

GMA 和共单体对聚乙烯木塑复合材料的直接反应增容*

李跃文^{1**} 陈兴华¹ 欧阳杰² 熊 晨²

(¹ 湖南科技职业学院轻化工程学院 长沙 410004) (² 湖南师范大学化学化工学院 长沙 410081)

摘 要 通过甲基丙烯酸缩水甘油酯(GMA)、聚乙烯(PE)、木粉和其它助剂的熔融挤出,实现了 GMA 及 GMA 与共单体对 PE 和木粉的直接反应增容.通过扫描电镜(SEM)观测了 PE 基木塑复合材料(WPC)的冲击断面形貌.测试了 WPC 经抽提后所得木粉的傅立叶变换红外光谱(FTIR)和 WPC 的力学性能及热变形温度(HDT).研究了共单体苯乙烯(St)和抑交联剂亚磷酸三苯酯(TPP)对反应增容的影响.结果显示,经 GMA 和引发剂反应增容后,有部分 PE 分子键合到了木粉粒子上,从而增强了木塑两相的结合力;St 的加入有利于提高 GMA 的接枝率,导致更多 PE 分子键合到了木粉粒子上,而 TPP 的加入则使 GMA 的接枝率有所下降.经 GMA 和引发剂直接反应增容后,WPC 的力学性能和 HDT 均明显改善;St 的加入有助于抑制 PE 的交联,但并未造成 WPC 力学性能和 HDT 的明显劣化;同时加入 St 和 TPP 后,WPC 的 HDT 有所下降,而断裂伸长率和冲击强度则明显提高.

关键词 聚乙烯,木粉,复合材料,甲基丙烯酸缩水甘油酯,苯乙烯,反应增容

增加木塑两相的相容性是制备高性能木塑复合材料(WPC)的必要手段.增容方法有多种,其中包括利用乙酸酐^[1]、苯甲酰氯^[2]、乙二酸和十六醇^[3]等试剂处理木质填料,通过酯化反应在填料表面引入烷基,降低木粉表面极性,缩小木塑两相的极性差距,从而增加木塑两相的相容性;利用硅烷^[4,5]、钛酸酯、铝酸酯^[6,7]和异氰酸酯^[8]等偶联剂对木质填料进行表面处理来增强木塑两相的亲合力;通过化学反应在木塑两相间形成链接来提高木塑两相的结合力,即反应增容.反应增容效果显著,作用持久,因而受到人们的日益重视.

反应增容最初用于高分子合金.如聚酰胺、聚酯等与聚烯烃共混时,可添加马来酸酐接枝聚烯烃进行增容^[9].马来酸酐接枝聚烯烃的主链可很好地与聚烯烃相容,而马来酸酐侧基能与聚酰胺和聚酯的氨基或羟基等反应,在两相间形成化学链接.聚苯乙烯与聚烯烃类聚合物共混时,可通过 Fridel-Crafts 反应,直接将聚烯烃分子链接枝到聚苯乙烯的苯环上,从而实现两相间的反应增容^[10].近年来,反应增容也逐渐用于高分子复合材料.研究表明,在 WPC 中添加马来酸酐接枝高聚物^[11,12]、甲基丙烯酸缩水甘油酯(GMA)接枝高聚物^[13]和丙烯酸-乙烯基单体共聚物^[14,15]等带有

酸酐基、环氧基或羧基的高分子增容剂后,熔融共混时,高分子增容剂的酸酐基或羧基能与木质填料表面的羟基反应形成共价键,而其长链部分能与树脂分子链缠结在一起,从而增加木塑两相的相容性.

目前 WPC 反应增容时,一般是先合成高分子增容剂,再添加到 WPC 中,并在熔融状态下使木塑两相产生化学联结.这种方法须预先制备高分子增容剂,成本较高;且由于大分子增容剂难以及时迁移到木塑两相的界面,增容效果受到影响.若能找到合适的增容单体,使之在与木质填料、树脂熔融共混时,在引发剂引发下能在木塑界面直接与树脂接枝,并随即与木质填料表面产生链接,则可望省掉预先合成高分子增容剂这一步,实现单体对 WPC 的直接反应增容.本课题研究了 GMA 对聚乙烯(PE)基 WPC 的直接反应增容,并探索了共单体和抑交联剂对直接反应增容的影响.

