




Effect of Presence LDPE on Mechanical and Electrical Properties of CB/HDPE Segregated Structure

Research Article

Mehran Teimoury¹ Samaneh Sahebian²  Seyed Abdolkarim Sajjadi³

DOI: [10.22067/jmme.2023.83646.1118](https://doi.org/10.22067/jmme.2023.83646.1118)

1- Introduction

The fabrication of polymer-based composites with segregated structure using conductive fillers is one of the methods to achieve a material with desirable electrical conductivity in low weight percentage of the conductive reinforcement. Using of carbon materials such as graphite, carbon nanotubes, and carbon black as the conductive phase, compared to metals in polymer matrix composites, is one of the ways to reduce production costs and achieve superior electrical properties in the segregated structure of composites [1-4]. The weak mechanical properties of segregated structure compared to composite with random distribution is related to the weak interface and the accumulation of micro-holes at the boundary of the two phases. To solve it, the use of polymer reinforcing phase with lower molecular weight compared to matrix is suggested.

2- Experimental

The matrix phase of the composite in this study is High-Density Polyethylene (HDPE) and Carbon Black (CB) were used as the conductive phase with particle sizes between 20 to 50 nm. Low-Density Polyethylene (LDPE) was selected as a secondary reinforcing phase. CB/HDPE composite samples without of LDPE phase and in the presence of 0.5% wt LDPE with 0-5% by weight of carbon black were prepared under hot pressing at a pressure of 16 tons, in the temperature range of 122 to 124 °C.

Results and Discussion

Considering the FESEM images obtained from the tensile test in Figure 1-a, fracture surfaces of HDPE/2% wt CB

and HDPE/2% wt CB/0.5% wt LDPE composites can be observed. For both samples, the segregated structure or conductive paths is well visible. Besides, in the HDPE/2% wt CB/0.5% wt LDPE composite, the presence of LDPE fibers can be seen in the interface of two phases. The results of electrical conductivity (Fig 1-b) show that the addition of 0.5% by weight of LDPE caused a decrease in electrical conductivity due to destruction in the segregate path.

According to Table 1, due to the imperfect melting of polyethylene granules and the presence of structural defects such as holes and a weak interface between two phases, the mechanical properties of all segregated structure are lower than the pure HDPE. By adding the carbon black powders, the amount of stress required to start the plastic deformation shows a decreasing trend. The presence of soft phase of LDPE in the interface of composite, the amount of structural defects has decreased, but the low resistance of this phase against plastic deformation causes easier conformation of polymer chains at lower stress levels. This trend is clearly observed for HDPE/1% wtCB/0.5% wt LDPE composite. By increasing the weight percentage of carbon black to 2% wt, the effect of the soft micron phase in the interface with the presence of carbon black nanoparticles is reduced and the increasing trend of the yield stress can be seen.

*Manuscript received: July 27, 2023, Revised: August 30, 2023, Accepted, November 29, 2023.

¹ M.sc Student Department of material science and engineering, faculty of engineering, Ferdowsi university of Mashhad, Mashhad, Iran.

² Corresponding Author. Assistant professor, Department of Material science and Engineering, faculty of engineering, Ferdowsi university of Mashhad, Mashhad, Iran. **Email:** s.sahebians@um.ac.ir.

³ Professor, Department of material science and engineering, faculty of engineering, Ferdowsi university of Mashhad, Mashhad, Iran.

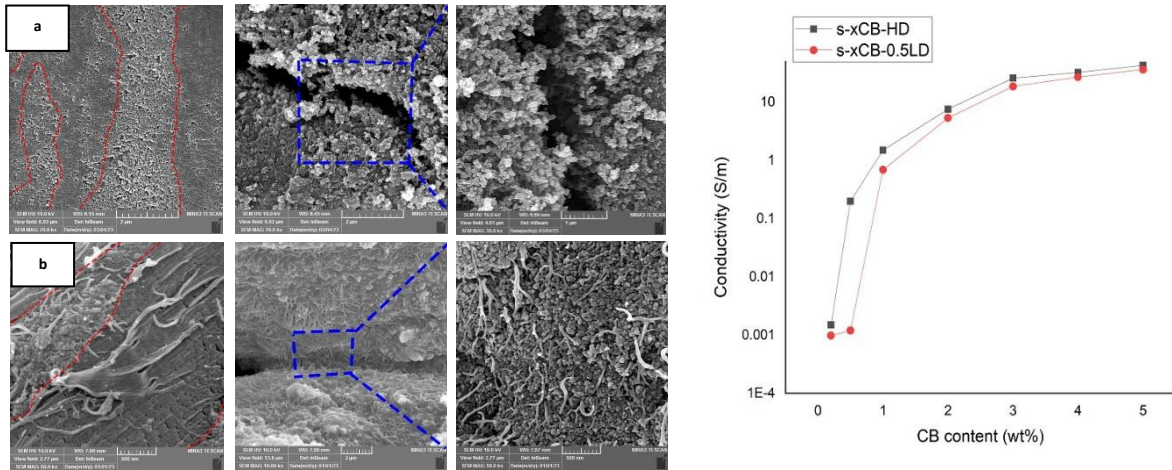


Figure 1-a: FESEM Images of Fractured Surface a) Composite containing 2%wt CB b) Composite containing 2%wt CB/0.5%wt LDPE. **b:** Changes in electrical conductivity as a function of CB weight percentage in two composites containing 2%wt CB and 2%wt CB/0.5%wt LDPE.

Table 1: Mechanical Properties Results of the Composite with Segregated Structure

Yield Strength (MPa)	Young's Modulus (GPa)	Samples
3.9	0.282	HDPE
2.89	0.290	1CB-HD
1.85	0.204	1CB-0.5LD
4.04	0.311	2CB-HD
2.27	0.250	2CB-0.5LD

3- Conclusion

In this research, using dry mixing and hot compression molding, xCB-HD and xCB-0.5LD composite samples with segregated structure were. The cumulative distribution of CB in the HDPE has been very favorable in increasing electrical conductivity. The addition of 0.5% LDPE caused a drop in electrical conductivity. But the addition of LDPE did not improve mechanical properties such as yield strength and Young's modulus.



