

ÇEKİRDEKLENDİRİCİ AJANLAR, UYUMLAŞTIRICILAR VE ANTİOKSİDANLARIN GERİ DÖNÜŞTÜRÜLMÜŞ POLİPROPİLEN ÜZERİNDEKİ ETKİLERİNİN İNCELENMESİ

Eray EREM^{1*}, Tolga GÖKKURT²

¹⁻² Polipro Plastik San. ve Dış Tic. LTD. ŞTİ. Kocaeli, 41400, Türkiye

Geliş tarihi: 08.09.2020 Kabul tarihi: 24.03.2021

ÖZET

Plastikler, hidrolitik ve biyolojik etkilere karşı yüksek direnç gibi üstün özelliklere sahip ve düşük fiyatları sebebiyle dünyamızın vazgeçilmez parçası olan bir malzeme grubudur. Bu çalışmada, geri dönüştürülmüş PP harmanlarının uyumlaştırıcı ve çekirdeklendirici katkıların kullanılması ile sektörel kullanımını arttırmak hedeflenmiştir. Geri kazanım sırasında malzemenin mekanik özellikleri kayma gerilmeleri, maruz kaldığı sıcaklık, termal ve oksidatif bozunmalar yüzünden yüksek oranlarda kayıplar yaşamaktadır. Böylece malzemenin kırılma dayanımına, kararlılığının azalmasına, yüzey özelliklerinin kötüleşmesine sebep olmaktadır. Elastomerik katkıların kullanımı ile oluşan problemlerin çekirdeklendirici katkı kullanımı ile önüne geçilmiştir. Alfa (α) tipi çekirdeklendirici katkı ile PP'nin kristalizasyon davranışının değiştirilmesi hedeflenmiştir. Ayrıca proses iyileştirici olarak ikincil "antioksidan" kullanımı ile de sinerjik bir etki gözlenmiştir. Süreç neticesinde elde edilen harmanların, başta mekanik, termal ve morfolojik özellikleri incelenmiş ve detaylı şekilde irdelenerek orijinal hammadde yerine kullanım uygunluğu tartışılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Geri dönüştürülmüş polipropilen, etilen-propilen-dien-monomer, çekirdeklendirici ajan, antioksidan

INVESTIGATION OF THE EFFECTS OF NUCLEATING AGENTS, HARMONIZATORS AND THE ANTIOXIDANTS ON RECYCLED POLYPROPYLENE

ABSTRACT

Plastics are a group of materials that have superior properties such as high resistance to hydrolytic and biological effects and are an indispensable part of our world due to their low prices. In this study, it is aimed to increase the sectoral use of recycled PP blends by using harmonizing and nucleating additives. During recovery, mechanical properties of the material experience high losses due to the shear stresses, the temperature it is exposed to, and thermal and oxidative degradation. Thus, it causes the material to be brittle, to decrease its stability and to deteriorate its surface properties. The addition of elastomer caused losses in mechanical properties such as tensile strength, modulus of elasticity, and hardness. It is prevented the problems due to use elastomeric additives with the use of nucleating agents. It is aimed to change the crystallization behavior of PP with alpha (α) type nucleating additives. In addition, a synergistic effect was observed with the use of secondary "antioxidants" as process improvers. As a result of process, the mechanical, thermal and morphological properties of the blends obtained were examined in detail, and their substitutability was discussed for the original raw material.

Keywords: Recycled polypropylene, ethylene-propylene-diene-monomer, nucleating agent, antioxidant.

* e-mail: erayerem23@gmail.com ORCID ID: <https://orcid.org/0000-0002-4158-4191> (Sorumlu Yazar),

e-mail: tolga.gokkurt@hotmail.com ORCID ID: <https://orcid.org/0000-0003-4349-9430> ,

1. Giriş

Plastik malzemeler düşük yoğunluk, yüksek mukavemet, üretim kolaylığı ve düşük maliyet gibi özelliklere sahip olması ile yıllardır dünyanın ilgisini çekmiş ve her geçen gün üretimi üssel olarak artmaya devam etmiştir. Plastikler çoğunlukla kullan-at diye isimlendirilmiş tek kullanımlık ürünlerin önemli bir miktarını oluşturmaktadır. Tüketilen plastik miktarı sahip olduğu özellikler dolayısıyla istikrarlı bir şekilde artmaktadır. Dolayısıyla hem sanayi hem de hane halkı içerisinde çok fazla plastik atık ortaya çıkmaktadır. Günümüzde üretilen plastik miktarının 360 milyon ton/yıl olduğu öne sürülmektedir. Bu üretilen plastiklerin %50'si poliolefin grubu içerisinde yer almaktadır ve en göze çarpan konular ambalaj, torba ve kap gibi tek kullanımlık plastik ürünleri içermektedir. Mükemmel geri dönüşüm özelliklerine sahip poliolefinler yeniden kullanımı ve geri dönüşüme olan ilgiyi motive etmiştir. Ne yazık ki, uygun atık yönetimi stratejileri plastik atıklarının artan düzeyleriyle aynı oranda gelişmemektedir. Oluşan bu atıkların 1950 ve 2015 yılları arasında %6,3'ü geri dönüştürülmüş, %12'si yakılmış, %79'u ise çöp olarak depolanmış veya çevreye atık olarak bırakılmıştır ayrıca bu raporlarda şimdiye kadar toplam 6,3 milyar ton atık söz konusu olduğu vurgulanmaktadır. [1], [2]

Geri dönüşüm, bu çevresel kirliliği azaltma sürecinde en etkili ve faydalı yöntemlerdendir. Fakat geri dönüştürülmüş malzemelerin mekanik ve diğer özellikleri farklı plastikler arasındaki uyumsuzluk sebebiyle zayıf kalmaktadır. Atık plastikler yüksek miktarda polietilen (PE) ve polipropilen (PP) içerirken, az miktarlarda polivinilklorür (PVC), polistiren (PS) ve polietilentereftalat (PET) içermektedir. Ambalaj atıklarında bu polimerler katmansal olarak bütünleşik oluşturulduğu için geri dönüşüm süreçleri öncesi ayrıştırma yapılamamaktadır. Bu sorun geri dönüşüm sürecinde atıkların ayrıştırma yapılmadan kullanımına zorlamaktadır. Ayrıştırma yapılmaksızın kullanılan bu harmanlarda yapışma ve uyumsuzluk problemi ile karşılaşmaktadır. Bu problemin çözülerek dünyada büyük bir yer kaplayan harmanların, geri dönüşüm süreçlerine entegre edilmesi ve çevre kirliliğini yüksek oranda düşürülmesi gerekmektedir. Edinilen birçok kaynakta bu atıktaki polimerlerin yapışma ve uyumluluk problemi için uyumlaştırıcılar kullanılması ile geliştirilebilmektedir.[3] Ayrıca oluşan harmanların yeni özelliklere sahip polimerlerin eldesi için birçok araştırmaya konu olmuştur.

