

茶葉塑膠再生複合材之開發研究

邱明賜¹ 楊德新² 林振榮³

摘要

過去天然纖維因具有易取得、低成本、可再生與環境友善性等優點，常作為塑膠複合材之補強材料，唯多以木粉纖維粉、稻殼纖維粉、麥稈與玉米稈纖維粉之天然產物等為主。本研究利用不同廢棄之茶粉與回收之高密度聚乙烯樹脂 (recycled High-density Polyethylene, rHDPE) 比例 (TP37: 30/70, TP46: 40/60, TP55: 50/50 與 TP64: 60/40)，進行茶塑粒之混煉，並以押出成型法進行茶葉塑膠複合材之開發與其基本性質評估。結果指出，隨茶粉 / rHDPE 比例之增加，茶葉塑膠複合材之物理性質 (吸水率與吸水厚度膨脹率) 與機械強度 (抗彎強度與抗拉強度) 有下降之趨勢，但其材料之挺性則上升。經動態機械分析結果，茶葉塑膠複合材之長期抵抗變形能力亦隨茶粉 / rHDPE 比例之增加而增大，考量其強度特性，茶粉 / rHDPE 塑膠比例以 50/50 具有較佳之性能。

關鍵字：木材、塑膠、再生複合材、茶粉

前 言

近年來木材塑膠複合材 (Wood plastic composite, WPC) 因其備較佳的耐久性、維護費用低及低成本的優點，被廣泛使用於戶外遊憩平台或景觀步道；過去 WPC 係藉由木質材料和熱硬化型樹脂所構成，利用樹脂 (如環氧樹脂、酚或尿素甲醛樹脂等) 以單體注入方式，進入木材與木質材料中，增進其尺寸安定性、機械性質與耐生物劣化性，然此類材料於廢棄時不易回收再利用。近年來泛木質纖維材料與熱可塑型樹脂之應用，成功的改善回收問題，同時藉由兩種材料特性之複合補強，使 WPC 具有 (1) 較低的吸水性，因塑膠除了本身不吸水外，又在木質粒片表面形成薄膜而可減少木質粒片吸水之膨脹性，致塑膠木料複合板具有良好之尺寸安定性 (Huang, 1997); (2) 具有較高的破裂係數 (Modules of rupture, MOR)、抗彎彈性係數 (Modules of elasticity, MOE) (黃國雄和熊如珍，2000)；(3) 使用年限較長，減少菌類攻擊等特性。木材塑膠複合材之用途，有快速的成長趨勢。相較於其他板類製品，WPC 成長量超過 20% (Morton, 2005)；以日本為例，確冰 (2005) 指出松下電工 (株) 所開發出的木塑板 (Wood plastic board, WPB)，因具有高強度，在薄板狀況時不易在表面發生割裂；施工黏著膠帶時無突起與低尺寸變化等特性，廣泛地利用在住宅中。此特性是合板及中密度纖維版 (MDF) 等木質系板材，無法以厚度 1.5 mm 達成。河上 (2005) 以應用於愛知萬博的球面屋頂 (約 14,000m²，周圍 2.6 km)，道路中央部分

-
1. 行政院農業委員會茶業改良場助理研究員。臺灣 新北市。
 2. 國立中興大學森林學系 教授。臺灣 臺中市。
 3. 行政院農業委員會林業試驗所 研究員兼組長。臺灣 台北市。

(寬 6 m)，中部國際機場甲板 (約 7,000 m²) 之新產品「M-wood 2」為例，利用與可再生製造之木塑材構建，具有與天然木材相同質感，耐久性、耐白蟻性及無使用甲醛系膠合劑，產品無甲醛釋出性、有害物質溶出量等安全性。

WPC 中所使用之纖維，包括稻殼、稻稈、各式農業廢棄物等天然纖維 (Yao et al., 2008)，另外也有研究是將回收的玻璃纖維部分填入複合材料 (Valente et al., 2011)，纖維可以利用的範圍很廣，使用此類纖維之益處在於具備低廉的成本、多半是回收再利用的材料、密度低，並且通常能提供 WPC 更好的強度，在 WPC 中使用了纖維能改善材料的挺性 (Stiffness) 和其他機械性能 (陳合進等, 2003；黃國雄等, 1994)，而 Herrmann 等人 (1998) 的研究報告中顯示以天然纖維強化的複合材料強度能與添加玻璃纖維的材料相比，在許多地方的應用更加合適，材料的製備也注入了更多的綠色環保概念。