بررسی حضور LDPE بر خواص مکانیکی و رسانایی الکتریکی کامپوزیت سگرگیت CB/HDPE*

مقاله پژوهشی

سید مهران تیموری^(۱) سمانه صاحبیان سقی^(۲) سید عبدالکریم سجادی^(۳)

DOI: 10.22067/jmme.2023.83646.1118

چکیده با توجه به کاربرد کامپوزیت‌های پایه پلیمری رسانا با ساختار سگرگیت در صنایع الکترونیک و هوافضا، بحث خواص مکانیکی آنها اهمیت پیدا کرده است. در این پژوهش از پلی‌اتیلن با چگالی بالا (HDPE) (High Density Polyethylene)، فاز رسانای کربن سیاه (CB) (Carbon Black) و فاز پلی‌اتیلن با چگالی کم (LDPE) (Low Density Polyethylene) به عنوان فاز تقویت کننده برای ساخت کامپوزیت استفاده شد. در ساخت نمونه‌ها از روش اختلاط مکانیکی و در ادامه از پرس گرم استفاده شد. رسانش نمونه‌ها برای اطمینان از تشکیل ساختار سگرگیت اندازه‌گیری شد. نتایج داده‌های رسانایی حاکی از شکل‌گیری ساختار سگرگیت و کاهش مقاومت الکتریکی ساختار سگرگیت با افزایش درصد وزنی کربن سیاه می‌باشد. در نمونه xCB-HD بیشینه رسانایی الکتریکی 43.10 S/m و در نمونه xCB-ILD نیز 36.62 S/m بدست آمد. ارزیابی تصاویر میکروسکوپی نیز تشکیل مسیرهای رسانا در ساختار را تایید می‌کند. با افزایش فاز رسانای کربنی در مرز گرانول‌ها به سبب ایجاد عیوب ساختاری روند کاهشی استحکام تسلیم در دو دسته ساختار سگرگیت نسبت به پلی‌اتیلن خالص مشاهده شد. با افزایش درصد وزنی کربن سیاه از ۱ به ۲ درصد وزنی بهبود ۲۰ تا ۴۰ درصدی استحکام تسلیم و ۷ تا ۲۲ درصدی مدول یانگ در ساختارهای سگرگیت xCB-HD و xCB-ILD شد.

واژه‌های کلیدی ساختار سگرگیت، خواص مکانیکی، رسانایی الکتریکی، کامپوزیت پایه پلیمری، استحکام تسلیم، مدول یانگ.

Effect of Presence LDPE on Mechanical and Electrical Properties of CB/HDPE Segregated Structure

Mehran Teimoury Samaneh Sahebian Seyed Abdolkarim Sajjadi

Abstract

Considering the application of conductive polymer composites with segregated structure in electronics and aerospace industries, their mechanical properties becomes important. In this research, High Density Polyethylene (HDPE), Carbon Black (CB) as conductive phase and Low Density Polyethylene (LDPE) were used as reinforcing phase to make composite. Mechanical mixing followed by hot pressing was used to prepare composites. The conductivity of the samples was measured to ensure the formation of segregated structure. In the xCB-HD sample, the maximum electrical conductivity was 43.10 S/m and in the xCB-ILD sample, it was 36.62 S/m. Evaluation of microscopic images also confirms the formation of conductive paths in the structure, and microscopic images also confirmed the results of electrical conductivity. With the increase of the conductive carbon phase at the boundary of the HDPE granules due to the creation of structural defects, the yield strength decreasing trend was observed compared to pure polyethylene. By increasing the weight percentage of carbon black from 1 to 2 weight percent, yield strength improved by 20 to 40 percent and Young's modulus by 7 to 22 percent in xCB-HD and xCB-ILD segregated structures.

Keywords Segregated Structure, Mechanical Properties, Electrical Conductivity, Conductive Polymer Composites, Yield Strength, Young's Modulus.

* تاریخ دریافت مقاله ۱۴۰۲/۵/۵ و تاریخ پذیرش آن ۱۴۰۲/۹/۱۳ می‌باشد.

(۱) دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی مواد، گرایش شناسایی و انتخاب مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه فردوسی مشهد.

(۲) نویسنده مسئول، استادیار گروه مهندسی مواد و متالورژی، دانشکده مهندسی، دانشگاه فردوسی مشهد. Email: s.sahebians@um.ac.ir

(۳) استاد، گروه مهندسی مواد و متالورژی، دانشکده مهندسی، دانشگاه فردوسی مشهد.

مقدمه

ساخت کامپوزیت‌های پایه پلیمری با استفاده از پرکننده‌های رسانا یکی از روش‌های دستیابی به ماده‌ای با رسانایی الکتریکی مطلوب می‌باشد. کامپوزیت‌های پایه پلیمری با پرکننده‌های کربنی در اغلب پژوهش‌های کامپوزیت‌های رسانا مورد بررسی قرار گرفته‌اند. معمولاً برای دستیابی به بالاترین رسانایی از توزیع تجمعی (ساختار سگ‌رگیت) فاز رسانا در زمینه استفاده می‌شود. عمده کاربرد این کامپوزیت‌ها در زمینه مهندسی الکترونیک و هوافضا می‌باشد [1-4].

زمینه پلیمری مورد استفاده در کامپوزیت‌های پایه پلیمری رسانا، غالباً از جنس ترموپلاست‌ها می‌باشند. از جمله پلیمرهای مذکور می‌توان به پلی‌اتیلن در وزن‌های مولکولی بالا، پلی‌پروپیلن، پلی‌وینیل کلراید، پلی‌لاکتیک اسید و پلی‌اورتان اشاره کرد. با توجه به دارا بودن خواص مطلوبی نظیر سبکی، مقاومت در برابر خوردگی و قیمت مناسب پلیمرها، این مواد همواره از گزینه‌های نخست برای استفاده به عنوان زمینه در کامپوزیت با رسانایی بالا می‌باشند [1-4].

ساخت مواد رسانا از طریق کامپوزیت سازی یکی از روش‌هایی است که موجب کاهش هزینه‌های تولید می‌شود. فلزات به عنوان فاز رسانا در دسترس‌ترین مواد محسوب می‌شوند. اما استفاده از مواد کربنی مانند گرافیت، نانولوله کربنی و کربن سیاه به عنوان فاز رسانا در مقایسه با مواد فلزی در کامپوزیت‌های زمینه پلیمری به عنوان یکی از راه‌های کاهش هزینه‌های تولید و دستیابی به خواص الکتریکی برتر می‌باشند. یکی از برتری‌های استفاده از مواد کربنی به عنوان فاز رسانا حد آستانه بسیار کم آن (کمتر از 15 wt%) است، در حالی که استفاده از فاز ثانویه فلزی میزان حد آستانه بین ۳۰ تا ۶۰ درصد وزنی را دارا می‌باشد [1-5].

