



(11) **RO 125023 B1**

(51) **Int.Cl.**

C09J 171/14 (2006.01);

C09J 161/22 (2006.01);

C09J 197/00 (2006.01)

(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2008 00407**

(22) Data de depozit: **30.05.2008**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30.04.2012** BOPI nr. **4/2012**

(41) Data publicării cererii:
30.11.2009 BOPI nr. **11/2009**

(73) Titular:
• **UNIVERSITATEA "TRANSILVANIA" DIN
BRAȘOV, BD.EROILOR NR.29, BRAȘOV,
BV, RO**

(72) Inventatori:
• **PETROVICI VALERIU, STR.PĂRĂULUI
NR.40, BL.S27, SC.B, AP.1, BRAȘOV, BV,
RO;**
• **VARODI ANCA, STR.BRAZILOR NR.18,
BL.18, AP.18, FELDIOARA, BV, RO;**
• **CAZACU GEORGETA, ȘOS.ȚUȚORA
NR.9B, BL.G2, ET.3, AP.24, IAȘI, IS, RO;**
• **ZELENIUC OCTAVIA, STR.AL.VLAHUȚĂ
NR.44, BL.B122, AP.16, BRAȘOV, BV, RO;**
• **URDEA SIMONA NICOLETA,
STR.GENERAL DUMITRACHE NR.16,
BL.260, SC.B, ET.1, AP.6, BRAȘOV, BV,
RO;**

• **DAVID KINGA IUDITH, STR.ARMONIEI
NR.4, BL.60, SC.A, AP.7, BRAȘOV, BV, RO**

(56) Documente din stadiul tehnicii:
US 5288774; US 6747076 B2;
**A.-M.VARODI, V.PETROVICI, "STUDIUL
PRIVIND REZISTENȚA ÎNCLEIERII LA
FORFECARE A UNOR COMPOZIȚII
ADEZIVE PE BAZĂ UNUI AMESTEC DE
RĂȘINĂ UREICĂ ȘI FURANICĂ",
PROLIGNO, VOL. 4 NR. 1, MARTIE 2008;**
**V.PETROVICI, A.M.VARODI, O.ZELENIUC,
"STUDY UPON THE GLUING SHEARING
STRENGTH OF SOME ADHESIVE
COMPOSITIONS BASED ON LIGNIN AND
MIXED FURAN RESIN WITH FURFURYLIC
ALCOHOL OF FC-2 URELIT TYPE",
29.10-02.11.2007, IURFO ALL DIVISION 5
CONFERENCE, TAIPEI, TAIWAN**

(54) **COMPOZIȚIE ADEZIVĂ PE BAZĂ DE RĂȘINĂ FURANICĂ
MIXTĂ CU ALCOOL FURFURILIC ȘI RĂȘINĂ UREICĂ
CLASICĂ**

Examinator: **ing. MIHĂILESCU CĂTĂLINA**



Orice persoană are dreptul să formuleze în scris și motivat, la OSIM, o cerere de revocare a brevetului de invenție, în termen de 6 luni de la publicarea mențiunii hotărârii de acordare a acesteia

RO 125023 B1

RO 125023 B1

1 Invenția se referă la o compoziție adezivă pe bază de rășină furanică mixtă cu alcool
furfurilic în amestec masic egal cu o rășină ureică clasică, în adaos cu lignină tehnică sulfat,
3 destinată pentru fabricarea lemnului lamelat, înțleiat la temperatura mediului ambiant și a
structurilor portante din lemn.

5 Acest tip de compoziție reprezintă practic o posibilitate de îmbunătățire substanțială
a caracteristicilor de calitate ale unei compoziții adezive, folosită în prezent în același scop
7 mai sus menționat, constituită doar din rășină ureică clasică, pe de o parte, prin substituirea
parțială sau integrală a acestei rășini, cu un nou tip de rășină sintetică de tip furanic,
9 recunoscută ca având unele proprietăți tehnice superioare celor de tip ureic, iar pe de altă
parte, prin înlocuirea totală a făinii de secară, ca material de diluție - plastifiere, cu lignină
11 tehnică.

13 Rășina furanică mixtă cu alcool furfurilic, de tipul celei care face obiectul prezentei
invenții, este obținută prin reacția de policondensare în mediul acid/bazic a ureei tehnice cu
aldehidă formică și alcool furfurilic, fiind utilizată în prezent exclusiv pentru fixarea abrazivilor
15 pe diferite suporturi.

