



Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

Vegyésszmérnöki és Biomérnöki Kar

Fizikai Kémia és Anyagtudományi Tanszék

Műanyag- és Gumiipari Laboratórium

Háromkomponensű PP/falaszt/elasztomer kompozitok deformációs mechanizmusa és ütésállósága

OTDK-dolgozat

Készítette:

Kalmár Szabolcs

vegyésszmérnöki szak, BSc IV. évfolyam

Témavezetők:

Dr. Renner Károly, BME Fizikai Kémia és Anyagtudományi Tanszék, MTA

TTK AKI Polimerfizikai Osztály

Dr. Móczó János, BME Fizikai Kémia és Anyagtudományi Tanszék, MTA TTK

AKI Polimerfizikai Osztály

A dolgozat bemutatását a TÁMOP - 4.2.2.B-10/1--2010-0009 "Új
tehetséggondozó programok és kutatások a Műegyetem tudományos műhelyeiben"
című program támogatta.

Budapest, 2012

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés.....	2
2. Irodalmi összefoglaló	4
2.1. Komponensek tulajdonságai.....	6
2.2. Határfelületi kölcsönhatások	9
2.3. Szerkezet	12
2.4. Mikromechanikai deformációs folyamatok.....	14
2.5. Ütésállóság	17
3. Kísérleti rész.....	21
3.1. Felhasznált anyagok	21
3.2. Mintakészítés.....	22
3.3. Mérési módszerek	23
4. Eredmények, értékelés	24
4.1. Mechanikai vizsgálatok, ütésállóság	24
4.2. Akusztikus emisszió mérése.....	33
4.3. Beágyazottság mértékének hatása a tulajdonságokra.....	42
5. Összefoglalás.....	48
6. Köszönetnyilvánítás	49
7. Rövidítések jegyzéke.....	49
8. Irodalomjegyzék.....	49

1. Bevezetés

A műanyagok a modern élet fontos részei, szinte bármilyen területen találkozhatunk velük, legyen szó akár gépjárművekről, konyhai eszközökről, bútorokról vagy élelmiszereink csomagolásáról. A műanyag termékek népszerűsége leginkább annak köszönhető, hogy nagy termelékenységgel lehet előállítani változatos tulajdonságokkal rendelkező termékeket. Ezenkívül az alapanyagok ára viszonylag alacsony, így a termékek szinte mindenki számára megfizethetőek.

Hogy tovább csökkentsék a termékek árát, már a 20. század első fele óta alkalmazzák töltőanyagokat, melyeket nagy mennyiségben a műanyagokhoz kevernek. Az ásványi eredetű anyagok (például kréta és talkum) mellett nagyon hamar elterjedtek a cellulóz alapú töltőanyagok is, amiből például papír- vagy textílbakelitet készítenek. Ásványi eredetű töltőanyagokat még manapság is széles körben alkalmaznak, azonban egyre népszerűbbek a természetes eredetű anyagok, mint a faliszt, a bambusz, a len vagy a juta. Ennek az egyik oka, hogy a növekvő műanyag-felhasználás miatt a hulladékkezelés egyre nagyobb problémát jelent. Mivel a műanyagokat általában mesterséges úton állítják elő kőolajszármazékokból, ezért nem képesek biológiailag lebomlani. Így kerültek előtérbe a biológiai úton lebomló polimerek [1] és töltőanyagok. Ha a kompozit egy része természetes anyagból készül, akkor a termék legalább részben képes lehet a biodegradációra. A népszerűség másik oka az, hogy a töltőanyagok adagolása jelentősen befolyásolja a kompozit tulajdonságait, például növelik merevséget, és csökkentik a zsugorodást, ami kedvező a felhasználás és a feldolgozás szempontjából [2].

Európában a természetes töltőanyagok közül legelterjedtebben a falisztet használják, mivel ebből áll rendelkezésre a legtöbb. Számos polimert alkalmaznak a faliszt/polimer kompozitok (WPC) mátrixaként, ám a legnagyobb jelentősége a hőre lágyuló tömegműanyagoknak van (polipropilén, poli(vinil-klorid), polietilén). Ezeket fel lehet dolgozni a hagyományos, termelékeny technológiákkal és számtalan termék készíthető belőlük főként az építő-, bútor- és gépjárműipar számára. A faliszt hatására nő a kompozitok merevsége és megfelelő kapcsolóanyag alkalmazásával a szilárdság is növelhető, viszont az ütésállóság szinte minden esetben nagymértékben csökken. Ez utóbbi hatás kompenzálására elasztomert szoktak adni a kompozithoz, de még ebben az esetben is elmarad az ütésállóság a várakozásoktól, és ez a lehetséges termékek palettáját is szegényebbé teszi. Ilyen összetett

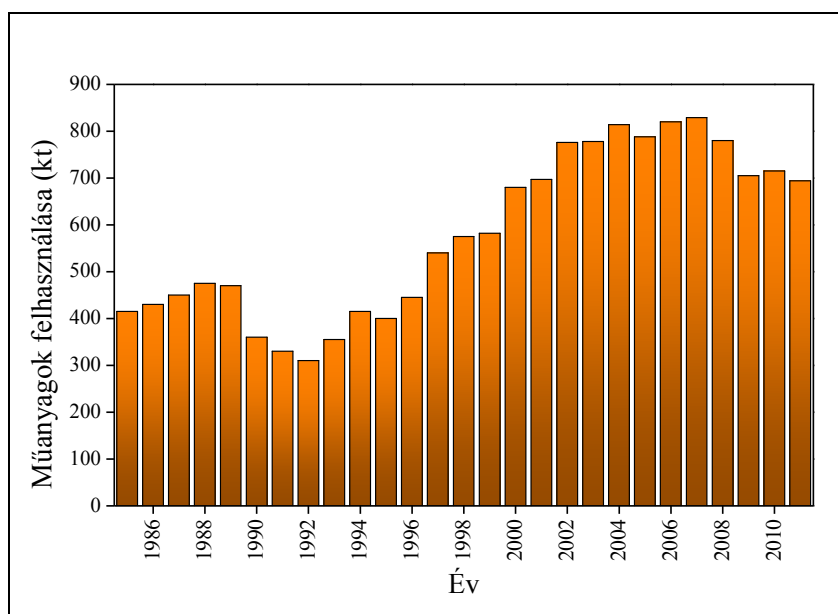
rendszerekkel már több kutatás is foglalkozott, amelyek többféle szerkezet kialakulásának lehetőségét fedezték fel. Ezek a szerkezetek és a kompozit ütésállósága közötti kapcsolat egyelőre nem tisztázott.

A kompozitok terhelés hatására bekövetkező deformációja és tönkremenetele szerkezeti anyagok esetén kiemelt jelentőségű. A mechanikai tulajdonságok és az ütésállóság szempontjából fontos lehet az, hogy a deformáció során milyen folyamatok játszódnak le. Számos ilyen folyamat játszódhat le a tiszta polimerekben, többkomponensű rendszerek esetén pedig további jelenségek léphetnek fel. Ezek általában párhuzamosan zajlanak, de legtöbbször megfigyelhető egy domináns folyamat, amely meghatározza a kompozit makroszkopikus tulajdonságait. Ennek azonosítása elengedhetetlen a deformáció mechanizmusának megértéséhez.

A kutatásom során többféle falisztból és elasztomerből készítettem kompozitokat extrudálással és fröccsöntéssel. Azért ezeket a feldolgozási technológiákat választottam, mert ipari felhasználás szempontjából ezeknek van a legnagyobb jelentősége. Az elasztomer típusának változtatásával próbáltam befolyásolni a rendszerben kialakuló szerkezetet, hogy információt szerezzek a szerkezet és a makroszkopikus tulajdonságok kapcsolatáról. A kapcsolat alaposabb vizsgálata érdekében próbáltam fényt deríteni a kompozit deformációjának mechanizmusára is. Emellett azt is szerettem volna kideríteni, hogy a számtalan próbálkozás ellenére, miért marad el a PP/faliszt/elasztomer rendszerek ütésállósága a várakozásoktól.

2. Irodalmi összefoglaló

A műanyag termékek a múlt század első felétől kezdve egyre nagyobb teret hódítanak. Legyen szó az üdítőitalok palackjáról, az autók karosszéria elemeiről vagy akár öltözékünkről, a műanyagok jó alternatívái a korábban használt alapanyagoknak, például az üvegnek, fának vagy fémeknek. Az elmúlt évtizedekben a felhasználás növekedésének üteme egész Európában gyorsult. Az 1. ábra jól szemlélteti, hogy ez a tendencia alól Magyarország sem kivétel [3]. Az ábrán a hazánkban évente felhasznált műanyagok mennyisége látszik 1985-től napjainkig. A rendszerváltás után folyamatos növekedés tapasztalható, 10 év alatt a felhasznált mennyiség a kétszeresére nőtt. A 2008-as év gazdasági válsága után jelentős visszaesés tapasztalható, azonban 2009 után már nem csökken a felhasznált mennyiség, és a jövőben növekedés várható. A megnövekedett igény a gyártókat arra sarkallta, hogy próbálják meg tovább csökkenteni az előállítási költségeket. Ennek egyik módja az, hogy a műanyagokhoz az alapanyagnál olcsóbban beszerezhető töltőanyagot kevernek.



1. ábra Műanyagok felhasználása hazánkban az elmúlt 25 évben.

A töltőanyagok nagymértékű felhasználása miatt számos kutatás, cikk és publikáció foglalkozik velük. A természetes anyagok jelentősége a 20. század második felében nagymértékben növekedett, mivel előtérbe kerültek a biológiailag degradálható anyagok, a megújuló nyersanyagforrások és a környezetvédelmi megfontolások. Összehasonlítva a természetes és az ásványi eredetű nyersanyagokat, számos különbséget találunk. Mivel a

természetes eredetű töltőanyagok fő alkotórésze általában a cellulóz, ezért ezek sűrűsége $1,5 \text{ g/cm}^3$ körüli érték, szemben az ásványi anyagok $2-4 \text{ g/cm}^3$ -es sűrűségével. Cellulóz alapú anyagok használatával tehát jóval csökkenthetjük a kompozitok tömegét, ami előnyös a felhasználás szempontjából. Ezen kívül a természetes anyagok ára általában alacsonyabb, mint az ásványi töltőanyagoké, köszönhetően annak, hogy szinte korlátlan mennyiségben rendelkezésre állnak. Az ár és a sűrűség mellett fontos paraméter a részecskék alakja is, ami hatással van a kompozitban kialakuló szerkezetre. Az ásványi eredetű anyagok jelentős része közel gömb alakú szemcsékből áll, míg a természetes anyagok között főként rövid és hosszú szálakból álló anyagokat találunk. A szál típusú erősítő anyagok szálirányban jóval nagyobb terhelést képesek elviselni, mint a gömb alakú részecskék, így erősítő hatásuk is jelentősebb.

Napjainkban egyre nagyobb szerepet játszik a környezettudatosság kérdésköre, így ebből a szempontból is fontos összehasonlítani az ásványi- és a természetes alapú töltőanyagokat. Sok gyártó törekszik arra, hogy üvegszál helyett természetes szálakat használjon erősítőanyagként. Részletes életút-analízis alapján azt találták, hogy a természetes szál alapú kompozitok környezettudatosabbak, mint az üvegszál alapú alternatíváik [4]. A cikk szerint a természetes anyagok használatának fő előnyei, hogy az előállításuk és szállításuk kevesebb környezetszennyezéssel jár és az életút végén biológiailag lebomlanak, illetve elégetésükkel energia nyerhető. Azonban a hátrányokról sem szabad megfeledkezni: a természetes szálak előállításához növények kellenek, melyek termesztése során műtrágyát és egyéb vegyszereket használnak, valamint a kompozitok mechanikai tulajdonságai elmaradnak az üvegszállal erősített műanyagokétól.

A fenti előnyök miatt terjednek el egyre inkább a természetes töltőanyagok, különösen a szálas szerkezetűek. A természetes szálaknak eredetük alapján két nagy csoportja létezik. Az állati eredetű szálak fontos jellemzője az, hogy alaki tényezőjük (hosszuk és szélességük hányadosa) nagy, valamint megfelelő merevséggel rendelkeznek [5]. Azonban a növényi eredetű szálakból nagyobb mennyiség és többféle típus áll rendelkezésre. A felhasználható növények skálája igen változatos, azt, hogy egy adott területen melyik típust használják, döntően az befolyásolja, hogy az adott éghajlaton milyen növény képes megélni. Európában szinte kizárólag falisztet használnak, mivel nagyon nagy mennyiségben áll rendelkezésre. Mátrix polimerként először hőre keményedő műanyagokat használtak, ám mostanra inkább a hőre lágyuló tömegműanyagokat alkalmazzák, főként polietilént, polipropilént és poli(vinilkloridot). Ez a három közül a legjelentősebb a polipropilén (PP), a kutatások nagy része is ezzel foglalkozik, ezért a munkám során én is ezt a polimert használtam. Fontos azonban

megemlíteni, hogy a politejsav (PLA) mátrixként való használata is nagymértékben fejlődik. Ennek oka, hogy a PLA biológiai degradációra képes polimer, így a PLA/faliszt kompozit képes lehet a teljes mértékű lebomlásra. Azonban az ipari gyakorlatban még a fenti három tömegműanyag feldolgozása dominál. A faliszt alapú kompozitok jelentőségét jól jelzi az, hogy egyes extruder gyártó cégek már külön berendezéseket kínálnak a WPC-t feldolgozók számára. Számos területen alkalmaznak ilyen műanyagokat, főként autóalkatrészeket, bútorokat, kerítéseket és egyéb építőipari profilokat gyártanak belőlük. Építőipari alkalmazás esetén a fa elemeknek jó alternatívája lehet, mivel nem kell festeni, csiszolni őket és hosszabb élettartamúak.

A WPC-k tulajdonságai széles körben változtathatóak és számos tényezőtől függenek. A gyakorlati alkalmazások és a terméktervezés szempontjából elengedhetetlen, hogy ismerjük a tulajdonságokat befolyásoló faktorokat. Minden heterogén polimer rendszer tulajdonságát négy tényező határozza meg: a komponensek tulajdonságai, az összetétel, a kompozit szerkezete és a határfelületi kölcsönhatások. Ez alól az általam vizsgált kompozitok sem kivételek, így kiemelt fontosságú az, hogy mind a négy faktort figyelembe vegyünk az eredmények értékelésekor.

Az összetétel a töltőanyag- illetve az elasztomer-tartalmat jelenti. Ez nagyon széles határok között változhat, ipari alkalmazások esetén a faliszt aránya általában 40-80 m/m%. Mivel gyakorlatilag minden tulajdonság függ az összetételtől, ezért a vizsgálatokat ennek függvényében célszerű elvégezni.

2.1. Komponensek tulajdonságai

Az általam vizsgált rendszerek három, illetve egyes esetekben négy komponensből állnak. Ezért elengedhetetlen, hogy az egyes komponensek tulajdonságait külön-külön is megvizsgáljuk. A polimer mátrix tulajdonságai meghatározzák az erősítés mértékét. Minél nagyobb a mátrix merevsége, az erősítés mértéke annál kisebb [6]. A mátrix hatására részletesen nem térek ki, mivel a vizsgálataim során egyféle polimer mátrixot alkalmaztam. A kutatásom során elsősorban a faliszt arányát változtattam, a használt elasztomereket azonos mennyiségben adtam a rendszerhez azért, hogy az elasztomer aránya ne befolyásolja a kompozit tulajdonságait. A kétféle elasztomer tulajdonságaira részletesebben a 2.5. fejezetben

tértem ki, mivel ezek alkalmazása az ütésállóság javítását szolgálja. A negyedik komponens a kapcsolóanyag, amit a határfelületi kölcsönhatások módosításának céljából adtam a rendszerhez. A kölcsönhatásokkal a 2.2. fejezet foglalkozik, így a kapcsolóanyag hatására a következő fejezetben térek ki.

Természetes töltőanyagok tulajdonságainak összegyűjtése és leírása nem egyszerű feladat. Ezek szinte soha nem egy komponensből állnak, és számos tényező befolyásolja az összetevők arányát, például a növény termesztésének helye vagy az időjárás. A falisztek főbb összetevői, melyek általában minden típusban megtalálhatóak: a kristályos cellulóz, az amorf hemicellulóz és a lignin. A kristályos cellulóz egy lineáris glükóz-alapú polimer, 10000 fölötti polimerizációs fokkal [7]. Ez biztosítja a szál erősségét, merevségét és szerkezeti stabilitását. A hemicellulóz 5-6 szénatomos egységekből álló poliszacharid, melynek molekulatömege jóval kisebb a cellulóznál. A lignin pedig egy amorf, keresztkötéseket és számos alkoholos illetve fenolos hidroxilcsoportot tartalmazó polimer, mely kémiai kötőanyagként funkcionál az egyes szálak között [8]. A többi komponenst az irodalomban a választott módszertől függően szokták megadni. Általában meghatározzák a pektintartalmat, az extrahálható kismólsúlyú szerves komponensek arányát és a szervesetlen anyagok (hamu) mennyiségét [7]. Ezeken felül a tulajdonságok szempontjából még fontos a fa víztartalma is. Ez utóbbit nem szabad figyelmen kívül hagyni WPC készítése közben sem. Hogy a faliszt víztartalma ne befolyásolja a tulajdonságokat, felhasználás előtt a falisztet ki kell szárítani. Mivel a pontos kémiai összetétel meghatározása nehéz, ezért ritkán használják ezt a falisztek jellemzésére, többnyire csak azt szokták közölni, hogy kemény- vagy puhafa az alapanyag. Ez a felosztás inkább biológiai szempontok alapján történik, a nyitvatermőket sorolják a puhafák, míg a zárvatermőket a keményfák közé [9]. Több csoport is összehasonlította a két típust [10,11], de az eredmények ellentmondásosak és általában nem mutatnak szignifikáns különbséget. Az ellentmondások oka valószínűleg az, hogy a vizsgált faliszteknek nem csak a típusa, hanem a szemcsejellemzői (szemcseméret, alak, tényező) is különböztek. Ezen vizsgálatok alapján kijelenthető az, hogy a faliszt típusa a mechanikai tulajdonságokat kevésbé befolyásolja. Piaci forgalomban főként puhafa alapú töltőanyagokat lehet vásárolni, mivel ezek alak, tényezője valamivel nagyobb, mint a keményfáké.

A természetes szálak tulajdonságai nagyban függenek attól, hogy a növény melyik éghajlatról származik. Jelentős különbség van például a mérsékelt égövre jellemző puhafákból és a trópusokon őshonos kókuszából nyert szálak között. Az 1. táblázat mutatja be a különböző típusú szálak sűrűségét, modulusát, szilárdságát és fajlagos merevségét. A közölt értékek csak

közelítő jellegűek, ám a különbségek a szálak között jól látszanak. Összehasonlítóképpen a táblázat tartalmazza az üvegszál átlagos mechanikai tulajdonságait is. Nem a konkrét értékeket, hanem a fajlagos merevséget érdemes összehasonlítani, azaz a merevség és a sűrűség arányát. Egyes természetes szálak fajlagos merevsége eléri az üvegszálakét.

