

Goran Mihulja, Andrija Bogner, Hrvoje Turkulin¹⁾

Modificiranje površine bukovine ozračivanjem UV svjetlošću

Modification of the beech – wood surface by UV - irradiation

Prethodno priopćenje - Preliminary paper

Prispjelo - received: 26. 07. 1999. • Prihvaćeno - accepted: 16. 09. 1999.

*UDK 630*812.16;824.8*

SAŽETAK • U radu su provedena istraživanja mogućnosti modificiranja površine bukovine elektromagnetskim valovima UV dijela spektra.

Istodobno djelovanje vlage i UV svjetlosti velikog intenziteta djeluje na promjene svojstava bukovine povećavajući energiju površinskog sloja drva i čvrstoću. Kako ti parametri imaju najveći utjecaj na čvrstoću u sustavima lijepljenja, načinjen je pokus da bi se utvrdilo može li takvo djelovanje prouzročiti povećanje čvrstoće slijepljenog spoja. Djelovanje UV svjetlosti procijenjeno je mjerenjem promjene površinske energije i čvrstoće spoja izlaganih i neizlaganih uzoraka.

Uzorci su u osnovi bili izrađeni prema DIN-u EN 204, ali je duljina uzoraka smanjena kako bi kontrolirana površina obuhvaćala što je moguće veću površinu ispitnih pločica od kojih su uzorci bili izrađeni. Opterećenje je izvedeno tlakom.

Rezultati naznačuju da se UV osvjetljavanjem prije lijepljenja može povećati čvrstoća spoja. Proširenjem tog pokusa utvrdit će se točni parametri te metode.

Ključne riječi: bukovina, modificiranje površine, UV svjetlost, čvrstoća slijepljenog spoja.

SUMMARY • The paper presents research into the possibilities of the modification of the beech-wood surface by exposure to the electromagnetic waves in the UV spectral portion.

The simultaneous action of moisture and high-intensity UV light causes changes of the beech-wood properties and its surface energy. Since these parameters are highly influential in the gluing mechanisms, the experiment has been performed with the scope of determining whether such exposure can lead to an increase in the glue-bond strength. The effect of UV light was assessed by measurements of the surface energy and the glue-bond strength of the

¹⁾ Autori su redom asistent, izv. proesor. i docent na Šumarskom fakultetu Sveučilišta u Zagrebu.

Authors are an assistant, an associate professor and an assistant professor, respectively, at the Faculty of Forestry of the Zagreb University.

exposed and control specimens.

The test specimens were made according to the DIN EN 204 norm, the length of the specimens being reduced in order that the testing surface occupies the greater proportion of the surface of the assembled wood plates. The shear stress was induced by compression to the specimens. The results indicate that the UV irradiation prior to adhesive application can improve the strength of the bond. The continuation of this experiment will enable the determination of exact parameters of the method.

Key words: *beech-wood, surface modification, UV light, glue-bond strength.*

1. UVOD

U procesima lijepljenja drva moguće je ostvariti dobru adhezijsku vezu ako tekuće ljepilo dobro kvasi površinu drva koje želimo zaljepiti. Na taj će se način ostvariti potreban bliski kontakt i između molekula polimernog materijala koji služi kao ljepilo i drvnih polimera, pa će to omogućiti stvaranje zadovoljavajućih adhezijskih veza.

Na kvašenje površine drva utječu mnogi činitelji, npr. starenje površine, hrpa-vost i temperatura. Da bismo poboljšali kvašenje, moramo povećati energiju površinskog sloja drva ili smanjiti površinsku napetost ljepila. U ovom radu obrađujemo samo mogućnosti povećanja energije površinskog sloja drva. Povećanje energije površinskog sloja drva prema dosadašnjim istraživanjima (prema navodima Bognera, 1993) moguće je postići:

- modifikacijom površine mehaničkim metodama
- modifikacijom površine kemijskim aktiviranjem
- modifikacijom površine ozračivanjem.

Istraživanje smo započeli pretpostavkom da UV svjetlost, djelujući na vlažnu površinu drva, u kratkom vremenu izlaganja prouzrokuje promjene koje mogu pozitivno utjecati na adheziju. Pretpostavka se temelji na činjenicama dokazanim u dva znanstvena rada, i to autora Bognera (1993) i Turkulina (1996).

Prva je činjenica vezana za mogućnost da se elektromagnetnim zračenjem može postići povećanje energije površinskog sloja drva (Bogner, 1993). Taj je podatak iznimno važan, jer je poznato da porast iznosa energije površine povećava kvašenje površine drva ljepilom, a time i adheziju sustava drvo - ljepilo.