1 实验部分

1.1 原料

PE,2911,中国石油抚顺石化公司;过氧化二异丙苯(DCP),化学纯,上海凌峰化学试剂有限公司;GMA,分析纯,美国 DOW 化学品公司;苯乙烯

* 2011-10-08 收稿,2011-12-13 修稿;湖南省科技计划项目(项目号 2010GK3143)和湖南科技职业学院资助课题(课题号 KJ11113)资助;** 通讯联系人,E-mail:lyw1965@126.com

doi:10.3724/SP.J.1105.2012.11311

(St), 分析纯, 天津大茂化学试剂厂; 亚磷酸三苯酯 (TPP), 化学纯, 国药集团化学试剂有限公司; 二甲苯, 分析纯, 天津市科密欧化学试剂有限公司; 木粉, 150 μm .

1.2 复合材料及试样制备工艺

木粉在 100 $^{\circ}\text{C}$ 下鼓风干燥 12 h, 再与 PE 及其它组分一起加入张家港市亚塑机械有限公司 SHR 高速混合机中混合 5 min. 其中, 木粉与 PE 的质量比固定为 3:7; 其它组分的用量见表 1. 初混物通过南京杰恩特机电有限公司 SHJ-20 同向

双螺杆挤出机挤出后冷却破碎得到 WPC 粒料, 挤出温度为 180 $^{\circ}\text{C}$. 在前期研究中发现, 对于 PE 基 WPC, 挤出温度低于 170 $^{\circ}\text{C}$ 时, PE 树脂的塑化会有困难, 而挤出温度高于 190 $^{\circ}\text{C}$ 时, 木粉会明显分解, 导致 WPC 明显变色, 而挤出温度在 170 ~ 190 $^{\circ}\text{C}$ 之间, WPC 的综合性能变化并不大, 故取 180 $^{\circ}\text{C}$ 的挤出温度. 将挤出得到的各种配比的粒料, 通过浙江金鹰塑料机械有限公司 GEK80 注塑机注塑制备力学性能和热性能测试用的标准样条, 注射温度 180 $^{\circ}\text{C}$, 注射压力 105 MPa.

Table 1 Composition of WPC samples

WPC number	PE (wt%)	Wood-flour (wt%)	GMA (wt%)	DCP (wt%)	St (wt%)	TPP (wt%)
1	70	30	0	0	0	0
2	69.79	29.91	0	0.3	0	0
3	68.95	29.55	1.5	0	0	0
4	68.74	29.46	1.5	0.3	0	0
5	67.69	29.01	1.5	0.3	1.5	0
6	66.99	28.71	1.5	0.3	1.5	1

1.3 性能测试、形貌观测及傅立叶变换红外光谱 (FTIR) 测试

热变形温度 (HDT) 用承德精密试验机有限公司 RV-300 热变形维卡软化点温度测定仪按 GB/T 1634.2-2004/ISO75-2:2003 测试, A 法; 拉伸性能按 GB/T 16421-1996 用长春科新试验仪器有限公司 WDW3020 微控电子万能试验机测试, I 型试样, 拉伸速率 40 mm/min; 弯曲性能用 WDW3020 微控电子万能试验机按 GB/T 9341-2000 测试, 试验速度 2 mm/min; 冲击性能用承德精密试验机有限公司 XJC-25ZD 电子冲击试验机按 GB/T 1043-1993 测试, 试样类型 3, 缺口类型 B, 支撑线间距离 70 mm.

WPC 冲击断面喷金后, 用 FEI 公司 QUANTA-200 扫描电子显微镜 (SEM) 观测其断面形貌. WPC 在二甲苯中加热回流 3 h, 混合物趁热抽滤, 所得木粉用二甲苯在索氏提取器中抽提 3 h, 除掉残留的物理吸附在木粉上的 PE, 干燥. WPC 经抽提后得到的木粉和纯木粉用 KBr 压片后用 Thermo Nicolet 公司 Avatar-370 红外光谱仪测试其 FTIR, 纯 PE 压膜后直接测试其 FTIR.

