceltem) Thermoplast oder neuem, noch unausgehärtetem Duromer geschehen. Die zerkleinerten GF (und das zerkleinerte Duromer) ersetzen in diesem Fall Füllstoffe und verbessern die mechanischen Eigenschaften kaum [17]. Von einer gleichwertigen Wiederverwendung kann in beiden Fällen nicht gesprochen werden.

Eine Verbesserung wird durch den Einsatz mehrstufiger Zerkleinerungsverfahren angestrebt. Hierbei werden die GFK zunächst in niedertourigen Schneid- oder Mahlwerken auf Stückgrößen von 50 bis 100 mm grob zerkleinert [10]. Anschließend erhält man durch mehrere weitere Schneid- und Mahlschritte sowie zwischenzeitliches Aussieben oder eine Trennung in Zyklonabscheidern mehrere Fraktionen zwischen 50 µm und 10 mm. In den verschiedenen Fraktionen kann dabei der Faser- bzw. Kunststoffanteil angereichert werden [18]. Auch eine Anreicherung definierter Faserlängen in einzelnen Fraktionen ist möglich. Damit stehen für Anwendungen als Füllstoff auch Materialgemische mit längeren Fasern (z.B. 3–20 mm) zur Verfügung [18], um daraus wieder Endprodukte mit hochwertigen mechanischen Eigenschaften fertigen zu können [19].

Sehr oft findet mechanisches Recycling auch als Vorstufe für andere Recyclingverfahren Anwendung. Da GFK-Abfälle in der Regel inhomogen sind, werden mechanische Zerkleinerungs- und Separierverfahren genutzt, um ein homogenes Ausgangsmaterial mit gleichmäßigen Stückgrößen zu erhalten. Dadurch können in späteren Aufbereitungsschritten die Bedingungen möglichst mild und die Behandlungsdauer so kurz wie möglich gehalten werden, um eine vollständige und gleichzeitig faserschonende Umsetzung zu realisieren.

Neben der klassischen mechanischen Zerkleinerung gibt es Ansätze für alternative Zerkleinerungstechniken. Interesse hat hierbei besonders die Hochspannungsfragmentierung (HVF) geweckt [10]. Dabei trennen durch Hochspannungspulse induzierte Schockwellen die in Wasser liegenden vorzerkleinerten GFK-Teile bevorzugt entlang der Materialgrenzen. Daher können im Vergleich zur mechanischen Zerkleinerung besonders lange und saubere GF mit wenig anhaftenden Matrixrückständen gewonnen werden [20]. Der Energieeinsatz des HVF-Verfahrens ist jedoch signifikant höher und die Durchsatzrate wesentlich geringer [20]. Darüber hinaus kommt es bei dieser Form der Zerkleinerung zu Materialverlust durch eine teilweise Zersetzung der Matrix [21].

2.2 Thermisches Recycling

Die Grundidee des thermischen Recyclings besteht darin, die im GFK-Abfall enthaltene Energie in irgendeiner Form wieder zugänglich zu machen. Dies kann auf verschiedene Weisen geschehen. Im einfachsten Fall wird der Kunststoffanteil im GFK in Müllverbrennungsanlagen als Brennstoff für die Wärme- und Energieerzeugung genutzt (Abschn. 2.2.1). Technisch anspruchsvoller sind die Verbrennung im Wirbelbettreaktor (Abschn. 2.2.2) oder die Pyrolyse (Abschn. 2.2.3), bei der die Polymermatrix unter Sauerstoffausschluss bei hohen Temperaturen zersetzt und ein energiereiches kraftstoffähnliches Gemisch mit hohem Energiegehalt gewonnen wird. Die daraus resultierenden GF variieren je nach angewendetem Verfahren von unbrauchbarem, zu deponierendem Sondermüll bis hin zu hochwertigen rGF mit nur leicht beeinträchtigten mechanischen Eigenschaften im Vergleich zur ursprünglichen GF.

Um die mechanischen Eigenschaften der GF möglichst wenig zu beeinträchtigen, ist es wichtig, die thermische Belastung und damit die Verbrennungstemperatur und -dauer zu minimieren. Katalysatoren wie CuO, Ce_2O oder Co_3O_4 können die thermische Zersetzung der Polymermatrix beschleunigen und damit neben der verbesserten Faserqualität Energieeinsparungen um bis zu 40 % bewirken [22]. Eine Angabe, bis zu welchen Pyrolysetemperaturen die Faserfestigkeit vollständig erhalten bleibt, ist aus der Literatur nicht ableitbar. Die Temperatur ist nur einer der Einflussfaktoren. Insbesondere die Pyrolyseatmosphäre, der Druck und besonders die Variationsbreite bei den Faserzusammensetzungen der GF – auch innerhalb einer Glasart – haben einen erheblichen Einfluss auf die resultierende Qualität der rGF.

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

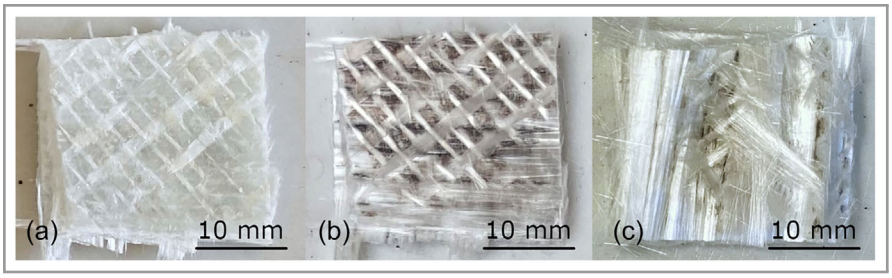

Abbildung 3. Thermische Zersetzung von GFK: (a) unbehandelt und (b) nach thermischer Zersetzung bei 350 °C mit Rußablagerungen bzw. bei (c) 360 °C ohne Rußablagerungen (Fotos: Y. Barthel, TUBAF).

In allen Fällen ist in der Regel eine vorhergehende mechanische Zerkleinerung der GFK-Abfälle nötig, um eine gleichmäßige Zersetzung der Polymermatrix zu erzielen. Diese bestimmt maßgeblich die Eigenschaften, besonders die Faserlänge, der resultierenden rGF. Während der Umsetzung wird dann jeweils eine möglichst schonende und kurze Erhitzung durchgeführt, um die GF von der Matrix zu trennen, sie jedoch in ihrer Qualität möglichst wenig zu beeinträchtigen. Im Nachgang schließt sich meist eine Fasernachbehandlung an (Abschn. 2.2.4), um Matrixreste oder gegebenenfalls entstandene Kohlenstoffablagerungen zu entfernen und die entstandenen Einbußen in den mechanischen Eigenschaften der GF bestmöglich auszugleichen. In Abb. 3 ist eine Probe von duroplastischem GFK nach thermischer Behandlung unter Luft bei zwei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Bei 350 °C sind Kohlenstoffablagerungen deutlich zu erkennen. Bei 360 °C sind die Fasern deutlich weniger belastet.

