

## مقایسه ویژگی‌های کششی و تحلیل مکانیکی-دینامیکی چندسازه پلی لاکتیک اسید/پلی اتیلن تقویت شده با الیاف طبیعی

حمید آیباهی اصفهانی<sup>۱\*</sup>، مهدی کلاگر<sup>۲</sup> و حسین سپهری راد<sup>۳</sup>

\*۱- نویسنده مسئول، عضو هیئت علمی، گروه معماری، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد زاهدان، ایران، پست الکترونیک: Aibaghi.esfahani@gmail.com

۲- پژوهشگر مرکز تحقیقات و نوآوری سازمان اتکا، ایران

۳- عضو هیئت علمی، گروه معماری، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد زاهدان، ایران

تاریخ پذیرش: فروردین ۱۳۹۷

تاریخ دریافت: بهمن ۱۳۹۶

### چکیده

در این تحقیق ویژگی‌های کششی و دینامیکی - مکانیکی چندسازه ساخته شده با پلیمر پلی لاکتیک اسید (PLA) و پلی اتیلن دانسیته سنگین (HDPE) به عنوان ماتریس و خاک اره به عنوان تقویت کننده به میزان ۳۰ درصد وزنی بررسی شد. از انیدریدمالئیک پیوند خورده با پلی اتیلن (MAPE) به میزان ۳ درصد وزنی به عنوان اتصال دهنده استفاده شده است. استفاده از خاک اره باعث افزایش در سفتی چندسازه‌های ساخته شده گردیده، در حالی که استفاده از این ماده باعث کاهش در مقاومت کششی چندسازه‌ها شده است. بالاترین میزان ویژگی‌های کششی (مدول الاستیسیته و مقاومت کششی) مربوط به چندسازه پلی لاکتیک اسید/پلی اتیلن / خاک اره و اتصال دهنده بوده است. افزودن الیاف طبیعی به هر دو ماتریس (PE و PLA) مدول ذخیره چندسازه را نسبت به پلیمرهای خالص افزایش داده، در حالی که میزان مدول ذخیره در پلی اتیلن خالص و چندسازه آن بالاتر بوده است. نتایج نشان داد که استفاده همزمان از دو پلیمر (PE و PLA) با نسبت‌های مساوی (۵/۳۳) و خاک اره جهت ساخت چندسازه میزان سفتی بالاتری را نسبت به استفاده جداگانه از هر کدام از پلیمرها نشان داد. به کارگیری الیاف طبیعی باعث کاهش تحرک زنجیره مولکولی و انتقال دمای چندسازه به دماهای بالاتر شده که در نهایت پیک‌های مربوطه به سمت راست و پایین تر جابه‌جا شده‌اند. هر چند که در برخی موارد انتقال پیک‌ها از روند نرمالی تبعیت نکرده است اما افزودن اتصال دهنده MAPE باعث چسبندگی سطح مشترک بیشتر بین دو مرحله در تمامی چندسازه‌ها شده و در نهایت سفتی را افزایش داده است.

واژه‌های کلیدی: چندسازه، خاک اره، پلی لاکتیک اسید، پلی اتیلن، ویژگی‌های کششی، تحلیل دینامیکی-مکانیکی

### مقدمه

سال‌های گذشته بوده است (Huda et al., 2008). پلیمرهای جدید از قبیل پلی لاکتیک اسید که در بازارهای اروپایی در دهه گذشته مورد توجه قرار گرفته‌اند بیشترین کاربرد را در بخش پزشکی و بعد کاربردهایی را در زمینه بسته‌بندی مانند کیسه‌های زیست تجزیه پذیر تجربه کردند و هم‌اکنون کاربردهایی در بخش‌های ساختمانی برای این پلیمر زیست تجزیه پذیر با استفاده از الیاف طبیعی به عنوان تقویت کننده

تحقیق و توسعه بر روی پلیمرهای زیستی به صورت فزاینده‌ای در ۵ سال اخیر افزایش یافته است (Bledzki & Jaszkiwicz, 2010). پلیمر زیست تجزیه پذیر پلی لاکتیک اسید ماده‌ای با زیست سازگاری خوب و دارای ویژگی‌های مقاومتی و سفتی بالا بوده (Sis et al., 2013) و از ذرت تهیه شده که موضوع بسیاری از تحقیقات در

متداول شده است (Bledzki & Jaszkiwicz, 2010).

قابل توجه است که هنوز هم از نظر فنی رزین اصلی مهندسی، چندسازه بر پایه پلی پروپیلن (PP) و پلی اتیلن (PE) بر اساس نسبت هزینه/عملکرد یکی از بهترین است. چندسازه پلیمر تقویت شده با پلیمرهای مشتق شده از نفت خام (اکثرآ پلی، پروپیلن، پلی اتیلن و غیره) با الیاف طبیعی بازتاب کننده برجسته و قابل مقایسه ویژگی های مکانیکی و مکانیکی-دینامیکی نسبت به استیل و آلومینیوم است که منجر به کاربرد گسترده این مواد برای مواد مهندسی ویژه از قبیل اتومبیل، صنایع هوایی و ساختمان شده است (Saba et al., 2015).

به کار بردن واژه زیستی می تواند برای مشتریان بسیار جذاب باشد، به شرط اینکه قیمت تمام شده متعادل محصول و تضمین آن برای مشتری تعریف گردد؛ بنابراین داده های چندسازه زیستی از قبیل پلی لاکتیک اسید که می خواهند با پلی پروپیلن رقابت کنند باید با مقادیر یکسان استفاده از الیاف طبیعی مورد مقایسه ویژگی های مختلف قرار گیرند (Bledzki & Jaszkiwicz, 2010). عیب اصلی پلی لاکتیک اسید شکنندگی این ماده بوده است (Ljungberg & Wesslén, 2005). یکی از روش ها برای بهبود خواص گرمایی و مکانیکی PLA افزودن الیاف طبیعی است (Huda et al., 2005a). از این رو افزودن الیاف طبیعی روش مناسبی برای بهبود کارایی مواد و کاهش قیمت چندسازه بوده که اخیراً برای جایگزینی الیاف مصنوعی مورد توجه قرار گرفته است (Huda et al., 2006; Ochi, 2008)، زیرا آنها زیست تجزیه پذیر هستند. وزن سبک، غیر سمیت، قیمت پایین، استفاده کمتر از انرژی و سایش کمتر تجهیزات در هنگام ساخت، دسترس پذیری گسترده، زیست تجزیه پذیری، جلوگیری از جنگل زدایی و سایر ویژگی های مثبت الیاف طبیعی (Saba et al., 2016) باعث علاقه مندی محققان و صنعتگران برای استفاده از این محصول زیستی در ساخت چندسازه ها بر پایه پلیمرهای زیست تجزیه پذیر و غیر زیست تجزیه پذیر شده است که این موضوع باعث افزایش کاربرد چندسازه های ساخته شده در بسیاری از کاربردهای

مهندسی و تکنولوژی شده است (Nayak et al., 2009).