2 结果与讨论

2.1 WPC 抽提后所得木粉的 FTIR

文献表明, 在引发剂引发下, GMA 可通过其

双键与 PE 发生熔融接枝, 生成 GMA 接枝 PE (PE-g-GMA)^[16]; PE-g-GMA 在熔融挤出过程中可通过其环氧基与木粉表面羟基的反应对 PE 基 WPC 起增容作用^[13]. 那么在大量木粉存在下, GMA 在熔融挤出过程中可否与 PE 顺利接枝; 如能顺利接枝, 生成的 PE-g-GMA 能否随即与木粉表面羟基反应, 从而增强木塑两相的结合力; 图 1 (a) 是 1#、2#、3#WPC 经抽提后所得木粉和纯 PE、纯木粉的 FTIR. 纯 PE 有 4 个强吸收峰, 其中 2920 和 2850 cm^{-1} 处的吸收峰分别是亚甲基的不对称伸缩振动和对称伸缩振动吸收峰, 1470 和 730 cm^{-1} 处的吸收峰分别是亚甲基的剪式弯曲振动和摇摆弯曲振动吸收峰; 纯木粉在 3455 ~ 3480 cm^{-1} 处的强吸收峰是羟基的特征吸收谱带^[17], 在 2920 和 1470 cm^{-1} 附近也出现了 C—H 键的伸缩振动和弯曲振动吸收峰. 可以看出, 1#、2#、3#WPC 经抽提后所得木粉的 FTIR 与纯木粉的几乎一样, 没有出现 PE 在 2850 和 730 cm^{-1} 处的特征吸收峰. 表明 1#、2#、3#WPC 木塑两相没有形成化学键合, 而与木粉物理混合在一起的 PE 树脂基本上已被抽提干净. 图 1 (b) 是 4#、5#、6#WPC 经抽提后所得木粉和纯 PE、纯木粉的 FTIR. 可以发现, 4#、5#、6# WPC 经抽提后所得木粉的 FTIR 在 2850 和 730 cm^{-1} 处出现了 PE 的特征吸收峰; 与右侧相邻峰对照后可发现, 与纯木粉相比, 在

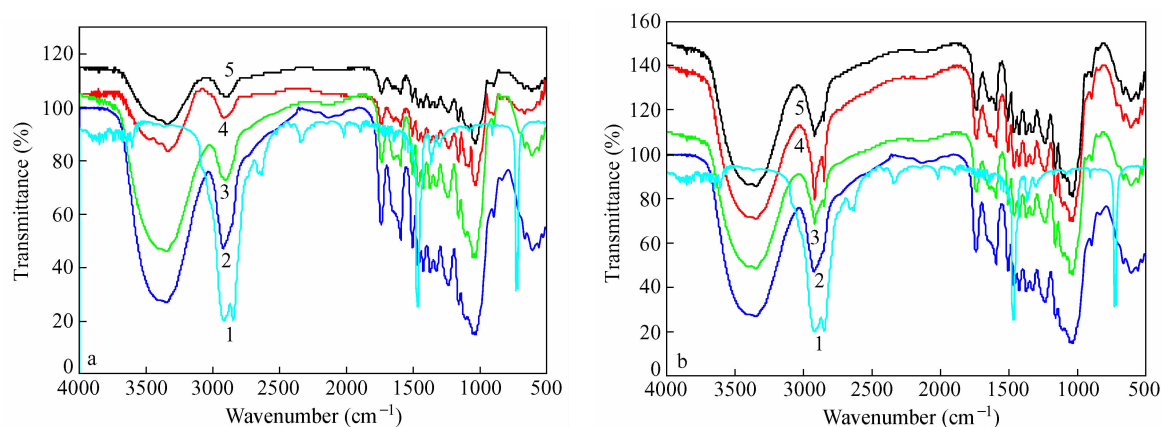


Fig. 1 FTIR spectra of wood-flour extracted from the WPCs: (a) 1-pure PE, 2-pure wood-flour, 3, 4, 5-wood-flour extracted from 1#, 2# and 3# of the WPCs; (b) 1-pure PE, 2-pure wood-flour, 3, 4, 5-wood-flour extracted from 4#, 5# and 6# of the WPCs

