

Uyumsuzluk Giderici Kullanımının Mikrokrystalen Selüloz ve Nanokil Esaslı Yüksek Yoğunluklu Polietilen Kompozitlerin Mekanik Özellikleri Üzerine Etkileri

Sevda Boran¹

¹Karadeniz Teknik Üniversitesi, Of Teknoloji Fakültesi, Ağaçışleri Endüstri Mühendisliği Bölümü, Trabzon.
e-posta: sevdaboran@gmail.com

Geliş Tarihi: 19.04.2016; Kabul Tarihi: 31.08.2016

Özet

Anahtar kelimeler

Mikrokrystalen selüloz; Nanokil; Mekanik özellikler; Uyumsuzluk giderici

Nanokil ve mikrokrystalen selülozun (MCC) polimer matrisi içerisinde etkili bir şekilde dağılımını sağlamak için maleik anhidrit graflanmış polietilen (MAPE) uyumsuzluk giderici olarak kullanılmıştır. PE-g-MA ilaveli MCC ve nanokil esaslı yüksek yoğunluklu polietilen (YYPE) kompozitler tek vidalı ekstruder, genişlemeli akışlı karıştırıcı ve masterbatch yöntemi ile üretilmişlerdir. MCC ve nanokil ilaveli yüksek yoğunluklu polietilen (YYPE) kompozitlerin çekme, eğilme ve darbe dayanımı özellikleri belirlenmiştir. MCC ilaveli yüksek yoğunluklu polietilen (YYPE) kompozitlerle karşılaştırıldığında, nanokil ilaveli yüksek yoğunluklu polietilen kompozitlere uyumsuzluk gidericinin ilavesi ile daha yüksek çekme ve eğilme direnci değerleri bulunmuştur. En yüksek çekme ve eğilme direnci değerleri %4 PE-g-MA ilaveli MCC esaslı YYPE kompozitinden elde edilmiştir.

The Effects on The Mechanical Properties of The Usage of Coupling Agent into Polyethylene Composites Reinforced with Microcrystalline Cellulose and Nanoclay

Abstract

Keywords

Microcrystalline cellulose; Nanoclay; Mechanical properties; Coupling agent

PE-grafted maleic anhydride (PE-g-MA) was used as a compatibilizer to enhance dispersion of nanoclay and microcrystalline cellulose in the PE matrices. Microcrystalline cellulose (MCC) and nanoclay based high density polyethylene (HDPE) composites with coupling agent (PE-g-MA) were produced by using a combination of single screw extruder (SSE) and extensional flow mixer and masterbatch method. The tensile, flexural and impact properties were investigated to compare material behavior of the MCC-filled HDPE composites and nanoclay-filled HDPE composites. The addition of coupling agent to nanoclay filled HDPE composites resulted in higher tensile and flexural strength values compared with MCC filled HDPE composites. The maximum tensile and flexural strength values were obtained from 4%PE-g-MA for MCC filled HDPE composites.

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

1. Giriş

Kompozit malzemeler inşaat, otomotiv, elektronik ve havacılık gibi birçok alanda yaygın bir şekilde kullanılmakta olup, kompozit malzemelerin bu kullanım yerlerinde yüksek mukavemet, hafiflik, sağlamlık, esneklik, dış hava koşullarına dayanıklılık, darbe dayanımı, çatlama, eğilme ve minimum

maliyet gibi birçok özelliği karşılayacak nitelikte olması istenmektedir (Bulut and Erdoğan 2011, Mohanty *et al.* 2000). Son zamanlarda kompozit malzemelerde yenilenebilir kaynakların kullanımı çevresel faktörler ve maliyet gibi faktörler nedeniyle endüstride yaygın hale gelmiştir (Donmez Cavdar *et al.* 2013). Otomobil ve yapı endüstrisi, düşük yoğunluğun yanı sıra daha iyi

mekanik ve termal özellikler elde etmek için düşük yoğunluklu ve ucuz katkı maddelerinin kullanmasını öngörmektedirler (Kiziltas *et al.* 2013). Dünyada çevresel bilincin ortaya çıkmasıyla cam, karbon, aramid esaslı polyester, epoksi, poliüretan içeren kompozitlerin üretimi yerine doğal lif esaslı kompozitlerin üretilmesinin ve kullanımının gerekli olduğu anlayışı yapılan çalışmalarla kabul görmüştür (Ozen *et al.* 2013). Yenilenebilir biyokütleden elde edilen selüloz nanofibriller de (mikrokristalen selüloz, selüloz nanolif, bakteriyel selüloz) kompozit materyallerine mikro boyutta ilave amaçlı olarak kullanılmaktadır (Joonobi *et al.* 2010). Günümüzde inorganik dolgu maddeleri (cam ve karbon fiber gibi) ile karşılaştırıldıklarında düşük yoğunlukları, yenilenebilir olması, düşük fiyatı, malzeme prosesinde aşınma olmaması, reaktif yüzeyi nedeniyle polimer matrisinde selüloz kullanımı yaygın bir şekilde artmaya başlamıştır (Kiziltas *et al.* 2010). Farklı selülozik malzemelerden elde edilen mikrokristalen selüloz (MCC) ise yüksek spesifik yüzey alanına sahiptir ve polistiren, polietilen, polipropilen, polietilen tereftalat gibi polimerlere ilave edilerek kullanılmaktadır (Mathew *et al.* 2005, Spoljaric *et al.* 2009, Kiziltas *et al.* 2010, Haafiz *et al.* 2013).

