



(12)

CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2020 00599**

(22) Data de depozit: **23/09/2020**

(41) Data publicării cererii:
30/03/2022 BOPI nr. **3/2022**

(71) Solicitant:
• UNIVERSITATEA "DUNAREA DE JOS"
DIN GALAȚI, STR. DOMNEASCĂ NR.47,
GALAȚI, GL, RO

(72) Inventatori:
• FETECĂU CĂTĂLIN, STR. TRAIAN,
NR.85A, GALAȚI, GL, RO;

• MANOLE IULIAN, STR.PORTULUI, NR.35,
BL.MALINA2, SC.5, AP.78, GALAȚI, GL, RO;
• STAN FELICIA, STR.CĂLUGĂRENI NR.11,
BL.L 1 A, SC.2, PARTER, AP.21, GALAȚI,
GL, RO;
• TUDORACHE OCTAVIAN IONUT,
STR.SPITALULUI, NR.31, BL.19, SC.F,
AP.12, TULCEA, TL, RO

(54) REȚETA UNUI COMPOZIT PE BAZĂ DE MATERIALE TERMOPLASTICE ȘI STICLĂ RECICLATE

(57) Rezumat:

Invenția se referă la rețeta unui material compozit realizat din materiale termoplastice reciclate ranforsate cu particule de sticlă sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie și concasate, materialul putând fi utilizat în industria materialelor de construcții pentru fabricarea dalelor, bordurilor sau cărămidilor cu costuri reduse, având greutate relativ scăzută, rezistență mecanică bună, prelucrabilitate și rezistență mecanică ridicată, rezistență la uzură, la umiditate, la îngheț și la UV

ridicată. Rețeta conform invenției are următoarele componente: 10...14% LDPE, 5...10% HDPE, 3...5% TPU, 3...5% PP, 1...5% PET și ca material de adaos 25% sticlă sfărâmată prin implozie și concasate cu rol de ranforsare și 1...5% pigment anorganic cu rol de colorant.

Revendicări: 1

Figuri: 10

Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de inventie a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de inventie este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



DESCRIEREA INVENTIEI

REȚETĂ UNUI COMPOZIT PE BAZĂ DE

MATERIALE TERMOPLASTICE ȘI STICLĂ RECICLATE

Reciclarea deșeurilor din plastic este o preocupare majoră și constantă la nivel mondial [1]. Potrivit Global Footprint Network, 175% din resursele regenerabile ale planetei pentru anul 2020 erau folosite industrial înaintea pandemiei [2]. Marea Britanie foloseste anual 5000000t de plastic din care reciclează doar 370000t, adică 7%. BBC relatează că 359 de milioane de tone de plastic ajung la gunoi în fiecare an [2] și până în anul 2040 se estimează că o cantitate de plastic egală sau mai mare decât fondul piscicol planer se va regăsi deversată în oceanele lumii [3]. Cărămidile construite astăzi conțin 25% plastic reciclat iar la Queen's University of Belfast se studiază posibilități pentru creșterea acestui procent [4].

Din păcate, din acestă perspectivă România se află într-o situație dificilă, datele Eurostat, arătând că marea majoritate a deșeurilor au fost depozitate în gropi de gunoi. În țara noastră, ponderea reciclării este în prezent foarte redusă, mai puțin de 7% din cantitatea de plastic comercializată, deși la nivel european există o directivă care recomandă ca 50% din deșeuri să fie reciclate de fiecare țară a blocului comunitar până la finalul anului 2020 [5, 6].

O anumită cantitate de deșeuri din plastic pot fi reciclate și reintroduse în circuitul industrial. Există și legislație care obligă producătorii să recicleze plasticul introdus în consum - Ordinul nr. 1362/2018 privind aprobarea *Procedurii de autorizare, avizare anuală și de retragere a dreptului de operare a organizațiilor care implementează obligațiile privind răspunderea extinsă a producătorului*. Cu toate acestea, o cantitate semnificativă de deșeuri din plastic nu poate fi sortată, fiind considerată nereciclabilă, alegându-se varianta depozitării în gropile de gunoi [7].

Tehnologia de fabricare a materialelor compozite pentru construcții este susținută de numeroase cercetări, studii de specialitate și brevete de invenție [8-11] internaționale și europene.

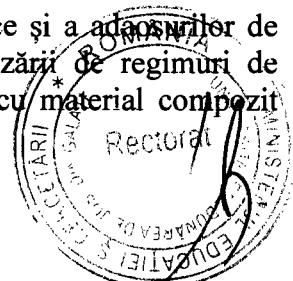
Propunerea se referă la realizarea unei rețete pentru fabricarea unui compozit din materiale termoplastice reciclate ranforsate cu particule de sticlă.