PP/PE (polipropilen/polietilen) harmanları, ucuz, bol ve kolayca işlenebildikleri için daha fazla rağbet görmektedir. [4]–[6] Her ne kadar kolay ucuz ve kolay işlenebilir olsa da PP/PE (polipropilen/polietilen) harmanlarının erime sıcaklıkları arasındaki farklılık sebebiyle bu iki polimerin harmanlanması, fiziksel ve mekanik özellikleri zayıf olan uyumsuz harman eldesi ile sonuçlanır. Bu nedenle iki polimer arasındaki uyumluluğu arttırmak için uyumlaştırıcı kullanılır. [7], [8] PP/PE harmanları, sadece polimerin işleme ve mekanik özelliklerini iyileştirmek için değil, aynı zamanda bu harmanların geri dönüşüm fırsatlarını genişletmek için büyük araştırma ve ekonomik ilgi alanına girmiştir. [9], [10]

1980'lerden beri, önemli miktarda çalışma, karışık polipropilen (PP) ve polietilenlerin (PE) mekanik özelliklerinin incelenmesine odaklanmıştır. Harmanlamanın etkinliği esas olarak harmanlanmış bileşenlerin karışabilirliğine veya karışmazlığına bağlıdır. PP ve HDPE'nin yanı sıra PP ve düşük yoğunluklu polietilenin (LDPE) herhangi bir karıştırma oranında genellikle karışmaz olduğu düşünülür ve soğutma ve kristalleştirme sırasında bu tür karışımların son özelliklerini yansıtan dikkate değer bir faz ayrımı gösterir. Polimer harmanlarında, kristalizasyon işleminin morfolojik özellikleri, termal ve mekanik özellikleri üzerinde önemli bir etkisi olabilir. Yarı kristal polimerler, polipropilen (PP) ve polietilenler (PE), farklı katmanlı kalınlıklara ve mükemmeliyet derecelerine sahip kristallerden oluşur. Bu polimer harmanlarındaki kristalizasyon kinetikleri, iki bileşenin farklı kristalleşme davranışına göre çok karmaşıktır. Bunlar arasında birincil çekirdeklerin üretimi, yüzey çekirdeklerinin oluşumu ve yayılması ve büyüyen kristalin ilerleyen cephesinde kristalleşebilir ve kristalleşemez zincirlerin interfüzyonu bulunur. [11], [12]

PP/PE (polipropilen/polietilen) karışımları söz konusu olduğunda, farklı tipte zincir yapılarına sahip erimiş polietilenler (PE) genellikle karışmaz. Daha yüksek ergime noktasına sahip PE küreleri, kristalizasyon sırasında diğer polietilenlerin kapsülleri ile kapsülendir. Böylece, bir bileşenin

kristalleşme noktasının altına soğutulduktan sonra, karışımların morfolojisi kristalin yapı içinde sabitlenir. PP ve PE'lerin fiziksel özellikleri, nihai ürünün mekanik özelliklerini doğrudan yöneten bu tür faz ayrılmasının saptanmasına imkân vermeyecek kadar benzerdir. [13]

Başta da belirtildiği gibi harman bileşenlerinin karışabilirliğini arttırmak için bir uyumlaştırıcı eklenebilir. Uyumlaştırıcı ara yüzey gerginliğini azaltır ve karışmayan fazlar boyunca yapışmayı artırır. [14] Polimerlerin eriyik harmanlanması yoluyla reaktif uyumlaştırmanın, harman bileşenlerinin fonksiyonel grupları arasındaki spesifik etkileşimleri kolaylaştırdığı için etkili bir yol olduğu bulunmuştur. Bu geri dönüştürülmüş harmanlar ambalaj sektöründe tekrardan kullanılabilir. [15], [16]

Görüldüğü üzere plastik ambalajların geri dönüşümü, sınırlı kaynakları koruma ve çevreyi plastik atıklardan koruma ihtiyacı nedeniyle giderek daha önemli hale gelmektedir. Ne yazık ki, çok katmanlı paketler çoğunlukla yakılmış veya düzenli depolama alanı olarak geri dönüştürülmüştür. [17]

Birçok çalışmada görüldüğü gibi PP/PE harmanları için tam bir uyumlaştırma gözlemlenmemektedir. Dünyamızın plastik atıklarının %50'sini kapsayan bu grup plastikler için daha fazlaya çalışmaya gerek duyulduğu aşikardır. Çalışmanın ana amaçlarından birisi de bu ambalaj atıklarının ayrıştırma gerek kalmaksızın EPDM (etilen-propilen-dien monomer), çekirdeklemeye ajanları ve antioksidanların kullanımı ile uyumsuzluk sorunun üstesinden gelip, çevre kirliliğinin büyük bir bölümünü oluşturan bu atıkların geri dönüşüme entegre edilmesidir.

2. Materyal ve yöntem

2.1. Malzemeler

O-Polipropilen (OPP) ve bebek bezi üretim sonrası atıkları, plastik geri dönüştürücü tek vidalı ekstrüder kullanılarak elde edilen plastik granüller, erime akış endeksi 15 g/10 dk (MFI; 230 °C, 2,16 kg) olan ana polimer matrisi olarak kullanılmıştır ve yoğunluk 0,92 g/cm³ olduğu tespit edilmiştir. Ayrıca, bebek bezi atıkları 20 g/10 dk MFI değerine sahipken, OPP atıkları yaklaşık 8 g/10 dk MFI değerine sahiptir. Şekil 1 ve 2'de bebek bezi ve OPP atıklarının fotoğrafları bulunmaktadır. Ayrıca Şekil 3'te OPP ve bebek bezi atıklarının ekstrüder sonrası elde edilen ana polimer matrisinin granül hali bulunmaktadır.



Şekil 1. Bebek bezi atıkları



Őekil 2. OPP ambalaj atıkları



Őekil 3. Geri dnstrlmŐ granller

Elastomerik katkı maddesi olarak kullanılan etilen-propilen-dien-monomer (EPDM), EPT ticari adıyla Mitsui Chemicals tarafından granl olarak tedarik edilmiŐtir. Farklı kalitelere deęiŐen oranlarda etilen ve dien bulunduran 3092 PM, mooney viskozitesi 61 mL (1 + 4) 125 °C olan yaęsız

genişletilmiş dereceye yerleştirilir. %65 etilen ve %4,6 dien; ayrıca düşük eriyik akış indeksine ve dar moleküler ağırlık dağılımına sahiptir.

Üç tip çekirdekleştirici madde kullanılmıştır. Farklı kimyasal formülleri vardır. ADK STAB NA-11UH, Adeka tarafından tedarik edildi. Kimyasal adı Sodyum 2,2'-Metilenbis-(4,6-di-tert-butilfenil) fosfattır. Diğer çekirdekleştirici ajanlar Miliken tarafından Hyperform ticari ismi ile tedarik edilmiştir. HPN 68L, dikarboksilat Na bazlı bir bileşik içeren toz haline getirilmiş katı çekirdekleştirici bir maddedir. HPN 20E, toz halinde katı çekirdekleştirici bir ajan "Ca HHPA" içerir.

İşlem stabilizatörü olarak kullanılan ikincil antioksidan Ciba tarafından Irgafos 168 ticari ismi ile temin edilmiştir. Kimyasal adı Tris (2.4-di-tert-butilfenil) fosfittir.

2.2. Geri Dönüşüm Sonrası elde edilen Granüllerin Çift Vidalı Ekstrüder ile Bileşim Hazırlama

Vida çapı 27 mm ve L/D oranı 48:1 oranına sahip çift vidalı ekstrüder bu işlem için kullanılmıştır. Şekil 4'de verilen bileşim hazırlama süreçlerinde kullanılan çift vidalı ekstrüderin şematik gösterimi verilmiştir.



