

## YONGA LEVHALARIN FORMALDEHİT EMİSYONU ÜZERİNE TANEN VE KİTOSANIN ETKİLERİ

ÇOLAK, Semra<sup>a</sup>, ÖZTÜRK, Hasan<sup>b</sup> ve DEMİR, Aydın<sup>c</sup>

*a, KTÜ, Orman Fakültesi, OEM Bölümü, Trabzon/TÜRKİYE*

*b, KTÜ, Arsin Meslek Yüksekokulu, Malzeme ve Malzeme İşleme Teknolojisi Programı, Trabzon /TÜRKİYE*

*c, KTÜ, Of Teknoloji Fakültesi, Ağaç İşleri Endüstri Mühendisliği Bölümü, Trabzon /TÜRKİYE*

*colak@ktu.edu.tr, hasanozturk@ktu.edu.tr, aydindemir@ktu.edu.tr*

### Özet

Yapılan bu çalışmada, çam yongalarından üretilen yonga levhaların formaldehit emisyonu üzerine tanen ve kitosan kullanımının etkileri araştırılmıştır. Bu amaçla, üretilen formaldehit tutkalı kullanılarak 10 mm kalınlığında 3 tabakalı yonga levhalar üretilmiştir. Çalışmada kullanılan tanen ve kitosan tutkal reçinesi içerisine belirli oranlarda katılmış, tanen, kitosan ve hem tanen hem de kitosan katkılı toplam 3 grup oluşturulmuştur. Ayrıca tanen ve kitosan kullanılmadan kontrol grubu levhaları üretilmiştir. Üretilen yonga levhaların formaldehit emisyonu miktarları EN 717-3 standardına göre şişe yöntemi kullanılarak tespit edilmiştir. Yapılan çalışma sonuçlarına göre, tanen katkısı grupların formaldehit emisyonunu düşürürken, kitosan katkısı grupların formaldehit emisyonunu artırmıştır.

**Anahtar kelimeler:** Yongalevha, tanen, kitosan.

# EFFECTS OF TANNIN AND CHITOSAN ON FORMALDEHYDE EMISSION OF PARTICLEBOARD PANELS

## Abstract

In this study, The effects of tannin and chitosan on formaldehyde emission of the particleboards manufactured from pine particles were aimed to investigate. For this purpose, 10 mm thick-three layers particleboard panels were manufactured using urea formaldehyde resin. Tannin and chitosan were used in the study at specific proportions were added into adhesive, tannin, chitosan, both tannin and chitosan addition total 3 groups were formed. The control panels were manufactured without tannins and chitosan. Formaldehyde emission contents of particleboards were determined according to flask method described in EN 717-3 standard. According to the results from the study, tannin addition decreased formaldehyde emission contents of the groups while chitosan addition increased formaldehyde emission contents of the groups.

**Keywords:** Particleboard, tannin, chitosan.

## 1. Giriş

Ahşap esaslı levhalar (yonga levha, lif levha, kontrplak vb.) masif malzemeye göre sağlamış oldukları bazı avantajlar nedeni ile özellikle iç mekânlarda yoğun bir şekilde kullanılmaktadır. Masif ağaç malzemeye göre daha homojen bir yapıya sahip olmaları, istenilen şekil ve boyutlarda üretilebilmeleri ve çeşitli üretim yöntemleri, koruyucu katkı maddeleri ve yüzey kaplama malzemeleri kullanılmak suretiyle, fiziko-mekanik ve dayanım özelliklerinin istenilen ölçüde ayarlanabilmesi ahşap kökenli levhaların masif malzemeye göre üstün özelliklerinden bazılarıdır [1]. Bunun yanında üretimlerinde kullanılan yapıştırıcı türüne bağlı olarak formaldehit emisyonuna neden olmaları en önemli dezavantajları olarak görülmektedir.