Pentru realizarea rețetei sunt folosite materiale reciclate: organice, formate dintr-un amestec de materiale termoplastice și anorganice, de adaos și ranforsare. Materialele termoplastice provin din reciclare, în urma colectării deșeurilor, sortării primare și mărunțitii cu ajutorul unui agregat tip moară de măcinare. Ca material de adaos și ranforsare este folosită sticla sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie cu tehnologie KRYSTELINE ENECO Ltd, concasate [12].

Pe baza studiului bibliografic s-au identificat cele mai cunoscute soluții pentru elaborarea materialelor compozite.

Una dintre metodele cunoscute [13] constă în topirea materialului plastic, măcinat în incinte încălzite și omogenizarea până la topirea completă, urmată de adăugarea unui material mineral precum nisipul și amestecarea continuă până la omogenizare. Amestecul lichid este turnat apoi în forme și lăsat să se solidifice. **Avantajul** metodei este acela al arderii materialelor organice și a impurităților, precum a etichetelor de hârtie din ambalajele și plasticul reciclat. **Dezavantajul** major al acestei metode constă în imposibilitatea unui control precis al temperaturii și al gradului de omogenizare al ingredientelor pentru obținerea amestecului compozit, existând atât riscul arderii sau degradării unei părți de material termoplastic în procesul de fabricație, cât și segregarea și depunerea unei cantități mai mari de material mineral pe fundul matriței de formare.

Alte metode cunoscute [14], [15] presupun amestecarea materialelor plastice și a adaosurilor de ranforsare în extrudere. **Dezavantajul** este și în acest caz, imposibilitatea utilizării de regimuri de temperatură diferențiate pentru omogenizarea ingredientelor de material organic cu material compozit ranforsat cu adaos mineral.



Alte metode cunoscute [16-18] folosesc extrudarea materialelor plastice și a adaosurilor de ranforsare într-o singură trecere cu presarea compozitiei care are o rețetă diferită de cea propusă în actuala cerere de brevet. **Dezavantajul** este dat de imposibilitatea utilizării de 100% material reciclat și a lipsei unor regimuri de temperatură diferite pentru presarea, menținerea și extragerea materialului compozit solidificat din matriță.

Problema tehnică pe care o rezolvă prezenta invenție constă în propunerea rețetei pentru fabricarea unui compozit din materiale termoplastice reciclate ranforsate cu particule de sticlă care să poată să fie utilizat la fabricarea unor produse folosite în construcții (dale, borduri, cărămizi) și care să prezinte următoarele avantaje:

- costuri reduse;
- transformarea materialelor reciclabile în produse finite;
- greutate relativ scăzută;
- prelucrabilitate ridicată;
- rezistență mecanică foarte bună;
- rezistență la uzură;
- rezistență la umiditate și îngheț;
- rezistență la radiații ultraviolete;
- netoxic și cu durabilitate ridicată.

Rețeta pentru fabricarea compozitului

Materialele care intră în componența rețetei sunt din două categorii:

- componenta A - materialul polimeric format dintr-un amestec omogen de materiale termoplastice care provin din deșeuri care au fost colectate și sortate primar pe tipuri de polimer (fig. 1);
- componenta B - sticla sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate, cu rol de adaos și ranforsare (fig 2).

Componenta A este un amestec din materiale termoplastice: LDPE (10÷14)%; HDPE (5÷10)%; TPU (3÷5)%; PP (3÷5)%; PET (1÷5)%; care reprezintă (30÷35)% din materialul compozit. Granulația amestecului este de până la 5,0mm.

Componenta B este un amestec din materiale anorganice denumit și material de adaos sau ranforsare în proporție de (65÷70)%, respectiv: sticla sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate (60÷65)%, pigment culoare (5÷10)%. Cioburile de sticla sfărâmată prin implozie sunt concasate iar materialul rezultat este cernut obținându-se un amestec cu granulația de până la 1,0mm. Pigmenții sunt oxizi sau coloranți anorganici au o granulație de până la 0,5mm.

Se prezintă în continuare două fotografii care exemplifică cum arată cele două componente folosite în rețetă, în legătură cu figurile 1 și 2, care reprezintă:

Fig.1. Componenta A: LDPE (10÷14)%; HDPE (5÷10)%; TPU (3÷5)%; PP (3÷5)%; PET (1÷5)%;

Fig. 2. Componenta B: sticla sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate.

