

(19)



Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

**EP 1 331 307 A2**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:  
**30.07.2003 Patentblatt 2003/31**

(51) Int Cl.7: **D21H 17/22**, D21H 17/24,  
D21J 1/00

(21) Anmeldenummer: **02028533.4**

(22) Anmeldetag: **20.12.2002**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR  
IE IT LI LU MC NL PT SE SI SK TR**  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
**AL LT LV MK RO**

(30) Priorität: **21.12.2001 DE 10164659**

(71) Anmelder:  
• **Technische Universität Dresden**  
**01069 Dresden (DE)**  
• **VTI Thüringer Verfahrenstechnisches Institut für**  
**Umwelt und Energie e.V.**  
**07318 Saalfeld (DE)**

• **GUTEX Holzfaserplattenwerk H. Henselmann**  
**GmbH + Co KG**  
**79761 Waldshut-Tiengen (DE)**

(72) Erfinder:  
• **Wagenführ, Andre, Prof. Dr.-Ing.**  
**01109 Dresden (DE)**  
• **Tech, Sören, Dipl.-Ing.**  
**17491 Greifswald (DE)**  
• **Unbehaun, Holger, Dipl.-Ing.**  
**01099 Dresden (DE)**  
• **Telschow, Dorothea, Dipl.-Ing.**  
**07407 Rudolstadt (DE)**  
• **Albrecht, Bernd, Dipl.,Ing.(FH)**  
**79809 Weilheim (DE)**

### (54) **Bindemittelfreier Faserdämmstoff und Verfahren zu dessen Herstellung**

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von bindemittelfreien lignozellulösen Faserdämmstoffen, bei dem

- a) der Faserstoff durch mechanische oder thermomechanische Zerfaserung hergestellt wird,
- b) dieser in einer Suspension mit Mischenzymen inkubiert wird,
- c) der Suspension kationische Ladungsträger zur Ausfällung kleinster Bestandteile zugegeben werden,

den,

d) die Suspension entwässert und getrocknet wird.

Ein durch das Verfahren erhältlicher Faserdämmstoff ist beschrieben.

**EP 1 331 307 A2**

## Beschreibung

**[0001]** Die Erfindung betrifft einen bindemittelfreien Faserdämmstoff nach Anspruch 9 oder 10 sowie ein Verfahren zur Herstellung von bindemittelfreien lignozellulösen Faserdämmstoffen nach Anspruch 1.

**[0002]** Faserwerkstoffe in Form von Formteilen oder Faserdämmplatten werden vielfältig im Baugewerbe aber auch in der Verpackungsindustrie eingesetzt. Diese Werkstoffe besitzen Dichten im Bereich von 50 bis 400 kg/m<sup>3</sup> und werden im allgemeinen aus Faserstoffen hergestellt, die durch thermo-mechanische Zerfaserung im Defibrator oder Refiner aus Holzhackschnitzeln oder anderen lignozellulösen Ausgangsstoffen, wie Raps- oder Getreidestroh, Hanf, Bambus, Bagasse usw. gewonnen werden. Für die Weiterverarbeitung des Faserstoffes existieren drei übliche Verfahren, das Trocken-, Halbtrocken- und Nassverfahren. Je nach Verfahren wird dem Faserstoff Wasser durch Trocknung entzogen oder dieser durch Wasserzugabe in eine Suspension überführt. Danach erfolgt die Bindemittelzugabe in Form synthetischer Harze z.B. Harnstoff-, Phenol-, bzw. Melaminformaldehydharze oder Polymeres Diphenylmethan-4,4'-diisocyanat (PMDI) in unterschiedlichen Anteilen. Je nach Verfahren kann nun eine Trocknung des beleimten Faserstoffes durchgeführt werden. Nach der Beleimung erfolgt die pneumatische oder hydraulische Vliesbildung, gefolgt von einer Vorpress- und Heißpressstufe, die kontinuierlich oder diskontinuierlich erfolgen kann. In Abhängigkeit von der Dichte werden Dämmplatten (ca. 200 bis 400 kg/m<sup>3</sup>), mittelharte Faserplatten (350 bis 800 kg/m<sup>3</sup>), MDF (Medium-Density-Fiber-Boards, 650 bis 900 kg/m<sup>3</sup>), HDF (High-Density-Fibre-Boards, 800 bis 1200 kg/m<sup>3</sup>) produziert.

