



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2

BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM
GÉPÉSZMÉRNÖKI KAR
POLIMERTECHNIKA TANSZÉK

FRÖCCSÖNTHETŐ, HŐVEZETŐ POLIMER KOMPOZITOK
FEJLESZTÉSE

PHD ÉRTEKEZÉS TÉZISFÜZETE

ÍRTA:

SUPLICZ ANDRÁS
OKLEVELES GÉPÉSZMÉRNÖK

TÉMAVEZETŐ:

DR. KOVÁCS JÓZSEF GÁBOR
EGYETEMI DOCENS

2015

A doktori disszertáció bírálata és a védésről készült jegyzőkönyv a
Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem
Gépészmérnöki Karának Dékáni Hivatalában megtekinthetőek

1. Bevezetés

Az utóbbi évtizedek műszaki gyakorlatának számos területén nagy igény mutatkozik olyan új polimer alapú anyagok kifejlesztésére, amelyekkel helyettesíthetők a fémek. A fő cél a polimerek legfőbb előnyeinek kihasználása, úgymint a kis sűrűség, alacsony előállítási költség, korrózióállóság, gyors és jól automatizálható feldolgozástechnológia, illetve a másodlagos műveletek elkerülése. Ma a kutatások nagy része a különböző szálal anyagokkal erősített polimer kompozitok irányába terelődik, hogy az acéléhoz hasonló, vagy akár azt meghaladó szilárdságot érjenek el. A fémeknek azonban nem csak a szilárdsága, de hővezetési tényezője is jóval nagyobb, mint a polimereké. Számos esetben szükséges olyan anyagok alkalmazása, amelyek jól vezetnek a hőt, de elektromosan szigetelnek. Legtöbb alkalmazási példa az elektronikában található, ahol a keletkezett hő megfelelő elvezetése alapvető feladat, hogy az eszközök élettartamát megnövelhessük. Mindemellett az elektromos szigetelő képesség is fontos a rövidzárlatok és egyéb hibák elkerülése végett.

Az utóbbi évek technológiai fejlesztéseinek köszönhetően sok olyan eszköz készült, amelyek méretcsökkenésük mellett egyre nagyobb teljesítményt adnak le (szenzorok, vezérlőegységek, transzformátorok, erősítők stb.). Ennek eredményeként a hatékony hőelvonásnak az elektronikai iparban, főként a mikroelektronika területén nagy jelentősége van. A hő elvezetésére hagyományosan fémeket használtak, de ezek viszonylag nehezek, és feldolgozhatóságuk bonyolultabb, fajlagosan költségesebb, mint a műanyagoké. Ennek köszönhetően a hővezető polimer kompozitok egyre nagyobb figyelmet kapnak az ipari alkalmazásokban. Ezeknek a speciális anyagoknak nagy lehetőségeik vannak az elektronikai és mechatronikai alkatrészek hűtésében és a hővezető és elektromosan szigetelő polimerek a jövőben új innovatív anyagok lehetnek az eszközfejlesztésekhez.

Köztudott, hogy a polimer anyagok jó hőszigetelők, hővezető képességük 0,1 és 0,5 W/mK között változik. Hagyományosan a hővezető polimer kompozitokat a mátrixanyagban elosztatott vezető szemcsék révén alakítják ki. Ezek a szemcsék főként grafitok, kormok és szénszálak, valamint kerámiák és fémek. Amennyiben az elektromos szigetelő tulajdonság megtartása fontos, szigetelő szemcséket szükséges alkalmazni. Ebben az esetben bór-nitrid, alumínium-oxid, alumínium-nitrid, szilícium, talkum stb. porok használhatók. A töltőanyagok jelentősen befolyásolják a kialakult hővezetési tényezőt. Ahhoz, hogy a megfelelő hővezető képességet elérjük, nagy töltőanyag-tartalom szükséges, ami feldolgozási nehézségekhez vezet. Azonban a nagy töltőanyag-tartalom a hővezető képességet növelve, a feldolgozás ciklusidejét csökkenti.

A doktori disszertációm fő célja egy olyan új alapanyag kifejlesztése és tesztelése, amely jelentős mértékben hővezető az elektromos szigetelőképeség megtartása mellett. Így az elektronikai alkatrészeknél közvetlenül alkalmazhatók, hővezető csatolóanyag nélkül. Ezekkel az anyagokkal helyettesíthetők a költségesen előállítható kerámia és fém hűtőeszközök. Másrészt a hővezető polimerek hővezetési tényezőjének modellezése és előrejelzése is elengedhetetlen, hogy ezek a speciális anyagok a felhasználáshoz szabhatók legyenek.

