



Karbon Fiber/Epoksi Nanokompozit Plakalarda Nanopartikül Katkısının Fiber, Matris ve Boşluk Hacim Oranlarına Etkisi

Mehmet Çağrı TÜZEMEN^{1,*}, Elmas SALAMCI¹, Ahmet AVCI²

¹Gazi Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Makina Mühendisliği Bölümü, Ankara, Türkiye

²Selçuk Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Makina Mühendisliği Bölümü, Konya, Türkiye

Öz

Bu çalışmada farklı oranlardaki nanopartikül takviyesinin fiber, matris ve boşluk hacim oranlarına etkisi incelenmiştir. Karbon fiber/epoksi nanokompozit plakalar vakum infüzyon yöntemi (VİY) ile üretilmiştir. Üretim öncesinde matris elemanı olan epoksi içerisine farklı oranlarda nanopartikül katılmıştır. Üretilen nanokompozitler standartlarda verilen ölçülerde hazırlandıktan sonra yakma testine tabi tutulmuştur. Nanopartikül katkısı arttıkça hem epoksinin viskozitesi hem de epoksi içerisinde nanopartikül kümelenmeleri artmıştır. Bunun sonucunda üretim esnasında epoksinin basınç altında vakumlanması ve fiberleri iletmesi zorlaşmıştır. Yakma testi sonucunda %5 nanopartikül katkısının boşluk hacim oranını %221 arttırdığı sonucuna ulaşılmıştır.

Makale Bilgisi

Başvuru: 06/01/2017
Düzeltilme: 24/01/2017
Kabul: 07/02/2017

Anahtar Kelimeler

Nanokompozit
Yakma deneyi
Fiber hacim oranı
Nanokil

Effect of Nanoparticles on Carbon Fiber/Epoxy Nanocomposite Laminates Fiber, Matris and Void Volume Fraction

Abstract

In this paper, the effect of nanoparticles with different fractions on fiber, matrix and void volume fraction was investigated. Vacuum assisted resin transfer molding (VARTM) method was used to manufacture the carbon fiber/epoxy nanocomposite laminates. Before manufacturing, nanoparticles were added to epoxy with different fractions. Manufactured nanocomposites were applied to burning test after they cut into the size referred in standards. When fraction of nanoparticles increased, both the viscosity of epoxy and agglomeration of nanoparticles in epoxy increased. As a result, vacuuming of epoxy under pressure and wetting the fibers get hard while manufacturing. After burning test, it was found that adding 5% nanoparticles would increase void volume fraction by %221.

Keywords

Nanocomposite
Burning test
Fiber volume fraction
Nanoclay

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Polimer kompozitlerde fiber, matris ve boşluk hacim oranı çok önemli kavramlardır. Çünkü kompozitler yapısı gereği takviye ve matris elemanlarından farklı özellikler olarak bunların kompozit yapı içerisindeki oranlarına bağlı olacak şekilde mekanik özellikler göstermektedirler. Bu oranlar kullanılan takviye elemanına, matrise, nanopartikül katkısına ve üretim yöntemlerine bağlı olarak değişiklik gösterebilmektedir. Fiber takviyeli polimer kompozitlerde boşluk oluşumu kaçınılmazdır ve bunun mekanik özelliklere olumsuz etkisi olmaktadır. Literatürde yapılan çoğu çalışma boşluk hacim oranının kayma gerilmesi, yorulma, basma gerilmesi, basma modülü ve kırılma tokluğu gibi mekanik özelliklere etkisini incelemektedir [1]. Boşlukların oluşum sebepleri de en az sonuçları kadar önemli bir konudur. Bu konuda da genellikle üretim yöntemlerinin boşluk hacim oranlarına ve takviye elemanının katman sayısının fiber hacim oranına etkisiyle ilgili çalışmalar yapılmıştır [2, 3]. Literatürde VİY ile üretilen katkısız kompozit plakaların fiber hacim oranlarının elle yatırma ve sıcak izostatik pres yöntemlerine göre daha yüksek olduğu bildirilmiştir [4, 5]. Bu çalışmada ise takviye elemanı, matris ve üretim yöntemi gibi değişkenler sabit tutularak farklı oranlarda nanopartikül katkısının fiber, matris ve boşluk hacim oranlarına etkisi incelenmiştir.