Yüksek reaktivite, mükemmel adhezyon ve düşük maliyetli olması nedeni ile üre formaldehit tutkalları en fazla kullanım oranına sahip yapıştırıcılardır. Günümüzde üretilen ahşap esaslı levhaların %80-85'inin üre formaldehit tutkalları ile üretildiği bilinmektedir. Bununla birlikte kolaylıkla hidrolize olabilen zayıf bağlar nedeni ile suya

karşı düşük direnç göstermekte ve diğer formaldehit esaslı reçinelere oranla daha yüksek formaldehit emisyonuna neden olmaktadır [2]. Levhalardan ayrılan formaldehitin insan ve çevre sağlığına etkisi uzun yıllardır üzerinde çalışılan bir konudur. Kısa süreli maruz kalmalar neticesinde formaldehitin, ayrışma miktarına da bağlı olarak; göz ve boğazda yanmalara, solunum zorluklarına, uykusuzluğa ve sinirsel bozukluklara sebep verdiği tespit edilmiştir [3, 4]. Uluslararası Kanser Araştırma Örgütü (IARC)'nın 1995 yılında formaldehiti insan sağlığı açısından “Muhtemel Kanserojen Maddeler” sınıfına dahil etmesinden sonra pek çok gelişmiş ülke yasal düzenlemelerle formaldehit emisyonu için limit değerler getirmiştir. Bu düzenlemeler neticesinde formaldehit emisyonunun azaltılması konusunda geçen yüzyıl içerisinde önemli bir gelişme kaydedilmiştir. 2004 yılında aynı örgütün yürütmüş olduğu daha kapsamlı araştırmalar sonucunda formaldehit “muhtemel kanserojen maddeler” sınıfından çıkarılarak doğrudan insan sağlığı açısından “Kanserojen Madde” olarak tanımlanmıştır [5]. Bu durum son yıllarda formaldehit emisyonunun azaltılmasına yönelik çalışmalara yeniden bir ivme kazandırmıştır.

Formaldehit emisyonunun azaltılmasına yönelik geliştirilen yöntemler; ahşap esaslı levha ürünlerinin üretiminde yeni bağlayıcı sistemlerin kullanımı, reçine formülasyonunda formaldehitin molar oranının azaltılması [4], levha üretiminde formaldehit tutucu/bağlayıcı maddelerin kullanımı [6-15], üretim sonrasında levhaların formaldehit bağlayan maddelerle muamelesi veya yüzey kaplama materyalleri ile kaplanması [16] şeklinde özetlenebilir.

Ağaç kabuğunun önemli bileşenlerinden biri olan tanen, tanen formaldehit reçinesi olarak levha sektöründe kullanıldığı gibi formaldehit bağlayıcı olarak geniş ölçüde araştırılmıştır [17]. Sepileme maddesi olarak deri sanayinde, ilaç sanayinde, tekstil sanayinde boya maddesi olarak, gıda sanayinde bira, şarap ve meyve sularının arındırılmasında arıtıcı olarak, petrol sanayinde inceltici olarak ve tutkal sanayinde kullanılmaktadır. Tanenler boya ve mürekkep üretiminde de kullanılmaktadır [18].

Kitosan, yengeç ve karides gibi kabuklu deniz ürünlerinin dış iskeletlerinde, kelebeklerin kanatlarında, mantarların hücre duvarlarında vb. bulunan doğal bir polisakkarit olan kitin'den kısmi deasetilasyon yoluyla elde edilen, reaktif fonksiyonel amino gruplarına sahip; kimyasal yapı olarak selüloza benzeyen ve doğada selülozdan sonra en sık rastlanan biyopolimerdir. Kitosan, çöktürme, nem tutma, film oluşturma,

antimikrobiyal etki, enzim immobilizasyonu gibi çok çeşitli fonksiyonları nedeniyle ilaç, kozmetik, tıp, tarım gibi çeşitli endüstrilerde sınırsız kullanım alanlarına sahiptir [19]. Literatürde yapılan çalışmalarda, kitosanın, kağıdın mekanik özelliklerini, masif odunun yapışma özelliklerini ve suya karşı dayanımını geliştirdiği belirtilmiştir [20, 21]. Ayrıca yapılan bazı çalışmalarda ahşap esaslı levhaların boyutsal stabiliteğini iyileştirdiği ifade edilmektedir [22]. Ancak bu çalışmalarda kitosan kullanımının levhaların formaldehit emisyonu üzerine etkisi araştırılmamıştır.

