



(12)

## BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2014 00908**

(22) Data de depozit: **25/11/2014**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30/08/2018** BOPI nr. **8/2018**

(41) Data publicării cererii:  
**30/06/2015** BOPI nr. **6/2015**

(73) Titular:

• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE  
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU  
CHIMIE ȘI PETROCHIMIE - ICECHIM,  
SPLAIUL INDEPENDENȚEI NR.202,  
SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO**

(72) Inventatori:

• **DIMONIE DOINA OLGA AFINA,  
ALEEA BAI A DE ARIEȘ NR. 2, BL. 7, AP. 2,  
SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **DIMONIE MIHAI DUMITRU,  
ALEEA BAI A DE ARIEȘ NR.2, BL.7, AP.2,  
SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **ANTON LILIANA RODICA ELENA,  
BD.RÂMNICU SĂRAT NR.29, BL.11 A1,  
SC.B, ET.6, AP.72, SECTOR 3,  
BUCUREȘTI, B, RO;**

• **CONSTANTIN VIRGIL, STR.TULNICI  
NR.10, BL.40, SC.2, ET.2, AP.72,  
SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **IOVU HORIA, STR.MARIA TÂNASE NR.3,  
BL.13, SC.B, ET.4, AP.49, SECTOR 4,  
BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **DAMIAN CELINA-MARIA,  
ALEEA POARTA ALBĂ NR.2-4, BL.109 A,  
SC.2, ET.4, AP.75, SECTOR 6,  
BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **VASILE EUGENIU, STR.NADA FLORILOR  
NR.2, BL.2, SC.2, ET.7, AP.74, SECTOR 2,  
BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **TRUȘCĂ ROXANA, CALEA DOROBANȚI  
NR. 111-131, BL. 9, SC. B, AP. 45,  
SECTOR 1, BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **RÂPĂ MARIA, ALEEA GORNEȘTI NR.3,  
BL.52, SC.1, AP.2, SECTOR 4,  
BUCUREȘTI, B, RO**

(56) Documente din stadiul tehnicii:  
**RO 128294 A2; RO 128741 A2;  
CN 103601961 A**

(54) **COMPOZIȚIE ȘI PROCEDEU PENTRU REALIZAREA  
UNOR MATERIALE BIODEGRADABILE CU CONȚINUT  
RIDICAT DE FIBRE NATURALE ȘI UMLUTURI  
ANORGANICE**



# 130349 B1

1 Inventția se referă la o compoziție și la un procedeu de obținere a unor materiale bio-  
degradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, caracterizată prin  
3 aceea că sunt destinate industriei de prelucrare mase plastice pentru obținerea unor produse  
biodegradabile, cu viață scurtă, rezistente la șoc și la încovoiere sub sarcină.

5 Se cunoaște o compoziție biodegradabilă și un procedeu de obținere care folosește,  
pentru conferirea proprietăților de biodegradabilitate, amidonul și oligomeri ai etilenei cu  
7 masa moleculară medie de maximum 20000 g/mol, dar care prezintă dezavantajul că folo-  
sește ca matrice de înglobare polietilena, polimer care nu are caracter biodegradabil  
9 [RO 111085 B1]. După acțiunea microorganismelor care consumă amidonul și oligomerii  
etilenei, acest tip de material rămâne în sol sub formă de dantelă cu perforații mai mari sau  
11 mai mici, în funcție de cantitatea celor doi componenți de biodegradare.

13 Mai este cunoscută o compoziție biodegradabilă care prezintă dezavantajul că matri-  
cea în care este introdus polimerul regenerabil este polietilena, care nu poate fi biodegradată  
chiar dacă se adaugă săruri organice ale metalelor tranzitionale [RO 99-00475 A].

15 Se cunoaște un material compozit biodegradabil, format din polipropilenă ignifugată  
și fibră de in destinat confecționării unor piese pentru amenajări interioare la autovehicule  
17 [RO 129365 A2], care prezintă inconvenientul că are biodegradabilitatea redusă, întrucât  
matricea polimerică în care au fost încorporate fibrele de in nu este biodegradabilă. Dacă  
19 procentul de fibre este redus, atunci, după consumarea de către microorganisme a acestora,  
în sol va rămâne un material mai mult sau mai puțin perforat, în funcție de conținutul biode-  
21 gradabil.

23 Sunt cunoscute, de asemenea, alte compozite biodegradabile și procedeu de obți-  
nere, pe bază de alcool polivinilic și amidon, care sunt destinate industriei de polimeri pentru  
prelucrare în ambalaje nealimentare [RO 121692 B1], însă care prezintă dezavantajul că nu  
25 au rezistență la șoc și la temperatura de încovoiere sub sarcină.