بنابراین اختلاط پلی لاکتیک اسید با ترکیبات مصنوعی و پلیمرهای دیگر می تواند باعث افزایش ویژگی های مکانیکی و همچنین تولید محصولی جدید گردد (Boubekeur et al., 2015). Huda و همکاران (۲۰۰۵) در مقایسه رزین خالص و چندسازه ساخته شده با الیاف سلولزی عنوان کردند که مدول کششی و خمشی با افزودن تقویت کننده به ماتریس PLA به صورت معنی داری افزایش یافت.

بسیار مهم است که بپذیریم مواد زیست تجزیه پذیر دارای قابلیت گسترده ای در صنعت مبلمان، اتومبیل، ساختمان و بسته بندی هستند (Ibrahim et al., 2010). ترکیب مواد زیست تجزیه پذیر با مواد بر پایه نفت خام در جهت تولید محصولات می تواند قابلیت کاربرد این محصولات را افزایش دهد (Wambua et al., 2003). یکی از اهداف این پژوهش تولید چندسازه ای با ترکیب کردن دو نوع پلیمر زیست تجزیه پذیر و بر پایه نفت خام می باشد. یکی از مهمترین تکنیک های مورد استفاده تحلیل دینامیکی-مکانیکی (DMA) است که در توصیف ساختار چندسازه استفاده می شود؛ تابعی از فرکانس، دما، زمان، تنش و اتمسفر یا یک ترکیبی از این پارامترهاست (Romanzini et al., 2013). مؤلفه های به دست آمده حاصل از طرح به عنوان مجموعه مدول (مدول برشی) نامیده می شود که به وسیله  $E^*$  مشخص شده است.

میزان تانژانت دلتا بالا نشان دهنده ماده ای غیر الاستیک و میزان کم تانژانت دلتا نشان دهنده ماده ای با الاستیک بالاست. افزایش در پیوندهای سطح مشترک الیاف/ماتریس منجر به کاهش فاکتور میرایی شده و از آنجایی که تحرک زنجیره مولکولی در سطح مشترک الیاف/ماتریس کاهش می یابد؛ بنابراین کاهش اتلاف انرژی با ظرفیت ذخیره سازی بیشتر میزان تانژانت دلتا در سیستم در ارتباط است (Saba et al., 2015). بررسی دینامیکی-مکانیکی چندسازه پلی لاکتیک اسید (PLA) الیاف رامی نشان داد که افزودن الیاف به علت افزایش یافتن چسبندگی سطح مشترک به وسیله انیدریدمالئیک به عنوان اتصال دهنده باعث افزایش

شد. دانسیته پلی لاکتیک اسید ۱/۲۵ گرم / سانتی متر مکعب و شاخص جریان مذاب  $(MFI)$  ۱۵-۳۰ g/10min بوده است. پلی اتیلن ساخت شرکت پتروشیمی اراک با شاخص جریان مذاب ۱۸ gr/10min مورد استفاده قرار گرفت. پلی اتیلن با ۰/۱ درصد مالئیک انیدرید پیوند خورده (MAPE) به عنوان عامل اتصال دهنده به کار گرفته شد. خاک اره کاج تدا از صنایع تبدیلی شرکت جنگل شفاورد در استان گیلان (رضوانشهر) به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۷۰ درجه سانتی گراد در آون قرار گرفت تا میزان رطوبت آن به حدود ۱-۲٪ برسد. جدول ۱ ترکیب مواد با میزان‌های مختلفی از پلی لاکتیک اسید، پلی اتیلن، خاک اره و MAPE را برای ساخت چندسازه نشان می‌دهد. مواد با نسبت‌های مختلف با دستگاه MIXER با سه ناحیه دمایی ۱۷۰، ۱۷۵ و ۱۸۰ درجه سانتی گراد با سرعت چرخش ۳۰ و صرف زمان ۱۱ دقیقه مخلوط شدند. برای ساخت نمونه‌های استاندارد آزمون کششی و دینامیکی - مکانیکی نمونه‌ها به مدت ۶-۵ دقیقه به عنوان پیش‌پرس از دمای محیط به دمای ۱۸۰ درجه سانتی گراد رسیده و بعد نمونه‌ها در مدت ۵-۴ دقیقه و با فشار ۳۰ مگا پاسکال پرس شدند و در نهایت در مدت ۶-۵ دقیقه فشار پرس را از روی نمونه‌ها برداشته و دما نیز کم شده تا به دمای محیط رسید.

در مدول ذخیره چندسازه شده است (Yu et al., 2014). Graupner (۲۰۰۸) ویژگی‌های کششی چندسازه پلی لاکتیک اسید/کتان و پلی لاکتیک اسید و کنف را بررسی کرد و مشاهده کرد که مقاومت و مدول کششی پلیمر خالص با افزودن هر دو نوع الیاف طبیعی افزایش یافته است. Boubekour و همکاران (۲۰۱۵) عنوان کردند که اختلاط PLA و PE برای ساخت چندسازه پر شده با الیاف طبیعی باعث بهبود در ویژگی‌های کششی شده و پژوهشگران سطح مشترک مناسبی بین الیاف کنف هندی و پلیمرها مشاهده کردند.

در این پژوهش ویژگی کششی (مدول الاستیسیته و مقاومت کشش) و تحلیل دینامیکی مکانیکی شامل مدول ذخیره و تانژانت دلتا بر روی چندسازه پلی لاکتیک اسید و پلی اتیلن به عنوان ماتریس و خاک اره حاصل از کاج تدا به عنوان تقویت کننده و همچنین انیدرید مالئیک پیوند خورده با پلی اتیلن به عنوان اتصال دهنده مورد تجزیه و تحلیل قرار خواهد گرفت.

## مواد و روش‌ها

پلی لاکتیک اسید مورد استفاده در این مطالعه از شرکت Shanghai Freeman Chemicals موجود در چین تهیه

جدول ۱- ترکیب مواد مختلف برای ساخت چندسازه

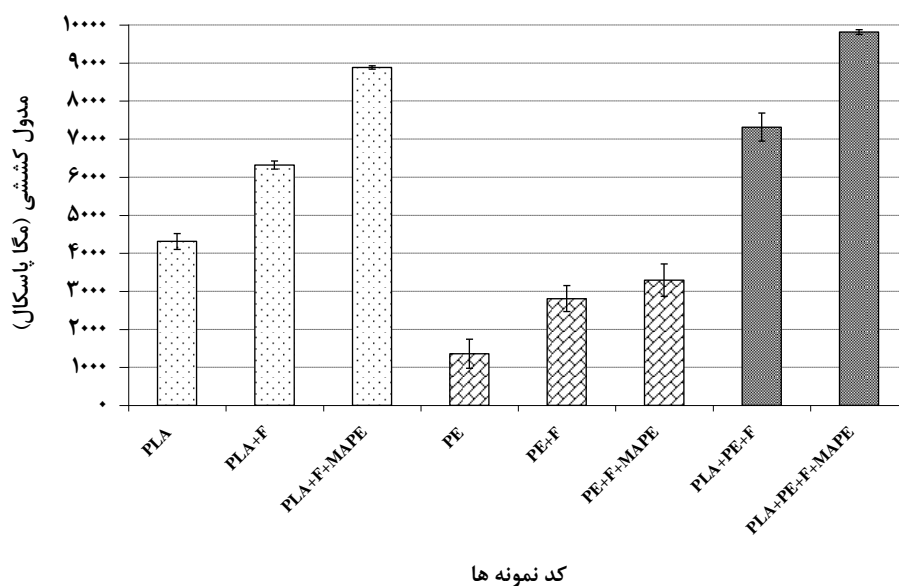
| کد نمونه      | پلی لاکتیک اسید (درصد) | پلی اتیلن (درصد) | خاک اره (درصد) | MAPE (درصد) |
|---------------|------------------------|------------------|----------------|-------------|
| PLA           | ۱۰۰                    | -                | -              | -           |
| PLA+F         | ۷۰                     | -                | ۳۰             | -           |
| PLA+F+MAPE    | ۶۷                     | -                | ۳۰             | ۳           |
| PE            | -                      | ۱۰۰              | -              | -           |
| PE+F          | -                      | ۷۰               | ۳۰             | -           |
| PE+F+MAPE     | -                      | ۶۷               | ۳۰             | ۳           |
| PLA+PE+F      | ۳۵                     | ۳۵               | ۳۰             | -           |
| PLA+PE+F+MAPE | ۳۳/۵                   | ۳۳/۵             | ۳۰             | ۳           |