1. táblázat Szál típusú töltőanyagok mechanikai tulajdonságai [12].

Szál típusa	Sűrűség (g/cm ³)	Modulus (GPa)	Szilárdság (MPa)	Fajlagos merevség (GPa/(g/cm ³))
Puhafa	1,5	40,0	1000	27
Gyapot	1,5	8,8	400	5,9
Len	1,5	27,6	600	18,4
Szizál	1,5	15,0	550	10
Kókusz	1,2	5,0	175	4
Juta	1,3	26,5	600	20,4
Üveg	2,5	70,0	3000	28

Fontos jellemző természetes szálak esetében a szemcsék mérete és alaki tényezője, ami az anizotrópiát jellemzi. Egy gömb alakú szemcse alaki tényezője 1, mivel hossza és szélessége megegyezik. Minél inkább szálak jellegű a szemcse, az alaki tényezője annál nagyobb, így megfelelő orientáció esetén, annál nagyobb erősítő hatást fejt ki. A munkám során használt három faliszt főbb jellemzőit már korábbi kutatások [13] és tanszéki munkák során meghatározták. Ezeket a fontosabb jellemzőket foglaltam össze a 2. táblázatban. A $D[4,3]$ a részecskék átlagos mérete, melyet fényszórással határoztak meg. Ez a módszer azonban anizotróp részecskék esetén meglehetősen bizonytalan, és az eredmény nehezen értelmezhető. A hosszúságot, átmérőt és alaki tényezőt pásztázó elektronmikroszkópos (SEM) felvételek segítségével mérték meg.

2. táblázat Felhasznált töltőanyagok szemcséinek fontosabb jellemzői.

Szál típusa	$D[4,3]$ (μm)	Hosszúság (μm)	Átmérő (μm)	Alaki tényező	Fajlagos felület (m ² /g)
Arbocel UFC M8	12,0	14,2	4,8	3,19	4,4
Arbocel CW 630	42,2	45,8	17,6	2,83	2,4
Filtracel EFC 1000	162,9	137,4	35,2	4,16	2,0

2.2. Határfelületi kölcsönhatások

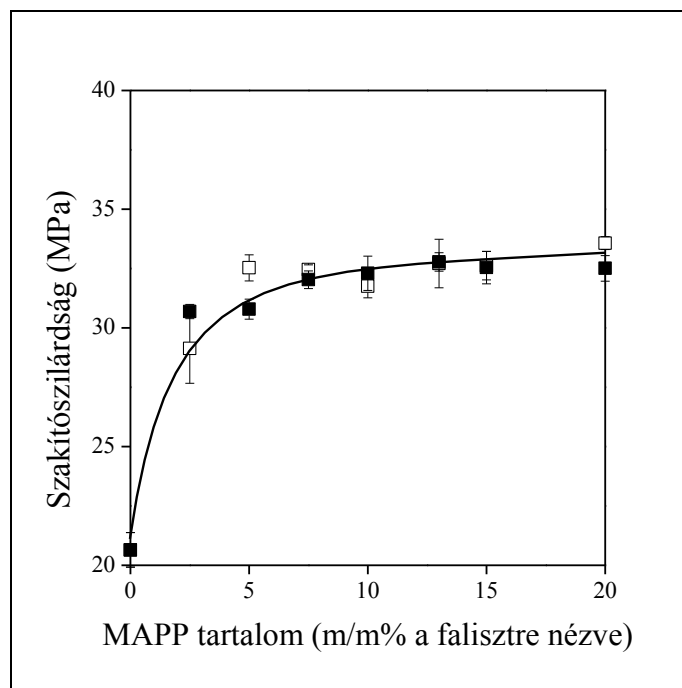
Szálerősítésű kompozitok esetén létfontosságú a határfelületi kölcsönhatások minősége. Ideális esetben a szálak viselik a terhelést, amit a mátrix közvetít. A feszültség hatékony átvitelének feltétele a szál és a mátrix közötti erős adhézió. Nem megfelelő erősségű kölcsönhatások esetén általában a szál kihúzódik a mátrixból, és az erősítő hatása nem érvényesül. Mivel a faliszt alapú kompozitok nagy részét szerkezeti anyagként használják, a szemcsék teherbíró képessége különösen nagy jelentőségű. Ez a tulajdonság függ egyrészt a szemcsék tulajdonságaitól, másrészt a határfelületi kölcsönhatásoktól [14]. Mivel a PP nem rendelkezik funkciós csoportokkal, kovalens kötés nem jöhet létre a mátrix és a faliszt között, így csak másodlagos, van der Waals erők felelősek a kölcsönhatásért. Ezek az erők azonban nem elegendőek ahhoz, hogy megelőzzék a szálak kihúzódását, így a megfelelő erősítő hatás érdekében módosítani kell a kölcsönhatásokat.

Számos lehetőség van a módosításra, melyeket két nagy csoportra oszthatunk: a fizikai és kémiai módszerekre. Fizikai módszerek közül a koronakisüléses [15] és hidegplazmás [16] kezeléseket használták azért, hogy különböző funkciós csoportokat hozzanak létre, azonban ezek inkább a szemcsék felületi energiáját módosítják, amely nem vezet a mátrix és a szemcse közti kovalens kötések kialakításához. A nem-reaktív kémiai módszerek közé sorolható a szemcsék felületének bevonása egy kismólsúlyú szerves vegyülettel. Erre általában amfipatikus molekulákat használnak, melyek poláris csoportjai megkötődnek a szemcse felületén, az apoláris részük pedig csökkenti a felületi energiát. Erre számos példát találhatunk a gyakorlatban, legjellemzőbb a CaCO_3 felületkezelése sztearinsavval [17]. Ebben az esetben a sztearinsav hatékonyan csökkenti a szemcse felületi energiáját, ami csökkenti a szemcse-szemcse közötti kölcsönhatást. Ez kisebb mértékű aggregációhoz vezet, mint kezeletlen esetben, ami segíti a töltőanyag egyenletes eloszlását a kompozitban. Azonban ezen kívül a szemcse-mátrix közötti kölcsönhatás erőssége is csökken, így a részecske erősítő hatása is mérséklődik. A reaktív kémiai módszerek közül az egyik törekvés a felületi energia csökkentése, aminek következménye a fent említett gyengébb kölcsönhatás és kisebb mértékű aggregáció. Ezt úgy érik el, hogy a faliszt szemcse felületén levő poláris OH-csoportokat elreagáltatják valamilyen szerves savval vagy savanhidriddel, így észter-csoportot hoznak létre a felületen [18]. A másik gyakran alkalmazott módszer a benzilezés, melynek során nátrium-hidroxiddal való reakció után benzil-kloriddal kezelik a felületet, így étercsoportokat hozva létre [19]. Mivel csökken a felületi OH-csoportok száma, a faliszt vízfelvétele is kisebb

mértékű lesz, azonban a gyenge határfelületi kölcsönhatás könnyű szállkihúzódáshoz vagy a határfelületek elválásához vezet.

A másik kémiai módszer kovalens kötések létrehozása a mátrix és a faliszt felülete között. Ezt úgy lehet elérni, hogy funkcionizált polimert adunk a rendszerhez, melynek funkciós csoportjai képesek a faliszt OH-csoportjaival reagálni, míg a polimer lánc belediffundál a mátrix fizikai térhálójába és megteremti a kapcsolatot a PP és a faliszt között [20]. PP esetén általában maleinsav-anhidriddel módosított polipropilént (MAPP) szoktak alkalmazni. Ez nagymértékben növeli a kölcsönhatások erősségét, ami megmutatkozik a kompozitok tulajdonságaiban is. Korábbi tanszéki munkák részletesen foglalkoztak az MAPP hatásával. Ennek egyik eredménye látható a 2. ábrán, melyen a kompozitok szakítószilárdságát ábrázoltam az MAPP/faliszt arány függvényében.

A kapcsolóanyag hatása a vizsgálat során használt három alkalmazott faliszt esetén nagyon hasonló. Már kis mennyiségű MAPP is jelentősen növeli a kompozit szakítószilárdságát, és mindhárom esetben telítésbe hajló görbére illeszkednek a pontok. Az itt berajzolt görbe nem számítások alapján illesztett összefüggést ábrázol, csak a szem vezetésére szolgál. 10%-os MAPP/faliszt arány fölött már egyik esetben sem nő a szilárdság, így ennél többet nem érdemes adagolni a rendszerhez. Az alkalmazott MAPP mennyisége mellett a legfontosabb tulajdonsága a molekulatömege és a funkciós csoportjainak száma [21]. Kevés funkciós csoport esetén a töltőanyaghoz nem kötődik megfelelően, míg kis molekulatömegnél túlságosan rövid a polimer lánc, így gyengébb lesz a kölcsönhatás az MAPP és a mátrix között.



2. ábra MAPP arányának hatása a kompozit szakítószilárdságára. A kétféle jelölő két különböző típusú MAPP-t jelöl.

A felsorolt példákban látszik az, hogy a határfelületi kölcsönhatások módosítására számos lehetőség kínálkozik. Mindig tekintettel kell lennünk arra, hogy a választott módosítás az általunk javítani kívánt paramétereken kívül esetleg más tulajdonságokat is befolyásol. Ennek jó példája az a kutatás, amely négy különböző felületkezelési eljárást hasonlít össze [22]. PP/faliszt kompozitok készítése során hasonlították össze a funkcionális polimer (MAPP), két nem-reaktív felületkezelő anyag (sztearinsav és cellulóz-palmitát) illetve a reaktív kémiai felületkezelés (benzilezés) hatását. A vizsgált tulajdonságok: határfelületi kölcsönhatás erőssége, homogenitás, feldolgozhatóság és vízfelvétel. Az eredményekből kiderült, hogy az MAPP gyakorlatilag csak a kölcsönhatások erősségét növeli, a nem-reaktív felületkezelés a homogenitást és a feldolgozhatóságot javítja, a kémiai reakció pedig a vízfelvételt csökkenti jelentősen. Tehát ha a cél erős határfelületi kölcsönhatások kialakítása, a száلكihúzó megelőzése és így nagy szilárdságú kompozitok készítése, akkor mindenképpen funkcionális polimert érdemes alkalmazni. Ezt a fenti ábrán kívül számos egyéb kutatás is alátámasztja, például Karsli és Aytac munkája, akik rövid szénszállal erősített PP kompozitokat vizsgáltak [23]. Az általuk készített SEM felvételeken jól látszik az, hogy MAPP használata esetén jóval kevesebb száلكihúzó történt a törés során, mint MAPP nélkül.

2.3. Szerkezet

A faliszt/polimer kompozitok szerkezetének tárgyalásakor elsősorban a faliszttel kapcsolatos jelenségekről kell beszélni. Azonban elasztomert adva a rendszerhez már figyelembe kell venni a faliszt-elasztomer illetve a mátrix-elasztomer között kialakuló kölcsönhatásokat, melyek módosíthatják a kompozit szerkezetét. Ebben a fejezetben csak a faliszttel kapcsolatos szerkezeti hatásokat foglaltam össze, az elasztomer hatását a 2.5. fejezetben írtam le. A három legfontosabb jelenség: az aggregáció, az orientáció és a szálak tördelődése.

Az aggregáció a szemcse-szemcse közötti kölcsönhatás következménye. Két szemcse között ható erők egyike az adhéziós erő (F_a), ami igyekszik együtt tartani őket. A szemcsék között ható másik erő a hidrodinamikai erő (F_h), mely a szétválasztásukért felelős. A két erő hányadosa ad felvilágosítást az aggregáció mértékéről, az 1. egyenlet alapján:

$$\frac{F_a}{F_h} = k \frac{W_{AB}}{\eta \dot{\gamma} R} \quad (1)$$

A W_{AB} a reverzibilis adhéziós munka, ami a két szemcse közötti kölcsönhatással van kapcsolatban, η a közeg viszkozitása, $\dot{\gamma}$ a nyírássebesség, R a részecskék sugara és k egy konstans. Az egyenletből az következik, hogy az aggregációt elősegíti az erős kölcsönhatás a részecskék között, a kis nyírássebesség és a kis részecskesugár. Mivel a falisztek mérete viszonylag nagy és a kölcsönhatások is gyengék a részecskék között, az aggregáció mértéke elméletileg nem számottevő. Ennek ellenére az irodalomban lehet találni néhány publikációt, amelyben aggregáció előfordulására utalnak [24,25]. Ezekben nagy faliszt tartalomnál (60-70 m/m%) azt figyelték meg, hogy a modulus kisebb mértékben növekszik, mint kis töltőanyag-tartalomnál. Ezt a megfigyelést támasztotta alá az is, hogy a szakítószilárdság értékek maximumot mutattak a faliszt mennyiségének függvényében, valamint nagy faliszt-tartalomnál az értékek szórása is jóval nagyobb lett. Ezek az eredmények ellentmondanak a fenti elméletnek, mely azt feltételezi, hogy a nagy szemcseméret és gyenge kölcsönhatás miatt az aggregáció mértéke nem jelentős. Azonban a fenti egyenlet nem elegendő a jelenség pontos leírására. Figyelembe kell venni azt is, hogy nagy mennyiségű szemcse esetén a részecskék pusztán geometriai okokból egymáshoz érhetnek és aggregálódhatnak. Véletlenszerű orientációt feltételezve, szálas típusú részecskék esetén 52 v/v% (80 m/m%) a maximális töltési fok [26]. Ez azt jelenti, hogy ha ennél nagyobb mennyiségű töltőanyagot

használnak, akkor a szemcsék között biztosan lesz olyan, amelyik hozzáér egy másikhoz. Ipari alkalmazások esetén 80 m/m%-nál magasabb faliszt arányt általában nem használnak a feldolgozási nehézségek miatt, de a gyakran alkalmazott 70 m/m%-os arány is elég közel esik a maximális töltési fokhoz, így kisebb mértékű aggregáció ebben az esetben is felléphet.

Orientációnak azt a jelenséget nevezzük, amikor az anizotrop részecskék valamilyen külső erő hatására beállnak az erő tengelyével párhuzamos irányba. Az orientáció mértéke és iránya leginkább a feldolgozás módjától és a folyási úttól függ. Főként üvegszálat tartalmazó kompozitokban vizsgálták az orientáció hatását a tulajdonságokra [27,28]. A kutatások során azt találták, hogy a szálak erősítő hatása annál nagyobb, minél kisebb szöget zárnak be a terhelés tengelyével. Mivel az általam készített mintákat azonos módszerrel állítottam elő, ezért azt lehet feltételezni, hogy az orientáció bennük közel azonos és nem befolyásolja az eredményeket. Azonban az orientáció hatása függ a részecskék alaki tényezőjétől is, minél nagyobb az alaki tényező, a hatás annál erősebb. Ezt nem szabad figyelmen kívül hagyni különböző típusú falisztek összehasonlításánál.

A szálak tördelődésével kevés kutatás foglalkozott eddig. Ennek oka valószínűleg az, hogy a tördelődés mértéke nemcsak a feldolgozási technológiától, hanem a technológiai paraméterektől, a berendezés geometriájától és a használt anyagtól is függ. Liu és Drzal munkája során ananászlevélből nyert szálakkal erősített kompozitot készített [24]. Az extrudálás során 100 perc^{-1} fordulatszámot alkalmaztak, aminek következtében azt figyelték meg, hogy az eredetileg kötegekbe rendeződő szálakból a feldolgozás hatására egyedi szálak képződtek. Ennek az az előnye, hogy a szálak egyenletesebben oszlottak el a mátrixban, valamint az alaki tényező is növekedett, mivel a kötegek átmérője közel $100 \mu\text{m}$ volt, míg az egyedi szálak $5 \mu\text{m}$ átmérővel rendelkeztek. Habár ebben az esetben a mechanikai tulajdonságok javultak a tördelődés miatt, más töltőanyagok esetén más lehet a tördelődés mechanizmusa, és a tulajdonságokra is más hatást gyakorolhat ez a folyamat. Keményfa esetén például kevésbé jellemző a szálak hosszirányú hasadása, így ilyen anyagoknál nem is várhatjuk, hogy a feldolgozás hatására növekedjen az alaki tényezőjük.

2.4. Mikromechanikai deformációs folyamatok

Polimerek és kompozitok deformációjának vizsgálata során az egyes részecskék szintjén fellépő mikromechanikai deformációs folyamatok elemzése elengedhetetlen a pontos következtetések érdekében. Külső terhelés hatására inhomogén feszültség-eloszlás alakul ki a töltőanyagok részecskéi körül, amely lokális deformációs folyamatok megindulását eredményezi [29]. Homogén polimer rendszerek esetén is előfordulnak ilyen folyamatok, például a nyírási folyás vagy a mikrorepedezés. Töltőanyag jelenléte viszont további folyamatokhoz vezet, például határfelületek elválásához, száلكihúzódáshoz vagy száltördelődéshez. Az elasztomer jelenléte pedig módosíthatja a folyamatok arányát és előfordulásának gyakoriságát. Ilyen összetett rendszerek esetén ritkán fordul elő az, hogy csak egy deformációs folyamat játszódik le a tönkremenetel során. Általában a folyamatok párhuzamosan futnak, és a deformáció különböző szakaszaiban más és más folyamat a meghatározó.

Töltőanyagot tartalmazó rendszerekben a határfelületek elválása a leggyakoribb deformációs folyamat [30]. A gyenge határfelületi kölcsönhatások miatt, valamint a nagy szemcseméret következtében a folyamat könnyen lejátszódik, nagy üregeket képezve a részecskék körül, amik repedéssé növekedve a kompozit törését okozzák. Faliszttal töltött polimerekben is a fenti feltételek miatt a határfelületek elválására lehet számítani. Ennek a mértéke csökkenthető kisebb szemcseméretű faliszt alkalmazásával, illetve erősebb kölcsönhatások létrehozásával. Ez utóbbinak a módja a korábban említett kapcsolóanyagok használata.