*İletişim yazarı, e-mail: cagrituzemen@gazi.edu.tr

2. GEREÇ VE YÖNTEM (MATERIAL AND METHOD)

2.1. Malzeme (Material)

Bu çalışmada nanopartikül katkısız ve değişik oranlarda nanokil (%1, %2, %3, %4, %5) katkılı nanokompozit plakaların fiber, matris ve boşluk hacim oranları incelenmiştir. Fiber malzemesi olarak karbon, matris malzemesi ise epoksi olarak seçilmiştir. Aşağıdaki çizelgelerde bu çalışmalarda kullanılan sırasıyla karbon elyaf, epoksi ve sertleştiricinin bazı özellikleri verilmiştir.

Çizelge 1. Çalışmada kullanılan karbon elyafların teknik özellikleri (Technical properties of the carbon fiber used)

Elyaf Çapı (μm)	7
Yoğunluk (g/cm^3)	1.76
Çekme Dayanımı (MPa)	3950
Elastisite Modülü (GPa)	238
Kopma Uzaması (%)	1.7

Çizelge 2. Çalışmada kullanılan epoksinin teknik özellikleri (Technical properties of the epoxy used)

Yoğunluk (g/cm^3)	1.18-1.23
Viskozite (mPas)	600-900
Çekme Dayanımı (MPa)	70-80
Elastisite Modülü (kN/mm^2)	3-3.3
Eğilme Dayanımı (MPa)	110-120

Çizelge 3. Çalışmada kullanılan sertleştiricinin teknik özellikleri (Technical properties of the hardener used)

Yoğunluk (g/cm^3)	0.94-0.97
Viskozite (mPas)	50-100

Çizelge 4. Numuneleri kodlama sistemi (Coding system of the specimens)

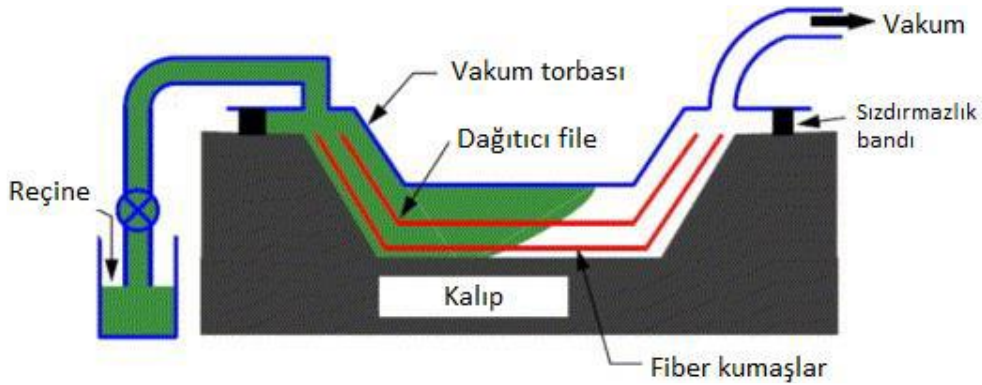
Matris Katılan Nanopartikül	Nanopartikülün Ağırlıkça % Oranı	Numune Kodu
-	-	Katkısız
Nanokil	1	NK1
Nanokil	2	NK2
Nanokil	3	NK3
Nanokil	4	NK4
Nanokil	5	NK5

Çizelge 4'te bu çalışma kapsamında üretilen numunelere katılan nanopartikül oranına göre kodlama sistemi verilmiştir.

2.2. Vakum infüzyon yöntemi ile nanokompozit levha üretimi (Production of nanocomposite plates by vacuum assisted resin transfer molding)

Nanokompozit levha üretiminde vakum infüzyon yöntemi kullanılmıştır. Bu yöntem yapılan diğer çalışmalarda da sıklıkla kullanılan bir yöntemdir [6-8].