Şekil 4. Eriyik harmanlama tekniğine uygun çift vidalı ekstrüder hattı

Bu ekstrüderde bir hacimsel ana besleyici, iki hacimsel yan besleyici, gaz giderme ünitesi, su banyosu ve sabit uzunlukta peletleyici bulunur. Kapalı varil sisteminde ek sıcaklık ve basınç ölçüm noktaları bulunur. Her bir modüler namlu bölgesine bağlanan ve termoregülatör tarafından kontrol edilen elektrik rezistansları ve su soğutma kanalları, ayarlanan sıcaklığın kontrol edilmesinde önemli rol oynar. ± 1 °C hassasiyete sahip 13 sıcaklık bölgesi vardır. Polimerik malzemeler, ısı ve basıncın etkisiyle varillerde erir. Birleştirme sırasında oluşan gazlar çıkarılır ve bir gaz giderme ünitesi 12.

namlu bölgesindeki hortumlarla vakum pompasına bağlanır. Kalıp, ekstrüderin ön ucunda beş telli bir delik ile gerçekleşir. Polimer eriyiği ekstrüderden çıkarlar sonra su banyosuna soğutulur ve sabit uzunluktaki peletleyici veya doğrayıcı ile granül eldesi sağlanır.

Kullanılan ekstrüder, birleştirme işlemi için yüksek kesme ve yüksek kalış süresi ile iyi erime ve karıştırma sağlayacak şekilde tasarlanmıştır. Vida boyunca çeşitli konfigürasyon türlerine sahiptir. Bu çalışmada kullanılan vida konfigürasyonu 9 taşıma bloğu, 7 yoğurma bloğu ve katı taşıma bölgesi, plastikleştirme bölgesi, eriyik taşıma bölgesi, homojenleştirme bölgesi, gaz giderme bölgesi, basınç oluşturma bölgesi içerir. Hammadde ilk taşıma bölgesi tarafından alınır, daha sonra malzeme plastikleştirilir ve eriyik, aşağıdaki üç yoğurma ve dört taşıma bölgesi boyunca elde edilir. Daha sonra eriyik üç yoğurma ve dört taşıma bloğu ile homojenleştirilir. Son olarak, birleştirme sırasında oluşan gazlar, gaz giderme bölgesinde uzaklaştırılır.

Kullanılan EPDM, çekirdeklendirme ajanları ve antioksidanların yüzdeleri değiştirilerek RPP (geri dönüştürülmüş polipropilen) bazlı bileşiklerin formülizasyon tablosu Tablo 1’de verilmiştir.

Tablo 1. Hazırlanan geri dönüşüm esaslı RPP bazlı bileşiklerin formülizasyon tablosu

<i>Kod</i>	<i>RPP</i>	<i>3092 PM</i>	<i>NA-11UH</i>	<i>HPN-68L</i>	<i>HPN-20E</i>	<i>Irgafos-168</i>
R1	100	-	-	-	-	-
R2	95	5	-	-	-	-
R3	90	10	-	-	-	-
R4	99,5	-	0,5	-	-	-
R5	99,5	-	-	0,5	-	-
R6	99,5	-	-	-	0,5	-
R7	99,8	-	-	-	-	0,2
R8	99,3	-	0,5	-	-	0,2
R9	99,3	-	-	0,5	-	0,2
R10	99,3	-	-	-	-	0,2
R11	94,5	5	0,5	-	0,5	-
R12	94,5	5	-	0,5	-	-
R13	94,5	5	-	-	0,5	-
R14	89,5	10	0,5	-	-	-
R15	89,5	10	-	0,5	-	-
R16	89,5	10	-	-	0,5	-
R17	94,8	5	-	-	-	0,2
R18	89,8	10	-	-	-	0,2
R19	94,3	5	0,5	-	-	0,2
R20	94,3	5	-	0,5	-	0,2
R21	94,3	5	-	-	0,5	0,2
R22	89,3	10	0,5	-	-	0,2
R23	89,3	10	-	0,5	-	0,2
R24	89,3	10	-	-	0,5	0,2

2.3. Karakterizasyon

2.3.1. Diferansiyel Taramalı Kalorimetre (DSC) ile Termal Analizler

Atıkların ve geri dönüşüm sonrası elde edilen örneklerin termal özelliklerinin karakterizasyonu ve bu özelliklere bağlı yapısal bileşimlerinin tayini için ISO 11357-3:2018 standartına uygun olarak Diferansiyel Taramalı Kalorimetre (DSC) analizleri gerçekleştirilmiştir.

Bütün ölçümler, örneklerin termal bozulmasını engellemek için 50 mL/dak azot atmosferi altında gerçekleştirilmiştir. Alüminyum bir kroze içerisindeki 9-10 mg ağırlığındaki numuneler, 10 °C/dk ısıtma hızı ile 300 °C'ye ısıtılmış ve örneklerin termal geçmişini silmek amacı ile bu sıcaklıkta 5 dk beklenilmiştir. Daha sonra kristalizasyon davranışlarının karakterizasyonu için örnekler 5 °C/dk hız ile 23 °C'ye soğutulmuştur. Bu soğutma sürecinde, örneklerin kristalizasyon sıcaklığı (Tc) ile buna karşılık gelen kristalizasyon entalpileri (ΔH_c) belirlenmiştir. Eriyik kristalleşme davranışı olarak da tanımlanabilen bu sürecin sonrasında, numuneler 5 dk süre ile 23 °C sıcaklık değerinde bekletilmiş ve 5 °C/dk ısıtma hızı ile tekrar 300 °C'ye ısıtılmıştır. Bu ısıtma sürecinde ise örneklerin erime sıcaklığı (Tm) ile buna karşılık gelen erime entalpileri (ΔH_m) tespit edilmiştir.

2.3.2. Çekme ve Darbe Testleri ile Mekanik Özellik Analizleri

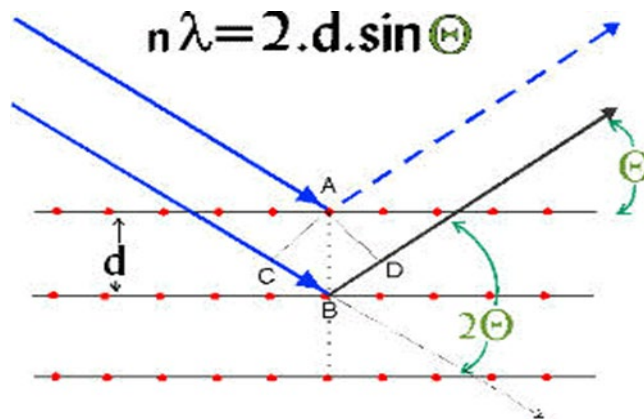
Örneklerin çekme mukavemeti, elastisite modülü ve kopma uzaması gibi yapısal uygulamalar için önem arz eden mekanik özellikleri Zwick/Roell Z200 üniversal çekme cihazı kullanılarak oda sıcaklığında ISO 527-2:2012 standardına göre gerçekleştirilmiştir. Testlerde 10 mm/dk çekme hızı uygulanmış olup her örnek için en az 5 farklı test numunesi kullanılmıştır. Yapısal uygulamalar için önem arz bir diğer mekanik özellik olan darbe mukavemet değeri ise Izod çentikli darbe mukavemeti olarak isimlendirilen ISO 180:2019 standartına göre gerçekleştirilmiştir.

2.3.3. Eriyik Akış İndeksi, Yoğunluk ve Sertlik Ölçümü ile Fiziksel Özellik Analizleri

Örneklerin fiziksel özellik analizleri altında, eriyik akış indeksi (MFI) değerleri ISO 1133-1:2012 standartına, yoğunluk ölçümleri ISO 113-1:2019 standartına, sertlik ölçümleri ise ISO 868:2003 standartına göre gerçekleştirilmiştir.

