

PP/EVOH 구조의 다층 플라스틱 식품 용기 재활용에 따른 생물학적 안전성 및 화학적 용출 특성 연구

하성철 · 이창용*

공주대학교 환경공학과

Investigation of Biological Safety and Chemical Leaching Properties in the Recycling of PP/EVOH Multilayer Plastic Food Containers

Sung-Chul Ha and Chang-Yong Lee*

Department of Environmental Engineering, Kongju National University, Cheonan 31080, Korea

Abstract This study investigates the increase in chemical leachates and the biological toxicity associated with repeated recycling of multilayer plastic food packaging composed of polypropylene (PP) and ethylene vinyl alcohol (EVOH). Based on the ISO 10993-5 cytotoxicity assay, a slight level of cytotoxicity was detected in the recycled samples, indicating a potential biological risk associated with the use of recycled materials. Chemical analyses using ICP, pH meter, balance, UV, UV/VIS spectrophotometer confirmed a cumulative increase in the total amount of leachates. Notably, the accumulation of heavy metals was identified in the recycled plastics, which was attributed to metal components originating from the shredding and reprocessing equipment used during recycling. SEM-EDX analysis further confirmed that the accumulated metals matched the elemental composition of the recycling equipment. These findings highlight the potential accumulation of heavy metals derived from processing machinery during the recycling of multilayer packaging and underscore the need for establishing safer and more controlled recycling systems.

Keywords PP(Polypropylene), EVOH(Ethylene Vinyl Alcohol), Food packaging, Biological, Recycle.

서 론

폴리프로필렌(polypropylene, PP)과 에틸렌비닐알코올(ethylene vinyl alcohol, EVOH)로 구성된 다층 구조는 국내에서 식품 용기, 특히 즉석밥 포장에 널리 사용되고 있다. 국내에서는 연간 약 5억 5천만 개 이상의 즉석밥 용기가 소비되며, 이로 인한 플라스틱 사용량은 약 5,000톤에 달한다. 즉석밥 용기 1개당 약 329 g의 이산화탄소(CO₂)가 배출되는 것으로 추정되며, 이는 연간 수십만 톤 규모의 CO₂ 배출로 이어진다. 이러한 환경적 영향을 완화하기 위한 다양한 시도가 이루어지고 있으나, 현재 재활용량은 연간 약 60톤 수준으로 전체 사용량의 약 1%에 불과하여, 재활용률

향상을 위한 추가적인 노력이 요구된다¹⁾.

PP/EVOH 다층 구조의 식품 포장 용기는 서로 다른 물성을 가진 재료가 적층된 복합 소재로, 사용 후 재활용이 어려운 대표적인 사례이다. 이러한 복합 구조는 기존의 단일 소재 기반 재활용 공정에 적합하지 않기 때문에, 재활용 후 식품 포장용도로의 재사용에는 한계가 있다^{1,2,3)}. 기존 연구들은 주로 기계적 물성 향상을 위한 상용화제의 적용에 집중되어 왔다^{4,5)}. 그러나 PP/EVOH 식품 용기의 반복 재활용 과정에서 발생할 수 있는 금속 성분의 용출과 이에 따른 생물학적 안전성 문제에 대한 연구는 아직 미비한 실정이다. 따라서 화학적·생물학적 측면을 포괄하는 종합적인 평가가 요구되며, 재활용 PP/EVOH 소재의 반복 열·압출 공정 중 발생 가능한 금속 용출 및 세포 수준의 독성 영향을 체계적으로 평가하여 식품 접촉재의 안전성 확보 기반을 마련하는 데 목적이 있다.

Fig. 1과 같이 PP/EVOH 식품 용기의 제조는 일반적으로 다층 시트를 압출 성형한 후, 열 성형(thermoforming)을

*Corresponding Author: Chang-Yong Lee
Department of Environmental Engineering, 1223-24 Cheonandaero,
Seobuk-gu, Cheonan, Chungnam, 31080, Korea
Tel: +82-41-521-9421
E-mail: cylee@kongju.ac.kr

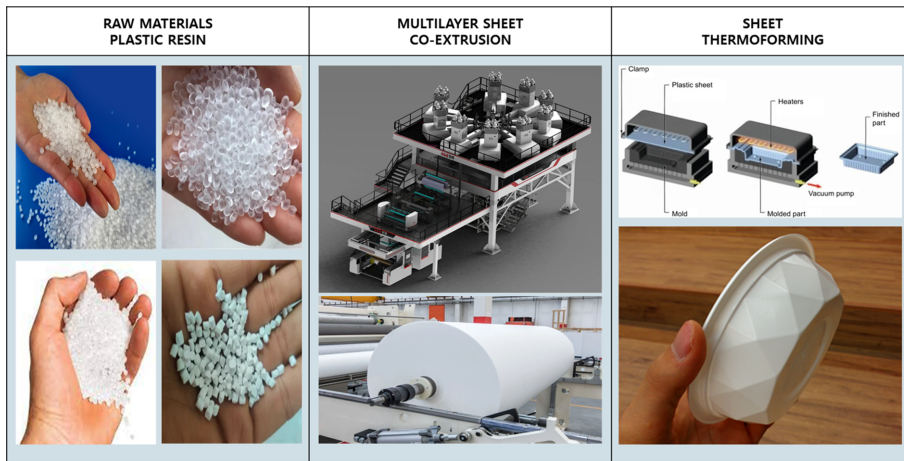


Fig. 1. Manufacturing process of food containers with PP/EVOH multilayer structure: raw material input, sheet extrusion, and container thermoforming sequence.

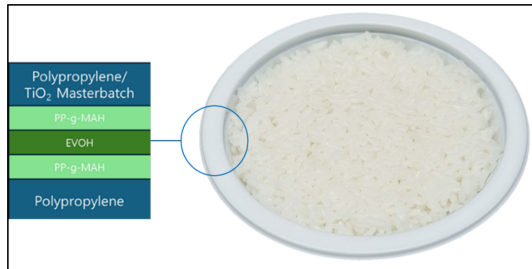


Fig. 2. The material composition of aseptic rice containers includes PP, EVOH for oxygen barrier, PP-g-MAH (polypropylene grafted maleic anhydride) as a bonding layer with EVOH and PP, TiO₂(white pigment compound) for opacity.