Bu çalışmada ise; çam yongalarından üretilen yonga levhaların formaldehit emisyonu üzerine tanen ve kitosan kullanımının etkilerinin araştırılması amaçlanmıştır. Bu amaçla tanen katkılı, kitosan katkılı, hem tanen hem de kitosan katkılı ve katkısız kontrol grubu olmak üzere 4 farklı grup oluşturulmuştur.

## 2. Materyal ve Metod

### 2.1. Materyal

Yonga levha üretiminde, çam odunundan elde edilen yongalar kullanılmıştır. Tutkal türü olarak da katı madde oranı %55 olan üre formaldehit tutkalı kullanılmıştır. Çalışma kapsamında kullanılan tanen toz halinde, kitosan ise %3'lük konsantrasyonda suda çözülmüş halde tutkal karışımlarına belli oranlarda ilave edilerek 4 farklı grup oluşturulmuştur. Oluşturulan bu gruplar ve karışım oranları yüzde olarak Tablo 1'de verilmiştir.

Tablo 1. Çalışma kapsamında oluşturulan gruplar ve kullanım oranları (%)

Örnek Grupları	A grubu		B grubu		C grubu		D grubu	
	Orta Tabaka	Dış Tabaka	Orta Tabaka	Dış Tabaka	Orta Tabaka	Dış Tabaka	Orta Tabaka	Dış Tabaka
Tutkal	10	8	8	6	8	6	8	6
Sertleştirici	1	1	1	1	1	1	1	1
Tanen	-	-	2	2	-	-	2	2
Kitosan	-	-	-	-	2	2	2	2

## 2.2. Yongalevhaların üretilmesi

Yonga levha üretimi, K.T.Ü. Orman Fakültesi Orman Endüstri Mühendisliği Bölümü Pilot tesisinde gerçekleştirilmiştir. Yonga levha üretimi için kaba yongalama ve ince yongalama uygulanmıştır. Daha sonra orta tabaka için 1,5 mm, dış tabaka için 0,5 mm olacak şekilde yongalar elenmiş ve elenen yongalar 110 °C’de %3 rutubete kadar kurutulmuşlardır. Yonga levhaların üretiminde, tutkal A grubu için tam kuru yonga ağırlığına oranla dış tabakaya %10 orta tabakaya %8 oranında verilmiştir. Diğer gruplarda ise dış tabakada %8 orta tabakada %6 oranında tutkal kullanılmıştır. Sertleştirici olarak amonyum klorürün %25’lik sulu çözeltisi kullanılmıştır. Levha taslağının hazırlanmasında 43x43 cm boyutlarında şekillendirme çerçevesi ve 1,0 cm kalınlığında kalınlık takozları kullanılmıştır. Üretilen levhaların dış tabakaları, levha kalınlığının %40’ını, orta tabaka ise %60’ını oluşturacak şekilde hazırlanmıştır. Levha özgül ağırlığı 0,7 gr/cm<sup>3</sup> olarak belirlenmiştir. Presten çıkış rutubeti %8 olarak tayin edilmiştir. Elde edilen levha taslaklarının preslenmesinde; pres basıncı; 23-25 kg/cm<sup>2</sup>, pres sıcaklığı; 150 °C ve pres süresi 5 dakika olarak uygulanmıştır.

## 2.3. Formaldehit emisyonu

Üretilen deneme levhalarının formaldehit emisyonu değerleri, EN 717-3 (EN 717-3, 1996) standardı uyarınca şişe yöntemi kullanılarak belirlenmiştir [23]. Bu metoda göre, içerisinde 50 ml destile su bulunan 500 ml. lik polietilen şişelere, üretimi yapılan her yongalevha grubuna ait 25x25xlevha kalınlığı (mm) boyutlarındaki örneklerden rastgele seçilen 15-17 g ağırlıktaki numuneler bir lastik yardımıyla destile suya değmeyecek şekilde asılmış ve şişenin ağzı sıkıca kapatılmıştır (Şekil 1). Şişeler 40 °C sıcaklıktaki fırında 3 saat tutulduktan sonra çıkarılmış ve içerisindeki örnekler uzaklaştırılarak kapakları kapalı şekilde 1 saat soğumaya bırakılmıştır. Bu süre sonunda şişelerden alınan çözelti analiz edilerek yongalevhaların formaldehit emisyonu değerleri aşağıdaki formüle göre belirlenmiştir.

