

Ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ trên cơ sở nhựa polyethylene tái chế

Nguyễn Quý An^{1*}, Đào Quốc Hùng¹, Lê Văn Long¹

¹Trung tâm Vật liệu hữu cơ & Hóa phẩm xây dựng, Viện Vật liệu xây dựng

TỪ KHÓA

Vật liệu composite nhựa gỗ
Phụ gia trợ tương hợp
Nhựa polyethylene tái chế

TÓM TẮT

Tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ chịu ảnh hưởng của nhiều yếu tố, trong đó, yếu tố mang tính quyết định đến tính chất của sản phẩm là khả năng tương tác tại bề mặt tiếp xúc giữa hai pha gỗ-nhựa. Để cải thiện khả năng tương tác giữa hai pha này, qua đó làm tăng cường tính chất cơ học, việc sử dụng các phụ gia trợ tương hợp là rất cần thiết. Trong bài báo này, ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp MAPE đến các tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ trên cơ sở nhựa polyethylene tái chế đã được nghiên cứu. Kết quả nghiên cứu cho thấy rằng: việc bổ sung thêm MAPE đã cải thiện khả năng gia công của vật liệu ở trạng thái nóng chảy, làm tăng cường các tính chất cơ học và giảm đáng kể độ hấp thụ nước. Quan sát ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) cấu trúc của vật liệu cho thấy rằng: khi sử dụng phụ gia trợ tương hợp, bột gỗ phân tán đồng đều hơn trong nền nhựa, không còn sự phân tách pha rõ rệt so với mẫu đối chứng. Khi bổ sung phụ gia trợ tương hợp MAPE với hàm lượng 4 pkl: vật liệu có độ bền kéo tăng khoảng 62 % (từ 6,67 MPa lên 10,84 MPa), độ bền uốn tăng khoảng 73 % (từ 12,26 MPa lên 21,12 MPa).

KEYWORDS

Wood plastic composite
Compatibilizer
Recycled polyethylene

ABSTRACT

The properties of wood-plastic composite materials affected by many factors, of which the decisive factor in the product's properties is the interphase between wood – plastic. To enhance the interaction between these two phases, thereby enhancing the mechanical properties, the use of compatibilizer is essential. This paper studied the influence of MAPE as a compatibilizer on the properties of wood-plastic composite materials based on recycled polyethylene resin. The results showed that: the addition of MAPE improved the processing properties of the material in the molten state, enhanced the mechanical properties, and reduced water absorption. Observation of scanning electron microscopy images (SEM) of the material's structure shows that: when using compatibilizer, the wood powder is more evenly dispersed in the resin matrix, with no obvious phase separation compared to the reference sample. When using 4 pkl compatibilizer: the material's tensile strength increased by 62 % (from 6.67 MPa to 10.84 MPa), the flexural strength increased by 73 % (from 12.26 MPa to 21.12 MPa).

1. Giới thiệu chung

Trong những năm gần đây, vật liệu composite nhựa gỗ đang được tập trung nghiên cứu và sử dụng nhiều do có các tính chất nổi bật như: bền khi sử dụng, tuổi thọ sản phẩm cao, có độ cứng cao, có kích thước ổn định hơn, không bị xuất hiện các vết rạn nứt,...thân thiện môi trường do không phát thải formaldehyt.

Tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ chịu ảnh hưởng của nhiều yếu tố, trong đó, yếu tố mang tính quyết định đến tính chất của sản phẩm là khả năng tương tác tại bề mặt tiếp xúc giữa hai pha gỗ-nhựa. Có thể nói rằng cách để cải thiện độ tương hợp giữa nền polymer và sợi gỗ là vấn đề chính trong việc chế tạo vật liệu này [1]. Khả năng tương hợp tốt, về cơ bản, các tính chất của vật liệu sẽ tốt, và ngược lại. Sợi gỗ có tính ưa nước do có chứa các liên kết hydroxyl trong cấu trúc phân tử, còn polyme sử dụng thường có tính kỵ nước, vì vậy, khả năng

liên kết giữa hai pha kém và dẫn tới khả năng truyền ứng suất từ nền polyme sang sợi gỗ kém. Các nhà nghiên cứu đã tìm ra một số phương pháp vật lý và hóa học với mục đích tăng cường độ bám dính giữa hai pha để cải thiện các tính chất cơ lý của vật liệu. Trong đó phương pháp được sử dụng phổ biến nhất là phương pháp ghép hóa học, phương pháp này sử dụng các tác nhân hóa học để hình thành các liên kết hóa học giữa mạch phân tử của sợi gỗ và nền nhựa [2].