Druga činjenica vezana je za podatke koji pokazuju da kratkotrajnim izlaganjem vlažnog drva UV svjetlosti dobivamo povećanje čvrstoće površinskog sloja (Turkulin, 1996). Taj je podatak bitan jer se povećanjem čvrstoće supstrata (u ovom

slučaju drva) može povećati i čvrstoća sustava drvo - ljepilo.

2. CILJ ISTRAŽIVANJA

Određiti režim vlaženja površine kako bi za vrijeme izlaganja UV svjetlosti u QUV uređaju vlažnost bila na razini točke zasićenosti vlaknaca.

Procijeniti vrijeme izlaganja u kojemu će površina drva postići najveći iznos energije površinskog sloja.

Ustanoviti vrijeme od posljednjeg vlaženja do vađenja ispitnih pločica iz QUV uređaja. Taj je podatak potrebno odrediti radi uklanjanja utjecaja drugih tehnoloških parametara na lijepljenje (kvašenje, penetraciju i dr.), npr. razlike u vlažnosti površine izlaganih i neizlaganih ispitnih pločica.

Određiti tlak prešanja za vrijeme lijepljenja. Najnižim potrebnim tlakom izbjeći utjecaj tlaka na kvašenje i penetraciju.

Izraditi probe i ispitati smičnu čvrstoću spoja.

Proučiti sljubnice i donijeti zaključke.

3. MATERIJALI I METODE ISTRAŽIVANJA

Za ispitivanje je rabljena bukovina gustoće $0,681 \text{ g/cm}^3$, prosječnog sadržaja vode 8,7% (određeno elektro - otpornim vlagomjerom GANN HT 85T). Materijal je strojno obrađen u ispitne pločice dimenzija $10 \times 115 \times 160 \text{ mm}$ polublistave / blistave površinske teksture. Dimenzije ispitnih pločica određene su raspoloživom površinom izlaganja u QUV uređaju. Svrha i broj ispitnih pločica prikazani su u tablici 4.1.

Svi su uzorci najprije obrađeni blanjanjem na debljači, a kasnije, nakon kondicioniranja površine sljubnica, ručno su izbrušene brusnim papirom FLINT - SCHLEIF K 120. Budući da su metode istraživanja zahtijevale vlaženje površine drva destiliranom vodom, uzorci su vlaženi ručnom prskalicom.

Svrha ispitnih pločica <i>Type of test plates</i>	Broj ispitnih pločica (kom.) <i>Number of test plates</i>
1. Određivanje energije površinskog sloja <i>Determination of the surface energy</i>	
Suho izlagane u QUV uređaju <i>Exposed dry in QUV</i>	6
Vlažene tijekom izlaganja u QUV uređaju <i>Wetted during QUV exposure</i>	6
2. Praćenje sadržaja vode tijekom izlaganja <i>Moisture control during exposure</i>	4
3. Određivanje podobnosti ljepila <i>Determination of the applicability of the adhesive</i>	
Vlažene tijekom izlaganja u QUV uređaju <i>Wetted during QUV exposure</i>	1
Kontrolne neizlagane pločice <i>Unexposed control plates</i>	1
4. Ispitne pločice za glavno ispitivanje <i>Test plates for the main test</i>	
Izlagane u QUV uređaju <i>Exposed in the QUV</i>	12
Kontrolne neizlagane pločice <i>Unexposed control plates</i>	12

Tablica 1.
*Popis ispitnih pločica
uporabljenih u radu • List
of test plates used in
experiments*

Metode

Mjerenje energije površinskog sloja uvelike ovisi o kapilarnim silama tog sloja. Dakle, ta sila postoji u poroznim i hrapavim površinama kao što je drvo. Može se mjeriti energijom koja se utroši da bi se određeni volumen vode premjestio s jednog mjesta na drugo. Mjerenje je obavljano (prema Bogneru, 1993) tako da je staklena kapilara promjera 0,35 mm, napunjena vodom, pažljivo postavljena čelom na površinu drva i tu ostavljena jednu minutu kako bi se površina zasitila vodom. Nakon toga izmjerena je promjena razine vode u kapilari Δh i izračunana energija površinskog sloja prema jednadžbi:

$$E_{ps} = \Delta h^2 \cdot \rho \cdot g \text{ (J/m}^2\text{)} \dots\dots\dots (1)$$

gdje je:

ρ - gustoća vode (1000 kg/m³)

g - ubrzanje (9,81 m/s²)

Δh - visina stupca vode koju je drvo "izvuklo" iz kapilare (mm)