تا پیش از قرن بیست و یکم، موضوعات تحقیقات و پژوهش‌ها استفاده از توزیع تصادفی برای تولید کامپوزیت‌های رسانا بوده است. اما یکی از چالش‌های اصلی محققین در این نوع ساختارها استفاده کمتر از فاز ثانویه رسانا و کاهش قیمت تمام شده قطعه تولیدی بوده است. پژوهشگران برای دستیابی به یک درصد حجمی کمتر و (حد آستانه) کمتر در تولید این نوع از کامپوزیت‌ها، ساختار سگ‌رگیت را پیشنهاد دادند. با ورود به

قرن بیست و یکم، به تدریج مطالعات و تحقیقات گسترده‌ای در رابطه با ساختار سگ‌رگیت کامپوزیت‌های پایه پلیمری رسانا انجام شد. تا به امروز استفاده از ساختار سگ‌رگیت در کامپوزیت‌های پایه پلیمری رسانا بهترین راهکار برای کاهش درصد حجمی فاز پرکننده در کنار افزایش قابل توجه رسانایی بوده است. رایج‌ترین روش دستیابی به ساختار سگ‌رگیت استفاده از اختلاط و پرس گرم در دما و فشار کنترل شده می‌باشد [11-13].

یکی از مواردی که کاربری کامپوزیت‌های پایه پلیمری رسانا با ساختار سگ‌رگیت را تحت شعاع قرار داده، خواص مکانیکی آنها می‌باشد. در این دسته از کامپوزیت‌ها با وجود اینکه رسانایی الکتریکی مطلوب با کمترین حد آستانه بدست می‌آید، اما افت خواص مکانیکی نظیر شکل پذیری و چقرمگی آن از چالش‌های جدی این دسته از مواد بوده که کاربری آن را محدود ساخته است. در حقیقت در ساختار سگ‌رگیت کامپوزیت پایه پلیمری، جدایش بین پرکننده‌های رسانا و زمینه ایجاد می‌شود که این امر سبب بوجود آمدن ریز حفره‌هایی در مسیر سگ‌رگیت رسانا می‌شود. حضور ریز حفره‌ها به دلیل سهولت در ایجاد و رشد ترک باعث افت چشمگیر خواص مکانیکی خواهد شد [11-13].

پانگ و همکارانش به بررسی رسانایی و خواص مکانیکی کامپوزیت CNT/UHMWP و CNT/HDPE/UHMWP با ساختار سگ‌رگیت پرداختند. در این پژوهش دو روش اختلاط در حالت محلول و در حالت خشک استفاده شد. ساخت نمونه‌های کامپوزیتی با پرس گرم انجام شد. نتایج این پژوهش نشان داد که با افزودن فاز HDPE به کامپوزیت CNT/UHMWP رسانایی افت و خواص مکانیکی افزایش یافته است [5]. زویس و همکارانش کامپوزیت PP/CB با ساختار سگ‌رگیت را به روش قالبگیری پرس گرم با دمای ۲۰۰ درجه سانتیگراد و فشار 22.5 KN/cm² تولید کردند. نتیجه پژوهش آنها دستیابی به رسانایی 1.5 S/cm در حد آستانه ۶٫۵ درصد کربن سیاه بوده است [6]. گوپتا و همکارانش نیز به ارزیابی رفتار رسانایی الکتریکی کامپوزیت ABS/CB با دو نوع توزیع تصادفی و سگ‌رگیت پرداختند. طبق پژوهش آنها حد آستانه کربن سیاه در توزیع تصادفی ۲٫۷ درصد حجمی و در توزیع سگ‌رگیت ۰٫۰۵۴ درصد حجمی بوده است. همچنین براساس نتایج این پژوهش، رسانایی الکتریکی ساختار سگ‌رگیت به وضوح خیلی بیشتر از توزیع

و عدم حضور LDPE بررسی شود. روش آماده سازی نمونه‌ها براساس اختلاط مکانیکی و قالبگیری پرس گرم انتخاب شد.

مواد و روش تحقیق

مواد اولیه

فاز زمینه کامپوزیت موردنظر در این پژوهش پلی اتیلن با چگالی بالا (HDPE) می‌باشد که بصورت پودر از شرکت بسیار تجارت آسیا خریداری شده که دارای ابعادی در بازه ۲۵۰ تا ۵۰۰ میکرون، نقطه ذوب 127°C و چگالی 0.952 g/cm^3 می‌باشد. کربن سیاه (CB) با گرید N220 از شرکت سیمرخ به عنوان فاز رسانا در کامپوزیت موردنظر استفاده شد؛ اندازه ذرات کربن سسیاه مورد استفاده بین ۲۰ تا ۵۰ نانومتر، چگالی آن 2 g/cm^3 و رسانایی ذاتی آن 10^3 S/m است. در این پژوهش از گرانول‌های پلی اتیلن با چگالی کم (LDPE) تهیه شده از پتروشیمی امیرکبیر به عنوان فاز تقویت کننده ثانویه استفاده شد. چگالی LDPE مورد نظر 0.924 g/cm^3 و دمای ذوب آن 115°C می‌باشد.

آماده سازی نمونه‌های کامپوزیتی

برای تهیه نمونه‌های مورد آزمایش در پژوهش پیش رو دو نوع ماده کامپوزیتی تهیه شده است. اولین دسته نمونه‌ها مربوط به کامپوزیت CB/HDPE و بدون حضور LDPE می‌باشد. دومین دسته نمونه‌ها مربوط به کامپوزیت CB/LDPE/HDPE با حضور ۰.۵ درصد LDPE می‌باشد. در هر دو دسته این نمونه‌ها میزان درصد وزنی کربن سیاه (CB) به عنوان فاز ثانویه شامل ۰.۲، ۰.۵، ۱، ۲، ۳، ۴ و ۵ می‌باشد.

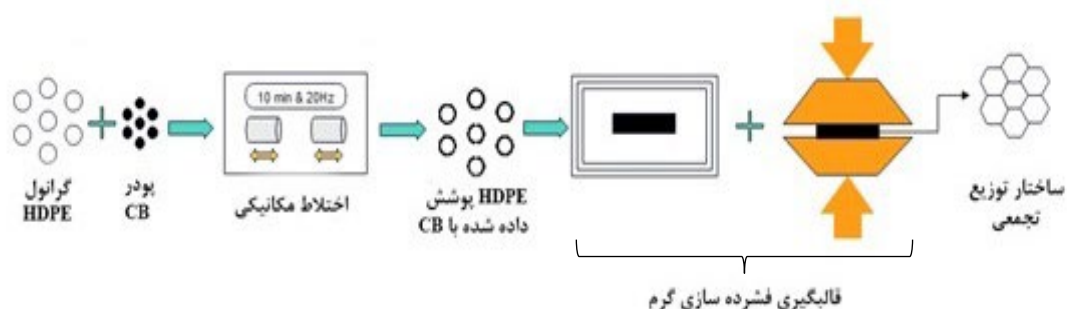
شماتیک فرآیند ساخت نمونه‌های مربوط به کامپوزیت CB/HDPE با ساختار سگرگیت در شکل (۱) آورده شده است. طبق شماتیک شکل (۱)، ابتدا درصد وزنی مشخصی از کربن سیاه (CB) با پودر پلی اتیلن با چگالی بالا (HDPE) مخلوط و اختلاط مکانیکی پودرهای CB/HDPE با فرکانس 20 Hz با مدت زمان ۱۰ دقیقه انجام شد. سپس با استفاده از روش قالبگیری فشرده سازی گرم با فشار ۱۶ تن، مدت زمان مشخص و دمای بین ۱۲۲ تا ۱۲۴ درجه سانتیگراد نمونه‌هایی با ابعاد $40*10*1\text{ mm}^3$ جهت انجام آزمایشات مورد نظر آماده گردید.