Au fost folosite patru rețete pentru a obține materiale compozite, din care s-au fabricat epruvete, care au fost comparate din perspectiva proprietăților mecanice optime, determinate prin solicitare la încovoiere în trei puncte. În urma analizei rezultatelor s-a propus spre brevetare rețeta care asigură produsului finit cele mai mari avantaje. Rețetele folosite au fost următoarele:

- Rețeta 1 - 80% componenta A, 20% componenta B;
- Rețeta 2 - 75% componenta A, 25% componenta B;
- Rețeta 3 - 50% componenta A, 50% componenta B;
- Rețeta 4: 25% componenta A, 75% componenta B.



Din materialele obținute cu cele patru rețete s-au obținut epruvete care au fost comparate din punct de vedere al comportării la solicitarea de încovoiere în trei puncte atât între ele cât și față de cele obținute din materialul realizat cu:

Rețeta 5: 100% amestec de materiale plastice.

Metoda de obținere a componitului

În cele ce urmează este descrisă metoda de obținere a unor materiale compozite folosind rețetele propuse pentru brevetare.

Etapele obținerii componitului sunt următoarele:

- Fiecare cantitate de plastic sortat este mărunțită separat într-un agregat tip granulator, moară de măcinare sau șredder și este depozitată în saci sau containere;
- Mixul omogen din materiale termoplastice este obținut prin amestecarea în proporțiile stabilite prin rețetă a unei cantități măcinate din fiecare tip de polimer;
- Materialul de adăos este format dintr-un amestec de sticlă sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie care sunt apoi mărunțite într-un concasor, cernută prin site la granulația specificată și amestecată cu pigmenți anorganicii în proporție stabilită prin rețetă;
- Materialul polimeric este cântarit și amestecat în proporția stabilită prin rețetă cu materialul de adăos;
- Omogenizarea se realizează într-un malaxor.

Folosirea componitului pentru obținerea unor epruvete pentru testare la încovoiere în trei puncte

În cele ce urmează sunt descrise etapele pentru obținerea unor epruvete din materialele compozite realizate cu rețele propuse spre a fi brevetate, pentru testare la încovoiere în trei puncte, în vederea determinării unor proprietăți mecanice.

Etapele obținerii epruvetelor (fig.3) sunt următoarele:

Se prezintă în continuare o figură care exemplifică care este geometria și dimensiunile epruvetelor care vor fi testate la încovoiere în trei puncte, în legătură cu figura 3, care reprezintă:

Fig. 3. Epruvetă pentru solicitare la încovoiere în trei puncte.

- Amestecul componit este topit și extrudat printr-un extruder, cu o singură trecere;
- Cantițăile de componit extrudate, obținute cu rețetele (1÷5) sunt debitate la dimensiunea prestabilită funcție de volumul necesar prin operațiuni de cântărire și porționare după cerințele tehnologice ale matriței de formare, în care se face presarea și menținerea în vederea obținerii epruvetelor. În figura 4 se prezintă matrița de formare, special proiectată și realizată, compusă din trei plăci. Placa cu rol de poanson 1 are rolul de a presa materialul în placă activă 2, în care sunt practicate cuiburile pentru obținerea unui set de cinci epruvete pentru testare la încovoiere în trei puncte, și care este introdusă în placă port placă activă 3.

Se prezintă în continuare o figură care exemplifică care sunt geometria, dimensiunile și componentele matriței metalice pentru obținerea epruvetelor de testare la încovoiere în trei puncte, în legătură cu figura 4, care reprezintă:

Fig. 4. Matriță metalică pentru obținerea epruvetelor de testare la încovoiere în trei puncte: 1. placă cu rol de poanson; 2. placă activă; 3. placă port placă activă.

- Matrița este concepută cu sistem de încălzire electric controlat și răcire accelerată pe bază de apă, are un timp de menținere a materialului la temperatură specifică pe durata presării, fiind apoi răcată pentru extragerea materialului componit solidificat;
- Materialul componit este presat în matriță cu o presă hidraulică de 40T, menținut și răcat solidificat cu ajutorul sistemului de răcire accelerată.;



- Extragerea din măriță se realizează după ce temperatura măriței coboară sub 70°C pentru a se asigura lipsa deformației materialului compozit după presare;
- Epruvetele extrase din măriță pot fi răcite cu apă și depozitate pe grătare pentru scurgere și uscare naturală.

Mărița este compusă din trei plăci (fig.4). Placa superioară 1 are rolul de a presa materialul în placa măriță 2 care conține profilul unui set de 5 epruvete pentru testare la încovoiere în trei puncte, care este introdusă în placa port măriță 3.

În figura 5 se prezintă presa hidraulică pe care s-au realizat epruvetele.

