

# Modificiranje nanokompozitnih polimernih mješavina PE/PP kopolimerima EPR i EVA

KUI – 7/2010  
Prispjelo 23. rujna 2009.  
Prihvaćeno 11. siječnja 2010.

A. Ptiček Siročić,\* Z. Katančić, Z. Hrnjak-Murgić i J. Jelenčić

Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije,  
Sveučilište u Zagrebu, Marulićev trg 19, 10000 Zagreb

U ovom radu ispitan je utjecaj nanopunila silicijeva dioksida ( $\text{SiO}_2$ ) kao i kompatibilizatora etilen/propilen kopolimera (EPR) te etilen/vinil-acetata (EVA) na svojstva polimerne mješavine polietilen/polipropilen (PE/PP). Morfološke promjene pripremljenih uzoraka praćene su skenirajućom elektronskom mikroskopijom (SEM) i rendgenskom difrakcijom (XRD) te su određena fizikalno-mehanička svojstva i granični indeks kisika (LOI). Uspostavom privlačnih međudjelovanja poboljšava se adhezija između faza PE i PP, što ima za posljedicu finiju dispergiranost čestica u polimernim mješavinama. Što je dispergiranost nanopunila bolja povećava se postojanost polimerne mješavine i smanjuje gorivost polimernog materijala. Iz rezultata je vidljivo da je dodatkom kompatibilizatora i punila morfologija pripremljenih polimernih mješavina finija u usporedbi s čistim mješavinama. Dodatkom punila i kompatibilizatora povećava se elastičnost, što je posebno vidljivo kod uzoraka pripremljenih dvostupanjskim procesom ekstrudiranja gdje je prvo ekstrudirano punilo s matricom PE, a zatim su u drugom stupnju dodane preostale komponente mješavine. Rezultati određivanja graničnog indeksa kisika pokazali su da sastav ispitivanih polimernih mješavina ima neznatan učinak na gorivost.

Ključne riječi: *Disperzija, mehanička svojstva, nanokompoziti, polimerne mješavine, silika*

## Uvod

Nanokompozitne polimerne mješavine mogu zamjetno utjecati na razvoj novih visokofunkcionalnih materijala budući da objedinjuju prednosti polimernih mješavina i osnovna svojstva polimernih nanokompozita. Danas je poznat velik broj polimernih mješavina u kombinacijama plastomer-plastomer te plastomer-elastomer. Međutim, kako većina polimera u polimernim mješavinama iskazuje međusobnu nemješljivost, potrebno je radi poboljšanja krajnjih svojstava mješavina dodati kompatibilizatore. Poznato je da su polietilen i polipropilen termodinamički nemješljivi zbog slabih međusobnih međudjelovanja, što rezultira lošijim mehaničkim svojstvima krajnjeg materijala.<sup>1–9</sup> Nadalje, važan utjecaj na mehanička svojstva ima i degradacija polimera tijekom njihovog životnog ciklusa i tijekom ponovne uporabe.<sup>10–12</sup> Dodatkom punila mješavini PE/PP dobivaju se višekomponentni kompoziti koji pokazuju poboljšane vrijednosti krutosti i žilavosti. Iz literature je poznato da se uvođenjem jednog ili više kompatibilizatora i/ili punila nastoji modificirati međupovršina mješavine, tj. nastoji se sniziti slobodna energija površine i na taj način poboljšati mješljivost nemješljivih komponenata.<sup>13–18</sup> U takvim sustavima prisutna je slaba adhezija između površine punila i matrice i vrlo je teško postići jednoliku disperziju punila jer su čestice punila sklone aglomeraciji tijekom ekstrudiranja<sup>19,20</sup> što može dovesti do lošijih svojstava kompozita u usporedbi s čistim mješavinama. Nadalje, smanjenje gorivosti polimernih materijala postiže se dodatkom različitih usporivača gorenja, primjerice punila na osnovi magne-

zijeva i aluminijska hidroksida te nanopunila. Nedostatak klasičnih punila je u tome što se dodaju u velikom mase-  
nom udjelu (do  $w = 50\%$ ), što može znatno narušiti mehanička i primjenska svojstva materijala. U ovom radu istražen je utjecaj kompatibilizatora EVA i EPR te nanopunila  $\text{SiO}_2$  na mješljivost odnosno kompatibilnost PE i PP polimera analizom morfologije (SEM, XRD) i određivanjem mehaničkih svojstava. Zatim je ispitana otpornost na gorenje ekstrudiranih polimernih mješavina PE/PP.