2. Az irodalomkutatás elemzése, az értekezés célja

Irodalomkutatásom során a hővezető polimerek fejlesztési irányainak megismerésére törekedtem. A kutatásaim elején a hővezetést, annak mechanizmusát és mérésének ipari körökben alkalmazható lehetőségeit tekintettem át. A továbbiakban felkutattam, hogy miként lehet növelni a polimerek hővezetőképeségét, így a molekuláris orientáció, a kristályosság, a feldolgozási módok és a töltőanyagok hatását tekintettem át. A töltőanyagként alkalmazott három nagy anyagtypust, a kerámiákat, a fémeket és a szén alapú anyagokat is áttanulmányoztam.

A polimerek hővezető képességét sokféleképpen módosíthatjuk, illetve befolyásolhatjuk. Az anyag kristályos részarányának növelésével azok hővezető képessége is nő, amit alátámaszt az is, hogy az amorf anyagoknál ez a jellemző kisebb, a részben kristályosoknál pedig nagyobb értéket mutat. A molekulatömeg is befolyásolja a polimerek hővezetési tényezőjét. A kutatások azt igazolják, hogy a nagyobb molekulatömegű polimerek nagyobb hővezetési tényezővel rendelkeznek. A molekulaláncok orientálásával (azaz a polimerek nyújtásával) szintén növekszik a hővezető képesség, azonban ilyenkor anizotrópia alakul ki. Ezek a módszerek ugyan javítják a vezetőképességet, de csak kis mértékben. A legjobb eredmények akkor érhetők el, ha töltőanyagokat alkalmazunk. Töltőanyagok hozzáadásával előállított jó hővezető képességű polimerekkel jelentős mennyiségű szakirodalom foglalkozik. A töltőanyagok lehetnek szénelapúak, fémek vagy kerámiák. Az első két csoport anyagait tartják a legjobbnak erre a célra, azonban itt számolni kell az elektromos vezetőképesség növekedésével is. Mivel elektromosan szigetelő és jó hővezető polimer előállítása a célom, így ezeket az anyagokat csak a perkolációs határérték alatt alkalmazhatom. Ezzel szemben a kerámiák sok előnyös tulajdonsággal rendelkeznek, ami számomra fontos, úgymint a jó hővezető képesség, kis sűrűség, valamint az elektromos szigetelőképeség stb.

A szakirodalmakban sok különböző mérési eredmény található ugyanazon típusú töltőanyag vagy mátrixanyag alkalmazása mellett. Ezek a különbségek a különböző mérési vagy feldolgozási módszereknek tulajdoníthatók. A hővezetési tényező meghatározására sokféle eljárás létezik, például a forró lapos, forró drótos, flash módszer, amelyek különböző elvek alapján működnek. Ahhoz, hogy a feldolgozási módszerek hatását elemezhessük, elengedhetetlen megérteni azok hatását a töltőanyagok eloszlottságára. Így nem elhanyagolható a töltőanyagok szegregációja sem. Ez jelentkezhethet a termék vastagsága (mag-héj effektus), illetve a folyási út mentén is. A mag-héj effektus nagymértékben lecsökkenti az anyag hővezetési tényezőjét és inhomogenitásokat okozhat a mechanikai tulajdonságokban is.

A hővezető polimerekkel foglalkozó szakirodalmak többségében egy kompaundon belül csak egyféle töltőanyagot alkalmaztak, és azok vizsgálatával foglalkoztak. Ezek a töltőanyagok többnyire réz, korom, grafit, szén-nanocső, szilíciumdioxid, talkum, alumínium-nitrid és bór-nitrid voltak. A hibrid rendszerű töltőanyagok használatának lehetőségeit még csak nagyon kevesen kutatták. A szakirodalomban nem található olyan munka, ahol csak elektromosan szigetelő töltőanyagokat alkalmaznak, hogy a köztük kialakuló hibrid hatást hasznosítsák.

Fontosnak tartom, hogy a kompozitok hővezető képességét az igényeknek megfelelően tervezni tudjuk. Habár több empirikus, fél-empirikus és elméleti modellt is kidolgoztak az elmúlt évtizedekben a két- vagy többfázisú polimer kompozitok hővezetési tényezőjének modellezésére, azonban ennek pontos előrejelzése mindeztáig nagy kihívás maradt. Az irodalomkutatás alapján nyilvánvaló, hogy az elméleti modellek gyakran alulbecslik a valós értékeket, és csak közelítőleg 30 vol% töltőanyag-tartalomig használhatók. A fél-empirikus modellek jobb eredményeket adnak, de alkalmazásukhoz több tapasztalati konstans is szükséges.