$$F = \frac{(A_s - A_b) \times f \times 50 \times 10 \times (100 + R)}{M} \text{ mg} \quad (1)$$

Burada;

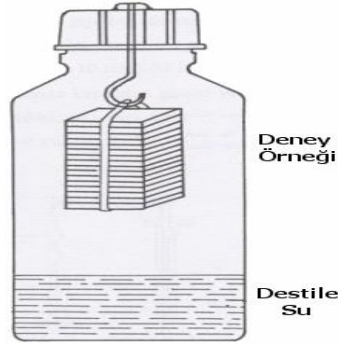
$A_s$ = Ekstraksiyon çözeltisinin absorbanası

$F$ = Kalibrasyon eğri faktörü

$A_b$ = Kör deneyinin absorbanası

$M$ = Örnek ağırlığı

$R$ = Levhanın rutubet miktar



Şekil 1. WKI - Şişe metodu deney düzeneđi

### 3. Sonuçlar ve Tartışma

Şişe yöntemine göre belirlenen formaldehit emisyonu değerleri Tablo 2’de verilmiştir. Her bir grup için 2 tekrarlı deney yapılmış olup, deneyler arasındaki farklar birbirine çok yakın olduğundan standart sapma değerleri hesaplanmamıştır.

Tablo 2. Deneme levhalarından ayrışan formaldehit miktarları

Örnek Grupları	Formaldehit Emisyonu (mg/100g Tam Kuru Levha)
A Grubu (Kontrol)	6,17
B Grubu	5,93
C Grubu	7,37
D Grubu	8,51

Tablo 2'den de görüldüğü üzere tanen ilavesinin levhalarının formaldehit emisyonu değerlerini azaltan, kitosan ilavesinin ise formaldehit emisyonunu artıran bir etki gösterdiği belirlenmiştir. Tanen katkılı gruplardan elde edilen sonuçlar literatürde yapılan birçok çalışma ile desteklenmektedir [24, 25]. Kitosan ile ilgili birçok çalışma olmasına karşın, formaldehit emisyonu üzerine etkisi ile ilgili herhangi bir çalışma bulunmamaktadır. Kitosanın tanenle kullanımı sonucu, tanenin serbest formaldehit emisyonundaki etkinliğini ortadan kaldırdığı belirlenmiştir.

#### 4. Kaynaklar

- [1] Var A A, Borlu Madde Katılım Oranlarının Yongalevhanın Yüzey Sağlamlığına Katkılar, Bartın Orman Fakültesi Dergisi, Cilt 14, Özel Sayı, 2012; s. 112-119.
- [2] Çolak, S, Kontrplaklarda Emprenye İşlemlerinin Formaldehit ve Asit Emisyonu ile Teknolojik Özelliklere Etkiler, Doktora Tezi, KTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon, 2002.
- [3] Salem M Z M, Zeidler A, Böhm M, Srba J, Norway spruce (*Picea abies* [L.] Karst.) as a bioresource: Evaluation of solid wood, particleboard, and MDF technological properties and formaldehyde emissio, *Bioresources*, 8(1), 2013; Pages 1199-1221.
- [4] Çolak S, Çolakoğlu G, Volatile acetic acid and formaldehyde emission from plywood treated with boron compoun, *Building and Environment*, 2004; Pages, 533–536.
- [5] Jianying X, Tao J, Yingyan G, Min Z, Xia Z, Reduction of Formaldehyde Emission of Wood-based Panel, <http://ieeexplore.ieee.org/stamp>, 2010; 06.02.2015.
- [6] Vazquez G, Freire S, Gonzalez J, Antorrena G., Characterization of *Pinus pinaster* bark and its alkaline extracts by diffuse reflectance Fourier transform infrared (DRIFT) spectroscop, *Holz als Roh-und Werkstoff*, 2000; 58, Pages 57–61.

