

薄木贴面木纤维/聚乙烯复合材料的制备工艺及性能

周扬帆^{1,2}, 吕兴聪¹, 张涛¹, 陈伊彬¹, 吕世豪¹, 孙理超^{1,2}

(1. 华南农业大学材料与能源学院; 生物基材料与能源教育部重点实验室, 广东广州 510642;

2. 植物纤维功能材料国家林业和草原局重点实验室, 福建福州 350002)

摘要: 薄木贴面是提升木塑复合材料(WPC)实木感、改善其装饰性能的有效方法。为了解决木纤维/聚乙烯复合材料(WF/PE)表面胶接困难的问题, 选择两种热塑性树脂膜为胶接材料, 采用分段热压工艺进行贴面加工, 以外观质量、表面胶合强度和浸渍剥离长度为性能评价指标, 探究热压工艺及胶接材料种类的影响。发现采用马来酸酐接枝聚乙烯(MAPE)膜为胶接材料, 在两段式工艺: 热压时间160+60 s、热压温度150℃、热压压力1.5 MPa条件下, 薄木贴面WF/PE的综合性能最优。SEM表征证明, MAPE膜可以有效促使薄木和PE基WPC基材之间的界面结合。

关键词: 木纤维/聚乙烯复合材料; MAPE膜; 薄木贴面; 两段式热压; 界面结合

中图分类号: S784; TS653 文献标识码: A 文章编号: 1001-8654 (2020) 06-0020-05

Manufacturing Technologies and Properties of Veneer Overlaying Wood Fiber/Polyethylene Composites

ZHOU Yang-fan^{1,2}, LYU Xing-cong¹, ZHANG Tao¹, CHEN Yi-bin¹, LYU Shi-hao¹, SUN Li-chao^{1,2}

(1. College of Materials and Energy, South China Agricultural University; Key Laboratory for Biobased Materials and Energy of Ministry of Education,

College of Materials and Energy, Guangzhou 510642, Guangdong, China; 2. National Forestry and Grassland Administration Key Laboratory of

Plant Fiber Functional Materials, Fuzhou 350002, Fujian, China)

Abstract: Veneer overlaying on the surface of wood-plastic composite materials is an effective method to enhance solid wood appearance and improve its decorative performance. To solve the problem in the surface bonding of polyethylene-based wood-plastic composites (WF/PE), two thermoplastic resins were selected as bonding materials, and the two separate pressing process was used for veneer processing. The appearance qualities, surface bonding strengths and immersion peeling length of composite panels were tested. It was found that the best performance was achieved by using MAPE film as a bonding material under subsection hot-press time of 160 seconds plus 60 seconds, under the press temperature of 150℃ and the press pressure of 1.5 MPa. The SEM characterization showed that the MAPE film as a bridge promoted the formation a firm interface between veneer and WF/PE composites substrates.

Key words: wood fiber/polyethylene composites; MAPE film; veneer overlaying; subsection hot-pressing; interface bonding

收稿日期: 2019-12-25; 修改日期: 2020-10-21

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金资助项目“基于熔体流动三维模拟的木塑复合材料共挤出界面畸变调控机理”(31700494); 植物纤维功能材料国家林业和草原局重点实验室开放研究基金资助项目“表层阻燃芯层增强共挤出木塑界面调控机理研究”(2019KFJJ09); 国家重点研发计划课题“功能型生物基建材及生态功能型部品制造工艺与装备技术”(2019YFD1101203); 广州市教育局林业工程重点学科, 广东省大学生创新创业训练计划项目“薄木贴面木塑复合材料的综合性能研究”(201710564300)。

作者简介: 周扬帆(1997—), 男, 本科生。Email: younbaoy@163.com

通讯作者: 孙理超, 男, 博士, 副教授。Email: sunlichao@scau.edu.cn

近年来,木塑复合材料作为一种新型环保材料,凭借其自身优良性能,在家居、建筑、交通运输、室外装饰等多个领域广泛使用^[1-3]。然而,与天然木材相比,木塑复合材料的木质感较差,缺乏木材独有的触感与视觉特性,极大限制了其在高端领域的应用,因此,对木塑复合材料进行表面装饰加工,改善其外观装饰性能、提升其整体装饰水平尤为重要^[4]。目前木塑复合材料的表面装饰方法主要有两类:一类是通过加工彩色型材或者压花与拉毛等方法,直接在木塑复合材料表面进行修饰加工;另一类是利用浸渍纸、薄木等饰面材料,在木塑复合材料表面进行贴覆处理。其中,贴覆薄木是提升实木感的最有效方法之一^[5-6]。