## Eksperimentalni dio

### Materijali i provedba pokusa

Za pripremu polimernih mješavina upotrijebljeni su: polietilen niske gustoće (PE OKITEN 245A) tvrtke DIOKI (gustoća  $\rho = 0,924 \text{ g cm}^{-3}$ ; indeks tečenja taljevine (MFR)  $2,3 \text{ g } 10 \text{ min}^{-1}$ ;  $\vartheta_{\text{tališta}} = 114 \text{ }^\circ\text{C}$ ) i polipropilen (PP 4821) tvrtke Borealis polymer, Danska, (gustoća  $\rho = 0,915 \text{ g cm}^{-3}$ ; indeks tečenja taljevine (MFR)  $2,4 \text{ g } 10 \text{ min}^{-1}$ ,  $\vartheta_{\text{tališta}} = 170 \text{ }^\circ\text{C}$ ), a kao kompatibilizatori upotrijebljeni su etilen/propilen kopolimer (EPR Dutral CO 054; udjel propilena  $w = 41\%$ , viskoznost po Mooney-u 44 MU) i etilen/vinil-acetat (EVA, Elvax 265; gustoća  $\rho = 0,955 \text{ g cm}^{-3}$ , indeks tečenja taljevine (MFR)  $3 \text{ g } 10 \text{ min}^{-1}$ ,  $\vartheta_{\text{tališta}} = 73 \text{ }^\circ\text{C}$ , udjel vinil-acetata  $w = 28\%$ ) tvrtke Polimeri Europa Italia i Du Pont, Švicarska. Kao punilo upotrijebljen je silicijev dioksid (Aerosil R972 površinski obrađen s dimetildiklorsilanom, udjel ugljika  $w = 0,6–1,2\%$ , udjel  $\text{SiO}_2$   $w = 99,8\%$ , prosječni promjer čestica  $\bar{d}_p = 16 \text{ nm}$ ) tvrtke Evonik International, Njemačka. Polimerne mješavine PE/PP s dodatkom kompatibilizatora i bez njega pripremljene su umješavanjem u dvopužnom ek-

\* Autor za korespondenciju: apticek@fkit.hr

struderu *Haake Rheocord System 9000* (L/D 25:1). Temperaturni profil ekstrudera bio je 170/180/190/190 °C uz brzinu vrtnje pužnice od  $n = 60 \text{ min}^{-1}$ . Sastavi pripremljenih polimernih mješavina navedeni su u tablici 1. Nakon ekstrudiranja provedeno je injekcijsko prešanje mješavina prema normi ISO 294, kako bi se dobili uzorci za daljnju karakterizaciju.

Tablica 1 – Sastav polimernih mješavina PE/PP

Table 1 – Composition of the PE/PP blends

Uzorci Samples	PE	PP	EPR	EVA	SiO <sub>2</sub> *
	phr				
PE/PP	90	10	-	-	-
PE/PP/F	90	10	-	-	15
PE/PP/EPR	90	10	5	-	-
PE/PP/EVA	90	10	-	5	-
PE/PP/EPR/F	90	10	5	-	15
PE/PP/EVA/F	90	10	-	5	15
(PE/F)/PP/EPR	90	10	5	-	15
(PE/F)/PP/EVA	90	10	-	5	15

\* punilo – označeno kao F

\* filler – marked as F

## Karakterizacija

Mehanička svojstva polimernih mješavina (prekidna čvrstoća i prekidno istezanje) određena su prema normi ISO 527-1 i ISO 527-2 na kidalici INSTRON UNIVERSAL TESTING MACHINE 1185. Udaljenost hvataljki je 50 mm, a brzina kidanja  $u_{\text{kid}} = 50 \text{ mm min}^{-1}$ . Svi uzorci su kondicionirani  $t = 24 \text{ h}$  pri  $\vartheta = 23 \text{ °C}$  uz  $\varphi = 70 \text{ \%}$ -tnu relativnu vlažnost, a rezultati su iskazani kao srednja vrijednost 5 mjerenja.

Morfologija polimernih mješavina s punilom i bez njega snimljena je skenirajućim elektronskim mikroskopom (SEM) PHILIPS XL 30 na uzorcima debljine 1 cm, koji su ohlađeni u tekućem dušiku radi lakšeg loma.

Pripremljeni uzorci snimljeni su difraktometarskom tehnikom difrakcijom monokromatskih rendgenskih  $\text{Cu K}\alpha$  ( $\lambda = 0,1541 \text{ nm}$ ) zraka na difraktometru Phillips PW 1830. Difrakcijske krivulje uzoraka očitane su digitalno u difrakcijskom kutnom području  $2\theta = 5\text{--}85^\circ$ . Granični indeks kisika (LOI) određen je prema normi ASTM D2863 na instrumentu CEAST, a dobiveni rezultati iskazani su kao srednja vrijednost tri mjerenja. Obujam ukupnog radnog plina (smjesa dušika i kisika) bio je 200 mL, visina kolone  $h_c = 450 \text{ mm}$ , promjer otvora  $d_a = 75 \text{ mm}$ , brzina strujanja plinova u koloni iznosi  $40 \text{ mm s}^{-1}$  vlažnosti ispod  $\chi = 0,1 \text{ \%}$ , a visina plamena  $h_f = 16 \text{ mm}$ .