2.2.1 Verbrennung

Die Verbrennung der GFK-Abfälle ist die einfachste Form des thermischen Recyclings. Dabei wird der Polymeranteil zerkleinerter GFK-Stücke verbrannt und die dabei freiwerdende Energie zur Wärme- oder Stromerzeugung genutzt. Die freigesetzte Energiemenge hängt von der Höhe des Polymeranteils im GFK sowie von der jeweiligen Art des Polymers ab. Da die mechanische Vorzerkleinerung sehr energieintensiv bei einem geringen Wirkungsgrad ist (z.B. 83 kJ kg^{-1} GFK bei < 16 % Wirkungsgrad [23]), muss bei der Bewertung der (Energie-) Effizienz von thermischem Recycling diese mit einbezogen werden. Aus der einfachen Verbrennung ist eine Rückgewinnung von bis zu 80 % der GF möglich [24, 25] (Abb. 3). Da es sich um eine Zersetzung bei weitgehend ungesteuerten und sehr hohen Temperaturen handelt, besitzen die gewonnenen GF-Anteile, meist sehr minderwertige mechanische Eigenschaften, d.h. stark reduzierte Festigkeit [24, 25] und kurze Faserlängen, und sind mit anderen Aschebestandteilen vermischt. Es schließt sich daher oft keine weitere Verwendung an. Die Verbrennungsrückstände werden meist deponiert.

Eine Möglichkeit der kombinierten Nutzung aus freiwerdender Verbrennungsenergie und Verwendung der GF zur Materialverstärkung ist die Mitverarbeitung in der Zementindustrie. Vorzerkleinerter GFK-Abfall kann als Roh- und Brennstoffersatz bei der Zementherstellung zugefügt werden. Die bei der Verbrennung der Kunststoffmatrix freigesetzte Energie reduziert den Primärenergieverbrauch, der GF-Anteil verringert die benötigte Menge an mineralischem Rohmaterial. Je nach Art der Fasern und der Vorzerkleinerung können damit die Zementeigenschaften gezielt beeinflusst [26] und der Herstellungsprozess nachhaltiger gestaltet werden [27, 28]. Die Zement-Co-Prozessierung ist nachhaltiger als Deponierung oder einfaches Verbrennen. Darüber hinaus können die GF einen stabilisierenden Einfluss auf die mechanische Festigkeit des Zementes ausüben, die Rissbildung verzögern und über die Reduktion der Wasseraufnahmekapazität die Haltbarkeit verbessern [26].

Die Probleme bei der Verbrennung faserhaltiger Abfälle sind die hohe Korrosion der Feuerfestauskleidung durch das Glas sowie die Gefahr, die von umherwirbelnden kleinsten Fasern ausgeht. Unter anderem deshalb erfolgt stets eine Abluftnachbehandlung mindestens durch Filter. Diese Filter werden durch die faserhaltigen Stäube jedoch schnell zugesetzt, sodass es in faserverarbeitenden Verbrennungsanlagen zusätzlicher Sicherheitsmaßnahmen und kürzerer Wartungsintervalle bedarf.

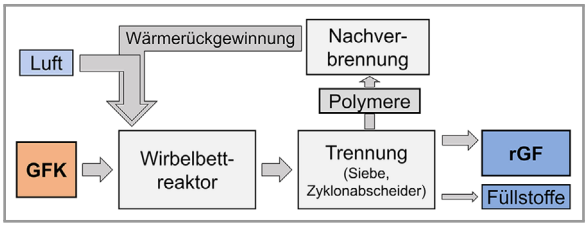

Abbildung 4. Schematischer Ablauf der thermischen GFK-Zersetzung im Wirbelbettreaktor.

2.2.2 Wirbelbettreaktoren

Eine kontrollierte Form der thermischen Verwertung von GFK-Abfällen findet in Wirbelbettreaktoren statt. Das Prozessschema ist in Abb. 4 dargestellt. Es werden die vorzerkleinerten GFK-Abfälle auf einem mit Heißluft durchströmten Sandbett bei 450–550 °C zersetzt. Mittels Sieben oder Zyklonabscheidern werden die Fasern von den übrigen Bestandteilen getrennt [29] und die brennbaren Matrixbestandteile werden in einem angeschlossenen zweiten Verbrennungsschritt thermisch verwertet. Die entstehende

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

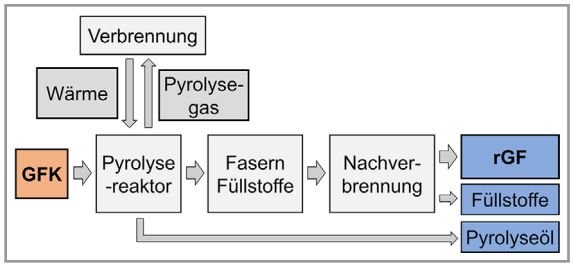

Abbildung 5. Schematischer Ablauf der thermischen GFK-Zersetzung mittels Pyrolyse.

Wärme dient der Beheizung des Wirbelbettreaktors. Die Reaktoren können kontinuierlich oder halbkontinuierlich betrieben werden. Der Einsatz von Katalysatoren (z.B. CuO [30]) kann die Zersetzungstemperatur und -zeit senken. Der Prozess lässt sich sehr genau steuern und an die jeweilige GFK-Matrix anpassen.

Aus der Zersetzung von GFK im Wirbelbettreaktor erhält man saubere, kurze, ungeordnete und flockige GF mit einem Verlust der Zugfestigkeit um 50 % verglichen mit neuen GF und einer Reinheit von bis zu 95,4 Gew.-% [31, 32].

Die Energiegewinnung aus der Zersetzung der Polymermatrix ist weniger effizient als bei einer direkten Verbrennung, aber der Gesamtprozess ist wegen der resultierenden besseren Faserqualitäten der rGF werterhaltender.

Im Wirbelbettreaktor können so bis zu 94,8 Gew.-% [32] der GF zurückgewonnen werden, wobei CuO-Katalysatoren zur Steigerung der rGF-Ausbeute beitragen können [30].

2.2.3 Pyrolyse

Die Pyrolyse ist eine spezielle Form des thermischen Recyclings, bei der die Zersetzung der Kunststoffmatrix in Abwesenheit von Sauerstoff stattfindet. Abhängig von der jeweiligen Polymermatrix läuft sie bei Temperaturen um 400–700 °C unter Sauerstoffausschluss ab [10, 33, 34]. In Abb. 5 ist das Prozessschema dargestellt. Auch die nach der Pyrolyse gewonnen rGF erleiden einen Qualitätsverlust infolge thermischer Belastung (Abb. 6; [35]).

Ein Vorteil der Pyrolyse ist, dass die Polymere der GFK-Matrix nicht vollständig zersetzt werden, sondern als Pyrolysegas und -öl gewonnen werden können [36]. Das Pyrolysegas wird meist direkt verbrannt und zur Beheizung des Reaktors genutzt. Die Pyrolyseöle ähneln in Energiegehalt und Zusammensetzung konventionellen Kraftstoffen und könnten daher als synthetische Treibstoffe verwendet oder zum energieautarken Betrieb des Pyrolysereaktors genutzt werden [37].