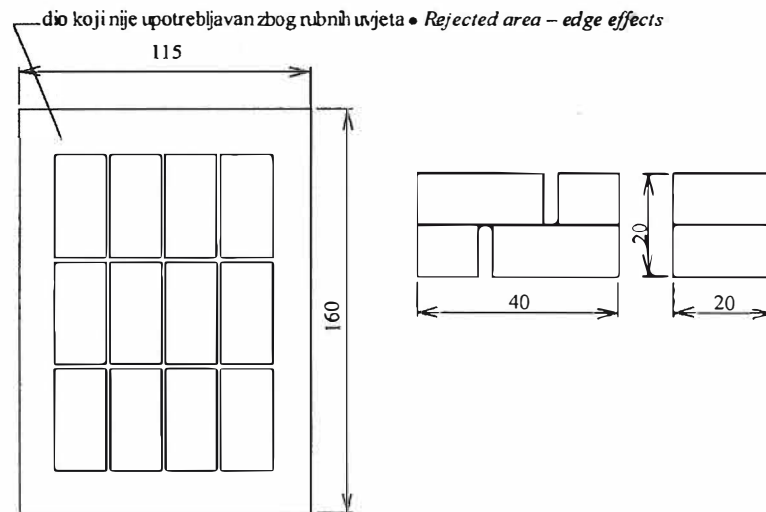
Parametri poput uvjeta i vremenskih intervala izlaganja UV svjetlosti uzeti su po uzoru na režime izlaganja kojima se koristio Turkulin (1996). On je drvo izlagao pri visokoj relativnoj vlažnosti zraka (>95%) pri čemu je drvo bilo zasićeno vodom. Voda se pokazala potičućim činiteljem promjena koje dovode do početnog povećanja prekidne čvrstoće osvijetljenog površinskog sloja drva. U ovom pokusu nije bilo moguće

održavati visoku vlažnost zraka u komori jer bi to prouzročilo ne samo vlaženje površine nego i vlaženje dubljih slojeva ispitnih pločica, a time i njihove deformacije. Osim toga, izlaganjem UV svjetlosti u suhim uvjetima autori su željeli postići da na kraju izlaganja, tj. prije lijepljenja, površina ima približno jednak sadržaj vode (~12%) kao i površina neizlaganih pločica.

Razvoj režima izlaganja odnosi se na točnije određivanje procijenjenog vremena izlaganja u kojemu će površina drva postići najveći iznos energije površinskog sloja. To je provedeno izdvajanjem 12 ispitnih pločica, kojima je zatim izmjerena energija površinskog sloja. Jedna skupina od šest ispitnih pločica bila je izlagana UV svjetlosti mokrom površinom natopljenom vodom, a druga je skupina radi usporedbe izlagana bez vlaženja površine. Ispitne pločice za vlažno izlaganje prskane su destiliranom vodom neposredno prije ulaganja u QUV uređaj. Nakon 10 min vlaženje je nastavljeno na ispitnim pločicama broj 4, 6, 8, 10, 12. Potom je nakon svakih 10 min ponovljen postupak vlaženja, s time da je nakon 30 min od daljnjeg vlaženja izuzeta ispitna pločica broj 4, nakon 60 min i ispitna pločica broj 6, pa nakon 90 min broj 8, nakon 150 min broj 10, te nakon 210 min ispitna pločica broj 12. Ako svakom navedenom vremenu posljednjeg vlaženja pojedinih ispitnih pločica dodamo 30 min (vrijeme sušenja koje ispitna pločica

Slika 1.

Shema izrade uzoraka od ispitnih pločica te njihov oblik i dimenzije • Scheme of the specimen positions as machined from the assembly plates and the dimensions of the test specimen



još provede u uređaju da bi sadržaj vode pao na 12%) dobijemo ukupno trajanje izlaganja pojedine ispitne pločice.

Nakon izlaganja svaka je ispitna pločica ostavljen dodatnih 30 min u laboratorijskim uvjetima ($t = 20^{\circ}\text{C}$ i relativna vlaga zraka 78%) kako povišena temperatura površine ne bi utjecala na rezultate mjerenja energije površinskog sloja drva. Rezultati promjene energije površinskog sloja u vremenu prikazani su dijagramom (sl. 2). Najjača aktivacija površine ostvarena je nakon 60 min izlaganja.

Tijekom tih ispitivanja primijećena je potreba usavršavanja režima vlaženja jer su se ispitne pločice vidno deformirale zbog prevelike količine vode. Rezultati dodatnog pokusa prikazani su dijagramom na slici 3. Prema dijagramu, izabran je povoljan režim vlaženja.