تصادفی بوده که دلیل اصلی آن ایجاد مسیرهای رسانایی است که در ساختار سگرگیت بصورت منظم وجود دارد، توجه شده است [7]. کین مینگ لیوو و همکارانش در رابطه با ساختار سگرگیت فاز ثانویه در کامپوزیت PVDF/CNT با سرعت‌های اختلاط مکانیکی متفاوت و تاثیر آن بر رسانایی الکتریکی و حد آستانه پژوهشی را انجام دادند. طبق نتایج این پژوهش میزان رسانایی الکتریکی مطلوب برای کامپوزیت PVDF/CNT در زمان بهینه ۲ دقیقه بود. همچنین حد آستانه CNT در این پژوهش 0.078 درصد بدست آمد [8]. داوی ژو و همکارانش در پژوهشی به بررسی خواص مکانیکی کامپوزیت POE /CNT با ساختار سگرگیت پرداختند. آنها نمونه‌های کامپوزیتی را به دو روش تف جوشی انتخابی از طریق میکروامواج و قالبگیری فشاری گرم تولید کردند. با بررسی نتایج خواص مکانیکی، در درصد‌های مختلف حجمی CNT میزان استحکام کششی در نمونه‌های ساخته شده به روش تف جوشی انتخابی از طریق میکروامواج به مراتب بیشتر از نمونه‌های قالبگیری فشاری گرم می‌باشد. همچنین از نتایج این پژوهش می‌توان دریافت که میزان ازدیاد طول در لحظه شکست در نمونه‌های ساخته شده به روش تف جوشی انتخابی از طریق میکروامواج افزایش ۵۱۰ درصدی در مقایسه با نمونه‌های قالبگیری فشاری گرم داشته است [11]. وان چنگ یو و همکارانش تحقیقی را بر روی تاثیر روش تولید بر خواص مکانیکی کامپوزیت PVDF/CNT با ساختار سگرگیت انجام دادند. در این پژوهش از قالبگیری اکستروژن و پرس گرم برای تولید کامپوزیت مورد نظر استفاده شده است. طبق نتایج بدست آمده در مقایسه بین دو روش تولیدی، استحکام کششی و انعطاف پذیری کامپوزیت تولیدی با روش اکستروژن بیشتر و مدول یانگ کامپوزیت‌های تولیدی با روش پرس گرم مطلوب تر بود [9].

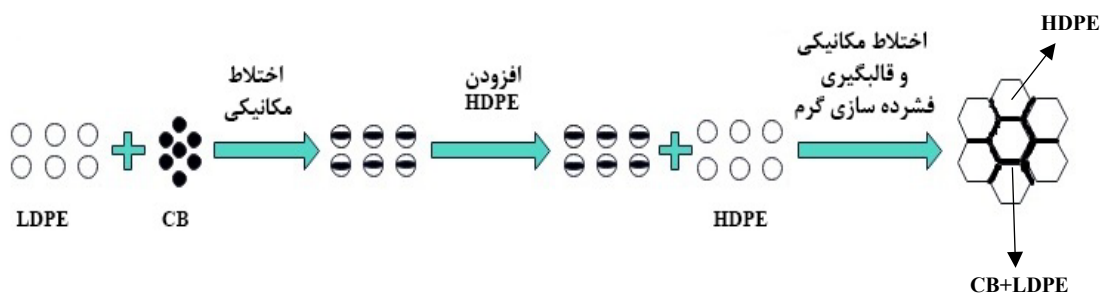
در پژوهش‌های مختلفی که از گذشته تاکنون در رابطه با خواص مکانیکی و رسانایی الکتریکی کامپوزیت‌های پایه پلیمری با پرکننده‌های کربنی رسانا و با ساختار سگرگیت انجام شده، راه‌هایی برای بهبود خواص مکانیکی ساختارهای سگرگیت ارائه شده است. در این پژوهش سعی شده تا رسانایی الکتریکی و خواص مکانیکی کامپوزیت CB/HDPE در حضور

اختلاط مکانیکی آن با درصد وزنی مشخصی از پلی اتیلن با چگالی بالا (HDPE) با فرکانس 20 Hz و مدت زمان ۱۰ دقیقه انجام شد. سپس قالبگیری فشرده سازی گرم با فشار ۱۶ تن، ۱۲۲ تا ۱۲۴ درجه سانتیگراد و مدت طمان مشخص انجام شد تا نمونه‌هایی با ابعاد $40 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ جهت انجام آزمایشات مورد نظر آماده شود. در ادامه نحوه نام گذاری نمونه‌های کامپوزیتی در جدول (۱) آورده شده است.

شماتیک فرآیند ساخت نمونه‌های مربوط به کامپوزیت CB/LDPE/HDPE با ساختار سگ‌رگیت در شکل (۲) آمده است. برای ساخت نمونه‌های کامپوزیتی CB/LDPE/HDPE، ابتدا درصد مشخصی از پودر کربن سیاه (CB) و ۰.۵ درصد وزنی از پودر پلی اتیلن با چگالی کم (LDPE) به مدت ۵ دقیقه با فرکانس 20 Hz تحت اختلاط مکانیکی قرار گرفت. سپس پودر حاصله از این اختلاط به مدت ۵ دقیقه در نیتروژن مایع قرار گرفت و



شکل ۱ شماتیک فرآیند ساخت نمونه‌های کامپوزیتی CB/HDPE

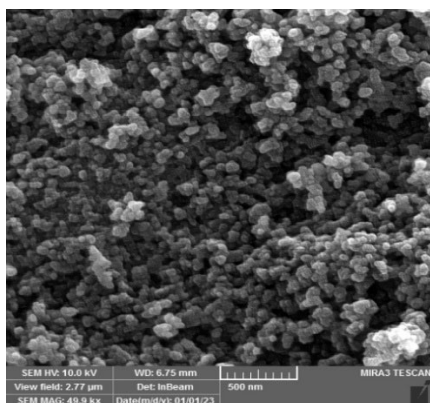


شکل ۲ شماتیک فرآیند ساخت نمونه‌های کامپوزیتی CB/LDPE/HDPE

جدول ۱ نامگذاری نمونه‌های کامپوزیتی CB/HDPE و CB/LDPE/HDPE

xCB-0.5LD	xCB-HD	x=%wt CB
0.2CB-0.5LD	0.2CB-HD	0.2
0.5CB-0.5LD	0.5CB-HD	0.5
1CB-0.5LD	1CB-HD	1
2CB-0.5LD	2CB-HD	2
3CB-0.5LD	3CB-HD	3
4CB-0.5LD	4CB-HD	4
5CB-0.5LD	5CB-HD	5

1CB-0.5LD و 4CB-0.5LD پس از اختلاط مکانیکی آورده شده است. سطح شکست حاصل از آزمون کشش نمونه‌های کامپوزیتی 1CB-HD و 2CB-0.5LD در شکل (۶) آمده است. در شکل (۵-الف، ب، پ و ت) پوشش ایجاد شده گرانول‌های HDPE توسط فاز رسانا CB به خوبی قابل مشاهده است. همانطور که مشاهده می‌شود میزان پوشش دهی پودر 1CB-HD (شکل ۴-الف) در مقایسه با پودر 4CB-HD (شکل ۵-ب) کمتر است که به علت تفاوت میزان درصد CB می‌باشد.