Außerdem ist der Qualitätsverlust der rGF weniger gravierend als bei anderen thermischen Recyclingverfahren [11, 38].

Bedingt durch die sauerstofffreie Matrixzersetzung kann es bei der Pyrolyse von GFK jedoch verstärkt zu Rußablagerungen auf der Oberfläche der rGF kommen (Abb. 6; [11]).

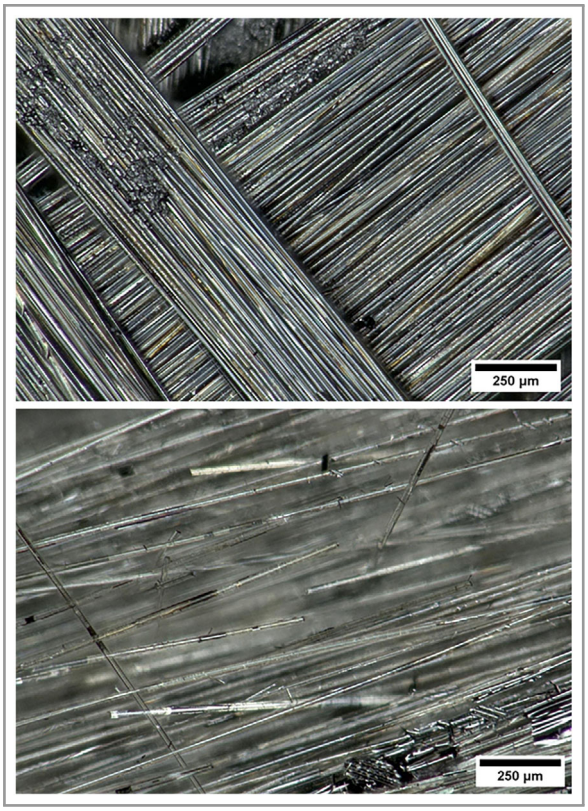

Abbildung 6. Lichtmikroskopaufnahmen von GF nach der Pyrolyse von GFK bei unterschiedlichen Pyrolysetemperaturen (oben: 500 °C; unten: 600 °C). In beiden Proben sind Rußanhaftungen erkennbar. Die bei höherer Temperatur behandelten rGF im unteren Bild weisen zusätzlich zahlreiche Brüche sowie den Verlust der Ordnung bzw. Orientierung auf.

Diese können teilweise durch einen nachgelagerten weiteren Erhitzungsschritt entfernt werden [38] oder durch eine chemische Behandlung vermieden werden [39, 40].

Eine Schlüsselstellung zur Optimierung der Pyrolysebedingungen nimmt die Art der Pyrolyseatmosphäre ein. Wurde die Zersetzung zunächst meist unter Vakuum- oder Schutzgasatmosphäre [41] durchgeführt, tritt in den letzten Jahren die Verwendung einer Heißdampfatmosphäre in den Mittelpunkt.

Eine Vakuumatmosphäre bietet den Vorteil, dass die Kontaktzeit der Zersetzungsprodukte der Polymermatrix zu den GF verkürzt ist. Dadurch kommt es zu einer geringen Beeinträchtigung der Faseroberflächen [42]. Auch unter Stickstoffatmosphäre wurden mit entsprechender Fasernachbehandlung sehr gute Faserqualitäten erzielt [43]. Unter Heißdampfatmosphäre wird die thermische Zersetzung durch die verbesserte Wärmeübertragung intensiviert, was die Reaktionszeit verkürzt und den Erhalt der mechanischen Eigenschaften begünstigt [44].

Ein anderer Ansatz zum energieeffizienteren Einsatz der Pyrolyse und der leichteren Einbindung erneuerbarer Energien ist die Nutzung von Mikrowellen als

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

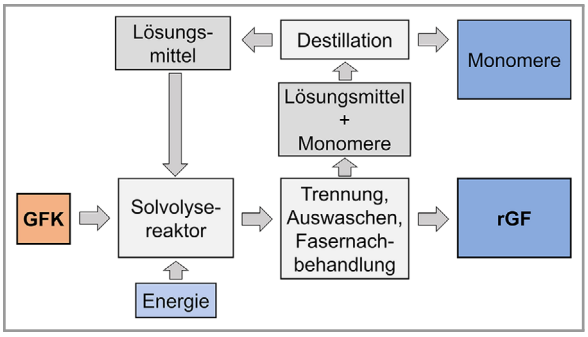

Abbildung 7. Schematischer Ablauf der chemischen GFK-Zersetzung mittels Solvolyse.

Erwärmungstechnologie, wobei auch hier die verbesserte Wärmeübertragungsrate zum Erhalt der guten mechanischen Eigenschaften der Fasern beiträgt [33]. Bei Mikrowellenpyrolyse unter Stickstoffatmosphäre konnten GF mit 75 % ihrer ursprünglichen Zugfestigkeit zurückgewonnen werden [45].

2.2.4 Fasernachbehandlung bei thermischem Recycling

Während des thermischen Recyclings kommt es zu einer meist drastischen Reduzierung der mechanischen Belastbarkeit der GF aufgrund thermischer Belastung [24], Entfernung der Schlichte [46], Rußablagerungen oder anhaftenden Kunststoffresten. Eine Fasernachbehandlung kann diese Auswirkungen deutlich verringern. Dabei wird auf die Reinigung der Faseroberfläche, das Wegätzen beschädigter Oberflächenschichten oder auf die nachträgliche Härtung der GF, zum Teil in Kombination mit einem neuen Schlichteauftrag [47] gesetzt. So wurde nach 30-minütiger Behandlung von GF bei 450–600 °C ein Verlust der Zugfestigkeit von 70–80 % beobachtet. Der Verlust erhöhte sich dabei mit steigender Temperatur. Ein Anätzen der Faseroberfläche mit 1%iger wässriger Flusssäure für 2,5 Minuten kombiniert mit anschließender Silanisierung konnte diesen Verlust um bis zu 70 % ausgleichen [24]. Dabei brachten sowohl das Ätzen als auch die Silanisierung jeweils einzeln bereits eine Verbesserung. Die Kombination beider Nachbehandlungen erwies sich als am vorteilhaftesten [24].

Eine ähnliche Steigerung der Faserstabilität von rGF konnten mittels 3 M NaOH-Lösung (3 Minuten, 90 °C) und anschließender Neutralisation erzielt werden [48].