Biolo je potrebno provjeriti brzinu otvrdnjavanja ljepila kako bi se izbjegla mogućnost preranog želiranja ljepila nanesenog na ohlađenu modificiranu površinu drva, posljedica čega bi bila nemogućnost usporedbe rezultata kontrolnih i modificiranih skupina uzoraka. Provjera je obavljena tako da je na ispitnu pločicu naneseno ljepilo, ispitna pločica je potom položena na kosinu te je niz nju puštena metalna kuglica. Rezultat je pokazao približno jednaku duljinu puta kuglice na ispitnoj pločici modificirane i nemodificirane površine.

Režimi izlaganja određeni su ovim parametrima glavnog pokusa:

- upotrebene su lampe UV-A 340
- temperatura crne plohe $-57 \pm 2^{\circ}\text{C}$
- temperatura u QUV uređaju $60 \pm 5^{\circ}\text{C}$
- ukupno trajanje izlaganja: 60 minuta
- režim vlaženja ispitnih pločica vodom: svakih 5 minuta počevši od nule (7 puta tijekom izlaganja)
- količina nanosa vode prilikom vlaženja:

dva pritiska na ručicu raspršivača

- trajanje sušenja površine (drugi dio izlaganja): 30 minuta nakon posljednjeg vlaženja.

Ispitne pločice su zalijepljene PVAc ljepilom Drvofix S, obostranim nanosom nazubljenom lopaticom u ukupnoj količini $180 - 200 \text{ g/m}^2$. Otvoreno vrijeme iznosilo je oko 5 minuta. Prešanje je provedeno jednos-trukom ručnom mehaničkom prešom u koje se okretanjem vijka glavne osovine sabija čelična opruga.

Parametri prešanja bili su:

- lijepljenje na hladno
- ispitne pločice stezane u dvije grupe (prve suho izlagane, a druge vlažene pri izlaganju)
- specifični tlak od 2 MPa
- vrijeme stezanja 24 sata.

Slijepljene ispitne pločice su nakon vadenja iz preše kondicionirane sedam dana pri 20°C i 75-postotnoj relativnoj vlazi zraka. Zatim su na kružnoj pili (prema skici sl. 1) izrađeni uzorci za ispitivanje čvrstoće.

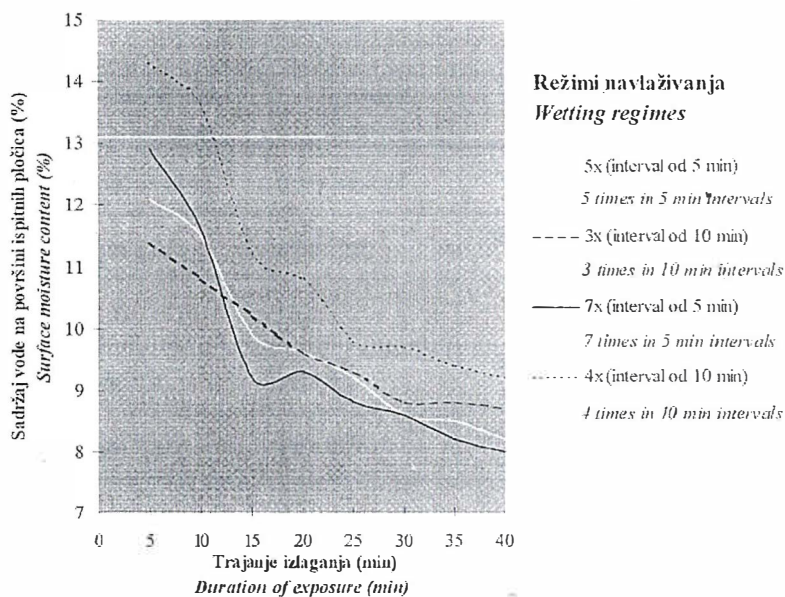
Smično naprezanje u takvog oblika uzoraka postiže se tlakom, pa stoga uzorak ima dimenzije $40 \times 20 \times 20 \text{ mm}$ kako bi se deformacije pri naprezanju svele na minimum. Površina preklopa odgovara uzorcima prema DIN-u EN 204. Za takav oblik uzoraka odlučili smo se zato što preklopna mjesta pokrivaju mnogo veću površinu ispitnih pločica od preklopnih mjesta uzoraka prema DIN standardu. Na taj se način od slijepljenih ispitnih pločica može izraditi tros-truko više uzoraka.

Mjerenje sile loma obavljeno je na kitalici WOLPERT konstantnom brzinom pomaka glave od 6 mm/min .