## Rezultati i rasprava

### Morfologija

Utjecaj udjela komponenata kao i utjecaj kompatibilizatora te punila na mješljivost polimerne mješavine PE/PP praćen je analizom morfologije. Mikrografi polimernih mješavina PE/PP uz dodatak kompatibilizatora i punila prikazani su na

slici 1. Iz mikrografa nisu jasno vidljive faze PE i PP polimera, što se pripisuje njihovoj kompatibilnosti zbog niže koncentracije jednog od polimera<sup>21</sup> (maseni omjer mješavine  $\zeta = 9 : 1$ ). Iz rezultata je vidljivo da mješavine pripremljene s kompatibilizatorom i punilom (slika 1b–1f) imaju finiju i homogeniju morfologiju, što je rezultat boljih međudjelovanja između pojedinih komponenata te u konačnici dovodi do poboljšanja mehaničkih i primjenskih svojstava.

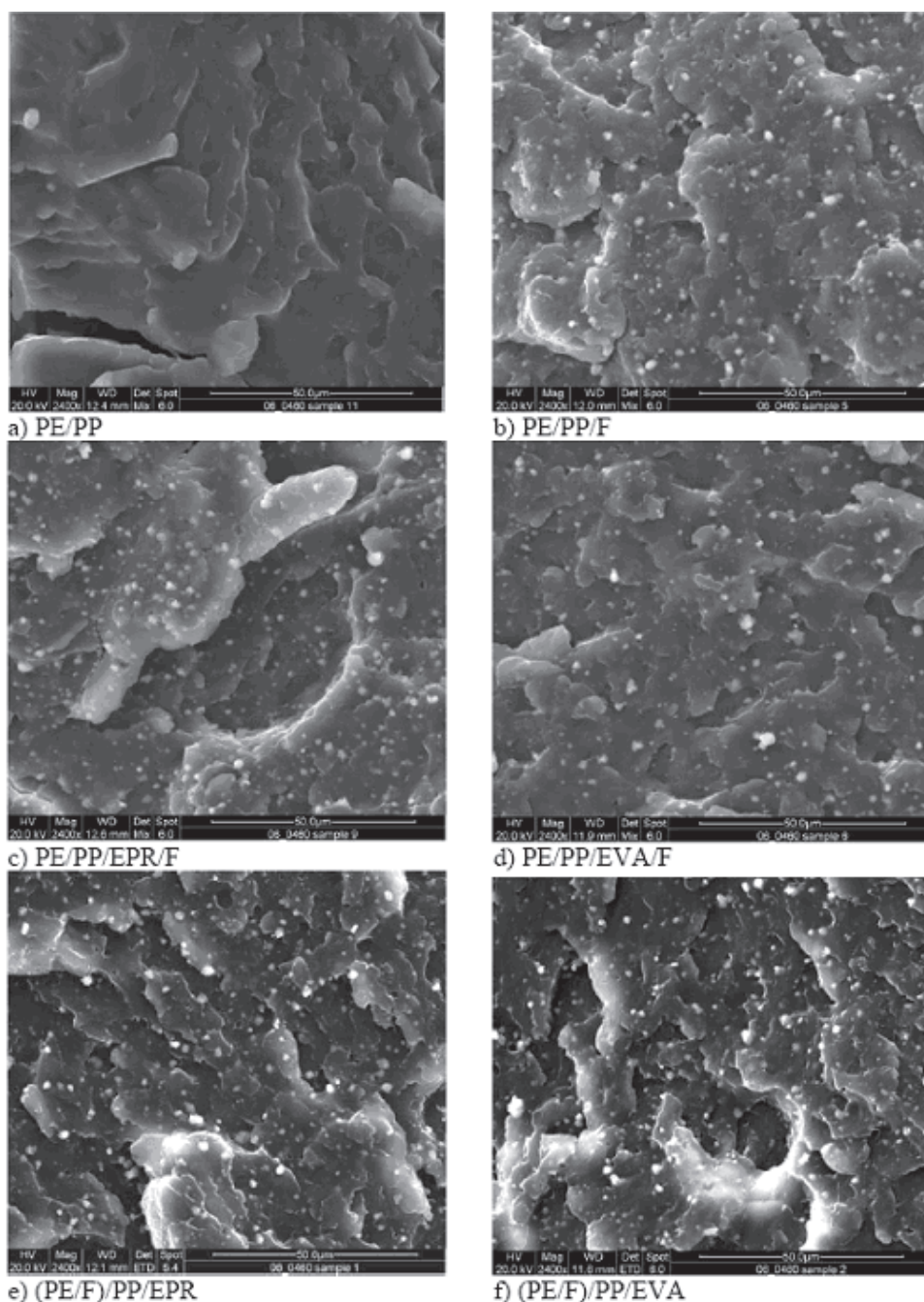
Kada je upotrijebljen EPR kao kompatibilizator, slika 1c, morfologija je finija i čestice punila su bolje dispergirane u usporedbi s mješavinom u koju je dodan EVA kao kompatibilizator (slika 1d). Unatoč nakupinama agregata i aglomerata koji su vidljivi na mikrografima može se reći da je punilo prilično jednoliko raspodijeljeno u polimernoj matrici. Promjer čestica punila važna je veličina i ako je njihova raspodjela široka, ona može znatno doprinijeti stvaranju malih aglomerata ili agregata pa čak i enkapsuliranju punila elastomerom.<sup>22</sup> Agregiranjem primarnih čestica u čestice većih dimenzija djelomično se gubi korisnost djelovanja nanopunila, čime se smanjuje mogućnost stvaranja nanostrukture u kompozitu. Vidljivo je da je kod uzoraka pripremljenih dvostupanjskim ekstrudiranjem punilo ravnomjerno i jednoliko raspodijeljeno, međutim u manjoj koncentraciji. Veća kompatibilnost i finija morfologija polimerne mješavine može se postići i promjenom uvjeta umješavanja tj. raznim postupcima predmješavanja komponenata.<sup>23</sup>