### نتایج

شکل ۱ و ۲ به ترتیب نتایج بدست آمده از ویژگی های کششی (مدول و مقاومت کششی) را نشان می دهند. با افزودن ۳۰ درصد ماده لیگوسلولزی به پلی لاکتیک اسید افزایش ۴۶ درصدی در مدول الاستیسیته کششی مشاهده شد و افزودن اتصال دهنده MAPE باعث افزایش ۴۰ درصدی نسبت به ترکیب بدون اتصال دهنده شده است. مشاهده شد که مدول الاستیسیته پلی اتیلن خالص کمتر از پلی لاکتیک اسید خالص بوده است ولی افزودن خاک اره به پلی اتیلن خالص باعث افزایش ۱۰۰ درصدی مدول الاستیسیته کششی شده است. استفاده همزمان از پلی لاکتیک اسید و پلی اتیلن در ترکیب چندسازه با خاک اره مدول الاستیسیته بالاتری را نسبت به استفاده تکی از پلیمرها ایجاد کرده است و بالاترین میزان مدول الاستیسیته در چندسازه MAPE/PE/PLA مشاهده شده است.

برای انجام آزمون دینامیکی - مکانیکی این آزمون مطابق با استاندارد ASTM E1640 با استفاده از دستگاه Polymer Laboratory مدل PL موجود در پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران انجام شد. نمونه ها با ابعاد  $1 \times 1 \times 3$  میلی متر (mm) در مد خمش و محدوده دمای ۶۰- تا ۱۷۰ درجه سانتی گراد با میزان سرعت ۵ درجه سانتی گراد بر دقیقه انجام گردید. فاکتور مدول ذخیره و فاکتور اتلاف مکانیکی ( $\tan \delta$ ) به عنوان تابعی از حرارت اندازه گیری شده است.

آزمون کشش طبق آیین نامه D638 استاندارد ASTM با استفاده از دستگاه (INSTRON) مدل ۴۴۸۹ بر روی نمونه های M-I دمبلی انجام شد و بارگذاری با سرعت ۵mm/min اعمال شد.



شکل ۱- مدول کششی چندسازه ها با ترکیبات مختلف ماتریس و الیاف

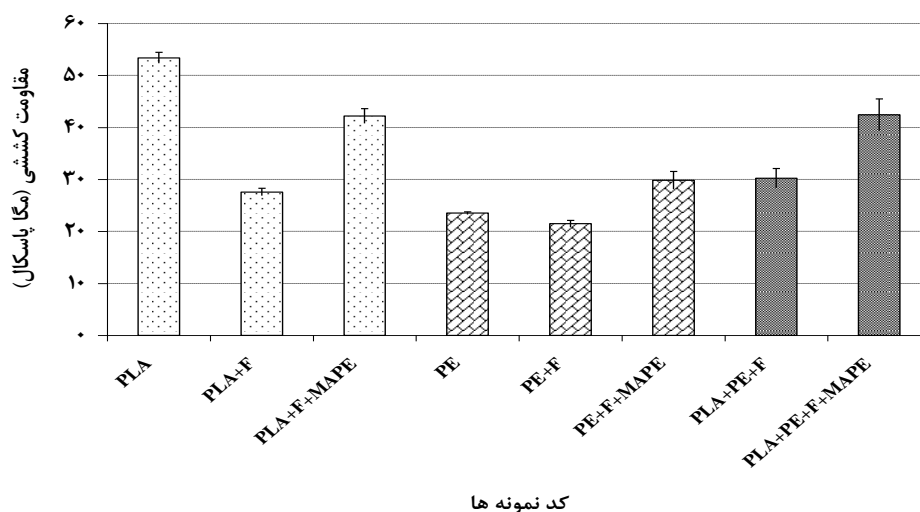
قابل توجه است که این کاهش در چندسازه ساخته شده با پلی لاکتیک اسید بیشتر بوده است. البته استفاده همزمان از دو ماتریس مقاومت کششی بالاتری را نسبت به چندسازه های

شکل ۲ نشان می دهد که افزودن خاک اره باعث کاهش در مقاومت کششی چندسازه های ساخته شده با ماتریس پلی لاکتیک اسید و همچنین پلی اتیلن شده است. البته

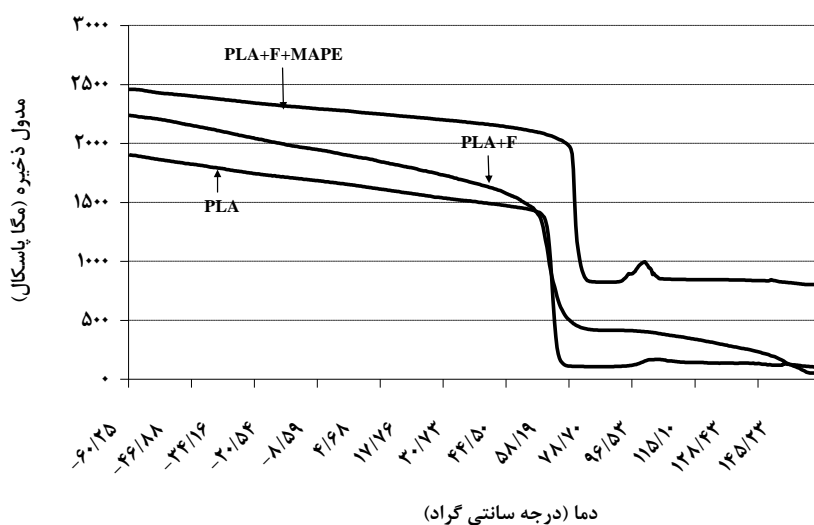
اره و چندسازه پلی لاکتیک اسید/پلی اتیلن/خاک اره شده است.

به طوری که بالاترین میزان مقاومت کششی در چندسازه پلی لاکتیک اسید- پلی اتیلن و اتصال دهنده مشاهده شد.