Se prezintă în continuare o fotografie care exemplifică presa hidraulică folosită pentru realizarea epruvetelor, în legătură cu figura 5, care reprezintă:

Fig. 5. Presă hidraulică folosită pentru realizarea epruvetelor.

În figura 6 se prezintă aspectul suprafețelor exterioare ale epruvetelor obținute din cele 5 rețete (R1-R5) de material compozit.

Se prezintă în continuare o fotografie care exemplifică aspectul suprafețelor exterioare ale celor 5 tipuri de epruvete fabricate cu rețetele R1-R5, în legătură cu figura 6, care reprezintă:

Fig. 6. Aspectul suprafețelor exterioare ale celor 5 tipuri de epruvete fabricate cu rețetele R1-R5.

Testarea epruvetelor

Epruvetele au fost testate la încovoiere în trei puncte pe o mașină TESTOMETRIC AM350 (fig. 7) la o viteză de 1mm/min și distanță dintre reazeme de 80mm (fig. 8).

Se prezintă în continuare o fotografie și un desen care exemplifică mașina universală de testare TESTOMETRIC AM350 folosită pentru testarea epruvetelor și dimensiunile zonei de lucru în timpul testării la încovoiere în trei puncte, în legătură cu figurile 7 și 8, care reprezintă:

Fig. 7. Mașina universală de testare TESTOMETRIC AM350;

Fig. 8. Dimensiuni ale zonei de lucru în timpul testării epruvetelor.

Au fost testate câte 5 epruvete pentru fiecare rețetă de material compozit. În figura 9 se prezintă curbele tensiune-deplasare iar în figura 10 proprietăți mecanice pentru epruvetele obținute cu cele 5 rețete în urma solicitării la încovoiere în trei puncte.

Se prezintă în continuare figurile 9 și 10, care prezintă curbele tensiune-deplasare și proprietăți mecanice pentru epruvetele obținute cu cele 5 rețete în urma solicitării la încovoiere în 3 puncte, în legătură cu figurile 9 și 10, care reprezintă:

Fig. 9. Curbele tensiune-deplasare pentru epruvetele fabricate cu Rețetele R1-R5, testate la încovoiere în trei puncte;

Fig. 10. Proprietățile mecanice obținute în urma încercării la încovoiere în trei puncte pentru epruvetele obținute cu cele 5 rețete R1-R5 : a. forță maximă; b. Modulul de elasticitate c. Rezistența la rupere.

Concluzii

Prin testarea epruvetelor obținute cu cele cinci rețete din materiale compozite ranforstate cu particule de sticlă sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate, în diferite proporții se observă că rețeta 4 prezintă cele mai bune proprietăți mecanice și prin urmare este cea mai indicată pentru asigurarea avantajelor propuse și asigurate în cererea de brevet.

Bibliografie

[1] Andreea Archip, A., 2020, Casele din plastic vor putea fi casele viitorului. Cercetătorii au găsit calea de la PET la cărămidă, Ziarul Libertatea, <https://www.libertatea.ro/stiri/caramizi-plastic-rezervi-plastic-cercetare-pet-3107818>, accesat 28 iulie 2020.