2.3 Chemisches Recycling

Neben den Varianten, GF mechanisch oder durch Verbrennen der Kunststoffmatrix aus dem GFK-Materialverbund herauszulösen, ist dies auch chemisch, mittels Solvolyse, möglich. In Abb. 7 ist das entsprechende Prozessschema dargestellt. Die Polymermatrix vorzerkleinerter GFK-Stücke wird mithilfe eines geeigneten Lösungsmittels vollständig aufgelöst und die GF dadurch auf schonende Weise freigelegt. Die erhaltenen rGF weisen eine sehr gute Faserqualität auf. Besonderes Augenmerk liegt bei diesem Prozess auf der Auswahl der Lösungsmittel und Reaktionsbedingungen, die passend zum jeweiligen Polymer ausgewählt werden müssen. Dadurch kann eine Rückgewinnung der Polymerbausteine, eine Kreislaufführung des Lösungsmittels und ein möglichst geringer Energiebedarf des Gesamtprozesses erreicht werden, wobei der Energieverbrauch der notwendigerweise vorgelagerten GFK-Zerkleinerung nicht vernachlässigbar, aber vergleichbar mit der Vorzerkleinerung für thermische Recyclingverfahren ist [23]. Alternativ oder ergänzend zur mechanischen Vorzerkleinerung ist eine chemische Vorbehandlung möglich, mit der die GFK-Oberfläche vor der eigentlichen Solvolyse erweicht und vergrößert wird [49].

Die Bedingungen zum Recycling von GFK können sich, abhängig vom angestrebten Ergebnis, deutlich in Lösungsmittelwahl, Reaktionsdauer und Reaktionszeit unterscheiden. Ist eine schnelle Freisetzung der GF gewünscht, können starke Säuren verwendet werden (Abschn. 2.3.1). Ist das Ziel eine nachhaltige Verwertung sowohl hochwertiger GF als auch des Polymeranteils, wird die Wahl auf mildere Lösungsmittel bei Temperaturen bis 100 °C und längerer Reaktionsdauer fallen (Abschn. 2.3.2). Besonders interessant ist die Solvolyse bei über- oder unterkritischen Bedingungen (Abschn. 2.3.3). Dadurch sind der Einsatz geringerer Mengen unbedenklicher Lösungsmittel bei kürzeren Reaktionszeiten und die Rückgewinnung wiederverwendbarer Polymerbausteine möglich.

Ein weiterer Ansatz zur Optimierung der Solvolyse von GFK-Abfällen ist der effiziente und schnelle Energieeintrag durch Mikrowellenerwärmung. Durch direkte Erwärmung einer ionischen Flüssigkeit lässt sich eine sehr rasche Umsetzung damit umgebener GFK-Teile erzielen [50].

2.3.1 Solvolyse mit starken Säuren

Erste Versuche der Solvolyse wurden meist mit starken Säuren durchgeführt. Konzentrierte Salpetersäure stellte sich dabei als sehr geeignetes Lösungsmittel mit nahezu vollständiger Zersetzung (99 %) der Polymermatrix heraus [51]. Die Ergebnisse und die gewonnen Faserqualitäten der rGF waren mit einer nur 4–15%igen Verringerung der Zugfestigkeit, verglichen mit unbehandelter GF, sehr gut. Aufgrund möglicher Korrosion der Faseroberfläche und der Umweltgefährlichkeit wird die Verwendung derartiger Lösungsmittel jedoch zunehmend reduziert.

Außerdem besitzt konzentrierte Salpetersäure ein großes Oxidationspotenzial, was gelöste Polymerbestandteile für eine weitere Verwendung unbrauchbar macht. Auch die Rückgewinnung der Säure zur erneuten Nutzung ist kaum möglich und der Prozess damit sehr kostenintensiv und wenig nachhaltig. Für die Solvolyse finden daher

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

inzwischen vor allem mildere, umweltverträgliche Lösungsmittel Einsatz, die eine leichtere Kreislaufführung und eine Rückgewinnung der Polymerbausteine ermöglichen.

2.3.2 Milde Solvolyse

Bei Temperaturen bis 100 °C kann die Kunststoffmatrix beispielsweise mit milden Lösungsmitteln wie *N,N*-Dimethylformamid (DMF) [52], 1%iger Natronlauge [53] oder Polyethylenglycol [54] gelöst werden. Um eine vollständige Beseitigung der Matrix bei diesen Bedingungen zu erzielen, ist meist eine gute Durchmischung während der Reaktion, z.B. durch den Einsatz eines Ultraschallbades [52], und eventuell die Verwendung von Katalysatoren [53] notwendig. Die gewonnenen rGF besitzen gute mechanische Eigenschaften [52] und die eingesetzten Lösungsmittel lassen sich beispielsweise durch Abdestillieren leicht von den Polymerabbauprodukten trennen. Die Polymerabbauprodukte können als Ausgangsstoffe für eine erneute Polymerisierung zur Kunststoff- (oder GFK-)Herstellung verwendet werden.

2.3.3 Solvolyse unter kritischen Bedingungen

Mit dem Erreichen der kritischen Temperatur und des kritischen Drucks können Flüssigkeiten sehr gut in lösliche Feststoffe eindiffundieren und besitzen veränderte chemische Eigenschaften. Dies hat auch für die Solvolyse von GFK-Abfällen Vorteile, da geringere Mengen einfacher, kostengünstiger Lösungsmittel benötigt werden und durch Zersetzung größerer GFK-Stücke längere Fasern gewonnen werden können. Lösungsmittel und -bedingungen sind auch hier polymerabhängig [55, 56]. Generell haben sich Wasser, verschiedene Alkohole (besonders 1-Propanol und 1-Butanol) und Aceton für die überkritische Polymerzersetzung als besonders geeignet herausgestellt. So konnten durch Aceton bei 260 °C und 60 bar 95–99 % der Polymermatrix entfernt und rGF mit 89 % der Zugfestigkeit frischer GF gewonnen werden [57].

Dabei spielen besonders die Temperatur und Reaktionsdauer eine wichtige Rolle. Je höher die gewählte Solvolysetemperatur und je länger die Reaktionsdauer, desto effektiver ist die Depolymerisation, die negativen Auswirkungen auf die mechanischen Eigenschaften der rGF sind jedoch umso größer [58]. Das Zusetzen eines Katalysators (z.B. K_3PO_4 [59]) oder die Erhöhung der Lösungsmittelmenge kann dabei helfen, die Solvolyseergebnisse und die mechanischen Eigenschaften der rGF zu verbessern [57].

3 Diskussion

Besonderheiten, die das GFK-Recycling grundsätzlich erschweren, sind die heterogene Materialzusammensetzung und das zeitlich und regional unregelmäßige Abfallaufkommen [60]. Ein länderübergreifendes Entsorgungs- und Recyclingnetz könnte hier helfen, unnötige Transportwege zu vermeiden, und gleichzeitig durch eine möglichst konstante Auslastung der Recyclinganlagen deren wirtschaftlichen Betrieb begünstigen [61, 62].

Darüber hinaus sind bessere Informationen zur Abfallzusammensetzung nötig, um die Prozessbedingungen passgenau auf die im Abfall enthaltenen Bestandteile einstellen zu können. Hierfür gibt es auf EU-Ebene bereits Initiativen, um Hersteller großer Geräte und Bauteile zur Offenlegung verwendeter Materialien und deren genauer Positionierung im Produkt zu verpflichten und darüber hinaus eine leichtere Trennbarkeit der einzelnen Materialien im Bauteil vorzuschreiben [63].