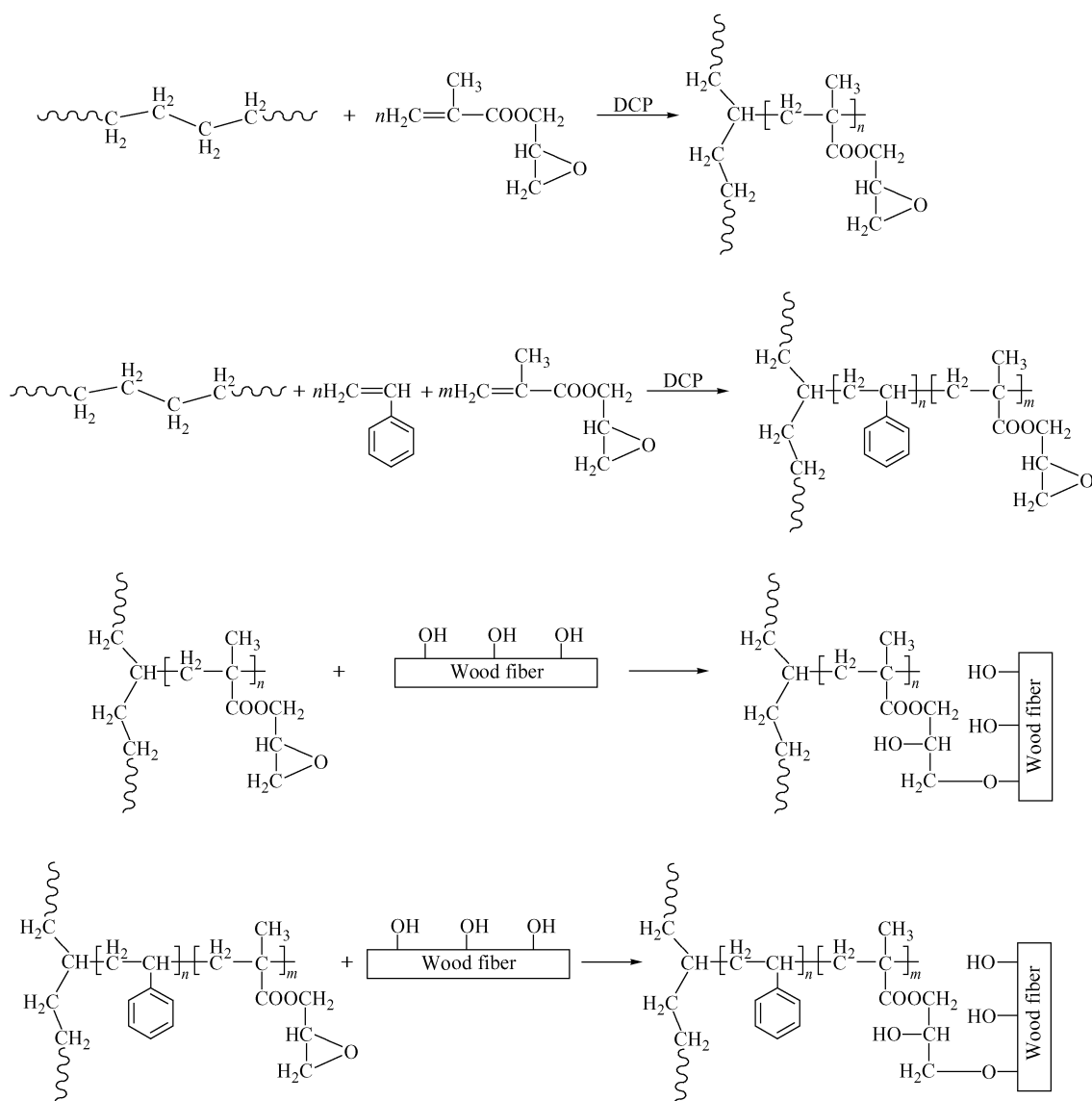


Fig. 2 Compatibilization reactions of GMA and GMA/St on PE/wood-flour composites

1470 cm^{-1} 处的吸收峰也更强. 表明 4#、5#、6# WPC 中有部分 PE 分子键合在木粉粒子上, 键合在木粉上的 PE 分子是不能通过抽提去掉的. 上述事实说明, 在 PE 与木粉熔融挤出过程中, 在 DCP 引发下, GMA 可与 PE 接枝生成 PE-g-GMA, 并随即与木粉表面羟基反应, 从而在木塑两相间产生化学键合 (见图 2).