Kompozitlerdeki selüloz gibi doğal lif bileşenleri hidrofilik, plastik ise hidrofob özelliğe sahip olduğundan iki farklı malzeme arasındaki arayüzey bağlanmayı geliştirmek üzere matris ve ilave edilen malzeme arasında kimyasal bir köprü oluşturmak için uyumsuzluk giderici kimyasalların kullanılması gerekmektedir. Uyumsuzluk giderici kimyasal maddenin amacı polimer matrisi içersine ilave edilen madde ile polimer arasında kimyasal bir bağın oluşmasını sağlamaktır. Polietilen esaslı kompozitlerde en çok kullanılan uyumsuzluk giderici kimyasal maleik anhidrit içeren graftlanmış kopolimerlerdir. Polietilen graft maleik anhidrit (MAPE) lignoselülozik lif yüzeyindeki hidroksil grubu ile reaksiyona girmekte ve ester bağı oluşturmaktadır. Bu reaksiyonlar kompozitlerin

fiziksel ve mekanik özelliklerinin iyileşmesini sağlamaktadır (Lu *et al.* 2005, Liu *et al.* 2013, Maiottti *et al.* 2014). MCC liflerinin hidrofilik özelliğinden dolayı nonpolar ve hidrofobik özellikteki polimer matrisi arasındaki uyumsuzluğun bazı kimyasallar kullanılarak azaltılabildiği bazı araştırmacılar tarafından da belirlenmiştir (Qiu *et al.* 2006, Sun *et al.* 2014, Ifuku *et al.* 2015, Zulkifli *et al.* 2015).

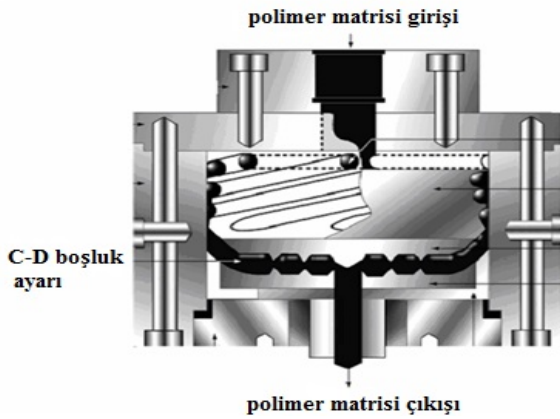
Termoplastik kompozitlerin kullanım alanlarına bağlı olarak istenilen özellikleri karşılayabilmesi için polimer matrisine lif esaslı malzemelerin yanı sıra kil gibi malzemeler de ilave edilerek kompozitlerin mekanik özelliklerinin artırıldığı bilinmektedir (Park *et al.* 2003, Chan *et al.* 2011). Nanoboyutta kil ilaveli kompozitlerde de polimerin kilin birim hücre aralığına çok giremediği bilinmektedir (Şen *et al.* 2010). Nanokilin polimer matrisi içerisinde etkili bir şekilde dağılmasını sağlamak için de uyumsuzluk giderici kimyasallar kullanılmakta olup, bu çalışmada uyumsuzluk giderici kimyasal oranının MCC ve nanokil esaslı termoplastik kompozitlerinin mekanik özellikleri üzerine etkileri araştırılmıştır.

2. Materyal ve Metot

Bu çalışmada yüksek yoğunluklu polietilen (YYPE) (Equistar) maleik anhidrit graftlanmış polietilen (MAPE) (Polybond) kullanılmıştır. Mikrokristalen selülozun partikül boyutu 40 µm'dir (J. Rettenmaier&Sohne (JRS)). Nanokil ilaveli kompozitler için Nanomer I44P kullanılmıştır (Nanocor). Bu materyallere ait özellikler Tablo 1'de verilmektedir.