27 Este cunoscută, de asemenea, o altă compoziție de material polimeric biodegradabil  
și un procedeu de obținere a acesteia, destinate industriei de polimeri pentru fabricarea  
ambalajelor alimentare, cosmetice sau pentru agricultură. Această compoziție este pe bază  
29 de alcool polivinilic, policlorură de vinil, amidon și glicerină [RO 128294 A2], și prezintă dez-  
avantajul că este puțin probabil să se producă o reacție chimică între acești componenți  
31 incompatibili și să rezulte compozite cu proprietăți reproductibile, chiar dacă umplutura a fost  
funcționalizată. Valorile proprietăților materialelor date ca exemplu de realizare a invenției  
33 nu pun în evidență reacția chimică revendicată, ca, de altfel, niciuna dintre revendicări.

35 Mai este cunoscută o compoziție și un procedeu pe bază de alcool polivinilic și  
amidon, destinate industriei de prelucrare mase plastice pentru fabricarea unor ambalaje  
celulare biodegradabile [RO 128741 A2], însă care prezintă dezavantajul că nu se pot folosi  
37 pentru realizarea de produse cărora li se impun rezistențe la șoc sau la încovoiere sub  
sarcină, aceste materiale fiind concepute pentru alte utilizări.

39 Se cunoaște un procedeu de obținere a unei compoziții pe bază de polimer sintetic  
și polimer natural, conform căruia polietilena de joasă densitate (LDPE) se amestecă cu  
41 lignina esterificată cu clorura de steroil, amestecul fiind obținut într-un plastograf și ulterior  
presat [RO 122284 B1]. Procedeu prezintă dezavantajul că nu conduce la îmbunătățiri  
43 spectaculoase ale compozitului final și că este destul de nereproductibil în condițiile realizării  
la scară mai mare.

45 Se cunoaște un procedeu de obținere a unor compozite polimerice pe bază de fibre  
liberene sub formă de material stratificat cu 9 straturi, format din fibre de in și cânepă  
47 impregnate cu un amestec poliuretanic destinat realizării de piese auto cu densitate mică  
[RO 121742 B1]. Acest compozit prezintă dezavantajul că nu se poate prelucra prin tehnici  
49 din topitură specific polimerilor.

# 130349 B1

Se cunoaște o compoziție polimerică rezistentă la șoc și un procedeu de obținere a acesteia, compoziția fiind alcătuită dintr-un polimer termoplastice de proveniență convențională (polietilenă, poliamidă 6, poliamidă 66), un elastomer de asemenea de proveniență convențional (tip etilenă-propilenă, etilena-propilenă-dienă, butadienă-stiren), umplutură minerală talc, carbonat de calciu, caolin, silice coloidală), umplutură fibroasă scurtă (fibra de sticlă, fibra de carbon) și alți aditivi de prelucrare [RO 119724 B1]. Această compoziție prezintă dezavantajul că nu este biodegradabilă. 1  
3  
5  
7

Se cunoaște o compoziție pe bază de polimeri naturali (colagen, amidon) și sintetici (alcool polivinilic, copolimer stiren-acroleină) și un procedeu de obținere a acesteia [RO 116293 B1], care prezintă dezavantajul că nu poate fi prelucrată prin tehnici din topitură în produse cu viață scurtă, biodegradabile. 9  
11

Se mai cunoaște un biocompozit bazat pe noi sisteme de monomer de tip bis-GMA armate, care prezintă dezavantajul că nu este destinat industriei de polimeri, ci utilizării ca material dentar [RO 127617 A2]. 13

Se cunoaște un material compozit biodegradabil polifuncțional și un procedeu de obținere a acestuia, capabil să separe, să încapsuleze și să degradeze complet poluanții biologici și produșii lor de metabolism prezenți în apele de suprafață [RO 127171 B1], dar care prezintă dezavantajul că nu se folosește în industria de polimeri pentru obținerea diferitelor produse cu viață scurtă. 15  
17  
19

Scopul invenției este realizarea unui material biodegradabil cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, caracterizat prin aceea că este destinat industriei de prelucrare mase plastice pentru obținerea prin injecție sau termoformare a unor produse biodegradabile, cu viață scurtă, rezistente la șoc și la încovoiere sub sarcină. 21  
23