A töltőanyaggal történő hővezetési tényező növelés hátrányos tulajdonsága, hogy rontja az anyag feldolgozhatóságát. Kutatásaim során azt tapasztaltam, hogy a szakirodalmak túlnyomó részében belső keverő és prés segítségével állítottak elő kompozit mintákat, vagy csak egyszerűen kis viszkozitású hőre keményedő mátrixot alkalmaztak. Ez a technológia azonban nagyon lassú folyamat, és a terméktervezési szabadságot is nagymértékben korlátozza. Ezen felül csak pár kutató foglalkozott hővezető polimerek fröccsöntésével, így ez a terület viszonylag újnak számít.

A rendelkezésemre álló számos szakirodalomból csak nagyon kevés olyant találtam, amely a nagy töltőanyag-tartalommal rendelkező polimerek termikus tulajdonságaival foglalkozik. Így csak nagyon kevés információ áll rendelkezésre, hogy a töltőanyagok a

jellemző hőmérsékleti értékeket hogyan befolyásolják, illetve hogyan változik a polimer anyag kristályossága.

Az irodalomkutatás alapján a következő kutatási célokat tűztem ki:

1. Olyan új polimer kompozit kifejlesztése és tesztelése, amely jelentős mértékben hővezető az elektromos szigetelőképeség megtartása mellett.
2. Különböző paraméterek által a kompozitok hővezető képességére gyakorolt hatások elemzése (mátrixanyag és töltőanyag típusa, feldolgozástechnológia, stb.).
3. Elektromosan szigetelő, hibrid rendszerű töltőanyaggal rendelkező polimer kompozit előállítás a hővezető képesség növelésére meghatározott töltőanyag-tartalom mellett.
4. A fröccsöntési technológia által, a hővezető polimerek hőtani paramétereire és kristályosságára kifejtett hatás elemzése.
5. Nagy töltőanyag-tartalommal rendelkező polimerek folyóképeségének javítása.
6. Egy modell kidolgozása a töltött polimerek hővezetési tényezőjének előrejelzésére a töltőanyag-tartalom függvényében.

3. Felhasznált anyagok, módszerek

3.1. Anyagok

Kutatásaim során több különböző mátrix és erősítőanyagot alkalmaztam a kompozitok elkészítéséhez. Ezek neveit, gyártóit és a munka során alkalmazott rövidítéseit az 1. és a 2. táblázat mutatja. Az alkalmazott talkum, bór-nitrid és grafit szemcséknek lemezes alakjuk van, amelyek anizotrop tulajdonságokkal rendelkeznek. A titán-dioxid szemcsék gömbszerű alakkal rendelkeznek. A mátrixanyagok közvetlenül felhasználhatók, csak a poliamid 6 és a politejsav igényel 4 órás 80°C-os szárítást felhasználás előtt.

A polipropilén homopolimer folyóképeségét CBT 100 típusú ciklikus butilén tereftalát (CBT) (Cyclics Europe GmbH (Németország)) társításával növeltem. A ciklikus butilén tereftalát a polibutilén-tereftalát (PBT) ciklikus formája. A bór-nitrid felületkezeléséhez szilános felületkezelő szert alkalmaztam. A Geniosil GF 56 vinil-trietoxi-szilánt a Wacker Chemie AG-től (Németország) szereztem be. A hővezetési tényező mérése során a minta és a hőelosztó lapok közötti kontakt hőellenállások csökkentése érdekében kerámiatöltésű hővezető szilikonpasztát alkalmaztam. A pasztát a T-Silox Kft-től vásároltam.

Név	Kereskedelmi név	Gyártó	Rövidítés
Polipropilén homopolimer	Tipplen H 145 F	Tiszai Vegyi Kombinát Nyrt.	PP
Polipropilén kopolimer	Tipplen K 693	Tiszai Vegyi Kombinát Nyrt.	cPP
Poliamid 6	Schulamid 6 MV 13	A. Schulman, Inc.	PA6
Politejsav	PLA AI-1001	Shenzhen eSUN Industrial Co., Ltd.	PLA

1. táblázat A kísérletek során alkalmazott polimer mátrixok

Név	Kereskedelmi név	Gyártó /forgalmazó	Szemcseméret (D50)	Rövidítés
Talkum	Talc Powder 325 mesh coating grade	QualChem Zrt.	24.4 µm	talc
Bór-nitrid	HeBoFil 482	Henze BNP GmbH	3-5 µm	BN
Titán-dioxid	Titanium dioxide KTR 600	QualChem Zrt.	n.a.	TiO ₂
Grafít	Timrex C-Therm 011	Timcal Ltd.	n.a. (lágý granulátum)	Graphite