我國木材年均消費量約 600 萬 m³，目前正發展 WPC 之開發，唯多數業者進口方式輸入 WPC，部分則是利用工廠回收鋸木屑進行 WPC 之製造，此類鋸木屑多為松木，且 WPC 的各項性能會受到樹種 (Ashori and Nourbakhsh, 2010；Bouafif et al., 2009)、製程 (Kuo et al., 2009)、材料組成 (Stark and Matuana, 2007；Leu et al., 2012) 等許多因素影響。本研究團隊亦曾以回收國內廣用於裝修之雲杉-松-冷杉 (Spruce-Pine-Fir, SPF) 木粉與回收之聚丙烯 (Polypropylene)、聚乙烯 (High Degree Polyethylene) 進行 WPC 之研製，並提出最適化條件開發 WPC 之用途。目前生產飲料茶所衍生大量茶葉副產物 (茶渣) 及茶葉精製所產生之茶葉粉塵，每年至少有三萬噸以上，多半作為堆肥原料或以廢棄物處理，其使用價值較低。由於茶葉副產物 (茶渣) 或茶粉也是一種天然纖維材料，如同木粉可作為 WPC 纖維補強材料，因此，研究應用茶渣取代松類木材的原料製造茶葉塑膠再生複合材，開發新產品做為推廣之依據。

材料與方法

一、試驗材料

(一) 製材殘料與回收塑膠

以市售飲料公司紅茶茶葉副產物 (茶渣) 為原料及回收塑膠 rHDPE：為熱可塑結晶性高分子，具有玻璃轉移溫度 (glass transition temperature, T_g) 約 -60°C，與熔點 (melting temperature, T_m) 約 120°C，密度約 0.941 g/cm³，吸水率 < 1%，押出成形溫度 148-232 °C，成形壓力為 500-800 psi，成形收縮率在 2%-5% 間，具有比較少的支鍊，較好的內聚力和引張強度，分子式 (C₂H₄)_n。

(二) 圖一 (b) 將回收之茶葉副產物 (茶渣) 進行乾燥與研磨破碎後，並經篩選分級後取得粒徑為留存於 0.15mm (100 mesh) 之茶粉，茶粉粒徑目前尚未有國家標準，參照木塑材使用木粉之標準。圖二機械混煉造粒粒徑為 5-5.5mm。

(三) 添加劑

- 潤滑劑：硬脂酸鋅 (Zinc stearate)。
- 耦合劑 (Coupling agent)：MAPE (Maleated polyethylene)。

二、試驗方法

(一) 粒片分級：將回收之茶葉副產物 (茶渣)，進行乾燥與研磨破碎後，以篩選機進行茶粉分級，並與回收塑膠粒，置於 70°C 的烘箱中乾燥 24 hr，隨後冷卻至室溫後備用。

(二) 混煉與造粒：分別取 30/70、40/60、50/50、60/40 (TP37、TP46、TP55、TP66) 之茶粉 / rHDPE

塑膠比，倒入混煉機當中進行攪拌混煉造粒，機械攪拌 3 min，攪拌速度 5-20 rpm，混煉機溫度依塑膠性質而作適當調整，混煉後，隨即進行冷卻處理與破碎造粒。

- (三) 擠壓成型：將造好之顆粒，放入單螺桿擠壓異形押出機內，螺桿的直徑大小為 65mm，L/D = 32，溫度為 170°C-200°C 間，用以混煉與加熱塑料，之後將融熔材料擠壓進平板狀模頭當中，再以 0.7-0.8m/min 的牽引速度拉過水冷機，最後冷卻成型。
- (四) 基本性質試驗：將成型後之茶粉塑膠複合材，依中華民國國家標準進行密度、含水率、吸水率、吸水厚度膨脹率、抗彎強度、抗拉強度等試驗。