2.2 WPC 冲击断面形貌

图 3 是 WPC 冲击断面的 SEM 照片. 可以观

察到, 未做任何增容处理的 1#WPC、只单独加入 DCP 的 2#WPC 和只单独加入 GMA 的 3#WPC 冲击断面有大量木粉粒子被拨出的痕迹, 且痕迹表面光滑. 表明这三种 WPC 木塑两相结合较弱. 而同时加入了 GMA 和 DCP 的 4#、5#和 6#WPC 冲击断面上木粉粒子与 PE 结合紧密, 且很少有木粉粒子从基体中拨出. 这进一步说明在 DCP 存在下, GMA 可对 PE 和木粉进行直接反应增容.

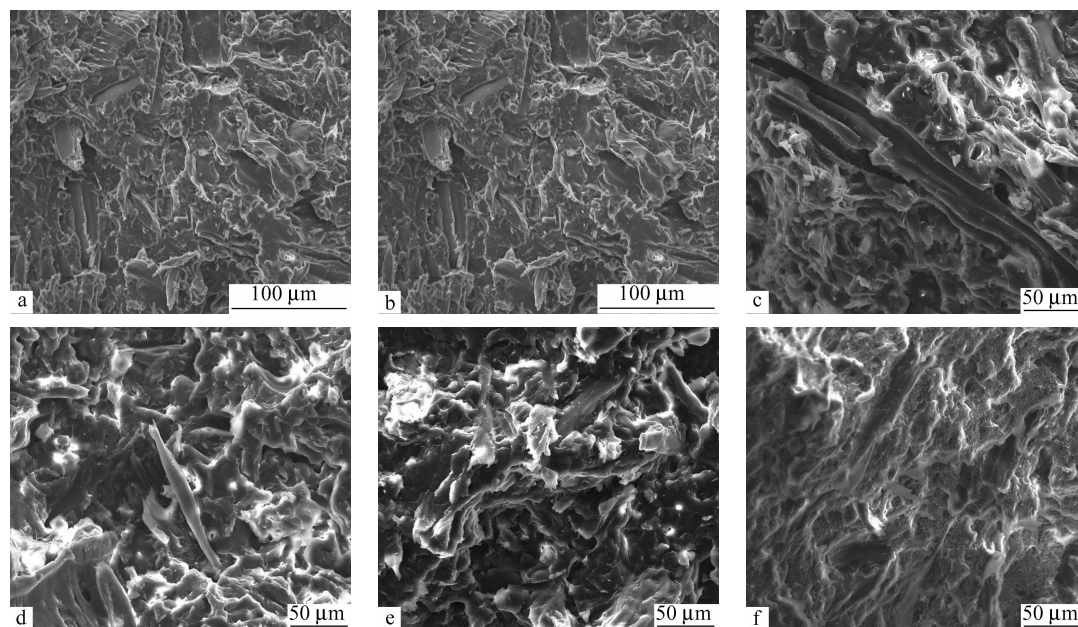


Fig. 3 SEM micrographs of impact cracking surfaces of the WPC samples: (a) 1#, (b) 2#, (c) 3#, (d) 4#, (e) 5# and (f) 6#

2.3 WPC 的力学性能

表 2 列出了不同配方 WPC 的拉伸强度、弯曲强度、断裂伸长率、冲击强度和 HDT. 可以看出, 2#WPC 比 1#WPC 的拉伸强度、弯曲强度和冲击强度均有明显提高, 说明单独加入 DCP 对 PE 基 WPC 也有一定的改性效果. 文献^[16]指出, 在引发剂存在下, PE 易交联. 上述改性应该是 DCP 引发 PE 发生交联的结果. 3#WPC 的拉伸强度和弯曲强度也比 1#WPC 稍有提高, 表明单独加入 GMA