2.3.4. X-Işını Difraktometresi (XRD) ile Analizler

Örneklerimizin XRD analizi Rigaku R-AXIS RAPID-S X-ışını difraktometresi kullanılarak yapılmıştır. Analizler 45 kV, 40 mA gerilim de $\text{CuK}\alpha$ radyasyonu (dalga boyu = 1,5405 Å = 0,15405 nm) 2θ tarama hızında 2 °/dk ile 10-45 aralığında yapılmıştır. Analiz sonuçları, Şekilde gösterildiği gibi "Bragg Yasası" denklemi kullanılarak hesaplandı. "n", verilen sırayla belirlenen bir tamsayıdır, λ x-ışınlarının dalga boyu ve hareketli elektronlar, protonlar ve nötronlardır; d, atomik kafesteki düzlemler arasındaki aralıktır ve θ , olay ışını ile saçılma düzlemleri arasındaki açıdır.



Şekil 5. Bragg yasası

2.3.5. Polarize Mikroskop (POM)

Örneklerin morfolojileri Nikon, Eclipse LV100 polarize mikroskobu kullanılarak incelenmiştir. Çalışmada POM bağlantılı -80 °C ile 400 °C sıcaklık aralığında çalışabilen sıcak aşama kullanılmıştır. DSC diyagramları referans alınarak ısıtma ve soğutma limitleri belirlenmiştir. Numuneler oda sıcaklığından 250 °C'ye ısıtıldıktan sonra 10 dk sabit sıcaklıkta bekletilip sıvı nitrojen kullanılarak 1 C/dk soğutma hızı ile 250 °C'den 110 °C'ye soğutulmuştur. Böylelikle kristalleşme davranışı ve sferülit büyümeleri daha iyi gözlemlenebilmektedir. Görüntüler 140 °C'den 110 °C'ye 50 µm yakınlaştırma oranıyla alınmıştır.

3. Bulgular ve Tartışmalar

3.1. Eriyik Akış İndeksi, Yoğunluk ve Sertlik Ölçümü ile Fiziksel Özellik Analizleri

Test sonuçları, EPDM gibi katkı maddelerinin kullanılması nedeniyle bileşiklerin yoğunluk değerlerinin hemen hemen aynı olduğunu, çekirdekleştirici ajanlar ve/veya antioksidanların dolgu maddesi olmadığını, bu durumda numunelerin yoğunluklarının etkilenmediğini göstermiştir. Geri dönüştürülmüş Polipropilen 0,92 g/cm³ yoğunluğa sahiptir ve EPDM/N.A/A.O içeren bileşikler yaklaşık 0,93 veya 0,94 g/cm³'e sahiptir, bu nedenle sonuçlar yoğunluk değerleri açısından RPP bazlı bileşikler için önemli bir fark olmadığını göstermiştir.

MFI test sonuçları, EPDM'nin artan yükleme seviyesi ile bir düşüş gösterdi. Geri dönüştürülmüş polipropilenin MFI değeri 15 g/10 dk'dır. %5 EPDM yüklemesi MFI'yi 9,1 g/dk'ya düşürdü ve %10 EPDM yüklemesi MFI'yi 8,4 g/10 dk'ya kadar düşürdü. Bununla birlikte, çekirdekleştirici ajan türleri RPP'ye göre yaklaşık 0,2 g/10 dk azalmaya neden olurken, antioksidan Irgafos 168 0,3 g/10 dk azalmaya neden olur; bu nedenle bu sapmalar ihmal edilebilir.

Tablo 2. Hazırlanan geri dönüşüm esaslı RPP bazlı bileşiklere ait eriyik akış indeksi, yoğunluk ve sertlik değerleri

<i>Numuneler</i>	<i>Eriyik Akış İndeksi (g/10dk)</i>	<i>Yoğunluk (g/cm³)</i>	<i>Sertlik (Shore D)</i>
R1	15 ± 0,8	0,92 ± 0,01	72±1
R2	9,1 ± 0,5	0,92 ± 0,02	67±1
R3	8,4 ± 0,6	0,93 ± 0,01	68±1
R4	14,7 ± 0,9	0,94 ± 0,01	72±1
R5	14,8 ± 0,5	0,94 ± 0,01	73±1
R6	14,7 ± 0,9	0,94 ± 0,01	73±1
R7	14,7 ± 0,8	0,94 ± 0,02	73±1
R8	14,9 ± 0,7	0,93 ± 0,01	73±1
R9	14,8 ± 0,3	0,94 ± 0,01	74±1
R10	14,9 ± 0,2	0,93 ± 0,02	74±1
R11	9,3 ± 0,6	0,94 ± 0,02	71±1
R12	9,5 ± 0,4	0,93 ± 0,02	72±1
R13	9,5 ± 0,7	0,93 ± 0,01	72±1
R14	8,2 ± 0,7	0,94 ± 0,01	69±1
R15	8,6 ± 0,9	0,94 ± 0,01	70±1
R16	8,4 ± 0,7	0,93 ± 0,02	70±1
R17	9,6 ± 0,6	0,94 ± 0,01	71±1
R18	8,1 ± 0,5	0,93 ± 0,01	70±1
R19	9,2 ± 0,9	0,94 ± 0,01	71±1

R20	9,3 ± 0,8	0,93 ± 0,02	72±1
R21	9,4 ± 0,5	0,94 ± 0,01	72±1
R22	8,1 ± 0,8	0,94 ± 0,01	70±1
R23	8,5 ± 0,3	0,93 ± 0,01	71±1
R24	8,2 ± 0,4	0,94 ± 0,02	71±1

Tablo 2. Devamı

Değişken oranlarda EPDM, çekirdeklendirici maddeler ve antioksidanın RPP bileşiklerinin sertlik özelliği üzerindeki etkilerini değerlendirmek için Shore-D sertlik testi yapılmıştır.

Sonuçlar %5 ve %10 EPDM eklendiğinde sertliğin azaldığını gösterdi. RPP'nin sertlik değeri 72 Shore-D iken, ilave edilen bileşik %10 EPDM 67 Shore-D sertliğine sahipti. Tekli karışımlarda hem çekirdekleştirici ajanlar hem de antioksidan sertlik değerini artırmıştır. İkili ve üçlü karışımlarda, çekirdeklendirici maddeler ve antioksidan, sadece EPDM eklenen mono karışımlara kıyasla Shore-D sertlik değerini benzer şekilde artırmıştır.

