**Beiträge zum Recycling von
harnstoffformaldehydharzgebundenen Holzspanplatten unter
besonderer Berücksichtigung des Einsatzes von Tanninen**

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Forstwissenschaften und Waldökologie
der Georg-August-Universität Göttingen

vorgelegt von
Hans Georg Hüster
geboren in Bad Berleburg

Göttingen, im Juni 1999

Gewidmet meiner Tochter Maria-Luisa.

1. Berichterstatter: Prof. Dr.-Ing. E. Roffael
2. Berichterstatter: Prof. Dr. R. Marutzky
3. Berichterstatter: Prof. Dr. A. Kharazipour

Tag der mündlichen Prüfung: 16. September 1999

Titelbild: Mikroskopische Aufnahme eines Spanplattenquerschnitts

Berichte aus der Holz- und Forstwirtschaft

Hans Georg Hüster

**Beiträge zum Recycling von harnstoffformaldehyd-
harzgebundenen Holzspanplatten unter besonderer
Berücksichtigung des Einsatzes von Tanninen**

D 7 (Diss. Universität Göttingen)

Shaker Verlag
Aachen 2000

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Hüster, Hans Georg:

Beiträge zum Recycling von harnstoffformaldehydharzgebundenen Holzspanplatten unter besonderer Berücksichtigung des Einsatzes von Tanninen/
Hans Georg Hüster. - Als Ms. gedr. - Aachen : Shaker, 2000

(Berichte aus der Holz- und Forstwirtschaft)

Zugl.: Göttingen, Univ., Diss., 1999

ISBN 3-8265-7200-9

Copyright Shaker Verlag 2000

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Als Manuskript gedruckt. Printed in Germany.

ISBN 3-8265-7200-9

ISSN 1615-1674

Shaker Verlag GmbH • Postfach 1290 • 52013 Aachen

Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9

Internet: www.shaker.de • eMail: info@shaker.de

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand am Institut für Holzbiologie und Holztechnologie der Georg-August-Universität Göttingen unter der Leitung von Herrn Prof. Dr.-Ing. E. Roffael. Die Untersuchungen wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) von der Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen (AiF) durch die Deutsche Gesellschaft für Holzforschung (DGfH) gefördert, wofür an dieser Stelle ausdrücklich gedankt wird.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. E. Roffael für die praxisorientierte Themenstellung, die wissenschaftliche Anleitung sowie seine stete Diskussions- und Hilfsbereitschaft.

Den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Instituts für Holzbiologie und Holztechnologie danke ich für die gute Zusammenarbeit und die vielfältige Unterstützung bei der Durchführung der Arbeiten.

Mein Dank gilt auch dem Wilhelm-Klauditz-Institut – Fraunhofer-Institut für Holzforschung in Braunschweig, insbesondere Frau Dr. Dix, Frau Bruhn und Herrn Boehme für die entgegengebrachte Hilfestellung.

Für die großzügige Bereitstellung von Untersuchungsmaterial bin ich Herrn Schmidt (Fa. Schlingmann GmbH & Co., Nittenau) sowie der Pfeleiderer AG (Neumarkt) und der BASF AG (Ludwigshafen) zu Dank verpflichtet. Besonders danke ich Herrn Seemann (Fa. Schlingmann GmbH & Co., Nittenau) für die stete Hilfsbereitschaft.

Schließlich gilt mein besonderer Dank meinen Eltern sowie meiner Verlobten Alexandra für die vielfältige Unterstützung und das mir stets gezeigte Verständnis.

Göttingen, im Juni 1999

Hans Georg Hüster

Teile der vorliegenden Arbeit wurden mit Genehmigung des Dekans der Fakultät für Forstwissenschaften und Waldökologie der Georg-August-Universität Göttingen bereits veröffentlicht, weitere sind zur Veröffentlichung angenommen.

1. HÜSTER, H. G. UND ROFFAEL, E., 1999:

Acidität und Formaldehydabgabe von Recyclingspänen: Veränderte Produkteigenschaften bei Plattenherstellung aus gebrauchten, UF-Harzgebundenen Holzspanplatten. Holz-Zentralblatt 125: S. 775 - 776

2. HÜSTER, H. G. UND ROFFAEL, E., 1999:

Einfluß der Imprägnierung von Kiefernspänen (*Pinus silvestris* L.) mit Harnstoff und Harnstoff-Ammoniumsulfatlösungen auf die Formaldehydabgabe und den pH-Wert unter variierenden thermohydrolytischen Bedingungen. Kurz-Originalia in Holz als Roh- und Werkstoff 57: S. 446 - 447

Inhaltsverzeichnis

Einleitung

1. Einleitung	1
1.1 Einführung	1
1.2 Problemstellung	3
1.3 Zielsetzung	6

Allgemeiner Teil

2. Zum Recycling von gebrauchten Holzprodukten in der Bundesrepublik Deutschland	7
2.1 Gesetzliche Rahmenbedingungen	8
2.1.1 Das Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz	10
2.1.2 Die Technische Anleitung Siedlungsabfall	13
2.1.3 Die Verpackungsverordnung	14
2.1.4 Bedeutung und mögliche Auswirkungen der Kreislaufwirtschaft auf das Recycling von Gebrauchtholz	15
2.2 Zum Aufkommen an Gebrauchtholz	20
2.3 Zum Einsatz von Gebrauchtholz in der Holzwerkstoffindustrie	23
2.4 Stand der Kenntnisse beim Recycling von Holzwerkstoffen	27