- [2] Cestari, S., 2020, *Future Planet/Recycling - Why plastic waste is an ideal building material*. BBC, <https://www.bbc.com/future/article/20200819-why-plastic-waste-is-an-ideal-building-material>, accesat 20 iulie 2020.
- [3] Brock, J., 2020, *Plastic pollution flowing into oceans to triple by 2040: study*, 2020. Reuters, <https://www.reuters.com/article/us-environment-plastic-ocean-pollution/plastic-pollution-flowing-into-oceans-to-triple-by-2040-study-idUSKCN24O2RK>, accesat 2 august 2020.
- [4] Queen's University of Belfast, 2020, *Advancing Creative Circular Economies for Plastics via Technological - Social Transitions (ACCEPT Transitions)*, <https://gtr.ukri.org/projects?ref=EP%2FS025545%2F1>, accesat 28 iulie 2020.
- [5] COMISIA EUROPEANĂ Bruxelles, 2019, 4.4.2019 COM(2019) 149 final, DOCUMENT DE LUCRU AL SERVICIILOR COMISIEI *Evaluarea din 2019 a punerii în aplicare a politicilor de mediu ale UE Raport de țară - ROMÂNIA, 2019*, https://ec.europa.eu/environment/eir/pdf/report_ro_ro.pdf.
- [6] Univers Ingineresc nr.2/2018, *Toate ambalajele din plastic de pe piata UE vor deveni reciclabile până în 2030*, https://www.agir.ro/univers-ingineresc/numar-2-2018/toate-ambalajele-din-plastic-de-pe-piata-ue-vor-deveni-reciclabile-pana-in-2030_5899.html.
- [7] Monitorul Oficial, Partea I nr. 39 din 15 ianuarie 2019, *Ordinul nr. 1362/2018 privind aprobarea Procedurii de autorizare, avizare anuală și de retragere a dreptului de operare a organizațiilor care implementează obligațiile privind răspunderea extinsă a producătorului*.
- [8] Brevet US5702199.
- [9] Brevet US6274637.
- [10] Brevet US20120047833A1.
- [11] Brevet WO2005078209A1.
- [12] Brevet WO2012095626A1.
- [13] WasteAid UK, 2017, *How to transform plastic waste into paving tiles*, Online - <https://wasteaid.org/wp-content/uploads/2017/10/8-How-to-transform-plastic-waste-into-paving-tiles-v1.pdf>, accesat 28 iulie 2020.
- [14] Turner, R.P., Kelly, C.A., Fox, R., Hopkins, B., 2018, *Re-Formative Polymer Composites from Plastic Waste: Novel Infrastructural Product Application*. Recycling 2018, 3(4), 54, doi: 10.3390/recycling3040054.
- [15] Sliuptsova I., Savchenko B., Sova N., Sliuptsov A., 2016, *Polymer sand composites based on the mixed and heavily contaminated thermoplastic waste* – IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, Volume 111, conference 1, doi:10.1088/1757-899X/111/1/012027.
- [16] Silva, R.V. de Brito, J., Lye, C.Q., Dhir, R.K., 2017, *The role of glass waste in the production of ceramic-based products and other applications*, Elsevier Ltd., Journal of Cleaner Production (2017 Jan 1) 167: 346-364, doi:10.1016/j.jclepro.2017.08.185.
- [17] Mariam A. A., Al-Ghanim, Nabil M., Alma H., Saravanan R., US PATENT 2016, *Reinforced polymer composites from recycled plastic* – US9309392, Natural Fibre Composites: Materials, Processes and Properties. ISBN-13: 978-0857095244.
- [18] Tagbor T.A., Adjei D., Boakye A.K., Annan G., 2019, *The Use of Plastic Waste as Transition Materials in the Production of Pavement Blocks*, Civil Eng Res J, Volume 9 Issue 1 - September 2019, doi:10.19080/CERJ.2019.09.555753.

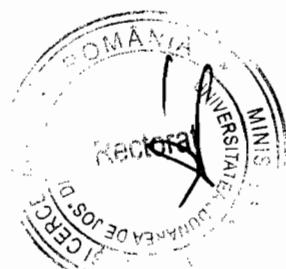
Această lucrare este rezultat parțial al proiectului „Excellență, performanță și competitivitate în activități CDI la Universitatea ”Dunărea de Jos“ din Galați”, acronim ”EXPERT“, finanțat de Ministerul Cercetării și Inovării prin Programul 1 – Dezvoltarea sistemului național de cercetare-dezvoltare, Subprogram 1.2 – Performanță instituțională – Proiecte de finanțare a excelenței în CDI, Contract nr. 14PFE/17.10.2018.



Revendicare

1. Rețeta unui material compozit pe bază de materiale termoplastice și sticlă reciclate, care să poată fi utilizat la fabricarea unor produse folosite în construcții (dale, borduri, caramizi):

Amestec omogen din materiale termoplastice care provin din deșeuri care au fost colectate și sortate primar pe tipuri de polimer: LDPE (10÷14)%; HDPE (5÷10)%; TPU (3÷5)%; PP (3÷5)%; PET (1÷5)% și material de adaos - sticlă 25%, sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate, cu rol de ranforsare și pigment anorganic cu rol de colorant (1÷5)%.



DESENE EXPLICATIVE

Fotografiile, desenele și figurile 1-10 au doar rol explicativ și justificativ, nu fac obiectul publicării.

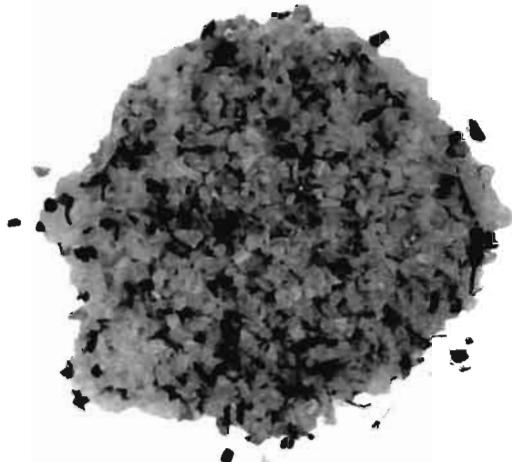


Fig.1. Componenta A: LDPE (10÷14)%; HDPE (5÷10)%; TPU (3÷5)%;
PP (3÷5)%; PET (1÷5)%.