結果與討論

一、茶葉破碎與分級

圖一 (a) 為經天然乾燥後之廢茶葉，成團塊狀，經研磨破碎並經篩選分級後取得粒徑為留存於 0.15mm (100 mesh) 之茶粉，如圖一 (b)，以便進行後續試驗，本研究成型方式係以押出成型之木材狀複合材，據 Bouafif et al. (2009) 研究顯示，塑膠對大粒徑的木粉包覆性不佳，且大粒徑木粉的纖維彼此可能產生糾纏，塑膠無法完全包覆，因此，其對水分之抗吸水吸濕能力會變差，另由木粉與塑膠接合程度角度視之，木塑之間較低的聯結，在受力時無法獲得較佳之應力轉移，亦會使試材強度下降；此與熱壓成型者所要求之纖維尺寸不同。

二、不同茶粉 / rHDPE 比例之混煉造粒與成型表面性質

圖二為茶粉 / rHDPE 與木粉 / rHDPE 之混煉顆粒，其外觀因茶葉副產物 (茶渣) 色澤較深，以致混煉茶塑顆粒外觀顏色較一般木塑顆粒為深，另由押出成型之茶葉塑膠複合材 (圖三) 外觀與色澤，四組茶葉塑膠複合材之表面色澤均較一般木材塑膠複合材為深。另在表面接觸角方面，四組茶葉塑膠複合材之表面接觸角為 96.0~102.0 度，顯示茶葉塑膠複合材表面具有良好疏水性。

三、茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之物理與機械性質分析

表一為茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之基本性質，利用不同茶粉與 rHDPE 比例混煉成型結果顯示，隨茶粉比例增加，茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之密度有增加趨勢 ($1.071 \text{ kg/m}^3 \sim 1.175 \text{ kg/m}^3$)，此係茶粉之真密度較 rHDPE 為高，在高壓下茶粉纖維之內部孔隙、細胞間隙、細胞腔等受到高壓壓潰而緻密化，且茶粉比例愈高，緻密化程度亦愈高所致，以 rHDPE 密度為 0.941 kg/cm^3 為基礎，隨茶粉比例增加，各組茶粉 / rHDPE 塑膠複合材密度分別增加 13.9%~24.8%。

在含水率方面，隨茶粉比例增加，茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之平衡含水率 (Moisture content, MC) 會有隨之增加之趨勢 (MC : 0.66%~1.56%)，雖塑膠為疏水性物質，由前述試驗結果亦可發現茶葉塑膠複合材表面具有良好之疏水性，然茶粉纖維本身為親水性材料，茶粉本身具有羥基，易與水分產生氫鍵結合，增加試材之含水率；因此，在茶粉 / rHDPE 塑膠複合材中，當茶粉比例增加時，其試材之平衡含水率亦隨之增加。

另外在 24 h 之吸水率與吸水厚度膨脹率方面，由表一顯示，隨茶粉含量增加，其吸水率 (Water absorption, WA) 與吸水厚度膨脹率 (Thickness swelling, TS) 均有上升之趨勢，特別是在 TP64 組，其吸水率與吸水厚度膨脹率均與其他組別具顯著差異 (WA : 1.97%、TS : 1.34%)，由於茶粉含量達 60%，因此，推估當茶粉含量較高，混煉時其與塑膠之包覆性降低所致。

另在機械性質方面，表二指出茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之抗彎強度強度有隨茶粉含量之增加而稍微降低之趨勢，破裂係數 (Modules of rupture, MOR) 由 23.99 MPa (TP37) 減低至 20.05 MPa (TP64)，此係茶粉與塑膠之間之接合界面，隨木粉含量增加，兩異質材料間界面間之膠合缺陷隨

之增加，以致受力時，應力無法有效於塑膠基質與茶粉間傳遞，造成應力集中現象所致 (Adhikary et al., 2008)，當應力無法有效傳遞，塑膠基質無法抓住纖維抵抗應變時，則纖維會因受力而被拔起，發生破壞 (Huda et al., 2006)。相反的，與塑膠相較之下，茶葉纖維如同木材纖維具有較佳之韌性，因此，隨茶粉比例增加，茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之抗彎彈性模數 (Tensile modulus, MOEt) 亦有顯著增大之趨勢，分別由 1.18 GPa (TP37) 增加至 1.55 GPa (TP64)。相較於茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之抗彎性質，其抗拉強度之變化較不顯著，但同樣地，抗拉彈性模數 (Modulus of elasticity, MOE_b) 亦隨茶粉比例之增加由 1.35 GPa (TP37) 增加至 1.83 GPa (TP64)。

