

**Tesista:** Erika Nicolao

**Título al que aspira:** Doctora en Ciencia de Materiales, UNMdP

**Tema:** Desarrollo de tableros contrachapados de madera forestada con adhesivos biogénicos

**Director de tesis:** Pablo Stefani

**Co-director:** Emiliano Manuel Ciannamea

**Lugar de Trabajo:** Instituto de Investigaciones en Ciencia y Tecnología de Materiales (INTEMA-CONICET-UNMdP)

**Fecha de Defensa:** 15 de abril de 2024

**Jurados:**

Dr. Juan López Martínez (Universidad Politécnica de Valencia)

Dra. Cristina Peña Rodríguez (Universidad del País Vasco)

Dra. Laura Alejandra Fasce (CDS, INTEMA, UNMdP-CONICET)

**RESUMEN**

La sociedad demanda de manera sostenida el desarrollo de nuevos materiales que minimicen el consumo de recursos naturales no renovables, empleando procesos de fabricación sostenibles y a un bajo costo. Los tableros de madera contrachapada (plywood) se producen mediante la unión de chapas finas de madera con adhesivos poliméricos, cuyas formulaciones generalmente contienen formaldehído, un compuesto orgánico volátil irritante y potencialmente carcinogénico, que se libera tanto durante el proceso de producción como en servicio.

En este contexto, la presente tesis propone el desarrollo de tableros contrachapados ambientalmente amigables y tecnológicamente competitivos con los disponibles en el mercado. Como materias primas, se utiliza el concentrado de proteína de soja y compuestos derivados del cardanol para la producción de adhesivos sostenibles. Las maderas utilizadas fueron *Eucalyptus grandis* y *Pinus taeda* por ser dos de las especies cultivadas de mayor relevancia económica de Argentina.

En el primer capítulo se introdujo el concepto de tableros contrachapados, sus ventajas y sus limitaciones en cuanto a la utilización de adhesivos nocivos para las personas y el medioambiente en general. En este sentido en el segundo capítulo se enunciaron los principales objetivos de esta tesis.

En el tercer capítulo se realizó una descripción desde la micro a la macroestructura del leño detallando las diferencias esperadas en función del grupo taxonómico de pertenencia. Posteriormente, se caracterizaron puntualmente las dos maderas utilizadas en esta tesis, con

el objetivo de compararlas en el contexto de su aplicación en tableros contrachapados. Mediante microscopía electrónica de barrido se logró identificar y describir los tejidos celulares presentes en cada madera, y se observó en particular el daño inherente al proceso de obtención de las chapas. Se determinó la densidad, humedad de equilibrio, rugosidad y energía superficial de cada madera. Ambas mostraron valores similares de rugosidad y energía superficial. Sin embargo se observó una mayor dispersión en los valores de densidad en la madera de pino, lo que se asoció a las diferencias marcadas en el tejido celular y lumen entre el leño de otoño y primavera. Se evaluó la resistencia y el módulo de elasticidad mediante dos métodos diferentes: flexión en tres puntos y ultrasonido, encontrando valores dentro del rango de los informados para cada especie. Es importante destacar que la aplicación del método no destructivo resultó ser ventajoso para su aplicación a nivel industrial.

En el capítulo 4 se desarrollaron y caracterizaron adhesivos biobasados utilizando dos fuentes vegetales diferentes. Por un lado, se exploró al concentrado de proteína de soja (CPS) como un adhesivo para entorno interior o protegido. A partir de estudios reológicos, se diseñaron dispersiones de CPS en agua que permitieron ser aplicados fácilmente sobre la superficie sin que ocurra una sobre penetración en la madera, un aspecto relevante para lograr una unión encolada óptima.

Por otro lado, se estudiaron sistemas termorrígidos basados en monómeros polifuncionales derivados del cardanol con funcionalidad epoxi, amina o hidroxilo con el objetivo de diseñar adhesivos para contrachapados para uso exterior. Como adhesivo de referencia se utilizó un sistema fenólico por ser el más utilizado en la industria. Se evaluaron propiedades tales como viscosidad y temperatura de transición vítrea y tiempo de gelación que son relevantes para el procesamiento de los tableros contrachapados y sus propiedades finales. Los resultados mostraron que tanto los sistemas epoxi-amina como poliuretánicos basados en cardanol presentaron la ventaja que pueden ser prensados a temperaturas significativamente más bajas que los sistemas fenólicos.

El quinto capítulo se basó en los conocimientos adquiridos en los capítulos previos, centrándose en el procesamiento de los tableros contrachapados de tres láminas tanto de pino como eucalipto. Una vez definidas las condiciones óptimas de prensado, el propósito principal fue examinar cómo las propiedades individuales de cada adhesivo y su interacción con las maderas de pino o eucalipto impactaron en la calidad de las uniones encoladas. Se llevó a cabo un análisis detallado, vinculando los ensayos de calidad de encolado definidos por la normativa argentina para contrachapados con la morfología de las uniones encoladas, mediante la utilización de técnicas de microscopía. Se identificaron aspectos relevantes, como la zona de interfase, definida como la región donde el adhesivo impregna la madera, la cual demostró ser fundamental para la calidad de encolado de las uniones evaluadas. Además, se realizaron pruebas de correlación de imágenes digitales como un complemento al estudio, con el fin de comprender el mecanismo de falla durante los ensayos de calidad de encolado. En primer lugar, se destacó la importancia de la calidad de la madera de partida. Se observó que, independientemente del tipo de adhesivo utilizado, los tableros fabricados con madera de pino mostraron una calidad inferior en comparación con aquellos elaborados con madera