통해 3차원 구조의 용기로 성형하는 공정을 따른다^{6,7,8}). 열성형은 시트 형태의 소재를 열과 압력을 이용하여 복잡한 형상으로 성형하는 기술로, 특히 식품 및 의료 포장 산업에서 널리 사용된다. EVOH 층은 우수한 산소 차단 특성을 제공하며, PP 층은 기계적 강도 및 내구성 확보에 기여함으로써, 두 재료의 조합은 내용물의 장기 보존성과 포장재의 구조적 안정성을 동시에 만족시킨다. Fig. 2에서와 같이, PP는 외부 보호 및 수분 차단층으로서 용기의 외부 및 내용물 접촉면에 주로 적용되며, 가볍고 내화학성이 뛰어나며 가공성이 우수하다^{9,10,11}). 반면, EVOH는 산소 차단층으로서 포장 내용물의 산화를 방지하는 역할을 수행하지만, 수분에 민감하여 고습 환경에서는 차단 성능이 저하될 수 있으므로

PP와 같은 수분 차단 소재로 보호가 필수적이다^{12,13,14}).

또한, PP와 EVOH 간의 낮은 상용성을 극복하기 위해 말레인산 무수물로 개질된 PP-g-MAH(polypropylene grafted with maleic anhydride)가 접착층으로 활용되며, 이는 층간 결합력을 향상시켜 구조적 안정성을 높이는 역할을 한다. 아울러 TiO₂ (titanium dioxide)는 자외선 차단을 위한 백색 착색제로 사용되며, 식품 내용물의 변질을 방지하는 데 기여한다^{15,16,17}).

재료 및 방법

1. 시편 제조

본 연구에 사용된 시편은 Table 1에 따라, PP/EVOH로 구성된 다층 구조의 시트로 공압출하여 제조하였다. 공압출에는 Sheet Extruder(Reifenhäuser, Worms, Germany)를 사용하였으며, 공압출 온도는 240°C로 설정하였다. 최종적으로 제작된 시트의 두께는 약 900 μm로 유지되었으며, 해당 시트는 이후 용기성형기기 (FLC, Miyoshi, ASANO Japan) 이용하여 240°C 열성형 공정을 통해 식품 용기로 성형하였다.

2. 재활용 공정

PP/EVOH 다층 식품 용기의 재활용 과정은 Fig. 3에 나타난 바와 같이 다음과 같은 단계를 포함하였다. 원료 준비 (raw materials), 시트 압출(sheet extrusion), 열성형을 통한

Table 1. Composition and Thickness of Co-extruded PP/EVOH Sheet

	PP	PP-g-MAH	EVOH	PP-g-MAH	PP+TiO ₂ MB
Composition	44.4%	2.8%	5.6%	2.8%	40.4%+4.0%
Thickness of multilayer	400 μm	25 μm	50 μm	25 μm	400 μm
Temperature Co-extruder	240°C	240°C	240°C	240°C	240°C

Table 2. Summary of Cytotoxicity Test Method Based on ISO 10993-5:2009

Category	Details
Test Standard	ISO 10993-5:2009
Test Purpose	Evaluation of <i>in vitro</i> cytotoxicity for regenerated PP/EVOH food containers
Cell Line Used	Mouse-derived fibroblasts
Culture Medium	MEM (Minimal Essential Medium) with 10% Fetal Bovine Serum (FBS)
Extraction Conditions	37°C for 24 hours
Sample Surface Area	Diameter 35 mm wells (~10 cm ²); each well treated in triplicate
Cell Seeding Density	1 × 10 ⁵ cells/mL
Seeding Volume per Well	2 mL
Incubation Conditions (before treatment)	37 ± 1°C, 5 ± 1% CO ₂ for 24 hours to form confluent monolayers
Exposure Duration to Extracts	48 hours
Observation Method	Optical microscopy (100× magnification)
Assessment Criteria	- Morphological change - Presence of confluent monolayer (+/-) - Medium color change (pH)
Interpretation of pH Change	- Yellow: Acidification - Purple/Crimson: Alkalinization
Enzymes for Cell Harvesting	Trypsin and EDTA
Evaluation Basis	Qualitative observation and inhibition of cell proliferation based on ISO 10993-5 grading

Table 3. Information on Specimens Used for Toxicity Evaluation

	Medium and vehicle	Serum	Negative control	Positive control
Category	1Xmem (Minimum essential medium) with 10% serum	Horse serum	High Density Polyethylene film	ZDEC (Zinc Diethyldithiocarbamate) Polyurethane film
Maker	Gibco, storage 2~8°C	Gibco, storage -15~20°C	-	-



Fig. 3. Image of the PP/EVOH food container recycling process.

식품용기 성형, 밥 조리(rice cooking), 재활용된 용기 분쇄 및 세척(grinding/cleaning), 펠렛화(pelletizing) 순서이며, 해당 재활용 순환 과정을 5회 반복 수행하였다.