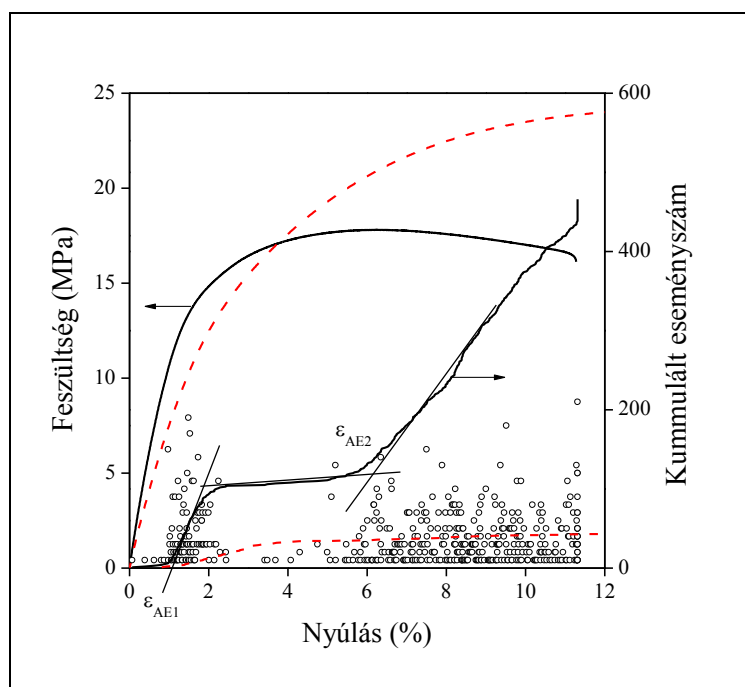
Mivel a részecskék mérete néhány μm -tól néhány $100\ \mu\text{m}$ -ig terjed, a deformációs folyamatok azonosítása és nyomon követése nehézségekbe ütközik. A deformáció mechanizmusára utólag lehet következtetni a törési vagy szakadási felületekről készült SEM felvételtől, azonban ez nem ad információt arról, hogy a deformáció különböző szakaszaiban milyen folyamatok voltak a meghatározóak. Ezért olyan módszert kell választani, amely a tönkremenetel közben is nyújt információt. Ennek egyik módja a térfogati deformáció mérése a szakítóvizsgálat során [31]. A módszer alapja az, hogy bizonyos mikromechanikai folyamatok (határfelületek elválása, repedésképződés, kavitáció) során a mátrix és a töltőanyag elválása miatt üregek képződnek, amik a minta nyúlása során növekednek. Folyamatosan mérve a próbatest térfogatát, a térfogatnövekedés mértékéből lehet

következtetni a deformációs folyamatokra. A mérésre elvégzésére számos módszert dolgoztak ki az évek során. Az egyik lehetőség az, hogy a próbatest szélességét és vastagságát folyamatosan mérik a vizsgálat során. Az eljárás előnye az, hogy viszonylag egyszerűen kivitelezhető, azonban nem minden esetben megbízható. A legnagyobb hátránya az, hogy a méretek változását érzékelő nyúlásmérőt a mintára kell szerelni, amely terhelést fejt ki a mintára, és ez sok polimer esetén folyást idézhet elő. Ezt ki lehet küszöbölni optikai extenzométerek használatával. Számos kutatás foglalkozik ezzel a módszerrel, vizsgáltak kalcium-karbonáttal töltött polietilént [32], gumival töltött polikarbonátot [33] és üvegyönggyel illetve talkummal töltött PP-t is [34]. Azonban a térfogati deformáció mérése azért nem ad teljesen megbízható képet a mechanizmusról, mert csak akkor képes detektálni a határfelületek elválását, mikor az üregek már növekedni kezdenek [35]. Ennek feltétele viszont az, hogy a mátrix nagymértékű plasztikus deformációja megkezdődjön, azonban ez folyás előtt nem történik meg.

Tehát egy olyan módszert kell használni, amely a folyás megindulásától függetlenül képes detektálni a határfelületek elválását. Ilyen mérés az akusztikus emisszió (AE) vizsgálata a deformáció során. A módszert már régóta használják főleg fémek jellemzésére, például nyomástartó edények vizsgálatára [36]. A mérés alapja az a megfigyelés, hogy a lokális deformációs folyamatok energia felszabadulásával járnak. Ez az energia rugalmas hullámok formájában szabadul fel, amiket az ultrahang tartományában mérő detektorral lehet érzékelni. Minden egyes deformációs folyamat egy-egy hullámot generál amit egy-egy jelként, eseményként érzékelünk. A hanghullámok amplitúdója, frekvenciája, energiája és az események száma használható fel a kompozitok jellemzésére. Czigány üvegszállal erősített kompozitokat vizsgált és a jelek frekvenciájából, amplitúdójából következtetett a lejátszódó folyamatokra [37]. A kisebb amplitúdóval rendelkező jelek a mátrix deformációjából származtak, a közepes erősségű események a határfelületek elválásához tartoztak, míg a legintenzívebb események a szálkihúzódáshoz és a száltördeléshez kapcsolódtak. Ezeket a megfigyeléseket más kutatás is alátámasztotta [38]. Azonban szemcsékkel töltött polimerek esetén a jelek amplitúdója jóval alacsonyabb, 20-50 dB közé esik, ami megnehezíti a detektálást, így amplitúdó alapján következtetéseket nehéz levonni. Az események száma és az előfordulás gyakorisága viszont adhat információt a lejátszódó folyamatokról.

Mivel az AE méréseket szakítóvizsgálat közben végzik, az eseményeket és a szakítógörbét egy diagramon célszerű ábrázolni. A 3. ábrán egy PP/20 m/m% faliszt (EFC) kompozit AE vizsgálatának eredményét mutatom be [13]. A diagramon látható a feszültség

(bal oldali tengely) a nyúlás függvényében és az adott deformációig történő események száma összegezve (jobb oldali tengely). Körökkel jelöltem az egyedi eseményeket, a körök helyzete pedig az amplitúdójukkal arányos. Fekete színnel szerepel a PP/faliskt kompozit, míg piros színnel ábrázoltam a töltőanyagot nem tartalmazó PP mérésének eredményét.



3. ábra PP/faliskt kompozitokon végzett AE mérések eredménye. — PP/20 m/m% faliskt,
 ○ a kompozit mérése során detektált egyes jelek, --- tiszta PP [13].

Az ábrán jól látszik az, hogy tiszta PP esetén nagyon kevés akusztikus jelet észleltek a vizsgálat során. Ez olyan deformációs folyamatokra utal, melyek nem emittálnak hangot. Ilyen lehet például a nyírási folyás. Ezzel szemben a kompozit mérése során jóval több jel érkezett. Két jól elkülöníthető jelcsoportot figyelhetünk meg, az egyik még a folyás előtt jelenik meg, a másik pedig 6 % deformáció körül kezdődik és egészen a szakadásig tart. Jól látszik a kumulált eseményszám-görbén is, itt a két jelcsoportnak megfelelően két lépcső figyelhető meg. Ez valószínűleg két egymást követő deformációs mechanizmusnak felel meg. Az első a publikáció szerint a határfelületek elválása, mely már kis feszültség esetén is lejátszódik, a második folyamat pedig a szállkihúzóadás [13]. Az egyes folyamatokra jellemző feszültség- és deformáció-értékeket leolvashatjuk a görbéről, mint ahogyan az a deformáció esetében az ábrán látszik (ϵ_{AE}). A fenti kompozit készítéséhez nem használtak kapcsolóanyagot, azonban a kutatás során vizsgáltak olyan mintákat is, melyekben MAPP-val növelték a határfelületi kölcsönhatások erősségét. A kölcsönhatás erősödésével a

határfelületek elválása jóval nagyobb feszültség értékeknél történt meg és a száلكihúzóadás helyett valószínűleg száltördelődés okozta a minta tönkremenetelét.

Ebben a részben összefoglaltam a fontosabb mikromechanikai deformációs folyamatok típusait, valamint a legfontosabb vizsgálati módszereket. Az akusztikus emisszió mérése szolgáltatja a legtöbb információt a folyamatokról, ám ennek a módszernek is vannak korlátai. Mivel kis amplitúdójú jeleket lehet regisztrálni, a folyamatok típusát a feltételezések alapján kell megállapítani. A feltételezések igazolásában azonban segítségünkre lehetnek a pásztázó elektronmikroszkópiával készített felvételek. Hogy a mikrométeres léptékű folyamatok és a makroszkopikus tulajdonságok között szoros összefüggés van, arra abból következtethetünk, hogy az MAPP-t tartalmazó és nem tartalmazó kompozitok között nemcsak a szakítószilárdság tekintetében van különbség, hanem a deformációs folyamatok is máshogy játszódnak le.

2.5. Ütésállóság

Szerkezeti anyagként használt kompozitok legfontosabb két jellemzője a merevség és az ütésállóság. A felhasználás szempontjából azok az anyagok a legmegfelelőbbek, melyek egyszerre rendelkeznek jó merevséggel és jó ütésállósággal. Azonban a gyakorlati tapasztalat azt mutatja, hogy a merevség növekedésével az ütésállóság általában nagy mértékben csökken és ugyanez igaz fordított esetben is. Ezért számos próbálkozás látott napvilágot, hogy jó merevséget és ütésállóságot érjenek el különböző polimer rendszerekben. Polipropilén esetén az ütésállóság növelését általában elasztomerek alkalmazásával érik el, míg a merevség javításának céljából töltőanyagot adnak a rendszerhez. Ezt a megoldást használják például gépjárművek lökhárítójának készítésére [39].

Az ilyen többkomponensű rendszerekben alapvetően kétféle szerkezet alakulhat ki. Az egyik lehetőség az, hogy az elasztomer és a töltőanyag egymástól függetlenül oszlik el a mátrixban, szeparált szerkezetet hozva létre [40]. A másik variáció az, hogy az elasztomer bevonja a szemcsék felületét, és így beágyazott szerkezet alakul ki [41]. A kialakuló struktúra főként az adhéziós- és nyíróerők arányától függ. Az előbbi termodinamikai okokból a beágyazott szerkezetnek kedvez, míg az utóbbi a szemcse felületén levő elasztomer-réteget elválasztja a felülettől és szeparált szerkezetet alakít ki [42]. Azonban a fenti két szerkezet

csak a két határeset, a gyakorlatban készített kompozitok szerkezete mindig a kettő között helyezkedik el: az elasztomer egy része bevonja a szemcse felületét, a másik része pedig külön fázist alkot. A különböző szerkezetek kialakulását megfelelő kapcsolóanyagokkal lehet befolyásolni [20,43]. Mivel a kölcsönhatások és a szerkezet között szoros összefüggés áll fenn, ebben az esetben is funkcionálisított polimereket használnak a szerkezet módosítására. MAPP alkalmazása a szeparált szerkezetnek kedvez, mivel erős kovalens kötéseket hoz létre a faliszt felületével, illetve interdiffúzióval a PP mátrixba hatol [44]. Az erős töltőanyag-mátrix kölcsönhatás miatt ebben az esetben tehát az elasztomer nem tudja bevonni a szemcse felületét. Maleinsav-anhidriddel módosított etilén-propilén-dién (MAEPDM) elasztomer alkalmazásával azonban nagymértékű beágyazódást lehet elérni. A kompozit merevsége azonos összetétel esetén szinte kizárólag a beágyazottság mértékétől függ, azonban az ütésállóságot főként a meghatározó mikromechanikai deformációs folyamat befolyásolja [45].

Heterogén rendszerek modulusa és összetétele közötti összefüggések leírására számos modell és elmélet létezik. A leggyakrabban alkalmazott félempirikus modell a Lewis-Nielsen modell [26]. A modell alapján háromkomponensű rendszer modulusa a 2. egyenlet alapján számítható az összetétel segítségével:

$$E_c(\varphi) = E_m \frac{1 + A_f B_f \varphi_f}{1 - \Psi_f B_f \varphi_f} \frac{1 - \Psi_e B_e \varphi_e}{1 + A_e B_e \varphi_e} \quad (2)$$

Az egyenletben E_c és E_m a kompozit és a mátrix modulusa, φ_f és φ_e a töltőanyag és az elasztomer térfogattörtje. A_f , A_e , B_f , B_e , Ψ_f és Ψ_e pedig a 3. táblázat szerint számolható:

3. táblázat Lewis-Nielsen modell paramétereinek számítása.

$A_f = \frac{7 - 5 \nu_m}{8 - 10 \nu_m}$	$A_e = \frac{8 - 10 \nu_m}{7 - 5 \nu_m}$
$B_f = \frac{\frac{E_f}{E_m} - 1}{\frac{E_f}{E_m} + A_f}$	$B_e = \frac{\frac{E_m}{E_e} - 1}{\frac{E_m}{E_e} + A_e}$
$\Psi_f = 1 + \left(\frac{1 - \varphi_f^{\max}}{\varphi_f^{\max^2}} \right) \varphi_f$	$\Psi_e = 1 + \left(\frac{1 - \varphi_e^{\max}}{\varphi_e^{\max^2}} \right) \varphi_e$

v_m a mátrix Poisson tényezője. A modell két illeszthető paraméteret tartalmaz, A a töltőanyag alakjával hozható kapcsolatba, ψ pedig a maximális töltési fokkal ($\varphi_f^{\max}$). Az egyenlet segítségével ki lehet számolni adott összetétel esetén a beágyazott és a szeparált szerkezetekhez tartozó modulus értékeket. A modell alkalmas arra is, hogy iteráció segítségével meghatározzuk egy adott összetételű kompozitban a beágyazott szemcsék arányát.

Mivel a faliszt szemcsék jóval nagyobb méretűek a korábban használt töltőanyagoknál, a faliszt alapú kompozitok deformációs mechanizmusa eltér a korábbi tapasztalatoktól. A WPC ütésállóságával kapcsolatos kutatások az elmúlt másfél évtizedben kerültek előtérbe. Clemons faliszttal és elasztomerrel töltött polietilén/polipropilén keverékek tulajdonságait elemezte [46], Oksman többféle elasztomerrel módosított WPC-t vizsgált [20]. Hristov kutatása során poli(butadién-sztirol)-t használt elasztomerként és főként a kompozitok törésmechanikai tulajdonságait kísérte figyelemmel [47]. A felsorolt munkák célja valamilyen összefüggés megállapítása volt a használt kapcsolóanyag típusa, mennyisége, a kompozit szerkezete és tulajdonságai között. Afrifah munkája során politejsav/etilén-akrilát kopolimer/faliszt kompozitok optimális összetételét kereste [1]. Kétszintes faktoriális kísérletterv alapján határozta meg a faliszt arányának, a részecske méretének és az elasztomer-tartalomnak a hatását a szakítószilárdságra, a modulusra és a szakadási nyúlásra. Az optimalizálás során az volt a célja, hogy az eredeti politejsavhoz hasonló mechanikai tulajdonságokkal rendelkező összetételt találjon. Arra a következtetésre jutott, hogy a kitűzött célnak két típusú kompozit felel meg. Az egyik nagy szemcseméretű faliszttal tartalmazott nagy (40%-os) mennyiségben, körülbelül 20%-os elasztomer-tartalom mellett. A másik megfelelő keverék nem tartalmazott elasztomert, kis szemcseméretű faliszból pedig 13% kellett a kitűzött cél eléréséhez.

A fenti munkák mindegyike alátámasztotta azt, hogy a faliszt alkalmazása jelentősen növeli a modulust a tiszta polimerhez képest, amit további kutatások is megerősítettek [48]. Ha elasztomert is adnak a rendszerhez, akkor a kompozit kevésbé lesz merev, mintha csak faliszttal lenne töltve, ám a merevsége még így is nagyobb a tiszta polimerénél. Irodalmi eredmények azt is igazolták, hogy a beágyazott szerkezet esetén a modulus nem növekszik olyan mértékben, mint amikor a külön fázist alkot az elasztomer és a faliszt [49]. Mivel MAPP alkalmazása esetén a modulus értéke nem változott jelentősen, arra lehet következtetni, hogy a merevséget nem, vagy csak nagyon kis mértékben befolyásolja a

faliszt/mátrix közötti kölcsönhatás. A kompozitok ütésállósága töltőanyagok alkalmazása esetén általában csökken [50,51]. Ez igaz a faliszttel töltött PP kompozitok esetén is [52]. Az ütésállóság elasztomerek adagolásával javítható, ám nagy faliszt tartalomnál nem jelentős a különbség az elasztomert tartalmazó illetve nem tartalmazó kompozitok között [49].

Az irodalomkutatásom során számos olyan publikációt olvastam el, amely kapcsolódik a PP/faliszt/elasztomer kompozitok témaköréhez. Mivel minden heterogén polimer rendszer tulajdonságait az összetétel, a komponensek tulajdonságai, a szerkezet és a határfelületi kölcsönhatások határozzák meg, ezeket részletesen ismertettem az összefoglalóban. Az ilyen összetett rendszerek deformációs mechanizmusának vizsgálata során elengedhetetlen az, hogy azonosítsuk a mikromechanikai deformációs folyamatokat. Számos kutatási is arra a következtetésre jutott, hogy ezek szerepe meghatározó a kompozit tulajdonságait tekintve. Annak ellenére, hogy sok cikk foglalkozik ilyen rendszerek mechanikai tulajdonságaival és ütésállóságával, akadnak még tisztázatlan kérdések a témában. Nem teljesen világos a kapcsolat a kompozitok szerkezete, a deformációs mechanizmusok és az ütésállóság között.

3. Kísérleti rész

3.1. Felhasznált anyagok

A munkám során hat különböző kompozit-sorozatot készítettem. A sorozatokon belül a felhasznált anyagok azonosak voltak és az összetételt változtattam. A TVK Nyrt. által gyártott *H 649 F* típusú polipropilént (továbbiakban: PP, MFI: 2,5 g/10 perc, 230 °C-on, 2,16 kg terheléssel mérve, sűrűség: 0,9 g/cm³) használtam mátrixként. Három típusú töltőanyaggal dolgoztam, mindegyik a Rettenmaier and Söhne cég terméke volt: *Filtracel EFC 1000* (továbbiakban: EFC), *Arbocel CW 630* (továbbiakban: CW) és *Arbocel UFC M8* (továbbiakban: UFC). Az egyik alkalmazott elasztomer az Exxon Mobil *Vistalon 706* típusú etilén-propilén kopolimer (továbbiakban: EPR) elasztomerje volt (etilén tartalom: 65 m/m%, Mooney viszkozitás ML 1 + 4 125 °C-on: 42). A másik típusú elasztomer szintén az Exxon Mobil cég által gyártott *Exxcellor VA 1803* maleinsav-anhidriddel módosított EPDM (továbbiakban MAEPDM, etilén tartalom: 43 m/m%, MFI: 3 g/10 perc, 230 °C-on, 2,16 kg terheléssel mérve, MA tartalom: 0,5-1,0 m/m%) volt. A határfelületi kölcsönhatások módosítására pedig kapcsolóanyagként az Arkema cég *Orevac CA 100* típusú maleinsav-anhidriddel módosított polipropilénjét (továbbiakban: MAPP, MFI: 150-200 g/10 perc, 230 °C-on, 2,16 kg terheléssel mérve, MA tartalom: 1,0 m/m%) használtam.