17 Totodată, invenția reprezintă practic și o posibilitate de valorificare superioară a
masei lemnoase prin utilizarea unei lignine tehnice, respectiv, a unui subprodus care rezultă
alături de celuloză tehnică la dezincrustarea alcalină a acesteia, la temperatură și presiune
19 ridicată.

21 Compozițiile adezive formate din alcool furfurilic sau rășină furfurilică simplă, împreună
cu un subprodus pe bază de lignină și diverși agenți catalitici sunt folosite în prezent pentru
înțleierea unor materiale de naturi diferite, cum ar fi: sticla și fibrele minerale, nisipuri,
23 cauciuc, diverși polimeri sintetici și alte substanțe, fie singure, fie în amestec unul cu celălalt,
fie în amestec cu diferite materiale lignocelulozice.

25 În cele ce urmează, sunt prezentate selectiv, spre exemplificare, doar câteva
asemenea compoziții adezive utilizate pentru fabricarea unor produse pe bază de lemn, cum
27 ar fi placajul și plăcile din așchii de lemn.

29 Pentru utilizarea rășinilor furanice în scopul obținerii unor compoziții adezive folosite
la înțleierea lemnului, este cunoscută, spre exemplu, o soluție care preconizează folosirea
unei rășini furanice obținută din alcool furfurilic și paraformaldehidă, fără adaos de lignină,
31 utilizând drept catalizator o soluție de acid maleic [Schultz, T.P. *“Exterior plywod resin
formulated from furfuryl alcohol and paraformaldehyde”*, Short Note. Holyforschung,
33 vol. 44, nr. 6, 1990].

35 O asemenea compoziție adezivă s-a utilizat pentru fabricarea placajului de exterior
format din 3 straturi de furnire tehnice din lemn de pin strob. Ea prezintă dezavantajul că este
solubilă numai în acetonă, reticularea având loc la temperatura de 150°C și necesită un timp
37 de presare aproape dublu față de cazul utilizării în același scop a unei rășini fenolice clasice.

39 În același context, o emulsie formată dintr-o rășină furanică lichidă și o rășină ureo
formaldehidică în proporții variabile, în prezența unui catalizator acid, reprezintă o altă soluție
alternativă pentru înțleierea așchiilor din lemn prin presare la cald, plăcile rezultate având
41 un conținut mult mai redus de aldehidă formică [Moon, G.K. ș.a. *“Furfurylic alcohol
emulsion resins co-binders for ureo-formaldehyde resin bondend particleboards”*,
43 Wood and Fiber Science, 30, 1998].

45 În scopul anterior menționat, mai este cunoscută o soluție care se referă la mai multe
compoziții adezive pe bază de alcool furfurilic și lignine tehnice utilizate pentru înțleierea
lemnului [US 6747076].

RO 125023 B1

Majoritatea acestor compoziții adezive sunt alcătuite practic din două componente, dintre care una denumită componentă reactivă care este formată din alcool furfurilic și un subprodus pe bază de lignină obținut din procesul de fabricare a celulozei din lemn prin procedee alcaline sau acide. Cel de al doilea component denumit component catalitic este format din unele săruri minerale și anhidridă maleică.

În diferitele variante prezentate, compozițiile adezive mai sus specificate pot conține între 10 și 30% lignină, 30...50% alcool furfurilic, 5...15% anhidridă maleică, până la 20% clorură de zinc și 5% clorură ferică.

Compozițiile adezive respective au fost utilizate la fabricarea unor placaje alcătuite din două sau mai multe furnire tehnice prin încliere la cald, presiunea fiind un factor opțional.

Avantajul major menționat în acest caz constă în valorificarea ligninei alcaline sau a celei acide, ca subproduse încă insuficient folosite în industria de celuloză și hârtie.

Tot în același scop anterior menționat, mai este cunoscută și o soluție, care se referă la o compoziție adezivă refractară pentru pământ, în care ca agent de legătură este utilizat un amestec de lignină și o rășină furanică, produsul rezultat având o emisie redusă de formaldehidă, fiind considerat așadar economic și ecologic [US 5288774].