四、茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之動態機械性質分析

茶粉 / rHDPE 塑膠複合材在機械性質上呈現高破裂係數 MOR 及低抗彎彈性係數 MOE 的特性。高 MOR 在短期強度試驗有較佳結果，然而此優點無法反映在長期荷載抵抗能力上，材料的長期荷載抵抗能力主要是由材料挺性 (stiffness) 所決定。由低 MOE 值可觀察出該材料在長期變形抵抗能力具改善空間，同時於未來應用時須審慎考慮其工法與設計。此外，以 10% 應力水準 (stress level) 以定溫 40°C 下進行潛變試驗 30 分鐘，結果如圖四所示，茶粉含量較低者 (TP37)，其潛變變形相對較大之趨勢 (圖四)。對照其 MOE 值，亦可發現 TP37 明顯低於其他三組，也造成其受力瞬時變形 (instantaneous deformation) 明顯高於其他三組。然而，若將試驗溫度提高至 60°C，則各組間差異變小之趨勢 (圖五)。依表一、二及圖四、五結果顯示 TP37 及 TP64 各有物理性之優缺點。因成本考量及可大量使用茶葉副產物 (茶渣)，建議以 TP55 茶粉 / rHDPE 塑膠複合材為最適比例。

結 論

本研究「茶葉塑膠再生複合材之開發及耐久性研究」以市售飲料公司所產之茶葉副產物 (茶渣) 進行研磨、分級與回收之 rHDPE 塑膠，研製茶粉 / rHDPE 塑膠複合材進行其基本性質試驗，其所得結論：

1. 以回收茶葉為原料所研製之茶粉 / rHDPE 塑膠複合材，其表面色澤較一般木粉塑膠複合材為深，可能有利於未來耐候試驗表面色澤變化度之探討。
2. 茶粉 / rHDPE 塑膠複合材之物理性質 (含水率與吸水厚度膨脹率) 與機械性質 (抗彎強度與抗拉強度)，均隨茶粉比例之增加而降低，抗彎彈性模數則隨茶粉比例增加而增大。
3. 茶粉 / rHDPE 塑膠複合材經動態機械分析試驗結果顯示，其在長期變形抵抗能力較差，隨茶粉含量增加而改善，未來應用時需考量其設計工法。
4. 目前飲料廠已付費方式委外清運茶葉副產物 (茶渣)，因含水份過高，需經由機械設備，將水分壓除水分增加成本。乾燥及磨粉成本與木粉相當，經本研究對其產品基本性質試驗結果及產品成本考量，使用 50/50 茶粉 / rHDPE 塑膠複合材為最適比例。