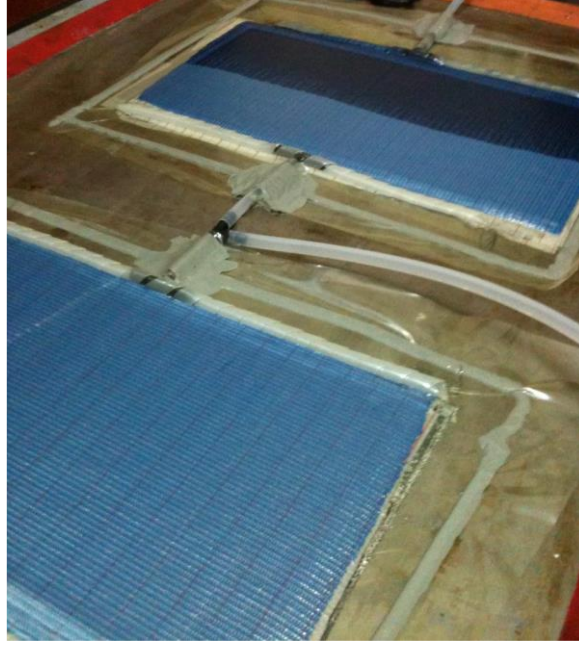
Vakum infüzyon yöntemi reçine transfer kalıplama (RTK) yönteminden türetilmiştir. RTK yöntemine göre takım maliyetleri düşük, yüksek basınca gerek duyulmayan ve uçucu emisyonları azaltan veya bitiren bir yöntemdir. Takım maliyeti üst kalıp yerine torba kalıp kullanılmasından dolayı düşmektedir. Aynı zamanda bu torba zararlı emisyonların da sızmasını engellemektedir. RTK yönteminde uygulanan yüksek basınca da bu yöntemde gerek duyulmaz [9]. Şekil 1’de vakum infüzyon yönteminin şematiği verilmiştir.



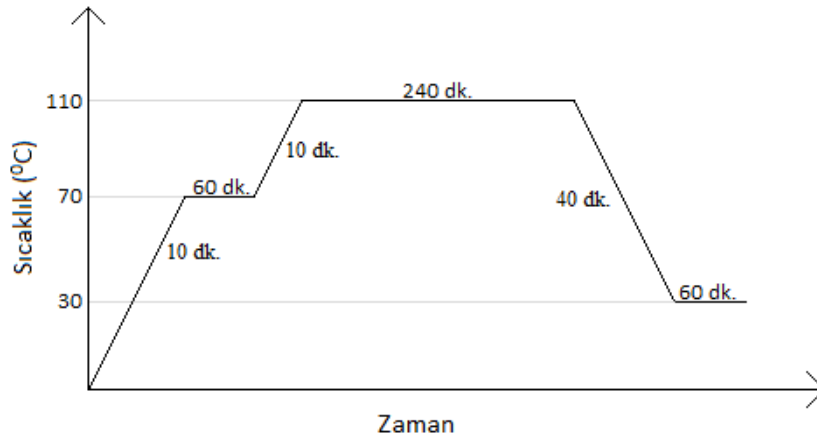
Şekil 1. Vakum infüzyon yöntemi (Vacuum assisted resin transfer molding) [10]

Üretim aşaması, nanopartiküllerin epoksiye katılması ve epoksinin fiberlere emdirilmesi olmak üzere iki kademededen oluşmaktadır. İlk aşamada nanoparçacıkların epoksi içerisinde kümelenme oluşturmayacak şekilde dağıtılması üstesinden gelinmesi gereken bir durumdur. Bunun için literatürde de sıkça kullanılan uçlu sonikasyon yöntemi kullanılmıştır. Bu yöntem epoksi içerisinde yüksek ve alçak basınç alanları oluşturarak nanoparçacıkların epoksi içerisinde dağılmasını sağlar. Sonikasyon süresi uzadıkça epoksinin sıcaklığı artmaktadır. Aşırı ısınma epoksinin zarar görmesine neden olabilmektedir. Dolayısıyla sonikasyon sırasında epoksilerin soğutulması gerekmektedir [11]. Bu çalışma da aşırı ısınmayı engellemek için sonikasyon tek seferde yapılması yerine birkaç seferde tamamlanacak şekilde bölünerek kısaltılmıştır. Bu sayede bekleme esnasında epoksinin sıcaklığı tekrar düşürülmüştür. Isınmanın iyi yanı ise epoksinin viskozitesini düşürerek epoksi içerisindeki hava kabarcıklarının azaltılmasıdır. Hava kabarcıklarının azalması boşluk hacim oranının düşük kalmasında etkili olacaktır.