3.2. X-Işını Difraktometresi (XRD) ile Analizi

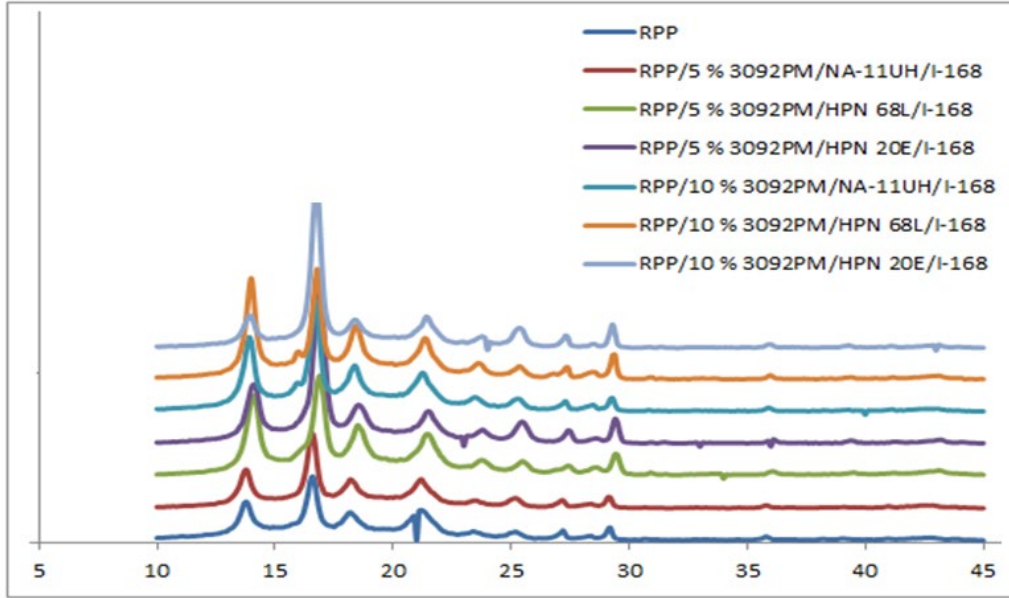
Çekirdekleştirici maddenin kristalleşme davranışı üzerindeki etkisi XRD sonuçlarına göre belirlendi. Nükleasyon ajanı, geri dönüştürülmüş PP'nin "θ" açılarını ve yoğunluklarını değiştirmiştir. Şekil 6'da α-NA katkı maddeleri, monoklinik yapının göstergesi olarak daha yüksek θ ve gerilim değerine neden olmuştur. Ayrıca XRD analizi sonuçları Tablo 3 ve Tablo 4'de verilmektedir.

Tablo 3. İlk pik ve ikinci pik için numunelerin X-ışını kırınım analizinin test sonuçları

Kod	İlk pik sonuçları			ikinci pik sonuçları		
	2θ (°)	Gerilim	d	2θ (°)	Gerilim	d
R1	13,8	1933	6,42	16,6	3118	5,34
R19	13,8	1938	6,42	16,6	3624	5,34
R20	14,1	3920	6,28	16,9	4844	5,24
R21	14,1	2946	6,28	16,9	7728	5,24
R22	13,9	3653	6,36	16,7	5384	5,30
R23	14	4911	6,33	16,8	5330	5,28
R24	14	1635	6,33	16,8	7588	5,28

Tablo 4. Üçüncü pik ve dördüncü pik için numunelerin X-ışını kırınım analizinin test sonuçları

Kod	Üçüncü pik sonuçları			Dördüncü pik sonuçları		
	2θ (°)	Gerilim	d	2θ (°)	Gerilim	d
R1	18,2	1438	4,87	21,1	1543	4,19
R19	18,2	1488	4,87	21,2	1494	4,19
R20	18,5	2524	4,79	21,5	2107	4,13
R21	18,5	1966	4,79	21,5	1673	4,13
R22	18,4	2316	4,82	21,2	1954	4,19
R23	18,4	2667	4,81	21,4	2094	4,15
R24	18,4	1476	4,82	21,4	1608	4,15



Şekil 6. XRD sonuçlarının karşılaştırılması

3.3. Diferansiyel Taramalı Kalorimetre (DSC) ile Termal Analizler

Diferansiyel taramalı kalorimetri test sonuçları Tablo 5'de verilmiştir. DSC diyagramları, geri dönüştürülmüş PP'nin tüm karşılaştırmalı diyagramlarda gösterildiği gibi yaklaşık %5 polietilen içerdiğini göstermiştir. α - çekirdekleştirici ajanların etkisi, diyagramlarda kristalleşme davranışı açısından açıkça görülmüştür.

Tablo 5. Hazırlanan geri dönüşüm esaslı RPP bazlı bileşiklerin erime ve kristalizasyon sıcaklıkları ve entalpileri

Numuneler	T_c (°C)	T_m (°C)	ΔH_c (J/g)	ΔH_m (J/g)
R1	121	163	55	34
R2	122	163	62	54
R3	121	166	63	52
R4	130	163	76	62
R5	129	165	62	51
R6	130	165	53	44
R7	121	166	55	47
R8	131	164	73	60
R9	131	163	68	57
R10	126	165	59	54
R11	131	164	72	60
R12	131	163	57	50
R13	126	164	64	56
R14	131	166	65	53
R15	132	162	60	50

R16	127	165	63	56
R17	122	164	61	55
R18	122	163	62	54
R19	130	164	66	57
R20	132	165	67	52
R21	125	164	55	50
R22	130	164	56	50
R23	132	165	46	39
R24	127	164	58	52

Tablo 5. Devamı

DSC sonuçlarından; Çekirdekletirici ajanların kristalleşme sıcaklığını artırdığı ve çekirdekli örneklerin geri dönüştürülmüş PP'ye göre daha erken kristalleşmeye başladığı görülmüştür. Mono karışımlar eklenen α -NA'lar, RPP'ye kıyasla daha yüksek kristalleşme sıcaklıklarına sahiptir. RPP 121,22 °C'de kristalleşmeye başlarken tekli karışımlar eklenen α -NA'lar 129 °C'nin üzerinde kristalleşmeye başlamıştır.

İkili ve üçlü karışımlarda mono karışımlarda görülen aynı α -NA etkisi gözlemlendi, çekirdekli örnekler geri dönüştürülmüş PP'ye göre daha erken kristalleşmeye başlamıştır. Çekirdekletirici ajan türleri, kristalleşme sıcaklıkları üzerinde farklı etkiler göstermiştir. HPN 20E ikili ve üçlü karışımlarında kristalizasyon sıcaklığını yaklaşık 126 °C'ye çıkarırken, mono karışımında kristalizasyon sıcaklığını 129 °C'ye kadar yükseltmiştir.

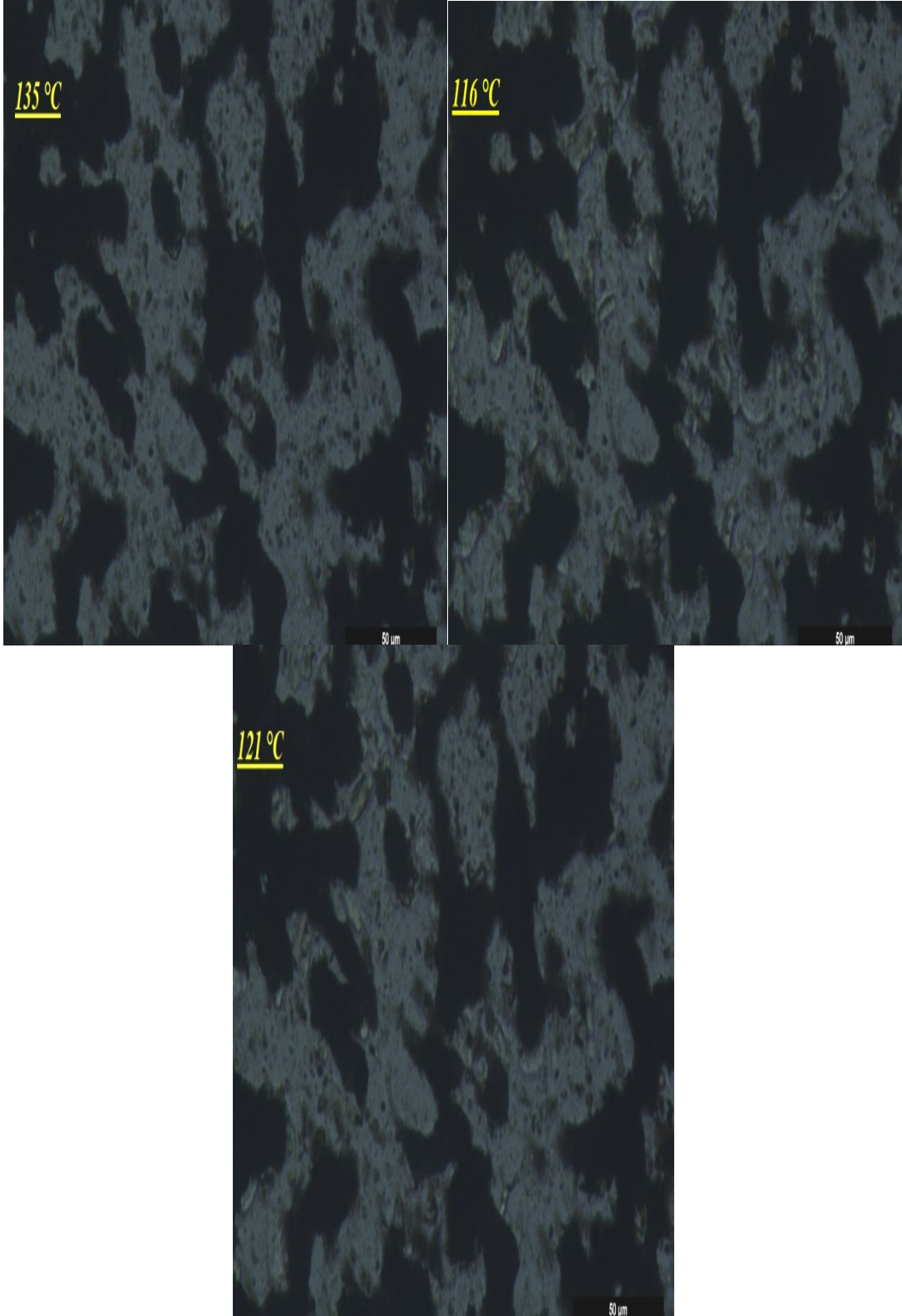
En büyük fark, HPN 68L eklenen tüm karışımlarda elde edilmiştir. Ayrıca EPDM'nin matris girişi ile özellikle HPN 68L eklenen karışımlarda kristalizasyon sıcaklığı 2 °C oranında artmıştır. NA-11UH kristalizasyon entalpisini arttırırken, HPN 68 L ve 20 E bunu düşürmüş veya değiştirmemiştir.