- [7] Kim S, Lee YK, Hyun-Joong K, Hyoung L H, Physico-mechanical properties of particleboards bonded with pine and wattle tannin-based adhesives, *Journals Adhesion Science Technology*, 2003; 17, Pages 1863–1875.
- [8] Kim S, Kim H J, Effect of addition of polyvinyl acetate to melamineformaldehyde resin on the adhesion and formaldehyde emission in engineered floorin, *International Journal Adhesion Adhesives*, 25, 2005; Pages 456–461.
- [9] Pizzi A, Tannery row – the story of some natural and synthetic wood adhesive, *Wood Science Technology*, 2000; 48, Pages 277–316.
- [10] Jahanshahe, Sh, Tabarsa T, Asghari J, Resalati H, Investigation of the amount of tannic acid in Bark Oak (*Quercus castanifolia*, *Wood Paper Industry Iran*, 2010; 2, Pages 27–35.
- [11] Jahanshahee Sh, Tabarsa T, Asghari J, Eco-friendly tannin–phenol formaldehyde resin for producing wood composite, *Pigment Resin Technology*, 2012; 41, Pages 296–301.
- [12] Farag , Synthesis and physicochemical studies of starch–sulphonated phenol formaldehyde cationic exchanger, *Starch-Starke*, 1995; 47, Pages 192–196.
- [13] Yoshida C, Okabe K, Yao T, Shiraishi N, Oya A, Preparation of carbon fibers from biomass-based phenol formaldehyde resi, *Journal Material Science*, 2005; 40, Pages 335–339.
- [14] Turunen M, Alvila L, Pakkanen T T, Rainio J, Modification of phenol-formaldehyde resol resins by lignin, starch, and ure, *Journal of Applied Polymer Science*, 2003; 88, Pages 582–588.
- [15] Basta A H, El-saied H, Gobran R H, Sultan M Z, Enhancing environmental performance of formaldehyde- based adhesives in lignocellulosic composites, part III: evaluation of some starch derivative, *Designed Monomers and Polymers*, 2006; 9, Pages 325–347.



- [16] Nemli G, Çolakođlu G, The influence of lamination technique on the properties of Particleboard, Building and Environment, 2005; 40, Pages 83–87.
- [17] Çolak S, Sentetik Fenol Tutkallara Alternatif Olarak Tanenli Yapıřtırıcılar, Kafkas Üniversitesi Artvin Orman Fakóltesi Dergisi, 2003; 1-2, s. 76-82.
- [18] Dađdelen, R, Bazı Tanenli ve Tanensiz Ađaçların Amonyak ile Reaksiyonu Sonucu Oluřan Mekanik ve Fiziksel Deđişlikle, Yüksek Lisans Tezi, Karabük Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Karabük, 2010.
- [19] Bostan K, Aldemir T, Aydın A, Kitosan ve antimikrobiyal aktivites, Türk Mikrobiyol Cem Dergisi, 2007; 37 (2), s. 118-127.
- [20] Umemura K, Kaiho K, Kawai S, Characterization of Bagasse-Rind Particleboard Bonded with Chitosa, Journal of Applied Polymer Science, 2009; Volume 113, Pages 2103–2108.
- [21] Bařtürk M A, Heat Applied Chitosan Treatment on Hardwood Chips to Improve Physical And Mechanical Properties of Particleboard Bioresources, 2012; 7(4), Pages 4858-4866.
- [22] Bařtürk M A, Güntekin E, Effects of Chitosan Treatment on Some Particleboard Properties, Wood Research, 2009 ;54(4), Pages 91-98.
- [23] EN 717-3. 1996. Wood-based panels, Determination of formaldehyde release, Formaldehyde release by flask method, European Committee for Standardization, Brussels, Belgium.
- [24] Kim S, Environment-friendly adhesives for surface bonding of wood-based flooring using natural tannin to reduce formaldehyde and TVOC emissio, Bioresources Technology, 2009; 100, Pages 744–748.

[25] Kim S, Kim H J, Xu G Z, Eom Y G, Environment-friendly adhesives for fancy veneer bonding of engineered flooring to reduce formaldehyde and TVOC emissions”, Mokchae Konghak, 2007; 35, Pages 58–66.