誌 謝

本研究承蒙士傑企業股份有限公司協助混煉、造粒及擠壓成型，特此誌謝。

參考文獻

1. 黃國雄、李銘鐘、彭武財. 1994. 塑膠-木材複合粒片板之性質。林業試驗所研究報告季刊 9(4): 407-412。
2. 黃國雄、熊如珍. 2000. 廢棄木質粒片製造塑膠木材複合板之耐久性。台灣林業科學 15(2): 201-208。
3. 陳合進、陳載永、徐俊雄、黃偉銘. 2003. 模壓式製造木材-HDPE 塑膠複合材戶外利用之接受性調查 (I)：新安裝之設施的接受性。國立中興大學農林學報 52(4): 11-20。
4. 確冰宏明. 2005. 木質プラスチック複合體の開発と内装建材への應用 木材工業 60(8): 383。
5. 河上榮忠. 2005. 「木材、プラスチック再生複合材」に關する JIS 原按作成の背景と現状並びに付社取組と 木材工業 60(8): 382-383。
6. Adhikary, K. B., Pang, S., and Staiger, M. P. 2008. Dimensional stability and mechanical behavior of wood-plastic composites based on recycled and virgin high-density polyethylene (HDPE). Composites: Part B 39: 807-815.
7. Ashori, A., and Nourbakhsh, A. 2010. Reinforced polypropylene composites: Effects of chemical compositions and particle size. Bioresour. Technol. 101: 2515-2519.
8. Bouafif, H., A. Koubaa, P. P. and Cloutie, A. 2009. Effects of fiber characteristics on the physical and mechanical properties of wood plastic composites. Composites: Part A 40: 1975-1981.
9. Herrmann, A. S., Nickel, J., and Riedel, U. 1998. Construction materials based upon biologically renewable resources – from components to finished parts. Polym. Degrad. Stab. 59: 251-261.
10. Hwang, G. S. 1997. Manufacturing of plastic/wood composite boards with waste polyethylene and wood particles. Taiwan J For Sci. 12(4): 443-450.
11. Huda, M. S., L. T. Drzal, A. K. Mohanty and M. Misra. 2006. Chopped glass and recycled newspaper as reinforcement fibers in injection molded poly (lactic acid)(PLA) composites: A comparative study, Compos. Sci. Technol. 66(11-12): 1813-1824.
12. Kuo, P. Y., Wang, S. Y., Chen, J. H., Hsueh, H. C., and Ysai, M. J.. 2009. Effects of material compositions on the mechanical properties of wood-plastic composites manufactured by injection molding. Mater. Des. 30: 3489-3496.
13. Leu, S. Y., Yang, T. H., Lo, S. F., and Yang, T.H. 2012. Optimized material composition to improve the physical and mechanical properties of extruded wood-plastic composites (WPCs). Construction and Building Materials 29: 120-127.
14. Morton, J. 2005. WPCs-Putting innovation of faster track. In: Proceedings, 8th International Conference on Woodfiber-Plastic Composites, Madison, Wisconsin, USA. Forest Product Society.
15. Stark, N. M., and Matuana, L. M. 2007. Characterization of weathered wood-plastic composite surfaces using FTIR spectroscopy, contact angle, and XPS. Polym. Degrad. Stab. 92(10): 1883-1890.
16. Valente, M., Sarasini, F., Marra, F., Tirillo, J., and Pulci, G. 2011. Hybrid recycled glass fiber/wood flour thermoplastic composites: Manufacturing and mechanical characterization. Composites: Part A. 42: 649-657.
17. Yao, F., Wu, Q., Lei, Y., and Xu, Y.. 2008. Rice straw fiber-reinforced high-density polyethylene composite: Effect of fiber type and loading. Ind. Crop. Prod. 28: 63-72.

Research and Development of Tea - Plastic Recycled Composite

Ming-Tzu Chiu¹ Te-Hsin Yang² Cheng-Jung Lin³

Summary

Natural fiber reinforced polymer composites gained a significant interest during the last decades, due to the advantages (ready availability, lower cost, recycled feasibility and environmental friendliness) in relation to use of the natural organic fiber rather than an inorganic mineral one. However, most of these researches have been performed on composites based on wood flours, rice-hull flours or wheat/crop straw flours, etc. In this study, tea flours (TF) / recycled high degree polyethylene (rHDPE) composites were prepared. The different ratio of tea flours / rHDPE (TP37: 30/70, TP46: 40/60, TP55: 50/50 and TP64: 60/40) were compounded and extruded through extrusion process. The physical and mechanical properties of the TF / rHDPE composites were investigated. Experimental results revealed that increasing TF content in composites improved the bending and tensile modulus (stiffness), but resulted in less favorable moisture content, thickness swelling, water absorption, bending and tensile strength. After dynamic mechanical analysis testing, the bending properties showed an increase of rigidity of the composites upon increasing the TF content. Concerning the properties and application, the mixture of 50 wt% TF and 50 wt% rHDPE provide a reasonable balance to the extruded composites.