İkinci aşamada ise hazırlanan reçinelere 4:1 oranında sertleştirici katılmıştır. Sertleştirici epoksi içinde iyice karıştırıldıktan sonra kürleşme başlamadan fiberlere emdirilmesi gerekmektedir. Nanopartiküllerin epoksi içerisinde dağıtılması kadar fiberlere emdirilmesi de önemli bir sorundur. Bu yöntemde ıslanmama sıkça karşılaşılan bir sorundur [12]. Şekil 2’de nanokompozit plakaların üretim anı gösterilmiştir. Üretim esnasında reçinenin gideceği yolu kısaltmak ıslanmama sorununun üstesinden gelinmek için alınan bir tedbir olarak uygulanmıştır.



Şekil 2. Reçinenin elyaflara vakumla emdirilmesi (Vacuum impregnation of resin into fibers)



Şekil 3. Kürleme diyagramı (Curing diagram)

Şekil 3'te ise VİY ile üretilen nanokompozit plakaların kürlenme diyagramı verilmiştir. Kürlenmenin ilk aşamasında sıcaklığın düşük tutulmasının nedeni henüz kürlenmemiş epoksinin yüksek sıcaklık ile kimyasal yapısının bozulmamasını sağlamaktır.

2.3. Yoğunluk (Density)

Eğer kompozit malzemenin M matrisinden ve F takviye elemanından oluştuğunu farz edersek, kompozit malzemenin toplam kütlesi şu şekilde yazılabilir:

$$m_C = m_M + m_F \quad (1)$$

Kompozit içindeki boşlukların hacmini de V_v olarak tanımlarsak kompozitin toplam hacmi:

$$V_C = V_M + V_F + V_v \quad (2)$$

Böylece kompozitin yoğunluğu (ρ_c):

$$\rho_c = \frac{m_c}{V_c} = \frac{m_M + m_F}{V_M + V_F + V_v} \quad (3)$$

Matris ve takviye elemanının boyutsuz kütle oranı (w_M, w_F) ve kütle yoğunluğu (ρ_M, ρ_F) sırasıyla:

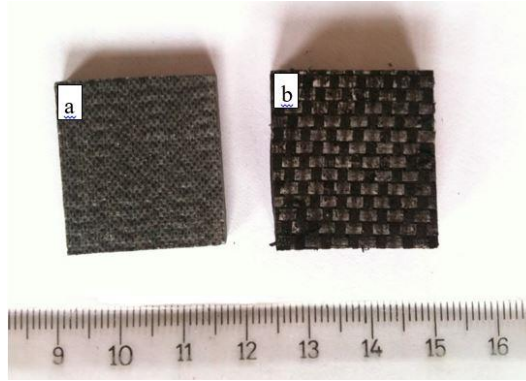
$$w_M = \frac{m_M}{m_M + m_F} \quad w_F = \frac{m_F}{m_M + m_F} \quad \text{ile} \quad w_M + w_F = 1 \quad (4)$$

$$\rho_M = \frac{m_M}{V_M} \quad \rho_F = \frac{m_F}{V_F} \quad (5)$$

Kompozit malzemenin yoğunluğu matris ve takviye elemanının yoğunluğu ile bu fazların kompozit içerisindeki hacim oranlarıyla doğru orantılıdır [13, 14].

3. BULGULAR (FINDINGS)

Yakma deneyi ASTM D 2734 - 09 ve D 2584 - 11 standartlarına göre uygulanmıştır. Bu deneyin amacı üretilen nanokompozit numunelerdeki fiber, matris ve boşluk hacim oranlarını belirlemektir. Özellikle boşluk hacim oranı üretimin sağlıklı olup olmadığı konusunda belirleyici bir etkidir. Bu oranın bilinmesi malzemenin daha sonrasında yapılabilecek testler sonrasında mekanik özelliklerinin yorumlanması açısından da önem arz edebilecektir. Öncelikle her bir deney için üçer adet numune standartlardaki ölçülere göre kesilmiş ve hacmi hesaplanmıştır. Yakma deneyine geçmeden önce numuneler tartılmış ve toplam kütle bulunmuştur. Daha sonra fırında 565°C'de yakılarak epoksi kompozitten uzaklaştırılmış ve geriye kalan fiberler tekrar tartılarak not edilmiştir. Kullanılan fiber ve epoksi malzemenin yoğunluklardan yola çıkarak hacimleri hesaplanmış ve son olarak da toplam hacimden çıkarılarak boşluk hacim oranı elde edilmiştir. Şekil 4'te standart ölçülerde kesilmiş yakma deneyi numunelerinin yakmadan önce ve yaktıktan sonraki şekilleri görülmektedir.