聚乙烯(PE)基木塑复合材料由于表面为非极性的聚乙烯成分,表面能极低,与自身及其他材料胶接困难,限制了其在家居行业的应用拓展^[7-10]。提高木塑复合材料表面胶结性能的研究,多集中在化学或物理改性,在材料表面引入一些易于发生反应的极性化学基团,提高材料的表面能;或通过机械打磨,打磨掉表面的塑料层,使内部的极性纤维部分裸露出来^[11],从而实现表面的胶接。尽管聚烯烃类聚合物已能实现胶接,但用于聚乙烯基材料胶接的胶黏剂种类少,胶接条件要求苛刻,成本又相对较高,操作复杂,尚不适合工业化生产使用。有研究发现,利用马来酸酐接枝聚乙烯(MAPE)薄膜为胶接层,木单板贴面木塑复合材料的胶接性能优良,且操作简单,便于工业化生产,同时无甲醛释放^[12]。目前针对薄木贴面木纤维/聚乙烯复合材料的研究鲜见报道。

笔者以木纤维/聚乙烯复合材料(WF/PE)复合材料为基材,以红栎(*Quercus rubra*)薄木为贴面材料,选择两种热塑性树脂膜(PE膜、MAPE膜)为胶接材料,采用两段式热压工艺制备薄木贴面WF/PE复合材料,研究复合材料的最优制备工艺,表征其综合性能并揭示其界面结合形貌,为开发和制备表面装饰性能优良的木塑复合材料提供途径。

1 材料与方法

1.1 材料

1) WF/PE 复合材料基材:幅面尺寸 1 000

mm×150 mm×24 mm,厚度 24 mm,数量 50 块,密度 1.16 kg/m³。PE 质量分数 27%,木粉质量分数 60%,其余为碳酸钙粉等助剂,外购。

2) 红栎表面装饰薄木:规格 2 500 mm×200 mm×0.2 mm,含水率 6%~10%,外购。

3) 胶接材料:① 聚乙烯膜(PE 膜),密度 0.94 g/cm³,厚度 0.10±0.01 mm,外购;② MAPE 膜,MAPE 颗粒热压自制,密度 0.90 g/cm³,厚度 0.20±0.01 mm。

1.2 仪器与设备

平板硫化机、电子万能实验机(CMT5504, Grade0.5)、智能型电热板(SKML-2-4)、扫描电子显微镜(SEM, EVO18)。

1.3 试验方法

1.3.1 试验设计

试验分两步进行:1) 探究热压工艺。采用单因素法,以 PE 膜胶接薄木和基材,结合前期预实验结果设置热压参数(表 1),分别采用一段式或两段式热压工艺,以及不同热压温度、压力和时间制备薄木贴面复合材料,观察制备材料试样的外观质量及胶合情况,确定优选热压工艺参数范围;2) 比较两种胶接材料。分别采用 MAPE 膜和 PE 膜为胶接材料,按优选的相同热压工艺参数对复合材料进行薄木贴面加工,通过 SEM 表征,分析揭示界面胶合形貌。

表 1 热压工艺影响因子

Tab.1 Hot press variables

胶接材料	热压工艺	热压温度/℃	热压压力/MPa	热压时间/s
PE	一段式			120~200
PE	二段式	130~150	1~3	120~200+20~80
MAPE	二段式			120~200+20~80

1.3.2 材料制备

将 WF/PE 基材锯裁成 110 mm×150 mm×24 mm 若干块备用,打磨、除尘,裁剪尺寸合适的薄木、PE/MAPE 膜备用。用双层 PE/MAPE 膜为胶接材料,按薄木-PE/MAPE 膜-WF/PE 基材的结构组坯,按试验设计热压工艺制备材料。制备后的试件放在室温陈放 72 h 以上,每组样品不少于 20 块。