Trong bài báo này, nhóm nghiên cứu sẽ khảo sát ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp MAPE đến tính chất lưu biến và các tính chất cơ lý của vật liệu composite nhựa gỗ như: độ bền uốn, độ bền kéo, độ hút nước và độ bền va đập Charpy.

2. Nguyên vật liệu và phương pháp nghiên cứu

2.1. Nguyên liệu, hóa chất

*Liên hệ tác giả: nguyenvuquyen18@gmail.com

Nhận ngày 20/09/2022, sửa xong ngày 04/11/2022, chấp nhận đăng 10/01/2023

Link DOI: <https://doi.org/10.54772/jomc.01.2023.431>

Một số nguyên liệu chính sử dụng trong nghiên cứu được thể hiện trên Bảng 1.

Bảng 1. Nguyên liệu chính sử dụng trong nghiên cứu.

STT	Nguyên liệu	Tính chất	Xuất xứ
1	Nhựa polyethylene tái chế	- Khối lượng riêng: 1,001 g/cm ³ - Chỉ số chảy: 1,54 g/10phút - Độ bền kéo: 17,57 MPa	Công ty Cổ phần Vinh Thành
2	Bột gỗ	- Kích thước lọt sàng: 315 μm - Độ ẩm: < 5% - Hàm lượng tro: < 5%	Công ty cổ phần bột gỗ NK Việt Nam
3	Bột đá	- Kích thước hạt trung bình: 25,85 μm - Khối lượng riêng: 2,7 g/cm ³	Công ty bột đá vôi trắng siêu mịn Nghệ An
4	Phụ gia trợ tương hợp	- Khối lượng riêng: 0,948 g/cm ³ - Chỉ số chảy: 25,0 g/10phút - Độ bền kéo: 23,0 MPa	Hãng BYK
5	Phụ gia bôi trơn	- Khối lượng riêng: 0,941 g/cm ³ - Nhiệt độ nóng chảy: 69°C	Trung Quốc

2.2. Chế tạo vật liệu composite nhựa gỗ

Tấm vật liệu composite nhựa gỗ chế tạo theo đơn phối liệu trong Bảng 2.

Trong nghiên cứu này, phụ gia trợ tương hợp MAPE có hàm lượng thay đổi từ 0 đến 6 phần khối lượng (pkl) và các thành phần khác được cố định như trong Bảng 2.

Bảng 2. Tỷ lệ hỗn hợp các thành phần.

STT	Thành phần (phần khối lượng)			
	Bột gỗ	Polyethylene tái chế	Phụ gia bôi trơn	Phụ gia trợ tương hợp
1	60	40	2	0
2	60	40	2	2
3	60	40	2	4
4	60	40	2	6

Hạt nhựa polyethylene tái chế, bột gỗ và các phụ gia được trộn hợp ở trạng thái nóng chảy trên máy trộn kín Hakee QC 600 tại nhiệt độ 180 °C với tốc độ trục 50 vòng/phút trong thời gian 5 phút.

Hỗn hợp vật liệu sau đó được ép tạo hình nhiệt trên máy ép thủy lực YLJ-HP88V với lực ép 50 kN tại nhiệt độ 180°C trong thời gian 5 phút.

2.3. Phương pháp xác định các tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ

Xác định tính chất lưu biến tại trạng thái nóng chảy trên thiết bị trộn kín hai trục Hakee Rheomix QC600.

Xác định độ bền kéo theo ISO 527-1 trên thiết bị Instron 3382 với tốc độ kéo 5mm/phút, kết quả là giá trị trung bình của 5 thanh mẫu thử.

Xác định độ bền uốn theo ISO 178 trên thiết bị Instron 3382 với tốc độ uốn 5mm/phút, kết quả là giá trị trung bình của 5 thanh mẫu thử.