3. 세포독성 시험(Cytotoxicity Test)

재활용된 PP/EVOH 식품 용기의 생물학적 안전성을 평가하기 위해, Table 2에 명시된 국제표준 ISO 10993-5:2009 “의료기기의 생물학적 평가 - 세포독성 시험” 기준에 따라 *in vitro* 세포독성 시험을 수행하였다^{18,19}. 이 시험은 시료로부터 얻은 시험물질이 세포에 미치는 독성 영향을 평가하기 위한 것으로, 의료기기 및 생체적합성 평가에 있어 핵심적인 초기 평가 방법이다. 고형 상태의 시편에서 용출 성분을 확보하기 위해, Table 3과 같이 10% FBS(Fetal bovine serum)가 첨가된 MEM(minimal essential medium)

Table 4. Treatment conditions for cytotoxicity testing (triplicate for each well)

Group	Description
Test Group	Extracts obtained from regenerated or non-regenerated samples
Reagent Control	Culture medium used during the extraction process (no sample exposure)
Negative Control	Extracts obtained from a known non-toxic material
Positive Control	Extracts obtained from a known toxic material
Group	Description

All conditions were applied in triplicate (n = 3) per well after the removal of the culture medium

Table 5. Tests Method of ISO 10993-5:2009

Steps	Test Method
1. Sample Preparation	Prepare the medical device or material to be tested. Depending on the test method, prepare an extract or apply direct contact.
2. Cell Culture Preparation	Culture appropriate cells (e.g., L929 fibroblasts). Ensure that cells are in optimal condition for testing.
3. Selection of Test Method	Direct Contact Method, Agar Diffusion Method, Extract Method.
4. Exposure and Incubation	Expose cells to the test sample or extract, Incubate for a specified period (typically 24–72 hours).
5. Cytotoxicity Assessment	Examine cell morphology and viability, Perform cytotoxicity assays (e.g., MTT assay, neutral red uptake, or fluorescence staining).
6. Data Analysis	Determine cell viability percentage (e.g., >70% indicates non-cytotoxic), Assign a cytotoxicity grade (Grade 0-4).
7. Reporting and Conclusion	Document test results and interpret cytotoxicity based on ISO 10993-5 guidelines.

Table 6. Grade of Cytotoxicity According to ISO 10993-5

Grade	Reactivity	Conditions of all cultures
0	None	No cell lysis, no reduction of cell growth
1	Slight	Not more than 20% of the cells are round, loosely attached and without intracytoplasmic granules, or show changes in morphology; occasional lysed cells are present; only slight growth inhibition observable.
2	Mild	Not more than 50% of the cells are round, devoid of intracytoplasmic granules; no extensive cell lysis; not more than 50% growth inhibition observable.
3	Moderate	Not more than 70% of the cell layers contain rounded cells or are lysed; cell layers not completely destroyed, but more than 50% growth inhibition observed.
4	Severe	Nearly complete or complete destruction of the cell layers

배지를 용출 용매로 사용하였다. 해당 배지는 인체 내 환경을 모사한 조건으로 설정되었으며, 시편과 $37^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$ 조건에서 접촉시켜 24시간 동안 접촉시켜 용출액을 제조하였다. 제조된 용출액은 세포 배양기에 적용되었으며, Table 7과 같이 재활용 이전 용기와 Table 8과 같이 5회 재활용한 용기의 세포독성을 비교 평가하는 데 사용되었다. 실험에 사용된 세포는 마우스 유래 섬유아세포로, 단층 배양된 세포를 수확하기 위해 트립신(trypsin)과 EDTA(ethylenediaminetetraacetic acid)를 처리하였다. EDTA는 칼슘(Ca^{2+}), 마그네슘(Mg^{2+})과 같은 이가 양이온을 킬레이트(chelate)하여 세포와 배양 표면 간의 부착을 약화시키며, 트립신은 단백질을 분해함으로써 세포를 효율적으로 분리하였다. 세포를 수확한 후 1 mL당 1×10^5 개의 세포 농도로 조정하고, 직경 35 mm (약 10 cm^2)의 6-well plate에 각 2 mL씩 분주하여 접종하였다. 이후 $37 \pm 1^{\circ}\text{C}$, $5 \pm 1\%$ CO_2 조건에서 24시간 배양하여 균일한 단층이 형성된 well을 선택하였다. Table 4와 같이 배양액을 제거한 후 각 well에 시료를 3회 반복(triplicate) 처리하였으며, 각 well에는 2 mL씩 시료를 첨가한 후 동일한 조건에서 48시간 배양하였다. 배양이 완료 후 광학현미경($\times 100$ 배율)을 이용하여 세포의 형태 변화 및 용해 여부를 관찰하였다. 균일한 단층(confluent monolayer)의 존재 여부는(+), 비존재는(-)로 표기하였다. 또한, 음성대조군과 시험군 간의 배지 색상 변화를 비교하였으며, 배양액의 색 변화는 pH 변화를 간접적으로 반영하는 지표로 활용되었다. 배

지가 노란색으로 변할 경우, 이는 산성으로 간주하였으며, 반대로 심홍색 또는 보라색으로 변화할 경우 염기성으로 판단하였다.

Table 5와 Table 6와 같이 모든 세포 반응의 판독 및 등급 판정은 ISO 10993-5의 기준에 따라 수행되었으며, 정성적 관찰 결과 및 세포 증식 저해 정도를 통해 시험 물질의 세포 독성을 종합적으로 평가하였다.

4. 화학적 용출 분석

PP/EVOH 식품 용기의 재활용 반복에 따른 화학적 용출물 변화를 분석하기 위해, PerkinElmer, Avio200(Shelton, USA)의 ICP(inductively coupled plasma), Mettler Toledo, S220(Greifensee, Switzerland)의 pH meter, Mettler Toledo, XPR205(Greifensee, Switzerland)의 전자저울(balance), Agilent Technology, Cary100(Santa Clara, USA)의 자외선 분광광도계(UV spectrophotometer) 및 JASCO, V770 (Tokyo, Japan)의 자외선/가시광선 분광광도계(UV/VIS spectrophotometer)로 분석하였으며, Table 9 및 Table 10과 같이 용출 시험은 대한민국 약전의 규정에 따라 진행하였다.

5. SEM-EDX 분석

PP/EVOH 식품용기의 재활용 반복 시 누적되는 금속류의 성분을 분석하고자 Carl Zeiss AG, SIGMA VP-FESEM (Jena, Germany)을 이용한 SEM-EDX(scanning electron

microscope energy dispersive X-ray spectrometer) 분석을 진행하였으며, 분석 조건은 가속 전압 15 kV, 작업 거리 10 mm, 방출 전류 10 μ A 조건에서 실시되었으며, 분석 시간은 60초로 설정하였다. 분석은 전자빔 조사 부위에서 방출되는 특성 X-선을 기반으로 하여 시료 표면의 주요 원소 조성을 정성 및 정량적으로 확인하였으며, 재활용 과정에 사용되는 금속류의 성분이 재활용 반복 시에 누적되는지 확인하였다.