Fig. 2. Componenta B: sticlă sub formă de cioburi sfărâmate prin implozie, concasate.

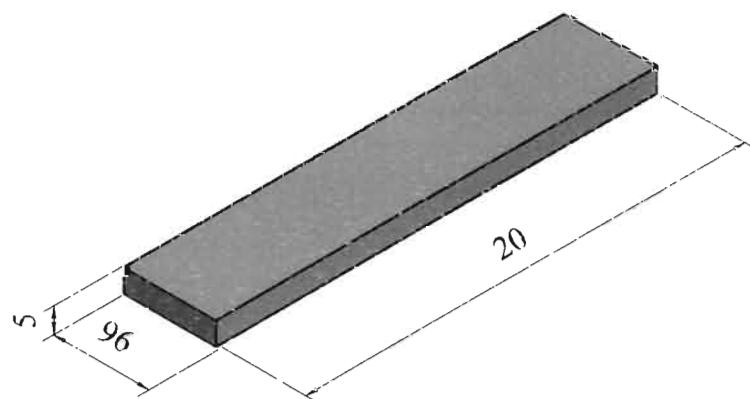


Fig. 3. Epruvetă pentru solicitare la încovoiere în trei puncte



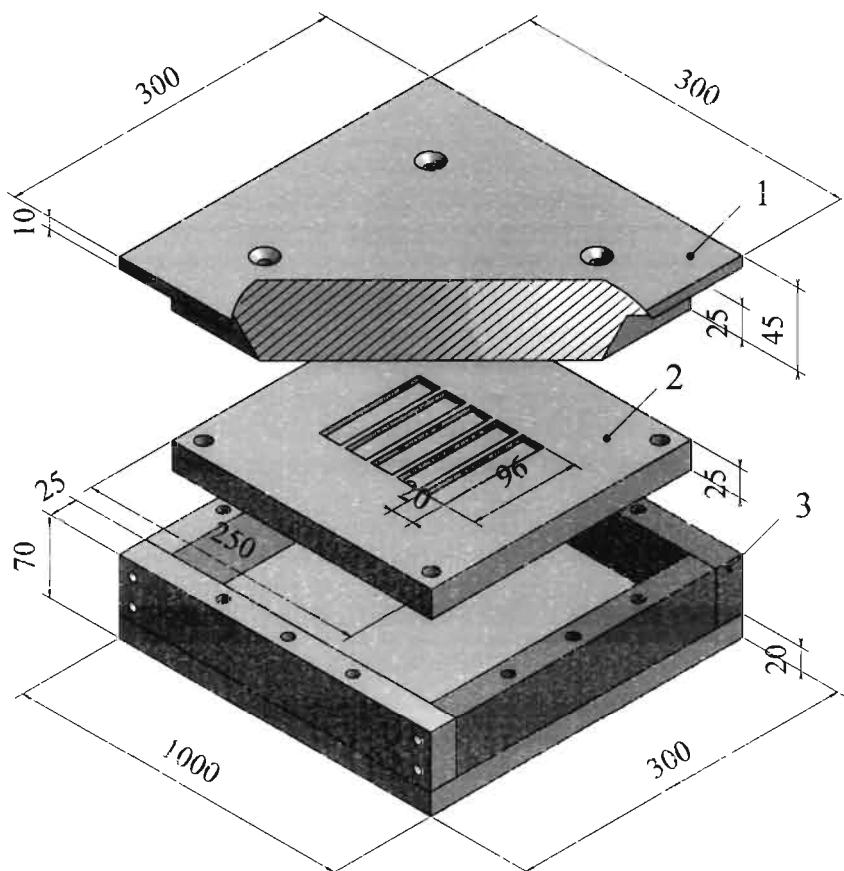


Fig. 4. Matriță metalică pentru obținerea epruvetelor de testare la încovoiere în trei puncte:

1. placă cu rol de poanson; 2. placă activă; 3. placă port placă activă.