Xác định độ bền va đập Charpy theo ISO 179-1 với mẫu thử có khía trên thiết bị Ceast 9050, là giá trị trung bình của 5 thanh mẫu thử.

Xác định khối lượng riêng theo các quy định của ISO 1183-1.

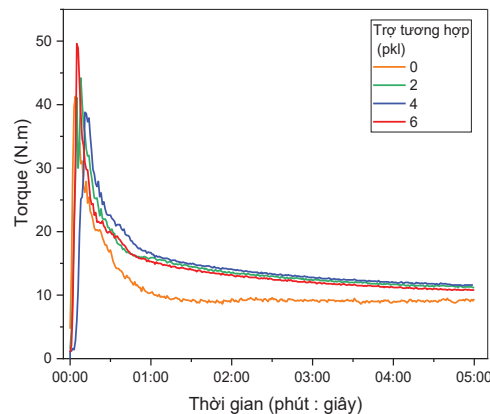
Phân tích cấu trúc vật liệu bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM) trên thiết bị JSM-6360LV.

3. Kết quả và thảo luận

3.1 Ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp tới tính chất lưu biến của vật liệu

Trong chế tạo vật liệu composite nhựa gỗ, tính chất lưu biến có ảnh hưởng tới quá trình gia công cũng những tính chất của vật liệu. Độ nhớt tại trạng thái nóng chảy quá cao làm cho vật liệu khó điền đầy khuôn và tăng chi phí cho năng lượng cần thiết; mặt khác, độ nhớt nóng chảy quá thấp lại hình thành nên vật liệu với tính chất kém hơn [3].

Ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến tính lưu biến của vật liệu ở trạng thái nóng chảy được thể hiện trên Hình 1.



Hình 1. Ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến tính lưu biến ở trạng thái nóng chảy.

Bảng 3. Mô men xoắn ở trạng thái cân bằng.

Hàm lượng phụ gia trợ tương hợp (pkl)	Mô men xoắn cân bằng (N.m)
0	9,3
2	11,2
4	11,6
6	10,8

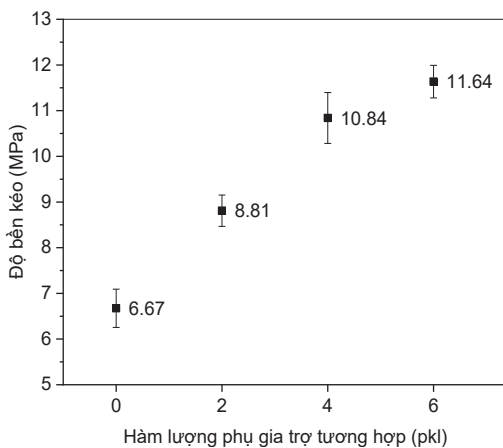
Tính chất lưu biến của vật liệu được phản ánh thông qua mô men xoắn mà trục trộn trên thiết bị Haake Rheomix QC600 ghi lại được trong quá trình trộn hợp. Số liệu trên Hình 1 và Bảng 3 cho thấy: khi không sử dụng phụ gia trợ tương hợp, giá trị mô men xoắn ở trạng thái cân bằng là 9,3 N.m, khi bổ sung phụ gia trợ tương hợp với hàm lượng 2 và 4 pkl, giá trị này tăng lên lần lượt là 11,2 N.m và 11,6 N.m, khi sử dụng 6 pkl phụ gia trợ tương hợp, giá trị này giảm xuống còn 10,8 N.m. Tại cùng một điều kiện trộn hợp, đường mô men của các vật liệu sử dụng phụ gia trợ tương hợp đều ở vị trí cao hơn và đạt tới trạng thái cân bằng muộn hơn so với khi không sử dụng phụ gia trợ tương hợp.

3.2. Ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến tính chất cơ lý của vật liệu

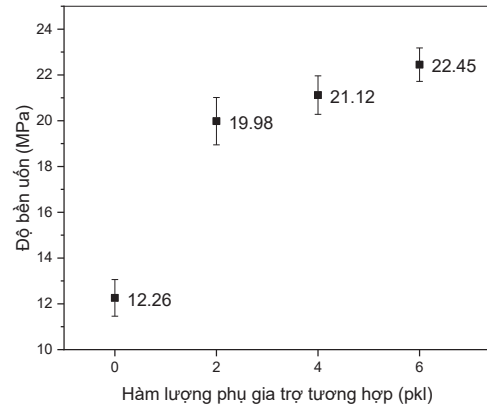
Sự có mặt của phụ gia trợ tương hợp đã cải thiện đáng kể độ bền kéo và độ bền uốn của vật liệu composite trên cơ sở nhựa polyethylene tái chế như được thể hiện trên Hình 2 và Hình 3.