Folosirea diferitelor tipuri de lignine tehnice în scopurile anterior menționate nu reprezintă însă soluția tehnică cea mai eficientă, deoarece aceste produse nu au practic proprietăți adezive corespunzătoare pentru înclierea diferitelor produse din lemn. Urmare acestui fapt, așa cum rezultă și din literatura tehnică de specialitate, la folosirea unor cantități crescânde din astfel de lignine tehnice, se obțin produse din lemn cu caracteristici fizico-mecanice mai scăzute și, în special, cu o stabilitate mult mai redusă față de apă [RO 103186; RO103572; RO 103375; US 4357194; CA 409226].

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în îmbunătățirea proprietăților compozițiilor adezive utilizate pentru înclierea lemnului.

Compoziția adezivă pe bază de rășină furanică mixtă și rășină ureică pentru fabricarea lemnului lamelat încliat și a structurilor portante din lemn conform invenției înlătură dezavantajele menționate, prin aceea că este constituită dintr-un amestec format din 35...40% rășină ureo-formaldehidică clasică și 35...40% rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic, în proporții egale, 9...10% lignină tehnică sulfat și 18...20% soluție clorură de amoniu 20%, reticulat la temperatura camerei

Calitatea unei compoziții adezive pentru fabricarea lemnului lamelat încliat prin înlocuirea parțială sau totală a rășinii ureice clasice dintr-un asemenea tip de adeziv structural cu o rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic și, respectiv, prin substituirea integrală a făinii de seacă, ca material de diluție - plastifiere, cu o lignină tehnică sulfat este mult îmbunătățită.

Drept catalizator pentru reticularea la temperatura mediului ambiant a compoziției adezive conform invenției, se folosește un adaos de soluție apoasă de clorură de amoniu cu concentrația de 20% în locul întăritorului clasic tip IR solid din compoziția adezivă de referință.

Prin aplicarea invenției, se obțin următoarele avantaje:

- compozițiile adezive conform invenției se caracterizează prin rezistențe ale înclierii la forfecare și sarcini de rupere la forfecare prin tracțiune longitudinală net superioare față de cele ale compozițiilor cunoscute și pot fi incluse în clasa I de calitate conform prevederilor SR EN 301-1:1999;

- caracteristici de rezistență îmbunătățite atât ale lemnului încliat, cât și ale structurilor portante din lemn;

RO 125023 B1

- 1 - consum specific de adeziv aplicat redus cu 30...50%;
- valorificarea ligninei tehnice sulfat, un produs rezidual obținut la fabricarea celulozei
3 din lemn prin procedeul alcalin;
- reducerea corespunzătoare a gradului de poluare a emisarului în care sunt
5 deversate în prezent ligninele tehnice.

În exemplele care urmează, rășina ureică folosită ca liant de bază în actuala
7 compoziție adezivă pentru scopul anterior menționat se prezintă sub forma unui lichid
vâscos, omogen, slab opalescent, având următoarele caracteristici fizico-chimice:

9	- densitatea la 20°C, g/cm ³	1,33±0,03
11	- viscozitatea dinamică la 20°C, Mpa.s	1000-3000
	- conținut de substanță solidă, %	70 ± 2
13	- pH	6,5-7,00
	- conținut de formaldehidă liberă, maximum, %	3,50
15	- timp de gelificare la 20°C, cu întăritor tip IR solid, t _{ge} i, maximum, min	45

- 17 La rândul ei, rășina furanică mixtă cu alcool furfurilic utilizată conform invenției se
prezintă sub forma unui lichid vâscos, omogen, de culoare slab gălbuie, având următoarele
19 caracteristici fizico-chimice:

21	- densitatea la 20°C, g/cm ³	1,275±0,015
	- viscozitatea dinamică la 20°C, Mpa.s	700-1250
23	- conținut de substanță solidă, %	68 ± 2
	- pH	7,5-0,5
25	- conținut de formaldehidă liberă, maximum, %	3,5
	- timp de gelificare la 40°C, cu întăritor tip FC-2, maximum, min	18-28

- 27 Lignina tehnică sulfat utilizată conform invenției se prezintă practic sub forma unei
29 pulberi foarte fine de culoare cafenie, cu un miros aromatic specific, având un pH al
extractului apos la cald de 6,5...7,0. Un astfel de produs tehnic are o compoziție chimică
31 deosebit de complexă, prezentând un conținut apreciabil de substanțe organice, fiind
alcătuită, în principal, din: polifenoli, zaharuri, rășini vegetale, gume și mucilagii vegetale,
33 coloranți etc.