ساخته شده با ماتریس تکی نشان داده و افزودن اتصال دهنده در تمامی چندسازه‌ها باعث بهبود در مقاومت کششی شده است. نتایج نشان می‌دهد که استفاده از ۳ درصد MAPE باعث افزایش ۵۲ درصدی در مقاومت کششی چندسازه پلی لاکتیک اسید شده و به ترتیب باعث افزایش ۳۹ و ۴۰ درصدی در مقاومت کششی چندسازه پلی اتیلن/خاک



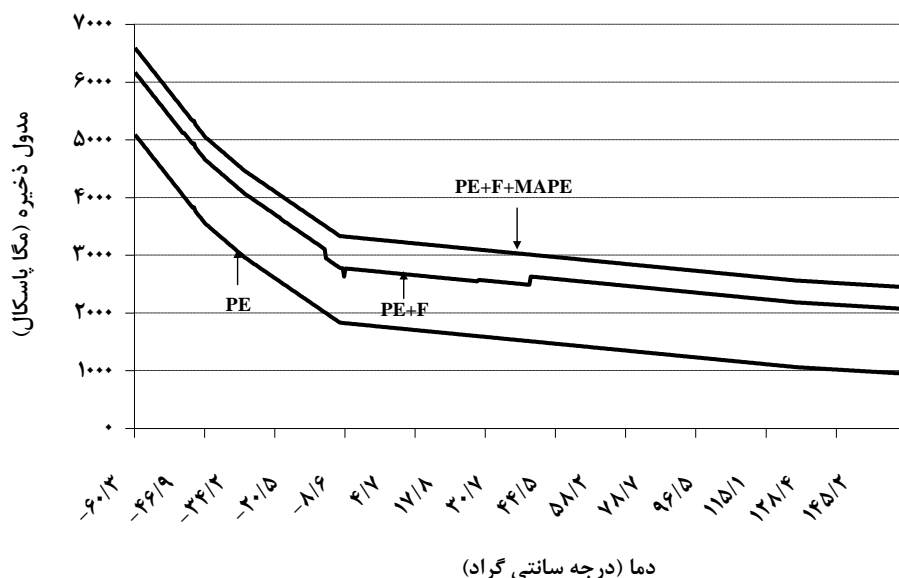
شکل ۲- مقاومت کششی چندسازه‌ها با ترکیبات مختلف ماتریس/الیاف



شکل ۳- مدول ذخیره چندسازه پلی لاکتیک اسید پر شده با الیاف طبیعی

شکل ۳ و ۴ نشان می‌دهد که پایین‌ترین میزان مدخل ذخیره در ماتریس خالص PLA و PE مشاهده شده است. به نحوی که افزودن ۳۰ درصد خاک اره به پلی‌لاکتیک اسید و پلی‌اتیلن خالص مدول ذخیره چندسازه افزایش چشمگیری یافته است. همان‌طور که مشاهده می‌شود در دمای منفی ۶۰ درجه سانتی‌گراد مدول ذخیره پلی‌لاکتیک اسید به میزان

۱۹۰۵ مگا پاسکال بوده و با افزایش ۳۰ درصد خاک اره به عنوان تقویت‌کننده ۲۲۳۷ مگا پاسکال (افزایش ۱۷ درصدی) و با افزودن ۳ درصد اتصال‌دهنده مدول ذخیره به ۲۴۵۷ مگا پاسکال (افزایش ۲۹ درصد نسبت به PLA خالص و ۱۰ درصد نسبت به چندسازه بدون اتصال‌دهنده) افزایش یافته است.

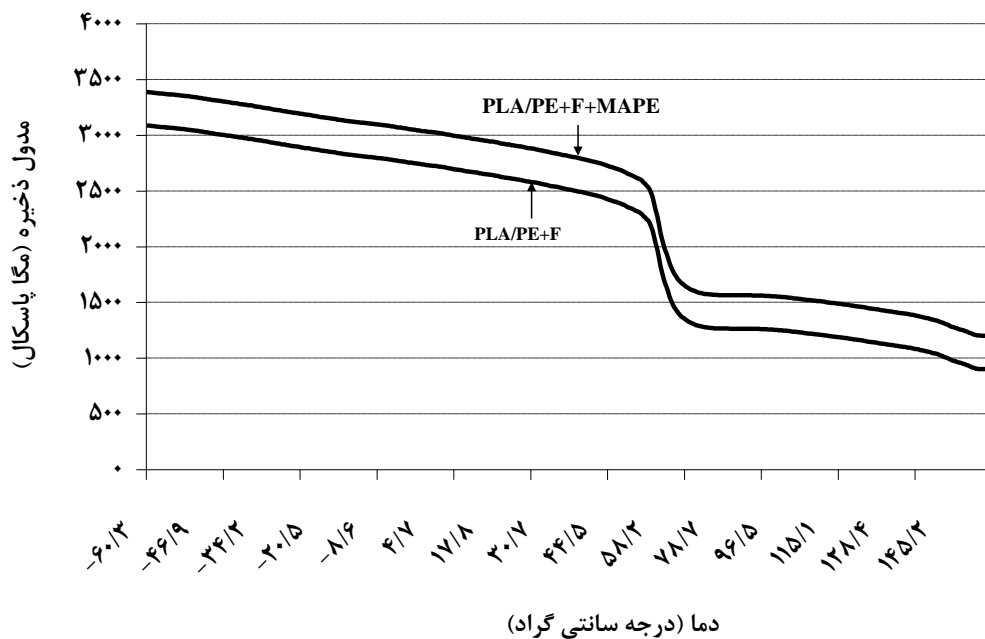


شکل ۴- مدول ذخیره چندسازه پلی‌اتیلن پر شده با الیاف طبیعی

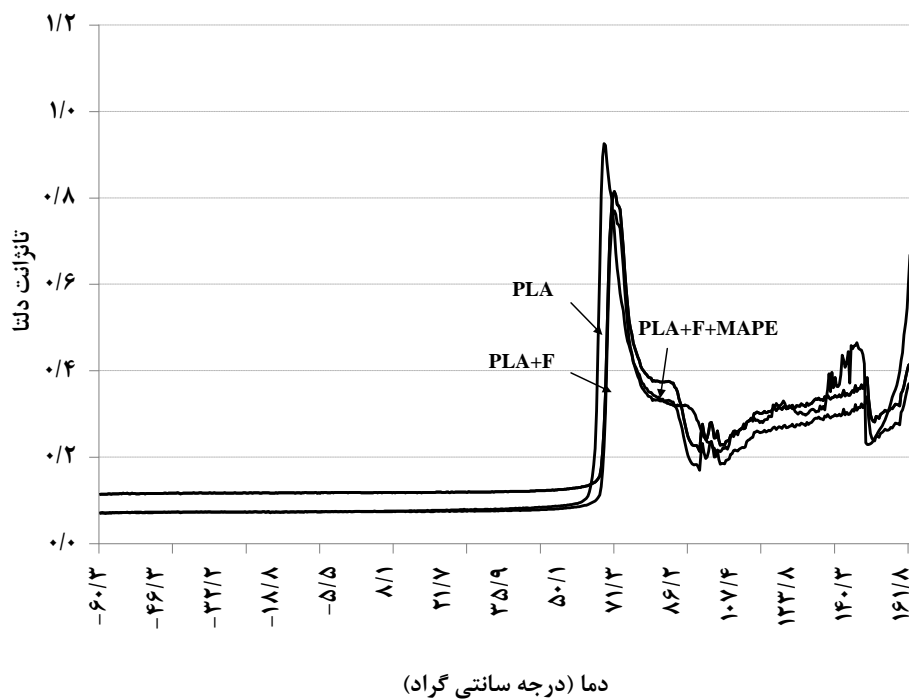
که استفاده از خاک اره در ساخت چندسازه باعث انتقال تنش مؤثرتری بین الیاف و ماتریس می‌شود. شکل‌های ۶، ۷ و ۸ نتایج بررسی تانژانت دلتا در ترکیبات متفاوت چندسازه را نشان می‌دهد. تانژانت دلتا را می‌توان تانژانت زاویه فازی تعریف کرد که اتلاف انرژی به انرژی قابل حصول را اندازه‌گیری کرده و نشان‌دهنده شاخص رفتار ویسکوالاستیک یک ماده است. در شکل ۶ به وضوح مشخص است که استفاده از الیاف در ماتریس پلی‌لاکتیک اسید باعث انتقال پیک به سمت دمای بالاتر شده است و استفاده از اتصال‌دهنده انتقال به دمای بالاتر را به صورت محسوس تر نشان داده است.