2.1. Kompozitlerin üretimi

Kompozitlerin üretimi için önce masterbatch yöntemi uygulanmış, ardından polimere yapılan ilavelerin polimer matrisi içerisinde daha homojen dağılmasını sağlamak amacıyla genişlemeli akışlı karıştırıcı (extensional flow mixer) -EFM) olarak adlandırılan bir alet tek vidalı ekstruderun çıkışına eklenerek üretimler tamamlanmıştır. EFM Şekil 1'de görülmektedir. EFM'nin polimer matrisi üzerindeki etkinliği, içerisinde yer alan yakınsak ve ıraksak plakalar (C-D) arasındaki boşluklara müdahale edilerek ayarlanabilmektedir (Tanoue and Lemoto 2003). Polimer matrisi içerisindeki ilavelerin etkili bir şekilde dağılımlarını sağlayabilmek oldukça zordur (Li *et al.* 2007) Yapılan çalışmalar EFM'nin kullanımıyla bu problemin azaldığını ortaya koymuştur (Utracki, 1998, Tokihisa *et al.* 2006).



Şekil 1. Genişlemeli akışlı karıştırıcı (EFM) ((Tanoue and Lemoto 2003).

2.1.1. Masterbatch yöntemi

MCC ve YYPE %1'den daha az nem içeriğine sahip olacak şekilde en az 16 saat boyunca 80°C'de kurutulmuştur. İlk adımda, %50 MCC içeren masterbatch ürünü eldesi için YYPE ve MCC ile karıştırma ünitesine sahip C.W. Brabender Pre-mixer® kullanılmıştır. Bu karıştırıcıda ilk olarak YYPE besleme hunisinden koyulmuştur, 5 dk süre

Tablo 1. Materyallerin özellikleri

Materyal	Çap (µm)	Erime akış indeksi (g/10 min)	Yoğunluk (g/cm ³)	Erime noktası (°C)
MCC	40	-	1.56	-
YYPE	300-500	5	0.95	128
Nanomer I44P	15-20	-	-	-
PE-g-MA	-	4	0.96	130

karıştırılmaya devam edilmiş olup bu süre sonunda MCC yavaşça yan besleme kısmından eriyen YYPE'ye ilave edilmiştir. 5 dk daha karıştırma işleminden sonra termal karıştırıcı kapatılarak masterbatch ürünü sistemden alınmıştır. İkinci adımda MCC %4 oranında olacak şekilde hesaplanarak EFM ilaveli tek vidalı ekstruderda (Davis-Standard) üretim gerçekleştirilmiştir. Ön denemeler sonrası EFM içerisindeki C-D plakaları arasındaki boşluk 20 µm olacak şekilde ayarlanmıştır. Nanokil için de aynı prosedür uygulanmıştır. Çalışmada uyumsuzluk giderici kimyasalın nanokil ve MCC ilaveli termoplastik kompozitlerin mekanik özellikleri üzerine etkileri araştırılacağından termoplastik malzemeye %1, 2, 4, 8 oranlarında PE-g-MA ilave edilmiştir. Ekstruder içerisine gelen karışım, sıcaklığın ve sistem içerisindeki sürtünmenin etkisi ile erimeye başlamış ve vida yardımıyla ekstruder içerisinde ileriye ekstruder çıkışına doğru yönlendirilmiştir. Kafadan (die) çıkan erimiş haldeki karışım kesilerek soğuk hava soğutmalı sistem hattı boyunca soğutulmuş (2201 Series End Drive Conveyor, Dorner MFG. Corp., Hartland, WI) ve sertleşmesi sağlanmıştır. Bu

Kompozit tipi	PE	PE-g-MA	MCC	Nanokil
YYPE	100	-	-	-
A	88	8	4	-
B	92	4	4	-
C	94	2	4	-
D	95	1	4	-
E	88	8	-	4
F	92	4	-	4
G	94	2	-	4
H	95	1	-	4

işlemin ardından pelletler laboratuvar tipi ekstrüzyondan (C.W. Brabender Instruments,

Inc.) geçirilerek öğütülmüştür. Pelletler 24 saat süre ile 103±2 °C sıcaklıktaki etüvde tam kuru hale gelinceye dek kurutulmuştur. Enjeksiyonlu kalıplamada mekanik testler için ürünler elde edilmiştir. Tablo 2’ de kompozit bileşimi verilmiş olup, Tablo 3’te ise proses parametreleri görülmektedir.

Table 2. Kompozit bileşimi

*Veriler ağırlık üzerinden hesaplanmıştır. YYPE: Yüksek yoğunluklu PE; PE: Polietilen; PE-g-MA: Maleik anhidrit graflanmış polietilen; MCC: Mikrokristalen selüloz.