- Se dau, în continuare, 2 exemple nelimitative de realizare a procedurii conform
35 invenției, plecând de la o compoziție adezivă uzuală pe bază de rășină ureică clasică, notată
cu indicativul UR/IR_s, F, folosită ca probă de referință, ale cărei componente în proporție de
37 masă sunt următoarele:

39	- rășină ureo-formaldehidică (UR), %	80-87
	- făină de seacă (F), %	10-12
41	- întăritor tip IR solid (IR _s), %	1-1,5
	- apă, %	1-2

RO 125023 B1

Caracteristicile fizico-chimice ale acestei compoziții adezive structurale utilizată pentru fabricarea lemnului lamelat încleiat sunt: 1

		3
- conținut de substanță uscată, %	73,00-74,55	
- pH inițial	4,0-4,50	5
- pH final	3,00-3,50	
- timp de scurgere prin cupa FORD cu diametrul de 8 mm, la 20°C, min	92-98	7
- timp de gelificare la temperatura de 20°C, t_{ge} min	23-27	
- timp de solidificare finală la 20°C, t_s , min	40-48	9

Exemplul 1. În această compoziție adezivă, liantul de bază din proba de referință este înlocuit cu un amestec masic egal de rășină ureică clasică și rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic, iar făina de seară, ca material de diluție - plastifiere, este înlocuită integral cu lignină tehnică sulfat. În acest caz, drept catalizator se folosește un adaos de soluție apoasă de clorură de amoniu cu concentrația de 20%. 11

Componentele acestei compoziții adezive, notată cu indicativul UR/FC₂/NH₄Cl - 20, L, în proporții de masă, sunt următoarele: 13

- rășină ureo-formaldehidică (UR), %	35-40	19
- rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic (FC ₂), %	35-40	
- lignină tehnică sulfat (L), %	9-10	21
- clorură de amoniu soluție 20% (NH ₄ Cl - 20), %	18-20	

Caracteristicile fizico-chimice ale acestei compoziții adezive sunt următoarele: 23

- conținut de substanță uscată, %	60-65	25
- pH inițial	4,00-4,50	
- pH final	3,50-4,00	27
- timp de scurgere prin cupa FORD cu diametrul de 8 mm, la 20°C, min	10-12	
- timp de gelificare la temperatura de 20°C, t_{ge} min	30-40	29
- timp de dispariție a lipiciozității la temperatura de 20°C, t_{dl} , min	40-45	
- timp de solidificare finală la 20°C, t_s , min	90-120	31

Exemplul 2. În această compoziție adezivă, ca liant de bază, se utilizează numai rășina furanică mixtă cu alcool furfurilic conform invenției. În același context, făina de seară este înlocuită integral cu aceeași lignină tehnică sulfat. Drept catalizator, se folosește și în acest caz o soluție de clorură de amoniu cu concentrația de 20%. 33

Componentele acestei noi compoziții adezive, notată cu indicativul FC₂/NH₄Cl - 20, L, în proporții de masă, sunt următoarele: 35

- rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic (FC ₂), %	70-80	
- lignină tehnică sulfat (L), %	9-10	41
- soluție de clorură de amoniu cu concentrația de 20% (NH ₄ Cl-20), %	18 - 20	

RO 125023 B1

1 Caracteristicile fizico-chimice ale acestei compoziții adezive sunt:

2	- conținut de substanță uscată, %	60-65
3	- pH inițial	4,0-4,5
	- pH final	3,50-4,00
5	- timp de scurgere prin cupa FORD cu diametrul de 8 mm, la 20°C, min	10-20
	- timp de gelificare la temperatura de 20°C, t_{gel} , min	40-45
7	- timp de dispariție a lipiciozității la temperatura de 20°C, t_{dl} , min	40-45
	- timp de solidificare la temperatura de 20°C, t_s , min	180 - 210

9

11 Calitatea tuturor acestor compoziții adezive pentru fabricarea lemnului lamelat încleiat
 12 s-a evaluat prin determinarea rezistenței încleierii la forfecare a unor epruvete din lamele de
 13 fag, având dimensiunile de 300 x 150 x 5 mm, încleiate în condițiile unor durate de 2 și,
 14 respectiv, 4 h, la temperatura de 20°C, folosind o presiune specifică de 0,6 N/mm².
 15 Consumul specific de adeziv aplicat determinat gravimetric a variat mult în funcție de tipul
 16 compoziției adezive utilizată, acesta fiind de 180 g/m² pentru compoziția adezivă de referință,
 17 120 g/m² pentru compoziția adezivă din exemplul 1 conform invenției și 90 g/m² pentru cea
 din exemplul 2.