1.4 性能测试

1) 装饰面板外观质量:按照 GB/T 15104—2006《装饰单板贴面人造板》的优等等级要求测试。

2) 表面胶合强度: 按照 GB/T 17657—2013《人造板及饰面人造板理化性能试验方法》测试, 试件尺寸为 50 mm×50 mm, 每组至少测试 5 个试件, 加载速率为 2 mm/s。

3) 浸渍剥离性能: 按照 GB/T 17657—2013 中 II 类浸渍剥离试验的方法测试, 试件尺寸为 75 mm×75 mm, 每组至少测试 5 个试件。具体测试方法是, 将待测试件放置在 (63±3)℃ 的热水中煮 3 h, 取出后再置于 (63±3)℃ 的烘箱中干燥 3 h, 测量四边的剥离长度。

4) 胶合界面 SEM 表征: 对喷金后试样的胶合界面形貌进行观察。

2 结果与分析

2.1 热压工艺探究

2.1.1 一段式热压工艺

采用 PE 膜胶接薄木和基材, 在不同温度、压力及时间条件下, 薄木贴面复合材料试样的外观质量和胶合情况列于表 2。

表 2 一段式热压工艺制备试样的外观质量和胶合情况
Tab.2 Appearance qualities and glue conditions of samples
by one-stage hot press

序号	热压温度/℃	热压压力/MPa	热压时间/s	板面污染 ^a	透胶	裂缝	鼓泡	压痕	胶合情况 ^b
1	130	1.5	120	无	无	无	无	无	无
2	140	1.5	120	无	无	无	无	无	无
3	150	1.5	120	无	无	无	少量	无	一般
4	160	1.5	120	轻微	无	无	少量	无	一般
5	170	1.5	120	轻微	轻微	无	较多	无	较差
6	150	1.0	120	无	无	无	无	无	无
7	150	1.5	120	无	无	无	少量	无	一般
8	150	2.0	120	无	轻微	较少	少量	轻微	一般
9	150	2.5	120	无	较多	较多	较多	一般	较差
10	150	3.0	120	无	严重	较多	多	严重	较差
11	150	1.5	120	无	无	无	少量	无	一般
12	150	1.5	140	无	无	无	少量	无	一般
13	150	1.5	160	无	无	无	少量	无	一般
14	150	1.5	180	轻微	轻微	无	较多	无	较差
15	150	1.5	200	轻微	轻微	少量	较多	无	较差

a 板面污染: 主要是指薄木烧糊;

b 胶合情况判断: “无”一薄木与基材完全无胶合作用; “较差”一薄木与基材轻微胶合, 但轻易剥落; “一般”一薄木与基材稍用力即剥落, 但无法利用万能力学试验机测得相关数据。

从表 2 中可知, PE 膜胶接试样的胶合情况随热压温度的逐步升高而改善, 但温度过高时, 表面出现烧糊、透胶和鼓泡的现象。随着热压压力的升高, 不仅胶合情况没有明显提升, 而且由于压力过大, 导致表面逐渐出现透胶、裂缝、鼓泡和压痕等缺陷, 使胶合情况更差。当热压时间逐渐延长时, 胶合情况亦没有明显改善, 且随着热压时间的增加, 表面出现烧糊、透胶、压痕和越来越多的鼓泡。

综上可得, 当热压温度 150℃、热压压力 1.5 MPa、热压时间在 120~160 s 时, PE 膜胶接试样的外观质量相对较佳, 但由于一段式热压的局限性, PE 膜熔融产生的气体难以排出, 形成鼓泡。

2.1.2 两段式热压工艺

表 3 列出两段式热压工艺下试样的外观质量和胶合情况。

表 3 两段式热压工艺试样的外观质量和胶合情况
Tab.3 Appearance qualities and glue conditions of samples
by two-stage hot press

序号	热压时间/s	热压温度/℃	热压压力/MPa	板面污染	透胶	褶皱	鼓泡	压溃	胶合情况
1	120+20	150	1.5	无	无	无	无	无	良好
2	120+40	150	1.5	无	无	无	无	无	良好
3	120+60	150	1.5	无	无	无	少量	无	一般
4	120+80	150	1.5	轻微	轻微	无	较多	无	良好
5	140+20	150	1.5	无	无	无	无	无	良好
6	140+40	150	1.5	无	无	无	无	无	良好
7	140+60	150	1.5	无	轻微	无	少量	无	良好
8	140+80	150	1.5	轻微	轻微	无	少量	无	良好
9	160+20	150	1.5	无	无	无	极少	无	一般
10	160+40	150	1.5	无	无	无	无	无	一般
11	160+60	150	1.5	无	无	无	无	无	良好
12	160+80	150	1.5	轻微	无	轻微	极少	无	一般