Table 3. (A) Tek vidalı ekstruder ve EFM için sıcaklık (°C) profili; (B) Testler için sıcak presteki proses şartları

2.2. Kompozit örneklerinin test edilmesi

Mekanik testler için tüm örnekler 23 ±2 °C and 50% ±%5 bağıl nemde bekletilmiştir. Üretilen MCC ve nanokil esaslı kompozit örnekleri üzerinde çekme direnci, eğilme direnci ve izod darbe direnci testleri sırasıyla ASTM D 638-10, ASTM D 790-10 ve ASTM D 256-10 standardına göre gerçekleştirilmiştir. Çekme direnci deneyleri 10 kN yük uygulayan Instron 5966 (Instron, Norwood, MA, USA) cihazında 5.0 mm/dak hızda yapılmıştır. Eğilme direnci deneyleri için deney örneğinin yerleştirildiği silindirik mesnetlerin merkezleri arasındaki uzaklık 50 mm olacak şekilde ayarlanmıştır. Test 1 kN kapasiteli Instron 8872’de 1.25 mm/dak hızda gerçekleştirilmiştir. Çekme ve eğilme direnci testleri için minimum 6 örnek kullanılmıştır. Darbe dayanımı için örneklere NotchVis (Ceast, Instron, Norwood, MA, USA) makinasında çentikler açılmıştır, ardından Resil 50 B (Ceast, Ohio, USA) darbe direnci makinasında testler tamamlanmıştır. İzod darbe direnci testi verileri en az 10 örneğin ortalaması hesaplanarak elde edilmiştir.

2.3. İstatiksel yöntem

SPSS 21.0 istatiksel yazılım programı kullanılmıştır. Yapılan deneyler sonunda elde edilen verilerin

değerlendirilmesi amacıyla, ANOVA testi yapılarak değişkenlerin etkilerinin anlamlı olup olmadıkları belirlenmiştir.

3. Bulgular ve Tartışma

MCC esaslı kompozitlerin çekme direnci için en yüksek değer uyumsuzluk giderici kimyasal olarak kullanılan PE-g-MA’nın kullanım oranı %4 olduğunda elde edilmiştir. %1 oranında PE-g-MA kullanımında ise MCC esaslı kompozitlerin çekme direncinde azalma görülmüş ancak levha tipleri arasında uyumsuzluk gidericinin istatistiksel olarak anlamlı bir etkiye neden olmadığı bulunmuştur.

A1) Tek Vidalı Extruder

	Z-1	Z-2	Z-3	Z-4	Klemp	Ekstrüzyon kalıbı
Sıcaklık	145	145	150	150	160	170

A2) Genişlemeli Akışlı Karıştırıcı

	Z-1	Z-2	Z-3
Sıcaklık	190	200	200

B) Proses Parametreleri

Tek vidalı ekstruder (rpm)	50
Enjeksiyon kalıplama (MPa)	17
Bekletme süresi (s)	10
Soğutma süresi (s)	10
Enjeksiyon kalıptaki sıcaklık (°C)	180

Nanokil esaslı kompozitlerin çekme direnci değerleri ise PE-g-MA oranı azaldıkça minimum oranlarda arttığı gözlenmiştir. Nanokil esaslı kompozitlerin çekme direnci özellikleri MCC kullanımına göre daha yüksek olduğu görülmektedir. %8 ve %4 PE-g-MA ilaveli nanokil esaslı kompozitlerinin diğer iki kompozitle karşılaştırıldığında istatistiksel açıdan anlamlı bir farklılık olduğu bulunmuştur.

Uyumsuzluk giderici kimyasal olarak kullanılan PE-g-MA’nın MCC ile birlikte üretildiğinde elde edilen kompozitler arasında en yüksek çekmede elastikiyet modülü değeri %2 oranında gözlenmiştir. Nanokil esaslı kompozitlerde ise çekme direncinde olduğu gibi PE-g- MA oranı azaldıkça çekmede elastikiyet modülünde az da olsa artış görülmektedir. İstatiksel açıdan karşılaştırılan tüm kompozitler arasında anlamlı bir

fark olmadığı belirlenmiştir. Bazı araştırmalarda uyumsuzluk giderici kullanıldığı durumda çekmede elastikiyet modülünün değişmediği sonucuna varılmıştır (Doan *et al.* 2006, Dönmez Çavdar, 2011).

Maleik anhidrit graflanmış polietilen kullanıldığında kompozitlerin çekme ve eğilme direnci değerlerinin arttığı bilinmektedir. Birçok odun plastik kompozitte eğilme direnci özellikleri büyük oranda polimer matrisi içerisindeki liflerin dağılımına bağlı olup, çekme direnci özellikleri ise polimer matrisi içerisindeki arayüzey etkileşimi ile direkt ilişkilidir (Balasuriya *et al.* 2001, Liu *et al.* 2013). Liu ve ark. (2013) %2 oranında maleik anhidrid aşılansmış polietilen kullanımının yüksek yoğunluklu polietilen/doğal lif kompozitlerin mekanik özelliklerini iyileştirdiğini tespit etmişlerdir. Uyumsuzluk giderici ilaveli kompozitlerde çekme ve eğilme direnci özelliklerindeki gelişmeye bağlı olarak arayüzey uyumluluğunun arttığı sonucuna varılabilmektedir. Ancak, uyumsuzluk giderici kullanılan kompozitlerin bu özelliklerindeki artış sağlamlık özelliği ile ters orantılıdır. Elastikiyet modülü gerilim içeren deformasyonu önlemek için materyalin yeteneğini karakterize eden bir parametredir. Doğal liflerle daha uyumlu olduğu bilinen hidrofilik anhidrid grupların kompozitlerde doğal liflerin dağılımını geliştiremediği ve arayüzeyler arasında adhezyonu geliştiremeyeceği de bilinmektedir. Bu nedenle, kompozitleri oluşturacak bileşenlerin homojen bir şekilde dağılımı kompoziti daha sağlam yapıya dönüştürecektir (Liu *et al.* 2013).