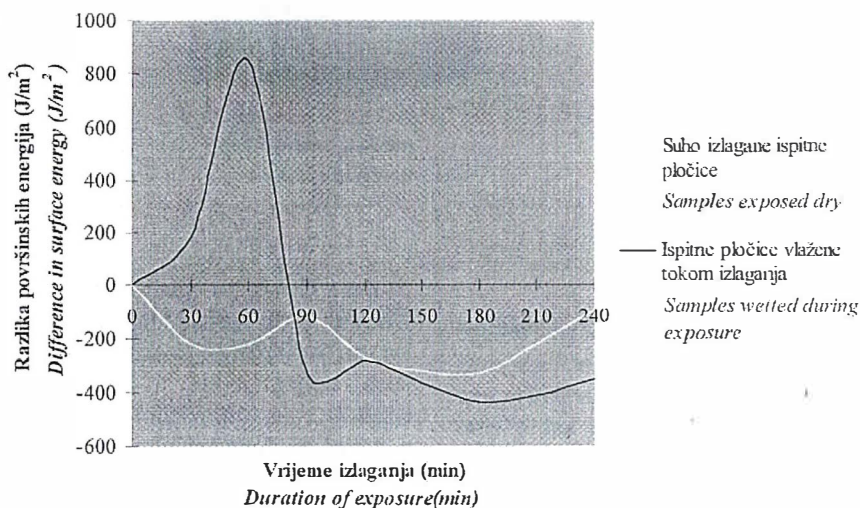
Lomna je površina svrstana u kategorije loma po ljepilu (kohezijski lom unutar sloja ljepila), lom po drvu (lom se širi kroz sloj drva) te loma po međusloju (tj. kroz ljepi-

lom impregnirani površinski sloj sljubnice).
Stupnjevanje udjela pojedine vrste loma na lomnoj površini provedeno je u razredima od 5%.

4. REZULTATI ISTRAŽIVANJA



Slika 2.
Promjena vlažnosti uzoraka za vrijeme izlaganja • Changes in the surface moisture content during exposure

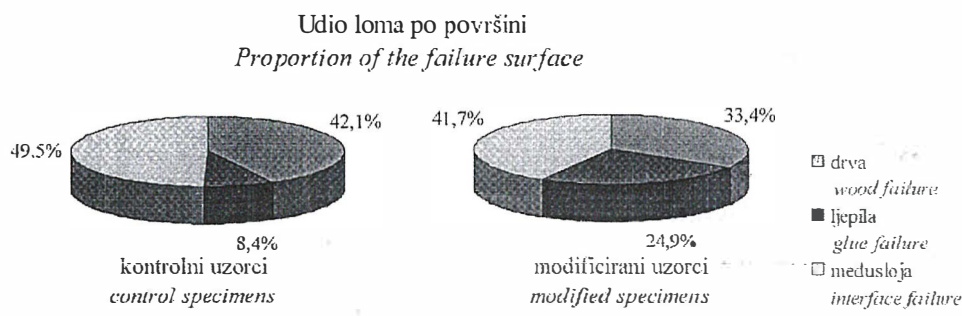


Slika 3.
Promjena površinske energije za vrijeme izlaganja • Changes in the surface energy during exposure

Utjecaj UV svjetlosti <i>UV light effect</i>	Kontrolni <i>control</i>	Modificirani <i>modified</i>
broj uzoraka <i>Number of specimens</i>	71 kom (pcs)	71 kom (pcs)
srednja vrijednost čvrstoće <i>Mean strength value</i>	13,0 MPa	11,9 MPa
standardna devijacija <i>Standard deviation</i>	2,51	3,92
minimalni iznos čvrstoće <i>Minimum strength value</i>	5,6 MPa	2,3 MPa
maksimalni iznos čvrstoće <i>Maximum strength value</i>	17,2 MPa	16,9 MPa

Tablica 2.
Pokazatelji kakvoće spoja svih uzoraka • Bond strength parameters of all the tested specimens

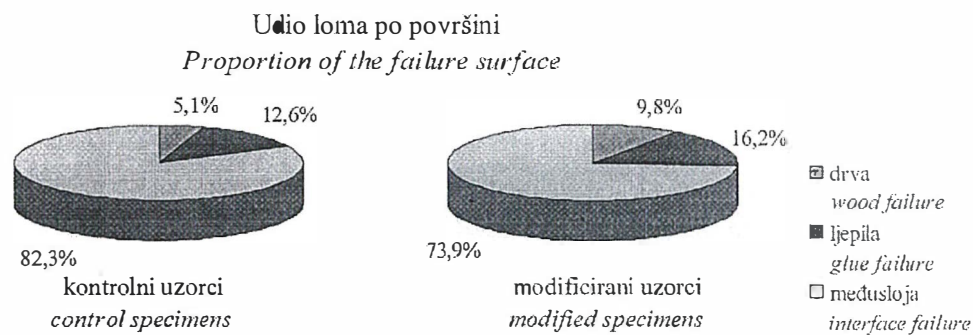
Slika 4.
 Obilježja lomne površine svih uzoraka •
 Characteristics of the failure surfaces of all tested specimens