注: 胶合情况中“良好”代表薄木与基体胶合较紧密, 较难剥落。

试验发现, 两段式热压工艺可以有效避免鼓泡现象。通过工艺初探, 把热压时间范围缩小在一定范围内, 锁定第一段热压时间在 120~160 s、第二段热压时间在 20~60 s 之间的组合时间组。从表 3 中可以发现, 通过两段式热压, 不但使胶合情况有所改善, 而且鼓泡现象明显减少, 且热压时间组合为 120+20 s、120+40 s、140+20 s、140+40 s、160+60 s 的试样, 外观质量和表面胶合情况均相对较好。

12 组试样的表面胶合强度和浸渍剥离强度测试结果如图 1 所示。

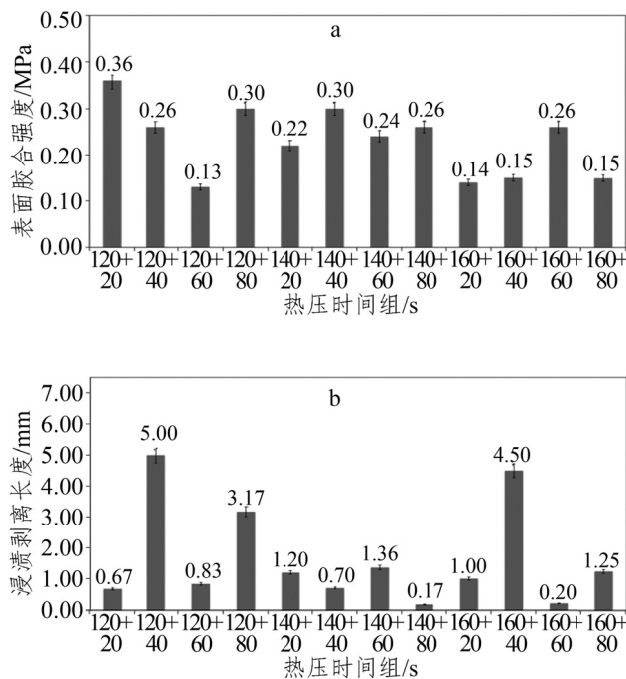


图1 两段式热压工艺对试样胶合性能的影响

Fig.1 Effect of two-stage hot press on the bonding strength

由图 1a 可以发现,以 PE 膜为胶接材料,所有试样的表面胶合强度值不高,外观质量较好的样品(120+20 s)最大表面胶合强度也仅有 0.36 MPa,这是由于薄木表面的天然纤维含有丰富的羟基,这些羟基形成了分子内氢键或分子间氢键,表现出较强的极性和亲水性,而塑料表面是非极性的,表现为疏水性,导致植物纤维与塑料的界面润湿性、胶接性极差^[2]。

由图 1b 观察可得,在不同热压时间组内均有浸渍剥离长度较小的试件,其中当热压时间为 120+20、140+40、140+80、160+60 s 时,浸渍剥离长度相对较小,与表面胶合强度及外观质量观察的结果基本一致。

根据 PE 膜胶接试样的外观质量、表面胶合强度、浸渍剥离长度综合考虑,初步确定两段式热压工艺,且较优的热压参数组合为:温度 150 ℃,压力 1.5 MPa,时间为 120+20、140+40、160+60 s。

2.2 两种膜胶接材料比较

热压工艺初步探究试验以 PE 膜为胶接材料,为验证和比较优选的工艺参数对 MAPE 膜的适用性,按相同的工艺条件进行了 MAPE 膜胶接薄木贴面复合材料的试验。试样的外观质量和胶合情况,列于表 4。