Số liệu trên cho thấy việc bổ sung thêm phụ gia trợ tương hợp đã cải thiện đáng kể độ bền uốn và độ bền kéo của vật liệu composite nhựa gỗ. Khi bổ sung 2 pkl phụ gia trợ tương hợp, độ bền kéo của vật liệu tăng từ 6,67 MPa lên 8,81 MPa (tăng 32 %) còn độ bền uốn của vật liệu tăng từ 12,26 MPa lên 19,98 MPa (tăng 63 %). Khi tiếp tục tăng hàm lượng trợ tương hợp, độ bền kéo và độ bền uốn của vật liệu có xu hướng tăng, tuy nhiên không quá rõ ràng như ban đầu. Tính chất vật liệu đạt mức cao nhất tại hàm lượng phụ gia trợ tương hợp là 6 pkl với độ bền kéo 11,64 MPa và độ bền uốn 22,45 MPa.

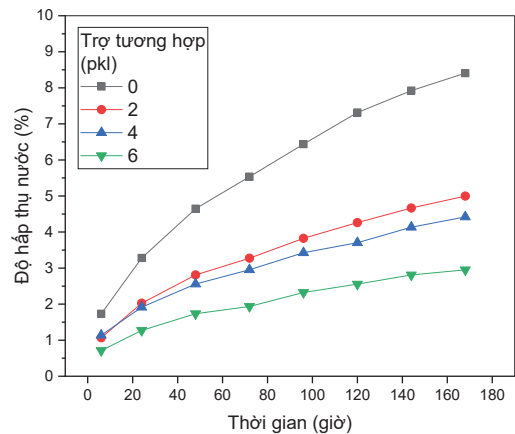
Số liệu về độ hấp thụ nước của vật liệu composite nhựa gỗ theo thời gian trên đồ thị Hình 4 cho thấy: việc sử dụng phụ gia trợ tương hợp cũng đã làm giảm khả năng hấp thụ nước của vật liệu theo thời gian. Tại thời điểm 168 giờ (7 ngày), độ hấp thụ nước của mẫu không có phụ gia trợ tương hợp là 8,4 %, khi sử dụng 2 pkl phụ gia trợ tương hợp, độ hấp thụ nước giảm xuống còn 5,0% (giảm 40 % so với không dùng phụ gia trợ tương hợp), khi sử dụng 4 pkl và 6 pkl, giá trị độ hấp thụ nước của vật liệu tại thời điểm này lần lượt là 4,4 và 2,9 %.



Hình 2. Ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp đến độ bền kéo của vật liệu.



Hình 3. Ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp đến độ bền uốn của vật liệu.

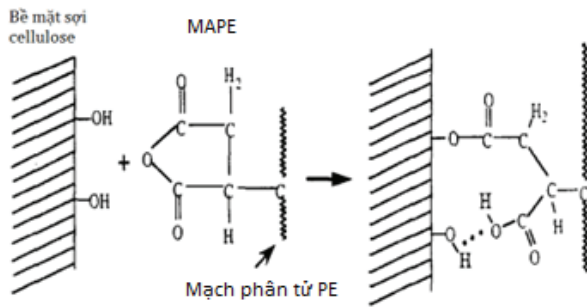


Hình 4. Ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp đến độ hấp thụ nước của vật liệu composite nhựa gỗ.