2. táblázat A kísérletek során alkalmazott töltőanyagok

3.2. Feldolgozási módszerek

Kompaundok készítése

A kompozit anyagokat két féle módszerrel állítottam elő. Első esetben a Brabender Plastograph belső keverőt alkalmaztam. A komponenseket 230°C-on, 20 percen keresztül kevertem 25 1/perc-es sebességgel, hogy a megfelelő homogenitást elérjem. Második esetben a komponenseket Labtech Scientific LTE 26-44 ikercsigás extrúderrel (L/D arány =44; D=26 mm) kompaundáltam 230°C-on (zónahőmérsékletek: 230°C-tól 210°C-ig) 30 1/perc-es sebességgel. Nem csak a kompozitokat, de a töltetlen mátrixanyagokat is feldolgoztam ezekkel a technológiákkal, hogy egyforma legyen a termikus előéletük. A kompozithoz a megfelelő mátrix és töltőanyag mennyiséget az (1) egyenlettel határoztam meg:

$$m_f = \frac{m_c}{\frac{\varphi_m \cdot \rho_m}{\varphi_f \cdot \rho_f} + 1}, \quad m_m = m_c - m_f, \quad (1)$$

ahol m_c , m_f és m_m [g] a kompozit, a töltőanyag és a mátrixanyag tömege, φ_f és φ_m [vol%] a töltő és mátrixanyag térfogatrésze, és végül ρ_f és ρ_m [g/cm³] a töltő és mátrixanyag sűrűsége.

Vizsgálati minták gyártása

Az elkészített kompaundokból 2 mm vastag lapka próbatesteket gyártottam préseléssel és fröccsöntéssel. A préselést Collin Teach-Line Platen Press 200E gépen végeztem 230°C-on

15 percig. A fröccsöntött próbatestek Arburg Allrounder Advance 370S 700-290 fröccsöntő gépen készültek. A főbb fröccsöntési paramétereket a 3. táblázat tartalmazza.

Paraméter	Egység	PP/cPP	PA6	PLA
Fröccsöntési térfogat	[cm ³]	49	49	49
Fröccsöntés sebessége	[cm ³ /s]	50	50	50
Utónyomás	[bar]	a kialakult fröccsnyomás 80%-a	a kialakult fröccsnyomás 80%-a	a kialakult fröccsnyomás 80%-a
Záróerő	[kN]	700	700	700
Maradék hűtési idő	[s]	10	15	20
Zónahőmérsékletek	[°C]	200; 195; 190; 185; 180	230; 225; 220; 215; 210	210; 195; 190; 185; 180
Szerszámhőmérséklet	[°C]	50	50	50

3. táblázat Fröccsöntési paraméterek

Fröccs-préselési technológiával is gyártottam mintákat. A folyamat során elsőként a polimer ömledéket bejuttatjuk a részlegesen nyitott szerszámba, majd második lépésben bezárjuk a szerszámot. A szerszámzárás során az ömledék teljesen kitölti a formaüreget és a kialakult nyomás átveszi az utónyomás helyét. A fröccspréselt próbatesteket Arburg Allrounder Advance 370S 700-290 fröccsöntő géppel készítettem. A főbb feldolgozási paraméterek a 4. táblázatban találhatók.

Paraméter	Egység	Érték
Fröccsöntési térfogat	[cm ³]	56
Fröccsöntés sebessége	[cm ³ /s]	50
Préselési út	[mm]	1.5
Préselési erő	[kN]	700
Préselési sebesség	[mm/s]	25
Maradék hűtési idő	[s]	10
Zónahőmérsékletek	[°C]	200; 195; 190; 185; 180
Szerszámhőmérséklet	[°C]	50

4. táblázat Fröccs-préselési paraméterek

3.3. Mérési módszerek

A hőtani, mechanikai és morfológiai vizsgálatokhoz szükséges próbatesteket a 2 mm vastag legyártott lapokból munkáltam ki vízvágó berendezés segítségével. A mérési módszerek részleteit ez a fejezet mutatja be.

Mechanikai vizsgálatok

Szakítóvizsgálat

A szakítóvizsgálatokat az ISO 527 1:2012 szabvány ajánlásai alapján végeztem el Zwick Z020 univerzális szakítógépen. A vizsgálati minták 5A típusúak voltak (hossz: 75 mm; szélesség: 4 mm; vastagság: 2 mm; befogási távolság: 50 mm). A mérést szobahőmérsékleten

(25°C) 2 mm/perces keresztfejsébséggel végeztem el. Az erő elmozdulás görbékből a szakító szilárdságot (σ [MPa]) és a húzó rugalmassági modulust (E [MPa]) számítottam ki. A szakítószilárdságot az erőmaximumból számítottam. A modulust a 0,0005 és 0,0025 relatív elmozdulás között számítottam. A húzási tulajdonságokat minden esetben 5-5 mérésből állapítottam meg.