A könnyebb összehasonlíthatóság érdekében minden kompozit mátrixának 20 m/m%-át elasztomerrel helyettesítettem, és amelyik sorozat esetén használtam kapcsolóanyagot, ott a faliszt mennyiségéhez képest 10 m/m%-ot alkalmaztam. Az első három sorozatban a faliszt tartalmát az egész kompozit tömegéhez képest 0 és 60 m/m% értékek között változtattam, 10 m/m%-os lépésként. A másik három sorozat esetén a cél a töltőanyag szemcsék különböző mértékű beágyazása volt, így azonos elasztomer és faliszt tartalom mellett a kapcsolóanyag mennyiségét és minőségét változtattam. A készített sorozatok összetételét a 4. táblázat tartalmazza.

4. táblázat *A munkám során készített sorozatok összetétele.*

Sorozat sorszáma	1	2	3	4	5	6
Mátrix	PP					
Elasztomer (a mátrix mennyiségéhez képest)	20% MAEPDM	20% EPR	20% EPR	összesen 20% EPR és MAEPDM	összesen 20% EPR és MAEPDM	összesen 20% EPR és MAEPDM
Kapcsolóanyag (MAPP/fa aránya 0,1)	—	MAPP	MAPP	—	—	—
Töltőanyag (a kompozit mennyiségéhez képest)	0-60% CW	0-60% CW	0-60% EFC	40% CW	40% EFC	40% UFC

3.2. Mintakészítés

A PP, az MAEPDM, és az MAPP granulátum formában érkezett a gyártóktól, így azok különösebb előkészítési műveletet nem igényeltek. Hogy a falisztek víztartalma ne nehezítse a feldolgozást, illetve a tulajdonságokat ne befolyásolja, extrudálás előtt a használt faliszteket 4 órán át 105 °C-on szárítottam szárítószekrényben. Az EPR egy 10 kg-os tömb formájában állt rendelkezésre, ezért először ezt kellett darálni olyan méretűre, hogy az extruderbe adagolható legyen. Ehhez először a tömbből körülbelül 10 cm³ térfogatú kockákat vágtam kézi fűrész és kés segítségével. Majd egy késes daráló segítségével daráltam le a kockákat megfelelő méretűre. Azonban az EPR üvegesedési hőmérséklete -50 °C körüli érték [53], így szobahőmérsékleten nagyrugalmas állapotban van, melynek következtében ezzel a darálóval nem lehetett ledarálni. Ezért azt a módszert alkalmaztam, hogy az EPR kockákat szárazjéggel kevertem össze, hagytam lehűlni 2-3 órán át, majd a szárazjéggel együtt adagoltam a darálóba.

A komponensek összekeverésére egy Brabender DSK 42/7 típusú kétcsigás extrudert használtam, melynek átmérője 70 mm, L/D aránya 6. Első lépésben az EPR jobb elosztatásának érdekében PP-t és 20m/m% EPR-t extrudáltam, majd granuláltam. A zónák hőmérsékletét a garat irányából a szerszám felé haladva 180-210 °C értékre állítottam be, az alkalmazott fordulatszám 45 perc⁻¹ volt. Az így gyártott zsinórt granuláló berendezéssel daraboltam. Második lépésben a granulátumokat és a faliszteket adagoltam megfelelő

menyiségben a fenti extruderbe, a zónák hőmérséklete a szerszám felé haladva 165-210 °C-ig változott, a fordulatszám 45 per⁻¹ volt. Az extrúzió során felmerült néhány nehézség a feldolgozással kapcsolatban. Az első probléma az adagolás nehézsége volt, mivel a faliszt hajlamos boltozódásra a garatban. A boltozódás megakadályozza, hogy további anyag jusson az extruderbe, ami az ömledékszállítás pulzálását okozza és a gyártott szál elszakadásához vezethet. Ennek megelőzésére csak kis mennyiséget (10-15 g) adagoltam mindig a garatba, hogy időben észrevegyem, ha boltozódik az anyag. A másik nehézség az volt, hogy a szárítás ellenére is maradhatott nedvesség a falisztben, amely a feldolgozás során pára formájában a garat felé távozott. Mivel a garatot hűtöttem, a pára egy része itt kondenzálódott és elősegítette a faliszt boltozódását. A harmadik problémát az azonos összetétel biztosítása jelentette. A komponenseket 1,5 kg-os mennyiségben kevertem össze egy zacskóban, és innen adagoltam az extruderbe. Mivel a keverés nem volt tökéletes, az extruderbe adagolt anyag összetétele kis mértékben ingadozott. Ez az ingadozás azonban valószínűleg nem befolyásolja jelentősen a később fröccsöntött próbatetek tulajdonságait, mivel a granulátumot fröccsöntés előtt összekevertem. Az extrudálás és a fröccsöntés között megkötött víz eltávolítására a granulátumot szárítószekrényben négy órán át 80 °C-on szárítottam felhasználás előtt. A fröccsöntést egy Demag IntElect 50/330-100 típusú gépen végeztem el. A fröccsöntést 210 °C-os fűvóka-hőmérséklet mellett végeztem, a szerszámot pedig 40 °C-on temperáltam. Szabványos piskóta alakú próbateteket fröccsöntöttem, amiket a vizsgálatok előtt legalább egy hétig pihentettem, hogy az utókristályosodás ne befolyásolja a méréseket.

3.3. Mérési módszerek

A szakítóvizsgálatokat és az AE méréseket egy Instron 5566 típusú berendezésen végeztem el. A modulus mérése 0,5 mm/perc keresztfej sebességgel történt, a többi jellemzőt 5 mm/perc sebességgel határoztam meg. A befogási távolság 115 mm volt. Az AE méréseket egy Sensophone AED 40/4-es készülékkel végeztem el. A mérések során a zaj kiszűrésére csak a 20 dB feletti eseményeket rögzítettem. A deformációs folyamatok részletesebb elemzésére az 1. és 2. sorozat esetén 100 mm/perc sebességgel is végeztem mechanikai és akusztikus méréseket. A Charpy típusú ütésállósági vizsgálatokat szobahőmérsékleten, az ISO 179 szabványnak megfelelő próbateteken végeztem el, 2 mm-es bemetszéssel. A falisztet tartalmazó mintáknál 1 J-os kalapáccsal végeztem a mérést, míg a faliszt nélkülieknél 4 J-os

kalapácsot használtam a törés során elnyelt energiát figyelembe véve. A törés jellegének vizsgálatára fraktoszkópiás méréseket végeztem egy Ceast Resil 5.5 típusú berendezés segítségével, 4 J-os kalapáccsal. A kompozitok szerkezetét és deformációs folyamatait elektronmikroszkópos felvételek segítségével vizsgáltam, amiket egy Jeol JSM 6380 LA berendezéssel készítettünk. A szerkezet jellemzéséhez a bemetszett mintákat folyékony nitrogén hűtés után, hidegen törtük el, majd a törési felületet n-hexánnal 1 percig maratva kioldottuk az elasztomert és ez után készítettük a képet. A deformációs folyamatok jellemzésére pedig a szakítóvizsgálat során elszakított minták szakadási felületéről készítettünk felvételeket.

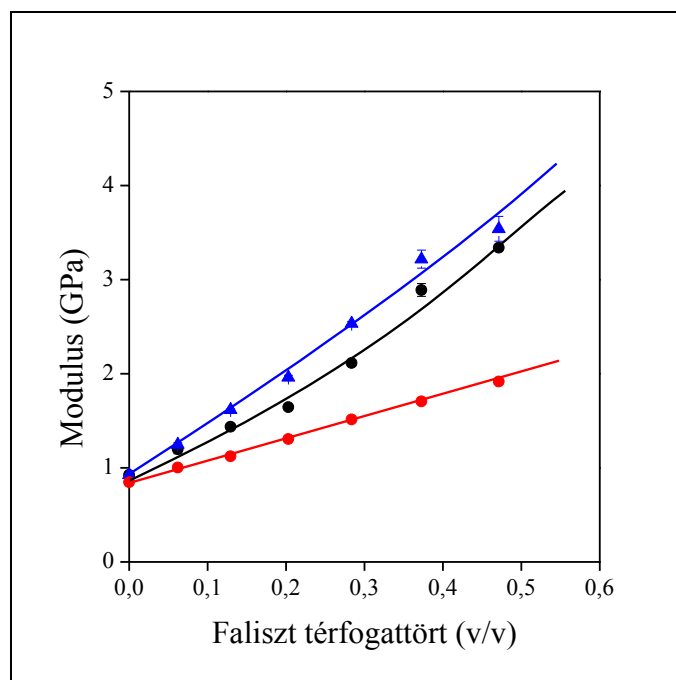
4. Eredmények, értékelés

Az első három sorozatban a faliszt mennyiségét változtattam, így egy sorozaton belül következtethetünk az összetétel és a tulajdonságok közötti összefüggésre. A két különböző elasztomerrel készült sorozat összehasonlítása információt nyújthat a szerkezet és a tulajdonságok közötti összefüggésről. A különböző faliszttal végzett mérések pedig rávilágíthatnak a szemcsék méretének fontosságára. Ennek a három sorozatnak az eredményeit a következő két pont tartalmazza. A 4., 5. és 6. sorozatot ezek az eredmények kiértékelése után készítettem, hogy megvizsgáljam a beágyazottság mértéknek hatását a mechanikai tulajdonságokra, illetve hogy a faliszt típusa mennyiben módosítja a beágyazott szerkezetet. Ennek az eredménye a 4.3. pontban található.

4.1. Mechanikai vizsgálatok, ütésállóság

Szerkezeti anyagok mechanikai tulajdonságai közül a merevség a legfontosabb, mivel kifejezi az anyag deformációval szembeni ellenállását. Ezt a tulajdonságot a rugalmassági modulus értékével lehet jellemezni. A modulus változása az összetétel függvényében nemcsak a merevségről, hanem a kompozit szerkezetéről is nyújthat információt. A 4. ábrán az első három sorozat modulus értékei láthatóak a faliszt térfogattörtjének függvényében. Azért térfogattörtet ábrázolok, mert a tulajdonságok nem a komponensek tömegének arányától, hanem a kompozitban elfoglalt térfogattól függenek. Az ábrán feltüntetett görbék csak arra

szolgálnak, hogy a tendencia könnyebben látható legyen, nem összefüggések alapján illesztettem őket.

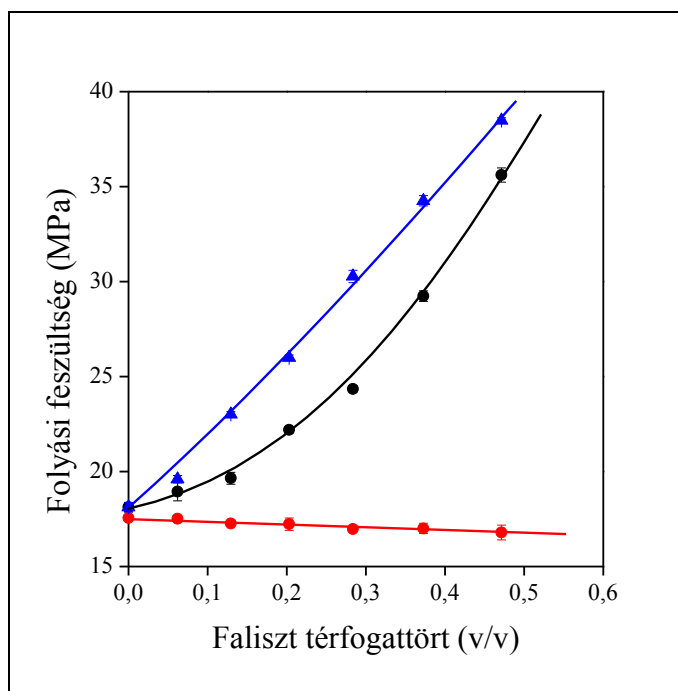


4. ábra Modulus a faliszt térfogattörtjének függvényében.

Jelmagyarázat: ● (PP/CW/MAEPDM), ● (PP/CW/EPR/MAPP), ▲ (PP/EFC/EPR/MAPP).

A diagramon látható, hogy mindhárom esetben nőtt a kompozitok merevsége a töltőanyag tartalom növelésével. Ez megfelel a várakozásoknak, hiszen a töltőanyagok a nagyobb merevségük miatt növelik a kompozit modulusát. Azonban az egyes sorozatok elég jelentősen különböznek egymástól. Az EFC-vel készült kompozitok modulusa nagyobb, mint CW használata esetén. Mivel a két sorozat azonos módszerrel készült, ezért kizárható, hogy az orientáció mértéke különböző lenne a két esetben. Azonban az EFC nagyobb szemcsemérettel és alakú tényezővel rendelkezik, így az orientáció hatása jelentősebb, ami nagyobb mértékű erősítésben nyilvánul meg. A különböző elasztomereket tartalmazó sorozatok esetén a különbség még jelentősebb. A korábbi megfigyelések [39,49] során az MAEPDM-et tartalmazó minták merevsége kisebb mértékben nőtt, mint az EPR-t és MAPP-t tartalmazó kompozitok esetén. Ez az általam készített kompozitokra is igaz, sőt, a két sorozat közötti különbség nagyobb, mint amit korábban tapasztaltak. A két sorozat merevsége közti különbség oka feltehetőleg a kompozitok szerkezetében keresendő. MAEPDM használata esetén beágyazott szerkezet alakul ki, azaz az elasztomer bevonja a töltőanyag felületét. Ennek következtében a faliszt nem tudja kifejteni erősítő hatását, ami látszik a modulus

értékeken is. Mivel a modulus értéke MAEPDM használata esetén is növekszik valamilyen mértékben, ezért biztos, hogy a beágyazódás nem teljes mértékű. A műanyagok folyási feszültsége az anyag teherbíró képességével van kapcsolatban. A faliszt jelenléte és a kialakuló szerkezetek módosíthatják a teherbíró képességet. Ezért a folyási feszültség és a faliszt mennyisége közötti összefüggés segíthet a különböző szerkezetek meghatározásában (5. ábra).



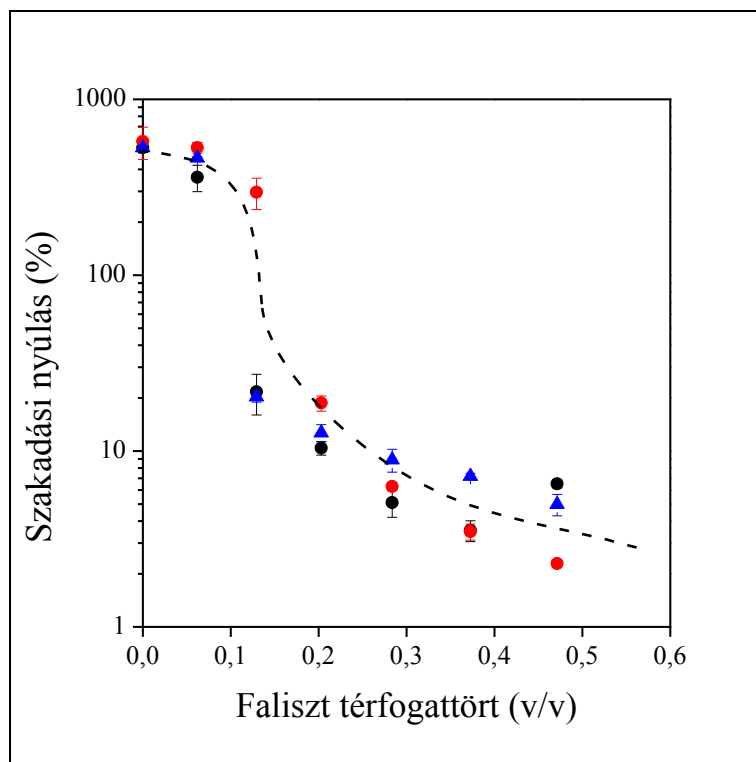
5. ábra Folyási feszültség a faliszt térfogattörtjének függvényében.

Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

Az ábrán jól látszik, hogy az EPR/MAPP-t tartalmazó sorozatok esetén a folyási feszültség jelentősen növekedett. A 60 m/m% falisztal töltött minták folyási feszültsége közel kétszerese a falisztal nem tartalmazó minták folyási feszültségének. Ez annak köszönhető, hogy a kapcsolóanyag megfelelően erős határfelületi kölcsönhatásokat biztosít a faliszt és a mátrix között. Így a faliszt viseli a terhelés nagy részét, amit a mátrix közvetít. Az MAEPDM hatására létrejövő beágyazott szerkezet azonban megváltoztatja a szemcse környezetében a feszültség eloszlását, így a terhelés átadása a mátrix és a töltőanyag között, kevésbé hatékony. A két faliszt közötti különbség ebben az esetben is jól látszik. A nagyobb alaki tényezővel rendelkező EFC erősítő hatása nagyobb, mint a másik faliszté.

A faliszt jelenléte nagyban befolyásolja a kompozit szakadási nyúlásának értékét is. A 6. ábrán látható, hogy a minták szakadási nyúlása a töltőanyag arányának növelésével

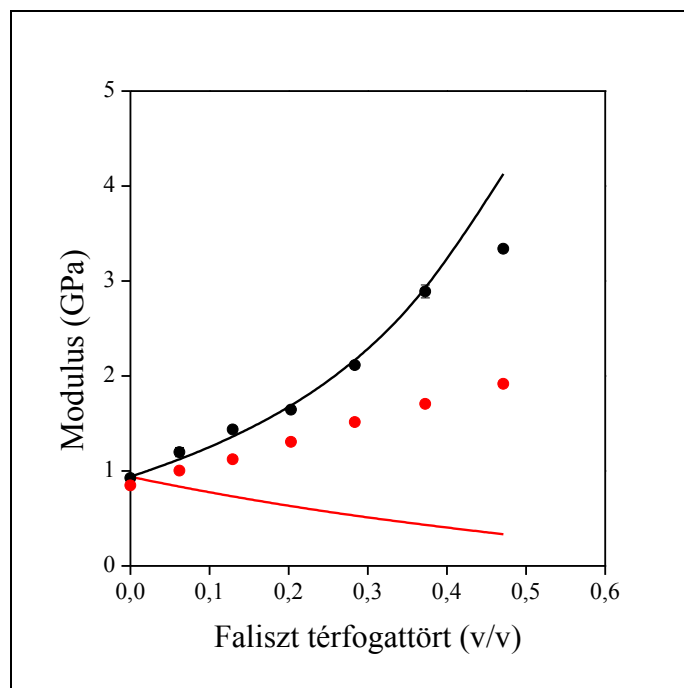
jelentősen csökken. A nagy deformálhatóság szükséges lehet a kompozitok ütésállóságának szempontjából. A faliszt hatására tapasztalható csökkenés miatt az ütésállóság is valószínűleg csökkenni fog. Nagy faliszt tartalomnál (20-60 m/m%), a szerkezettől függetlenül, közel azonos szakadási nyúlás értékeket mértem. Ez arra utal, hogy a kompozitok tönkremenetelét kevésbé befolyásolja a szerkezet, inkább a szemcsék mennyisége a jelentős.