**[0003]** Faserwerkstoffe niederer Dichte, wie Dämmplatten, werden sowohl im Trocken- als auch im Nassverfahren produziert. Im Trockenverfahren werden zur Erreichung der gewünschten Festigkeiten und Quellwerte synthetische oder natürliche Bindemittel mit Anteilen im Bereich von 3 bis 20 % Gew.% eingesetzt. Die im Nassverfahren hergestellten Dämmplatten mit Dichten im Bereich von 150 bis 300 kg/m<sup>3</sup> werden ebenfalls mit Bindemitteln hergestellt. Zur Hydrophobierung kommen geringe Anteile von Bitumen oder Paraffin zum Einsatz. Nachteile des Nassverfahrens, wie hohe Abwasserbelastungen, sind heute durch geschlossene Wasserkreisläufe weitgehend gelöst. Ein weiteres Problem des Nassverfahrens besteht in dem hohen Bedarf an Trocknungswärme zur Abführung des Wassers im Faservlies. Je geringer die Dichte von Dämmplatten ist, um so leichter können diese z.B. mit heißer Luft getrocknet und der erforderliche Energieaufwand gesenkt werden. Da es sich bei Dämmplatten um poröse Materialien handelt, ist eine Trocknung in heißer Luft realisierbar, der Energiebedarf verursacht jedoch noch erhebliche Kosten.

**[0004]** Als Alternative zum Einsatz synthetischer Klebstoffe sind eine Reihe von Verfahren bekannt, bei

denen Bindemittel auf biologischer Basis oder das stoffeigene Lignin der Faseroberfläche für Bindungen genutzt werden. So wird gemäß DE 30 37 992 A1 Ligninsulfonat der Sulfitablauge aus der Zellstoffproduktion mit phenoxidierenden Enzymen versetzt, mit Holzpartikeln vermischt und zu Spanplatten verarbeitet. Die Enzyme bewirken dabei eine oxidative Polymerisation der phenolischen Komponente, die zu einer Verklebung der Holzpartikel führt.

**[0005]** Gemäß DE 43 05 411 C2, DE 43 40 518, EP 0565 109 A1, WO 94/01488 und WO 95/07604 wird das ungelöste Lignin an der Faseroberfläche direkt mit phenoxidierenden Enzymen, wie z.B. Laccase oder Peroxidasen, behandelt. Dadurch werden Phenoxylradikale erzeugt und das Lignin der Faseroberfläche reaktiviert. Danach erfolgt eine Verarbeitung des Faserstoffes zu Platten mit verbesserten Faserbindungen. Ziel der Verfahren ist die Herstellung bindemittelfreier Formkörper, insbesondere mittlerer und hoher Dichte für die Möbel- und Bauindustrie. Die Patente beziehen sich ihrer Intention nach ausschließlich auf die Herstellung von MDF/HDF, d.h. Faserplatten mittlerer oder höherer Dichte im Trockenverfahren, was auch an den Beispielen deutlich wird. Die Anwendung für die Herstellung von Dämmstoffen wird zwar in der Beschreibung erwähnt, ebenso wie das Nassverfahren in einem der Unteransprüche. Beide Anwendungsgebiete werden aber nicht weiter spezifiziert. Eine Übertragung von Erkenntnissen und Verfahrensparametern der Werkstoffherstellung von MDF im Trockenverfahren auf die Herstellung von Dämmstoffen im Nassverfahren ist nach dem Stand der Technik nicht ohne weiteres möglich. Des weiteren konzentrieren sich die genannten Verfahren ausschließlich auf eine enzymatische Aktivierung der Ligninkomponente und deren Nutzung für die Erhöhung der Werkstofffestigkeit. Dabei betragen die in den Quellen aufgeführten Inkubationszeiten mehrere Stunden bis Tage und sind daher für eine Anwendung in hochproduktiven industriellen Verfahren nicht geeignet.

**[0006]** Es sind Arbeiten zum Einsatz von Hydrolasen bei der Herstellung von Werkstoffen bekannt, die sich auf die Gewinnung von Bindemitteln beschränken. So ist in DE 4340518 A1 der Einsatz von Hydrolasen zur Modifikation von Kartoffelpulpe beschrieben, die dann ihrerseits als Bindemittel eingesetzt wird; der Pülpeinsatz erfordert dabei eine Trockenzeit von mehr als sieben Stunden und ist damit (in diesem beschriebenen Verfahren) nicht praxisrelevant.