19 Rezistența încleierii la forfecare s-a determinat în conformitate cu prevederile STAS
 5114-85, atât pe epruvete încercate în stare uscată (A), cât și supuse unor tratamente
 20 prealabile speciale în stare umedă (B), simbolizate corespunzător aceleiași norme mai sus
 21 specificate, în funcție de tipul de încleiere, după cum urmează: B-I₂₀, B-I₆₇, B-TA, B-TH.

23 Rezistențele încleierii la forfecare determinate experimental pentru cele 2 compoziții
 24 adezive conform invenției, comparativ cu cele ale compoziției adezive de referință, în funcție
 25 de durata de presare și tipurile de tratamente aplicate, sunt prezentate centralizat în
 tabelul 1.

Tabelul 1

27

29

31

33

35

37

39

Nr. crt.	Tipul de tratament aplicat	Indicativ adezivi (rășină/catalizator/material adaos)/Rezistența încleierii la forfecare, în N/mm ²					
		UR/IR _s , F		UR/FC ₂ /NH ₄ Cl-20, L		FC ₂ /NH ₄ Cl-20, L	
		2 h	4 h	2 h	4 h	2 h	4 h
1	A	536	614	685	712	732	783
2	B -120	426	442	480	550	561	592
3	B-I ₆₇	78	89	121	123	126	127
4	B-TA	534	592	667	706	725	765
5	B-TH	470	584	634	681	684	712

41

43

45

Calitatea aceluiași compoziții adezive, conform invenției, pentru fabricarea structurilor portante din lemn s-a evaluat în această etapă prin determinarea rezistenței îmbinării la forfecare prin tracțiune longitudinală a unor epruvete din lemn de fag, având dimensiuni identice cu cele mai sus menționate și încleiate în condițiile aceluiași parametri ai regimului de presare.

RO 125023 B1

Sarcinile de rupere la forfecare prin tracțiune longitudinală s-au determinat în acest caz în conformitate cu prevederile SR EN 302-1:1998, atât pe epruvete încercate după 3 tratamente prelabile în stare uscată, codificate A₁, A₃ și A₅, cât și în stare umedă după alte 2 tratamente prelabile în stare umedă, codificate A₂ și A₄.

Valorile sarcinilor de rupere la forfecare prin tracțiune longitudinală, determinate experimental pentru cele 2 compoziții adezive conform invenției, comparativ cu cele ale compoziției de referință și, respectiv, cu prevederile SR EN 301-1:1999, în funcție de durata de presare și tipul tratamentului prelabil aplicat, sunt prezentate centralizat în tabelul 2.

Tabelul 2

Nr. crt.	Tipul de tratament aplicat	Prevederi SR EN 301-1:1999		Indicativ adezivi (rășină/catalizator/material adaos) /Sarcina de rupere la forfecare prin tracțiune longitudinală, F, în N					
		Tip I	Tip II	UR/IR _S , F		UR/FC ₂ /NH ₄ Cl-20, L		FC ₂ /NH ₄ Cl-20, L	
				2 h	4 h	2 h	4 h	2 h	4 h
1	A ₁	2000	2000	2255	2633	2880	3337	3442	4295
2	A ₂	1200	1200	1675	2008	1950	2182	2120	2853
3	A ₃	1600	1600	2125	2455	2275	3125	3183	4146
4	A ₄	1200	-	1002	1098	1295	1437	1450	1497
5	A ₅	1600	-	1762	2385	2680	2775	2900	3574

RO 125023 B1

1

Revendicare

3

Compoziție adezivă pe bază de rășină furanică mixtă și rășină ureică pentru fabricarea lemnului lamelat încleiat și a structurilor portante din lemn, **caracterizată prin aceea că** este constituită dintr-un amestec format din 35...40% rășină ureo-formaldehidică clasică și 35...40% rășină furanică mixtă cu alcool furfurilic, în proporții egale, 9...10% lignină tehnică sulfat și 18...20% soluție clorură de amoniu 20%, reticulat la temperatura camerei.

5

7



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM
Tipărit la: Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci
sub comanda nr. 213/2012