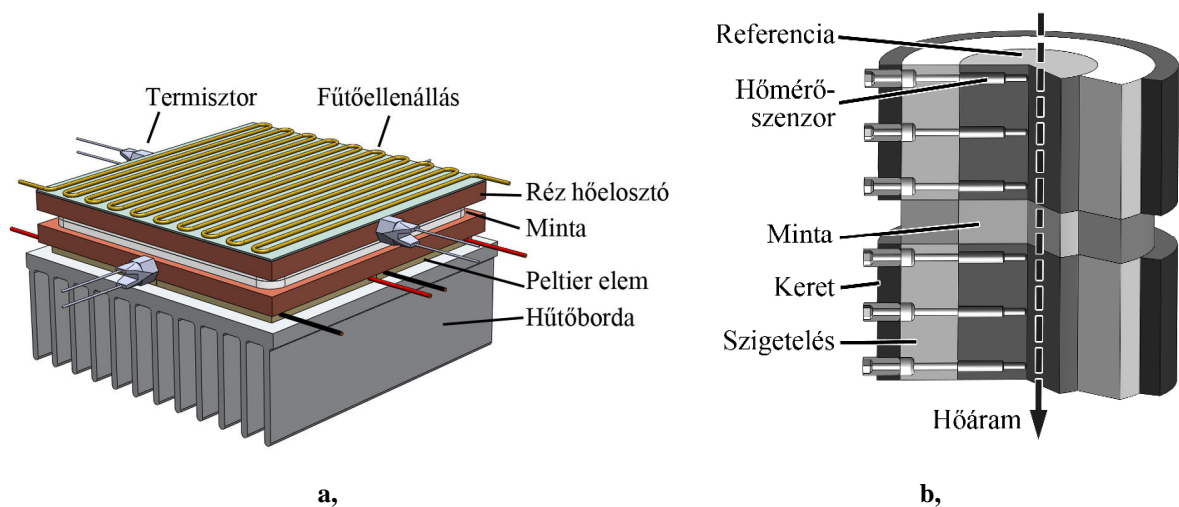
Charpy-féle ütőszilárdság

A Charpy-féle tesztek az ISO 179 2:1997 szabvány ajánlásai alapján végeztem el Ceast Resil Impactor Junior berendezésen. A mérésekhez 2x6 mm keresztmetszetű bemetszetlen mintákat alkalmaztam 40 mm-es támaszközzel. A tesztek szobahőmérsékleten (25°C) végeztem el 2 J-os kalapáccsal. Az elnyelt energia mérésével a Charpy-féle ütőmunkát (a_{cU} [kJ/m²]) tudtam számítani. Az ütőtulajdonságokat minden esetben 10-10 mérésből határoztam meg.

Hőtani tulajdonságok

Hővezetési tényező

A kompozit minták hővezetési tényezőjének meghatározásához két különböző elvű hővezetésmérő berendezést fejlesztettem ki (forrólapos és linear heat flow berendezés). A kifejlesztett **aszimmetrikus forrólapos berendezés** elve, hogy a fűtött lap és a hűtött lap között a mintán keresztülhalad a hőáram. A mérőberendezés elvi felépítését a 1./a ábra mutatja. A mérés során a fő cél, hogy a hűtött és a fűtött lap között a mintában hőmérséklet különbséget tudjunk létrehozni és fenntartani. Ezek után a hővezetési tényező a Fourier törvény segítségével számítható.



1. ábra Az aszimmetrikus forrólapos (a) és a linear heat flow (b) hővezetésmérő berendezés felépítése

A **linear heat flow berendezés** (1./b ábra) az összehasonlításos módszeren alapul. A módszer lényege, hogy az ismeretlen tulajdonságú mintát két ismert tulajdonságú referenciaminta közé szorítunk. A rendszeren áthaladó hőáram hőmérséklet különbséget idéz elő az egység két oldala között. A vizsgált minta és a referencia minta hővezetési tényezője fordítottan arányos a kialakult hőmérsékleti gradiensekkel.

DSC analízis

A kompozit anyagok fajhőjének, a kristályosodási hőmérsékletének és a mátrixanyag kristályos részarányának vizsgálatához DSC Q2000 (TA Instruments) berendezést alkalmaztam. A 3-5 mg tömegű minták a fröccsöntött próbatest közepéből kerültek kimunkálásra. A mérés hőmérsékletprogramja három fázisból állt: 25°C-ról fűtés 225°C-ra, hűtés 25°C-ra, majd fűtés ismét 225°C-ra. Az első felfűtés során a fröccsöntési technológia által kialakult jellemző értékeket tudjuk meghatározni, a második és harmadik lépés pedig egy kontrollált körülmény (10°C/perc) által kialakított jellemzőket. A kristályossági fok (X) a mért exoterm és endoterm csúcsokból határozható meg a (2) egyenlet segítségével, amely figyelembe veszi a kompaundban lévő töltőanyag mennyiségét is:

$$X = \frac{\Delta H_m - \Delta H_{cc}}{\Delta H_f \cdot (1 - \varphi)}, \quad (2)$$

ahol ΔH_m az olvadáshő, ΔH_{cc} a hidegkristályosodási entalpia, ΔH_f a teljesen kristályos anyag olvadáshője, φ pedig töltőanyag tömegaránya.