表 4 两种薄胶接试样的外观质量和胶合强度比较

Tab.4 Comparison of samples bonded with PE and

MAPE films					
序号	胶接材料	热压时间组/s	外观质量	表面胶合强度/MPa	浸渍剥离长度/cm
1	MAPE 膜	120+20	良好	/	/
2	MAPE 膜	140+40	良好	0.38	0.58
3	MAPE 膜	160+60	优	1.23	0
4	PE 膜	120+20	良好	0.36	0.67
5	PE 膜	140+40	良好	0.30	0.70
6	PE 膜	160+60	良好	0.26	0.20

注:“/”表示胶合强度难以通过电子万能试验机的测试,可人为剥离。

比较表 4 数据可知,MAPE 膜使试样的外观质量和胶合情况有了明显改善,其中以热压时间为 160+60 s 时效果最好,其表面胶合强度和浸渍剥离性能明显优于 PE 膜胶接试样。

这是因为 MAPE 膜能与木质纤维上的活性羟基发生酯化反应,降低了木纤维的极性,而 MAPE 的另一端是长非极性大分子链,与 PE 基体有缠结及相似相溶的作用,实现偶联搭桥的功能^[11],从而使薄木与 PE 木塑基材形成良好的胶合界面。此外,MAPE 膜极高的耐水性,对薄木和木塑基体之间形成的界面层的耐水性和浸渍剥离性能亦起到了很好的改善作用。然而,由于自制的 MAPE 膜较厚,热压时间组为 120+20s 和 140+40s 时,第二阶段较短的热压时间使 MAPE 膜不能充分熔融,导致其表面胶合性能较低并出现外观缺陷。

通过图 2a 观察可以发现 PE 膜为胶接材料时,熔融的 PE 膜与木塑基体之间完全融合,基本观察不到 PE 膜的存在,但其与薄木之间有明显的缝隙,没有形成有效的胶合界面层,这也是其表面胶合强度较低的重要原因。当以 MAPE 膜为胶接材料时(图 2b),由于 MAPE 膜有一定的厚度,胶接后仍可以观察到 MAPE 膜的存在,且 MAPE 膜与木塑基材结合紧密,未观察到明显的分界层,表面的薄木纤维也能很好的与 MAPE 膜胶接在一起,实现了薄木与 WF/PE 复合材料的高强度结合的纽带作用,使其表面胶合强度显著提高,浸渍剥离性能明显改善。

2.3 最优工艺验证试验

以 MAPE 膜为胶接材料,进一步探究最适宜的热压时间组,从而确定薄木贴面 WF/PE 复合材料的最优工艺。

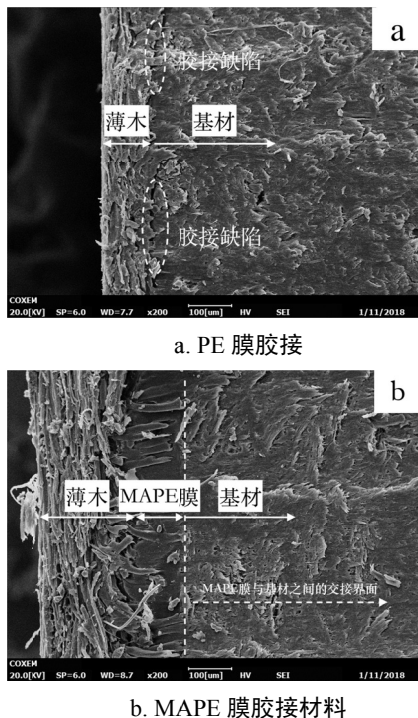


图2 两种薄胶接试样的胶接界面
Fig.2 Adhesive interface pictures of samples bonded with PE and MAPE films

表5结果表明,在热压温度150℃、压力1.5MPa条件下,采用MAPE膜为胶接材料,以热压时间160+60s组的试样外观质量和胶合情况最优,薄木与基材胶接紧密,难以人为剥落,测试其表面胶合强度为1.23MPa,浸渍剥离长度0cm。

表5 双段式热压工艺下MAPE膜胶接试样外观质量
Tab.5 Performance of veneer and WPC composite bonded with the MAPE film under two-stage hot press

热压时间组/s	板面污染	透胶	褶皱	鼓泡	压溃	胶合情况
120+20	无	无	无	无	无	一般
140+40	无	无	无	少量	无	良好
160+60	无	无	无	无	无	优