결과 및 고찰

1. 세포독성 시험

Table 7과 Table 8과 같이 세포독성 평가 결과 ISO 10993-5:2009 기준에 따라 수행된 *in vitro* 세포독성 시험 결과, Table 7와 같이 재활용되지 않은 PP/EVOH 식품용기에서 제조한 시험물질은 세포 단층 구조(confluent monolayer)를 온전히 유지하였으며, 세포 용해 및 형태 변

Table 7. Cytotoxicity Evaluation of PP/EVOH Food Packaging Materials Prior to Recyclin

Well	Confluent monolayer	% Growth inhibition	% Cells without intracellular granulation	% Rounding	% Lysis	Reactivity	Grade
Test(1)	(+)	0	0	0	0	None	0
Test(2)	(+)	0	0	0	0	None	0
Test(3)	(+)	0	0	0	0	None	0
Negative control(1)	(+)	0	0	0	0	None	0
Negative control(2)	(+)	0	0	0	0	None	0
Negative control(3)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(1)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(2)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(3)	(+)	0	0	0	0	None	0
Positive control(1)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4
Positive control(2)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4
Positive control(3)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4

Table 8. Cytotoxicity Assessment of PP/EVOH Food Containers After 5 Recycling times

Well	Confluent monolayer	% Growth inhibition	% Cells without intracellular granulation	% Rounding	% Lysis	Reactivity	Grade
Test(1)	(+)	25	0	10	0	Mild	2
Test(2)	(+)	25	0	10	0	Mild	2
Test(3)	(+)	25	0	10	0	Mild	2
Negative control(1)	(+)	0	0	0	0	None	0
Negative control(2)	(+)	0	0	0	0	None	0
Negative control(3)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(1)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(2)	(+)	0	0	0	0	None	0
Reagent control(3)	(+)	0	0	0	0	None	0
Positive control(1)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4
Positive control(2)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4
Positive control(3)	(-)	100	N/A	N/A	100	Severe	4

Table 9. Extraction test conditions and methods based on Korean Pharmacopoeia

Sample Type and Thickness	Surface Area (both sides) or Mass	Volume of Extraction Solvent	Extraction Condition
≤ 0.5 mm (film type)	120 cm ²	20 mL	(37 \pm 1) °C for (72 \pm 2) h (50 \pm 2) °C for (72 \pm 2) h (70 \pm 2) °C for (24 \pm 2) h (121 \pm 2) °C for (1 \pm 0.1) h
> 0.5 mm (film type)	60 cm ²	20 mL	
Irregularly shaped solid	4.0 cm ²	20 mL	

Table 10. Extraction test methods based on Korean Pharmacopoeia

Test Item	Test Method
Foaming	Add 5 mL of the test solution to a cylinder (diameter: approx. 15 mm, length: approx. 200 mm), shake for 3 minutes, and measure the time until the foam disappears.
Transparency	Using standard and test solutions, measure the turbidity at 430 nm and 650 nm using a 10 mm path length cell.
pH	Add 1.0 g of potassium chloride to water and dilute to 1,000 mL. Mix 20 mL of the sample into this solution and measure the pH difference.
Oxidizable Substances	Add 0.002 mol/L potassium permanganate and 1 mL of a 20.0 mL sample into a conical flask. Heat for 3 min and cool. Add 0.01 mol/L sodium thiosulfate to titrate. Calculate the difference in consumption between the sample and the standard.
UV Absorbance	Measure the maximum absorbance in the range of 220–240 nm and 241–350 nm using UV-visible spectrophotometry, compared to the standard solution.
Water Absorption Spectrum	According to the UV-visible spectrophotometric method using standard solutions, measure the absorbance in the range of 220–350 nm.
Residue on Evaporation (20 mL)	Take 20 mL of the test solution, evaporate in a water bath, and dry the residue at 105 °C for 1 hour. Weigh the residue.
Heavy Metals	1. Prepare a standard solution by diluting 10 mL of standard solution to 100 mL with water (1 mL contains 0.01 mg of Pb). 2. Take 10 mL of the test solution, add 40 mL of water and 2 mL of acetic acid, and dilute to 50 mL. 3. Similarly, prepare a comparison solution using 2 mL of the standard solution. 4. Add 1 mL of hydrogen sulfide solution to both samples, mix, let stand for 5 minutes, and compare the color using white background paper.

화가 관찰되지 않아 세포독성이 없는 것으로 판단되었다. Table 8와 같이 동일한 조건에서 5회 재활용된 용기로부터 얻은 시험물질은 약 25%의 세포 증식 저해를 유도하였으며, 세포의 단층은 유지되었지만 세포 증식 과정에 경미한 형태 변화가 관찰되었다. 이는 재활용이 반복되면서 시험물질이 세포 배양 환경에 미약한 독성 반응을 유발했음을 의미하며, ISO 10993-5의 등급 기준에 따라 Grade 2(Mild

cytotoxicity)로 평가되었다. 시험군과 음성대조군, 용매대조군은 세포 형태 및 증식에 대한 영향을 거의 나타내지 않았으나, 성장 억제가 약 25% 수준으로 확인되었다. 세포 독성이 관찰된 시험군의 원인으로는 재활용 과정에서 발생 가능한 오염 요인이 지적된다. 식품 용기로 사용된 이후의 세척 단계에서 유입될 수 있는 미생물이나 잔류 세제, 재활용 파쇄기에서의 금속 오염, 펠렛화 공정 시 열화 또는 외

Table 11. Extraction Test Results After Multiple Uses of Recycled PP/EVOH Containers

