



ALÜMİNYUM OKSİT TANE KATKILI POLİETİLEN MATRİKSİLİ
KOMPOZİTLERİN ISI İLETİM KATSAYISI

(*THERMAL CONDUCTIVITY OF ALUMINUM OXIDE PARTICLE FILLED
POLYETHYLENE COMPOSITES*)

Dilek KUMLUTAŞ* İsmail H. TAVMAN*

ÖZET/ABSTRACT

Bu çalışmada, yüksek yoğunluklu polietilen kompozit malzemelerin ısı iletim katsayısı, dolgu malzemesi konsantrasyonunun bir fonksiyonu olarak deneysel şekilde araştırılmıştır ve elde edilen ölçüm değerleri, literatürdeki teorik ve ampirik model sonuçlarıyla karşılaştırılmıştır. Yüksek yoğunluklu polietilen ve toz katkı malzemesi kullanılarak değişik hacimsel konsantrasyonlarda karışımlar elde edilmiştir. Bu toz halindeki karışımlar, 4 MPa basınç altında 185 °C sıcaklıkta sıkıştırma işlemine tabi tutulmuştur ve soğumaya bırakılarak katılaşması sağlanmıştır. Hazırlanan örneklerin ısı iletim katsayıları, "Hot-Wire" yöntemi ile çalışan ve 0 °C den 70 °C ye kadar olan sıcaklık aralığında ölçüm yapabilecek şekilde geliştirilmiş olan "Shotherm QTM-D2" cihazı ile ölçülmüştür.

In this study, the effective thermal conductivity of high density polyethylene composites is investigated experimentally as a function of filler concentration and the measured values are compared with the existing theoretical and empirical models. Samples are prepared by mixing commercial high density polyethylene and filler materials at various volumetric concentrations, the mixed powder is then placed in a die and melted at 185 °C under 4 MPa pressure. After cooling and solidification under pressure, the sample is taken out of the die. The thermal conductivity of the prepared samples is measured using the Shotherm QTM-D2 thermal conductivity meter working with a modified hot wire technique in a temperature range from about 0 °C to 70 °C.

ANAHTAR KELİMELER/KEYWORDS

Isı iletim katsayısı, Kompozit, Polietilen
Thermal conductivity, Composite, Polyethylene.

1. GİRİŞ

Günümüzde polimer malzemelerin yaygın olarak kullanılması, onların fiziksel ve kimyasal özelliklerinin belirlenmesiyle ilgili çalışmaların artmasına neden olmuştur. Bu özelliklerin belirlenmesinin yanı sıra katı ya da gaz katkı maddeleri ilave edilerek bu özelliklerin iyileştirilmesi ile ilgili çalışmalar önem kazanmıştır. Şimdiye kadar yapılan çalışmalarda, geliştirilmiş fiziksel özelliklere sahip polimerleri elde etmek amacıyla çok çeşitli katkı maddeleri ve dolgu malzemeleri kullanılmıştır.

Literatürde katı ya da gaz katkılı polimerlerin ısıl özelliklerinin belirlenmesiyle ilgili çok sayıda çalışmalar bulunmaktadır. Yapılan deneysel ve teorik ya da yarı teorik çalışmalar sonucunda çeşitli modeller geliştirilmiştir (Progelhof vd., 1976).

2. ISI İLETİM KATSAYISININ TESPİT EDİLMESİNDE KULLANILAN AMPİRİK VE DENEYSEL MODELLER

Polimer malzemelerin ısı iletim katsayılarını tahmin edebilmek için çok sayıda teorik ve amprik modeller önerilmiştir. Katı katkılı polimerler için türetilmiş olan bu modellerden çok sık kullanılanları şunlardır:

2.1. Seri Model

$$\frac{1}{k_e} = \frac{1-\phi}{k_c} + \frac{\phi}{k_d} \quad (1)$$

k_e : Kompozit malzemenin ısı iletim katsayısı,

k_c : Matriks malzemenin ısı iletim katsayısı,

k_d : Katkı malzemesinin ısı iletim katsayısı,

ϕ : Katkı malzemesi hacimsel oranı.