شکل ۴ تصویر FESEM از پودر اولیه کربن سیاه (CB)

طبق مشاهدات شکل (۶-الف و ب)، نواحی با ساختار سگرگیت فاز نانویه کربن سیاه (CB) بصورت خط چین از نواحی زمینه پلی اتیلن با چگالی بالا (HDPE) متمایز شده‌اند. این تصاویر نشان می‌دهند که روند نمونه سازی برای تشکیل شبکه رسانا با ساختار سگرگیت به درستی انجام شده که باعث افزایش رسانایی الکتریکی نمونه در مقایسه با توزیع تصادفی فاز نانویه در درصد مشابهی از پرکننده می‌شود.

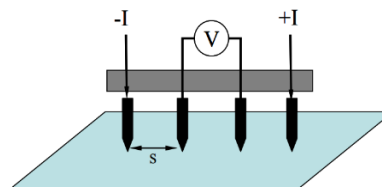
با مقایسه سطح شکست دو کامپوزیت 2CB-HD (شکل ۶-الف) و 2CB-0.5LD (شکل ۶-ب) می‌توان دریافت که نوع شکست متفاوت بوده است. در کامپوزیت 2CB-HD شکست ترد رخ داده و در کامپوزیت 2CB-1LD شکست نرم اتفاق افتاده است. دلیل تفاوت در مد شکست به علت حضور فاز LDPE است که باعث ایجاد اتصال مطلوبتر گرانول‌ها در نمونه 2CB-0.5LD شود. در هنگام شکست می‌توان رشته‌های کشیده شده LDPE و HDPE را در مرز مناطق CB و HDPE مشاهده کرد که نشان از شکست نرم است. در حقیقت فاز LDPE در مرز فازهای HDPE و کربن سیاه در حین فرآیند تولید ذوب شده و در مرز مشترک گرانول‌ها و در بین ذرات CB نفوذ کرده و سبب تشکیل میکرو فیبریل‌ها در سطح شکست نمونه شده است.

رسانایی الکتریکی

به منظور بررسی رسانایی الکتریکی نمونه‌های کامپوزیتی از دستگاه چهار پراب چهار نقطه مجهز به الکترومتر ساخت شرکت Keithley مدل ۲۴۵۰ استفاده شده است. این دستگاه مقاومت الکتریکی سطح نمونه را اندازه گیری کرده و با استفاده از رابطه (۱) می‌توان آن را به رسانایی الکتریکی تبدیل کرد.

$$\sigma = \frac{l}{R_e W t} \quad (1)$$

در رابطه (۱)، σ بیانگر رسانایی الکتریکی با واحد S/m ، l طول نمونه با واحد متر (m)، W عرض نمونه با واحد متر (m)، t ضخامت نمونه با واحد متر (m) و R_e مقاومت الکتریکی اندازه‌گیره شده با واحد اهم (Ω) است.



شکل ۳ شماتیک دستگاه پروب چهار نقطه‌ای [10]

خواص مکانیکی

به منظور بررسی خواص مکانیکی نمونه‌های کامپوزیتی از آزمون کشش استفاده شد. آزمون کشش توسط دستگاه یونیورسال ساخت شرکت SANTAM، دارای نیروسنج BONGSHIN و مدل DBBP-50 با سرعت 0.5 mm/min در دمای محیط انجام شد. در این آزمون ابعاد نمونه‌های مورد آزمایش $40 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ با طول مشخصه 20 mm در نظر گرفته شد.