6. ábra Szakadási nyúlás a faliszt térfogattörtjének függvényében.

Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

A mechanikai vizsgálatok alapján két fontos következtetést vontam le. Az egyik az, hogy a nagyobb alaki tényezővel rendelkező faliszt (EFC) használata esetén nagyobb mértékű erősítést lehet elérni. A másik megállapítás pedig az, hogy megfelelő elasztomer megválasztásával lehet befolyásolni a kompozitban kialakuló szerkezetet. MAEPDM alkalmazása beágyazott szerkezetnek kedvez, amely kisebb merevséget, folyási feszültséget és szakítószilárdságot okoz. EPR/MAPP használata esetén szeparált szerkezet alakul ki, melyben jobban érvényesül a faliszt erősítő hatása. A második következtetés alátámasztására az irodalmi összefoglalóban említett Lewis-Nielsen modellt használtam. A modell segítségével kiszámoltam a két elméleti határesethez tartozó modulus értékeket a töltőanyag tartalom függvényében. Ezeket ábrázoltam a 7. ábrán piros (beágyazott szerkezet) és fekete (szeparált szerkezet) vonallal. A diagramon feltüntettem továbbá az általam mért értékeket.



7. ábra Lewis-Nielsen modell és a mért értékek összehasonlítása.

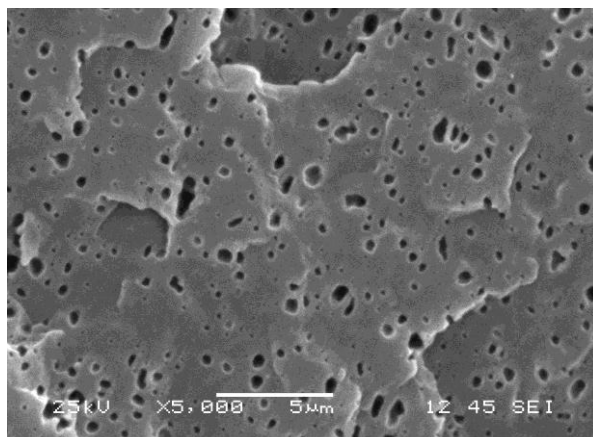
Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP ,
 — szeparált szerkezet modulusa (modell alapján számolva)
 — beágyazott szerkezet modulusa (modell alapján számolva).

Jól látszik, hogy az EPR/MAPP-s sorozat mért modulusai közel találhatók a szeparált szerkezethez tartozó elméleti értékekhez. A jó egyezés igazolja a feltételezést, hogy EPR és MAPP használatával szeparált szerkezetet lehet kialakítani. Az MAEPDM-es sorozat mért mennyiségei pedig a két elméletileg számolt határeset között vannak. Ebből arra lehet következtetni, hogy ennél az elasztomernél bizonyos mértékű beágyazódás következett be. A modell nagy előnye, hogy nemcsak a beágyazódás tényét lehet vele megállapítani, hanem mennyiségi meghatározásra is alkalmas. Iteráció elvégzésével kiszámoltam a különböző kompozitokban a beágyazott szemcsék arányát az összes töltőanyaghoz viszonyítva. Ezeket az értékeket tartalmazza az 5. táblázat. A modell alapján végzett számítások igazolták azt a feltevést, hogy EPR/MAPP esetén gyakorlatilag nincs beágyazódás. Az utolsó 7,7%-os eredmény lehet, hogy a szemcsék aggregációjának következménye. MAEPDM alkalmazása esetén pedig a szemcsék 20-30%-át bevonja az elasztomer.

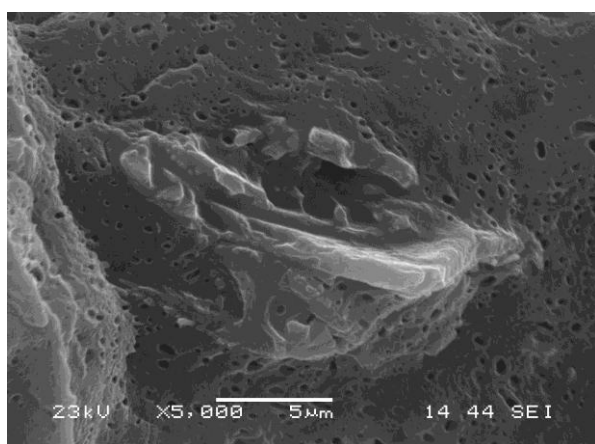
5. táblázat *Beágyazottság mértéke, a Lewis-Nielsen modell alapján.*

Faliszt tartalom (m/m%)	Beágyazottság mértéke	
	PP/CW/EPR/MAPP	PP/CW/MAEPDM
10	0,0	33,8
20	0,0	27,9
30	1,7	23,6
40	0,7	23,1
50	0,0	25,3
60	7,7	27,7

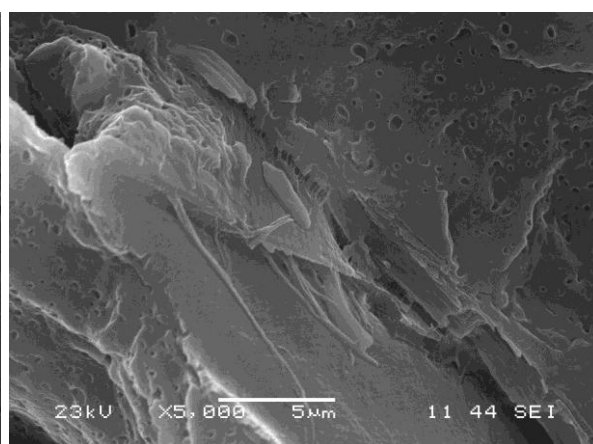
Arról, hogy valóban különböző típusú szerkezeteket sikerült kialakítani, SEM felvételek segítségével győződhetünk meg. A könnyebb összehasonlíthatóság érdekében a 8.a) ábrán szerepel egy falisztet nem tartalmazó PP/EPR/MAPP minta felvétele. Mivel az elasztomert kioldottuk a rendszerből, a képen található üregek az elasztomer helyét jelzik. A sok kis méretű üregből arra lehet következtetni, hogy az elasztomer egyenletesen eloszlik a PP mátrixban, és külön fázist alkot. Az ábrán látható további két felvétel a 40% CW-t tartalmazó hidegen eltört minták törési felületéről. A 8.b) képen az EPR/MAPP-t tartalmazó kompozit látszik. Itt is hasonló mennyiségű üreget láthatunk, mint az előző felvételen, így arra lehet következtetni, hogy az elasztomer teljes mennyisége ebben az esetben is külön fázist alkot és nem vonja be a szemcsék felületét. A 8.c) ábrán látható MAEPDM-mel készült kompozit esetében már jóval kevesebb üreg figyelhető meg. Ennek az az oka, hogy ebben az esetben az elasztomernek csak egy része alkot külön fázist, a másik rész pedig bevonja a szemcsék felületét és beágyazott szerkezetet alakít ki. A SEM felvételek is alátámasztják a mechanikai vizsgálatok alapján tett megállapításokat, tehát EPR és MAPP alkalmazásával szeparált szerkezetet lehet létrehozni, míg MAEPDM használata részben beágyazott szerkezetet eredményez.



a)



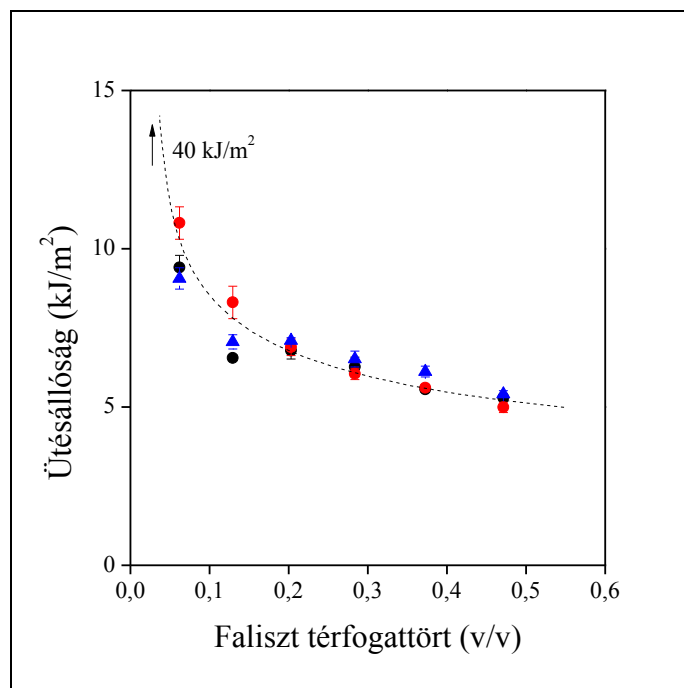
b)



c)

8. ábra *Különböző kompozitok szerkezete. a) PP/EPR/MAPP; b) PP/CW (40m/m%)/EPR/MAPP; c) PP/CW (40 m/m%)/MAEPDM.*

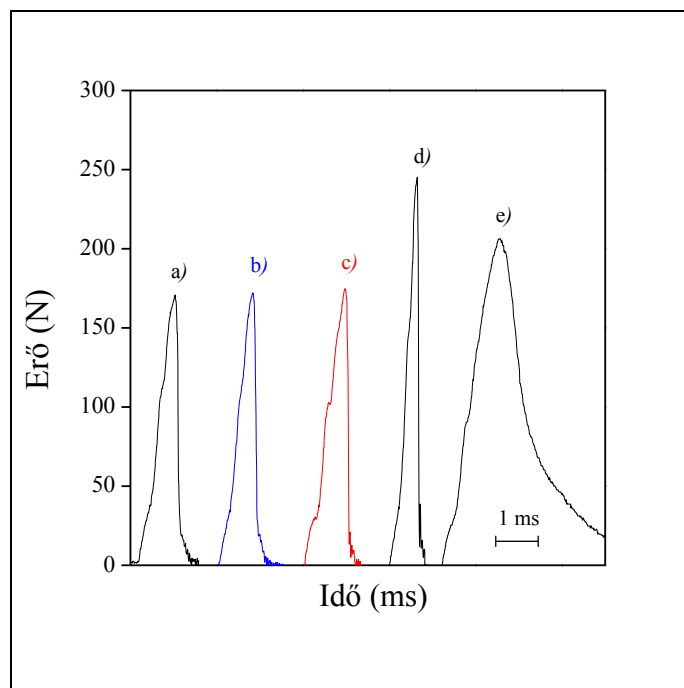
A fenti mechanikai tulajdonságokon kívül a kompozitok fontos jellemzője az ütésállóság. A mérés során a próbatest eltöréséhez szükséges energiát mérjük, majd ezt leosztva a törési felülettel, megkapjuk az ütésállóság értékét. A vizsgálat hátránya, hogy a műanyagok töréssel szembeni ellenállása jelentősen függ a termék méreteitől, tehát a próbatesteken mért értékek nem használhatóak fel termékek ütésállóságának becslésére. Azonban ez a szabványos vizsgálat összehasonlításra alkalmas, mivel minden próbatest azonos alakú és közel azonos méretű. Az első három sorozat ütésállóság-falaszt tartalom összefüggése a 9. ábrán látható.



9. ábra Ütésállóság a faliszt térfogattörtjének függvényében

Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

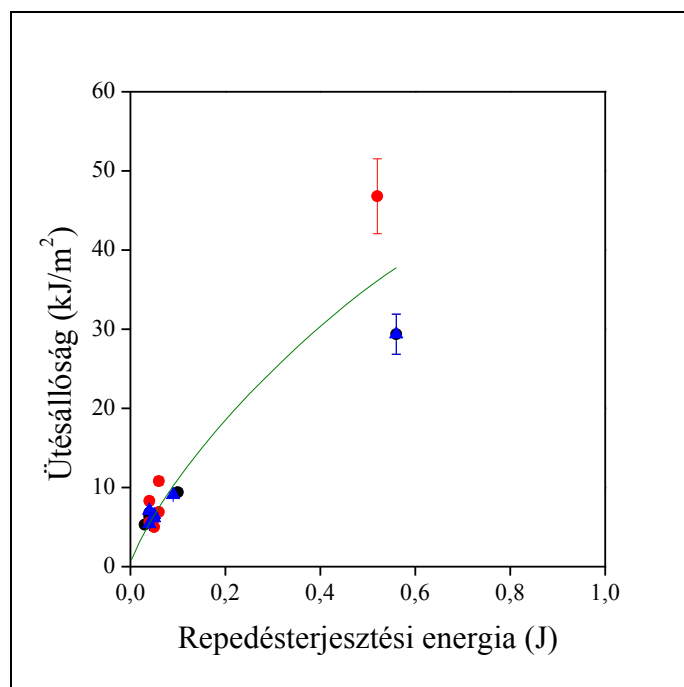
A mért értékek megerősítik a korábbi megfigyelést, hogy a faliszt csökkenti a kompozit ütésállóságát [52]. A jobb ábrázolhatóság kedvéért a faliszt nélkül készített minták ütésállóságát a diagramon nem ábrázoltam, csak nyíllal jelöltem. A szaggatott vonal csak a tendencia jelzésére szolgál, nem a pontokra illesztett függvényt jelez. Annak ellenére, hogy a szerkezetben jelentős különbség van, illetve más faliszttal készültek a sorozatok, az ütésállóság értékekben ezek a különbségek nem jelentkeznek. Ez a mérés alapján a kompozitok szerkezete és a szemcse típusa nem befolyásolja az ütésállóságot. Ez az eredmény ellentmond a várakozásoknak mivel a különböző szerkezet különböző mechanikai tulajdonságokat eredményezett, és ez alapján azt lehet feltételezni, hogy az ütésállóságban is van különbség. Azt, hogy ennek különböző szerkezet ellenére miért nincsen különbség az ütésállóság értékében, érdemes további módszerekkel megvizsgálni. Az egyik ilyen módszer a műszerezett törési vizsgálat (fraktoszkópia). Ez hasonló a szabványos ütésállósági vizsgálatához, de ebben az esetben egy erőmérő segítségével folyamatosan regisztráljuk a törés közben fellépő erőt az idő függvényében. Így információt szerezhetünk a törés jellegéről és a részfolyamatokról, a repedés iniciálásáról és terjedéséről. A 10. ábrán látható öt általam választott mintának a fraktoszkópiás görbéje.



10. ábra Különböző kompozitok fraktoszkópiás vizsgálata során regisztrált erő-idő összefüggések. Jelmagyarázat: a) PP/CW (20 m/m%)/EPR/MAPP; b) PP/EFC (20 m/m%)/EPR/MAPP; c) PP/CW (20 m/m%)/MAEPDM; d) PP/CW (60 m/m%)/EPR/MAPP; e) PP/EPR/MAPP.

Egy összetétel esetén a három kompozit fraktoszkópiás görbéi (a-c) között nagyon nagy a hasonlóság. Tehát a szerkezet a törés jellegét sem befolyásolja. Mind a négy falisztet tartalmazó minta (a-d) ridegen tört el, azaz miután kialakul a repedés (a görbe eléri a maximális erőt), a repedés terjedése már nagyon gyors folyamat, ami gyakorlatilag további energia befektetése nélkül is végbemegy. Az ütészállóság a fraktoszkópiás görbe idő szerinti integrálásával kapható meg. Az első négy görbe alakja hasonló, és a görbék alatti terület mérete közel megegyezik, ez okozza, hogy az ütészállóságban közöttük számottevő különbség nincsen. A falisztet nem tartalmazó kompozit (e) képlékenyen viselkedik, tehát a repedés elindulása után a repedés terjedéséhez is nagy energiát kell befektetni. Ez az elasztomernek köszönhető, mivel a vizsgálat hőmérsékletén nagyrugalmas állapotban van, így a mérés során befektetett energia jelentős része az elasztomer fázis nagy mértékű deformációjára fordítódik. Mind az öt görbe hasonlóan néz ki a repedés elindulásáig, amiből arra következtethetünk, hogy a repedés iniciálásához szükséges energia nem befolyásolja jelentősen az ütészállóságot. Azonban érdemes jobban megvizsgálni a repedés terjesztéséhez szükséges energiát, amit a maximum elérése utáni görbeszakasz integrálásával kaphatunk. Ha az ütészállóságot a

repedésterjesztési energia függvényében ábrázoljuk, akkor látható, hogy van-e kapcsolat a két mennyiség között (11. ábra).



11. ábra A kompozitok ütésállósága a repedésterjesztési energia függvényében.

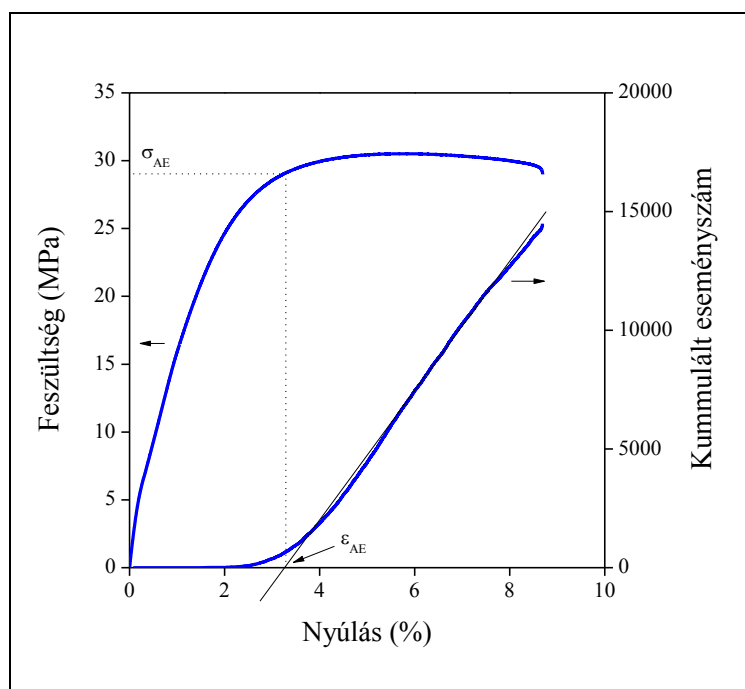
Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

A diagram jól mutatja, hogy van összefüggés a két mennyiség között, a repedésterjesztési energia növelésével növelhető az ütésállóság. Ez a módszer azonban nem ad magyarázatot arra, hogy a különböző szerkezetű kompozitok ütésállósága miért hasonló, holott a szakítóvizsgálat során mért jellemzők különbözőek. Erre a kérdésre adhat választ a lejátszódó mikromechanikai deformációs folyamatok alapos vizsgálata, ami szakítóvizsgálat során akusztikus emisszió mérésével történt.