Tablo 4. MCC ve nanokil esaslı kompozitlerin çekme direnci ve çekmede elastikiyet modülü değerleri

Levha Tipi	Çekme Direnci (MPa)		Çekmede Elastikiyet Modülü (GPa)	
	X	S	X	S
MCC				
Kontrol	16,26 b	0,25	0,78b	0,06

A	16,77a	0,23	0,86a	0,01
B	16,91a	0,25	0,87a	0,02
C	16,84a	0,20	0,88a	0,04
D	16,79a	0,48	0,84a	0,05
Nanokil				
Kontrol	16,26c	0,25	0,78b	0,06
E	17,46b	0,29	0,98a	0,05
F	17,57b	0,27	0,97a	0,02
G	17,87a	0,15	1,00a	0,04
H	18,04a	0,18	1,03a	0,03

*Aynı harf grubuna giren değerler % 5 önem düzeyinde birbirlerinden farklı değildir.

Tablo 5'de MCC ve nanokil esaslı kompozitlerin eğilme direnci değerleri görülmektedir. MCC esaslı kompozitlerde %4 PE-g-MA oranına kadar artış söz konusu iken, %2 ve %1 oranlarında eğilme direnci değerlerinin azaldığı belirlenmiştir. Nanokil esaslı kompozitler MCC esaslı kompozitlere göre daha yüksek eğilme dirençlerine sahip olup, en yüksek değer %2 PE-g-MA oranından elde edilmiştir. İstatiksel açıdan irdelendiğinde MCC esaslı kompozitler arasında anlamlı farklar bulunmuştur. Nanokil esaslı kompozitler içerisinde Tablo 5'ten de görüleceği üzere %4 ve %2 PE-g-MA ilaveli kompozitler aynı grup içerisinde yer alırken %8 ve %1 PE-g-MA ilaveli kompozitler de aynı grup içerisinde olup bu gruplar karşılaştırıldığında istatistiksel olarak anlamlı bir fark elde edilmiştir. Uyumsuzluk giderici sentetik polimerle ile aşılansmış maleik anhidritin lignoselülozik dolgu maddesi ile polimer matrisi arasında bir köprü görevi sağladığı birçok çalışma tarafından kanıtlanmıştır (Sanadi *et al.* 1995, San *et al.* 2008, Dönmez Çavdar, 2011). Maleik anhidrit ile aşılansmış polietilen içerisinde bulunan maleik anhidrit asit baz etkileşimi olduğu gibi polar bir etkileşim oluşturmakta, böylece lignoselülozik dolgu maddeleri üzerindeki hidroksil gruplarına kovalent bağla bağlanabilmektedir

(Sanadi *et al.* 1995, San *et al.* 2008). Bazı durumlarda ise uyumsuzluk gidericilerin içerdiği farklı bileşikler nedeniyle kompozitlerin eğilme direnci değerleri olumsuz etkilenmektedir (Sanadi *et al.* 1995, Balasuriya *et al.* 2001, Dönmez Çavdar, 2011).

Tablo 5. MCC ve nanokil esaslı kompozitlerin eğilme direnci ve eğilmede elastikiyet modülü değerleri

Levha Tipi	Eğilme Direnci (MPa)		Eğilmede Elastikiyet Modülü (GPa)	
	X	S	X	S
MCC				
Kontrol	15,63e	0,23	0,51c	0,01
A	17,79b	0,27	0,60ab	0,02
B	18,55a	0,24	0,61a	0,01
C	17,41c	0,48	0,58b	0,02
D	16,87d	0,13	0,57b	0,02
Nanokil				
Kontrol	15,63c	0,23	0,51d	0,01
E	18,20b	0,42	0,62c	0,01
F	19,05a	0,19	0,66ab	0,02
G	19,00a	0,24	0,68a	0,03
H	18,16b	0,30	0,64b	0,02

*Aynı harf grubuna giren değerler % 5 önem düzeyinde birbirlerinden farklı değildir.