Experimenteller Teil

3. Untersuchungsmaterial	36
3.1 Spanmaterial	36
3.1.1 Kiefernspäne	36
3.1.2 Recyclingspäne	36

3.1.3	Beleimte Recyclingspäne	36
3.1.3.1	Herstellung des Fichtenrindenextrakts	37
3.1.3.2	Beleimung der Recyclingspäne mit Tanninen	37
3.1.3.3	Thermische Behandlung der mit Tanninen beleimten Recyclingspäne	38
3.1.4	Beschichtete Recyclingspäne	38
3.2	Versuchsspanplatten	39
3.2.1	Plattenvarianten	39
3.2.2	Herstellungsbedingungen	40
4.	Untersuchungsmethoden	43
4.1	Spanfraktionierung	43
4.2	Bestimmung des Feuchtegehalts	43
4.3	Bestimmung der Formaldehydabgabe aus Spänen nach der Flaschenmethode	44
4.3.1	Photometrische Bestimmung des Formaldehydgehalts	45
4.4	Probenvorbereitung für die Bestimmung des pH-Wertes, der Pufferkapazität und der Abgabe an Ameisen- und Essigsäure von Spänen nach der Flaschenmethode	46
4.4.1	Bestimmung des pH-Wertes	46
4.4.2	Bestimmung der Pufferkapazität	47
4.4.3	Bestimmung der Abgabe an Ameisen- und Essigsäure	47
4.5	Bestimmung der Ammoniakabgabe	48
4.6	Bestimmung des Stickstoffgehalts	49
4.7	Probenvorbereitung für die Bestimmung der Stiasny-Zahl und des Gehalts an reaktiven Phenolen (UV-Methode) in den Kaltwasserextrakten der beleimten Recyclingspäne	50
4.7.1	Bestimmung der Stiasny-Zahl	50
4.7.2	Bestimmung des Gehalts an reaktiven Polyphenolen nach der UV-Methode	51
4.8	Makro- und mikroskopische Untersuchungen an Spanplattenproben	52
4.9	Eigenschaften der Versuchsspanplatten	53

Ergebnisse und Diskussion

5. Zum Einfluß der Thermohydrolyse auf Kiefernspäne	54
5.1 Problemstellung und Zielsetzung	54
5.2 Charakterisierung des Untersuchungsmaterials	55
5.3 Chemische Untersuchungen	56
5.3.1 Formaldehydabgabe	57
5.3.2 Zur Acidität von Kiefernspänen	58
5.3.2.1 pH-Wert	59
5.3.2.2 Pufferkapazität	62
5.3.2.3 Abgabe an Ameisen- und Essigsäure	63
5.3.3 Ammoniakabgabe und Stickstoffgehalt	64
6. Zum Einfluß der Thermohydrolyse auf Recyclingspäne	66
6.1 Problemstellung und Zielsetzung	66
6.2 Charakterisierung des Untersuchungsmaterials	67
6.3 Chemische Untersuchungen	68
6.3.1 Formaldehydabgabe	68
6.3.2 Zur Acidität von Recyclingspänen	70
6.3.2.1 pH-Wert	71
6.3.2.2 Pufferkapazität	73
6.3.2.3 Abgabe an Ameisen- und Essigsäure	74
6.3.3 Ammoniakabgabe und Stickstoffgehalt	76
6.4 Makro- und mikroskopische Untersuchungen an Spanplattenproben	79
7. Zum Einfluß der Thermohydrolyse auf mit Quebrachotannin beleimte Recyclingspäne	81
7.1 Problemstellung und Zielsetzung	81
7.2 Voruntersuchungen zur Reaktivität verschiedener Tannine mit Recyclingspänen	82
7.2.1 Formaldehydabgabe von mit Tanninen beleimten Recyclingspänen	84