مدول ذخیره پلی‌اتیلن خالص در حدود ۵۰۸۹ مگا پاسکال بوده و با افزودن خاک اره و اتصال‌دهنده میزان مدول ذخیره به ترتیب به میزان ۶۱۶۱ و ۶۵۸۹ مگا پاسکال افزایش یافته است.

شکل ۵ مدول ذخیره چندسازه شامل اختلاط دو پلیمر و خاک اره را با و بدون اتصال‌دهنده نشان می‌دهد. مشاهده شده است که استفاده از دو نوع پلیمر PLA و PE میزان مدول ذخیره‌ای در بین دو میزان مشاهده شده در چندسازه ساخته شده با تک‌تک پلیمرها را نشان داده است و با افزودن ۳ درصد اتصال‌دهنده میزان بالاتری از مدول ذخیره مشاهده شده است. بنابراین می‌توان بیان کرد



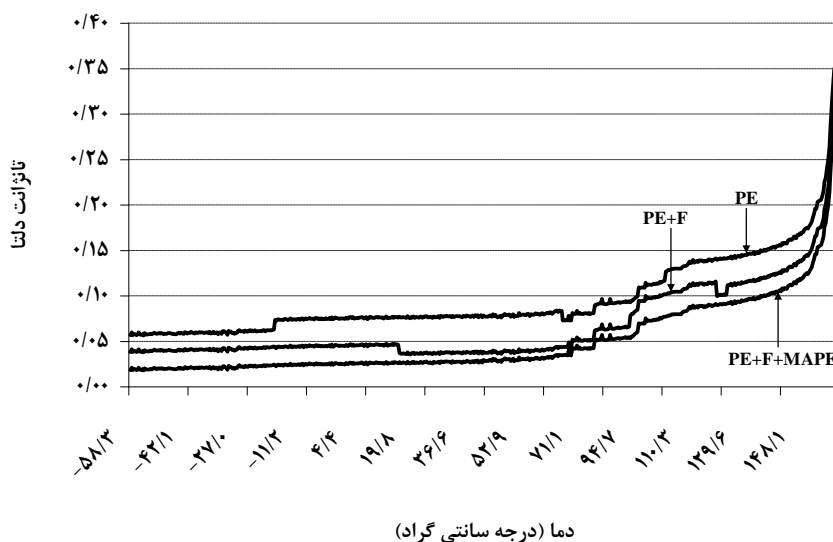
شکل ۵- مدول ذخیره چندسازه پلی لاکتیک اسید/پلی اتیلن پرشده با الیاف طبیعی



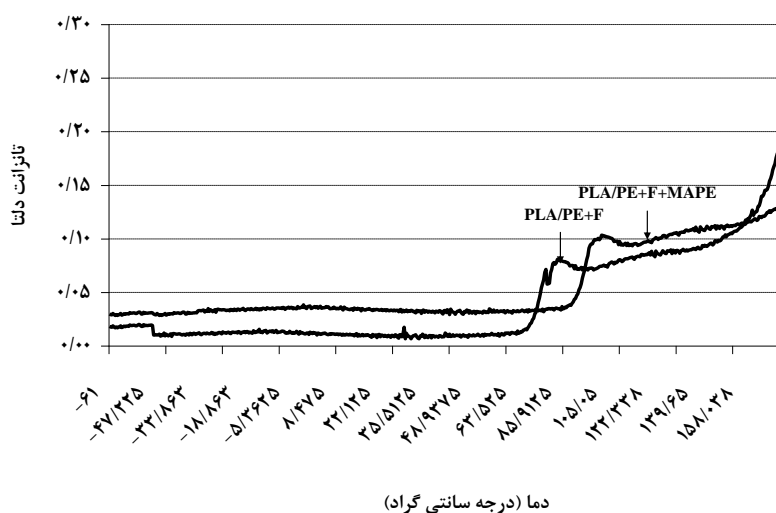
شکل ۶- تأثرات دلتا چندسازه پلی لاکتیک اسید پرشده با الیاف طبیعی

پلی اتیلن در ساختار چندسازه باعث دیده شدن پیک‌هایی مانند چندسازه پلی لاکتیک اسید شده است اما با این تفاوت که به‌کار بردن اتصال‌دهنده که باعث اتصال بهتر بین دو فاز و کاهش تحرک زنجیره شده است به سمت دمای بالاتر سوق یافته است ولی پیک آن نیز به سمت بالای نمودار حرکت کرده است.

در شکل ۷ نیز مشاهده می‌شود که استفاده از الیاف طبیعی در ساخت چندسازه پلی اتیلن پیک‌های مربوطه را به سمت پایین سوق داده است که نشان‌دهنده محدودیت حرکت مولکول‌ها به دلیل حضور الیاف در ساختار چندسازه پلی اتیلن می‌باشد. در شکل ۸ به‌کار بردن همزمان پلی لاکتیک اسید و



شکل ۷- تأثرات دلتا چندسازه پلی اتیلن پر شده با الیاف طبیعی



شکل ۸- تأثرات دلتا چندسازه پلی لاکتیک اسید/پلی اتیلن پر شده با الیاف طبیعی



## بحث

ما در این پژوهش ویژگی‌های کششی و دینامیکی- مکانیکی چندسازه پلی لاکتیک اسید/خاک اره، پلی اتیلن/خاک اره و چندسازه پلی لاکتیک اسید/ پلی اتیلن/خاک اره را با و بدون اتصال دهنده مورد بررسی قرار دادیم.

در این تحقیق از ۳۰ درصد خاک اره به عنوان پرکننده و ۳ درصد اتصال دهنده انیدریدمالئیک پیوند خورده با پلی اتیلن (MAPE) استفاده شده است. از پلی لاکتیک اسید به عنوان پلیمر زیست تجزیه پذیر و پلی اتیلن به عنوان پلیمر سنتز شده از نفت خام به عنوان ماتریس استفاده شده است و سعی بر نشان دادن خواص مورد مقایسه پلی لاکتیک اسید با پلی اتیلن بوده است که شاید استفاده از این پلیمر زیست تجزیه پذیر در استفاده‌های صنعتی باعث کمک به محیط زیست و تولید محصولی با کیفیت تر شود.