Tablica 3.
 Pokazatelji kakvoće spoja uzoraka s lomom po međusloju •
 Bond strength parameters of the specimens that failed in the interface

Utjecaj UV svjetlosti UV light effect	Kontrolni control	Modificirani modified
broj uzoraka Number of specimens	39 kom. (pcs)	33 kom. (pcs)
srednja vrijednost čvrstoće Mean strength value	12,7 MPa	13,1 MPa
standardna devijacija Standard deviation	2,57	2,32
minimalni iznos čvrstoće Minimum strength value	7,0 MPa	8,9 MPa
maksimalni iznos čvrstoće Maximum strength value	17,2 MPa	16,7 MPa

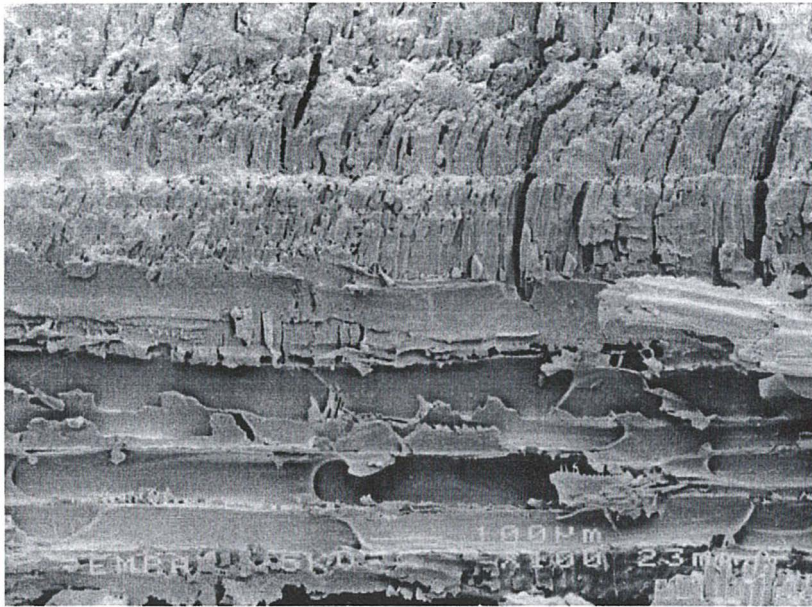
Slika 5.
 Obilježja lomne površine uzoraka s lomom po međusloju •
 Characteristics of the failure surfaces of specimens that failed in the interface



5. DISKUSIJA

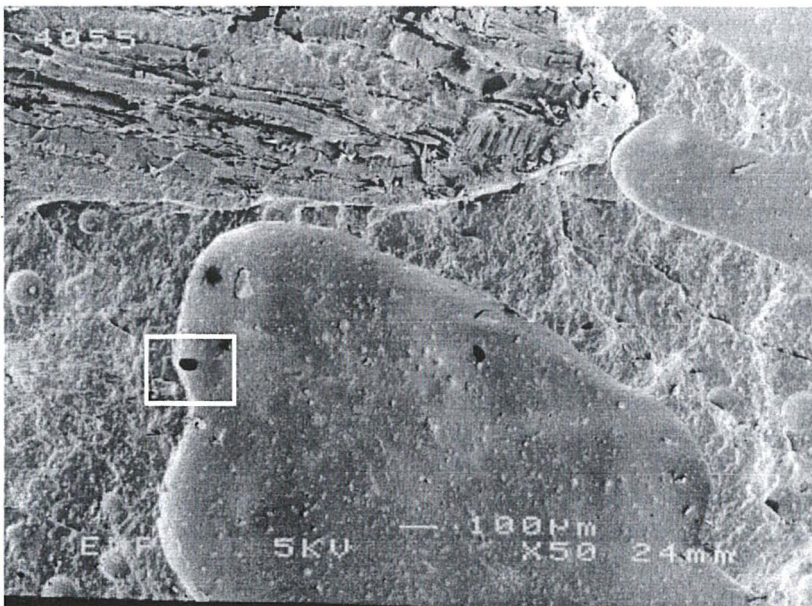
Rezultati ispitivanja smične čvrstoće uzoraka izrađenih od ispitnih pločica koje su bile izlagane utjecaju UV svjetlosti nisu se u potpunosti pokazali onakvima kakve smo očekivali. U tablici 2 usporedili smo rezultate s kontrolnim uzorcima i ustanovili pojavu kvalitetnijih spojeva na uzorcima koji su bili slijepljeni bez modificiranja površine. Međutim, ti su podaci uzeti s rezervom, jer je utjecaj neočekivanih tehnoloških parametara prouzročio takovo rasipanje rezultata da ih ne možemo svrstati u normalnu distribuciju, te ti rezultati predstavljaju nepotpunu sliku nastalu samo analizom čvrstoće na smik. Uz vrijednosti čvrstoće potrebno je analizirati i podatke udjela loma po površini ljepila, međusloja i drva. Rezultati udjela loma po ljepilu u uzoraka što su izlagani UV svjetlosti zamjetno su veći nego u neizlaganih uzoraka (sl. 4). Promatranjem se može uočiti i mnogo veći broj lomova po drvu u