	Evaluate Items	Unit	Prior to recycling	After 1 cycle of recycling	After 5 cycles of recycling
Extraction Test	Appearance	-	Passed	Passed	Milky
	Foam	min	3	3	3
	pH	-	0.17	0.22	0.84
	Potassium permanganate reducible substances (dioxides)	mL	0.05	0.19	0.55
	Ultraviolet-visible absorption spectrum	-	0.00	0.00	0.01
	Non-Volatile Residue	mL	0.50	0.55	0.55
	Residue on Ignition	mL	Passed	Passed	Passed
	Buffering Capacity	mg/L	0.00	0.00	0.00
	IC (Ammonium ion)	mg/L	0.08	0.11	0.50
	ICP (Copper)	mg/L	0.01	0.18	0.26
	ICP (Cadmium)	mg/L	0.00	0.01	0.37
	ICP (Chromium)	mg/L	0.01	0.26	0.89
	ICP (Lead)	mg/L	0.00	0.02	0.11
	ICP (Zinc)	mg/L	0.00	0.00	0.00
	ICP (Tin)	mg/L	0.00	0.00	0.01
ICP (Barium)	mg/L	0.00	0.00	0.00	

부물질 혼입 등이 잠재적인 원인으로 해석된다²⁰). 세포독성 평가 결과 재활용 이전 상태의 PP/EVOH 용출물은 세포에 미치는 영향은 미미하였으나, 재활용된 PP/EVOH 용출물에서의 세포 증식 과정에 억제 현상이 확인되었다. 5회 재활용 후 용출물은 약 25%의 세포 증식 저해를 유발하여, 재

활용 과정 중 화학적 변성이 일어난 물질들이 세포에 직접적인 영향을 미침을 확인하였다²²). 이와 같은 결과는 용출물이 세포에 미치는 영향은 경미하지만 여전히 생리학적 반응을 유발할 수 있음을 보여주며, 재활용 식품 포장 용기의 생물학적 안전성 평가에서 중요한 고려사항임을 시사한다.

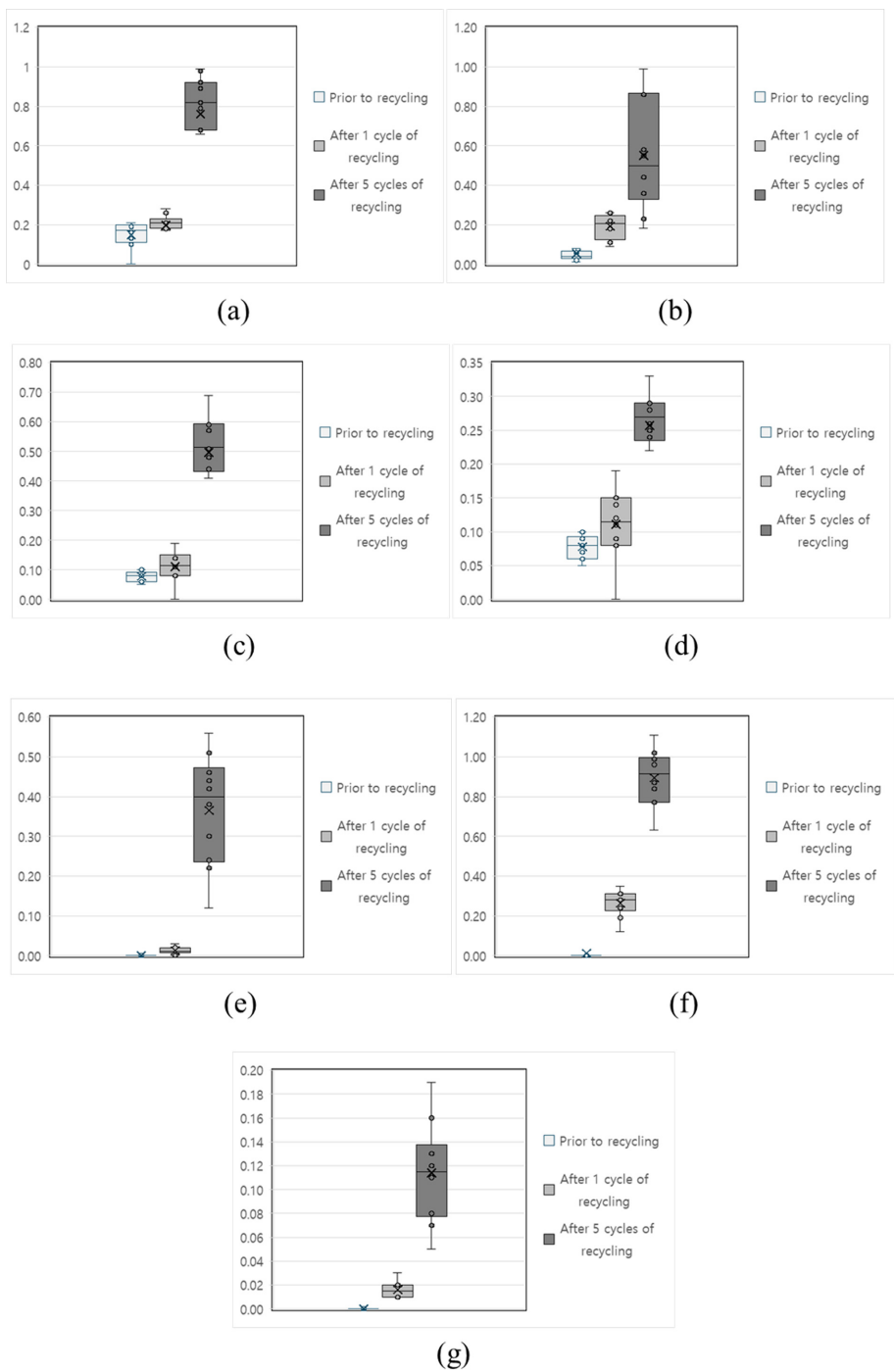


Fig. 4. Changes in (a) pH values, (b) potassium permanganate-reducible substances (unit: mL), (c) ammonium ion concentrations (unit: mg/L), (d) copper concentrations (unit: mg/L), (e) cadmium concentrations (unit: mg/L), (f) chromium concentrations (unit: mg/L), and (g) lead concentrations (unit: mg/L) before and after recycling. Y-axes represent the respective measured values.