Sự thay đổi tính chất của vật liệu khi bổ sung phụ gia trợ tương hợp có thể giải thích là do việc bổ sung thêm phụ gia trợ tương hợp đã tăng khả năng liên kết giữa cellulose của bột gỗ và nền nhựa PE giống như cơ chế đã được tác giả Rowell mô tả trên Hình 5 [4]:

- Đầu tiên, nhóm chức anhydride của MAPE xuất hiện gần bề mặt bột gỗ và tương tác với các nhóm hydroxyl trên bề mặt của bột gỗ và hình thành lên các liên kết cộng hóa trị và liên kết hydro. Trong đó, một hoặc nhiều nhóm chức MA trên cùng một phân tử MAPE tương tác với các nhóm -OH khác nhau.
- Sau đó, PE trên phân tử MAPE hình thành liên kết với nhựa PE trong quá trình nóng chảy dẫn tới hình thành liên kết cơ học giữa lignocellulosic ưa nước và nhựa nhiệt dẻo kỵ nước.

Việc tăng khả năng liên kết giữa bột gỗ và nền nhựa đã tạo điều kiện cho việc truyền ứng suất giữa hai pha tốt hơn, ít xuất hiện các khuyết tật tại bề mặt phân chia pha, bột gỗ phân tán trong nền nhựa đều hơn; qua đó làm tăng cường các tính chất như độ bền kéo, độ bền uốn và giảm độ hấp thụ nước.



Hình 5. Cơ chế hình thành liên kết giữa phụ gia trợ tương hợp MAPE và bề mặt sợi cellulose trong bột gỗ.

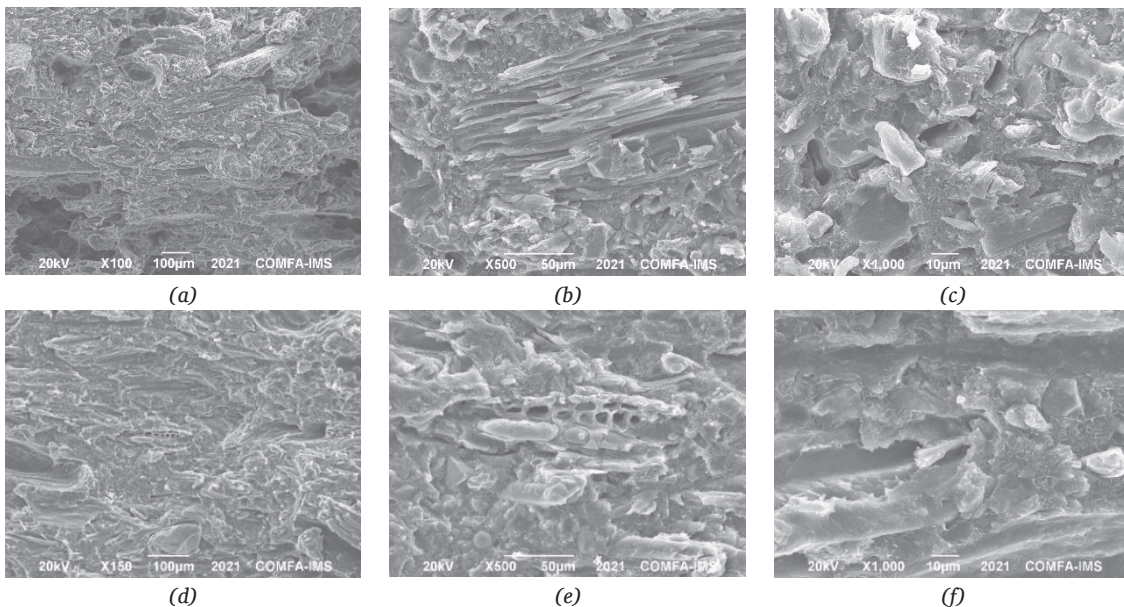
3.3. Ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến cấu trúc hình thái của vật liệu

Để quan sát ảnh hưởng của phụ gia trợ tương hợp đến cấu trúc của vật liệu khi có và không sử dụng phụ gia trợ tương hợp, nhóm nghiên cứu đã tiến hành chụp ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) của mẫu đối chứng không sử dụng phụ gia trợ tương hợp và mẫu sử dụng 4 pkl phụ gia trợ tương hợp. Có thể nhận thấy rằng: khi không sử dụng phụ gia trợ tương hợp (Hình 6 (a), (b), (c)), trong vật liệu tồn tại