بررسی مدول الاستیسیته کششی نشان داد که به کارگیری خاک اره باعث افزایش قابل توجهی از سفتی در تمامی چندسازه‌ها شده است. این موضوع نشان دهنده انتقال تنش از ماتریس پلیمری به الیاف سفت تر است (Pan et al., 2007). استفاده همزمان از پلی اتیلن و پلی لاکتیک اسید باعث مشاهده بالاترین مدول کششی در بین چندسازه‌ها شده است؛ بنابراین اختلاط دو پلیمر با همدیگر توانسته‌اند در انتقال تنش به صورت مؤثرتری ایفای نقش کرده و چندسازه سفت تری را ارائه دهند.

افزودن خاک اره به عنوان ماده لیگنوسلولزی به هر دو پلیمر PE و PLA باعث کاهش در مقاومت کششی چندسازه شده است؛ این موضوع را می‌توان به چسبندگی ضعیف بین الیاف و ماتریس نسبت داد که منجر به فعل و انفعالات ضعیف بین سطح مشترک و عدم اتصال بین ماتریس و الیاف در طی تغییر شکل کششی شده است. عدم اتصال موجب شکل گیری فضاهای خالی می‌شود، به طوری که مقاومت کششی کمتری به علت اینکه ترک‌ها به راحتی می‌توانند از طریق مناطق خالی حفره‌ها ایجاد شوند را در پی خواهد داشت (Bleach et al., 2002). در صورتی که بکار بردن همزمان دو پلیمر باعث افزایش در مقاومت کششی

چندسازه شده است که با توجه به دلایل فوق می‌توان بیان کرد که وجود دو پلیمر با همدیگر در ساختار چندسازه باعث کاهش ایجاد فضای خالی در ساختار شده و در نهایت مقاومت کششی بالاتری مشاهده شده است. بکار بردن اتصال دهنده در هر سه ترکیب باعث بهبود در مقاومت کششی شده است، زیرا اتصال دهنده با بهبود ایجاد سطح مشترک قوی تر باعث ایجاد اتصال قوی تر بین پلیمر و الیاف شده است.

ویژگی دینامیکی- مکانیکی به ویژگی‌های فیزیکی یا آرایش ساختاری فازها از قبیل سطح مشترک، ریخت شناسی و ذات اجزای تشکیل دهنده وابسته است (Sreekala & Thomas, 2005; Jawaid et al., 2011). محققان توصیف کردند که حضور سازگار کننده، افزودنی‌های از قبیل پرکننده، میزان الیاف، جهت گیری الیاف و طریقه آزمون کنترل کننده ویژگی‌های مکانیکی- دینامیکی مواد چندسازه است (Jacob et al., 2006).

در بررسی مدول ذخیره چندسازه‌های ساخته شده مشاهده شد که با افزایش دما، مدول ذخیره کاهش یافت. Liang و همکاران (۲۰۱۰) و Huda و همکاران (۲۰۰۶) عنوان کردند که کاهش مدول ذخیره با افزایش یافتن دما به نرم شدن ماتریس مرتبط است.

افزودن ۳۰ درصد خاک اره به PLA و PE باعث افزایش در مدول ذخیره چندسازه شده که می‌توان این موضوع را به خاصیت تقویت کنندگی الیاف طبیعی نسبت داد که نشان دهنده انتقال مؤثر تنش از ماتریس به الیاف طبیعی می‌باشد (Rana et al., 1996). George و همکاران (۱۹۹۶) مشاهده کردند که با مشارکت الیاف طبیعی (جوت) در ماتریس خالص پلی اتیلن با دانسیته سنگین، مدول ذخیره چندسازه افزایش یافته است. آنان این موضوع را به علت افزایش در سفتی ماتریس با اثر تقویت کنندگی الیاف مرتبط می‌دانند که منجر به انتقال تنش بیشتر در سطح مشترک می‌شود (George et al., 1996). در تمامی چندسازه‌های ساخته شده مشخص است که افزودن MAPE تأثیر مثبت و فزاینده‌ای بر روی مدول ذخیره داشته است. Mohanty و

می‌شود (Felix & Gatenholm, 1991). همچنین افت در پیک با استفاده از الیاف و اتصال‌دهنده با شدت بیشتر نشان‌دهنده این است که پیوندهای سطح مشترک ضعیف بین الیاف طبیعی و ماتریس گرایش به پراکندگی بیشتر انرژی را باعث می‌شوند (Ashida & Noguchi, 1983).

تیزی سقوط رخ داده شده در تمامی چندسازه‌های مورد بررسی بین دمای ۵۰ تا ۷۰ درجه سانتی‌گراد رخ داده که با میزان دمای انتقال شیشه‌ای (Tg) مرتبط است. میزان Tg به‌عنوان پیک در منحنی مدول ذخیره در آزمون دینامیکی مکانیکی به‌دست می‌آید.

با حضور الیاف میزان Tg در ماتریس PLA افزایش یافته است. میزان Tg در PLA خالص و استفاده از ۳۰ درصد خاک اره در حدود ۵۷ درجه سانتی‌گراد رخ داده که استفاده از ۳ درصد اتصال‌دهنده این دما را به ۶۶/۳ درجه سانتی‌گراد رسانده است. دمای انتقال شیشه‌ای، محدوده دمایی است که سفتی مواد را نشان می‌دهد. این ناحیه ابتدای کاهش در مدول ذخیره را نشان می‌دهد که به‌اتفاق آن پیک تانژانت دلتا به وجود می‌آید. تغییر میزان Tg به دمای بالاتر را می‌توان به کاهش تحرک زنجیره ماتریس با افزودن الیاف نسبت داد. به‌طوری‌که بالاتر از میزان Tg برای PLA خالص، مدول ذخیره چندسازه سقوط ناگهانی کرده، زیرا مولکول‌های آمورف و شیشه‌ای به سمت فاز لاستیک رفتند (Rana *et al.*, 1996). سقوط تیزی در دمای بالاتر در چندسازه نشان‌دهنده سختی این مواد با استفاده از الیاف طبیعی است. کاهش در تحرک زنجیره پلیمرها را می‌توان در ناحیه ویسکوز هم مورد بررسی قرارداد که PLA خالص کمترین میزان مدول را داشته که نشان‌دهنده ویسکوزیته بالای این ماده است اما در همین ناحیه افزودن خاک اره باعث بالا رفتن مدول شده و حالت ویسکوزیته کمتری را نشان می‌دهد که نشان‌دهنده کاهش تحرک زنجیره‌هاست. بررسی سایر تحقیقات در این حوزه نشان داد که دمای انتقال شیشه‌ای با پلیمر PE تغییرات چندانی نشان نداده است (Mohanty *et al.*, 2006).

همکاران (۲۰۰۶) افزایش در مدول ذخیره را با افزایش MAPE به بهبود چسبندگی سطح مشترک بین الیاف و ماتریس نسبت دادند.