Sonuçlara göre, NA-11UH eklenen karışımlar, genellikle daha yüksek entalpi değerlerine sahiptir.

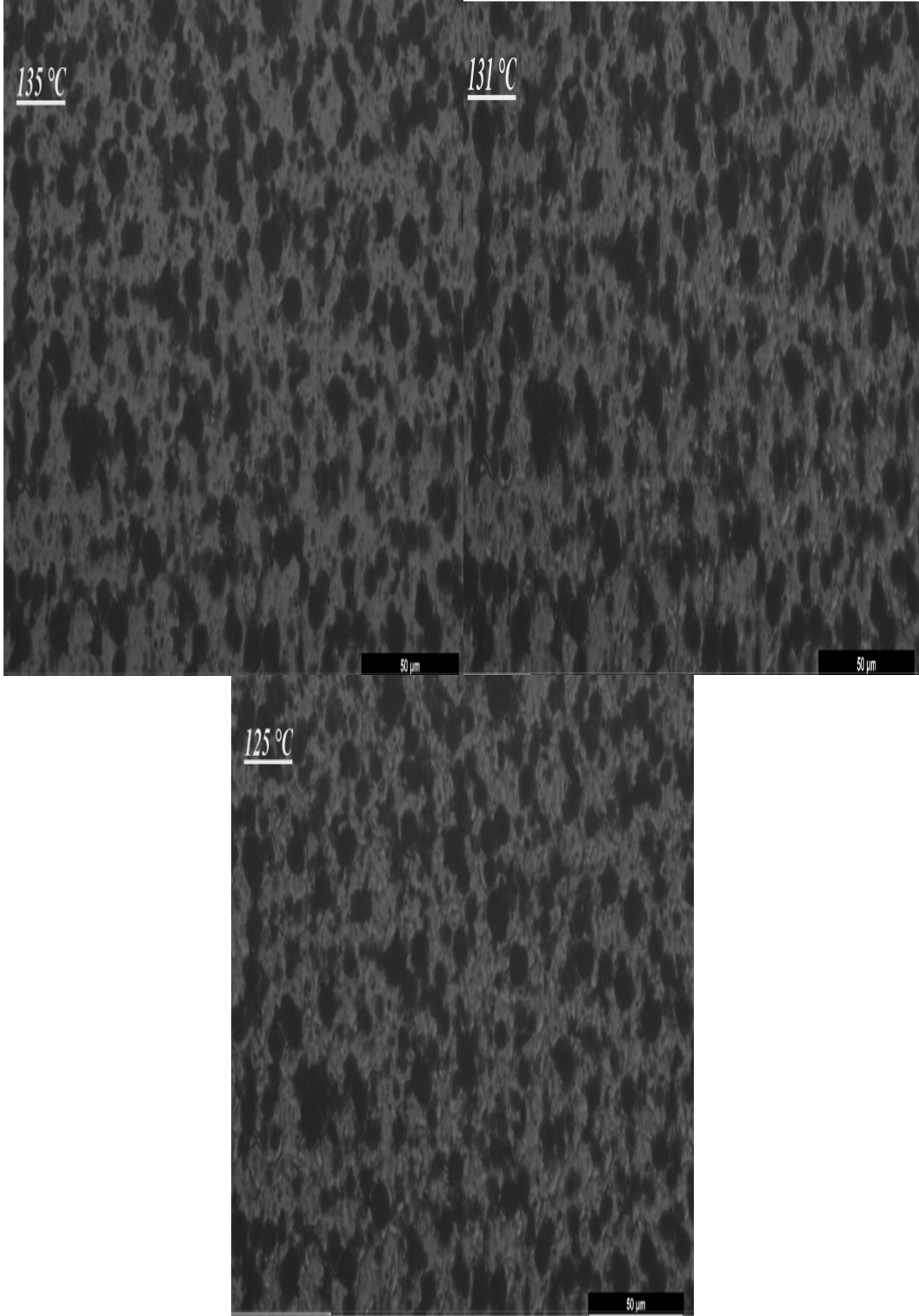
3.4. Polarize Mikroskopu (POM) ile Analizler

DSC analiz sonuçlarında görüldüğü gibi çekirdekletirici ajanın eklenmesi, kristalizasyonun başlangıç sıcaklığını ve sferülitlerin boyutunu değiştirdi. RPP 121 °C'de kristalleşmeye başlarken, karışımlara eklenen çekirdekli ajan daha yüksek sıcaklıklarda kristalleşmeye başlamıştır.