4.2. Akusztikus emisszió mérése

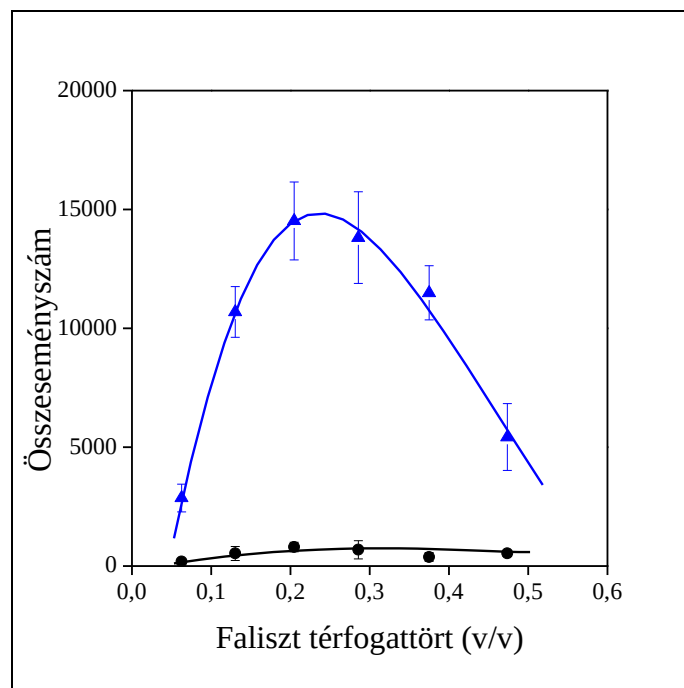
Az AE mérések segítségével meghatározható a kompozitokban lejátszódó mikromechanikai deformációs folyamatok elindulásához szükséges feszültség. Az egyes folyamatokat úgy azonosítottam, hogy a kumulált eseményszám-nyúlás görbe emelkedő szakaszára egy egyenest illesztettem. Ahol ez az egyenes metszi az x tengelyt, azt az értéket vettem karakterisztikus nyúlás értéknek (ϵ_{AE}), azaz ennél a deformációnál indul meg az adott

folyamat. A szakítógörbéről pedig leolvastam az ϵ_{AE} értékhez tartozó feszültség értéket, mely a folyamat elindulásához szükséges karakterisztikus feszültség (σ_{AE}). A 12. ábrán egy PP/EFC (40 m/m%)/EPR/MAPP kompozit AE mérésének eredménye látszik, valamint a karakterisztikus értékek meghatározásának módja. A tengelyek felé mutató két nyíl azt jelzi, hogy az adott görbe melyik tengelyhez tartozik. Jól látszik, hogy körülbelül 3,5% nyúlásnál indul el egy folyamat, amely a szakadásig tart és nagyon sok esemény kíséri. A 3,5%-os nyúláshoz tartozó feszültség 29 MPa, tehát ez a folyamat elindulásához tartozó karakterisztikus feszültség.



12. ábra Feszültség és kumulált eseményszám a nyúlás függvényében, és a karakterisztikus értékek meghatározásának módja. Kompozit: PP/EFC (40 m/m%)/EPR/MAPP

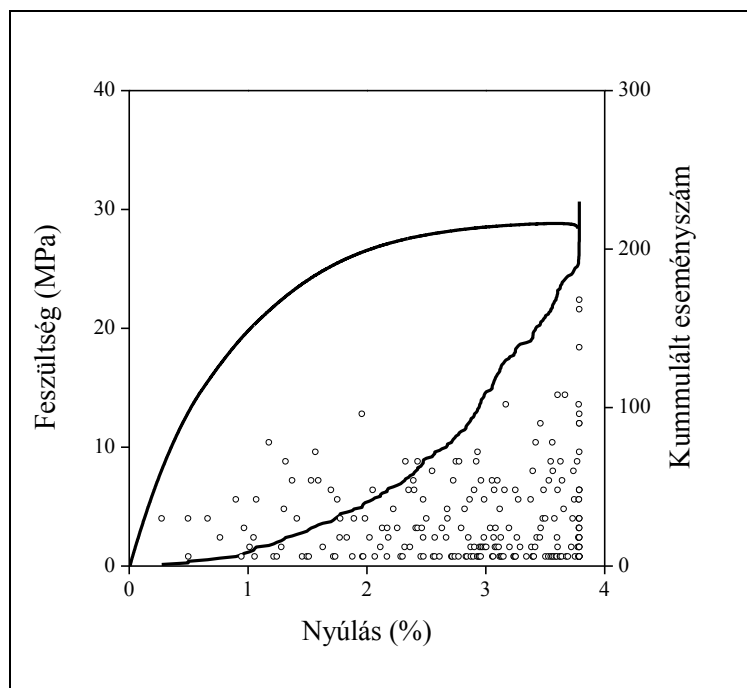
A mechanikai jellemzők vizsgálata során a két típusú faliszt között jól megfigyelhető különbséget tapasztaltam. Ennek a feltételezett oka az, hogy a szemcsék alakú tényezője és mérete különböző. Az AE mérésekből fény derülhet arra, hogy a különböző falisztekhez milyen deformációs mechanizmusok tartoznak. A teljes mérés során regisztrált jelek száma (összeseményszám), a görbék alakja és az egyedi események amplitúdójának nagysága (intenzitása) hordozhat információt. A legnagyobb eltérés a két sorozat között a mérés során regisztrált jelek számában van (13. ábra).



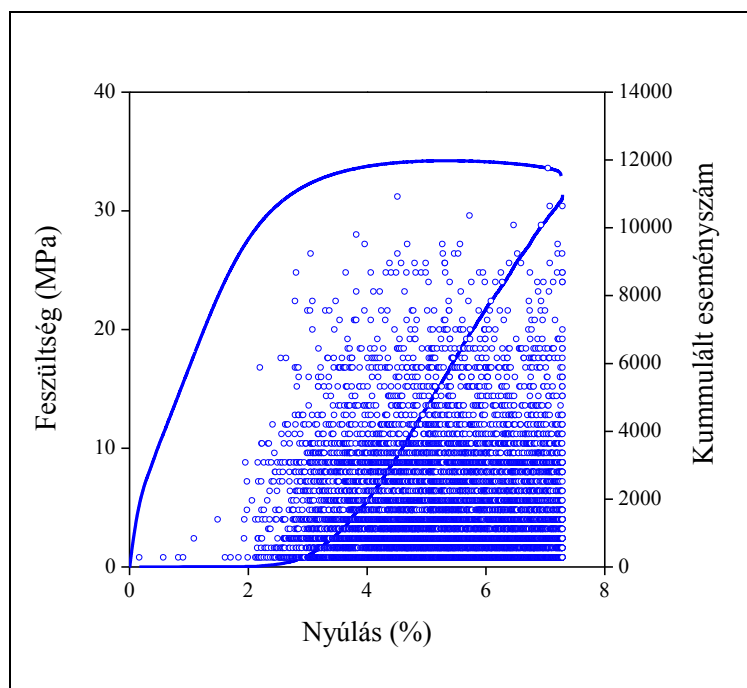
13. ábra AE mérések során regisztrált összeseményszám a faliszt térfogattörtjének függvényében. Jelmagyarázat: ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

Az EFC-vel készített kompozitok vizsgálata során jóval több jelet detektáltam, mint a CW esetén. A különbség valószínűleg annak köszönhető, hogy a különböző falisztet tartalmazó kompozitokban más folyamat a meghatározó a tönkremenetel során. Az EFC-t tartalmazó sorozatban az összeseményszám a faliszt térfogattörtjének függvényében maximumot mutat. Ennek az lehet az oka, hogy a kevés falisztet tartalmazó minták (10-30 m/m%) jóval nagyobb mértékben nyúltak meg, mint több faliszt esetén, így a hosszabb ideig tartott. Nagy faliszt tartalomnál 10%-nál kisebb deformáció értékeknél történt meg a szakadás, tehát nem volt elég idő arra, hogy sok egyedi esemény játszódjon le.

A két faliszt közötti különbséget érdemes tovább vizsgálni egy-egy akusztikus mérés eredményének segítségével (14. és 15. ábrák).



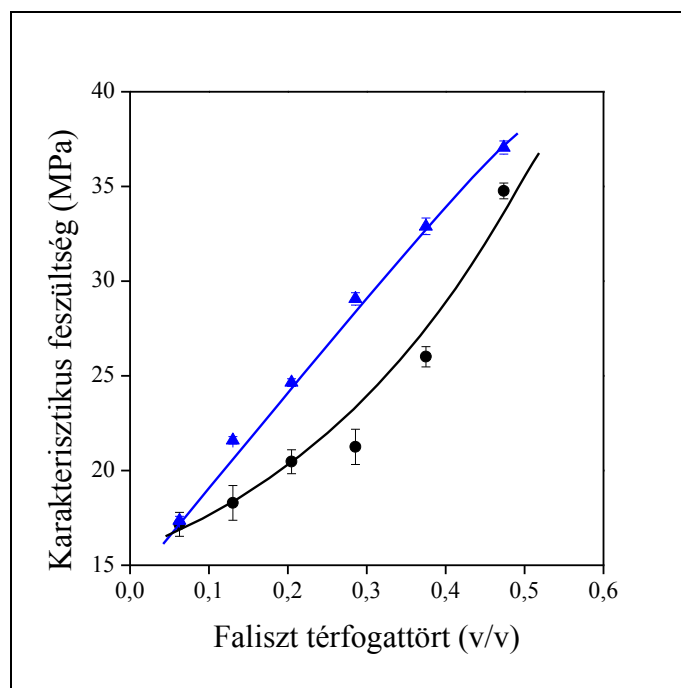
14. ábra PP/ 50 m/m% CW/EPR/MAPP akusztikus mérésének eredménye. Jelmagyarázat:
 — feszültség-nyúlás és kumulált eseményszám-nyúlás görbék, ○ egyedi események



15. ábra PP/ 50 m/m% EFC/EPR/MAPP akusztikus mérésének eredménye. Jelmagyarázat:
 — feszültség-nyúlás és kumulált eseményszám-nyúlás görbék, ○ egyedi események

A két ábrán is jól látható a jelek mennyiségének különbsége. Ezen felül még a jelek intenzitása is eltérő (az ábrákon a körök függőleges helyzete arányos a jel intenzitásával),

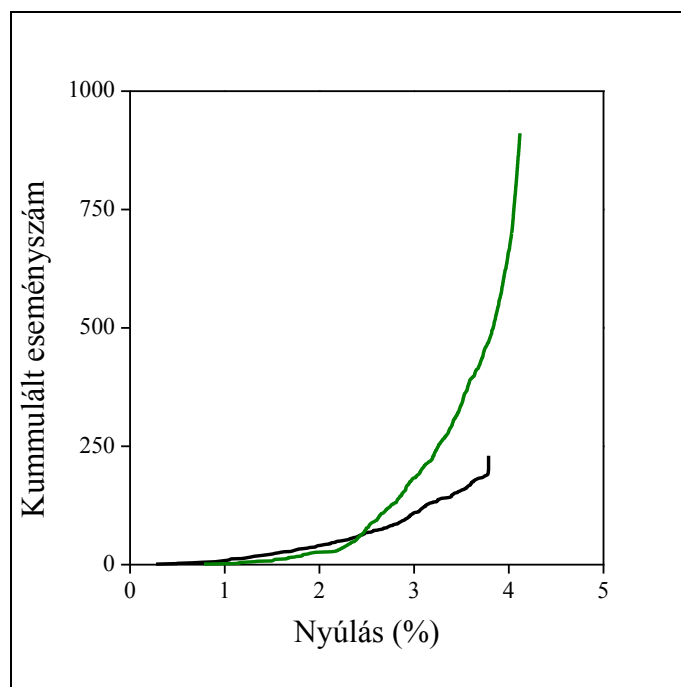
EFC esetén jóval intenzívebb jeleket kaptam, mint a CW-s mintánál. Egy korábbi kutatásban [54] vizsgálták hasonló kompozitok mikromechanikai deformációs folyamatait AE és térfogati deformáció mérésével. Ezek alapján arra jutottak, hogy a nagyszámú, 40 dB-nél nagyobb intenzitású jel a szálak tördelődésére utal, míg a viszonylag kisszámú, gyenge jelek a határfelületek elválásához tartoznak. A kisebb alaki tényezővel rendelkező CW-t tartalmazó kompozitok deformációja során a meghatározó folyamat tehát a határfelületek elválása. Azonban a mérés végén megfigyelhető néhány nagy intenzitású jel is, ami arra utal, hogy néhány faliszt szemcse el is törik a szakadás előtt. Az EFC használata esetén a domináns mikromechanikai deformációs folyamat pedig a száltördelődés, amit a sok intenzív esemény jelez. Ezt a feltételezést támasztja alá a karakterisztikus feszültségek vizsgálata is. A kutatás szerint a száltördelődés elindulásához tartozó karakterisztikus feszültség értéke magasabb a határfelületek elválásához tartozó feszültségnél. A 16. ábrán láthatóak a fenti két sorozat mérései során meghatározott karakterisztikus feszültségek. Az EFC-t tartalmazó minták feszültség értékei minden összetételnél nagyobbak, mint a CW-vel készített kompozitok értékei. Ez igazolja a fenti megállapítást, tehát a nagyobb szemcsemérettel és alaki tényezővel rendelkező EFC-t tartalmazó kompozitok esetében a meghatározó folyamat a száltördelődés. A kisebb méretű és kisebb alaki tényezőjű CW használata esetén pedig a domináns folyamat a határfelületek elválása.



16. ábra Meghatározott karakterisztikus feszültség a faliszt térfogattörtjének függvényében.

Jelmagyarázat: ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP.

A mechanikai vizsgálatok eredményeinek elemzése után felmerülő másik fontos kérdés az volt, hogy különböző faliszt típusok (CW, EFC) és különböző szerkezetek (részben beágyazott, szeparált) esetén miért nincs különbség az ütészállóságok között. A korábbi példák bizonyítják, hogy a deformációs mechanizmus ismerete segíthet rávilágítani a szerkezet és a tulajdonságok közötti összefüggésekre. Azonban nem áll rendelkezésünkre olyan módszer, amellyel törési vizsgálat közben tudnánk azonosítani a deformációs folyamatokat, mivel ebben az esetben a deformáció sebessége 2-3 m/s között van. Viszont nagyobb keresztfej sebességgel végzett AE mérés eredményeiből következtethetünk a törési vizsgálat során lejátszódó folyamatokra. Ezért a PP/CW/EPR/MAPP és PP/CW/MAEPDM sorozatokból végeztem 100 mm/perc keresztfej sebességgel is akusztikus méréseket. A 17. ábrán látható egy PP/50 m/m% CW/EPR/MAPP minta AE mérésének eredménye 5 illetve 100 mm/perc deformáció sebesség esetén.



17. ábra Kummulált eseményszám a nyúlás függvényében, PP/50 m/m% CW/EPR/MAPP, *Jelmagyarázat: — 5 mm/perc keresztfej sebesség, — 100 mm/perc keresztfej sebesség.*

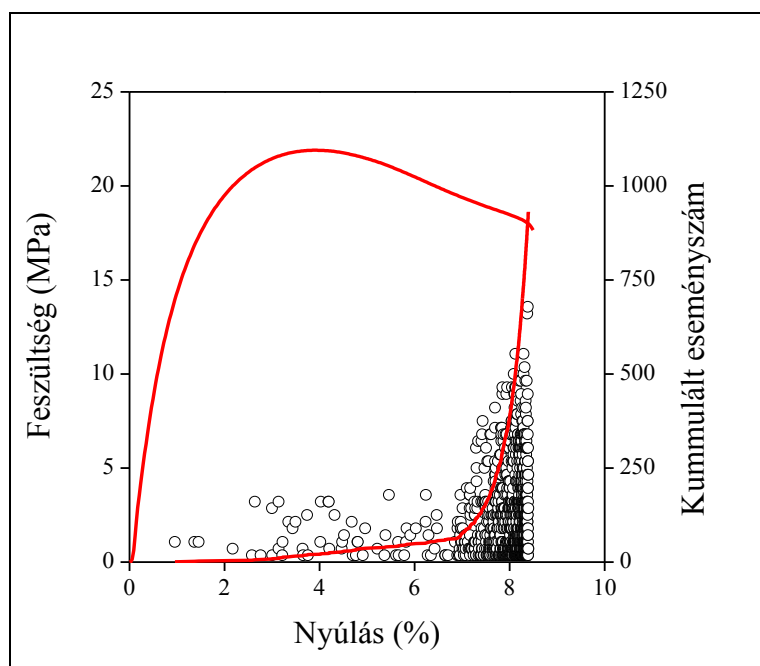
A kummulált eseményszám görbén jól látható a különbség a kétféle sebességgel elvégzett mérés között. Lassabb igénybevétel esetén kevés jel detektálható, tehát a korábban bemutatott mérési eredményhez hasonlóan, itt is a határfelületek elválása a domináns folyamat. Gyorsabb deformáció esetén viszont megváltozik a görbe jellege, a mérés során beérkezett jelek száma körülbelül négyszerese a másik esetben mértnek. Ez a görbe nagyon

hasonlít ahhoz, amit az EFC esetében lehet látni a 15. ábrán, csak a jelek száma kevesebb. Ezek alapján arra lehet következtetni, hogy nagy deformáció sebességnél a szemcsék tördelődése lesz a meghatározó folyamat. A két mérés eltérő eredménye azt bizonyítja, hogy a deformáció mechanizmusa függ az igénybevétel sebességétől is. A 100 mm/perc sebességgel végzett mérés alapján feltételezhető, hogy a törési vizsgálat során is a száltördelődés lesz a meghatározó deformációs folyamat. Tehát a nagyobb sebességű vizsgálat során, a faliszt típusától és méretétől függetlenül, a száltördelődés lesz jellemző és ez okozza a minta tönkremenetelét. A hasonló deformációs mechanizmus magyarázatod az arra, hogy miért nincs számottevő különbség a CW-s és EFC-s sorozatok ütésállósága között.

A mechanikai tulajdonságok és a SEM felvételek elemzése után arra a következtetésre jutottam, hogy EPR és MAPP használata esetén szeparált szerkezet alakul ki a kompozitban, míg MAEPDM alkalmazása részben beágyazott szerkezethez vezet. Azonban az eltérő szerkezetű kompozitok ütésállósága között nem tapasztaltam különbséget. Hogy miért nincs különbség az ütésállóságok között, arra ismét a deformációs mechanizmus megismerése adhat választ. Ezért a PP/CW/MAEPDM sorozat esetén végeztem AE méréseket 5 mm/perc és 100 mm/perc keresztfej sebességgel is. A lassabb vizsgálat esetén a szakadást közvetlenül megelőző jeleken kívül elenyésző számú (30-50 darab) egyedi eseményt észlelt a detektor. Ebből arra következtethetünk, hogy részben beágyazott szerkezet esetén a határfelületek csak kis mértékben válnak el egymástól, és száltördelődés sem figyelhető meg. Ez annak köszönhető, hogy az elasztomer bevonja a szemcséket, így a polimer mátrix és a faliszt közötti kölcsönhatás erőssége csökken. Gyenge kölcsönhatás esetén a faliszt nem hordozza a terhelést, így nem fejt ki erősítő hatást sem. Ezt támasztja alá az is, hogy a folyási feszültség MAEPDM használata esetén nem nő a faliszt tartalom függvényében.