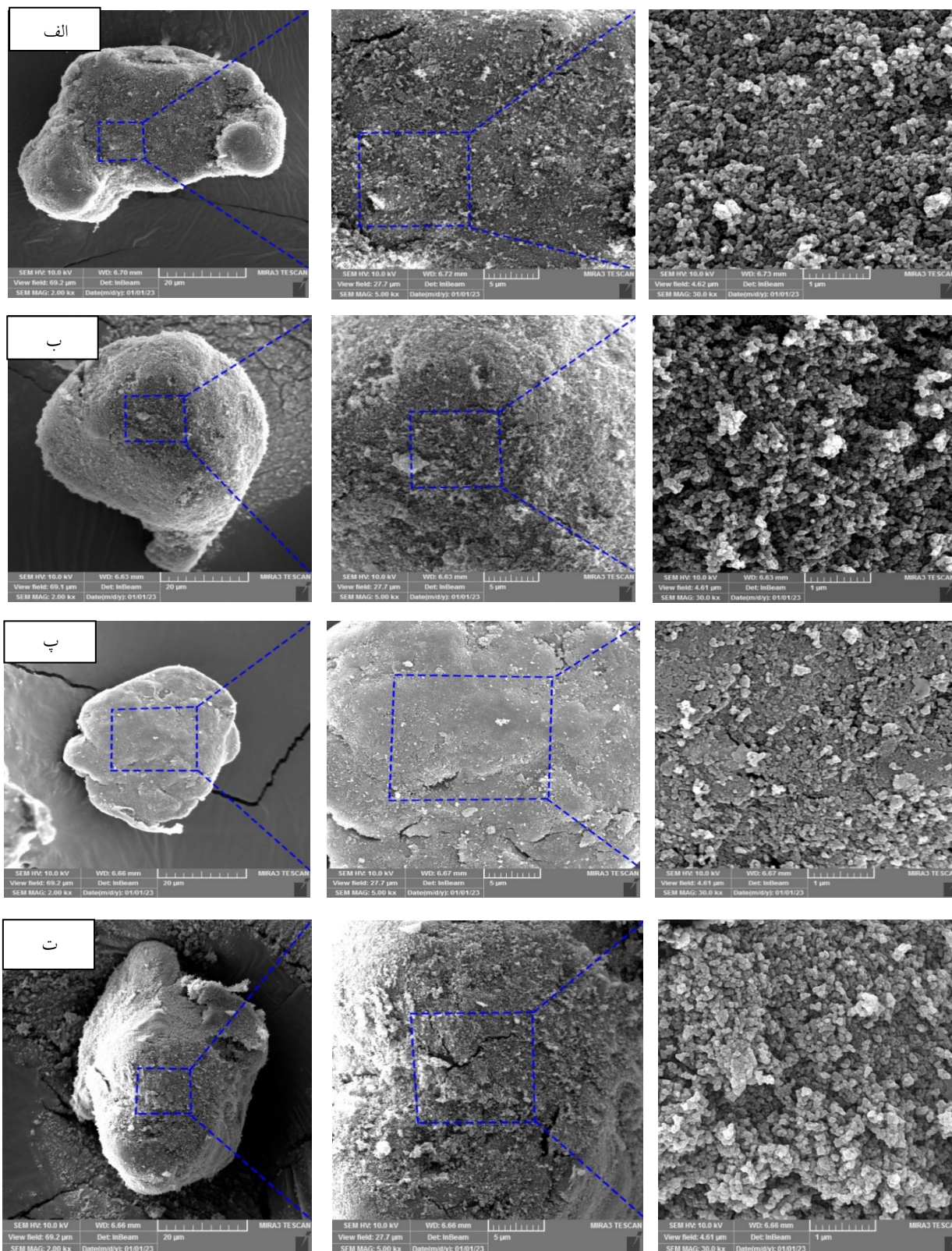
تصاویر میکروسکوپی FESEM

به منظور بررسی سطح شکست نمونه‌های کامپوزیتی حاصل از آزمون کشش و همچنین سطح گرانول‌های پلی اتیلن (HDPE) پوشش داده شده با کربن سیاه (CB) با استفاده از دستگاه FESEM مدل TESCAN BRNO-Mira3 LMU با ولتاژ 10 kV انجام شد. جهت آماده سازی نمونه‌ها از پوشش طلا به عنوان ماده‌ای رسانا استفاده شد.

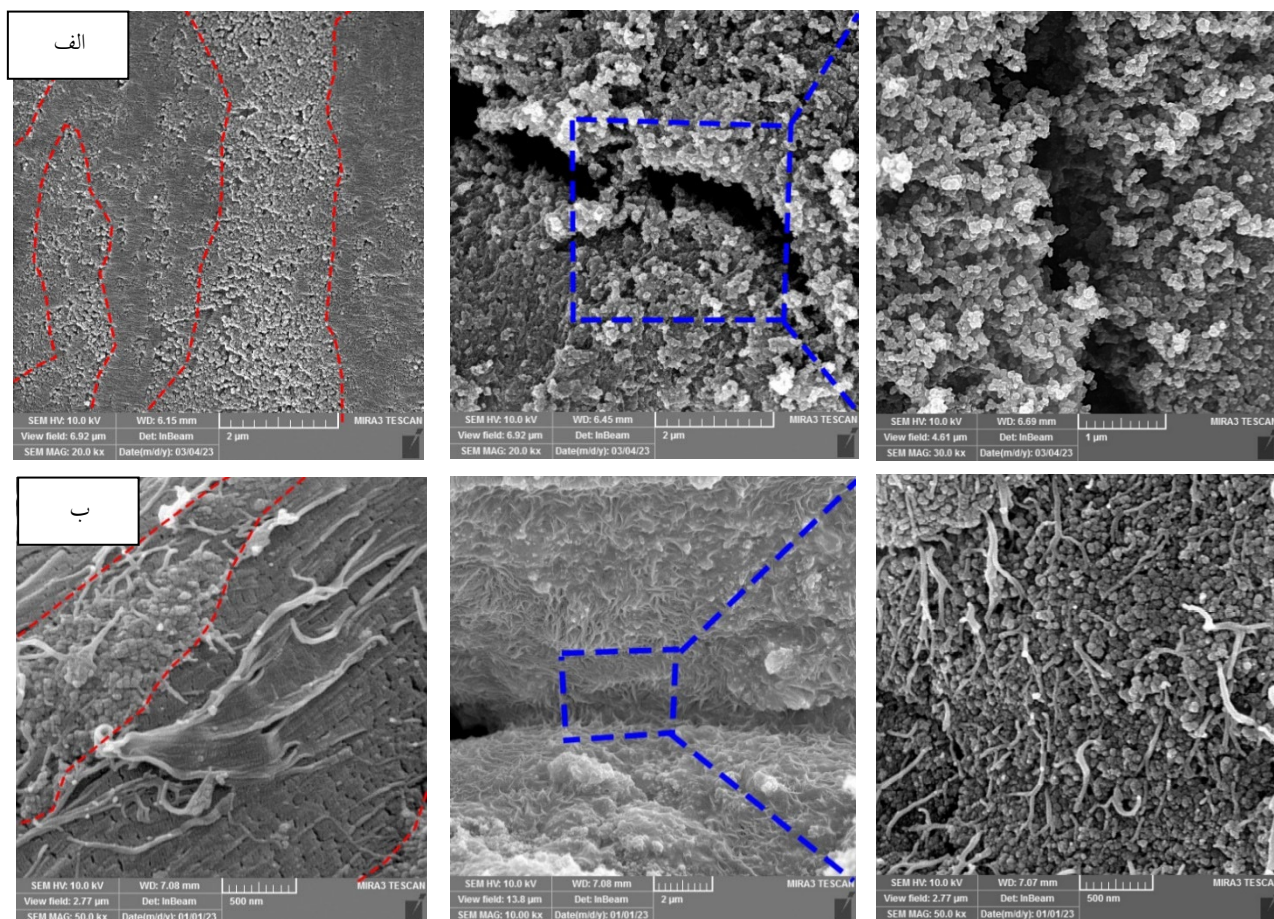
نتایج و بحث

مطالعه ریز ساختاری

در شکل (۵) تصاویر FESEM پودرهای 1CB-HD، 4CB-HD



شکل ۵ تصاویر FESEM از: (الف) پودر 1CB-HD، (ب) پودر 4CB-HD، (پ) پودر 1CB-0.5LD، (ت) پودر 4CB-0.5LD در بزرگنمایی‌های متفاوت



شکل ۶ تصاویر FESEM از سطح شکست: (الف) کامپوزیت 2CB-HD و (ب) کامپوزیت 2CB-0.5LD در بزرگنمایی‌های متفاوت

LDPE در بین دانه‌های کربن سیاه و گرانول‌های HDPE است که در تشکیل مسیر رسانا اختلال ایجاد می‌کند. البته ذکر این نکته ضروری است که با ذوب LDPE در مرزدانه، ریز حفرات موجود در فصل مشترک نیز کاهش می‌یابد که در مقادیر کم فاز LDPE تاثیر مطلوبی بر خواص مکانیکی خواهد داشت.