Şekil 4. Yakma deneyi numunesi a) yakmadan önce b) yaktıktan sonra (Specimen of the burning test a) before test b) after test)

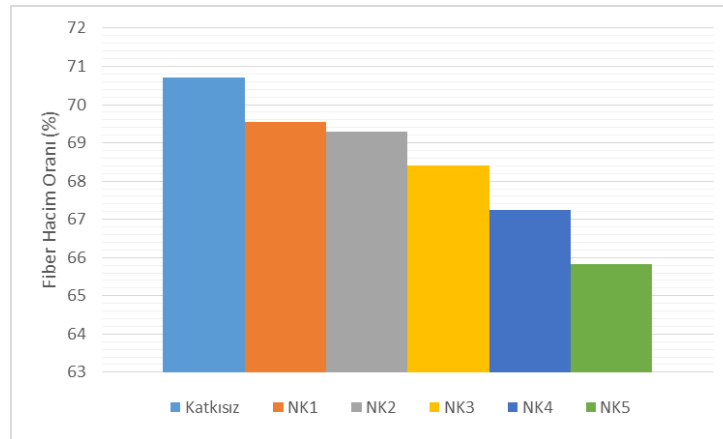
Yakma deneyi ile üretilen kompozitlerin fiber, matris ve boşluk hacim oranları belirlenmiştir. Nanopartikül katkısının epoksi yoğunluğuna etkisi hesaba katılarak hacim oranlarının daha sağlıklı belirlenmesi sağlanmıştır. Yasmin ve arkadaşları yaptıkları çalışmada ağırlıkça %10 nanokil katkısının epoksinin yoğunluğunu %3 oranında arttırdığını bildirmiştir [15]. Bu bilgiler ışığında bu çalışmada hazırlanan epoksi nanokil karışımlarının yoğunluğu 5 farklı oran için de ayrı ayrı hesaplanmıştır. Böylece matris hacim oranı hesaplanırken, nanokil katkısından dolayı epoksinin yoğunluğundaki artış da Eş.5'te hesaba katılmış ve epoksinin hacim oranında daha kesin sonuçlar elde edilmiştir. Çizelge 5'te üretilen numunelerin bu hesaplamalar sonucunda bulunan hacim oranları verilmiştir. V_f fiber hacim oranını, V_m matris hacim oranını, V_v ise boşluk hacim oranını vermektedir.

Çizelge 5 incelendiğinde iki önemli nokta dikkat çekmektedir, nanopartikül katkısı fiber hacim oranını düşürmekte ve boşluk hacim oranını artırmaktadır. Bunun nedeni nanopartikül katkısının matrisin viskozitesini artırması olduğu söylenebilir. Üretim aşamasının ikinci kısmında epoksi tezgaha dizilen fiberlere vakumla emdirilmiştir. Fiberler bütün epoksiyi emdikten sonra vakum sistemi açık bırakılarak fiberler arasında kalan fazla epoksiyi emmesi sağlanmıştır. Bu aşamada nanokil katkısı ile matrisin viskozitesinin artması üretim esnasında fazla epoksinin katkısız numunelere kıyasla vakum altında daha az