### Rendgenska difrakcijska analiza

Rezultati rendgenske difrakcijske analize, koji su ujedno i odraz morfologije ispitivanih mješavina PE/PP dani su na slici 2. Difraktogram  $\alpha$ -iPP izotaktnog (iPP) polipropilena daje karakteristične pikove<sup>24–26</sup> pri  $2\theta = 14,08^\circ$  (110),  $18,5^\circ$  (130) i  $21,2^\circ$  (111) te indicira monoklinsku  $\alpha$ -formu polipropilena (iPP). Nadalje, refleksijske ravnine iPP-a na  $18,5^\circ$  i  $21,2^\circ$  pokazuju vrlo uske pikove i porast intenziteta (130) nakon dodatka punila, što upućuje na povećanje broja kristalnih (130) ploha  $\alpha$ -iPP faze u ravninama paralelnim s površinom uzorka, tj. na povećanu reorientaciju kristala  $\alpha$ -iPP faze u uzorku mješavine PE/PP. Rezultati ukazuju da kristalnost PP opada u mješavini s kompatibilizatorom i punilom, osobito intenzitet refleksa (110) i (040). Karakteristični pikovi za PE<sup>27</sup> na  $21,85^\circ$  pri  $2\theta$  (110) i  $23,65^\circ$  (200) ukazuju na ortorompsku jediničnu ćeliju, najkarakterističniju kristalnu formu polietilena te je vidljivo da kristalnost PE raste uz dodatak kompatibilizatora i punila.

### Mehanička svojstva

Rezultati mehaničkih svojstava (prekidna čvrstoća i prekidno istezanje) istraživanih polimernih mješavina PE/PP, koje se međusobno razlikuju prema dodanom kompatibilizatoru, prikazani su na slikama 3 i 4. Odstupanja od prosječnih vrijednosti za rezultate prekidne čvrstoće su u intervalu od  $\pm 0,1$  do  $0,3 \text{ MPa}$ , dok su odstupanja za prekidna istezanja u intervalu od  $\pm 5$  do  $10 \text{ \%}$ . Iz rezultata je vidljivo da su dodatkom 5 g kompatibilizatora EPR-a i EVA-a u 100 g mješavine PE/PP, vrijednosti prekidnog istezanja poboljšane i do  $17 \text{ \%}$ . S druge strane, vrijednosti prekidne čvrstoće opadaju do  $6 \text{ \%}$  u uzorcima kojima je dodan elastomerni kompatibilizator, dok je kod uzoraka pripremljenih s termoplastičnim



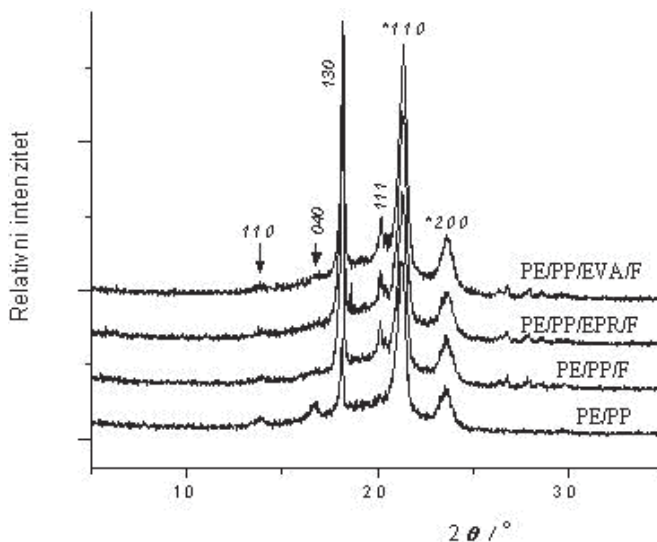
Slika 1 – Mikrografije polimernih mješavina a) PE/PP; b) PE/PP/F; c) PE/PP/EPR/F; d) PE/PP/EVA/F; e) (PE/F)/PP/EPR i f) (PE/F)/PP/EVA