2.2. Paralel Model

$$k_e = (1-\phi) \cdot k_c + \phi \cdot k_d \quad (2)$$

2.3. Geometrik Ortalama Model

$$k_e = k_d^\phi \cdot k_c^{(1-\phi)} \quad (3)$$

2.4. Cheng ve Vachon Teorik Modeli

Cheng ve Vachon, katkı malzemesinin parabolik dağılıma sahip süreksiz bir faz olduğunu kabul ediyorlar ve Tsao 'nun olabilirlik modeli ile çalışmalarına başlıyorlar. Bu temel üzerine yaptıkları çalışmalarla kompozit malzemenin ısı iletim katsayısını veren bir ifade türetiliyorlar. Tsao sabitleri değerlendirilerek iki fazlı kompozit malzemelerde, katkı malzemesinin hacimsel oranına bağlı kapalı formda bir ifade elde ediyorlar (Cheng ve Vachon, 1970).

$$k_c > k_d \text{ \& } \frac{1}{k_e} = \frac{2}{\sqrt{C(k_d - k_c)[k_c + B(k_d - k_c)]}} \tan^{-1} \frac{B}{2} \sqrt{\frac{C(k_d - k_c)}{k_c + B(k_d - k_c)}} + \frac{1-B}{k_c} \quad (4)$$

$$k_d > k_c \text{ için } \frac{1}{k_e} = \frac{1}{\sqrt{C(k_d - k_c)[k_c + B(k_d - k_c)]}} \ln \frac{\sqrt{(k_c + B(k_d - k_c)) + \frac{B}{2}\sqrt{C(k_d - k_c)}}}{\sqrt{(k_c + B(k_d - k_c)) - \frac{B}{2}\sqrt{C(k_d - k_c)}}} + \frac{1-B}{k_c} \quad (5)$$

her iki denklemde de B ve C aşağıdaki gibidir:

$$B = \sqrt{3\phi/2} \quad C = -4\sqrt{2/(3\phi)}$$

2.5. Lewis ve Nielsen Yarı Teorik Modeli

$$k_e = k_c \left[\frac{1 + AB\phi}{1 - B\phi\psi} \right] \quad (6)$$

k_e değeri k_c ve ϕ 'ye ilave olarak A, B ve ψ 'ye bağlı olarak tanımlanmıştır:

$$B = \frac{\frac{k_d}{k_c} - 1}{\frac{k_d}{k_c} + A} \quad \psi = 1 + \left(\frac{1 - \phi_m}{\phi_m^2} \right) \phi$$

A ve ϕ_m değerleri katkı malzemesi olarak kullanılan partiküllerin şekil ve oryantasyonlarına bağlı olup, çeşitli geometrik şekil ve oryantasyonlar için Çizelge 1 ve Çizelge 2'de verilmiştir (Lewis ve Nielsen, 1970; Nielsen, 1970).

2.6. Maxwell Teorik Modeli

Maxwell, potansiyel teoriyi kullanarak rasgele dağılmış homojen ve sürekli bir ortamdaki birbiriyle etkileşimi olmayan homojen küreler için bir ifade elde etmişlerdir (Maxwell, 1954).

$$k_e = k_c \left[\frac{k_d + 2k_c + 2\phi(k_d - k_c)}{k_d + 2k_c + \phi(k_d - k_c)} \right] \quad (7)$$

Çizelge 1. A değerleri

Katkı Malzemesi Şekli	Isı Akış Yönü	A
Küp	Her yönde	2.0
Küre	Her yönde	1.50
Kümelenmiş küreler	Her yönde	3
Gelişigüzel düzenlenmiş çubuk		
Görünüş oranı=2	Her yönde	1.58
Görünüş oranı=4	Her yönde	2.08
Görünüş oranı=6	Her yönde	2.8
Görünüş oranı=10	Her yönde	4.93
Görünüş oranı=15	Her yönde	8.38
Eş eksenli fiber	Fibere dik	2L/D (L:boy, D:çap)
Eş eksenli fiber	Fibere paralel	0.5