Key words: Wood, Plastic, Recycled composite, Tea flour

1. Assistant Researcher, Tea Research and Extension Station, Taoyuan, Taiwan, R.O.C.

2. Professor, Department of Forestry, National Chung-Hsing University, Taichung, Taiwan, R.O.C.,

3. Senior Researcher, Forest Utilization Division, Taiwan Forestry Research Institute, Taipei, Taiwan, R.O.C.

表一、不同茶粉 / rHDPE 塑膠比例之複合材物理性質

Table 1 The physical properties of the TF / rHDPE composites were investigated

Specimen	T/P ¹ ratio	Density (kg/m ³)	MC ² (%)	WA ³ (%)	TS ⁴ (%)
TP37	30/70	1.0717 ^a ⁵ (5.0)	0.66 ^a (0.52)	0.56 ^a (0.04)	0.15 ^a (0.00)
TP46	40/60	1.0860 ^b (4.1)	0.32 ^a (0.24)	0.69 ^b (0.05)	0.27 ^a (0.10)
TP55	50/50	1.1302 ^c (7.8)	1.26 ^b (0.50)	1.12 ^c (0.09)	0.44 ^a (0.21)
TP64	60/40	1.1745 ^d (6.9)	1.56 ^b (0.39)	1.97 ^d (0.05)	1.34 ^b (0.29)

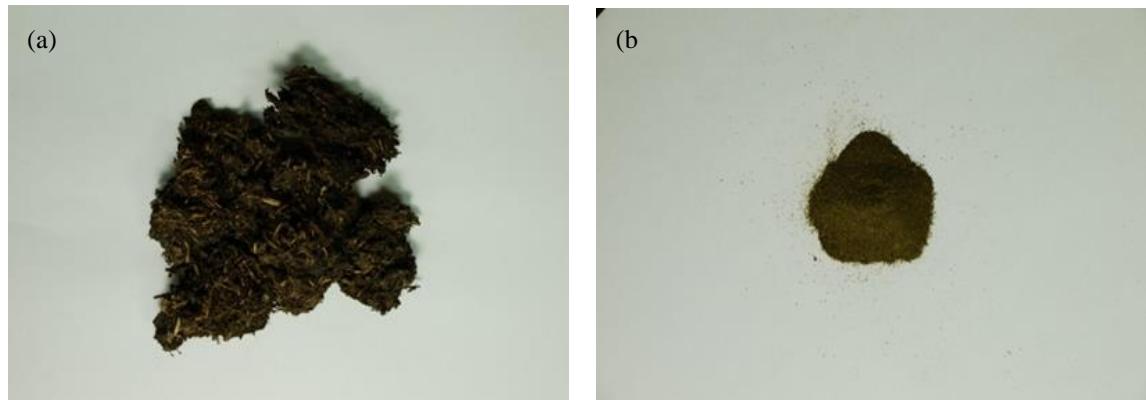
¹ Tea flour / plastic ratio, ² Moisture content, ³ Water absorption, ⁴ Thickness swelling⁵ a, b, and c show the significant difference with raw at the 0.05 level by the tukey's testing

表二、不同茶粉/rHDPE 塑膠比例之複合材機械性質

Table 2 The mechanical properties of the TF/rHDPE composites were investigated.

Specimen	T/P ratio	Tensile strength (MPa)	MOEt ¹ (Gpa)	MOR ² (Mpa)	MOEb ³ (Gpa)
TP37	30/70	10.01 ^{ab} ⁴ (0.93)	1.35 ^a (0.11)	23.99 ^b (3.30)	1.18 ^a (0.10)
TP46	40/60	10.55 ^b (0.56)	1.50 ^b (0.07)	23.72 ^{ab} (3.51)	1.35 ^b (0.06)
TP55	50/50	10.58 ^b (0.99)	1.57 ^b (0.13)	22.77 ^{ab} (2.24)	1.46 ^{bc} (0.09)
TP64	60/40	9.39 ^a (0.76)	1.83 ^c (0.09)	20.05 ^a (3.08)	1.55 ^c (0.07)

¹ Tensile modulus, ² Modulus of rupture, ³ Modulus of elasticity⁴ a, b, and c show the significant difference with raw at the 0.05 level by the tukey's testing