Azonban 100 mm/perc deformáció sebességgel végezve a mérést a görbe alakja és a jelek száma is megváltozik. Egy ilyen mérés eredményét mutatja be a 18. ábra. A mérés során közel 1000 egyedi eseményt regisztráltam, ami lényegesen több az 5 mm/perccel mért néhány jelnél. Ez azt mutatja, hogy gyorsabb deformáció esetén jóval több mikromechanikai deformációs folyamat játszódik le. A kummulált eseményszám görbe kismértékű növekedéssel indul, a mérés elején viszonylag kisszámú, gyenge intenzitású jelet detektáltam. Ez a korábbi feltételezések alapján a határfelületek elválásához köthető. A kompozit tönkremenetelét azonban egy másik folyamat határozza meg, amely a szakadás előtt indul és nagyszámú erős jel kíséri. A görbe végének alakja nagyon hasonlít az EFC-s kompozitok esetén regisztrált görbék alakjára. Ezekből az következik, hogy gyorsabb deformáció esetén

MAEPDM-et tartalmazó kompozitokban is a szálak tördelődése a meghatározó deformációs folyamat, és ez vezet a gyors tönkremenetelhez.

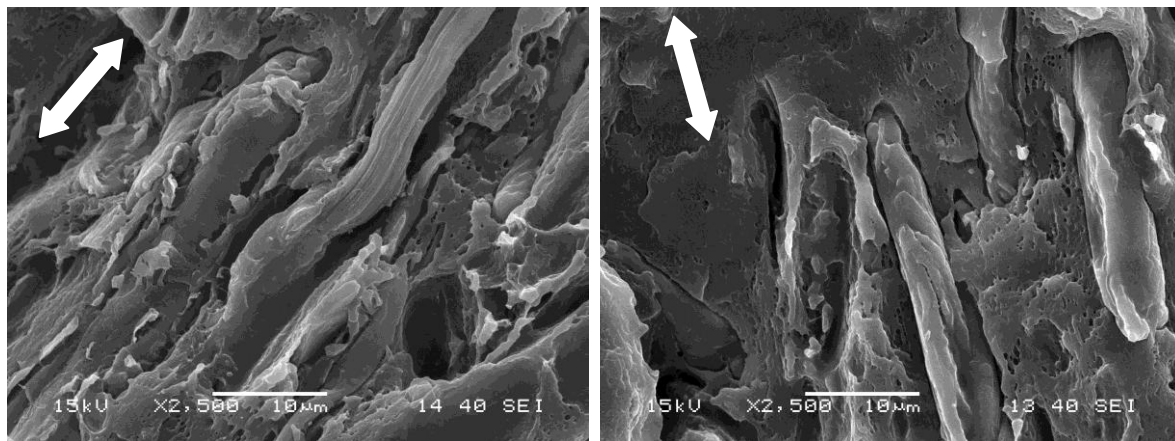


18. ábra PP/ 40 m/m% CW/MAEPDM akusztikus mérésének eredménye. *Jelmagyarázat:*

— feszültség-nyúlás és kumulált eseményszám-nyúlás görbék, ○ egyedi események

Ebben az esetben is kijelenthető, hogy a deformáció mechanizmusa megváltozott az igénybevétel sebességének növelésével. Lassú deformáció sebesség során a beágyazott szerkezet miatt kevés mikromechanikai deformációs folyamat játszódik le, vagy olyan folyamatok zajlanak, amiket ezzel a módszerrel nem tudunk detektálni. De a sebesség növelése esetén fellép a határfelületek elválása, illetve a száltördelődés is. Ez utóbbi okozza a próbatest elszakadását, és valószínűleg a törési vizsgálat alatt is ez a folyamat a meghatározó. Ez megmagyarázza, hogy a különböző szerkezetű kompozitok ütésállósága miért azonos. A törési vizsgálat során annyira nagy a deformáció sebessége, hogy függetlenül attól, hogy szeparált, vagy beágyazott a kompozit szerkezete, a faliszt szemcsék törése lesz a meghatározó folyamat. A faliszt szemcsék mérete mindkét faliszt esetén olyan nagy, hogy az eltörésük ilyen gyors deformációnál könnyen végbemegy. Ez megmagyarázza azt, hogy a kompozitok ütésállósága között miért nem tapasztalható különbség. A 19. ábrán látható SEM felvételekhez a mintákat úgy készítettem, hogy szakítóvizsgálat után egy hosszanti bemetszést alakítottam ki a próbatesteken, majd ennek mentén eltörtem a folyékony nitrogénnel hűtött mintákat. Erre ezért volt szükség, mert pusztán a szakadási felületről készített felvételeken nem látszottak jól a szemcsék, ebben az esetben viszont a szemcsék a felvétel síkjába esnek.

A képeken a nyújtás irányát nyíllal jelöltem. A 100 mm/perc sebességgel elszakított minta szakadási felületéről készített SEM felvételen (19.a) ábra) látszik, hogy néhány szemcse eltört, illetve kismértékű elválás is megfigyelhető. 5 mm/perc sebességgel szakított próbatestek esetén (19.b) ábra) eltört szemcsék nem látszanak, és a határfelületek elválása sem jelentős. Feltehetőleg a beágyazás hatására megváltozik a szemcsék környezetében a feszültség-eloszlás, ami a deformációs mechanizmus megváltozását okozza.



a)

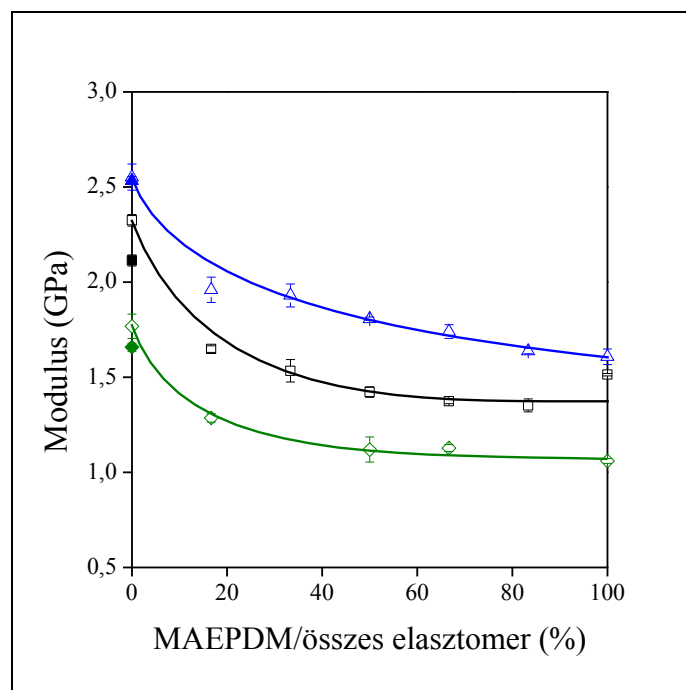
b)

19. ábra A terheléssel párhuzamosan eltört PP/40 m/m% CW/MAEPDM kompozitok törési felületeiről készített SEM felvételek. a) 100 mm/perc illetve b) 5 mm/perc deformáció sebesség

Az AE mérések eredményeiből sikerült a különböző falisztet tartalmazó és különböző szerkezetű kompozitok deformációs mechanizmusaira fényt deríteni. Ez magyarázatot adott arra is, hogy habár a többi mechanikai tulajdonság jelentősen eltér, a kompozitok ütésállósága mégsem különbözik. Az eredmények alapján azt a következtetést vontam le, hogy a kisebb méretű és kisebb alaki tényezővel rendelkező CW-t tartalmazó kompozitokban a domináns mikromechanikai deformációs folyamat a határfelületek elválása. EFC tartalmú kompozitok esetén pedig főként száltördelődés lépett fel. A nagyobb sebességgel végzett AE mérésekből az derült ki, hogy 100 mm/perc sebesség esetén függetlenül a faliszt típusától, vagy az elasztomer hatására kialakult szerkezettől, a száltördelődés a domináns folyamat. Ebből arra lehet következtetni, hogy a jóval gyorsabb törési vizsgálat során is ez a folyamat okozza a próbatestek törését, és az azonos mechanizmus következménye az azonos ütésállóság. Az eredmények azt mutatják, hogy hiába tudjuk a kompozit szerkezetét befolyásolni kapcsolóanyaggal, illetve funkcionális elasztomerrel, az ütésállóságot a szemcse nagy mérete határozza meg.

4.3. Beágyazottság mértékének hatása a tulajdonságokra

A korábbi kutatásokból, és a méréseim eredményeiből kiderült, hogy MAEPDM alkalmazásával részben beágyazott szerkezetet lehet elérni, míg EPR és MAPP használatával szeparált szerkezet hozható létre. A szerkezet és a tulajdonságok közötti kapcsolat alaposabb megismeréséhez készítettem olyan sorozatokat, melyben a beágyazott szemcsék arányának a hatását próbáltam modellezni. 40 m/m% faliszt tartalom mellett a kétféle elasztomer arányát változtattam. A két elasztomer mennyiségének összege állandó volt, hogy az elasztomertartalomban ne legyen különbség. Kapcsolóanyagot nem használtam, hogy ne befolyásolja a beágyazottság mértékét. A tulajdonságok közül főként a merevség és az ütésállóság vizsgálatára összpontosítottam, mivel ez a két jellemző a legfontosabb a WPC-k esetén. Elsőként a kompozitok modulusát ábrázoltam az MAEPDM arányának függvényében (20. ábra).



20. ábra Kompozitok modulusa az MAEPDM arányának függvényében.

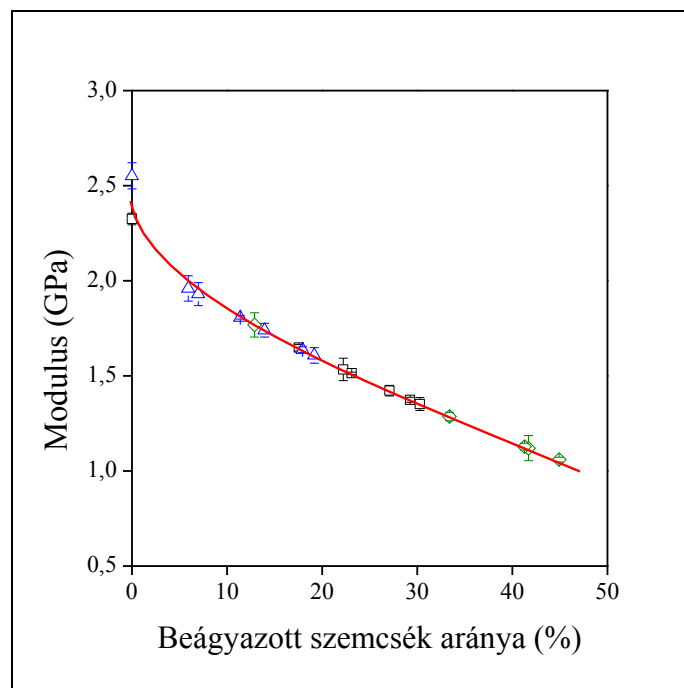
Jelmagyarázat: □ PP/40 m/m% CW/EPR-MAEPDM, △ PP/40 m/m% EFC/EPR-MAEPDM, ◇ PP/40 m/m% UFC/EPR-MAEPDM, a telt jelölők az EPR/MAPP-val készült mintákat jelölik

Feltételezésem szerint az MAEPDM és az összes elasztomer arányával befolyásolható a beágyazottság mértéke, ezért a mérési eredményeket ennek a függvényében ábrázoltam. Az egyes diagramokon telt jelölőkkel jelöltem 0% x értéknél az EPR-t, MAPP-t és 40 m/m%

falisztet tartozó kompozitok értékeit. Ennek segítségével össze lehet hasonlítani a teljesen szeparált szerkezettel rendelkező kompozitok és a beágyazott szerkezetűek tulajdonságait. Illetve érdemes a telt jelölőket a 0 % MAEPDM-et tartalmazó mintákkal összehasonlítani, mivel ez arról ad információt, hogy a kapcsolóanyag (MAPP) jelenléte hogyan befolyásolja a tulajdonságokat.

Először érdemes megfigyelni a kapcsolóanyag jelenlétének hatását a modulus értékére. A 0% MAEPDM-hez tartozó modulus értékét összehasonlítva a telt jelölő által jelzett értékkel, megállapíthatjuk, hogy nincsen jelentős eltérés. Ez igazolja a korábbi megfigyelést [45], mely szerint a határfelületi kölcsönhatások erőssége a merevségetkevessé befolyásolja. Ezen kívül az ábrán jól látható az a tendencia, hogy a modulus értéke az MAEPDM arányával csökken. A beágyazott szerkezet csökkenti a kompozit modulusát, és minél több faliszt szemcse ágyazódik be, a csökkenés annál számottevőbb lesz. Az, hogy a modulus értéke az MAEPDM arányának növelésével csökken, azt igazolja, hogy az MAEPDM arányának változtatásával sikerült a beágyazottság mértékét is befolyásolni. Jól látszik, hogy a modulus csökkenése nem csak az elasztomer típusától, hanem a beágyazottság mértékétől is függ.

A Lewis-Nielsen modell segítségével meghatároztam mindhárom fajta falisztet tartalmazó kompozitokban a beágyazott szemcsék arányát. A beágyazott töltőanyag aránya és a modulus közötti összefüggést mutatja be a 21. ábra. A diagramon látható egyértelmű összefüggés azért hasznos, mert ha egy bizonyos tulajdonságokkal rendelkező kompozitot szeretnénk előállítani, akkor az elkészítés előtt ki lehet számolni, hogy adott merevség eléréséhez mekkora mértékű beágyazottság szükséges. A diagramon jól elkülönülnek a három faliszt pontjai, EFC esetén a legkisebb a beágyazottság mértéke, míg az UFC esetén a legnagyobb, 30-40%-os a beágyazottság. Ez azzal magyarázható, hogy a nagyméretű EFC szemcsékről a feldolgozás közben fellépő nyírás könnyen eltávolítja az elasztomer határréteget, így a szemcsék csak kevessé tudnak beágyazódni. A kisméretű UFC szemcsékre kisebb nyíróerők hatnak a feldolgozás közben, így nagyobb mértékű beágyazódás tud kialakulni.



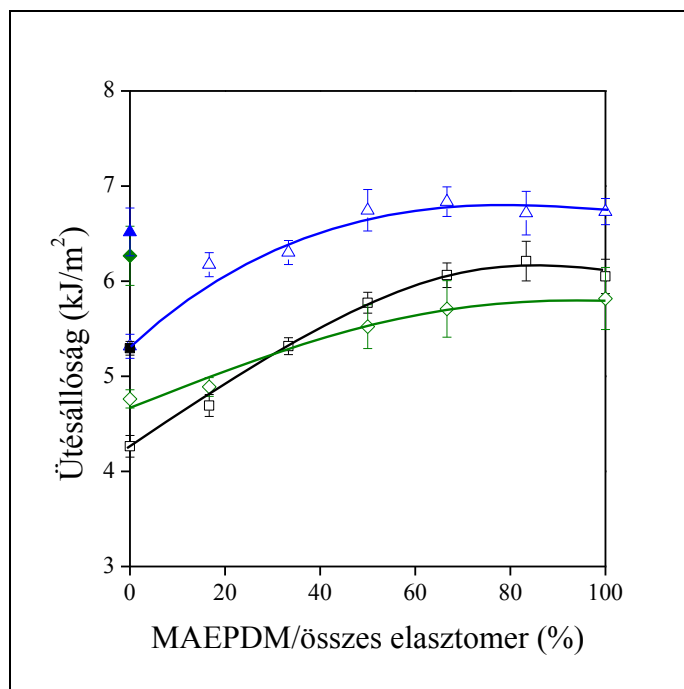
21. ábra A mért modulus értékek a beágyazott szemcsék arányának függvényében.

Jelmagyarázat: □ PP/40 m/m% CW/EPR-MAEPDM, △ PP/40 m/m% EFC/EPR-MAEPDM,
◇ PP/40 m/m% UFC/EPR-MAEPDM

A másik fontos tulajdonság, melyet befolyásolhat a beágyazottság mértéke az az ütésállóság. Habár az előző részben készített kompozitok ütésállósága között nem volt különbség, érdemes megvizsgálni a beágyazottság mértékének hatását, illetve azt, hogy az MAPP használata nélkül EPR-rel készült kompozit milyen ütésállósággal rendelkezik. A 22. ábrán a kompozitok ütésállósága látható a MAEPDM arányának függvényében.

Ha összehasonlítjuk a kapcsolóanyagot tartalmazó és nem tartalmazó kompozitokat, akkor itt jóval nagyobb különbséget láthatunk, mint a merevség esetén. Az MAPP jelenléte 20-50%-kal növelte meg a kompozit ütésállóságát, a faliszt típusától függően. Ez jól jelzi a határfelületi kölcsönhatások erősségének fontosságát. EPR alkalmazása esetén mindig érdemes MAPP-t is használni, mivel a kapcsolóanyag jelenléte a merevséget nem csökkenti, a szilárdságot és az ütésállóságot viszont jelentős mértékben növeli. A beágyazottság mértékének növelésével a kompozitok ütésállósága növekszik. Ez ellentmond annak a következtetésnek, amit az AE mérések alapján vontam le, hogy az ütésállóság szempontjából nem a szerkezet a meghatározó. Azonban figyelembe kell venni azt, hogy ennek a sorozatnak a készítése során kapcsolóanyagot nem használtam. Ez valószínűleg módosítja a deformációs mechanizmust is, mivel gyenge szemcse-mátrix kölcsönhatás esetén a határfelületek elválása

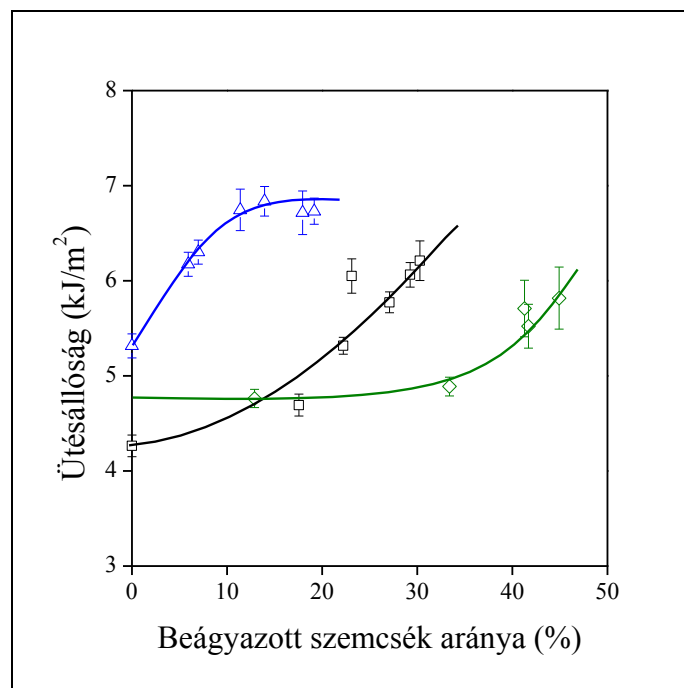
nagyon könnyen végbe mehet. Az ütésállóság közötti különbséget ebben az esetben valószínűleg a különböző deformációs mechanizmus okozza és nem a kompozitok szerkezete közti eltérés.