Wegen der großen Zusammensetzungsvielfalt von GFK ist die vergleichende Beurteilung der Forschungsergebnisse zum GFK-Recycling schwierig. Zur Identifizierung der benutzten Kunststoffe können die entsprechend dem aktuellen Stand der Technik im Kunststoffrecycling eingesetzten analytischen Methoden angewandt werden. Mit verschiedenen Infrarot (IR)-Spektrometrieverfahren (Fourier-Transformations (FT)-IR, Nah-IR (NIR)) ist z.B. eine schnelle Bestimmung ausgewählter Polymergruppen möglich. Aufwändigere Methoden wie die dynamische Differenzkalorimetrie (DSC) oder die Kernspinresonanz (NMR)-Spektroskopie ermöglichen die präzise Bestimmung fast aller Kunststoffarten. Im Materialverbund kann die Bestimmung erschwert sein. Aber auch eine erfolgreiche Identifizierung der Einzelbestandteile verbessert die Recyclingfähigkeit nur bedingt. Denn das Problem liegt neben der Kombination verschiedener Einzelbestandteile in deren stabiler Verbindung miteinander.

Oft werden die Recyclingverfahren an Teilen von Leiterplatten oder Windradflügeln erprobt. Beide enthalten meist Epoxidharze als Polymermatrix. Eine Übertragbarkeit der Ergebnisse, z.B. auf die in Rohren, Wannen oder flexiblen Leiterplatten häufig eingesetzten Polyester oder Polyvinylester, ist daher nur sehr eingeschränkt möglich. Auch innerhalb einer Polymergruppe, wie der Epoxidharze, kann es erhebliche Unterschiede bezüglich der Kettenlängen, des Vernetzungsgrades und der Reaktivität geben. Zur Art bzw. chemischen Zusammensetzung der GF werden meist keine genauen Angaben gemacht. Ein direkter Vergleich der Ergebnisse verschiedener Forschungsgruppen ist daher kaum möglich. Systematische Untersuchungen mit verschiedenen Kunststoffen bei gleichen Recyclingbedingungen oder Tests mit GFK-Gemischen unterschiedlicher Zusammensetzungen fehlen.

Xue et al. [64] bewerten die existierenden Verfahren in Hinblick auf die Vermeidung von Abfällen zur Verbesserung des Abfallmanagements. Unter den bekannten Recyclingverfahren ist bisher keines so weit entwickelt, dass die derzeit anfallenden GFK-Abfallmengen einer werterhaltenden Wiederverwertung zugeführt werden könnten [12]. Die mechanische Verwertung, die Verbrennung und die Mitverarbeitung in der Zementindustrie werden im industriellen Maßstab eingesetzt [65]. In allen Fällen erfolgt lediglich

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

eine minderwertige Nutzung der GFK-Bestandteile. Auch langfristig wird diese Art der GFK-Verwertung Anwendung finden, sinnvollerweise jedoch für bereits mehrfach genutzten GFK, dessen gealterte Kunststoffmatrix oder GF nur noch eine ungenügende mechanische Stabilität aufweisen, sowie für sehr inhomogene GFK-Abfälle, die keine höherwertige Verwertung erlauben. Diese qualitative Einschätzung wird von Deeney et al. [66] in einer quantitativen Studie am Beispiel von Rotorblättern aus Windkraftanlagen untersetzt.

Bei thermischer Verwertung tritt stets ein Energieverlust auf. Der theoretische Energieinhalt der Polymermatrix kann nie vollständig zurückgewonnen werden. Das liegt vorrangig am nötigen Energieeintrag zur Materialzerkleinerung und zur Erzeugung der Zersetzungstemperaturen, der Wärmekapazität der GF-Anteile sowie dem Wirkungsgrad der Anlage. Polymethylmethacrylat (PMMA) beispielsweise besitzt einen theoretischen Energiegehalt um 200 MJ kg^{-1} [67]. Bei der Verbrennung werden jedoch nur ca. 25 MJ kg^{-1} zurückgewonnen [68]. Auch in Pyrolyseölen ist stets nur ein Teil der chemischen Energie der ursprünglichen Polymere enthalten (15–20 MJ kg^{-1} [69]). Damit ist der Gesamtprozess energetisch betrachtet ungünstiger als die direkte Verbrennung. Näher an einem nachhaltigen Materialkreislauf ist der Versuch, die Polymere wieder in ihre Monomere aufzuspalten, um sie erneut zur Polymerisierung nutzen zu können [70, 71].

Bei allen Verfahren lassen sich komplexe GFK-Bauteile praktisch nicht recyceln, ohne die Faserlängen zu reduzieren und deren Anordnung zu verändern. Die Bauteile werden zerkleinert, um einen einfachen Transport zu ermöglichen oder eine gleichmäßige Zersetzung der Polymermatrix beim jeweiligen Recyclingprozess sicherzustellen. Sollte die Abtrennung der Polymermatrix im Prozess vollständig gelingen, ist die mechanische Belastbarkeit der rGF meist drastisch reduziert. Fasernachbehandlungen werden notwendig. Spätestens bei dieser Nachbehandlung werden die Fasern im Faserverbund bewegt und können leicht brechen. rGF sind daher derzeit meist kurze ungeordnete Fasern und kommen, wenn, dann nur für minderwertige Anwendungen zum Einsatz.

Die hochwertigsten GF als Recyclingprodukte liefern GFK-Solvolyse und -Pyrolyse. Durch geringe thermische und mechanische Belastung und die Möglichkeit einer Nachbehandlung können entsprechend längere Fasern zurückgewonnen werden. Die mechanischen Eigenschaften sind jedoch signifikant verschlechtert im Vergleich zu frischen Fasern. Eine vollständig werterhaltende Weiternutzung ist daher in den meisten Fällen unrealistisch. Bereits möglich wäre die Wiederverwertung als GFK-Teile aus Matten mit zufällig angeordneten kurzen rGF-Stücken (chopped strand mats). Derartige Matten finden beispielsweise im Fahrzeugbau vielfach Verwendung und ein eventueller Qualitätsverlust durch die Verwendung von rGF ließe sich durch Beimischung geringer Mengen neuer GF kompensieren. Es bestehen jedoch oft Vorbehalte gegenüber der Langlebigkeit oder Befürchtungen von ungenügender oder schwankender Materialqualität der rGF, die die Verwendung verhindern. Es fehlen systematische Untersuchungen, wie sich der Einsatz von rGF in Kombination mit frischen GF auf die Eigenschaften und die Nachhaltigkeit damit produzierter neuer GFK-Bauteile auswirkt.

Beachtung sollte beim Vergleich der Faserqualitäten von rGF auch dem Thema Schlichte zukommen. Diese hat eine Schutzfunktion für die GF und beeinflusst die Stabilität der Verbindung der Faser-Polymer-Grenzfläche entscheidend. Nur selten wird bei der Beurteilung der rGF-Qualität darauf eingegangen. Dabei wird, abgesehen vom mechanischen Recycling, bei allen übrigen Recyclingverfahren auch die Schlichte nahezu vollständig von den GF entfernt [46]. Ein nachträglicher Schlichteauftrag kann die Qualität der rGF erheblich verbessern [47].