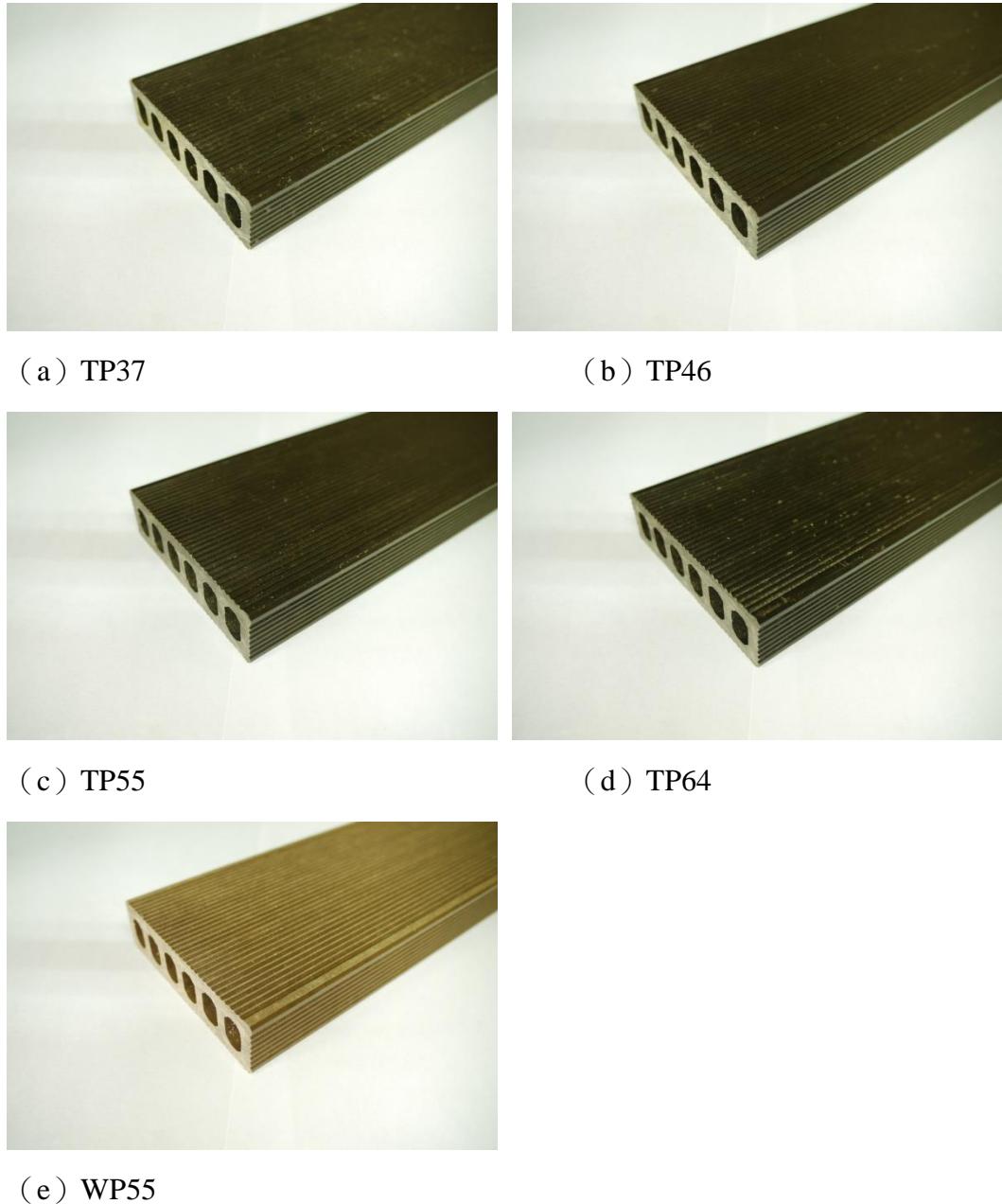
圖一、(a) 天然乾燥之廢茶葉團聚狀態 (b) 經破碎分級之茶粉

Fig. 1. (a) Agglomerated state of natural dried wasted infused tea leaves, (b) Broken and graded tea flours