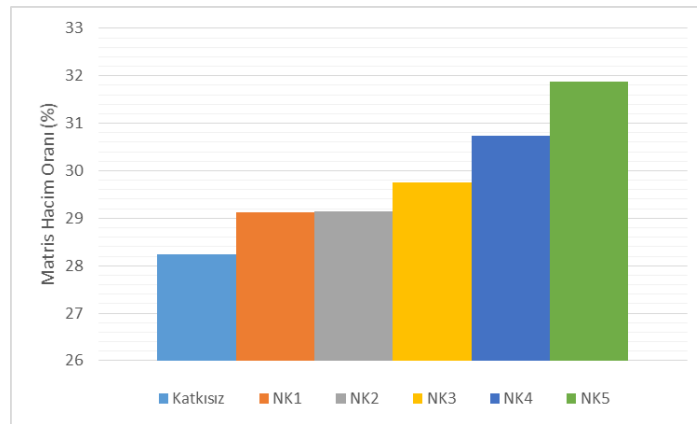
emilebilmesine yol açabilir. Dolayısıyla kompozit yapı içerisindeki matris hacim oranının arttığı söylenebilir. Kompozit yapılarda özellikle malzemenin mekanik özelliklerini düşürebilecek etki yapabilmesi nedeniyle boşluk hacim oranının mümkün olan en düşük seviyede olması istenilen bir durumdur. Bulunan oranlar literatürle kıyaslandığında fiber oranlarının yüksekliği ve boşluk hacim oranlarının düşüklüğü açısından üretimde başarı sağlandığını göstergesi olabilmektedir [2, 3, 16, 17]. Şekil 5-7’de yakma deneyi sonrası her numune için fiber, matris ve boşluk hacim oranlarını gösteren grafikler verilmiştir.

Çizelge 5. Numunelerin hacim oranları (Volume fractions of the specimens)

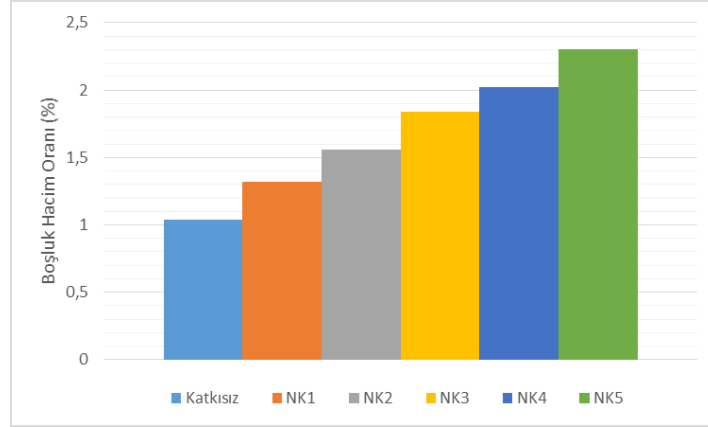
	V_f	V_m	V_v
Katkısız	70.72	28.24	1.04
NK1	69.55	29.13	1.32
NK2	69.30	29.14	1.56
NK3	68.40	29.76	1.84
NK4	67.24	30.74	2.02
NK5	65.84	31.87	2.30



Şekil 5. Numunelerin fiber hacim oranları (Fiber volume fractions of the specimens)

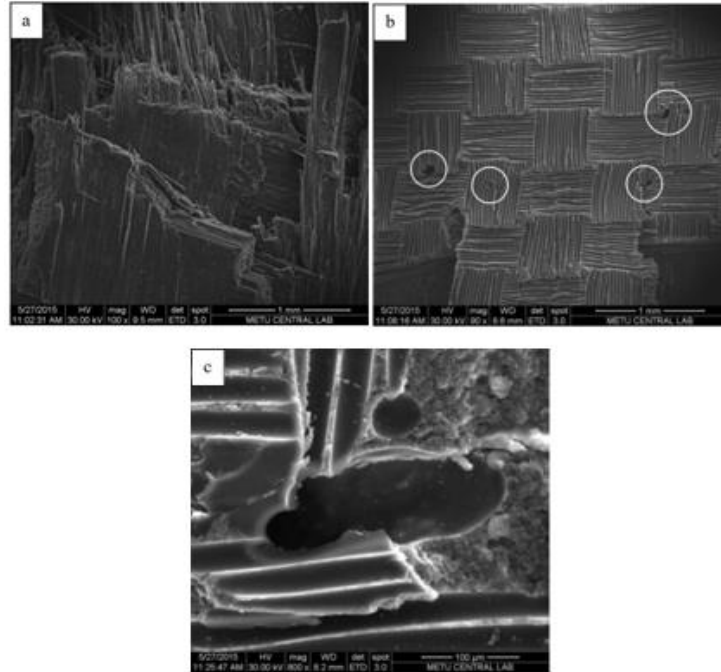


Şekil 6. Numunelerin matris hacim oranları (Matrix volume fractions of the specimens)