注:胶合情况中“优”代表代表薄木与基材胶接紧密,难以人为剥落。

3 结论

1) 适当的工艺条件下,PE膜制备的薄木贴面WF/PE复合材料可以形成良好的外观质量,但表面胶合强度有待提高。

2) 以MAPE膜为胶接材料,热压温度150℃,热压压力1.5MPa,采用双段式热压时间组160+60s时,薄木贴面WF/PE复合材料的综合性能最优。

3) MAPE膜可有效胶接薄木与WF/PE复合材料,在适当的热压工艺条件下,熔融状态的MAPE膜可大幅提高薄木和WF/PE复合材料的界面层结合强度和耐水性。

参考文献:

- [1] 王清文, 易欣, 沈静. 木塑复合材料在家具制造领域的发展机遇[J]. 林业工程学报, 2016, 1(3): 1-8.
WANG Q W, YI X, SHEN J. Tailoring wood-plastic composites for furniture production: possibilities and opportunities [J]. China Forestry Science and Technology, 2016, 1(3): 1-8.
- [2] 叶晓丹, 于辉, 杨慧敏, 等. 木塑复合材料界面改性研究[J]. 竹子研究汇刊, 2015, 34(4): 11-16.
YE X D, YU H, YANG H M, et al. Research progress in interface modification of wood-plastic composites [J]. Journal of Bamboo Research, 2015, 34(4): 11-16.
- [3] 王辉, 邸明伟. 硅烷偶联剂处理木塑复合材胶接接头的耐水性[J]. 粘接, 2011 (5): 42-45.
WANG H, DI M W. On water-resistance for bonding joints of wood/PE composites treated with silane coupling agent [J]. Adhesion in China, 2011 (5): 42-45.
- [4] 苏艳炜, 欧彬. 木塑家具表面装饰性设计研究[J]. 轻工科技, 2015(9): 105-106.
- [5] 姚爱莹, 宋魁彦. 木塑复合材料表面装饰研究[J]. 安徽农业科学, 2015, 43(3): 226-229.
YAO A Y, SONG K Y. The Study of Surface Decoration for Wood Plastic Composite Materials [J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2015, 43(3): 226-229.
- [6] 周扬帆, 陈伊彬, 张涛, 等. 薄木贴面聚氯乙烯基木塑复合材料贴面工艺参数对其性能的影响[J]. 木材工业, 2020, 34(3): 10-13, 17.
ZHOU Y F, CHEN Y B, ZHANG T, et al. Effects of technical parameters on performance of veneered PVC-based wood/plastic composites [J]. China Wood Industry, 2020, 34(3): 10-13, 17.
- [7] 王辉, 邸明伟, 王清文. 热环境对偶联剂处理聚乙烯木塑复合材表面性质的影响[J]. 林业科学, 2013, 49(12): 114-120.
WANG H, DI M W, WANG Q W. Effect of heat on the surface properties for wood/polyethylene composites treated by silicane coupling agent [J]. Scientia Silvae Sinicae, 2013, 49(12): 114-120.
- [8] LIU Y, TAO Y, LUV X, et al. Study on the surface properties of wood/polyethylene composites treated under plasma[J]. Applied Surface Science, 2010, 257(3): 1112-1118.
- [9] Laborie M, Gupta B. Oxyfluorination of wood-fiber reinforced thermoplastic composites to improve adhesion[J]. The Journal of Adhesion, 2008, 84(10): 830-846.
- [10] 潘雨婷, 梦竹, 方露, 等. 干胶免涂薄木贴面工艺优化[J]. 家具, 2018, 39(6): 15-18.
- [11] 刘柳, 夏英, 马春, 等. 木塑复合材料的研究进展[J]. 现代塑料加工应用, 2006, 34(6): 90-93.
- [12] 郭丽敏, 王伟宏, 王清文. 木粉-HDPE复合材料的单板贴面效果研究[J]. 西南林业大学学报, 2014, 34(5): 95-98.
GUO L M, WANG W H, WANG Q W. Study on veneer overlaid of wood-flour/HDPE composites [J]. Journal of Southwest Forestry University, 2014, 34(5): 95-98.

(本文编校 张鹏、向琴)