uzoraka čija je površina bila modificirana. Uočeno je da većina spojeva koji iskazuju lom po ljepilu imaju glatku i sjajnu površinu. Radi boljeg uvida u izgled sljubnice, izrađene su mikrofotografije lomnih površina. Uočeno je da lumeni koji su dobro kvašeni i impregnirani ljepilom u potpunosti pokazuju obilježja koherentnoga polimernog materijala koji ima kruti lom (sl. 6). Tipične mikrofotografije potvrđuju da u velikom broju proba nije ostvaren potpuni kontakt između sljubnica (sl. 7 i 8). Pretpostavlja se da je uzrok te pojave prerana polimerizacija ljepila u manjeg broja uzoraka usprkos provedenoj kontroli adekvatnosti ljepila. Osim toga, postoji mogućnost da tijekom prešanja nije postignut dovoljno velik tlak, na što upućuje pojava glatkih i sjajnih sljubnica i u kontrolnih uzoraka.



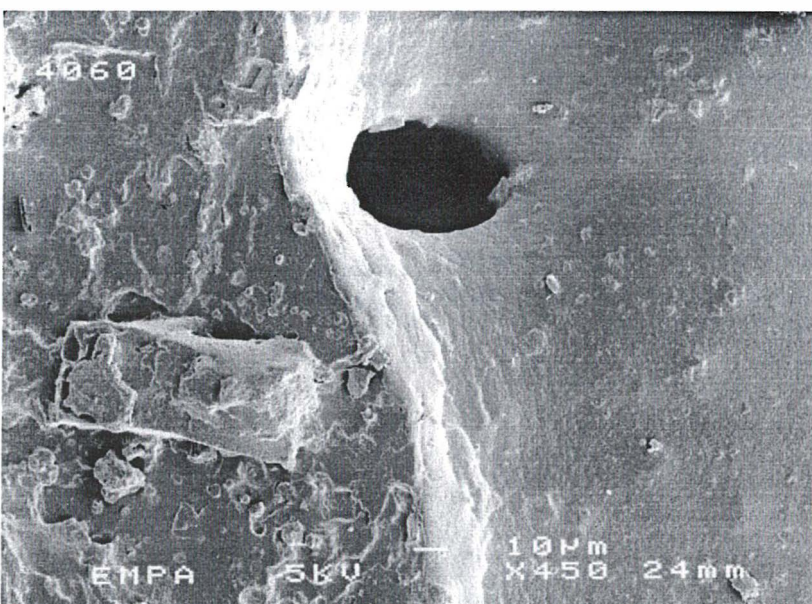
Slika 6.

Lomna površina međusloja u kojemu su lumeni djelomično ili potpuno uklopljeni u sloj ljepila. (SEM mikrografija, povećanje 100 puta.) • Failure surface of the interface. The lumina are partly or completely embedded in the adhesive. SEM micrograph, magnification 100 times.



Slika 7.

Lomna površina međusloja (gore) ili u sloju ljepila (dolje). (SEM mikrografija, povećanje 50 puta.) • Failure surface of the interface (upper), and in the adhesive layer (lower). SEM micrograph, magnification 50 times.



Slika 8.

Detalj sa slike 7: površina kohezijskog loma u sloju ljepila (lijevo) i površina nestisnutog ljepila sa zračnim mjehurićem (desno). (SEM mikrografija, povećanje 450 puta.) • Detail from figure 7: Surface of the cohesive failure within the adhesive layer (left) and surface of the non-set adhesive area incorporating an air bubble (right). SEM micrograph, magnification 450 times.