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în identificarea componentelor, a rapoartelor de compundare și a modului de lucru, astfel încât să fie posibilă realizarea unor materiale biodegradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, iar produsele finite realizate din aceste materiale, prin tehnici din topitură, să aibă rezistență la șoc, rezistență la încovoiere și proprietățile stabile pe întreaga durată de viață, întrucât gradul de miscibilitate realizat conform procedurii nu permite segregarea componentelor. 25  
27  
29

Compoziția pentru obținerea unor materiale biodegradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, pe bază de alcool polivinilic și amidon, conform invenției, este constituită din 10...50% alcool polivinilic, 50...10% amidon, 20...50% amestec glicerină și dietilen glicol într-un raport de 70/30...40/60, 0,01...0,9% stabilizator de tip irganox B 215, 0,1...2% lubrifianți de tipul sărurilor metalice ale acizilor carboxilici, de preferință stearat de calciu, 0,01...2% compatibilizant de tipul polimerilor maleinizați, de preferință polietilenă maleinizată cu 0,3...3% grad de maleinizare, 0,01...4% agent de destructurare de tipul hidroxizilor anorganici, sărurilor anorganice, de preferință uree, 21...40% umplutură minerală, până la 40% făină de lemn, suma componentelor fiind de 100%, iar procentele fiind exprimate în greutate. 31  
33  
35  
37  
39

Procedeu, conform invenției, pentru obținerea materialelor biodegradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice pentru obținerea prin tehnici din topitură a unor produse biodegradabile, cu viață scurtă, rezistente la șoc și la încovoiere sub sarcină, constă în uscarea, în primă fază, a umpluturii naturale până la 3...4% umiditate, după care aceasta se amestecă, în faza următoare, cu componentii solizi și lichizi ai compoziției, amestecați în prealabil conform unor proceduri specifice polimerilor higroscopici, amestecul rezultat fiind ulterior extrus într-un extruder, cu unul sau doi melci, cu sau fără degazare, sau într-un extruder Buss cu mișcare de înaintare-retragere a melcului, la temperatura de 90...140°C. Apoi, granulele obținute prin granulara firelor răcite cu aer se prelucrează prin 41  
43  
45  
47

# 130349 B1

1 injecție la o temperatură de 100...170°C, timp de încărcare de 10...20 s, timp de injecție  
50...70 s, timp de răcire 16...20 s, viteza de injecție 102...150 m/s, temperatura matriței de  
3 51...70°C, sau prin termoformare la 90...155°C, după preîncălzire și presare la 80...110°C,  
timp de 10...25 s.

5 Compoziția și procedeul conform invenției prezintă următoarele avantaje:

7 - asigură realizarea unor materiale biodegradabile, cu durata de viață controlată și  
proprietăți de utilizare stabile, întrucât gradul de miscibilitate realizat conform procedurii nu  
permite segregarea componentelor pe întreaga durată de viață a produselor finite;

9 - componentii compoziției și parametrii de lucru ai procedurii sunt astfel aleși încât  
umplura minerală și conținutul de componente naturali sunt dispersați în matricea polimerică  
11 astfel încât produsele realizate din noile materiale nu își modifică dimensiunile pe întreaga  
durată de viață;

13 - materialele biodegradabile care rezultă conform invenției sunt caracterizate de o  
bună omogenizare a umpluturilor minerale și ale fibrelor naturale în matricea polimerică, și  
15 de aceea au o structură morfologică uniformă și proprietăți izotrope în întreaga masă;

17 - consumurile specifice de material la prelucrarea în produs finit a noilor materiale bio-  
degradabile sunt reduse, deoarece materialele au o bună curgere în topitură și de aceea  
cantitățile de deșeurile tehnologice care se formează la extindere, injecție sau termoformare  
19 sunt minime;

21 - dacă prelucrarea compoziției se realizează pe utilaje cu degazare, atunci umplu-  
turile naturale nu mai trebuie uscate înainte de amestecarea cu ceilalți componente din com-  
poziție, ceea ce reduce consumul energetic specific procedurii;

23 - prețul de cost al noilor materiale realizabile conform invenției este mult diminuat de  
cantitatea ridicată de umplutura minerală și de umplutura naturală;

25 - biodegradabilitatea este mult îmbunătățită de conținutul de umplutura minerală;

27 - produsele post consum realizabile din noile materiale biodegradabile se distrug total  
în mediu, umplutura minerală fiind singurul component care rămâne, dar care nu afectează  
mediul, întrucât este component al solului.

29 În continuare, se dau trei exemple de realizare a compoziției și a procedurii conform  
invenției.