2. 용출 분석

Table 11과 같이 용출물의 화학적·물리적 특성을 분석한 결과, 재활용 전 용출물의 외관은 투명한 특성을 유지하였으나, 5회 재활용 후에는 ‘탁함(Milky)’으로 확인되었으며, 고형물, 미세 불순물 또는 기타 환경적인 오염물질이 용출물에 포함되었음을 시사되며, 이는 재활용 과정 중에 재활

Table 12. SEM-EDX Analysis of Metal Contamination during PP/EVOH Recycling: (a) Metals Transferred to Containers and (b) Metal Species Detected in Recycling Equipment.

Element	Weight%	Atomic%	Element	Weight%	Atomic%
C K	22.06	38.84	C K	24.32	43.80
O K	32.40	42.82	O K	27.39	37.03
Al K	0.78	0.61	Al K	0.86	0.69
Si K	1.78	1.34	Si K	0.50	0.39
Cl K	0.48	0.29	S K	0.43	0.29
Ca K	0.41	0.22	Cl K	0.53	0.33
Mn K	0.25	0.10	Ca K	0.13	0.07
Fe K	40.92	15.49	Mn K	0.50	0.20
Zn K	0.92	0.30	Fe K	39.11	15.15
			Zn K	6.21	2.05
Totals	100.00		Totals	100.00	

용 플라스틱의 물리적 변화나 오염이 누적되었을 가능성이 있다. 거품 생성 시간은 1회 및 5회 재활용 후 모두 3분으로 일정하게 유지되어, 용출물의 표면활성도나 안정성에는 변화가 없음을 나타내었으며, Fig. 4와 같이 pH 변화 분석은 각 용출 시험을 10회 반복 수행하였으며, 재활용 전의 pH 평균값이 0.17이었으나, 5회 재활용 후 평균 0.84로 증가하였다. 이는 산성 용출물의 양이 증가했음을 의미하며, 재활용 플라스틱의 반복적인 열화 및 화학적인 분해물질이 생성되었을 가능성을 보여준다²¹⁾. Fig. 4와 같이 과망간산칼륨 환원성물질 분석 용출시험을 10회 진행하였으며, 재활용 전의 평균값이 0.05 mL이었으나, 5회 재활용 후 평균 0.55 mL로 증가하였다. 이는 재활용 과정 중 축적된 유기물 또는 열분해 부산물의 존재를 시사한다²²⁾. UV-VIS 흡광도 분석 결과는 5회 재활용 후 0.01로 소폭 증가하였으며, 이는 미량의 유기 화합물 또는 불순물이 용출물에 존재함을 간접적으로 확인할 수 있다. 비휘발성 잔류물 분석 결과는 재활용 전후 0.50 mL에서 0.55 mL로 변동이 없었으나, 중금속 증가에 영향 없이 중금속의 양이 전체 비휘발성

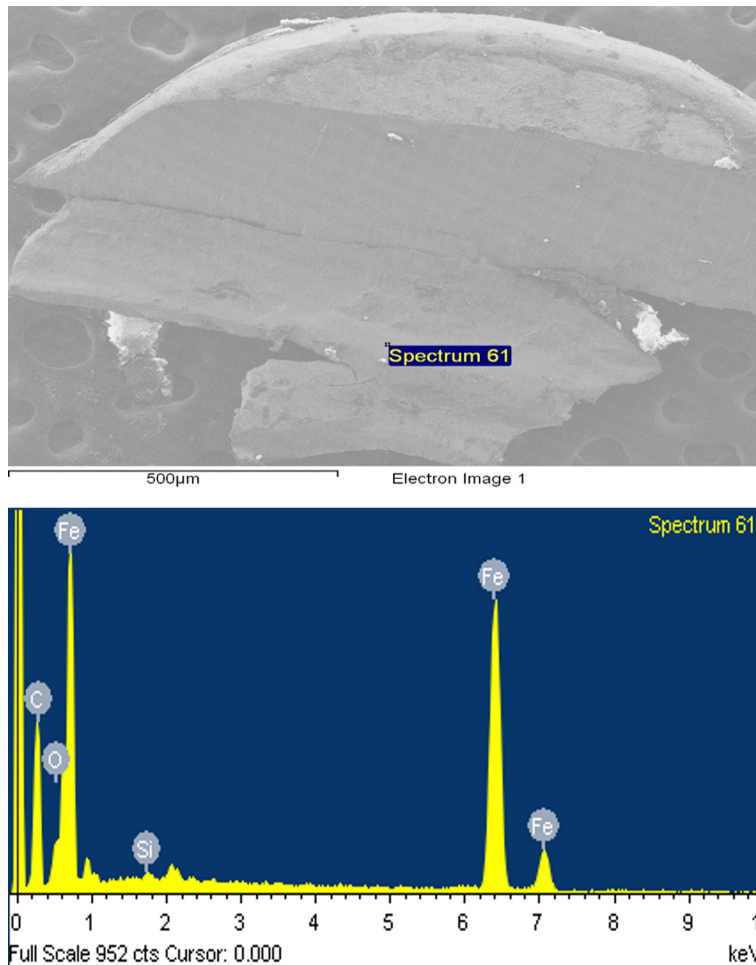


Fig. 5. SEM-EDX Analysis of Metals Transferred to Containers during PP/EVOH Recycling.