Fig. 1 – SEM micrographs of the studied blends: a) virgin PE/PP; b) PE/PP/F; c) PE/PP/EPR/F; d) PE/PP/EVA/F; e) (PE/F)/PP/EPR and f) (PE/F)/PP/EVA

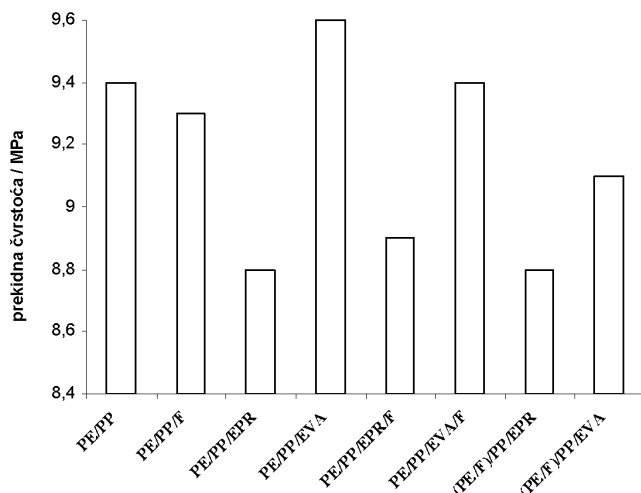
elastomerom EVA prekidna čvrstoća u blagom porastu. Kod mješavina pripremljenih s nanopunilom SiO<sub>2</sub> vidljivo je čak i veće povećanje prekidnog istezanja osobito za uzorak PE/PP/EPR/F (oko 23 %). Poznato je da do promjene mehaničkih svojstava, tj. do opadanja čvrstoće i porasta istezanja dolazi s porastom udjela elastomerne komponente u mješavini.<sup>28–33</sup>

Dodatkom kompatibilizatora uspostavljaju se dodatne veze između polimernih komponenata na međufazi, čime se smanjuje površinska napetost i modificiraju mehanička svojstva mješavine. Da bi kompatibilizator bio učinkovitiji,

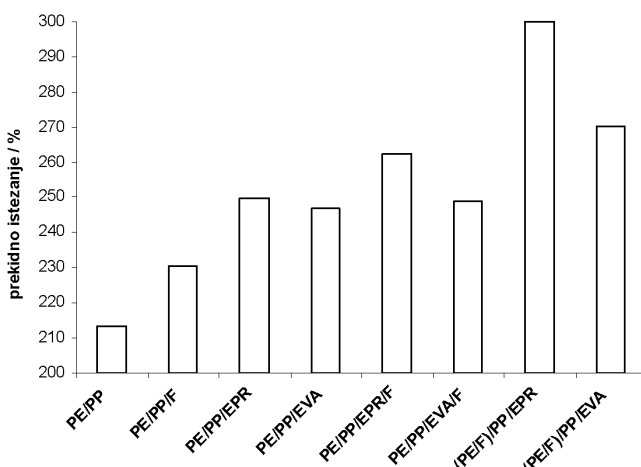
treba biti smješten na međufazi velike površinske pokrivenosti i mora biti dobro pomiješan s odgovarajućom komponentom polimerne mješavine. Kao dodatak polimerima punila mogu imati ulogu ojačavala matrice ili ulogu kompatibilizatora, ali često doprinose slabljenju pojedinih mehaničkih svojstava, dok istodobno unapređuju druga svojstva. Dakle, kada je elastomerna komponenta prisutna u mješavini, dolazi do stvaranja različitih struktura faza, tj. čestice punila mogu se dispergirati u polimernoj matrici, ali može doći i do "obuhvaćanja" tzv. enkapsuliranja čestica punila elastomerom. Nastajanje takvih struktura ovisi o mnogo veličina kao što su površinska energija komponenata, pro-



Slika 2 – XRD spektrogram polimernih mješavina PE/PP  
Fig. 2 – XRD spectra of the modified PE/PP blend



Slika 3 – Prekidna čvrstoća mješavinâ PE/PP  
Fig. 3 – Tensile strength of modified PE/PP blends