MCC ve nanokil esaslı kompozitlerin eğilmede elastikiyet modülü değerleri karşılaştırıldığında MCC esaslı kompozitler daha düşük değerlere sahip olup, %4 PE-g-MA oranında en yüksek değeri vermektedir. Nanokil esaslı kompozitler için ise PE-g-MA oranı %2'ye kadar azaltıldığında en yüksek olarak 0.68 GPa değeri elde edilmiştir. PE-g-MA oranı %1'e düşürüldüğünde ise eğilmede elastikiyet modülünün azaldığı görülmektedir. MCC esaslı kompozitler içerisinde %2 ve %1 PE-g-MA ilaveli kompozitler aynı grup içerisinde yer alırken %4 PE-

g-MA ilaveli kompozitle karşılaştırıldığında istatistiksel olarak anlamlı bir fark elde edilmiştir. Nanokil ilaveli kompozitler istatistiksel olarak irdelendiğinde ise %8, %2 ve %1 ilaveli kompozitler kıyaslandığında istatistiksel olarak anlamlı fark bulunmuştur. Bazı araştırmacılar tarafından nanokil esaslı odun unu katkı yüksek yoğunluklu polietilen esaslı kompozitlerde uyumsuzluk giderici kimyasalların etkisi araştırıldığında kompozitlerdeki bileşenler arasındaki adhezyonun gelişmesine bağlı olarak daha yüksek eğilme direnci ve eğilmede elastikiyet modülü elde edilmiştir (Faruk and Matuana 2008).

Darbe dayanımı verileri incelendiğinde; MCC esaslı kompozit levhalarda PE-g-MA oranı %8'den %2'ye düşürüldüğünde en yüksek darbe dayanımı değeri olan 64.90 J/m elde edilmiştir. %2 PE-g-MA ilavesiyle birlikte darbe dayanımı değerinin azaldığı görülmektedir. Bu durum kompozitte lif varlığından kaynaklı olup kompozitin elastikliğindeki azalma ile dolayısıyla uyumsuzluk giderici kullanım oranı arttıkça polimer molekülleri liflerle etkileşimde bulundukça polimer matrisinin kristalinitedeki artış ile açıklanabilir. Gaikwad ve ark. (2015) henequen mikrofiber katkı yüksek yoğunluklu polietilen kompozitleri üzerinde uyumsuzluk giderici olarak silan bileşiğinin etkilerini araştırmışlardır. Kompozitlerin elastikiyet modülü değerlerinin silan bileşiğinin kullanım oranı %0.5'e kadar arttığı ve bu orandan sonra ise azaldığı belirlenmiştir. Ayrıca, darbe dayanımı özellikleri üzerinde silan bileşiğinin uyumsuzluk giderici olarak kullanımının %0.1 oranına kadar olumsuz etkisi görülürken, %0.3 den %1'e kadar silan bileşiği kullanımı söz konusu olduğunda darbe dayanımı artmıştır.

Tablo 6. Uyumsuzluk giderici kimyasal oranının MCC ve nanokil esaslı kompozitlerin darbe dayanımı değerleri

Levha Tipi	Darbe dayanımı (J/m)	
	x	s
MCC		
Kontrol	125,38a	10,68
A	62,91b	1,33
B	64,90b	3,01
C	64,72b	5,15
D	59,71b	3,21
Nanokil		
Kontrol	125,38a	10,68
E	51,14c	3,58
F	56,94c	0,55
G	58,11c	2,35
H	66,51b	6,46

*Aynı harf grubuna giren değerler % 5 önem düzeyinde birbirlerinden farklı değildir.

Nanokil esaslı kompozitlerde ise PE-g-MA oranı azaldıkça darbe dayanımı değerlerinin arttığı gözlenmiştir. MCC ilaveli kompozit grupları arasında istatistiksel olarak ciddi bir fark olmadığı ortaya çıkarken, nanokil ilaveli kompozit grupları arasında %1 PE-g-MA ilaveli kompozit dışında anlamlı bir fark elde edilemediği bulunmuştur. Odun esaslı kompozitlerde uyumsuzluk giderici kimyasalların kullanımı kompozitlerin sağlamlığını artırmakta ve selüloz lifleri içerisinde nem absorpsiyonunu azaltmaktadır (Botros, 2003). Han ve ark. (2008) nanokil ve uyumsuzluk giderici kimyasalların bamboo lifleri ile hazırlanmış polietilen kompozitlerin mekanik ve termal özelliklerinin artırdığını gözlemlemişlerdir. Darbe dayanımı azalırken, eğilmede elastikiyet modülü ve

kristaliniteliğin %1 nanokil ilavesine kadar arttığı bulunmuştur.