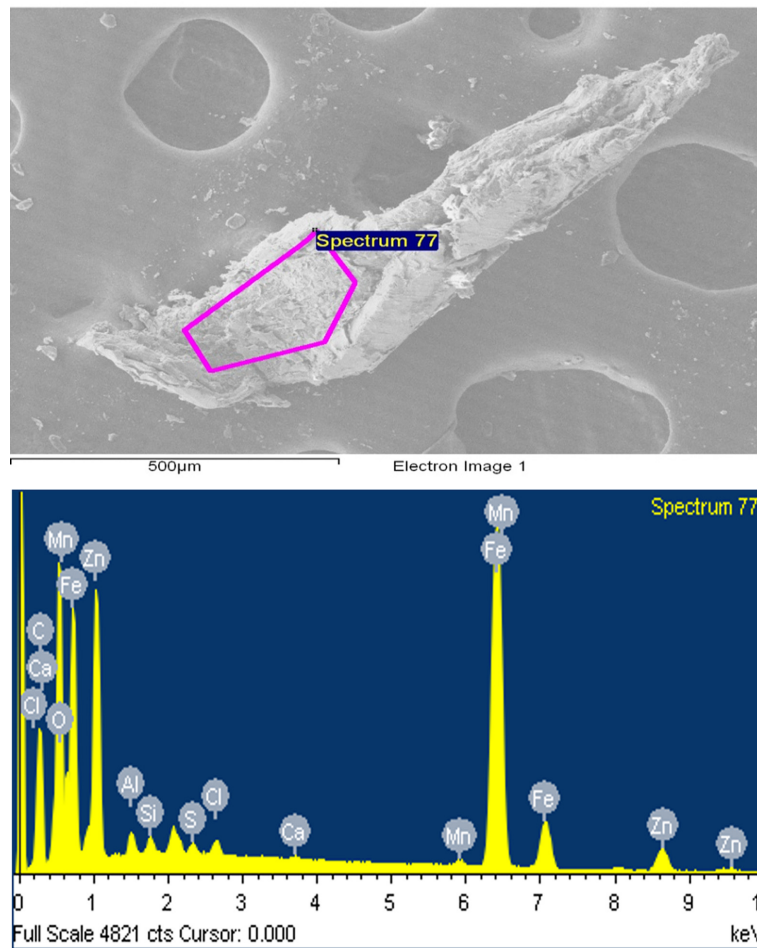


Fig. 6. SEM-EDX Analysis of Metal Species Used in PP/EVOH Recycling.

잔류물에서 차지하는 비율이 매우 작은 양임으로 해석이 된다. 강열잔분 결과는 열분해 후 잔여물 분석 결과는 재활용 전후 모두 변화가 없는 것으로 나타나, 열 안정성에는 문제가 없음을 시사한다. pH의 안전성 유지 정도를 보기 위한 Buffering Capacity 분석 결과는 모든 시료에서 0.00 mg/L로 확인되었다. 금속 이온 용출(ICP 분석) 분석 결과 재활용 횟수 증가에 따라 금속(Ammonium ion, Cu, Cd, Cr, Pb)의 농도가 상승하였다. 금속 이온 용출 분석은 10회 반복 수행하였으며, Fig. 4와 같이 암모늄이온은 0.08 mg/L에서 0.50 mg/L로 증가되었으며, 구리는 0.01 mg/L에서 0.26 mg/L로 증가되었으며, 카드뮴은 0.00 mg/L에서 0.37 mg/L로 증가되었으며, 크롬은 0.01 mg/L에서 0.89 mg/L로 증가되었으며, 납은 0.00 mg/L에서 0.11 mg/L로 증가되었으며, 이는 재활용 공정 과정에서 금속 물질과의 마찰과 마모로 인한 금속물질 오염이 발생했을 가능성을 시사한다²³⁾. 재활용 횟수 증가에 따라 용출물의 외관이 ‘탁함(milky)’ 현상을 보였으며, 이는 세척 및 분쇄 과정 중 발생한 미세 입자 및 불순물의 혼입에 기인한 것으로 판단된다. 거품 생성

시간과 비휘발성 잔류물은 큰 변화를 보이지 않았으나, ICP 분석 결과 구리, 카드뮴, 크롬, 납 농도가 유의하게 증가하는 경향을 확인하였다. 이는 재활용 공정 중 압출기 및 설비에서 기계적 오염이 발생한 결과로 추정된다. UV-VIS 흡광도 측정에서는 재활용 전후 미세한 변화가 관찰되어 소량의 유기 화합물 또는 불순물이 용출된 것으로 해석된다.

3. SEM-EDX 분석

Table 12(a) 및 Fig. 5는 재활용 설비에서 유래한 금속 성분을, Table 12(b) 및 Fig. 6은 재활용 5회 후 PP/EVOH 내 금속류 혼입 현황을 각각 비교한 결과, Mn, Fe, Al, Zn 성분이 검출되어 유사성을 확인하였다. 재활용 과정에 발생한 금속이물 시료에서 Zn 함량이 높았으며, 재활용설비 금속재질인 아연 도금강(galvanized steel)으로 코팅된 금속류에서 발생한 것으로 해석되며, 이는 재활용 설비 내 금속류가 재활용 과정에 금속류 이물이 유출되는 문제도 확인되었다. 이러한 변화는 재활용된 식품 포장 용기의 안전성에 잠재적인 위험 요소로 작용할 수 있다²⁴⁾.

요 약

본 연구에서는 PP/EVOH 다층 구조 식품 포장 용기를 재활용한 후 발생하는 용출물 특성과 생물학적 안전성을 종합적으로 평가하였다. PP/EVOH 식품 포장 용기 재활용 과정에서 발생하는 화학적 변화는 용출물 특성에 중요한 영향을 미치며, 재활용 후 식품 포장 용기의 안전성을 저해할 수 있는 잠재적 위험 요소로 작용할 수 있음을 확인하였다. 본 연구는 재활용 식품 포장 용기 안전성 평가를 위한 기초 자료를 제공하며, 향후 재활용 공정에서 화학적 안정성과 생물학적 안전성 확보를 위한 보다 엄격한 기준 마련에 필요성을 제언한다.