Te činjenice dovode u pitanje ispravnost jednostrane analize rezultata na temelju prekidne čvrstoće kušalica. Stoga smo izvršili sljedeće.

1. Izuzeli smo uzorke u kojih smo uočili da je kohezijski lom po ljepilu gladak i sjajan jer takav lom upućuje na nedovoljan tlak prilikom prešanja odnosno na prerano želiranje ljepila.

2. Izuzet ćemo i uzorake u kojih je uočen 100-postotni lom po drvu jer takvi rezultati ne mogu biti izravno povezani s čvrstoćom lijepljenog spoja, iako ti rezultati naznačuju da je spoj čvršći od samog drva ili je raspodjela naprezanja pri trganju bila nepravilna.

3. Budući da nas najviše zanimaju promjene koje se zbivaju u tzv. međusloju, promatrat ćemo uzorake čiji se lom po 50 i više posto površine kreće međuslojem. Ti su rezultati prikazani u tablici 3. i na slici 5.

Sljedeći navedene odrednice, dobili smo nove podatke. Tako prikazani podaci (tabl. 3) prekidnih čvrstoća pokazuju da je srednja vrijednost čvrstoće u modificiranih uzoraka (13,1 MPa) i u kontrolnih (12,7 MPa). Uzmemo li u obzir povećanje u iznosu 0,45 MPa ili 3,5%, taj rezultat možemo teoretski prikazati kao zadovoljavajući. Osim prosječne, i najviša zabilježena čvrstoća, a i rasipanje podataka, povoljniji su u modificiranih nego u kontrolnih uzoraka. Odabir kušalica čiji se lom u 50 i više postotaka kreće međuslojem opravdavamo činjenicom da utjecaj takvog načina modifikacije ne seže duboko u površinu drva (< 100 µm) te stoga možemo reći da je u području djelovanja UV svjetlosti postignut pozitivan rezultat. Međutim statistička analiza pokazuje da razlika srednjih vrijednosti u datim uzorcima nije signifikantna pa ne možemo tvrditi da smo ovim pokusom dokazali povećanje čvrstoće spojeva.

6. ZAKLJUČCI

Ovo je istraživanje pokazalo da je metoda modifikacije površine drva UV svjetlošću potencijalno vrlo perspektivna laboratorijska, ali i vrlo jednostavna i jeftina pogonska metoda za poboljšanje čvrstoće spoja.

Istodobno djelovanje UV svjetlosti i vode na površini drva uzrokuje snažnu reakciju koja u trajanju izlaganja od 60 minuta pridonosi povećanju površinske energije drva. Unatoč tehničkim nedostacima u ovom prethodnom istraživanju, pokazale su se jasne naznake da je modifikacijom vlažne površine bukovine djelovanjem UV svjetlosti moguće ostvariti veću čvrstoću slijepljenih PVAc spojeva. Daljnja će se istraživanja provesti na većoj skupini uzoraka, s poboljšanim režimom prešanja, na više vrsta drva i s više vrsta ljepila kako bi se potvrdila postavka o povoljnom djelovanju UV zračenja na čvrstoću spoja.

8. LITERATURA

1. Bogner, A. 1993: Kvašenje drva i adhezija, *Drvena industrija* 44 (4) 123 - 130.
2. Bogner, A. 1993: Modifikacija površine bukovine radi poboljšanja lijepljenja (doktorska disertacija), Šumarski fakultet Zagreb
3. Derbyshire, H.; Miller, E. R.; Turkulin, H. 1996: Investigation into the photodegradation of wood using microtensile testing, Part 2: An investigation of the changes in tensile strength of different softwood species during natural weathering, *Holz als Roh- und Werkstoff* 54(1):1-6
4. Turkulin, H. 1996: Fotodegradacija proizvoda od drva u građevinarstvu (doktorska disertacija), Šumarski fakultet Zagreb

ZAHVALA

Autori zahvaljuju Odsjeku za istraživanje drva švicarskoga saveznog instituta Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt (EMPA), zbog korištenja njihova FE SEM uređaja.

Authors wish to express their gratitude to the Wood Department of the Swiss Federal Laboratories for Materials Testing and Research (EMPA) for the use of their FE SEM facilities.

Autori također zahvaljuju gospodi Ivanu Šantiću i Darku Culifaju koji su kao studenti sudjelovali u provođenju pokusa.

Authors also appreciate the help provided by mr. Ivan Šantić and Darko Culifaj who contributed to the experimental work.