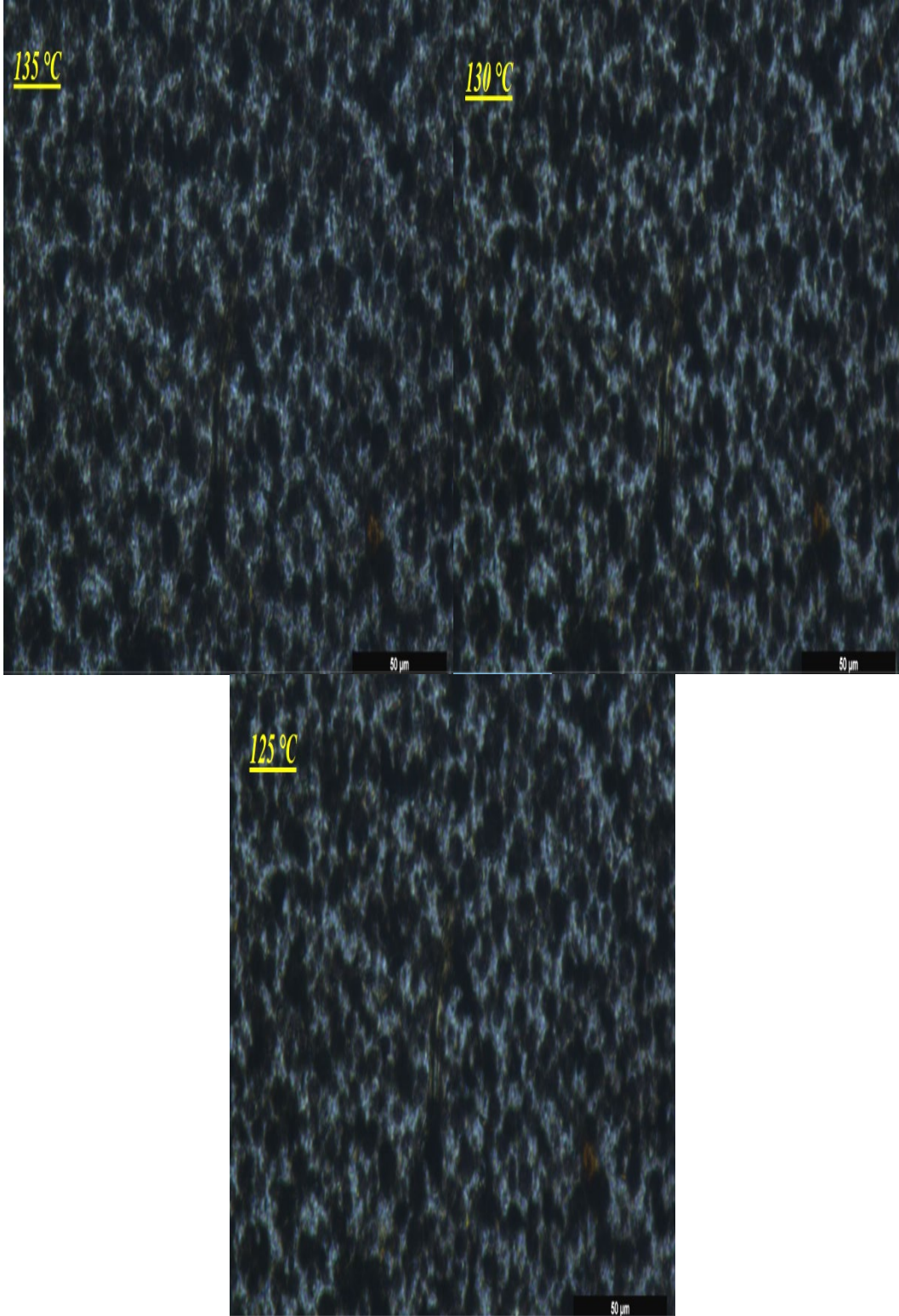
Mono, ikili ve üçlü karışımlar için analiz görüntüleri Şekil 7-13'te verilmiştir.



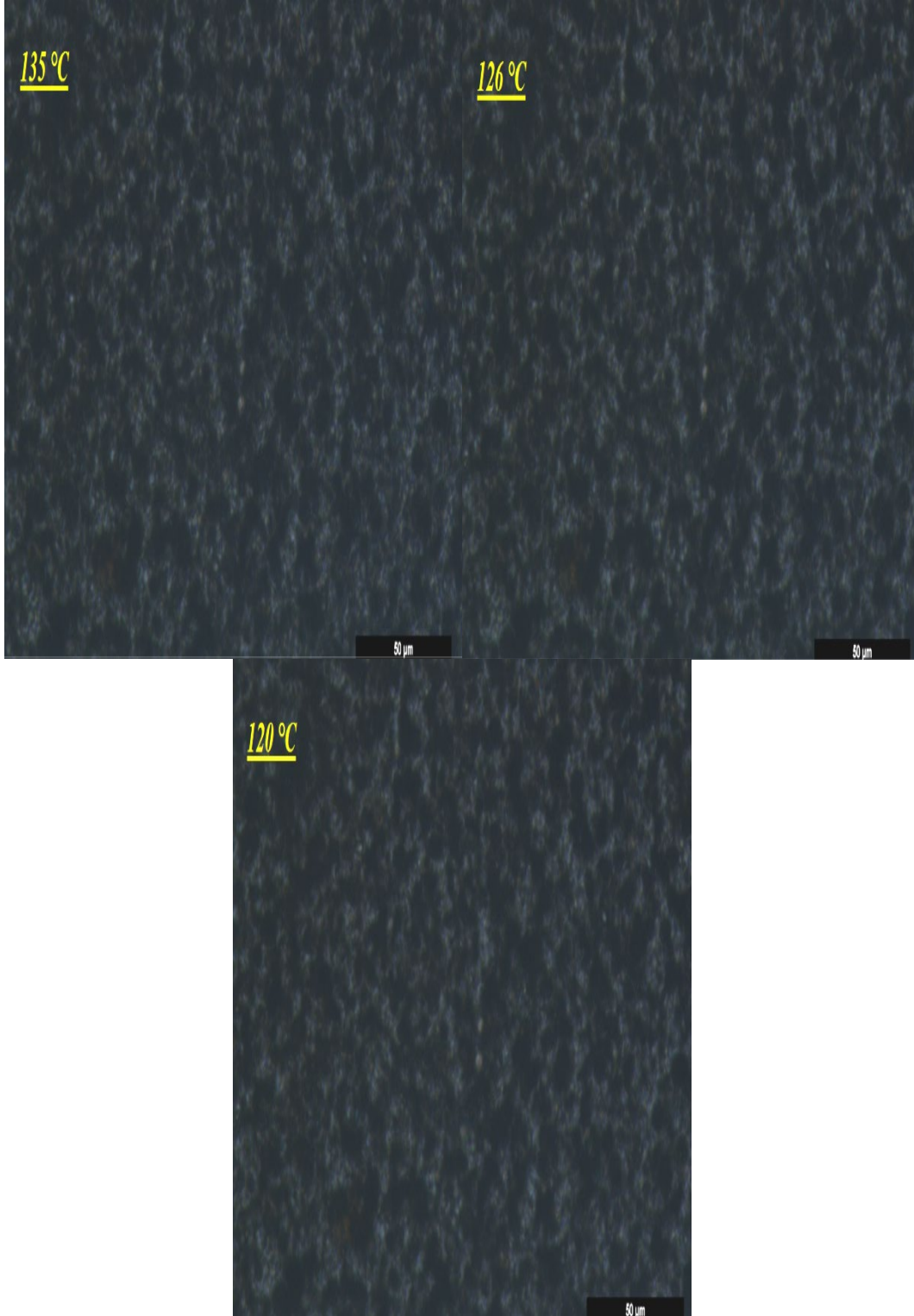
Şekil 7. RPP için 50 µm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 19. (121 °C), 24. (116 °C) dakikalarda sferülitlerin gelişimi.