مدول ذخیره در دمای بالاتر از ۸۰ درجه سانتی‌گراد اندکی افزایش یافته که مربوط به بلورینگی سرد در PLA است (Song *et al.*, 2013; Oksman *et al.*, 2003) که این موضوع در پلی‌اتیلن و ترکیب PLA و PE مشاهده نشده است.

تانژانت دلتا به‌عنوان یک عدد بدون بعد بیان می‌شود که به‌عنوان فاکتور میرایی مکانیکی نسبت اتلاف به ذخیره مدول تعریف می‌شود ( $\tan \delta = E''/E'$ ). استفاده از خاک اره به‌عنوان ماده لیگنوسلولزی در ساخت چندسازه پلی‌لاکتیک‌اسید و همچنین پلی‌اتیلن باعث انتقال پیک به سمت پایین و دمای بالاتر شده است و به‌کارگیری MAPE انتقال به دمای بالاتر را به‌صورت محسوس‌تر نشان داده است. انتقال به دمای بالاتر و همچنین کاهش ارتفاع پیک در بررسی تانژانت دلتا معمولاً نشان‌دهنده محدودیت حرکت مولکول‌ها به‌دلیل بهبود یافتن واکنش الیاف در پلیمر PLA می‌باشد (Guo & Ashida, 1993).

در بررسی‌های انجام‌شده به‌وسیله Pothan و همکاران (۲۰۰۳) و Taib و همکاران (۲۰۱۰) عنوان شده است که وجود الیاف سلولزی باعث جلوگیری از تحرک زنجیره پلیمری شده، در نتیجه تیزی و ارتفاع پیک  $\tan \delta$  را کاهش داده و پهنای پیک افزایش خواهد یافت (Taib *et al.*, 2010; Pothan *et al.*, 2003). همچنین Huda و همکاران (۲۰۰۵b) عنوان کردند که کاهش ارتفاع پیک  $\tan \delta$  بیانگر محدودیت حرکت زنجیره‌ها است که در PLA خالص وجود ندارد.

کاهش در پیک تانژانت دلتا با استفاده از الیاف و MAPE به علت این است که الیاف وسعت بیشتری از تنش را منتقل کرده و تنها بخش کوچکی از کرنش در سطح مشترک را سبب می‌شوند (Mohantry *et al.*, 2006)؛ بنابراین اتلاف انرژی در ماتریس رخ داده و در سطح مشترک با سطح مشترک قوی‌تری با اتلاف انرژی کمتر مشخص

## نتیجه‌گیری

## منابع مورد استفاده

- Ashida, M. and Noguchi T., 1984. Dynamic module for short fibre-CRcomposites. *Journal of Applied Polymer Science*, 29 (2):661-70.
- Bledzki, A.K. and Jaszkiwicz, A., 2010. Mechanical performance of biocomposites based on PLA and PHBV reinforced with natural fibres - A comparative study to PP. *Composites Science and Technology*, 70 (10): 1687-1696.
- Boubekeur, B., Belhaneche- Bensemra, N. and Massardier, V., 2015, Valorization of waste jute fibers in developing low-density polyethylene /poly lactic acid bio-based composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 38(4):649-661.
- Bleach, N.C., Nazhat, S.N, Tanner, K.E., Kellomaki, M. and Törmälä P., 2002. Effect of filler content on mechanical and dynamic mechanical properties of particulate biphasic calcium phosphate-poly(lactide) composites. *Biomaterials*, 23(7):1579-85.
- Felix, J.M, and Gatenholm, P., 1991. The nature of adhesion in composites of modified cellulose fibres & polypropylene. *Journal of Applied Polymer Science*, 42 (3):609-620.
- George, J., Bhagawan, S.S. and Thomas, S., 1996. Thermo gravimetric & dynamic mechanical thermal analysis of pineapple fibre reinforced polyethylene composites. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 47 (4): 1121-40.
- Guo, W. and Ashida, M., 1993. Dynamic viscoelasticities for short fiber-thermoplastic elastomer composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 50 (8): 1435-1443
- Graupner N., 2008, Application of lignin as natural adhesion promoter in cotton fiber-reinforced poly(lactic acid) (PLA) composites. *Journal of Materials Science*; 43 (15): 5222-5229.
- Huda, M., Mohanty, A. and Drzal, L., (2005b). Green Composites from Recycled Cellulose and Poly (lactic acid): Physico-mechanical and Morphological Properties Evaluation. *Journal of Material Science*, 40 (16): 4221-4229.
- Huda, M.S., Drzal, L.T. and Misra, M., 2005. A Study on Biocomposites from Recycled Newspaper Fiber and Poly(lactic acid). *Journal of Industrial & Engineering Chemistry*, 44 (15): 5593-5601.
- Huda, M. S., Drzal, L. T., Mohanty, A. K. and Misra, M., 2006. Chopped glass and recycled newspaper as reinforcement fibers in injection molded poly(lactic acid) (PLA) composites: a comparative study. *Composites Science Technology*, 66 (11-12):1813-1824.
- Huda, M.S., Drzal, L.T., Mohanty, A.K. and Misra, M., 2008. Effect of fiber surface-treatments on the

- افزودن خاک اره به عنوان ماده لیگنوسلولزی باعث افزایش در مدول الاستیسیته کششی چندسازه ساخته شده با پلی لاکتیک اسید و پلی اتیلن شده است.
- استفاده از خاک اره باعث کاهش در مقاومت کششی چندسازه‌های ساخته شده نسبت به پلیمرهای خالص شده است ولی استفاده همزمان از دو پلیمر و خاک اره باعث بهبود و افزایش در مقاومت کششی نسبت به سایر چندسازه‌ها شده است.
- استفاده از اتصال دهنده MAPE به علت خاصیت تقویت کنندگی برهم کنش بین دو فاز ماتریس و پرکننده باعث بهبود در ویژگی‌های کششی نسبت به چندسازه‌های بدون اتصال دهنده شده است.
- در بررسی مدول ذخیره و تاثرات دلتا چندسازه‌های ساخته شده با PE, PLA و خاک اره حاصل از کاج تدا و استفاده از اتصال دهنده MAPE مشخص گردیده است که:
- با افزایش دما از ۶۰- تا ۱۷۰ درجه سانتی‌گراد مدول ذخیره چندسازه‌های ساخته شده و پلیمرهای خالص کاهش یافته است.
- با افزودن الیاف به پلیمرهای پلی لاکتیک اسید و پلی اتیلن، مدول ذخیره چندسازه‌ها افزایش خوبی را نشان داده است.
- استفاده از MAPE به علت افزایش سازگاری بین پلیمر و خاک اره باعث افزایش بیشتری در سفتی چندسازه‌ها شده است.
- افزودن الیاف به پلیمرها باعث افزایش در دمای انتقال شیشه‌ای چندسازه‌ها به سمت دماهای بالاتر شده است.
- با افزودن الیاف و اتصال دهنده به ساختار چندسازه‌ها مشاهده شد که پیک‌های تاثرات دلتا به سمت دماهای بالاتر و افت پیک تغییر کردند. با افزودن اتصال دهنده روند مذکور شدت بیشتری را نشان داده است و مشخص گردید که افزودن الیاف و به ویژه اتصال دهنده تحرک پذیری زنجیره مولکولی را کاهش داده است.