## 31 **Exemplul 1**

33 Se usucă 19 kg făină de lemn în etuvă la 80°C, timp de 4 h, până la un conținut  
rezidual de umiditate de 4%. Se amestecă, în agitatoare pentru solide specifice industriei de  
mase plastice, 31 kg de alcool polivinilic cu 7 kg de amidon, 0,4 kg polietilenă maleinizată,  
35 0,6 kg de Irganox 215, 0,5 kg stearat de calciu, 1,5 kg uree, 19 kg CaCO<sub>3</sub> și cele 19 kg de  
făină de lemn uscată prin menținere sub agitare continuă timp de 30 min. În amestecul astfel  
37 obținut se adaugă, în trepte, 22 kg amestec glicerină și esteri metilici de proveniență  
regenerabilă, componente amestecați în raportul 1/1 și se continuă agitarea încă 30 min, până  
39 când întreaga cantitate de plastifiant a fost adsorbită, iar pulberea solidă curge uniform, fără  
niciun fel de aglomerare. Amestecul astfel obținut este extrus pe un extruder Buss la tem-  
41 peratura de 130°C pe duză și viteza de rotație a melcului de 75 rpm; firele extruse care se  
obțin se răcesc cu aer și ulterior se granulează. Granulele astfel rezultate se prelucrează prin  
43 injecție, în repere cu viață scurtă, la temperatura de 125°C pe duză, timp de încărcare 15 s,  
timp de injecție 30 s, timp de răcire 20 s, viteza de injecție de 100 m/s, temperatura matriței  
45 de 80°C. Proprietățile materialelor rezultate sunt prezentate în tabelul 1:

# 130349 B1

Tabelul 1

Proprietate*, UM, metoda de determinare	Valori
Temperatura de încovoiere sub sarcină, °C, ISO 75-1, 2/Metoda B)	60
Rezistența la șoc Izod, kJ/m <sup>2</sup> , epruvete necrestate/crestate, ciocan 2J, 20°C	2,047
Duritate, °Sh A, DIN 53505	98,6
Densitate, g/cm <sup>3</sup> , STAS 12633-1988	
Rezistența la tracțiune, MPa, STAS 5878.	5
Extensia, mm, STAS 5878.	8
Rugozitate, μm, ISO 1879-93 I	2,047

\*Măsurători pe placa presată

## Exemplul 2

Se usucă 21 kg făină de lemn în etuvă la 80°C, timp de 4,5 h, până la un conținut rezidual de umiditate de 4%. Se amestecă, în agitatoare pentru solide specifice industriei de mase plastice, 36 kg de alcool polivinilic, 7 kg de amidon, 0,6 kg polietilenă maleinizată, 0,4 kg de Irganox 215, 0,9 kg stearat de calciu, 2 kg uree, 21 kg CaCO<sub>3</sub>, și cele 21 kg de făină de lemn uscate, și se mențin sub agitare continuă timp de 15 min. În amestecul astfel obținut se adaugă, în trepte, 25 kg amestec de glicerină cu dietilen glicol, componenți amestecați în raportul 0,75/0,25, și se continuă agitarea încă 25 min, până când întreaga cantitate de plastifiant a fost adsorbită, iar pulberea solidă curge uniform, fără niciun fel de aglomerare. Amestecul astfel obținut este extrus pe un extruder Buss, la temperatura de 125°C pe duză și viteza de rotație a melcului de 75 rpm; firele extruse se răcesc cu aer și ulterior se granulează. Granulele astfel rezultate se prelucrează prin termoformare la 135°C după preîncălzire și presare la 120°C, timp de 15 min, în repere cu viață scurtă. Proprietățile materialelor rezultate sunt prezentate în tabelul 2:

Tabelul 2

Proprietate, UM, metoda de determinare	Valori
Temperatura de încovoiere sub sarcină, °C, ISO 75-1,2/ Metoda B)	50
Rezistența la șoc Izod, kJ/m <sup>2</sup> , epruvete necrestate/crestate, ciocan 2J, 20°C	26,21*/13,59*
Duritate, °Sh A, DIN 53505	93,8
Densitate, g/cm <sup>3</sup> , STAS 12633-1988	
Rezistența la tracțiune, MPa, STAS 5878.	3,5
Extensibilitatea, mm, STAS 5878.	40
Rugozitate, μm, ISO 1879-93 I	1,47