Şekil 7. Numunelerin boşluk hacim oranları (Void volume fractions of the specimens)

Şekil 8’de katkısız ve NK4 numunelerinin SEM görüntüleri verilmektedir. Şekil 8.a incelendiğinde katkısız numunede matriste boşluk gözlenmemektedir Şekil 8.b’de NK4 numunesinde üretim esnasında oluşan boşluklar yuvarlak içerisinde gösterilmiştir. Katkısız numunenin boşluk hacim oranı %1,04 iken NK4 numunesi için bu oran %2,02 olarak bulunmuştur. Şekil 8.c incelendiğinde matris içerisinde oluşan bu boşlukların matris ile fiber ara yüzeyinde olduğu görülmektedir. Bu bölgelerde bulunan boşlukların gerilme yığılması oluşturması nedeniyle çatlak gibi davranarak hasar başlangıcına sebep olabileceği veya hasarı hızlandırabileceği söylenebilir. Dolayısıyla kompozit malzemelerde oluşan bu boşlukların hasar mekanizmalarını değiştirebilecek kadar etkili olabilecekleri açıktır.



Şekil 8. Numunelerin SEM görüntüleri a) katkısız kompozit b) ve c) NK4 nanokompozit (SEM images of the specimens a) neat composite b) and c) NK4 nanocomposite)

Nanopartikülün matris içerisinde homojen olarak dağıtılması önemli bir problemdir. Boşluk hacim oranındaki artışın nanopartikül katkısıyla orantılı olarak artması ise nanopartiküllerin topaklanması ile açıklanabilir. Nanopartiküllerin matris içerisinde kümelenmeler oluşturarak üretim esnasında epoksinin elyafı ıslatmasının önünde bir engel teşkil ederek kompozit yapı içerisinde küçük hava boşluklarının oluşmasına yol açtığı söylenebilir. Bu etki nanopartikül katkılı numunelerin boşluk hacim oranlarını katkısız numunelere oranla yaklaşık %30 ile %130 arasında artırarak %1.04’ten %2.30’a kadar yükselmesine yol açmıştır.

4. SONUÇLAR (CONCLUSION)

Bu çalışmada değişik oranlarda nanokil katkısının karbon/epoksi nanokompozit plakaların fiber, matris ve boşluk hacim oranlarına etkisi incelenmiştir. Fiber malzemesi karbon matris malzemesi ise epoksidir. Nanopartikül olarak ağırlıkça %1, %2, %3, %4, %5 oranlarında olmak üzere 5 farklı nanokil katkılı ve katkısız olmak üzere 6 farklı numune üretilmiştir. Nanokompozit plakaların üretiminde VİY kullanılmıştır.

Üretilen numunelere yakma deneyi uygulanmış ve nanopartikül katkısının malzeme üzerindeki etkisi incelenmiştir. Ayrıca numunelerin SEM incelemelerinde nanopartikül kümelenmeleri ve boşluklar gözlemlenmiştir.

Yakma deneyi ile numunelerin fiber, matris ve boşluk hacim oranları bulunmuştur. Nanopartikül katkısı arttıkça fiber hacim oranının azaldığı ve boşluk hacim oranının arttığı tespit edilmiştir. %5 oranında nanopartikül eklendiğinde fiber hacim oranının %70.72'den %65.84'e düştüğü ve boşluk hacim oranının %1.04'ten %2.30'a çıktığı tespit edilmiştir. Nanopartikül katkısının epoksinin yoğunluğunu artırarak viskozitesinin de artmasına sebep olmuştur. Viskozitedeki bu artış üretimin ikinci aşaması olan epoksinin fiberlere emdirilmesi sonrasında vakumla fazla epoksinin yapıdan uzaklaştırılmasını zorlaştırmaktadır. Dolayısıyla kompozit yapı içerisindeki matris hacim oranının arttığı fiber hacim oranının ise azaldığı sonucuna ulaşılmıştır.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