**[0007]** Gemäß DE 10043662 A1 werden Hydrolasen einzeln oder in Kombination mit Oxidasen zur direkten Inkubation von Faserstoff eingesetzt und zu Faserwerkstoffen verarbeitet. Die Verwendung von kationischen Ladungsträgern zur Ausfällung löslicher Bestandteile ist hier nicht genannt.

**[0008]** In WO 98/31762 ist ein Verfahren beschrieben, bei dem Holzpartikel mit Hydrolasen behandelt werden, um durch Teilhydrolyse Extraktstoffe zu gewinnen und danach unter Zugabe von Laccase ein Bindemittel her-

zustellen und dieses für die Verklebung von Fasern und Spänen zu nutzen. Auch hier ist eine schon erwähnte rein oxidative Aktivierung des Faserstoffes unter Verwendung eines Bindemittels vorgesehen.

**[0009]** In dem Patent U.S.S.R 636311 wird der Einsatz von Hydrolasen und Oxidasen zur Plastifizierung von Hackschnitzeln und anderen Holzpartikeln vor der Zerkleinerung beschrieben. Ziel ist hier eine Energieeinsparung beim Mahlen.

**[0010]** Ein weiteres Verfahren nach DE 196 35 410 A1 verwendet u.a. Stärke als Bindemittel zur Herstellung von plattenförmigen Werkstoffen aus Holzfasern. Die Vliesbildung wird hier jedoch im Trockenverfahren realisiert.

**[0011]** Das Patent DE 43 17 692 A1 beschreibt die Herstellung von Verbundwerkstoffen aus nachwachsenden Rohstoffen, bei denen Bindemittel auf Stärkebasis verwandt werden. Dabei wird der Faserstoff mit einem flüssigen Additiv (Wasser) in einer Stufe vermischt, anschließend das Bindemittel zugegeben und nach einem weiteren Mischprozess ein Vlies gebildet. Nachteilig wirkt sich hier aus, dass nur die Fasern befeuchtet werden, während das Bindemittel trocken zugegeben wird, wodurch es zu Bindemittelverlusten kommen kann, da das Anlagern der trockenen Bindemittelpartikel an die Fasern erschwert wird.

**[0012]** Die Aufgabe der Erfindung besteht in der Bereitstellung eines Verfahrens zur Herstellung von Faserwerkstoffen sehr geringer Dichte mit verbesserten Festigkeits- und Quelleigenschaften, jedoch ohne Verwendung von Bindemitteln.

**[0013]** Erfindungsgemäß wird die Aufgabe durch ein Verfahren mit den im Anspruch 1 genannten Merkmalen gelöst. Die Unteransprüche 2 bis 8 betreffen bevorzugte Ausführungsvarianten des erfindungsmäßigen Verfahrens. Weiterhin wird die Aufgabe durch einen bindemittelfreien Faserdämmstoff mit den in den Ansprüchen 9 oder 10 genannten Merkmalen gelöst.

**[0014]** Gemäß Anspruch 1 basiert das dieser Anmeldung zugrundeliegende Verfahren auf einer direkten Inkubation von Fasern mit Mischenzymen in Kombination mit kationischen Ladungsträgern und nachfolgender Weiterverarbeitung zu plattenförmigen Werkstoffen. Die mit diesem Verfahren erhältlichen Werkstoffe sind in den Ansprüchen 9 bis 12 beschrieben.

**[0015]** Als Ausgangsmaterial für das Verfahren dienen Faserstoffe, vorzugsweise aus Holz, aber auch aus anderen lignocellulösen Stoffen wie Rapsstroh, Flachstroh, Hanfstroh, Getreidestroh, Kokosfasern, Reisstroh, Bambus, Bagasse, u.a., die für Enzyme zugänglich sind. Die genannten Ausgangsmaterialien, z.B. Holzhackschnitzel, werden vorzugsweise auf konventionelle Weise im Defibrator nach einem thermomechanischen Verfahren bei Temperaturen von 160 bis 180 °C zerkleinert. Andere Faserpflanzen wie Raps-, Flach-, und Getreidestroh können auch ohne thermische Vorbehandlung rein mechanisch im Refiner oder im Extruder zerkleinert werden. Die Separierung der Fasern kann

auch durch Kombination von thermischer Vorbehandlung, mechanischer Zerkleinerung und chemischem Aufschluss nach Sulfit-, Sulfat- oder Organosolv-Verfahren erfolgen. Eine alternative Variante dazu ist das Dampfexplosionsverfahren nach Mason. Bei diesem Verfahren wird das Ausgangsmaterial nach Behandlung mit Dampf und Druck schnell entspannt und durch den Berstdruck werden die Fasern voneinander getrennt. Zur Verbesserung der Zugänglichkeit der Faseroberfläche für Enzyme können die Fasern vor der enzymatischen Behandlung mit Mikrowelle oder Ultraschall behandelt werden.