- Science and Technology, 63 (2): 283-293.
- Rana, A. K., Mitra, B. C. and Banerjee, A. N., 1999. Short jute fiber-reinforced polypropylene composites: dynamic mechanical study. *Journal of Applied Polymer Science*, 71(4):531-539.
- Romanzini, D., Lavoratti, A., Ornaghi, H.L., Amico, S.C. and Zattera, A.J., 2013. Influence of fiber content on the mechanical and dynamic mechanical properties of glass/ ramie polymer composites. *Materials & Design*, 47 (3) 9-15.
- Saba, N., Paridah, M.T. and Jawaid, M., 2015. Mechanical properties of kenaf fiber reinforced polymer composite: a review. *Construction and Building Materials*, 76 (1) 87-96.
- Saba, N., Jawaid M., Althman, O.Y. and Paridah, M.T., 2016. A review on dynamic mechanical properties of natural fibre reinforced polymer composites. *Construction and Building Materials*, 106 (2):149-159.
- Sreekala, M.S. and Thomas, S.G.G., 2005. Dynamic mechanical properties of oil palm fiber/ phenol formaldehyde and oil palm fiber/glass hybrid phenol formaldehyde composites. *Polymer Composites*, 26 (3): 388-400
- Song, Y., Liu, J., Chen, S., Zheng, Y., Ruan, S. and Bin, Y., 2013. Mechanical Properties of Poly (Lactic Acid)/ Hemp Fiber Composites Prepared with a Novel Method. *Journal of Polymers and the Environment*, 21 (4): 1117-1127
- Sis, A.L.M., Ibrahim, N.A. and Yunus, W.M., 2013. Effect of (3- aminopropyl) trimethoxysilane on mechanical properties of PLA/PBAT blend reinforced kenaf fiber. *Iranian Polymer Journal*, 22 (2): 101-108.
- Taib, R.M., Ramarad, S., Ishak, Z.A.M. and Todo, M., 2010. Properties of kenaf fiber/polylactic acid biocomposites plasticized with polyethylene glycol. *Polymer Composites*, 31(7):1213-1222.
- Wambua, P., Iven, J. and Verpoest, I., 2003. Natural Fibers: Can They Replace Glass in Fibers Reinforced Plastics, *Composites Science and Technology*, 63(3): 1259-1264.
- Yu, T., Jiang, N. and Li, Y., 2014. Study on short ramie fiber/poly (lactic acid) composites compatibilized by maleic anhydride. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 64:139-146.
- properties of laminated bio composites from poly(lactic acid) (PLA) and kenaf fibers. *Composites Science Technology*, 68 (2):424-432.
- Jawaid, M. and Khalil, H.P.S.A., 2011. Effect of layering pattern on the dynamic mechanical properties and thermal degradation of oil palm-jute fibers reinforced epoxy hybrid composite. *BioResources* 6 (3) 2309-2322.
- Liang, Z., Pan, P., Zhu, B., Dong, T. and Inoue, Y., 2010. Mechanical and thermal properties of poly (butylene succinate)/plant fiber biodegradable composite. *Journal of Applied Polymer Science*, 115(6): 3559-3567.
- Ibrahim, N. A., Yunus, W., Othman, M., Abdan, K. and Hadithon, K. A., 2010. Poly (Lactic Acid) (PLA)-reinforced Kenaf Bast Fiber Composites: The Effect of Triacetin, *Journal of Reinforced plastics and composites*, 29 (7): 1099-1111
- Jacob, M., Francis, B., Thomas, S. and Varughese, K.T., 2006. Dynamical mechanical analysis of sisal/oil palm hybrid fiber-reinforced natural rubber composites, *Polymer Composites*, 27 (6) 671-680.
- Mohanty, S., Verma, S.K. and Nayak, S.K., 2006. Dynamic mechanical and thermal properties of MAPE treated jute/HDPE composites. *Composites Science and Technology*, 66(3-4) 538-547.
- Nayak, S. K., Mohanty, S. and Samal, S. K., 2009. Influence of short bamboo/glass fiber on the thermal, dynamic mechanical and rheological properties of polypropylene hybrid composites. *Materials Science and Engineering: A*, 523 (1-2): 32-38.
- Ochi, S., 2008. Mechanical properties of kenaf fibers and kenaf/ PLA composites. *Mechanics of Materials*, 40(4-5): 446-452
- Oksman, K., Skrifvars, M. and Selin, J. F., 2003. Natural fibers as reinforcement in poly(lactic acid) (PLA) composites. *Composites Science Technology*, 63(9):1317-1324.
- Pan, P., Zhu, B., Kai, W., Serizawa, S., Iji, M. and Inoue, Y., 2007. Crystallization behavior and mechanical properties of bio-based green composites based on poly (L-lactide) and kenaf fiber. *Journal of Applied Polymer Science*, 105(3):1511-20.
- Pothan, L. A., Oommen, Z. and Thomas, S., 2003. Dynamic mechanical analysis of banana fiber reinforced polyester composites. *Composites*

## Comparison of tensile properties and mechanical-dynamic analysis of poly-lactic acid / poly-ethylene reinforced with natural fibers

H. Aibaghi esfahani<sup>1\*</sup>, M. Kalagar<sup>2</sup> and H. Sepahri Rad<sup>3</sup>

1\*-Corresponding Author, Faculty Member, Department of Architecture, Zahedan Branch, Islamic Azad University, Zahedan, Iran, Email: Aibaghi.esfahani@gmail.com

2- Ph.D., wood and paper industry, research and innovation center of ETKA organization, Tehran, Iran

3- Faculty Member, Department of Architecture, Zahedan Branch, Islamic Azad University, Zahedan, Iran

Received: Jan., 2018

Accepted: April, 2018

### Abstract

In this study, the tensile and dynamic-mechanical properties of composites made using poly-lactic acid polymer (PLA) and high density polyethylene (HDPE) as matrix and sawdust (30%) as reinforcement were investigated. Maleic anhydride bonded with polyethylene (MAPE) (30%) was used to enhance the bonding. The addition of sawdust increased the stiffness of composites while the use of this material reduced the tensile strength of composites. The highest tensile properties (elastic modulus and tensile strength) were related to poly lactic acid/ polyethylene/ sawdust/ coupling agent composites. The addition of natural fibers to both matrices (PLA and MAPE) increased the composite storage modulus compared to pure polymers, while the modulus of storage in pure polyethylene and its composite was higher. Simultaneous use of two polymers at an equal ratio (33.5% by weight) and saw dust in the composite have generated the stiffness between the composites made with single polymers. The use of natural fibers reduced the mobility of the molecular chain and shifted the temperature of the composite to higher temperatures, which eventually moved the corresponding corners to the right and lower. However, in some cases, the transmission of pixels has not followed the normal process. The addition of the coupling agent (MAPE) improved bonding between two phases in all composites and ultimately increased stiffness.

**Keywords:** Composites, sawdust, poly lactic acid, polyethylene, tensile properties, dynamic-mechanical analysis.