Mikroszkópia

A kompozit minták töretfelületét Jeol JSM 6380LA pásztázó elektronmikroszkóp segítségével vizsgáltam. A minták felületére Au/Pd ötvözetet vittem fel Jeol JFC-1200 bevonatoló berendezés segítségével, az elektromos feltöltődés elkerülésére.

Szegregációs vizsgálatok

A töltőanyag eloszlottságának vizsgálatához a fröccsöntött termékeket 16 egyenlő részre daraboltam fel. Ezután a 16 minta sűrűségét meghatároztam Archimédesz törvénye alapján. Ezt követően a mátrixanyag, a töltőanyag és a kompozit sűrűségének ismeretében az egyes részek mátrixanyagának és töltőanyagának koncentrációi számíthatók a (3) összefüggéssel:

$$\varphi_f = \frac{\rho_c - \rho_m}{\rho_f - \rho_m} \cdot 100, \quad \varphi_m = 100 - \varphi_f. \quad (3)$$

Folyási tulajdonságok

Folyási mutatószám meghatározása

Az anyagok folyási mutatószámának jellemzésére az MVR értékeket az ISO 1133-1:2013 szabvány ajánlásai alapján határoztam meg 230°C-on 2,16 kg-os terhelés mellett CEAST Modular Melt Flow (7027.000) berendezéssel. Minden esetben 6 mérést végeztem el. A mérés menete a következő lépésekből állt: 60 másodperces hőn tartás; 375 N-nal tömörítés 75 mm-es dugattyúpozícióig; 2,16 kg-os súllyal tömörítés 50 mm-ig, majd mérés 40, 30 és 20 mm-es pozícióban.

Viszkozitásgörbék meghatározása

A CBT-vel módosított polipropilén homopolimer viszkozitását Zwick Z050 szakítógépre szerelt Instron kapilláris reométerrel határoztam meg. A méréseket négy különböző hőmérsékleten végeztem el, 190, 200, 220 és 240°C-on, három különböző kapilláris hosszal (5. táblázat) és hét különböző keresztfejsébséggel: 5, 10, 20, 50, 100, 200 és 500 mm/perc.

Ssz.	A kapillárisok mérete	
	Átmérő [mm]	Hossz [mm]
1	1.23	24.45
2	1.20	49.17
3	1.20	73.55

5. táblázat A viszkozitásgörbék kimérése során alkalmazott kapillárisok méretei

4. Tézisek

A tudományos eredményeimet az alábbi tézispontokban foglaltam össze:

1/a tézis

Kimutattam, hogy a lemezes szerkezetű részecskékkel töltött kompaundok esetén, a fröccsöntött és a préselt minták hővezető képessége között szignifikáns különbség van. Préseléssel gyártott orientálatlan töltőanyagú mintákhoz képest a fröccsöntött termékeknél a falvastagság mentén az orientációbeli különbségek csökkent hővezető képességet okoznak. Állításomat polipropilén mátrixú, bór-nitrid, illetve talkum tartalmú anyagokra mérésekkel igazoltam, ahol a fröccsöntött minták hővezetése 16-39%-kal, valamint 30-39%-kal kisebb volt a préselt mintákhoz képest 10-30 vol% töltőanyag-tartalom tartományban [1-3, 7, 10].

1/b tézis

Kimutattam, hogy a fröccs-préselés technológiával gyártott polipropilén homopolimer mátrixú, 20-30 vol% bór-nitrid tartalmú minták vastagság menti hővezető képessége 20-23%-kal nagyobb, mint a fröccsöntött mintáknak. A különbség az eltérő szemcseorientációjú rétegek (mag és héj) egymáshoz viszonyított eltérő aránya eredményezi. Amíg a 2 mm-es fröccsöntött próbatestek magrésze csak 300-400 µm vastag, addig a fröccs-préselt mintáké több mint 600 µm. Mivel a magrészben a töltőanyagok a hőáram irányával közel párhuzamosan állnak, így ennek a résznek a vastagsága jelentősen befolyásolja az elérhető maximális effektív hővezetési tényezőt. Állításaimat pásztázó elektronmikroszkópi felvételekkel és hővezetési tényező mérésekkel bizonyítottam.