**[0016]** Die Fasern werden mit den Enzymen und anderen Stoffen durch Tauchen und Herstellen einer Suspension in Kontakt gebracht. Die Aktivierung des Faserstoffes in der Suspension erfolgt durch enzymatische Aktivierung der drei Hauptbestandteile Zellulose, Hemicellulose und Lignin mit Hilfe von Mischenzymen, bestehend aus Oxidasen und Hydrolasen, in Kombination mit kationischen Bestandteilen. Die Inkubationszeiten liegen dabei unter zwei Stunden. Durch die enzymatische Faserstoffbehandlung und den Einsatz kationischer Bestandteile wird eine überraschende Wirkung erzielt, wodurch sich die erfindungsgemäßen Faserdämmstoffe herstellen lassen. Insbesondere werden durch den Einsatz des Verfahrens bei einer geringen Dichte des bindemittelfreien Faserdämmstoffs deutliche Festigkeitsverbesserungen gegenüber bekannten vergleichbaren Faserdämmstoffen erzielt.

**[0017]** Durch den Einsatz von geringen Mengen von kationischen Ladungsträgern, wie Stärke, Chitin o.ä. in Kombination mit der Enzymbehandlung wird eine Ausfällung von gelösten Substanzen aus der Suspension erreicht, die zur Schaffung von zusätzlichen bindefähigen Kontaktpunkten zwischen den Fasern führen und so die Ausbildung zusätzlicher Bindungen ermöglichen. Ohne Einsatz dieser Ladungsträger stehen diese gelösten Substanzen nicht für Bindungen zur Verfügung und führen zu erhöhten organischen Belastungen des Abwassers.

**[0018]** Es ist für den Fachmann überraschend und nicht naheliegend, dass Mischenzyme in Verbindung mit kationischen Ladungsträgern derart auf lignocellulöse Komponenten einwirken, dass durch das Ausfällen der gelösten klebewirksamen Bestandteile bei Werkstoffen geringer Dichte eine enorme verbesserte Verklebung der Fasern untereinander eintritt und dieser Effekt bei der Herstellung von Dämmwerkstoffen genutzt werden kann.

**[0019]** Gemäß dem Anspruch 4 handelt es sich bei dem Enzymgemisch um ein Extrakt, das aus fermentierten lignocellulösen Partikeln wie Hanfstrohhäcksel, Holzhackschnitzeln oder anderen gewonnen wird, die mit Weißfäulepilzen inkubiert wurden. Des weiteren können auch submers hergestellte Enzyme und Industrieenzyme zum Einsatz kommen. Je nach Art des Enzyms sind bei der Faserinkubation optimale Temperaturen und pH-Werte zu beachten. Die kationischen Stoffe

sind kommerziell erhältlich.

[0020] Nach der Inkubation lässt sich der Faserstoff aus einer Fasersuspension zu Faserdämmplatten verarbeiten. Dazu wird ein Faservlies auf einem Sieb gebildet, entwässert und getrocknet. Die Dichte der produzierten Dämmplattenwerkstoffe liegt zwischen 50 und 400 kg/m<sup>3</sup>. Die hergestellten Dämmstoffe niedriger Dichte können vielfältig in der Bau- und Verpackungsindustrie eingesetzt werden.

[0021] Die in der Erfindung beschriebenen Faserdämmstoffe erfüllen durch den völlig substituierten Anteil an synthetischen Bindemitteln Anforderungen an eine umwelt- und gesundheitsschonende Herstellung, Nutzung und Entsorgung. Ein reduzierter Bindemittelanteil führt zu Einsparungen an Produktions- und Entsorgungskosten.