Ganzheitlich, d.h. energetisch und den Materialkreislauf einbeziehend, betrachtet sind Pyrolyse und Solvolyse in Kombination mit dem Einsatz erneuerbarer Energien von den derzeit verfügbaren Recyclingmethoden am nachhaltigsten und gut für die Wiederverwendung sowohl der Kunststoffbestandteile als auch der rGF geeignet. Wirtschaftlich betrachtet sind diese Verfahren mit dem derzeitigen Stand der Technik und den Energiekosten aktuell nicht konkurrenzfähig zu GFK aus frisch produzierten GF und Polymer. Die aus der einfachen Verbrennung resultierenden minderwertigen Faserrückstände machen einen massenhaften Ausbau wenig attraktiv. Auch die Nutzung von rGF als Füllstoff ist durch die beim Recycling entstehenden Kosten oft teurer als der Einsatz von gängigen Füllstoffen wie Calciumcarbonat oder Silica [18]. Der Einsatz von rGF in Zement ist durch den begrenzten Bedarf an Spezialzement limitiert. Für die mit deutlich höheren Produktionskosten verbundenen CF sind Pyrolyse und Solvolyse der CFK-Abfälle bereits jetzt wirtschaftlich interessant [11].

Technische Verbesserungen, steigende Rohstoffpreise und geänderte gesetzliche Rahmenbedingungen können einen wirtschaftlichen Einsatz auch im GFK-Recycling begünstigen. Gesetzliche Regelungen sollten dabei besonders den Aufbau eines Marktes für rGF unterstützen und die nachhaltige und möglichst langfristige Nutzbarkeit und Nutzung der Rohstoffe im Blick haben.

4 Ausblick

Aktuell finden große Mengen an GFK-Materialien in langlebigen Anwendungen Verwendung. In den kommenden Jahrzehnten sind die anfallenden Abfallmengen entsprechend groß einzuschätzen. Der Stand der Technik der Recyclingverfahren kann wirtschaftlich nicht mit der Herstellung von GFK aus frischen Bestandteilen mithalten. Das liegt vor allem am Energie- und Kostenaufwand, aber auch an den vor allem im Maß und den mechanischen Eigenschaften beeinträchtigten rGF. Die existierenden Recyclingverfahren müssen also optimiert und weiterentwickelt

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

werden. Alternativ ist die Anwendung des Prinzips „Design for Recycling“, um die Gestaltung von GFK-Materialien neu zu denken. Dabei wird schon bei der Auswahl der Materialien und der Compoundierung an das spätere Recycling gedacht. Eine einfache Möglichkeit ist die Verwendung einer thermoplastischen Polymermatrix. Sind Kunststoff und GF im zu recycelnden Werkstück intakt, lassen sich thermoplastische GFK (nach eventueller mechanischer Vorzerkleinerung) durch Erwärmen zu einem neuen Werkstück umformen. Die Neugestaltung von GFK mit einem Design for Recycling zielen auf die einfache Trennung von GF und Matrix ab, indem z.B. biologisch abbaubare Gläser oder Polymere [72, 73] benutzt werden.

Bis es zu einem sinnvollen Recyclingszenario kommt, können Ideen zur Wiederverwendung großer, noch intakter GFK-Teile als Baumaterialien oder Einrichtungsgegenstände sinnvoll sein [59, 74, 75].

Danksagung

Die Autoren danken der Technischen Universität Bergakademie Freiberg, dem *Zentrum für effiziente Hochtemperatur-Stoffwandlung* der TUBAF sowie dem *Zentralen Innovationsprogramm Mittelstand* (FK: KK5286402) für die Unterstützung und Finanzierung.

Open access Veröffentlichung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.

Magdalena Milek erhielt ihr Diplom in Chemie 2009 an der TU Dresden. In den folgenden Jahren forschte sie im Bereich der Komplexchemie an der FAU Erlangen-Nürnberg. Seit 2021 beschäftigt sie sich am Institut für Glas und Glastechnologie der TU Bergakademie Freiberg mit dem Bereich GFK-Recycling.

Dr.-Ing. Sindy Fuhrmann ist seit 2020 Juniorprofessorin für Energie- und Rohstoffeffiziente Glastechnologie an der TU Bergakademie Freiberg. Als diplomierte Mineralogin promovierte sie 2013 im Bereich Glas an der FAU Erlangen-Nürnberg und forschte danach am Otto-Schott-Institut für Materialforschung der FSU Jena. Ihre aktuellen Forschungsinteressen liegen im Bereich der nachhaltigen und Ressourcen schonenden Glasherstellung und -verwendung, im intelligenten Materialdesign aus gezielt eingestellten Chemie-Struktur-Eigenschaft-Prozesskorrelationen und in der additiven Fertigung von Glas.

Abkürzungen

CF	Carbonfaser(n)
CFK	Carbonfaser-verstärkter Kunststoff
FK	faserverstärkter Kunststoff
GF	Glasfaser(n)
GFK	Glasfaser-verstärkter Kunststoff
HVF	Hochspannungsfragmentierung (high-voltage fragmentation)
NFK	Naturfaser-verstärkter Kunststoff
rCF	recycelte Carbonfaser(n)
rGF	recycelte Glasfaser(n)

Literatur

[1] E. Witten, V. Mathes, *The European Market for Fibre Reinforced Plastics/Composites in 2021*, AVK **2022**, p. 8, www.avk-tv.de.
[2] S. K. Gopalraj, I. Deviatkin, M. Horttanainen, T. Kärki, *Polymers* **2021**, *13* (*24*), 4430. DOI: https://doi.org/10.3390/polym13244430
[3] R. Volk, C. Stallkamp, M. Herbst, F. Schultmann, *Resour., Conserv. Recycl.* **2021**, *172* (*C*), 105667. DOI: https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2021.105667
[4] K. Larsen, *J. Reinf. Plast.* **2009**, *53* (*1*), 20–23, 25. DOI: https://doi.org/10.1016/S0034-3617(09)70043-8
[5] S. Job, G. Leeke, P. T. Mativenga, G. Oliveux, S. Pickering, N. A. Shuaib, *Composites Recycling – Where are we now?* Composites UK Ltd., Berkhamsted **2016**.
[6] G. Oliveux, L. O. Dandy, G. A. Leeke, *Polym. Degrad. Stab.* **2015**, *118*, 96–103. DOI: https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2015.04.016
[7] https://windeurope.org/newsroom/press-releases/wind-industry-calls-for-europe-wide-ban-on-landfilling-turbine-blades (abgerufen am 13. September 2023).
[8] E. Witten, V. Mathes, *The European Market for Fibre Reinforced Plastics/Composites in 2021*, AVK **2022**, p. 6, www.avk-tv.de.
[9] E. Witten, V. Mathes, M. Sauer, M. Kühnel, *Composites Market Report 2018*, AVK & CCeV **2018**, p. 29, www.avk-tv.de.
[10] S. K. Gopalraj, T. Kärki, *SN Appl. Sci.* **2020**, *2* (*3*), 433. DOI: https://doi.org/10.1007/s42452-020-2195-4
[11] S. Pimenta, S. T. Pinho, Waste Manage. **2011**, *31* (*2*), 378–392. DOI: https://doi.org/10.1016/j.wasman.2010.09.019
[12] A. E. Krauklis, C. W. Karl, A. I. Gagani, J. K. Jørgensen, *J. Compos. Sci.* **2021**, *5* (*1*), 28. DOI: https://doi.org/10.3390/jcs5010028
[13] J. Qureshi, *Sustainability* **2022**, *14* (*24*), 16855. DOI: https://doi.org/10.3390/su142416855
[14] E. Witten, V. Mathes, The European Market for Fibre Reinforced Plastics/Composites in 2021, AVK 2022, p. 10, www.avk-tv.de.