Slika 4 – Prekidno istezanje mješavinâ PE/PP  
Fig. 4 – Elongation at break of modified PE/PP blends

cesni uvjeti, ali i o geometriji čestica punila.<sup>22</sup> Primjerice, punila sa sfernim oblikom čestica znatno su učinkovitija i bolje dispergirana u polimernoj matrici nego punila nepravilnog oblika čestica. Nadalje, kada su elastomerna faza i čestice punila razdvojene u polimernoj matrici, dolazi do stvaranja mikronapuklina i nastajanja tzv. “jezgra-ljuska” strukture. Nadalje, enkapsuliranje čestica punila elastomerom može dovesti do poboljšanja međudjelovanja između punila i elastomerne komponente u usporedbi s međudjelovanjima između punila i matrice, te će se na taj način mikronapukline smanjiti i poboljšati mehanička svojstva.<sup>34–37</sup> Iz literature je također vidljivo da do povećanja prekidnog istezanja dolazi uz dodatak manjih koncentracija punila i/ili kompatibilizatora.<sup>22</sup> Međutim, u slučaju dodatka veće količine punila i/ili kompatibilizatora (10 i više %) nema dobre povezanosti između kompatibilizatora i ostalih komponenata u mješavini što rezultira slabljenjem mehaničkih svojstava. Dobro je poznato da operacija ekstrudiranja ima bitan utjecaj na dispergiranoost dodanog punila u mješavini.<sup>38</sup> Iz rezultata je vidljivo da su vrijednosti prekidnog istezanja poboljšane za mješavine PE/PP pripremljene dvostupanjskim ekstrudiranjem. U ovom slučaju, punilo je najprije pomiješano s PE i tada je ekstrudirano s preostalim komponentama u mješavini. Usporedbom uzoraka (PE/F)/PP/EPR i (PE/F)/PP/EVA s PE/PP/EPR/F i PE/PP/EVA/F (slika 3 i 4) vidljivo je da je prekidno istezanje poraslo za 14 % odnosno 8 %, dok je prekidna čvrstoća u blagom opadanju (do 3 %). Neznatno smanjenje vrijednosti prekidnih čvrstoća kod ispitivanih mješavina prihvatljivo je pogoršanje svojstava zbog povećane elastičnosti. Može se pretpostaviti da je do poboljšanja svojstava došlo zbog dvostupanjske pripreme mješavine, pri čemu je postignuta bolja dispergiranoost punila zbog povećane adhezije punila dispergiranoog u matrici PE i polimera EVA, te je na taj način moguće postići finiju strukturu polimerne matrice što se odražava na mehanička svojstva mješavine.

### Otpornost na gorenje

Izlaganjem polimera struji topline dolazi do mekšanja i taljenja polimera, potom do dekompozicije polimera pri čemu se oslobađaju polimerne pare, koje miješanjem sa zrakom daju smjesu gorivih plinova te u dodiru s vrućom površinom i plamenom nastaje plamen na površini polimera. Pripremljenim polimernim mješavinama ispitana je otpornost na gorenje određivanjem graničnog indeksa kisika (LOI), čije su vrijednosti prikazane u tablici 2. Iz rezultata je vidljivo da polimerna mješavina PE/PP/EVA/F ima neznatno višu vrijednost graničnog indeksa kisika od ostalih mješavina. Iz literature je poznato da prilikom gorenja dolazi do dekompozicije polimera i pritom pojedine strukturne skupine oslobađaju toplinu, dok neke skupine apsorbiraju toplinu, čime doprinose smanjenju gorenja polimera.<sup>39,40</sup> Prilikom razgradnje polimerne mješavine PE/PP/EVA/F, kopolimer EVA otpušta octenu kiselinu koja najčešće katalizira degradaciju polimera te dolazi do kidanja glavnog lanca polimera pri čemu nastaju radikali. Nastale kemijske strukturne skupine odnosno radikali, koji oslobađaju toplinu tijekom dekompozicije ubrzavaju operaciju širenja plamena te potiču gorenje polimera. Kako bi smanjili gorenje, potrebno je smanjiti koncentraciju nastalih radikala sprečavanjem dekompozicije polimera dodatkom usporivača gorenja i/ili nastajanjem karboniziranog sloja na površini materijala, čime se stvara djelotvorna toplinska izolacijska barijera. Iako je dodatak kompatibilizatora i pu-

T a b l i c a 2 – Granični indeks kisika polimernih mješavina PE/PP

T a b l e 2 – Limited oxygen index (LOI) of PE/PP blends

<i>u</i> – Uzorak <i>u</i> – Sample	<i>g</i> – Granični indeks gorenja/% <i>g</i> – Limited oxygen index (LOI)/%
PE/punilo PE/filler	20,0
PE/PP/punilo PE/PP/filler	20,0
PE/PP/EPR/punilo PE/PP/EPR/filler	19,5
PE/PP/EVA/punilo PE/PP/EVA/filler	20,5
(PE/F)/PP/EPR (PE/F)/PP/EVA	20,0

nila pokazao pozitivan utjecaj na morfologiju i mehanička svojstva pripremljenih mješavina PE/PP, prilikom ispitivanja gorivosti mješavina taj je učinak slabije izražen, što je moguće pripisati nastajanju manjih aglomerata u polimernim mješavinama zbog velike koncentracije nanopunila.<sup>22</sup>

## Zaključci

Dodatak različitih kompatibilizatora (EPR i EVA) i nanopunila SiO<sub>2</sub> u polimerne mješavine PE/PP dovodi do nastajanja finije i homogenije morfologije, koja poboljšava mehanička svojstva posebice prekidno istežanje. Nadalje, vidljivo je da je nanopunilo u mješavinama raspršeno ravnomjerno uz nastajanje manjih aglomerata, što rezultira slabljenjem mehaničkih svojstava mješavina pripremljenih s elastomernim kompatibilizatorom. Neznatno viša vrijednost graničnog indeksa kisika (LOI) polimerne mješavine PE/PP pripremljene s etilen/vinil-acetatom u odnosu na ostale mješavine ukazuje da sastav mješavina nema izraženiji utjecaj na gorivost.