[0022] Durch das beschriebene Verfahren können normgerechte Werkstoffeigenschaften bei erheblich geringen Werkstoffdichten, die auch eine bessere Trocknung zur Folge haben, realisiert werden. Die Anwendung des neuen Verfahrens hat eine Erhöhung der Werkstofffestigkeit auch bei geringen Werkstoffdichten zur Folge.

[0023] Die Erfindung wird nachfolgend an Hand von Ausführungsbeispielen noch näher beschrieben.

#### Beispiel 1

[0024] Ein thermomechanisch hergestellter Holzfasersstoff (Mahlgrad 12 ° SR) wurde mit Wasser in Suspension gebracht. Dabei betrug der Feststoffanteil 3 %. Der Aufschlussgrad ist eine wichtige Komponente zum Erzielenden der Rohdichte der Faserdämmplatte. Die Fasersuspension wurde 30 Minuten bei einer Temperatur von 50°C gerührt. Anschließend erfolgte die Entwässerung und Trocknung über einem Sieb. Die erzielte Plattenrohndichte beträgt 180 kg/m<sup>3</sup>.

#### Beispiel 2

[0025] In einem zweiten Versuch wurden Faserdämmplatten mit Zugabe Enzymlösung und kationischen Ladungsträger hergestellt. Der Fasersuspension wurden 1 % Enzymgemisch und 1 % zusätzliche kationische Ladungsträger zugeben. Der pH-Wert wurde mit Zitratpuffer auf 5 eingestellt. Die Inkubationszeit betrug 30 Minuten bei einer Temperatur von 50°C. Die Suspension wurde wie unter Beispiel 1 entwässert und anschließend getrocknet. Die Plattenrohndichte betrug ebenfalls 180 kg/m<sup>3</sup>.

[0026] Die Biegefestigkeit dieser Faserdämmplatten lag um 140 % über den nach dem ersten Beispiel hergestellten Faserdämmplatten.

[0027] Je nach Produktanforderung können gezielte Eigenschaftsbeeinflussungen durch veränderte Stoffliche Rezeptur und Verfahrensschritte erzielt werden.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von bindemittelfreien lignozellulosen Faserdämmstoffen, bei dem
  - a) der Faserstoff durch mechanische oder thermomechanische Zerfaserung hergestellt wird,
  - b) dieser in einer Suspension mit Mischenzymen inkubiert wird,
  - c) der Suspension kationische Ladungsträger zur Ausfällung kleinster Bestandteile zugegeben werden,
  - d) die Suspension entwässert und getrocknet wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die unter a) aufgeschlossenen Faserstoffe im Defibrator oder Refiner aus Holzhackschnitzeln oder anderen lignozellulosen Ausgangsstoffen, wie Raps- oder Getreidestroh, Hanf, Bambus, Bagasse usw. gewonnen werden.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** es sich bei den Enzymen um Hydrolasen, Oxidasen oder ein Gemisch aus diesen handelt.
4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Enzymgemische durch Solid-State Fermentation lignozelluloser Materialien oder submers gewonnen werden.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** als kationische Bestandteile, chitinhaltige Stoffe, modifizierte Stärken oder andere Stoffe eingesetzt werden.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Fasersuspension auf eine Restfeuchte von 100 bis 500 Gew. % bezogen auf trockenen Faserstoff vor dem Trocknen entwässert wird.
7. Verfahren nach Anspruch 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Trocknung mittels Durchströmungs- oder Überströmungstrocknung erfolgt.
8. Verfahren nach Anspruch 1 bis 7 **dadurch gekennzeichnet, dass** die Faseroberfläche vor und während der Inkubation mit Mikrowelle und/ oder Ultraschall behandelt wird.
9. Bindemittelfreier Faserdämmstoff, erhältlich nach einem Verfahren gemäß mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8.
10. Faserdämmstoff, **dadurch gekennzeichnet, dass** der plattenförmige bindemittelfreie Faserdämmstoff

eine Dichte im Bereich von 50 bis 400 kg/m<sup>3</sup> aufweist.

11. Faserdämmstoff nach Anspruch 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Faserdämmstoff eine Biegefestigkeit im Bereich von 2 bis 15 N/mm<sup>2</sup> aufweist. 5
12. Faserdämmstoff nach Anspruch 10 oder 11, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Faserdämmstoff die Anforderungen der Wärmeleitgruppe 0,40 erfüllt. 10

15

20

25

30

35

40

45

50

55