也对 PE 基 WPC 有一定的改性效果, 但很有限. 这应该是部分 GMA 在 WPC 熔融挤出过程中与木粉表面羟基发生反应, 接枝到了木粉表面, 降低了木粉表面极性, 在一定程度上改善了木塑两相的相容性. 4#WPC 同时加入 GMA 和 DCP 进行了反应增容, 木塑两相间的结合得到加强, 在承受外力作用时, 基体所承受的应力可以更多地转移给木粉粒子, 因此其力学性能得到明显改善. 从表 2 可以看出, 4#WPC 的拉伸强度、弯曲强度、断裂伸长

Table 2 Tensile strength, flexural strength, elongation at break, notched impact strength and HDT of the WPCs

WPC No.	Tensile strength (MPa)	Flexural strength (MPa)	Elongation at break (%)	Notched impact strength (kJ/m ²)	HDT (°C)
1	19.2	23.7	8.4	3.5	70.4
2	26.6	26.9	8.5	4.8	75.9
3	21.3	24.9	8.6	3.4	74.4
4	32	29.1	11.1	5	78.1
5	32.4	29.6	10.4	5.2	77.1
6	33.1	29.7	12.6	6.6	75.2

率和冲击强度不仅比 1#WPC 显著提高,比 2#和 3#WPC 的也有明显提高,而且其改性效果好于单独加 DCP 和单独加 GMA 的改性效果的简单加和.与未增容的 1#WPC 相比,4#WPC 的拉伸强度、弯曲强度、断裂伸长率和冲击强度分别提高了 67%、23%、32% 和 43%.

2.4 WPC 的 HDT

从表 2 可以看出,2#和 3#WPC 的 HDT 均比 1#WPC 有所提高,原因同样是 DCP 引起 PE 发生了交联,而 GMA 则改善了木塑两相的相容性.4#WPC 的 HDT 不仅明显高于 1#WPC (提高了 7.7℃),也高于 2#和 3#WPC,这也是由于 GMA 在 DCP 存在下,在木塑两相间发生了反应增容,增强了木塑两相间的结合力,使 WPC 在受热时基体所承受的应力能更多地转移给木粉粒子.

2.5 St 和 TPP 对反应增容的影响

在 GMA 与 PE 的熔融接枝过程中,加入适当的第二单体共接枝可有效地提高 GMA 的接枝率,并减少交联等副反应. St 是最常用的共接枝单体.在 GMA 和 St 与 PE 的接枝反应过程中,St 迅速与大分子自由基反应,形成更稳定的 St 基自由基;与大分子自由基相比,St 基自由基能更快地与 GMA 反应,从而提高 GMA 的接枝率,并减少 PE 的交联等副反应^[18].从图 1(b)可以看出,与 4#WPC 相比,5#WPC 由于加入了共单体 St,其抽提后所得木粉的 FTIR 在 2850 和 730 cm^{-1} 处出现的 PE 亚甲基的伸缩振动和摇摆弯曲振动吸收峰更明显,说明 5#WPC 键合在木粉上的 PE 树脂更多.从表 2 可以看出,5#和 4#WPC 的综合性能基本相当,其中 5#WPC 的拉伸强度、弯曲强度和冲击强度稍强,而 4#WPC 的断裂伸长率和 HDT 稍高. St 的加入一方面提高了 GMA 的接枝率,改善了增容效果,另一方面降低了 PE 的交联度.改善增容效果会提高力学性能和 HDT,而降低 PE 的交联度则恰恰相反.从表 2 的数据来看,这两方面的影响基本上相互抵消了.

研究表明,在 GMA 和 PE 的熔融接枝过程中,加入 TPP 可抑制 PE 的交联^[19].但 TPP 是一种抗氧剂,加入混合体系中后,可能导致部分 DCP 失效,降低 GMA 的接枝率.6#WPC 在 5#WPC 的配方中加入了 TPP.图 1(b)显示,6#WPC 抽提后所得木粉的 FTIR 在 2850 cm^{-1} 和 730

cm^{-1} 处出现的 PE 亚甲基的伸缩振动和摇摆弯曲振动吸收峰不如 5#WPC 明显,说明 GMA 的接枝率有所下降,键合在木粉上的 PE 树脂有所减少.从表 2 的数据来看,TPP 对 WPC 的性能影响比较复杂.6#WPC 的拉伸强度、弯曲强度与 5#WPC 基本相当,断裂伸长率和冲击强度明显比 5#WPC 高,而 HDT 则明显低于 5#WPC.