de eucalipto. Esta diferencia estuvo asociada al mayor daño superficial, inherente al proceso de obtención de la chapa, que se observó en el pino. La calidad de la unión encolada respondió además a los efectos combinados de la reología del adhesivo, la afinidad entre el adhesivo y la madera, y el tiempo de gelación. Los adhesivos basados en CPS y epoxi-amina (76% en peso de componente biobasado), demostraron ser viables para tableros contrachapados para uso en ambiente interior o protegido, mientras que un sistema epoxi-amina con una fracción en peso de 35 % en peso de componente biobasado resultó con propiedades competitivas con el sistema fenólico comercial para uso en ambiente exterior. Se complementó el estudio analizando las propiedades a la flexión de los tableros contrachapados, considerando los defectos inherentes al proceso de obtención de las chapas, como los late checks. Estos resultados son relevantes para el diseño de contrachapados en aplicaciones como muebles y estructuras, donde la rigidez y resistencia a la flexión se utilizan como parámetro de diseño.

En el Capítulo 6 se detallan las conclusiones generales de este trabajo y se describen algunas líneas abiertas para posibles trabajos futuros. Los resultados permiten suponer que los tableros contrachapados basados en eucalipto y adhesivos con diferentes contenidos de componentes biobasados podrían utilizarse en aplicaciones para uso en ambiente interior o exterior.

## **ABSTRACT**

Society continually demands the development of new materials that minimize the consumption of non-renewable natural resources, using sustainable manufacturing processes at low cost. Plywood boards are produced by bonding thin wood veneers with polymeric adhesives, whose formulations generally contain formaldehyde, a volatile organic compound that is irritating and potentially carcinogenic, released during both the production process and in service.

In this context, this thesis proposes the development of environmentally friendly and technologically competitive plywood boards compared to those available in the market. Soy protein concentrate and compounds derived from cardanol are used as raw materials for the production of sustainable adhesives. The woods used were *Eucalyptus grandis* and *Pinus taeda*, two of the most economically relevant cultivated species in Argentina.

The first chapter introduces the concept of plywood boards, their advantages, and limitations regarding the use of harmful adhesives for people and the environment in general. The second chapter outlines the main objectives of this thesis.

The third chapter describes from micro to macrostructure of the wood detailing the expected differences depending on the taxonomic group to which they belong. Subsequently, the two woods used in this thesis were specifically characterized to compare them in the context of their application in plywood boards. Through scanning electron microscopy, the cellular

tissues present in each wood were identified and described, particularly observing the inherent damage to the veneer obtaining process. Density, equilibrium moisture, roughness, and surface energy of each wood were determined. Both showed similar values of roughness and surface energy. However, a greater dispersion in density values was observed in pine wood, which was associated with marked differences in cellular tissue and lumen between autumn and spring wood. Resistance and modulus of elasticity were evaluated using two different methods: three-point bending and ultrasound, finding values within the reported range for each species. It is important to highlight that the application of the non-destructive method proved to be advantageous for industrial application.

In Chapter 4, bio-based adhesives were developed and characterized using two different plant sources. On one hand, soy protein concentrate (CPS) was explored as an adhesive for indoor or protected environments. Based on rheological studies, CPS dispersions in water were designed to be easily applied on the surface without over-penetration into the wood, an important aspect to achieve optimal bonded joints. On the other hand, thermosetting systems based on polyfunctional monomers derived from cardanol with epoxy, amine, or hydroxyl functionality were studied to design adhesives for exterior plywood use. A phenolic system was used as a reference adhesive being the most widely used in the industry. Properties such as viscosity, glass transition temperature, and gelation time were evaluated, which are relevant for plywood processing and its final properties. The results showed that both epoxy-amine and polyurethane systems based on cardanol presented the advantage of being pressed at significantly lower temperatures than phenolic systems.

Chapter 5 was based on the knowledge acquired in the previous chapters, focusing on the processing of three-layer plywood boards of both pine and eucalyptus. Once the optimal pressing conditions were defined, the main purpose was to examine how the individual properties of each adhesive and its interaction with pine or eucalyptus woods impacted the quality of the bonded joints. A detailed analysis was carried out, linking the bonding quality tests defined by Argentine regulations for plywood with the morphology of the bonded joints, using microscopy techniques. Relevant aspects were identified, such as the interface zone, defined as the region where the adhesive impregnates the wood, which proved to be fundamental for the bonding quality of the evaluated joints. In addition, correlation tests of digital images were carried out as a complement to the study, in order to understand the failure mechanism during the bonding quality tests. Firstly, the importance of the quality of the starting wood was highlighted. It was observed that, regardless of the type of adhesive used, boards made with pine wood showed lower quality compared to those made with eucalyptus wood. This difference was associated with greater superficial damage, inherent to the veneer obtaining process, observed in pine. The quality of the bonded joint also responded to the combined effects of adhesive rheology, affinity between the adhesive and the wood, and gelation time. Adhesives based on CPS and epoxy-amine (76% by weight of bio-based component) proved to be viable for plywood boards for use in indoor or protected environments, while an epoxy-amine system with a 35% by weight fraction of bio-based component resulted in competitive properties with the commercial phenolic system for outdoor use. The study was complemented by analyzing the bending properties of plywood

boards, considering the inherent defects in the process of obtaining veneers, such as late checks. These results are relevant for the design of plywood in applications such as furniture and structures, where stiffness and flexural strength are used as design parameters.

Chapter 6 details the general conclusions of this work and describes some open lines for possible future work. The results suggest that plywood boards based on eucalyptus and adhesives with different contents of bio-based components could be used in applications for indoor or outdoor use.