2. tézis

Bizonyítottam, hogy a polipropilén/bór-nitrid kompaund hővezető képessége a töltőanyag szilános felületkezelésével növelhető, és hogy a felületkezelés hatékonysága tovább növelhető a töltőanyag nátrium hidroxidos előkezelésével és a szilános oldat kémhatásának savassá tételével. A nátrium hidroxidos előkezeléssel hidroxidionokat tudunk juttatni a bór-nitrid szemcse felületére a kémiai kötések elősegítéséhez. A szilános oldat savassá tételével a hidrolízis gyorsítható fel. Állításomat préseléssel előállított, 30 vol% bór-nitriddel töltött polipropilén homopolimer mintákon igazoltam, ahol 4-30%-os javulást értem el.

3/a tézis

Bizonyítottam, hogy polipropilén homopolimer mátrixanyag alkalmazása esetén a bór-nitrid és talkum töltőanyag között pozitív hibridhatás lép fel a hővezető képességben. Ennek következtében a két töltőanyag keverékéből a keverékszabály alapján számítható hővezető képességnél nagyobb értékek érhetők el. 30 vol% töltőanyag-tartalom esetén 30-33%-os javulást értem el a bór-nitrid és talkum 1:2 és 2:1 arányú keverékével. Ez a hatás az eltérő szemcseméreteknek köszönhető [3, 8, 11, 12].

3/b tézis

Igazoltam, hogy a hibrid hatás a bór-nitrid por és a talkum között a hővezető képességen felül a kompozit folyási mutatószámában, valamint a kvázistatikus és dinamikus mechanikai tulajdonságokban is megjelenik. Amíg a folyóképességben és az ütőszilárdságban negatív, addig a szakítószilárdságban és modulusban pozitív hibridhatás lép fel, ami az eltérő szemcseméreteknek köszönhető [8, 12, 13].

4. tézis

Igazoltam, hogy a részben kristályos polimer mátrixú bór-nitrid tartalmú hővezető kompaundoknak létezik egy felső határ-töltőanyag-tartalma, amit meghaladva a töltőanyagok kristályos részaránya gyakorolt hatása a megnövekedett hővezetőképesség miatt már nem érvényesül. Az intenzív hűtés hatására a göcképző tartalom határértéken túli növelésével a kialakult kristályos részarány csökkenni kezd. Az állításom bór-nitriddel töltött polipropilén és politejsav mátrixanyagra is igazoltam, amelyeknél a határértékek rendre 10 és 20 vol% körülire adódtak [4, 5].

5/a tézis

A kompozitokban elérhető maximális töltőanyag-tartalom és a töltőanyagok effektív hővezetési tényezőjének meghatározására új mérési módszereket dolgoztam ki. Az elérhető töltőanyag-tartalom mérése során a töltőanyagot két ismert tulajdonságú henger között préseltem és a töltőanyag relatív sűrűségét meghatároztam a nyomás függvényében. Az elérhető maximális töltőanyag tartalmat a mérési eredményekre illesztett logisztikus görbe alapján határoztam meg:

$$RD_p = [2 \cdot RD_0 - RD_\infty] + 2 \cdot \left[\frac{RD_0 - RD_\infty}{1 + e^{-a \cdot p^b}} \right], \quad (0 \leq p \leq \infty),$$

ahol RD_0 [-] a relatív sűrűség préseletlen állapotban, RD_∞ [-] a relatív sűrűség végtelen nagy nyomás mellett, p [bar] a mintára ható nyomás a és b [-] pedig illesztési paraméterek. A

töltőanyagok effektív hővezetési tényezőjét az egyes nyomásértékeken regisztrált hővezetési tényezőkre illesztett logisztikus görbéből határoztam meg:

$$\lambda'(p) = \lambda'_{\infty} \frac{1 - e^{-g \cdot p^h}}{1 + e^{-g \cdot p^h}}, \quad (0 \leq p \leq \infty),$$

ahol λ'_{∞} [W/mK] a töltőanyag effektív hővezetési tényezője, p [bar] a mintára ható nyomás, g és h [-] pedig illesztési paraméterek.

5/b tézis

Kidolgoztam egy összefüggést, amellyel becsülhető a töltött anyagok hővezetési tényezője a töltőanyag-tartalom függvényében. Az összefüggés a következő alakban írható fel:

$$\lambda_c = \lambda'_m \cdot \left[1 - \left(\frac{\varphi}{\varphi_{\max}} \right)^C \right] + \lambda'_f \cdot \left(\frac{\varphi}{\varphi_{\max}} \right)^C, \quad (0 \leq \varphi \leq \varphi_{\max}),$$

ahol λ_c [W/mK] a kompozit, λ'_m [W/mK] a mátrixanyag és λ'_f [W/mK] a töltőanyag effektív hővezetési tényezője, φ [vol%] a töltőanyag-tartalom, φ_{\max} [vol%] az általam kifejlesztett új mérési módszerekkel meghatározott maximális töltőanyag-tartalom, C [-] pedig a töltőanyag szemcsékre jellemző láncalkotó képesség és alaktényező faktora. Az összefüggéssel adható becslés pontosságát lemezes talkum, bór-nitrid valamint grafit tartalmú, polipropilén homopolimer mátrixú kompozitokra igazoltam. A C faktor értéke minden esetben 1,4-re adódott.