Çizelge 2. ϕ_m değerleri

Partikülün Şekli	Paketleme Tipi	ϕ_m
Küre	Heksagonal	0.7405
Küre	Yüzey merkezli kübik	0.7405
Küre	Hacim merkezli kübik	0.60
Küre	Basit kübik	0.524
Küre	Gelişigüzel	0.637
Çubuk ya da fiber	Eşeksenli heksagonal	0.907
Çubuk ya da fiber	Eşeksenli basit kübik	0.785
Çubuk ya da fiber	Eşeksenli gelişigüzel	0.82
Çubuk ya da fiber	Üç boyutlu gelişigüzel	0.52

2.7. Agari ve Uno Modeli

Seri ve paralel modellerin geliştirilmesiyle yeni bir model elde edilmiştir.

$$\log k_e = \phi C_2 \log k_d + (1 - \phi) \log (C_1 k_c) \quad (8)$$

C_1 ve C_2 sabitleri polimerin cinsine ve katkı malzemesinin türüne bağlı olarak Çizelge 3'de verilmiştir (Agari ve Uno, 1986).

Çizelge 3. C_1 ve C_2 sabitleri

Matriks Malzeme	Katkı Malzemesi	C_1	C_2
Polietilen	Grafit	0.898	0.882
Polietilen	Bakır	1.073	0.888
Polietilen	Al_2O_3	0.859	0.902
PA	Grafit	1.017	0.922
PS	Grafit	1.024	0.892

3. DENEYSEL ÇALIŞMA

3.1. Numunelerin Hazırlanması

Deneysel çalışmalarda matriks malzeme için önemli polimerler arasında yer alan yüksek yoğunluklu polietilen, oksidasyona mukavemetli olduğundan tercih edilmiştir. Yüksek yoğunluklu polietilen, molekülleri dallanmamış bir görünüme sahip olan ve erime sıcaklığı $137^\circ C$ ve ısı iletim katsayısı $0.543 W/mK$ olan bir malzemedir. Bu polietilene ait özellikler Çizelge 4'de verilmiştir. Polietilenin özellikleri katkı maddeleri ile iyileştirilebilmektedir. Polietilen ambalaj sanayiinde, çeşitli malzemelerin saklanması, korunması amacıyla, kalıplanmış eşya sanayiinde ve elektriksel yalıtıcı olarak kullanılmaktadır. Katkı malzemesi olarak partikül boyutu 40-60 mikron ve ısı iletim katsayısı $31 W/mK$ olan Al_2O_3 kullanılmıştır.

Numuneler ısı iletim katsayısını ölçen cihazın probuna uygun olarak 100 mm uzunluğunda, 50 mm genişliğinde ve 17 mm kalınlığında, sıcaklık altında kalıplayarak sıkıştırma işlemiyle hazırlanmıştır. Karışımın homojen olabilmesi amacıyla 2-3 mm boyutlarındaki granül halindeki yüksek yoğunluklu polietilen, öğütülmek suretiyle toz haline getirilmiştir. Yüksek yoğunluklu polietilen ve %30'a kadar değişik hacimsel

konsantrasyonlarda Alüminyum Oksit (Al_2O_3) kullanılarak bir karışım elde edilmiştir. Bu toz halindeki karışım daha sonra 4 MPa basınç altında, erime sıcaklığının üzerinde $185\text{ }^\circ\text{C}$ sıcaklıkta kalıbın içinde eritilerek bir sıkıştırma işlemine tabi tutulmuştur. Karışım, ortam sıcaklığında soğumaya bırakılarak katılaşması sağlanmıştır. Kompozit malzemeyi oluşturan karışım yüzdeleri, 0.01 gramı ölçebilen hassas terazide tartılarak tespit edilmiştir.