St 和 TPP 均能抑制 PE 的交联反应,防止 WPC 加工性能的劣化,但两者的作用机理是不一样的. St 是通过加快单体对 PE 的接枝反应来抑制 PE 的交联.所以 St 的加入一方面减少了 PE 的交联,另一方面增加了 GMA 和 St 的接枝率,增强了木塑两相的相容性. TPP 则是通过减缓 PE 链自由基的偶合速度来抑制 PE 的交联,但同时也降低了 DCP 的引发效率.所以 TPP 的加入一方面减少了 PE 的交联,另一方面降低了 GMA 和 St 的接枝率,削弱了木塑两相的结合力.木塑两相结合力的削弱导致了 6#WPC 的 HDT 降低.但从实验结果看,适当削弱木塑两相的结合力赋予了木塑界面处 PE 分子链一定的活动能力,有利于吸收冲击能,所以 6#WPC 断裂伸长率、冲击强度明显提高.当然残留的 TPP 对 PE 基体的增塑作用也可能对 6#WPC 断裂伸长率、冲击强度的提高和 HDT 的降低起了一定作用.

3 结论

(1) FTIR 显示,在 PE、木粉的熔融挤出过程中,加入 GMA 和 DCP 直接反应增容后,有部分 PE 分子键合到了木粉上;加入共单体 St 后,键合到木粉上的 PE 分子更多.

(2) SEM 显示,直接反应增容后,PE 基 WPC 木塑两相结合更加紧密.

(3) 加入 GMA 和 DCP 直接反应增容后,PE 基 WPC 的拉伸强度、弯曲强度、断裂伸长率、冲击强度和 HDT 均明显提高,比增容前分别提高了 67%、23%、32%、43% 和 7.7℃.加入 St 一方面增加了 GMA 的接枝率,改善了木塑两相的相容性,另一方面抑制了 PE 的交联,这两方面的综合作用使 WPC 的性能基本不变.加入 TPP 抑制了 PE 的交联,同时也降低了 GMA 的接枝率,削弱了木塑两相的结合力,导致 WPC 的 HDT 下降,但断裂伸长率和冲击强度明显提高.