7.2.2	Stiasny-Zahl des Feststoffs der Kaltwasserextrakte von mit Tanninen beleimten Recyclingspänen	86
7.2.3	Gehalt an reaktiven Polyphenolen des Feststoffs der Kaltwasserextrakte von mit Tanninen beleimten Recyclingspänen	89
7.3	Chemische Untersuchungen	91
7.3.1	Formaldehydabgabe	92
7.3.2	Zur Acidität von mit Quebrachotannin beleimten Recyclingspänen	94
7.3.2.1	pH-Wert	94
7.3.2.2	Pufferkapazität	95
7.3.3	Ammoniakabgabe und Stickstoffgehalt	96
8.	Zum Einfluß von Recyclingspänen auf die Eigenschaften von Spanplatten unter besonderer Berücksichtigung des Bindemittels	100
8.1	Eigenschaften von UF-Harz-gebundenen Spanplatten mit abgestuften Anteilen an Recyclingspänen	101
8.1.1	Feuchtegehalt und Rohdichte	101
8.1.2	Formaldehydabgabe	102
8.1.3	Dickenquellung und Wasseraufnahme	104
8.1.4	Querzugfestigkeit und Biegefestigkeit	106
8.2	Eigenschaften von UF-Harz-gebundenen Spanplatten mit abgestuften Anteilen an Recyclingspänen, die mit natürlichen Bindemitteln beleimt wurden	109
8.2.1	Feuchtegehalt und Rohdichte	110
8.2.2	Formaldehydabgabe	111
8.2.3	Dickenquellung und Wasseraufnahme	114
8.2.4	Querzugfestigkeit und Biegefestigkeit	117
8.3	Zum Einfluß der Beleimung von Recyclingspänen auf die Eigenschaften von damit hergestellten UF-Harz-gebundenen Spanplatten	121
8.3.1	Feuchtegehalt und Rohdichte	122
8.3.2	Formaldehydabgabe	124
8.3.3	Dickenquellung und Wasseraufnahme	126
8.3.4	Querzugfestigkeit und Biegefestigkeit	131

---

9. Zum Einfluß von den Recyclingspänen anhaftenden Beschichtungsmaterialien auf die Eigenschaften von Spanplatten	135
9.1 Feuchtegehalt und Rohdichte	136
9.2 Formaldehydabgabe	137
9.3 Dickenquellung und Wasseraufnahme	138
9.4 Querkzugfestigkeit und Biegefestigkeit	140
10. Zusammenfassung	142
11. Literaturverzeichnis	147
12. Anhang	161

Abkürzungsverzeichnis

Abb.:	Abbildung
AbfVerbrV:	Abfallverbringungs-Verordnung
Abs.:	Absatz
Art.:	Artikel
atro:	absolut trocken
Bel.:	Beleimungsvariante
bez.:	bezogen
BImSchG:	Bundes-Immissionschutzgesetz
BImSchV:	Bundes-Immissionsschutzverordnung
bspw.:	beispielsweise
bzgl.:	bezüglich
bzw.:	beziehungsweise
°C:	Grad Celsius
ca.:	circa
ChemG:	Chemikaliengesetz
ChemVerbV:	Chemikalienverbots-Verordnung
cm:	Zentimeter
CO₂:	Kohlendioxid
CPL:	Continuous Pressure Laminate
d. h.:	das heißt
DIN:	Deutsche Industrie-Norm(en)
DIY:	Do-It-Yourself
DS:	Deckschicht
EN:	Euro-Normen
EPF:	European Panel Federation
et al.:	und andere
EWC:	Europäischer Abfallkatalog
Fa.:	Firma
g:	Gramm
Gew.-%:	Gewichtsprozent(e)
h:	Stunde(n)
HCHO:	Formaldehyd

HDH:	Hauptverband der deutschen Holz und Kunststoffe verarbeitenden Industrie und verwandter Industriezweige e.V.
HPL:	High Pressure Laminate
Kap.:	Kapitel
kg:	Kilogramm
kj:	Kilojoule
konz.:	konzentriert(e)
KrW-AbfG:	Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz
l:	Liter
LAGA:	Länderarbeitsgemeinschaft Abfall
lutro:	lufttrocken
m³:	Kubikmeter
mbar:	Millibar
MDF:	mitteldichte Faserplatte (Medium Density Fibreboard)
mg:	Milligramm
Mio.:	Millionen
ml:	Milliliter
mm:	Millimeter
mmol:	Millimol
MUF:	Melamin-Harnstoff-Formaldehydharz
MUPF:	Melamin-Harnstoff-Phenol-Formaldehydharz
Mrd.:	Milliarden
MS:	Mittelschicht
N:	Newton
N:	Gesamtanzahl
n.n.:	nicht nachweisbar
n.e.:	nicht ermittelt
PCP:	Pentachlorphenol
PF:	Phenol-Formaldehyd
PI.:	Plattenvariante
PMDI:	Polymere auf Basis von Diphenylmethandiisocyanat
RAL:	RAL Deutsches Institut für Gütesicherung und Kennzeichnung e.V.

Ref.:	Referenzplatte
s:	Sekunde(n)
spec.:	species
t:	Tonne(n)
Tab.:	Tabelle
TA Luft:	Technische Anleitung Luft
TA Siedlungsabfall:	Technische Anleitung Siedlungsabfall
TOC:	Total organic compounds
u. a.:	unter anderem
u. dgl.:	und dergleichen
u. U.:	unter Umständen
UF:	Harnstoff-Formaldehyd
UNCED:	United Nations Conference on Environment and Development
UVPG:	Gesetz über die Umweltverträglichkeitsprüfung
VerpackV:	Verpackungsverordnung
vgl.:	vergleiche
VHI:	Verband der deutschen Holzwerkstoffindustrie e.V.
VOC:	Volatile organic compounds
WKI:	Wilhelm-Klauditz-Institut – Fraunhofer-Institut für Holzforschung in Braunschweig
z. B.:	zum Beispiel
z. T.:	zum Teil
µm:	Mikrometer