참고문헌

- Kang, H.W., 2024, Overcoming the limitations of complex materials in instant rice containers, *Daily Pharm.* Retrieved from <https://v.daum.net/v/fhbllr7A1e>
- Chun, Y.J., Ahn, T.K., 2006, A study of properties of recycled PP/EVOH/PP scrap by compatibilizers, *J. Korea Academia-Industrial Cooperation Society*, 11, 283-286. Retrieved from <https://www.koreascience.or.kr/article/CFKO200606950836411.page>
- Bauer, A.S., Tacker, M., Uysal, I.U., Cruz, R.M.S., Varzakas, T., Krauter, V., 2021, Recyclability and redesign challenges in multilayer flexible food packaging—A review, *Foods*, 10(11), 2702. Retrieved from <https://www.mdpi.com/2304-8158/10/11/2702#>
- Kim, D.H., Kim, J.S., 2016, The grafted polypropylene copolymer containing itaconic acid and the compatibilizer for its use in PP/EVOH blends, *KR Patent 1020160023987*.
- Chun, Y.J., Ahn, T.K., 2008, The thermal and mechanical properties of recycled PP/EVOH/PP scrap with compatibilizers, *J. Korea Academia-Industrial Cooperation Society*, 9(1), 176-181. Retrieved from <https://doi.org/10.5762/KAIS.2008.9.1.176>
- Wang, L., 2019, Effect of regrind content on PP-EVOH sheets properties and effect of orientation on permeability of EVOH multilayer films, Master's thesis, Polytechnique Montreal Technological University. Retrieved from https://publications.polymtl.ca/4013/1/2019_LiliWang.pdf
- Gimenez, E., Lagaron, J.M., Cabedo, L., Gavara, R., Saura, J., 2004, Study of the thermoformability of ethylene-vinyl alcohol copolymer based barrier blends of interest in food packaging applications, *J. Appl. Polym. Sci.*, 91, 3851-3855. Retrieved from https://www.researchgate.net/publication/229868738_Study_of_the_thermoformability_of_ethylene-vinyl_alcohol_copolymer_based_barrier_blends_of_interest_in_food_packaging_applications
- DESU Plastic, (n.d.), High barrier PE/EVOH/PP plastic sheet for thermoforming, DESU Plastic. Retrieved from <https://desuplastic.com/study/high-barrier-pe-evoh-pp-plastic-sheet-for-thermoforming/>
- Maddah, H., 2016, Polypropylene as a promising plastic: A review, *J. Chem. Eng. Process Technol.*, 7(3), 2163-1352. Retrieved from https://www.researchgate.net/publication/290439450_Polypropylene_as_a_Promising_Plastic_A_Review
- Uyor, U.O., Popoola, P.A., Popoola, O.M., Aigbodion, V.S., 2023, A review of recent advances on the properties of polypropylene - carbon nanotubes composites, *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, 36(9), 3737-3770. Retrieved from doi:10.1177/08927057221077868
- Wikipedia contributors, 2025, Polypropylene, *Wikipedia: The Free Encyclopedia*. Retrieved from <https://en.wikipedia.org/wiki/Polypropylene>
- Mokwena, K., 2010, Barrier properties of ethylene vinyl alcohol films, Doctoral dissertation, Washington State University. Retrieved from https://www.dissertations.wsu.edu/Dissertations/Spring2010/k_mokwena_050310.pdf
- Matsui, Y., 2004, Study on orientable EVOH, *TAPPI Journal*, 3(10), 29-35. Retrieved from <https://www.tappi.org/content/enewsletters/eplace/2004/10-3matsui.pdf>
- Dalgicdir, C., 2015, Investigation of barrier properties of as cast and oriented EVOH films, Master's thesis, Sabancı University. Retrieved from <https://research.sabanciuniv.edu/16333/1/CahitDalgicdir.PDF>
- Detogni, G., 2012, Tie layers development for Triple Bubble® technology, Master's thesis, Politecnico di Milano. Retrieved from https://www.politesi.polimi.it/retrieve/a81cb05d-7922-616b-e053-1605fe0a889a/Detogni_thesis.pdf
- Lee, S.H., 2015, The microstructure of polypropylene blends with ethylene vinyl alcohol copolymer, Doctoral dissertation, McGill University. Retrieved from <https://escholarship.mcgill.ca/downloads/wp988m10n.PDF>
- Mokwena, K., 2010, Barrier properties of ethylene vinyl alcohol films, Doctoral dissertation, Washington State University. Retrieved from https://www.dissertations.wsu.edu/Dissertations/Spring2010/k_mokwena_050310.pdf
- Ksenia, J.G., Jane, M., 2016, In vitro toxicity testing of food contact materials: State of the art and future challenges, *Compr. Rev. Food Sci. Food Saf.*, 15(3), 444-462. Retrieved from <https://doi.org/10.1111/1541-4337.12280>
- ISO, 2009, ISO 10993-5:2009, Biological evaluation of medical devices — Part 5: Tests for in vitro cytotoxicity, International Organization for Standardization.
- Cecon, V.S., Da Silva, P.F., Curtzwiler, G.W., Vorst, K.L., 2021, The challenges in recycling post-consumer polyolefins for food contact applications: A review, *Resources, Conservation and Recycling*, 167, 105422. Retrieved from <https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2021.105422>
- Jo, D.K., Kim, H.G., 2012, Crushed waste plastic washing device and washing water recycling methods, *KR Patent KR101199832B1*.
- Food Packaging Forum, 2025, Plastic recycling: Hazardous chemicals and strategies to tackle them, *Food Packaging Forum*. Retrieved from <https://foodpackagingforum.org/news/plastic-recycling-hazardous-chemicals-and-strategies-to-tackle-them>
- Abdullah, N., Aziz, H.A., Yusuf, N.N.A.N., Umar, M., Amr,

S.S.A., 2014, Potential of KMnO₄ and H₂O₂ in treating semi-aerobic landfill leachate, Appl. Water Sci., 4, 303–309. Retrieved from <https://doi.org/10.1007/s13201-013-0146-6>

24. Bunting Magnetics, 2025, Removing Metal in Plastic Waste – Magnetic Separators and Metal Detection, Bunting Magnetics

Blog. Retrieved from <https://buntingmagnetics.com/industry-blog/removing-metal-in-plastic-waste-magnetic-separators-and-metal-detection/>

투고: 2025.06.16 / 심사완료: 2025.07.08 / 게재확정: 2025.07.14