جدول ۲ نتایج رسانایی الکتریکی برای دو نوع کامپوزیت xCB-HD و

xCB-1LD
Conductivity (S/m)

xCB-1LD	xCB-HD	%wt CB
9.8×10^{-4}	0.0015	0.2
1.2×10^{-3}	0.20	0.5
0.69	1.49	1
5.39	14.89	2
18.75	26.11	3
27.08	32.63	4
36.62	43.10	5

ارزیابی رسانایی الکتریکی

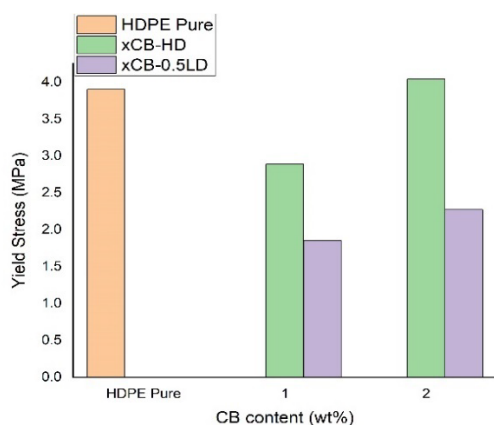
رسانایی الکتریکی دو دسته از نمونه‌های کامپوزیتی xCB-HD و xCB-1LD با درصد‌های مختلفی از کربن سیاه (CB) و مقدار ثابت 0.5 درصد وزنی پلی اتیلن با چگالی کم (LDPE) با استفاده از رابطه (۱) اندازه‌گیری و در جدول (۲) گزارش شده است. همانطور که در این جدول مشاهده می‌شود، با افزایش درصد وزنی فاز ثانویه CB از ۰.۲ تا ۵ درصد، میزان رسانایی الکتریکی روند صعودی دارد. مطابق جدول (۲)، بیشترین میزان رسانایی مربوط به نمونه‌های 5CB-HD و 5CB-0.5LD بوده و مقادیر آنها به ترتیب 43.10 S/m و 36.62 S/m می‌باشد. با توجه به اینکه رسانایی 0.2 S/m تا 40000 S/m بیانگر ماده ای رسانا می‌باشند [2]؛ بنابراین در این پژوهش ساختارهای سگ‌رگیت تولیدی در دسته مواد رسانای الکتریکی قرار دارد.

با مقایسه دو نوع نمونه xCB-HD و xCB-0.5LD می‌توان دریافت که با افزودن مقدار (۵، ۰ درصد وزنی) LDPE به نمونه، میزان رسانایی الکتریکی کاهش یافته است. دلیل این امر نفوذ

می دهد. میزان سطح در تماس کم بین دو فاز کربن سیاه و پلی اتین در توزیع سگرگیت، سبب تاثیرپذیری اندک تغییرات کانفورماسیونی زنجیره های پلیمری نسبت به توزیع رندوم است. بر این اساس با توجه به شکل (۸) میزان تنش مورد نیاز برای تغییر شکل پلاستیک در نمونه xCB-HD روند ثابتی را از خود نشان می دهد.

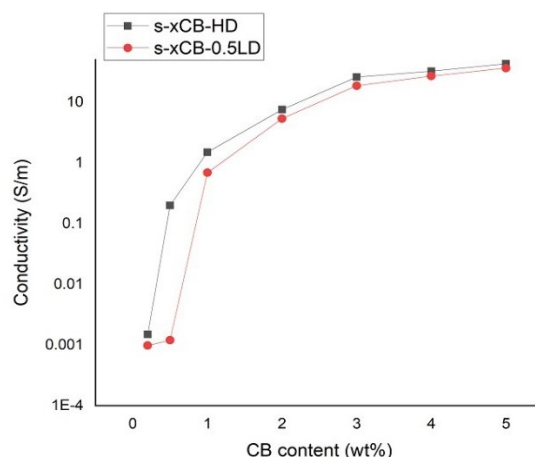
جدول ۳ نتایج خواص مکانیکی با ساختار سگرگیت کامپوزیت xCB-HD و xCB-0.5LD با ساختار سگرگیت خواص مکانیکی

نمونه	مدول یانگ (GPa)	استحکام تسلیم (MPa)
HDPE	0.282	3.9
1CB-HD	0.290	2.89
1CB-0.5LD	0.204	1.85
2CB-HD	0.311	4.04
2CB-0.5LD	0.250	2.27



شکل ۸ تغییرات استحکام تسلیم بر حسب درصد وزنی CB در دو کامپوزیت xCB-HD، xCB-0.5LD و نمونه خالص HDPE

با افزایش فاز نرم LDPE در فصل مشترک میزان نقایص ساختاری کاهش یافته و اما مقاومت کم این فاز در برابر تغییر شکل پلاستیک سبب کانفورماسیون راحتتر زنجیره های پلیمری در سطوح تنشی کمتر می گردد. این روند در درصد وزنی یک درصد به طور واضح مشاهده می شود. با افزایش درصد وزنی کربن سیاه به دو درصد وزنی، تاثیر فاز نرم میکرونی در فصل مشترک با حضور نانو ذرات کربن سیاه کاهش یافته و روند افزایشی تنش تسلیم دیده می شود. هر چند روند کاهش استحکام تسلیم در دو کامپوزیت xCB-1LD نسبت به پلی اتیلن خالص و ساختار سگرگیت xCB-HD وجود دارد.



شکل ۷ تغییرات رسانایی الکتریکی بر حسب درصد وزنی CB در دو کامپوزیت xCB-HD و xCB-0.5LD

برای محاسبه میزان حد آستانه دو نوع کامپوزیت xCB-HD و xCB-1LD از رابطه (۲) استفاده شد. با انجام محاسبات، حد آستانه کامپوزیت xCB-HD برابر با 0.0814 %vol و حد آستانه کامپوزیت xCB-1LD برابر با 0.061 %vol بدست آمد. در حقیقت با افزودن LDPE میزان حد آستانه کامپوزیت موردنظر کاهش یافته است. علت آن این است که در درصدهای وزنی کم کربن سیاه، حضور فاز LDPE سبب کاهش حفرات و ناپوستگیهای ساختاری در نمونه شده و مسیرهای بهم پیوسته فاز رسانا راحتتر تشکیل می شود. این امر باعث می شود که در درصدهای وزنی پایین تری از CB نخستین شبکه های رسانا یا به عبارتی گذار عایق/رسانا دیده شود.