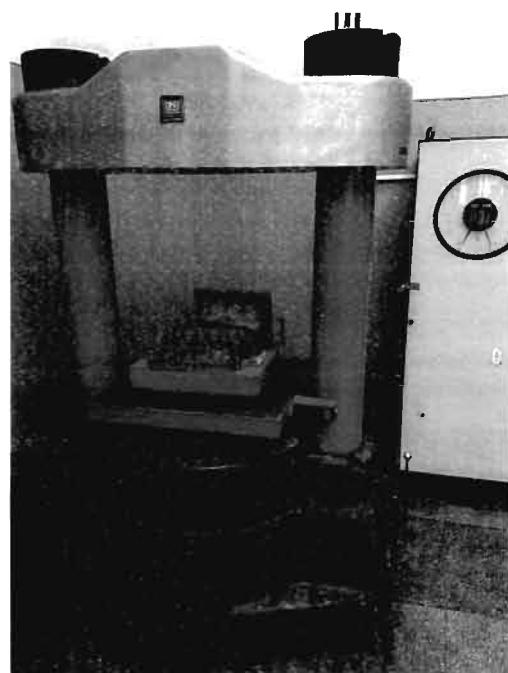


Fig. 5. Presă hidraulică folosită pentru realizarea epruvetelor



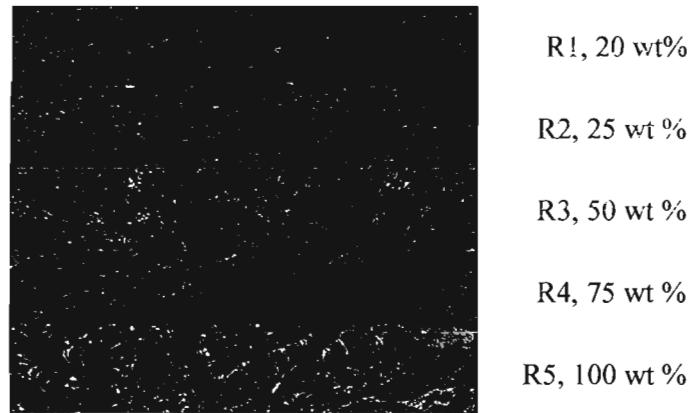


Fig. 6. Aspectul suprafețelor exterioare ale celor 5 tipuri de epruvete fabricate cu rețetele R1-R5