REFERENCES

- 1 Qin Tefu(秦特夫), Yan Haopeng(阎昊鹏). China Wood Industry(木材工业), 1999, 13(4): 17 ~ 20
- 2 Mankikadan R C, Nair S M, Sabu T. J Appl Polym Sci, 1996, (60): 1483 ~ 1497
- 3 Gardea-Hernández G, Ibarra-Gómez R, Flores-Gallardo S G, Hernández-Escobar C A, Pérez-Romo P, Zaragoza-Contreras E A. Carbohydr Polym, 2008, 71: 1 ~ 8
- 4 Magnus B, Paul G, Kristina O. Compos Sci Technol, 2005, 65(10): 1468 ~ 1479
- 5 Sonia M B N, Graziela S C, Simone M L R. Polym Test, 2007, 26(5): 619 ~ 628
- 6 Mei Chaoqun(梅超群), Fan Yongming(樊永明), Li Jianzhang(李建章), Chen Yao(陈瑶), Chen Xiaohua(陈晓华), Mei Lei(梅雷). New Chemical Materials(化工新型材料), 2009, 37(12): 95 ~ 97
- 7 Yang Lingling(杨玲玲), Li Hui(李慧), Zhong Zhiyou(钟志有). Plastics Science and Technology(塑料科技), 2010, 38(2): 36 ~ 39
- 8 Xu Min(许民), Guo Yanmin(高延明), Wang Keqi(王克奇). Forestry Science and Technology(林业科技), 2006, 31(1): 32 ~ 34
- 9 Zhao Li(赵丽), Yang Hongmei(杨红梅), Shanguan Yonggang(上官勇刚), Zhang Farao(张发饶), Zheng Qiang(郑强). Acta Polymerica Sinica(高分子学报), 2008, (9): 849 ~ 854
- 10 Guo Zhenghong(郭正虹), Fang Zhengping(方征平), Cheng Jie(程捷). Acta Polymerica Sinica(高分子学报), 2009, (8): 763 ~ 768
- 11 Gao Hua(高华), Wang Qingwen(王清文), Wang Haigang(王海刚), Song Yongming(宋永明). Scientia Silvae Sinicae(林业科学), 2010, 46(1): 107 ~ 111
- 12 Liu Ting(刘婷), Lu Shaorong(陆绍荣), Wang Yiliang(王一靓), Zhang Chenxi(张晨曦), Huang Zhiyi(黄志义). Plastics Science and Technology(塑料科技), 2010, 38(1): 58 ~ 61
- 13 Xiong Cheng(熊成), Qi Rongrong(戚嵘嵘). Engineering Plastics Application(工程塑料应用), 2008, 36(5): 22 ~ 25
- 14 Yin Yiguo(尹以高), Xia Chenglin(夏成林), Zhong Shengzhao(钟圣兆). China Plastics Industry(塑料工业), 2002, 30(6): 20 ~ 21, 50
- 15 Wang Ruyin(王如寅), Wan Chaoying(万超瑛), Zhang Yong(张勇), Zhang Yinxi(张隐西). China Plastics(中国塑料), 2005, 19(11): 63 ~ 66
- 16 Xiao Hanwen(肖汉文), Yu Fengyuan(于逢源), Huang Shiqing(黄世强). Chemistry and Adhesion(化学与粘合), 2004, (4): 218 ~ 222
- 17 Liu Yang(刘扬), Lü Xinying(吕新颖), Tao Yan(陶岩), Zhang Yanhua(张彦华), Di Mingwei(邸明伟). Acta Polymerica Sinica(高分子学报), 2010, (6): 782 ~ 787
- 18 Xie Xuming(谢续明), Chen Nianhuan(陈年欢), Li Song(李松). Acta Polymerica Sinica(高分子学报), 1999, (3): 351 ~ 354
- 19 Cao Juanjuan(曹娟娟), Zeng Xingrong(曾幸荣), Xu Yingbin(徐迎宾). China Plastics Industry(塑料工业), 2008, 36(supplement): 71 ~ 73

DIRECT REACTIVE COMPATIBILIZATION OF PE/WOOD-FLOUR COMPOSITES BY USING GLYCIDYL METHACRYLATE AND COMONOMER

Yue-wen Li¹, Xing-hua Chen¹, Jie Ouyang², Chen Xiong²

(¹ College of Light Chemical Engineering, Hunan Vocational College of Science & Technology, Changsha 410004)

(² College of Chemistry Science & Engineering, Hunan Normal University, Changsha 410081)

Abstract Compatibilization between polyethylene (PE) and wood-flour was achieved by means of direct reactive extrusion of glycidyl methacrylate (GMA), PE, wood-flour and other additives. Impact cracking surfaces of the PE/wood-flour composites (WPCs) were observed *via* scanning electron microscope (SEM). Fourier transform infrared (FTIR) spectra of wood-flour extracted from the WPCs were measured. Heat distortion temperatures (HDTs) and mechanical properties of the WPCs were tested. The effect of comonomer styrene (St) and anti-crosslinking agent triphenyl phosphite (TPP) on the reactive compatibilization was also evaluated. Experimental results indicated that some of PE chains in the WPCs were bonded onto the surface of wood-flour after reactive extrusion resulting in the improvement of compatibility between PE and wood-flour. Both increased grafting ratio of GMA, and more bonded PE chains on the surface of wood-flour were evidenced due to the addition of St. However, the addition of TPP reduced the grafting ratio of GMA. Mechanical properties and HDTs of the WPCs were obviously improved after direct reactive extrusion. At 1.5 wt% of GMA and 0.3 wt% of DCP in the extrusion composition of WPC, the tensile strength, flexural strength, elongation at break, notched impact strength and HDT of WPC respectively increased by 67%, 23%, 32%, 43% and 7.7 K comparing to those of the WPC without reactive extrusion. The addition of St was able to inhibit the cross linking reaction of PE, however, there was no significant changes observed for its mechanical properties and HDT. When both St and TPP were added in the WPC, the composites' HDT decreased while elongation at break and notched impact strength were improved.

Keywords Polyethylene, Wood-flour, Composite, Glycidyl methacrylate, Styrene, Reactive compatibilization