## Popis simbola

### List of symbols

<i>D</i>	– promjer ekstrudera, mm – extruder diameter, mm
<i>d<sub>a</sub></i>	– promjer otvora, mm – aperture diameter, mm
<i>d<sub>p</sub></i>	– promjer čestica, nm – particle diameter, nm
<i>h<sub>c</sub></i>	– visina kolone, mm – column height, mm
<i>h<sub>f</sub></i>	– visina plamena, mm – flame height, mm
<i>L</i>	– duljina ekstrudera, mm – extruder length, mm
<i>n</i>	– brzina vrtnje, min <sup>-1</sup> – rotation speed, min <sup>-1</sup>
<i>t</i>	– vrijeme, s, min, h – time, s, min, h
<i>u<sub>kid</sub></i>	– brzina kidanja, mm min <sup>-1</sup> – break speed, mm min <sup>-1</sup>

<i>w</i>	– maseni udjel, % – mass fraction, %
<i>θ</i>	– Braggov kut, ° – Bragg angle, °
<i>ϑ<sub>m</sub></i>	– talište, °C – melting point, °C
<i>λ</i>	– valna duljina, nm – wavelength, nm
<i>ρ</i>	– gustoća, g cm <sup>-3</sup> – density, g cm <sup>-3</sup>
<i>φ</i>	– relativna vlažnost, % – relative humidity, %
<i>χ</i>	– vlažnost, % – humidity, %
<i>ζ</i>	– maseni omjer – mass ratio

## Literatura:

### References:

1. J. Z. Liang, R. K. Y. Li, *J. Appl. Polym. Sci.* **77** (2000) 409.
2. G. Qiu, F. Raue, G. W. Ehrenstein, *J. Appl. Polym. Sci.* **83** (2002) 3029.
3. Y. Ou, T. Guo, X. Fang, Z. Yu, *J. Appl. Polym. Sci.* **74** (1999) 2397.
4. S. Molnar, B. Pukanszky, C. O. Hammer, F. H. J. Maurer, *Polymer* **41** (2000) 1529.
5. R. Strapasson, S. C. Amico, M. F. R. Pereira, T. H. D. Sydenstricker, *Polym. Test.* **24** (2005) 468.
6. M. Bailly, M. Kontopoulou, *Polymer* **50** (2009) 2472.
7. S. Hui, T. K. Chaki, S. Chattopadhyay, *J. Appl. Polym. Sci.* **110** (2008) 825.
8. J. George, N. R. Neelakantan, K. T. Varughese, S. Thomas, *J. Appl. Polym. Sci.* **100** (2006) 2912.
9. M. Q. Zhang, M. Z. Rong, H. B. Zhang, K. Friedrich, *Polym. Eng. Sci.* **43** (2003) 490.
10. I. A. Hussein, K. Ho, S. K. Goyal, E. Karbasheski, M. C. Williams, *Polym. Degrad. Stab.* **68** (2000) 381.
11. F. P. La Mantia, J. L. Gardette, *Polym. Degrad. Stab.* **75** (2002) 1.
12. A. Choudhury, M. Mukherjee, B. Adhikari, *Thermochim. Acta.* **430** (2005) 87.
13. J. W. Barlow, D. R. Paul, *Polym. Eng. Sci.* **24** (1984) 525.
14. Q. Zhang, H. Yang, Q. Fu, *Polymer* **45** (2004) 1913.
15. J. W. Teh, *J. Appl. Polym. Sci.* **28** (1983) 605.
16. L. Cui, D. R. Paul, *Polymer* **48** (2007) 1632.
17. W. S. Stoy, F. J. Washabaugh, *Fillers*, u H. F. Mark, N. M. Bikales, C. G. Overberger, G. Menges (ur.), *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*. Vol. 7, John Wiley & Sons, New York, 1986, str. 53–73.
18. A. Dhoble, B. Kulshreshtha, S. Ramaswami, D. A. Zumbrennen, *Polymer* **46** (2005) 2244.
19. S. C. Jana, S. Jain, *Polymer* **42** (2001) 6897.
20. M. Y. Boluk, H. P. Schreiber, *Polym. Compos.* **7** (1986) 295.
21. D. W. Fox, R. B. Allen, *Compatibility*, u H. F. Mark, N. M. Bikales, C. G. Overberger, G. Menges (ur.), *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*. Vol. 3, John Wiley & Sons, New York, 1985, str. 758–775.
22. A. Kiss, E. Fekete, B. Pukanszky, *Compos. Sci. Technol.* **67** (2007) 1574.