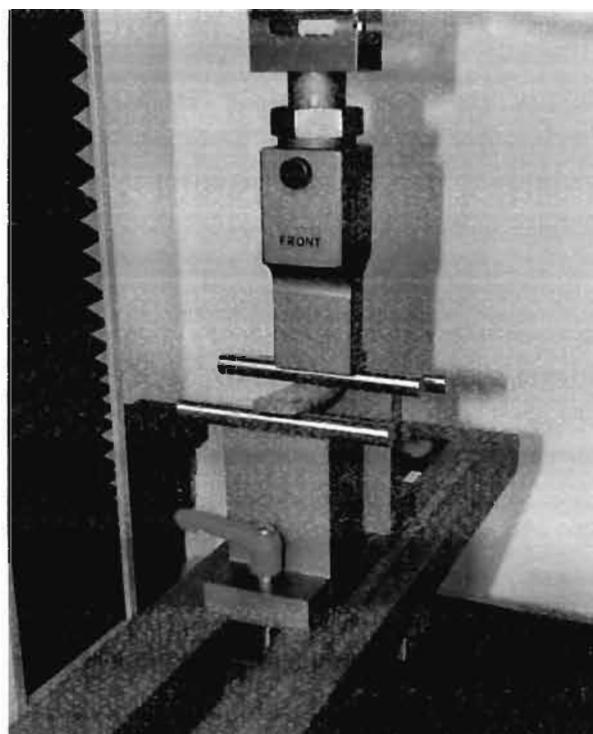


Fig. 7. Mașina universală de testare TESTOMETRIC AM350



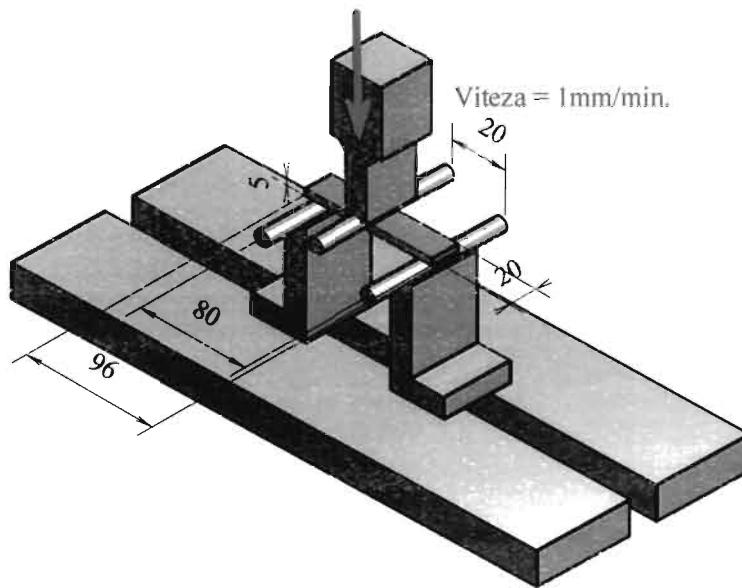


Fig. 8. Dimensiuni ale zonei de lucru în timpul testării epruvetelor

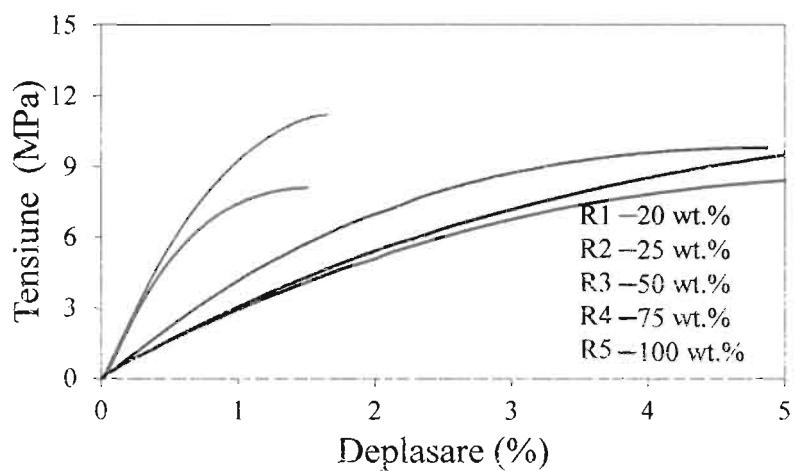
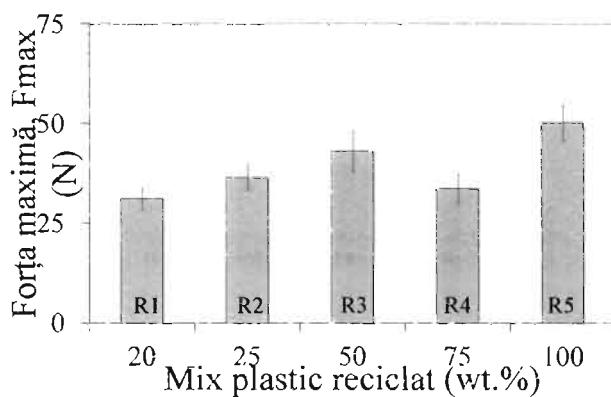
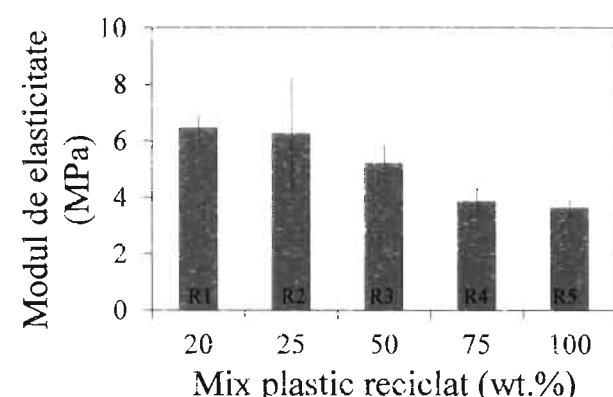


Fig. 9 – Curbele tensiune-deplasare pentru epruvetele fabricate cu Rețetele R1-R5, testate la încovoiere în trei puncte



a.



b.



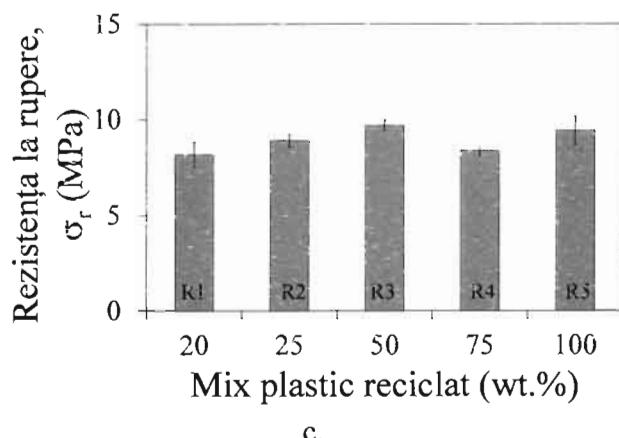


Fig. 10. Proprietățile mecanice obținute în urma încercării la încovoiere în trei puncte pentru epruvetele obținute cu cele 5 rețete R1-R5 : a. forță maximă; b. Modulul de elasticitate c. Rezistență la rupere.