4. Sonuç

Bu çalışma, PE-g-MA kullanım oranının MCC ve nanokil esaslı yüksek yoğunluklu polietilen kompozitlerindeki etkileri üzerine olup, MCC ve nanokilin karakteristik özelliklerine bağlı olarak her bir kompozitte farklılık gösterdiği sonucuna varılmıştır. MCC esaslı yüksek yoğunluklu polietilen kompozitleri için en yüksek çekme ve eğilme direnci %4 oranındaki PE-g-MA kullanımından elde edilmiştir. Nanokil esaslı yüksek yoğunluklu polietilen kompozitler için ise en yüksek çekme direnci %1 PE-g-MA kullanımından elde edilirken, en yüksek eğilme direnci ise %4 PE-g-MA kullanımı sonucu elde edilmiştir. İstatistiksel sonuçlar MCC esaslı kompozitlerin çekme direnci, çekmede elastikiyet modülü ve darbe dayanımı değerlerinde PE-g-MA kullanım oranlarının anlamlı bir fark oluşturmadığını, ancak eğilme direnci değerlerinde çekme direncinin aksine kullanım oranları arasında anlamlı fark bulunduğunu göstermiştir. MCC ilaveli kompozitlerin istatistiksel sonuçları ise çekmede elastikiyet modülü değerlerinde PE-g-MA kullanım oranının etkili olmadığı belirlenirken, darbe dayanımı değerlerinde %1 PE-g-MA kullanım oranı hariç anlamlı bir etki olmadığı sonucuna varılmıştır.

Kaynaklar

- ASTM D 256-10, 2010. Standard Test Methods for Determining the Izod Pendulum Impact Resistance of Plastic. ASTM, West Conshohocken, Pa.
- ASTM D 638-10, 2010. Standard Test Method for Tensile Properties of Plastics. ASTM, West Conshohocken, Pa.
- ASTM D 790-10, 2010. Standard Test Methods for Flexural Properties of Unreinforced and Reinforced Plastics and Electrical Insulating Materials, Test Method 1, Procedure A. ASTM, West Conshohocken, Pa.
- Balasuriya, P., Ye, L. and Mai, Y.W.,2001. Mechanical properties of wood flake-polyethylene composites. Part I: Effects of processing methods and matrix melt flow behaviour. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*,**32**(5), 619-629.
- Botros, M., 2003. Development of New Generation Coupling Agents for Wood-plastic Composites. Equistar Chemicals, LP, New Orleans, LA.
- Bulut, Y. and Erdoğan, Ü.H.,2011. Selüloz esaslı doğal liflerin kompozit üretiminde takviye materyali olarak kullanımı. *The Journal of Textiles and Engineer*, **82**, 26-35.
- Chan, M., Lau, K., Wong, T.T. and Cardona, F.,2011. Interfacial bonding characteristic of nanoclay/polymer composites. *Applied Surface Science*, **258**, 860-864, (2011).
- Doan, T.T.L., Gao, S.L. and Mader, E.,2006. Jute/polypropylene composites I. Effect of matrix modification. *Composites Science and Technology*, **66**(7-8), 952-963.
- Donmez Cavdar, A., 2011. Farklı lignoselülozik ve termoplastik maddelerle üretilen odun-plastik kompozitlerin özelliklerinin incelenmesi. Doktora Tezi, Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon, 311.
- Donmez Çavdar, A., Kalaycıoğlu, H., Mengeloğlu, F. and Casur, E.,2013. MDF zımpara tozu dolgulu termoplastik kompozitlerin fiziksel ve mekanik özellikleri. *7th International Advanced Technologies Symposium, IATS'2013*, 30 October-1 November 2013, İstanbul, Turkey.
- Faruk, O. and Matuana, L.M., 2008. Reinforcement of rigid PVC/wood-flour composites with multi-walled carbon nanotubes. *Vinyl&Additive Technology Journal*, **14**,60-64.
- Gaikwad, P. and Mahanwar, P., 2015. Effects of coupling agent on the properties of henequen microfiber (NF) filled high denstiy polyetyhlene (HDPE) composites. *International Scholarly and Scientific Research&Innovation*, **9**(5),475-479.
- Haafiz, M.K.M., Hassan, A., Zakaria, Z., Inuwa, I.M., Islam, M.S. and Jawaid, M.,2013. Properties of polylactic acid composites reinforced with oil palm biomass microcrystalline cellulose. *Carbohydrate Polymers*, **98**,139-145.
- Han, Y.H., Han, S.O., Cho, D. and H.Kim, 2008. Dynamic mechanical properties on natural fiber/polymerbiocomposites: The effect of fiber treatment with electron beam. *Journal of Macromolecular Research*, **16**(3), 253-260.
- Ifuku, S. and Yano, H., 2015. Effect of a silane coupling agent on the mechanical properties of a microfibrillated cellulose composite. *International Journal of Biological Macromolecules*, **74**,428-432.
- Jonoobi, M., Harun, J., Mathew, A.P. and Oksman, K.,2010. Mechanical properties of cellulose nanofiber (CNF) reinforced polylactic acid(pla) prepared by twin screw extrusion. *Composite Science Technology*, **70**(12), 1742-1747.
- Kiziltas, A., Gardner, D.J., Han, Y. and Yang, H-S.,2010. Determining the mechanical properties of microcrystalline cellulose (MCC)-filled PET-PTT blend composites. *Wood and Fiber Science*, **42**(2),165-176.