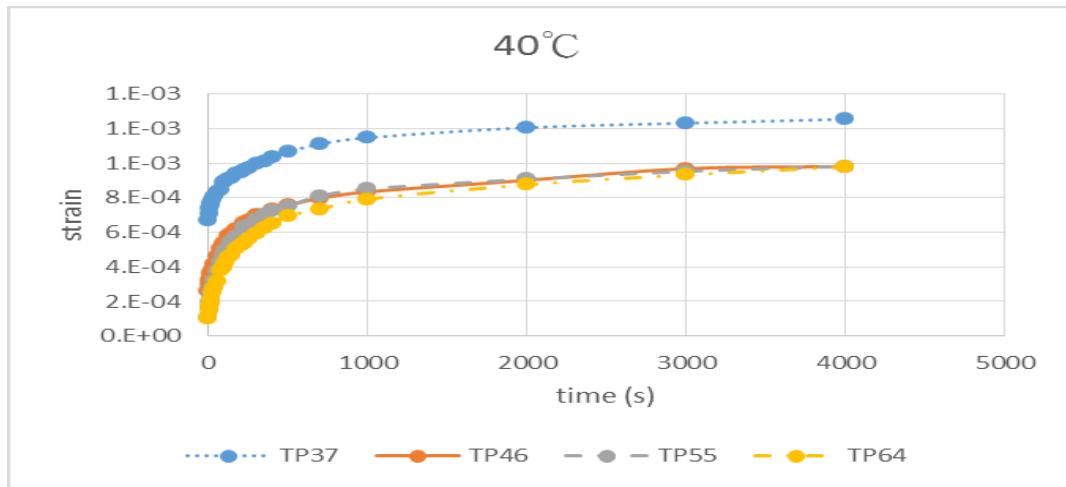


圖二、(a) 紅茶粉 / rHDPE 塑粒 (b) SPF 木粉 / rHDPE 塑粒

Fig. 2. (a) Black tea flours / rHDPE pellets, (b) SPF wood flours / rHDPE pellets

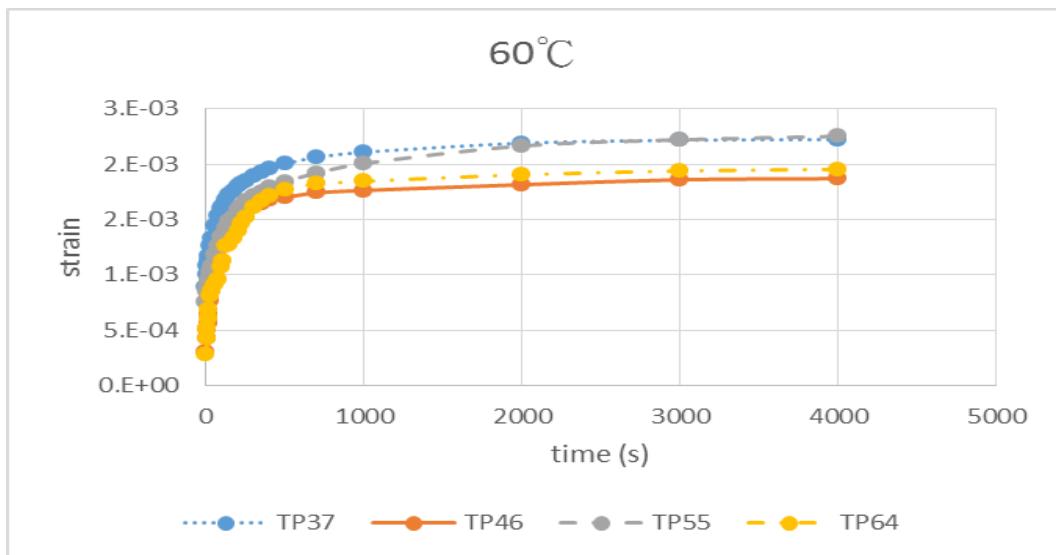


圖三、紅茶粉/rHDPE 塑膠複合材 (a-d) 與 SPF 木粉/rHDPE 塑膠複合材 (e) 試體外觀
Fig. 3. Black tea flours / rHDPE composites (a-d), and SPF wood flours / rHDPE composites (e)



圖四、40°C 下潛變試驗 30 分鐘

Fig. 4. Creep test for 30 min at 40 °C



圖五、60°C 下潛變試驗 30 分鐘

Fig. 5. Creep test for 30 min at 60 °C