Çizelge 4. Yüksek yoğunluklu polietilenin özellikleri

Özellikler	Yüksek Yoğ. Polietilen
Erime indeksi	0.35 gr/10 dakika
Yoğunluk	0.964 gr/cm ³
Molekül ağırlığı dağılımı	30-45
Akmada gerilme dayanımı	290 kg/cm ²
Kopmada gerilme dayanımı	350 kg/cm ²
Kopmada uzama	> % 500
Esneklik modülü	12.000 kg/cm ²
Sertlik (Rockwell)	65 Rscale
Darbe dayanımı	> 35 kg.cm/cm
Baskıyla kırılmaya dayanım	40 saat
Yumuşama noktası	128 °C
Erime noktası	134 °C
Kırılma sıcaklığı	< -80 °C

3.2. Ölçme Tekniği

Hazırlanan numunelerin ısı iletim katsayılarının ölçümü, "Hot Wire" yönteminden yararlanılarak geliştirilmiş olan "Shotherm QTM-D2" cihazı ile yapılmıştır. Shotherm QTM-D2 cihazının ölçme yönteminde ısıtıcı tel, ısı iletim katsayısı bilinen yalıtkan bir malzemeyle, ısı iletim katsayısı ölçülmek istenen malzeme arasına yerleştirilir. Bu durumda ısı iletim katsayısı aşağıdaki formülden hesaplanır:

$$k = F \frac{Q \ln(t_2 / t_1)}{T_2 - T_1} - H \quad (9)$$

F, H : ölçme cihazına ait sabitler,

Q : ısıtıcı tele verilen ısı akısı,

t_1, t_2 : ölçüm zamanları (saniye),

T_1 : t_1 zamanındaki sıcaklık,

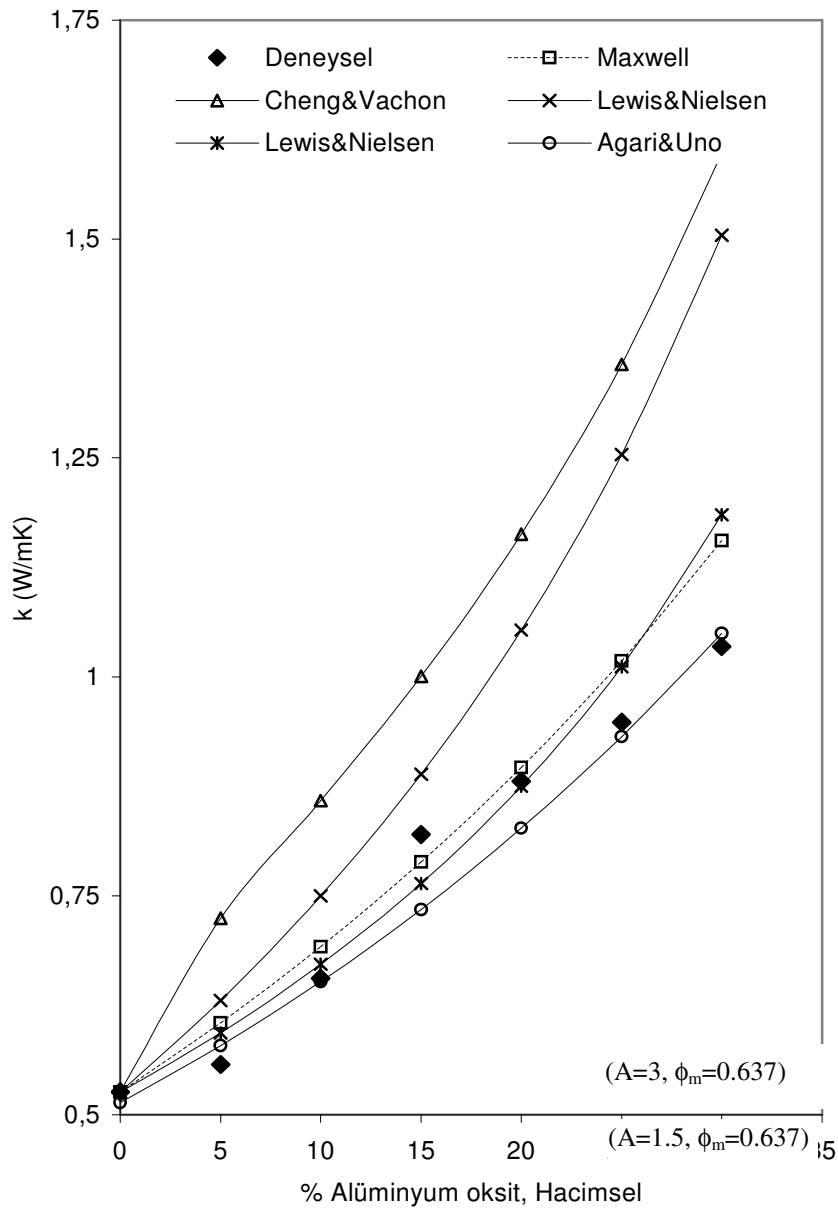
T_2 : t_2 zamanındaki sıcaklık.