- [1] Zhu, H., Wu, B., Li, D., Zhang, D. and Chen, Y., "Influence of voids on the tensile performance of carbon/epoxy fabric laminates", **Journal of Materials Science & Technology**, Cilt 27, No 1, 69-73, 2011.
- [2] Esnaola, A., Tena, I., Aurrekoetxea, J., Gallego, I. and Ulacia, I., "Effect of fibre volume fraction on energy absorption capabilities of E-glass/polyester automotive crash structures", **Composites Part B: Engineering**, Cilt 85, 1-7, 2016.
- [3] Bodaghi, M., Cristóvão, C., Gomes, R. and Correia, N.C., "Experimental characterization of voids in high fibre volume fraction composites processed by high injection pressure RTM", **Composites Part A: Applied Science and Manufacturing**, Cilt 82, 88-99, 2016.
- [4] Karakuzu, R., Demircoren, O., Icten, B.M., and Deniz, M.E., "Failure behavior of quasi-isotropic laminates with three-pin loaded holes", **Materials & Design**, Cilt 31, No 6, 3029-3032, 2010.
- [5] Ozen, M., and Sayman, O., "Failure loads of mechanical fastened pinned and bolted composite joints with two serial holes", **Composites Part B: Engineering**, Cilt 42, No 2, 264-274, 2011.
- [6] Bekyarova, E., Thostenson, E.T., Yu, A., Kim, H., Gao, J., Tang, J., ... and Haddon, R.C., "Multiscale carbon nanotube-carbon fiber reinforcement for advanced epoxy composites", **Langmuir**, Cilt 23, No 7, 3970-3974 2007.
- [7] Zhu, J., Imam, A., Crane, R., Lozano, K., Khabashesku, V.N. and Barrera, E.V., "Processing a glass fiber reinforced vinyl ester composite with nanotube enhancement of interlaminar shear strength", **Composites Science and Technology**, Cilt 67, No 7, 1509-1517, 2007.
- [8] Zhou, Y., Pervin, F., Lewis, L. and Jeelani, S., "Fabrication and characterization of carbon/epoxy composites mixed with multi-walled carbon nanotubes", **Materials Science and Engineering: A**, Cilt 475, No 1, 157-165, 2008.
- [9] Parnas, R.S. and Walsh, S.M., "Vacuum-assisted resin transfer molding model", **Polymer composites**, Cilt 26, No 4, 477-485, 2005.
- [10] Kuentzer, N., Simacek, P., Advani, S.G. and Walsh, S., "Correlation of void distribution to VARTM manufacturing techniques", **Composites Part A: applied science and manufacturing**, Cilt 38, No 3, 802-813, 2007.

- [11] Fiedler, B., Gojny, F.H., Wichmann, M.H., Nolte, M.C. and Schulte, K., “Fundamental aspects of nano-reinforced composites”, **Composites science and technology**, Cilt 66, No 16, 3115-3125, 2006.
- [12] Maley, J.A., “**An investigation into low-cost manufacturing of carbon epoxy composites and a novel “mouldless” technique using the Vacuum Assisted Resin Transfer Moulding (VARTM) method**”, Phd.Thesis, Carleton University, 2008.
- [13] Cardarelli, F., “**Materials handbook: a concise desktop reference**”, Springer Science & Business Media, Arizona, 2008.
- [14] Kaw, A.K., “**Mechanics of composite materials**”, CRC press, Florida, 2005.
- [15] Yasmin, A., Abot, J.L. and Daniel, I.M., “Processing of clay/epoxy nanocomposites by shear mixing”, **Scripta Materialia**, Cilt 49, No 1, 81-86, 2003.
- [16] Liu, L., Zhang, B.M., Wang, D.F. and Wu, Z.J., “Effects of cure cycles on void content and mechanical properties of composite laminates”, **Composite Structures**, Cilt 73, No 3, 303-309, 2006.
- [17] Meier, R., Kahraman, I., Seyhan, A.T., Zarembo, S. and Drechsler, K., “Evaluating vibration assisted vacuum infusion processing of hexagonal boron nitride sheet modified carbon fabric/epoxy composites in terms of interlaminar shear strength and void content”, **Composites Science and Technology**, Cilt 128, 94-103, 2016.