những khoảng trống, có sự tách pha rõ rệt giữa nền nhựa và các hạt bột gỗ. Khi bổ sung thêm các phụ gia trợ tương hợp, những hạt bột gỗ được bao phủ bởi nền nhựa tốt hơn, bề mặt phá hủy cho thấy không còn sự phân biệt rõ ràng giữa bột gỗ và nền nhựa. Kết quả này cũng tương đồng với nghiên cứu của tác giả Qiang Yuan [5], tác giả cho rằng: khi không sử dụng phụ gia trợ tương hợp, giữa các hạt bột gỗ và nền nhựa hình thành chủ yếu là các liên kết hydro với lực liên kết yếu. Còn khi bổ sung phụ gia trợ tương hợp, sẽ hình thành liên kết mạnh hơn, các sợi gỗ được bao phủ bởi nền nhựa tốt hơn và giảm khoảng trống tồn tại trong vật liệu. Đây là nguyên nhân tính chất cơ lý của vật liệu tăng và độ hấp thụ nước của vật liệu giảm khi sử dụng các phụ gia trợ tương hợp.

Từ các kết quả nghiên cứu trên, nhóm nghiên cứu đã lựa chọn hàm lượng phụ gia trợ tương hợp phù hợp nhất sử dụng trong chế tạo vật liệu composite nhựa gỗ là 4 pkl. Tại giá trị này, các tính chất cơ lý của vật liệu được cải thiện rõ ràng và đạt được như sau:

- Độ bền kéo 10,84 MPa,
- Độ bền uốn 21,12 MPa
- Độ hấp thụ nước sau 168 giờ là 4,4 %



Hình 6. Ảnh SEM cấu trúc vật liệu composite nhựa gỗ không sử dụng phụ gia trợ tương hợp ((a), (b), (c)) và sử dụng 4 pkl phụ gia trợ tương hợp ((d), (e), (f)).

4. Kết luận

Bài báo đã nghiên cứu ảnh hưởng của hàm lượng phụ gia trợ tương hợp đến một số tính chất của vật liệu composite nhựa gỗ trên cơ sở nhựa polyethylene tái chế. Kết quả cho thấy: với sự có mặt của phụ gia trợ tương hợp với hàm lượng 4 pkl đã làm cho độ bền kéo của vật liệu tăng từ 6,67 MPa lên 10,84 MPa; độ bền uốn tăng từ

12,26 MPa lên 21,12 MPa; trong khi đó làm giảm độ hấp thụ nước sau 168 giờ từ 8,4 xuống 4,4 %. Khi hàm lượng phụ gia trợ tương hợp vượt quá 4 pkl, tính chất của vật liệu vẫn có xu hướng được cải thiện, tuy nhiên không đáng kể.

Kết quả phân tích ảnh SEM cho thấy: sự có mặt của phụ gia trợ tương hợp đã làm tăng khả năng liên kết giữa bột gỗ và nền nhựa, qua đó làm cho cấu trúc của vật liệu đồng nhất hơn, giảm khoảng

trồng trong cấu trúc, và cải thiện một số tính chất cơ lý của vật liệu composite nhựa gỗ.

Tài liệu tham khảo

- [1]. H. Hong, Q. Guo, H. Zhang, and H. He, "Effect of interfacial modifiers and wood flour treatment on the rheological properties of recycled polyethylene/wood flour composites," *Progress in Rubber, Plastics and Recycling Technology*, vol. 36, no. 1, pp. 31–46, 2020.
- [2]. J. Gassan and A. K. Bledzki, "The influence of fiber-surface treatment on the mechanical properties of jute-polypropylene composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 28, no. 12, pp. 1001–1005, Jan. 1997, doi: 10.1016/S1359-835X(97)00042-0.
- [3]. C. Hongzhen, K. Yang, and Y. Weiming, "Effects of calcium carbonate on preparation and mechanical properties of wood/plastic composite," vol. 10, pp. 184–190, Jan. 2017, doi: 10.3965/j.ijabe.20171001.2707.
- [4]. R. Rowell, "Advances and Challenges of Wood Polymer Composites," Apr. 2020.
- [5]. Q. Yuan, D. Wu, J. Gotama, and S. Bateman, "Wood Fiber Reinforced Polyethylene and Polypropylene Composites with High Modulus and Impact Strength," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, vol. 21, no. 3, pp. 195–208, May 2008, doi: 10.1177/0892705708089472.