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

[15] H. Li, E. Eglund, *J. Compos. Mater.* **2016**, *51* (*9*), 1265–1273. DOI: https://doi.org/10.1177/0021998316671796

[16] A. Jurić, T. Štefić, *Civ. Eng. J.* **2022**, *8* (*12*), 3902–3911. DOI: https://doi.org/10.28991/CEJ-2022-08-12-017

[17] P. Liu, F. Meng, C. Y. Barlow, *J. Cleaner Prod.* **2019**, *212* (*C*), 1268–1281. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.12.043

[18] J. S. Pickering, *Composites, Part A* **2006**, *37* (*8*), 1206–1215. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.05.030

[19] A. C. M. Castro, J. P. Calvalho, M. C. S. Ribeiro, J. P. Meixedo, F. J. G. Silva, A. Fiúza, M. L. Dinis, *J. Cleaner Prod.* **2014**, *66*, 420–430. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2013.10.030

[20] P. T. Mativenga, N. A. Shuaib, J. Howarth, F. Pestalozzi, J. Woidasky, *CIRP Ann.* **2016**, *65* (*1*), 45–48. DOI: https://doi.org/10.1016/j.cirp.2016.04.107

[21] K. Oshima, S. Matsuda, M. Hosaka, S. Satokawa, *Sep. Purif. Technol.* **2020**, *231*, 115885. DOI: https://doi.org/10.1016/j.seppur.2019.115885

[22] K. Pender, L. Yang, *Composites, Part A* **2017**, *100*, 285–293. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.05.016

[23] S. Cheng, K. H. Wong, C. P. Shen, X. L. Liu, C. Rudd, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2021**, *1765* (*1*), 012015. DOI: https://doi.org/10.1088/1742-6596/1765/1/012015

[24] L. Yang, E. R. Sáez, U. Nagel, J. L. Thomason, *Composites, Part A* **2015**, *72*, 167–174. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.01.030

[25] U. Nagel, L. Yang, C. C. Kao, *Polym. Compos.* **2018**, *39* (*4*), 1032–1040. DOI: https://doi.org/10.1002/pc.24029

[26] Y. Tao, S. A. Hadigheh, Y. Wei, *Structures* **2023**, *53*, 1540–1556. DOI: https://doi.org/10.1016/j.istruc.2023.05.018

[27] F. N. A. A. Aziz, A. R. Tan, N. B. Bakar, N. A. M. Nasir, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2023**, *2521* (*1*), 012015. DOI: https://doi.org/10.1088/1742-6596/2521/1/012015

[28] X. M. You, L. B. Lin, B. Fu, Y. Xiang, *CSCM* **2023**, *18* (*C*), e02120. DOI: https://doi.org/10.1016/j.cscm.2023.e02120

[29] J. R. Kennerley, R. M. Kelly, N. J. Fenwick, S. J. Pickering, C. D. Rudd, *Composites, Part A* **1998**, *29* (*7*), 839–845. DOI: https://doi.org/10.1016/S1359-835X(98)00008-6

[30] K. Pender, L. Yang, *Polym. Compos.* **2019**, *40* (*9*), 3510–3519. DOI: https://doi.org/10.1002/pc.25213

[31] S. J. Pickering, R. M. Kelly, J. R. Kennerley, C. D. Rudd, N. J. Fenwick, *Compos. Sci. Technol.* **2000**, *60* (*4*), 509–523. DOI: https://doi.org/10.1016/S0266-3538(99)00154-2

[32] Y. Zheng, Y. Shen, S. Ma, C. Cai, X. Zhao, Y. Xing, *J. Hazard. Mater.* **2009**, *170* (*2/3*), 978–982. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.05.065

[33] G. Oliveux, L. O. Dandy, G. A. Leeke, *Prog. Mater. Sci.* **2015**, *72*, 61–99. DOI: https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2015.01.004

[34] D. S. Cousins, Y. Suzuki, R. E. Murray, J. R. Samaniuk, *J. Cleaner Prod.* **2019**, *209*, 1252–1263. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.10.286

[35] L. Giorgini, C. Leonardi, L. Mazzocchetti, G. Zattini, M. Cavazzoni, I. Montanari, C. Tosi, T. Benelli, *FME Trans.* **2016**, *44* (*4*), 405–414. DOI: https://doi.org/10.5937/fmet1604405G

[36] S. Yousef, J. Eimontas, N. Striūgas, M. Praspaliauskas, M. A. Abdelnaby, *J. Therm. Anal. Calorim.* **2023**, *148* (*3*), 897–912. DOI: https://doi.org/10.1007/s10973-022-11776-9

[37] A. Torres, I. de Marco, B. M. Caballero, M. F. Laresgoiti, J. A. Legarreta, M. A. González, M. J. Chomón, K. Gondra, *Fuel* **2000**, *79* (*8*), 897–902. DOI: https://doi.org/10.1016/S0016-2361(99)00220-3

[38] E. Asmatulu, J. Twomey, M. Overcash, *J. Compos. Mater.* **2014**, *48* (*5*), 593–608. DOI: https://doi.org/10.1177/002199831347632

[39] Y. Shen, *Waste Manage.* **2018**, *76*, 537–543. DOI: https://doi.org/10.1016/j.wasman.2018.02.036

[40] J. Shi, L. Bao, R. Kobayashi, J. Kato, K. Kemmochi, *Compos. Sci. Technol.* **2012**, *72* (*11*), 1298–1303. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2012.05.003

[41] M. Miyazawa, T. Wajima, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2021**, *1777* (*1*), 012018. DOI: https://doi.org/10.1088/1742-6596/1777/1/012018

[42] Y. Zhou, W. Wu, K. Qiu, *Waste Manage.* **2010**, *30* (*11*), 2299–2304. DOI: https://doi.org/10.1016/j.wasman.2010.06.012

[43] J. A. Onwudili, N. Miskolczi, T. Nagy, G. Lipóczi, Composites, Part B **2016**, *91*, 154–161. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.01.055

[44] J. Shi, L. Bao, *Jpn. J. Appl. Phys.* **2011**, *50*, 01AJ01. DOI: https://doi.org/10.1143/JJAP.50.01AJ01