23. S. H. El-Sabbagh, *Polym. Test.* **22** (2003) 93.
24. J. P. Runt, Crystallinity determination, u H. F. Mark, N. M. Bikales, C. G. Overberger, G. Menges (ur.), *Encyclopedia of Polymer Science and Engineering*. Vol. **4**, John Wiley & Sons, New York, 1986, str. 482–518.
25. J. H. Chen, F. C. Tsai, Y. H. Nien, P. H. Yeh, *Polymer*. **46** (2005) 5680.
26. J. H. Chen, Y. L. Chang, *J. Appl. Polym. Sci.* **103** (2007) 1093.
27. A. Turner-Jones, A. J. Cobbold, *J. Polym. Sci., Part B: Polym. Phys.* **6** (1968) 539.
28. D. W. Jin, K. H. Son, H. M. Jeong, B. K. Kim, *J. Appl. Polym. Sci.* **69** (1998) 533.
29. J. Wu, B. Guo, C. M. Chan, J. Li, H. S. Tang, *Polymer*. **42** (2001) 8857.
30. C. Pagnouille, R. Jerome, *Polymer*. **42** (2001) 1893.
31. J. J. Crevecoeur, L. Nelissen, M. C. M. van der Sanden, P. J. Lemstra, *Polymer*. **36** (1995) 753.
32. M. T. Ramesan, G. Mathew, B. Kuriakose, R. Alex, *Eur. Polym. J.* **37** (2001) 719.
33. Y. Ji, J. Ma, B. Liang, *J. Mater. Lett.* **59** (2005) 1997.
34. R. Uotila, U. Hippi, S. Paavola, J. Seppälä, *Polymer*. **46** (2005) 7923.
35. A. Galeski, *Prog. Polym. Sci.* **28** (2003) 1643.
36. E. Kontou, M. Niaounakis, *Polymer*. **47** (2006) 1267.
37. S. Jose, A. S. Aprem, B. Francis, M. C. Chandy, P. Werner, V. Alstaedt, S. Thomas, *Eur. Polym. J.* **40** (2004) 2105.
38. S. Bertin, J. Robin, *Eur. Polym. J.* **38** (2002) 2255.
39. G. Tartaglione, D. Tabuani, G. Camino, M. Moisio, *Compos. Sci. Technol.* **68** (2008) 451.
40. B. Schartel, T. R. Hull, *Fire Mater.* **31** (2007) 327.

## SUMMARY

### Modification of PE/PP Polymer Blend Nanocomposites with EPR and EVA Copolymers

A. Ptiček Siročić, Z. Katančić, Z. Hrnjak-Murgić, and J. Jelenčić

During the last decade, the use of polyolefinic polymers has been growing in a wide range of fields of applicability and the most widely used polymers are polyethylene and polypropylene. They can be processed separately to produce items with certain properties as well as in the form of blends, where special combinations of properties and price are intended. As it is known, polyethylene (PE) and polypropylene (PP) are incompatible and the weak interfacial bond strength between the phases directly linked to the blend morphology and results in poor mechanical properties. The properties of many polymer blends arise from the fine-scale structural arrangements or blend morphologies obtained during processing in addition to the proportion of each polymer type present. Compounding PE/PP blends with a single compatibilizer or their combination or some other additives as nanofiller, results in multi-component composites of great interest to research as they enable simultaneous improvement in the final properties of the blend. In addition, it is well known that the extrusion process has a significant effect on the dispersion of the filler in the blends. In this work, the mutual effect of the nanofiller silicon-dioxide (SiO<sub>2</sub>) and the compatibilizers ethylene-propylene copolymer (EPR) and ethylene-vinyl acetate copolymer (EVA) on the properties of blends based on polyethylene and polypropylene were studied. The morphology of the samples prepared with nanofiller and compatibilizers is much finer in comparison to the virgin blend. Better dispersion of nanofiller will result in better stability of the polymer blend and decrease in polymer flammability. The addition of the nanofiller and compatibilizers produced an increase in the elasticity especially for the samples prepared in the two-stage extrusion process where the nanofiller was first extruded with PE matrix and then with other polymers of the blends. SEM micrographs confirm finer morphology of samples prepared with compatibilizer and filler, which is the result of improved interactions between polymer components. The morphology also showed finer dispersion when EPR was used as compatibilizer, meaning that it has more effect in the investigated blends than EVA. Further, a slight increase in the limiting oxygen index was found in the blend prepared with EVA and nanofiller, which means that this blend has higher flame resistance, and it can be concluded that the nanofiller in combination with different amounts of the components in the formulations affects flammability.

Faculty of Chemical Engineering and Technology,  
University of Zagreb, Marulićev trg 19, 10000 Zagreb, Croatia

Received September 23, 2009  
Accepted January 11, 2010