- Kızıldaş, A., Kızıldaş, E.E., Boran, S. and Gardner, D.J.,2013. Micro-and nanocellulose for the automotive applications, micro and nanocellulose for the automotive applications. *SPE Automotive Composites Conferences&Exhibition (ACCE)*, 11-13 September.
- Li, J., Ton-That, M.T., Leelapornpisit, W. and Utracki, L.A., 2007. Melt compounding of polypropylene- based clay nanocomposites. *Polymer Engineering&Science*, **47**(9), 1447-1458.
- Liu, T., Lei, Y., Wang, Q., Lee, S. and Wu, Q., 2013. Effect of fiber type and coupling treatment on properties of high-density polyethylene/natural fiber composites. *Bioresources*, **8**(3), 4619-4632.
- Lu, J.Z., Wu, Q. and Negulescu, I.I.,2005. Wood-fiber/high-density-polyethylene composites: Coupling agent performance. *Joience*, **96**,93-102.
- Maiotti, N., Wang, X-M., Rodrigue, D. and Stevanovic, T.,2014. Combination of esterified kraft lignin and MAPE as coupling agent for bark/HDPE composites. *Journal of Materails Science Research*, **3**(2), 8-22.
- Mathew, A.P., Oksman, K. and Sain, M.,2005. Mechanical properties of biodegradable composites from poly lactic acid (PLA) and microcrystalline cellulose (MCC). *Journal of Applied Polymer Science*, **97**,2014-2025.
- Mohanty, A.K., Misra, M. and Hinrichsen, G., 2000. Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites:An overview. *Macromolecular Materials and Engineering*, **276/277**,1-24.
- Özen, E., Kızıldaş, A., Kızıldaş, E.E. and Gardner, D.J.,2013. Natural fiber blend-nylon 6 composites.*Polymer Composites*, **34**(4),544-553.
- Park, J.H. and Jana, S.C.,2003. The relationship between nano- and micro-structures and mechanical properties in PMMA-epoxy-nanoclay composites. *Polymer*, **44**, 2091–2100.
- Qiu, W.L., Endo, T. and Hirotsu, T.,2006. Structure and properties of composites of highly crystalline cellulose with polypropylene: Effects of polypropylene molecular weight. *European Polymer Journal*, **42**,1059-1068.
- San, P.K., Nee, L.A. and Meng, H.C., 2008. Physical and bending properties of injection moulded wood plastic composites boards. *ARPJ Journal of Engineering and Applied Sciences*, **3**(5),13-19.
- Sanadi, A.R, Caulfield, D.F, Jacobson, R.E. and Rowell R.M., 1995. Renewable agricultural fibers as reinforcing fillers in plastics: Mechanical properties of kenaf fiber-polypropylene composites.*Industrial Engineering Chemistry Research*, **34**(5), 1889-1896.
- Spoljaric, S., Genovese, A. and Shanks, R.A., 2009. Polypropylene-microcrystalline cellulose composites with enhanced compatability and properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**,791-799.
- Sun, X., Lu, C., Liu, Y., Zhang, W. and Zhang, X.,2014.Melt-Processed poly(vinyl alcohol) composites filled with microcrystalline cellulose from waste cotton fabrics. *Carbohydrate Polymers*, **101**,642-649.
- Şen, F., Palancıoğlu, H. and Aldaş, K.,2010. Polimerik nanokompozitler ve kullanım alanları. *Electronic Journal of Machine Technologies*, **7**(1), 11-18.
- Tanoue, S. and Iemoto, Y., 2003. Numerical simulation of the flow in an extensional flow mixer: Effect of fluid elasticity on the flow. *Polymer. Engineering&Science*, **43**(1), 254-266.
- Tokihisa, M., Yakemeto, K., Sakai, T., Utracki, L.A., Sepehr, M. and Simard, L.Y., 2006. Extensional flow mixer for polymer nanocomposites. *Polymer Engineering&Science*, **46**(8),1040-1050.

Utracki, L.A.,1998. Mixing in extensional flow. *14th Annual Meeting Polymer Processing Society*,Yokohama, Japan, June 8-12.

Zulkifli, N.I., Samat, N., Anuar, H. and Zainuddin, N., 2015. Mechanical properties and failure modes of recycled polypropylene/microcrystalline cellulose composites. *Material&Design*, **69**,114-123.