Her standart QTM probunun farklı F ve H sabitleri vardır. Bu sabitler bilindiğinde yukarıdaki formülden ısı iletim katsayısı cihaz içindeki bir mikrokomputer ile hesaplanır. 60 saniye içinde malzemenin belli bir sıcaklık değeri için ısı iletim katsayısı dijital olarak ekranda verilir. Bu cihazın en önemli avantajlarından birisi, ölçüm esnasındaki ısı kayıplarının, ölçümün kısa sürede yapılmasından dolayı çok az miktarda olmasıdır. Cihaz 0.020-1.0 W/mK aralığında ısı iletim katsayısını $\pm\%5$ hassasiyet ile ölçebilmektedir. Ölçümlerin tekrarlanabilirliği ise imalatçı firma tarafından $\pm\%2$ olarak verilmektedir. Yapılan

ölçümlerde hazırlanan numunenin her iki yüzeyinden alınan beşer adet ölçüm değerinin ortalaması numunenin ısı iletim katsayısı olarak alınmıştır.

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

Yapılan deneysel çalışmalardan ve Maxwell, Cheng ve Vachon, Lewis ve Nielsen ($A=3$, $\phi=0.637$), Lewis ve Nielsen ($A=1.5$, $\phi=0.637$) ve Agari ve Uno modellerinden elde edilen sonuçlar Şekil 1'de gösterilmiştir (Maxwell, 1954; Cheng ve Vachon, 1970; Lewis ve Nielsen, 1970; Agari ve Uno, 1986). Şekilde görüldüğü gibi Maxwell, Lewis ve Nielsen ($A=1.5$, $\phi=0.637$) ve Agari ve Uno modelleri deney sonuçlarına yakın değerler vermektedir. Agari ve Uno modelinde zaten mevcut deney sonuçları kullanıldığı için yakın değerler vermesi gayet doğaldır (Agari ve Uno, 1986).



Şekil 1. Alüminyum Oksit Katkılı Yüksek Yoğunluklu Polietilen Kompozit Malzemesinin Deney ve Modellerden Elde Edilen Isı İletim Katsayısı Değerleri

KAYNAKLAR

- Agari Y., Uno T. (1986): "Estimation on Thermal Conductivities of Filled Polymers", J. Appl. Polym. Com. Sci., V.32, p.5705-5712.
- Cheng S.C., Vachon R.I. (1970): "A Technique for Predicting the Thermal Conductivity of Suspensions, Emulsions, and Porous Materials", Int. J. Heat and Mass Transfer, V.13, p.537.
- Lewis T., Nielsen, L. (1970): "Dynamic Mechanical Properties of Particulate Filled Polymers", J. Appl. Polym. Sci., V.14, p.1449.
- Maxwell J.C. (1954): "A Treatise on Electricity and Magnetism", Dover, 3rd Ed., New York, Ch.9.
- Nielsen L. (1970): "Generalized Equation for the Elastic Moduli of Composite Materials", J. Appl. Phys., V.41, p.4626.
- Progelhof R.C., Throne J.L., Ruetchr R. (1976): "Methods for Predicting the Thermal Conductivity of Composite Systems:A Review", Polymer Engineering and Science, V.16, p.9.