22. ábra Kompozitok ütésállósága az MAEPDM arányának függvényében.

Jelmagyarázat: □ PP/40 m/m% CW/EPR-MAEPDM, △ PP/40 m/m% EFC/EPR-MAEPDM, ◇ PP/40 m/m% UFC/EPR-MAEPDM, a telt jelölők az EPR/MAPP-val készült mintákat jelölik

A fenti megállapítást bizonyítja az is, hogy az EPR-t és MAPP-t is tartalmazó (szeparált szerkezetű) kompozit ütésállósága nem különbözik jelentősen a csak MAEPDM-et tartalmazó (részben beágyazott szerkezetű) kompozitétól. Tehát azonos deformációs mechanizmus szerkezettől függetlenül azonos ütésállóságot eredményez, a 22. ábrán látható különbséget pedig az okozza, hogy a beágyazottság mértékének növelésével változik a kompozit deformációs mechanizmusa. Gyenge határfelületi kölcsönhatások esetén a határfelületek elválása könnyebben megy végbe, mint a száltördelődés, így a törés hamarabb bekövetkezik. Ez a változás megfigyelhető a 23. ábrán is, ahol az ütésállóságot a beágyazott szemcsék arányának függvényében ábrázoltam. A beágyazott szemcsék esetén valószínűleg kisebb mértékben lép fel a határfelületek elválása, mivel erősen vannak kötve az elasztomerhez. A beágyazottság növelése ezért megváltoztatja a domináns folyamatot, ami az ütésállóság növekedéséhez vezet. Az UFC kis ütésállósága annak köszönhető, hogy a kis szemcseméret miatt nagy volt az aggregáció mértéke.

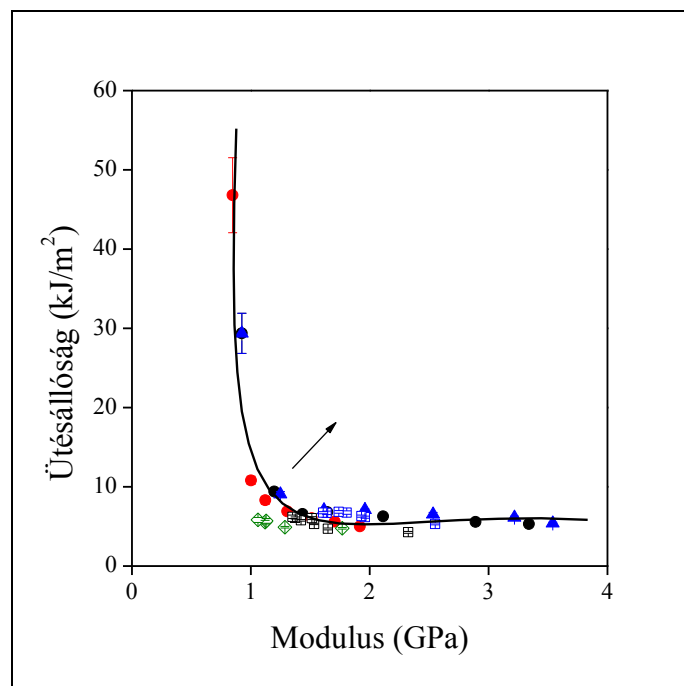


23. ábra Ütésállóság a beágyazott szemcsék arányának függvényében.

Jelmagyarázat: □ PP/40 m/m% CW/EPR-MAEPDM, △ PP/40 m/m% EFC/EPR-MAEPDM,
 ◇ PP/40 m/m% UFC/EPR-MAEPDM

A vizsgálatok alapján megállapítható az, hogy a beágyazottság mértéke befolyásolja a kompozit merevségét is és ütésállóságát is. A modulus a beágyazott szemcsék arányával egyértelműen csökken, míg az ütésállóság növekszik. De fontos kiemelni azt, hogy erős határfelületi kölcsönhatások esetén (EPR és MAPP használatával) a modulus értéke jóval nagyobb, mint beágyazott szerkezet esetén (MAEPDM alkalmazásával) és az ütésállóságok között nincsen jelentős különbség.

Szerkezeti anyagok esetén a gyártók célja olyan kompozit létrehozása, mely egyszerre rendelkezik jó merevséggel és elfogadható ütésállósággal. A PP/falaszt/elasztomer rendszerek kapcsán a várakozás az, hogy a falaszt növelje a kompozit merevségét, míg az elasztomer kompenzálja a falaszt miatti ütésállóság-csökkenést. Hogy a két tulajdonságot egy ábrán lehessen szemléltetni, a kompozitok jellemzésére gyakran ábrázolják az ütésállóságot a modulus függvényében. Az általam készített összes kompozitok jellemzésére is ezt az ábrázolásmódot használtam a 24. ábrán.



24. ábra A kompozitok ütésállósága a merevségük függvényében.

Jelmagyarázat: ● PP/CW/MAEPDM, ● PP/CW/EPR/MAPP, ▲ PP/EFC/EPR/MAPP,

□ PP/40 m/m% CW/EPR-MAEPDM, ▲ PP/40 m/m% EFC/EPR-MAEPDM,

◇ PP/40 m/m% UFC/EPR-MAEPDM

Jól látható, hogy az összes általam készített kompozit a berajzolt görbére esik. Abban az esetben, ha a modulus nagy érték, az ütésállóság alacsony. Ha pedig jó a kompozit ütésállósága, akkor a merevség nem megfelelő. Ez a tendencia figyelhető meg a többi műanyag esetén is, a fejlesztések célja pedig az, hogy a jelzett nyíl irányába haladjanak a tulajdonságok. Viszont a mérési eredmények azt mutatják, hogy ha van faliszt a kompozitban, akkor 10 kJ/m²-es ütésállóságnál jobbat nem érdemes várni. Ez annak köszönhető, hogy a tönkremenetel során a meghatározó folyamat a szemcsék törése. Tehát hiába alkalmaztam elasztomereket, ennél az értéknél magasabb ütésállóságot a nagyméretű szemcsék törése miatt nem tudtam elérni.

5. Összefoglalás

A kutatásom során számos fontos megállapításra jutottam a PP/faliszt/elasztomer kompozitok szerkezete, deformációs mechanizmusa és tulajdonságai kapcsán. Az eredmények igazolták, hogy a korábbi próbálkozásokkal ellentétben, sikerült beágyazott szerkezetet létrehozni funkcionális elasztomer (MAEPDM) alkalmazásával. Ezt alátámasztották a mért mechanikai tulajdonságok, a Lewis-Nielsen modell alapján számolt értékek és a SEM felvételek is. Ez utóbbi azért lényeges, mert a beágyazott szerkezet megváltoztatja a faliszt szemcsék körüli feszültség-eloszlást, ami kihat a kompozit makroszkopikus tulajdonságaira. A mechanikai tulajdonságok alapján bizonyítottam, hogy megfelelő kapcsolóanyag (MAPP) használatával szeparált szerkezet alakítható ki. Ezt a feltételezést szintén igazolták a modell segítségével végzett számítások, és a kompozitok szerkezetéről készült felvételek is.

A funkcionális elasztomer arányának változtatásával sikerült a beágyazás mértékét is szabályoznom. A beágyazás mértékének megváltozásával pedig változnak a kompozitok tulajdonságai, például a merevség, a folyási feszültség és az ütésállóság. A beágyazott szemcsék arányának növelésével csökken a kompozitok merevsége és nő az ütésállósága. Viszont szeparált szerkezet esetén is sikerült hasonló ütésállóságot elérni, mint beágyazott szerkezet esetében, és a szeparált szerkezetű kompozitok merevsége jóval nagyobb a beágyazott esetnél.

A munkám legfontosabb eredménye, hogy összefüggést találtam az igénybevétel sebessége és a kompozitokban lejátszódó domináns deformációs mechanizmus között. Kis deformáció sebességnél a meghatározó deformációs folyamat a faliszt elválása, míg nagyobb sebesség esetén a terhelést viselő szálak tördelődése dominál. Tehát törési vizsgálat során a kompozit tönkremenetelét a szemcsék nagy mérete és kis szilárdsága miatti tördelődés okozza. Arra a következtetésre jutottam, hogy a faliszt szemcsék szilárdsága limitálja a PP/faliszt/elasztomer kompozitok ütésállóságát.

A deformációs mechanizmusok elemzése alapján az ütésállóságot nem az elasztomer módosításával lehet befolyásolni, hanem a szemcse szilárdságát kell növelni. További munkák célja lehet olyan természetes szálak hatását vizsgálni, melyek nagyobb szilárdsággal rendelkeznek az általam használt faliszteknél.

6. Köszönetnyilvánítás

Szeretném megköszönni a témavezetőimnek, Renner Károlynak és Móczó Jánosnak a segítséget és a sok hasznos tanácsot, mellyel segítettek a munkám során. Hálás vagyok a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Műanyag- és Gumiipari Laboratóriumában dolgozó összes embernek az ötletekért, segítségért és biztatásért, amit az elmúlt másfél év alatt kaptam tőlük. Külön köszönöm Hári Józsefnek a SEM felvételek elkészítésében nyújtott segítséget valamint azt, hogy bármilyen probléma esetén fordulhattam hozzá. Link Zoltánnak szeretném megköszönni a fröccsöntés során nyújtott segítségét. Köszönöm továbbá a családomnak, páromnak és barátaimnak a támogatást, ami nélkül ez a dolgozat nem születhetett volna meg.

7. Rövidítések jegyzéke

A dolgozatban gyakran használt rövidítések:

PP	polipropilén
EPR	etilén-propilén kopolimer elasztomer
MAEPDM	maleinsav-anhidriddel ojtott etilén-propilén-dién terpolimer elasztomer
MAPP	maleinsav-anhidriddel ojtott polipropilén kapcsolóanyag
EFC	Filtracel EFC 1000 típusú faliszt
CW	Arbocel CW 630 típusú faliszt
UFC	Arbocel UFC M8 típusú faliszt

8. Irodalomjegyzék

1. Afrifah, K. A., Matuana, L. M., *Macromol. Mater. Eng.* **295**, 802-811 (2010)
2. Alexandre, M., Dubois, P., *Mater. Sci. Eng.* **28**, 1-63 (2000)
3. Buzási Lajosné, *Műanyag és Gumi* **49**, 241-249 (2012)
4. Joshi, S. V., Drzal, L.T., Mohanty, A.K., Arora, S., *Composites A* **35**, 371-376 (2004)

5. Eichhorn, S. J., Baillie, C. A., Zafeiropoulos, N., Mwaikambo, L. Y., Ansell, M. P., Dufresne, A., Entwistle, K. M., Herrera-Franco, P. J., Escamilla, G. C., Groom, L., Hughes, M., Hull, C., Rials, T. G., Wild, P. M, *J. Mater. Sci.* **36**, 2107-2131 (2001)
6. Bourmaud, A., Pimbert, S., *Composites A39*, 1444-1454 (2008)
7. Clemons, C. M., *Natural Fibers*, in *Functional Fillers for Plastics*, Xantos, M. (szerk.), Wiley-VCH: Weinheim (2010), pp. 213-223
8. Pettersen, R.C., *The chemical composition of wood*, in *The chemistry of solid wood*, Rowell, R.M. (szerk.), American Chemical Society (1984), pp. 57-126
9. Popescu, C.-M., Singurel, G., Popescu, M.-C., Vasile, C., Argyropoulos, D. S., Willför, S., *Carbohydr. Polym.* **77**, 851-857 (2009)
10. Agnantopoulou, E., Tserki, V., Marras, S., Philippou, J., Panayiotou, C., *J. Appl. Polym. Sci.* **126**, E272-E280 (2012)
11. Polec, I., Hine, P. J., Bonner, M. J., Ward, I. M., Barton, D. C., *Compos. Sci. Technol.* **70**, 45-52 (2010)
12. Bledzki, A. K., Gassan, J., *Prog. Polym. Sci.* **24**, 221-274 (1999)
13. Renner, K., Kenyó, Cs., Móczó, J., Pukánszky, B., *Composites A41*, 1653-1661 (2010)
14. Pukánszky, B., *Composites 21*, 255-262 (1990)
15. Gassan, J., Gutowski, V. S., Bledzki, A. K., *Macromol. Mater. Eng.* **283**, 132-139 (2000)
16. Gouanvé, F., Marais, S., Bessadok, A., Langevin, D., Morvan, C., Métayer, M., *J. Appl. Polym. Sci.* **101**, 4281-4289 (2006)
17. Kiss, A., Fekete, E., Pukánszky, B., *Compos. Sci. Technol.* **67**, 1574-1583 (2007)
18. Freire, C. S. R., Silvestre, A. J. D., Neto, C. P., Belgacem, M. N., Gandini, A., *J. Appl. Polym. Sci.* **100**, 1093-1102 (2006)
19. Dominkovics, Z., Dányádi, L., Pukánszky, B., *Műanyag és Gumi 43.*, 517-523 (2006)
20. Oksman, K., Clemons, C., *J. Appl. Polym. Sci.* **67**, 1503-1513 (1998)
21. Wong, K. H., Syed Mohammed, D., Pickering, S. J., Brooks, R., *Compos. Sci. Technol.* **72**, 835-844 (2012)
22. Dányádi, L., Móczó, J., Pukánszky, B., *Composites A41*, 199-206 (2010)
23. Karsli, N. G., Aytac, A., *Mater. Des.* **32**, 4069-4073 (2011)
24. Liu, W., Misra, M., Askeland, P., Drzal, L. T., Mohanty, A. K., *Polymer.* **46**, 2710-2721 (2005)
25. Dányádi, L., Janecska, T., Szabó, Z., Nagy, G., Móczó, J., Pukánszky, B., *Compos. Sci. Technol.* **67**, 2838-2846 (2007)
26. Nielsen, L. E., *Mechanical Properties of Polymers and Composites*, Marcel Dekker, New York (1974)
27. Zhang, G., Rasheva, Z., Schlarb, A. K., *Wear* **268**, 893-899 (2010)
28. Fu, S.-Y., Lauke, B., *Compos. Sci. Technol.* **56**, 1179-1190 (1996)
29. Bucknall, C. B., *Toughened Plastics*, Applied Science Publishers, London (1977)
30. Pukánszky, B., Vörös, G., *Compos. Interfaces 1*, 411-427 (1993)
31. Pukánszky, B., Es, M., Maurer, F. H. J., Vörös, G., *J. Mater. Sci.* **29**, 2350-2358 (1994)
32. Parsons, E. M., Boyce, M. C., Parks, D. M., Weinberg, M., *Polymer* **46**, 2257-2265 (2005)

33. Parsons, E., Boyce, M. C., Parks, D. M., *Polymer* **45**, 2665-2684 (2004)
34. Jerabek, M., Major, Z., Renner, K., Móczó, J., Pukánszky, B., Lang, R. W., *Polymer* **51**, 2040-2048 (2010)
35. Renner, K., Yang, M. S., Móczó, J., Choi, H. J., Pukánszky, B., *Eur. Polym. J.* **41**, 2520-2529 (2005)
36. Szűcs, P.: *Az akusztikus emisszió, mint szilárdtestfizikai jelenség és mint roncsolásmentes anyagvizsgálati módszer*, Tribológiai Szakmérnök képzés, 1993. november 3., Veszprém
37. Karger-Kocsis, J., Harmia, T., Czigány, T., *Compos. Sci. Technol.* **54**, 287-298 (1995)
38. Haselbach, W., Lauke, B., *Compos. Sci. Technol.* **63**, 2155-2162 (2003)
39. Sudár, A., Renner, K., Móczó, J., Pukánszky, B., *Műanyag és Gumi* **47**, 197-200 (2010)
40. Premphet, K., Horanont, P., *J. Appl. Polym. Sci.* **74**, 3445-3454 (1999)
41. Pukánszky, B., Turcsányi, B., Tüdős, F., Kolarik, J., Lednický, F., *Magyar Kémiai folyóirat* **94**, 109-115 (1988)
42. Pukánszky, B., Tüdős, F., Kolárik, J., Lednický, F., *Polym. Compos.* **11**, 98-104 (1990)
43. Pukánszky, B., *Particulate filled polypropylene: structure and properties*, in *Polypropylene: Structure, Blends and Composites*, Vol. 3, Karger-Kocsis, J. (szerk.), Chapman and Hall, London (1995), pp. 1-70
44. Kazayawoko, M., Balatinecz, J. J., Matuana, L. M., *J. Mater. Sci.* **34**, 6189-6199 (1999)
45. Molnár, Sz., Pukánszky, B., Hammer, C. O., Maurer, F. H. J., *Polymer* **41**, 1529-1539 (2000)
46. Clemons, C., *Composites A* **41**, 1559-1569 (2010)
47. Hristov, V. N., Lach, R., Grellmann, W., *Polym. Test* **23**, 581-589 (2004)
48. Bledzki, A. K., Faruk, O., *Polym.-Plast. Technol. Eng.* **43**, 871-888 (2004)
49. Keledi, G., Sudár, A., Burgstaller, C., Renner, K., Móczó, J., Pukánszky, B., *Express Polym. Lett.* **6**, 224-236 (2012)
50. Zebajad, S. M., Tahani, M., Sajjadi, S. A., *J. Mater. Process. Technol.* **155-156**, 1459-1464 (2004)
51. Hiljanen-Vainio, M., Heino, M., Seppala, J. V., *Polymer* **39**, 865-872 (1998)
52. Morreale, M., Scaffaro, R., Maio, A., La Mantia, F. P., *Composites A* **39**, 503-513 (2008)
53. Smith, A. P., Shay, J. S., Spontak, R. J., Balik, C. M., Ade, H., Smith, S. D., Koch, C. C., *Polymer* **41**, 6271-6283 (2000)
54. Dányádi, L., Renner, K., Móczó, J., Pukánszky, B., *Polym. Eng. Sci.* **47**, 1246-1255 (2007)