ارزیابی خواص مکانیکی

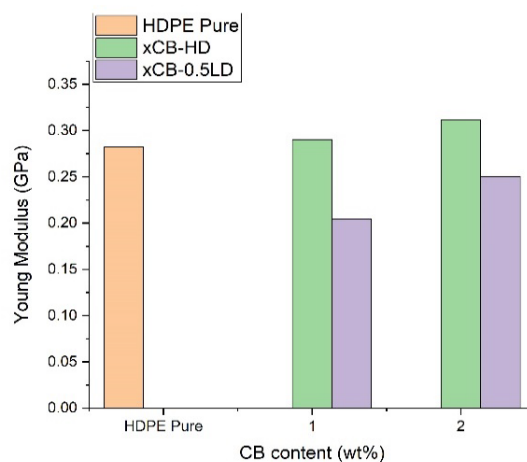
آزمون کشش تک محوره برای بررسی خواص مکانیکی نمونه های آزمایشگاهی انجام شد. در این پژوهش نمونه های HDPE خالص با ذوب ناقص، 1CB-HD، 1CB-0.5LD، 2CB-HD و HD 2CB-0.5LD تحت آزمون کشش تک محوره قرار گرفتند. نتایج بدست آمده از آزمون کشش در جدول (۳) آورده شده است.

با توجه به داده های جدول (۳) و شکل (۸)، به سبب ذوب ناقص گرانولهای پلی اتیلن و وجود نقایص ساختاری مانند حفرات و فصل مشترک ضعیف بین دو فاز، خواص مکانیکی دو دسته ساختار سگرگیت کمتر از نمونه پلیمری خالص می باشد. با افزودن فاز تقویت کننده کربنی میزان تنش مورد نیاز برای شروع تغییر شکل پلاستیک یا عبارتی تنش مورد نیاز برای تغییر کانفورماسیون زنجیره های پلیمری روند کاهش را از خود نشان

نتیجه گیری

در این پژوهش با استفاده از روش اختلاط خشک و قالب گیری فشرده سازی گرم نمونه‌های کامپوزیتی xCB-HD و xCB-0.5LD با ساختار سگ‌رگیت جهت ارزیابی رسانایی الکتریکی و خواص مکانیکی ساخته شدند. توزیع تجمعی CB در زمینه HDPE در افزایش رسانایی الکتریکی بسیار مطلوب بوده است؛ بطوریکه در نمونه xCB-HD بیشینه رسانایی الکتریکی 43.10 S/m و در نمونه xCB-1LD نیز 36.62 S/m بدست آمد که با توجه به ارزیابی تصاویر میکروسکوپی نیز می‌توان تشکیل ساختار سگ‌رگیت و دستیابی به میزان مطلوب رسانایی الکتریکی را ادعا کرد. افزودن ۰.۵ درصد LDPE باعث افت رسانایی الکتریکی و همچنین کاهش حد آستانه تا 0.037 %vol شده است. اما افزودن LDPE بهبودی را در خواص مکانیکی مانند استحکام تسلیم و مدول ینگ بوجود نیاورد.

تقدیر و تشکر



شکل ۹ تغییرات مدول ینگ بر حسب درصد وزنی CB در دو کامپوزیت xCB-HD ، xCB-0.5LD و نمونه خالص HDPE

با توجه به شکل (۹)، با افزایش درصد وزنی کربن سیاه در دو دسته ساختار سگ‌رگیت، مدول ینگ روند افزایشی را از خود نشان می‌دهد. قرار گیری فاز LDPE در مرز گرانولها و ما بین نانو ذرات کربنی مشابه قبل سبب افزایش نرمی ساختار و سفتی کمتر نسبت به دو دسته پلی اتیلن خالص و ساختار سگ‌رگیت xCB-HD شده است.

مراجع

- [1] J. Tiisanen., D. Vlasveld., J. Vuorinen., "Review on the effects of injection moulding parameters on the electrical resistivity of carbon nanotube filled polymer parts", *Composites Science and Technology*, vol. 72, no. 14, pp. 1741-1752, (2021).
- [2] H. Pang, L. Xu, D-X Yan, Z-Ming, "Conductive polymer composites with segregated structures", *Progress in Polymer Science*, Vol. 39, Issue 11, pp. 1908-1933, (2014).
- [3] J. C. Grunlan, W. W.Gerberich, L. F.Francis, "Lowering the percolation threshold of conductive composites using particulate polymer microstructure", *J Appl Polym Sci*, Vol. 80, pp. 692–705. (2001).
- [4] J. C. Grunlan, W. W.Gerberich, L. F.Francis, "Electrical and mechanical behavior of carbon black-filled poly(vinyl acetate) latex-based composites", *Polym Eng Sci*, Vol. 41, pp. 1947–62, (2001).
- [5] H. Pang, D. X.Yan, Y Bao, J. B.Chen, C.Chen, Z. M.Li, "Super-tough conducting nanotube/ultrahigh-molecular-weight polyethylene composites with segregated and double-percolated structure", *Journal Mater Chemistry*, Vol. 22, pp. 23568–75. (2012).
- [6] H.Zois, L.Apekis, M.Omastova, "Electrical Properties of Carbon Black-filled Polymer Composites", *Macromolecular Symposia*, Vol. 170, pp. 249-256, (2001).

- [7] S.Gupta, R.Ou, and R.A.Gerhardt, "Effect of the fabrication method on the electrical properties of poly(acrylonitrile-co-butadiene-costyrene)/carbon black composites", *Journal Electronic Materials*, Vol. 35, pp. 224–229, (2006).
- [8] Q.Liu, J.Tu, X.Wang, W.Yu, W.Zheng, Z.Zhao, "Electrical conductivity of carbon nanotube/poly(vinylidene fluoride) composites prepared by high-speed mechanical mixing", *Carbon*, Vol. 50, pp. 339-341, (2012).
- [9] W. Ch.Yu, T.Wang, , G.Q.Zhang, Z. G.Wang, H. M.Yin, D. X. Yan, J. Zh. Xu,, Z. M. Li, "Largely enhanced mechanical property of segregated carbon nanotube/ poly (vinylidene fluoride) composites with high electromagnetic interference shielding performance", *Composites Science and Technology*, Vol. 167, pp. 260-267, (2018).
- [10] Y.S.Kim, "Electrical Conductivity of Segregated Network Polymer Nanocomposites", (2007).
- [11] D. Xu, , Ch. Wenhua, L. Pengju, "Enhanced electromagnetic interference shielding and mechanical properties of segregated polymer/carbon nanotube composite via selective microwave sintering", *Composites Science and Technology*, Vol. 199, pp. 108–355, (2020).
- [12] T. Jiahong, Y. Fan, X. Yeping, L. Pengju, "Improved mechanical and electromagnetic interference shielding performance of segregated UHMWPE/CNTs via microwave-assisted sintering", *High Performance Polymer*, pp. 1140-1149, (2020).
- [13] S. Moazen, S. Sahebian, M. Haddad Sabzevar, "Low percolation behavior of HDPE/CNT nanocomposites for EMI shielding application: Random distribution to segregated structure", *Synthetic Metals*, Vol. 281, 116900, (2021).