5. Saját publikációk listája

Folyóiratcikkek angol nyelven

1. Kovács J. G., Körtélyesi G., Kovács N. K., **Suplicz A.**: Evaluation of measured and calculated thermal parameters of a photopolymer. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 38, 863-867 (2011). (*IF*₂₀₁₁=1,892)
2. **Suplicz A.**, Kovács J. G.: Development of thermally conductive polymer materials and their investigation. *Material Science Forum*, 729, 80-84 (2013).
3. Kovács J. G., **Suplicz A.**: Thermally conductive polymer compounds for injection moulding: The synergetic effect of hexagonal boron nitride and talc. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 32, 1234-1240 (2013). (*IF*₂₀₁₃=1,188)
4. **Suplicz A.**, Szabó F., Kovács J. G.: Injection molding of ceramic filled polypropylene: The effect of thermal conductivity and cooling rate on crystallinity. *Thermochimica Acta*, 574, 145-150 (2013). (*IF*₂₀₁₃=2,105)
5. Tábi T., **Suplicz A.**, Czigány T., Kovács J. G.: Thermal and mechanical analysis of injection moulded poly(lactic acid) filled with poly(ethylene glycol) and talc. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 118, 1419-1430 (2014). (*IF*₂₀₁₃=2,206)
6. L. Zsíros, **A. Suplicz**, G. Romhány, T. Tábi, J.G. Kovács: Development of a novel color inhomogeneity test method for injection molded parts. *Polymer Testing*, 37, 112-116 (2014). (*IF*₂₀₁₃=1,816)

Folyóiratcikkek magyar nyelven

7. **Suplicz A.**, Szabó F., Kovács J. G.: Anyagvizsgálati módszerek fejlesztése fröccsöntési alkalmazáshoz. *Műanyagipari Évkönyv*, 11, 34-41 (2013).
8. **Suplicz A.**, Kovács J. G.: Hővezető polimerek az elektrotechnikában – Hibrid rendszerű töltőanyagok alkalmazásának előnyei. *Műanyag és Gumi*, 4, 156-160 (2014).
9. Kovács N K, **Suplicz A.**, Kovács J G: Gyors prototípusgyártás, mint újszerű fröccsöntő szerszámozási technológia. *Műanyagipari Évkönyv*, 9, 45-53 (2011).

Konferencia kiadványok

10. **Suplicz A.**, Kovács J. G.: Analysing the thermal properties of the PolyJet photopolymer. in 'Proceedings of the Seventh Conference on Mechanical Engineering, Budapest, Hungary' 153-159 (2010).

11. **Suplicz A.**, Kovács J. G.: Development of thermal conductive hybrid composites. in 'Proceedings of the 15th European Conference on Composite Materials, Italy' 1-6 (2012).
12. Kovács J. G., **Suplicz A.**: Improved thermal properties with hybridization of the fillers for thermoplastic materials. in 'Proceedings of the 19th International Conference on Composite Materials, Canada' 4011-4018 (2013).
13. **Suplicz A.**, Szabó F., Kovács J. G.: Development possibilities and analyzing methods of thermally conductive polymers. Nemzetközi Gépészeti Találkozó, Romania, 346-349 (2013).
14. Szabó F., **Suplicz A.**, Kovács J. G.: Novel methods for material properties measurements. Nemzetközi Gépészeti Találkozó, Románia, 350-353. (2013).

Konferencia előadások

15. **A. Suplicz**, J. G. Kovacs: Analysing the thermal properties of the PolyJet photopolymer. *Gépészet 2010: Seventh Conference on Mechanical Engineering*. Budapest, Magyarország, 2010.05.25-2010.05.26..
16. **A. Suplicz**, J. G. Kovacs: Development and investigation of thermally conductive polymers. International Summer School on Polymers, Smolenice, Slovakia, 22-26 August 2011.
17. **Suplicz A.**, Kovacs J. G.: Hővezető polimer anyagok fejlesztése és vizsgálata. VIII. Országos Anyagtudományi Konferencia, Balatonkenese, Magyarország. 2011 október 9-11.
18. **A. Suplicz**, J. G. Kovacs: Development of thermal conductive hybrid composites. 15th European Conference on Composite Materials (ECCM15). Velence (I), Olaszország, 2012.06.24-28.
19. **Suplicz A.**, Szabó F., Kovács J. G.: Hővezető polimerek fejlesztési lehetőségei és vizsgálati módszerei. Nemzetközi Gépészeti Találkozó – (OGÉT), Arad, Románia, 2013. Április 25-28.