[45] D. Åkesson, R. Krishnamoorthi, Z. Foltynowicz, J. Christéen, A. Kalantar, M. Skrifvars, *Polym. Polym. Compos.* **2013**, *21* (*6*), 333–340. DOI: https://doi.org/10.1177/096739111302100601

[46] L. Yang, J. L. Thomason, *Mater. Sci.* **2013**, *48* (*17*), 5768–5775. DOI: https://doi.org/10.1007/s10853-013-7369-7

[47] K. Gkaliou, A. E. Daugaard, *J. Appl. Polym. Sci.* **2023**, *140* (*5*), e53388. DOI: https://doi.org/10.1002/app.53388

[48] J. L. Thomason, U. Nagel, L. Yang, E. Sáez, *Composites, Part A* **2016**, *87*, 220–227. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.05.003

[49] J. Li, P.-L. Xu, Y.-K. Zhu, J.-P. Ding, L.-X. Xue, Y.-Z. Wang, *Green Chem.* **2012**, *14* (*12*), 3260–3263. DOI: https://doi.org/10.1039/C2GC36294E

[50] A. Kamimura, S. Yamamoto, K. Yamada, *ChemSusChem* **2011**, *4* (*5*), 644–649. DOI: https://doi.org/10.1002/cssc.201000430

[51] L. Yuyan, M. Linghui, H. Yudong, L. Lixun, *J. Reinf. Plast. Compos.* **2006**, *25* (*14*), 1525–1533. DOI: https://doi.org/10.1177/0731684406066748

[52] S. Yousef, M. Tatariants, M. Tichonovas, R. Bendikiene, G. Denafas, *J. Cleaner Prod.* **2018**, *187*, 780–788. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.03.227

[53] X. Gao, Q. Li, J. Qiu, *Waste Manage.* **2018**, *74*, 427–434. DOI: https://doi.org/10.1016/j.wasman.2018.01.004

[54] S.-R. Shin, V. D. Mai, D.-S. Lee, *Processes* **2019**, *7* (*1*), 22. DOI: https://doi.org/10.3390/pr7010022

[55] G. Oliveux, J.-L. Bailleul, E. Le Gal La Salle, N. Lefèvre, G. Biotteau, *Polym. Degrad. Stab.* **2013**, *98* (*3*), 785–800. DOI: https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2012.12.010

[56] A. E. Protsenko, V. V. Petrov, *J. Mech. Compos. Mater.* **2022**, *58* (*4*), 537–544. DOI: https://doi.org/10.1007/s11029-022-10048-9

[57] H. U. Sokoli, J. Beauson, M. E. Simonsen, A. Fraisse, P. Brøndsted, E. G. Søgaard, *J. Supercrit. Fluids* **2017**, *124*, 80–89. DOI: https://doi.org/10.1016/j.supflu.2017.01.013

[58] G. Oliveux, E. Le Gal La Salle, J.-L. Bailleul, *Composites, Part A* **2012**, *43*, 1809–1818. DOI: https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.06.008

[59] T. Iwaya, S. Tokuno, M. Sasaki, M. Goto, K. Shibata, *J. Mater. Sci.* **2008**, *43* (*7*), 2452–2456. DOI: https://doi.org/10.1007/s10853-007-2017-8

[60] R. Hanes, T. Ghosh, A. Key, A. Eberle, *Front. Sustain.* **2021**, *2*, 123421. DOI: https://doi.org/10.3389/frsus.2021.671979

[61] R. M. Gonçalves, A. Martinho, J. P. Oliveira, *Materials* **2022**, *15* (*4*), 1596. DOI: https://doi.org/10.3390/ma15041596

[62] V. Sommer, G. Walther, *Waste Manage.* **2021**, *121* (*C*), 265–275. DOI: https://doi.org/10.1016/j.wasman.2020.12.021

[63] *COM(2022) 140 final*, EU Commission, Brussels **2022**.

[64] X. Xue, S.-Y. Liu, Z.-Y. Zhang, Q.-Z. Wang, C.-Z. Xiao, *J. Reinf. Plast. Compos.* **2022**, *41* (*11/12*), 459–480. DOI: https://doi.org/10.1177/07316844211055208

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH

[65] J. Rybicka, A. Tiwari, G. A. Leeke, *J. Cleaner Prod.* **2016**, *112* (*1*), 1001–1012. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2015.08.104
[66] P. Deeney, A. J. Nagle, F. Gough, H. Lemmertz, E. L. Delaney, J. M. McKinley, C. Graham, P. G. Leahy, N. P. Dunphy, G. Mullally, *Resour., Conserv. Recycl.* **2021**, *171* (*C*), 105642. DOI: https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2021.105642
[67] J. Howarth, S. S. R. Mareddy, P. T. Mativenga, *J. Cleaner Prod.* **2014**, *81*, 46–50. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2014.06.023
[68] R. N. Walters, S. M. Hackett, R. E. Lyon, *Fire Mater*. **2000**, *24* (*5*), 245–252. DOI: https://doi.org/10.1002/1099-1018(200009/10)24:5⟨245::AID-FAM744⟩3.0.CO;2-7
[69] A. V. Bridgwater, *Biomass Bioenergy* **2012**, *38*, 68–94. DOI: https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2011.01.048
[70] A. Lechleitner, D. Schwabl, T. Schubert, M. Bauer, M. Lehner, *Österr. Wasser- und Abfallw.* **2020**, *72*, 47–60. DOI: https://doi.org/10.1007/s00506-019-00628-w
[71] A. Maisels, A. Hiller, F.-G. Simon, *Chem. Ing. Tech.* **2021**, *93* (*11*), 1742–1750. DOI: https://doi.org/10.1002/cite.202100115
[72] M. Y. Khalid, Z. U. Arif, W. Ahmed, H. Arshad, *Sustainable Mater. Technol.* **2022**, *31*, e00382. DOI: https://doi.org/10.1016/j.susmat.2021.e00382
[73] J. Grottendieck, C. Elschner, R. Leifheit, T. Heinecke, A. Spickenheuer, S. Bruk, M. Dafir, *Bioinspirierter Leichtbau mit einstellbar degradierbaren Faser-Kunststoff-Verbunden (bioLEIV)*, Abschlussbericht im Rahmen des BMBF-Ideenwettbewerbes „Biologisierung der Technik“: Laufzeit des Vorhabens und Berichtszeitraum: 01.10.2021–31.12.2022 (IPF, TU BAF, cp.max), https://www.tib.eu/de/suchen/id/TIBKAT%3A1852058692.
[74] A. André, J. Magdalena, M. Cecilia, N. Georgi, R. Haghani, *Lecture Notes Civ. Eng.* **2022**, *189*, 1183–1195. DOI: https://doi.org/10.1007/978-3-030-88166-5_103
[75] A. J. Nagle, G. Mullally, P. G. Leahy, N. P. Dunphy, *J. Environ. Manage.* **2022**, *302*, 113994. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2021.113994

 © 2024 The Authors. Chemie Ingenieur Technik published by Wiley-VCH GmbH