\*fără rupere/măsurători pe placa presată

## Exemplul 3

Se amestecă, în agitatoare pentru materiale solide specifice industriei de mase plastice, 40 kg de alcool polivinilic, 7 kg de amidon, 0,5 kg polietilenă maleinizată, 0,7 kg de Irganox 215, 0,8 kg stearat de calciu, 2 kg uree, 22 kg CaCO<sub>3</sub>, și se menține amestecul sub agitare continuă timp de 20 min. În amestecul astfel obținut se adaugă, în trepte, 25 kg amestec de glicerină cu dietilen glicol și cu esteri metilici de proveniență regenerabilă,

# 130349 B1

1 componentii fiind amestecați în părți egale, și se continuă agitarea încă 30 min, până când  
întreaga cantitate de plastifiant a fost adsorbită, iar pulberea solidă curge uniform, fără niciun  
3 fel de aglomerare. Amestecul astfel obținut este extrus pe un extruder Buss, la temperatura  
de 120°C pe duză și viteza de rotație a melcului de 100 rpm; firele extruse se răcesc cu aer  
5 și ulterior se granulează. Granulele astfel rezultate se prelucrează prin injecție conform  
procedurilor specifice, în repere cu viață scurtă. Proprietățile materialelor rezultate sunt  
7 prezentate în tabelul 3:

9 *Tabelul 3*

Proprietate, UM, metoda de determinare	Valori
11 Temperatura de încovoiere sub sarcină, °C, ISO 75-1,2/ Metoda B)	38
Rezistența la șoc Izod, kJ/m <sup>2</sup> , epruvete necrestate/crestate, ciocan 2J, 20°C	22,6 * /7 ,54*
13 Duritate, °Sh A, DIN 53505	84,8
Rugozitate, μm, ISO 1879-93 I	1,285
15 Densitate, g/cm <sup>2</sup> , STAS 12633-1988	1,44
Rezistența la tracțiune, MPa, STAS 5878	3
17 Extensibilitatea, mm, STAS 5878.	155

# 130349 B1

## Revendicări

1. Compoziție pentru obținerea unor materiale biodegradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, pe bază de alcool polivinilic și amidon, **caracterizată prin aceea că** este constituită din 10...50% alcool polivinilic, 50...10% amidon, 20...50% amestec glicerină și dietilen glicol într-un raport de 70/30...40/60, 0,01...0,9% stabilizator de tip irganox B 215, 0,1...2% lubrifianți de tipul sărurilor metalice ale acizilor carboxilici, de preferință stearat de calciu, 0,01...2% compatibilizant de tipul polimerilor maleinizați, de preferință polietilenă maleinizată cu 0,3...3% grad de maleinizare, 0,01...4% agent de destruc-turare de tipul hidroxizilor anorganici, sărurilor anorganice, de preferință uree, 21...40% umplutură minerală, până la 40% făină de lemn, suma componentilor fiind de 100%, iar pro-centele fiind exprimate în greutate. 11
2. Compoziție conform revendicării 1, **caracterizată prin aceea că** umplutura minerală este aleasă dintre  $\text{CaCO}_3$ , talc, caolină, de preferință  $\text{CaCO}_3$ , sub formă de particule nanometrice sau micrometrice, iar făina de lemn are dimensiuni de maximum 0,25 mm. 15
3. Procedeu pentru obținerea materialelor biodegradabile cu conținut ridicat de fibre naturale și umpluturi anorganice, pe bază de alcool polivinilic și amidon, **caracterizat prin aceea că**, în prima etapă, umplutura naturală este uscată până la 3...4% umiditate, după care aceasta se amestecă cu componentii lichizi și solizi ai compoziției, inclusiv cei doi poli-meri care au fost în prealabil prelucrați conform procedurilor specifice polimerilor hidrofilii, apoi amestecul rezultat se extrude într-un extruder, cu unul sau doi melci, cu sau fără dega-zare, sau într-un extruder Buss cu mișcare de înaintare-înapoi a melcului la temperatura de 90...140°C, iar după granulara firelor răcite cu aer, granulele obținute se prelucrează prin injecție la o temperatură de 100...170°C, un timp de încărcare de 10...20 s, un timp de injec-ție de 50...70 s, un timp de răcire de 16...20 s, cu o viteză de injecție de 102...150 m/s, o temperatură a matriței de 51...70°C, sau prin termoformare la 90...155°C, după preîncălzire la 80...110°C, timp de 10...25 s, pentru a se obține produse biodegradabile, cu viață scurtă, rezistente la șoc și la încovoiere sub sarcină. 27



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM  
Tipărit la: Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci  
sub comanda nr. 392/2018