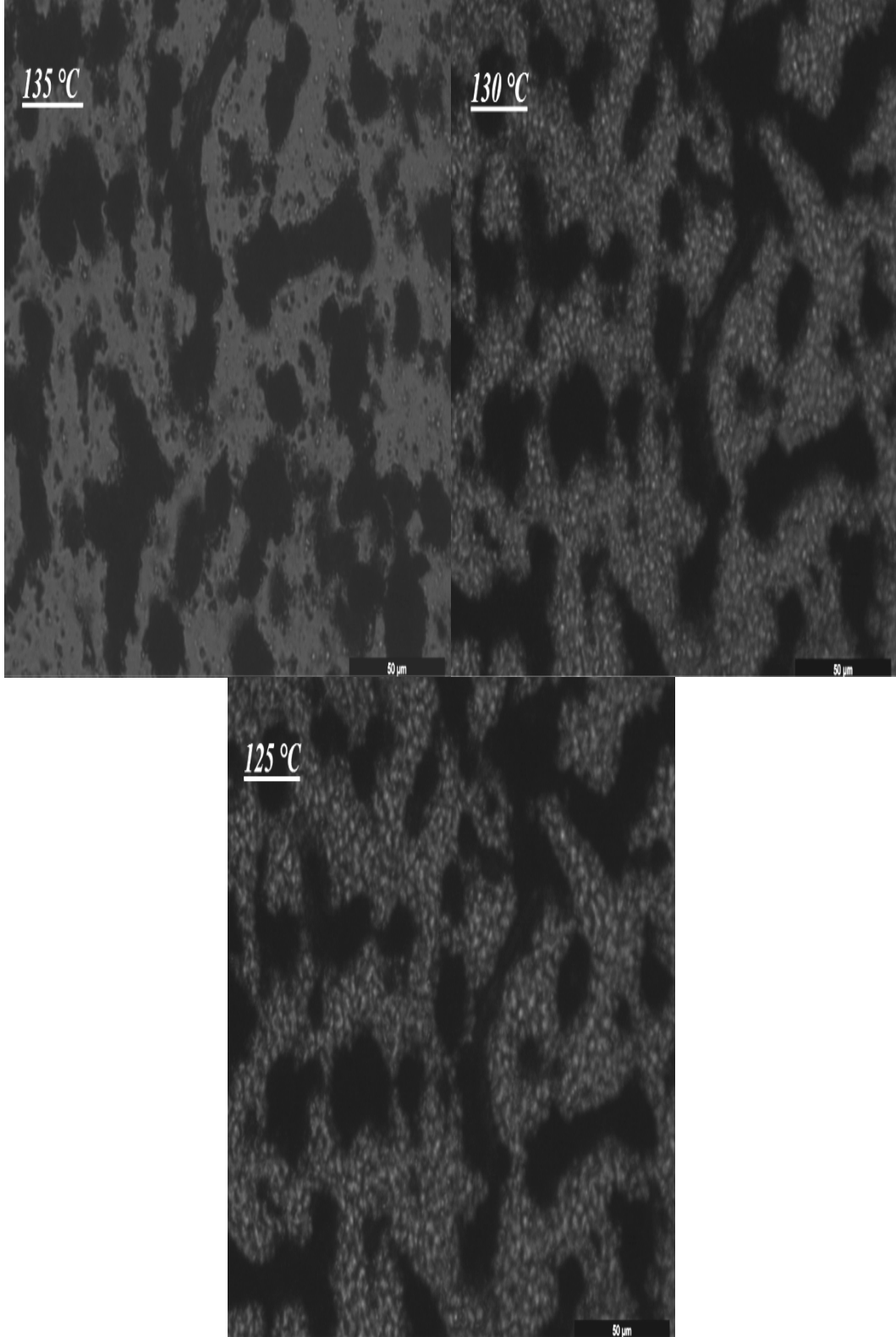
Şekil 8. RPP/NA-11 UH tekli karışımı için 50 µm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 9. (131 °C), 15. (125 °C) dakikada sferlitlerin geliřimi



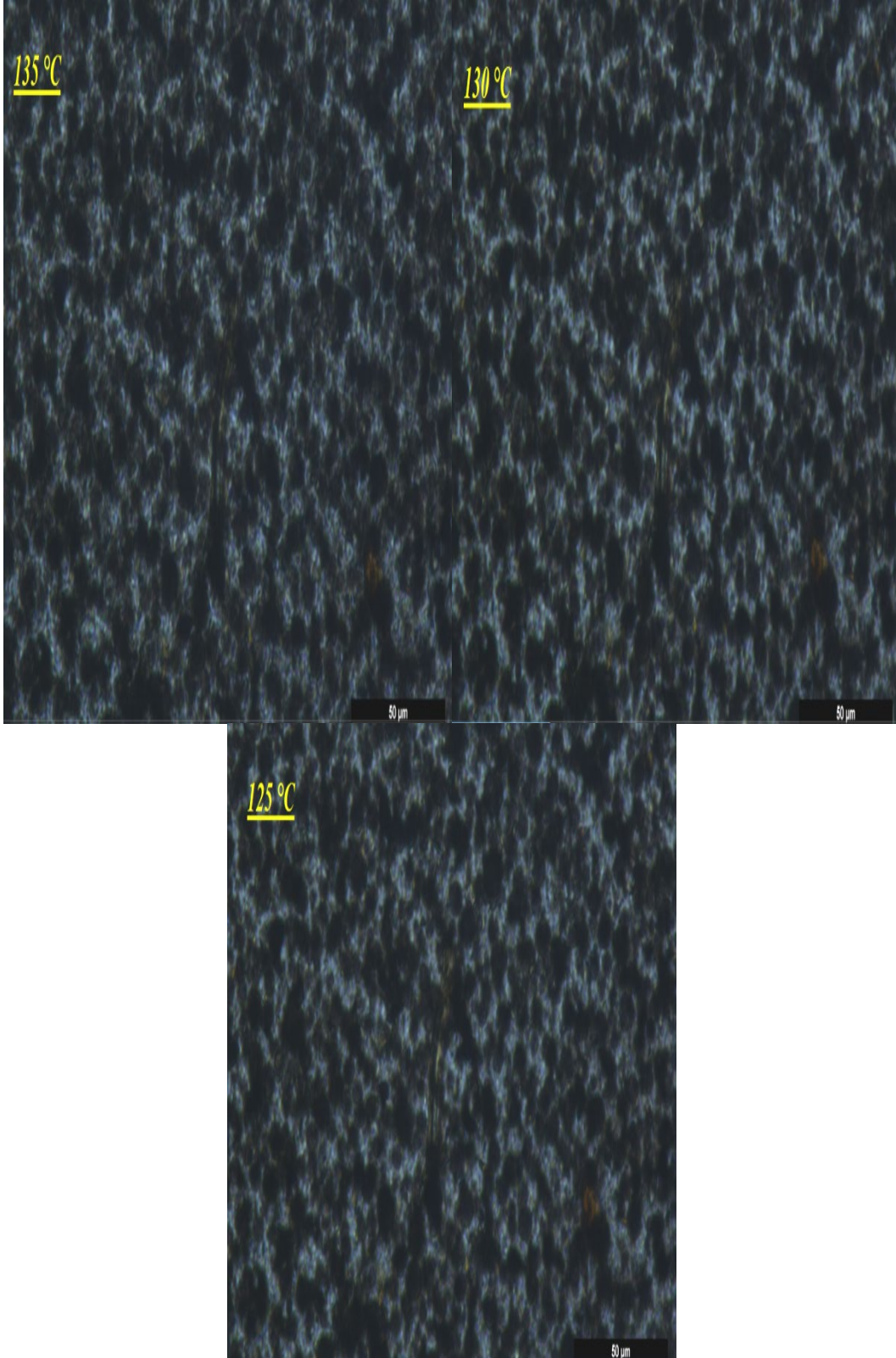
Şekil 9. RPP/HPN 68L mono karışımı için 50μm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 10. (130 °C), 15. (125 °C) dakikada sferülitlerin gelişimi



Şekil 10. RPP/HPN 20E mono karışımı için 50 µm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 14. (126 °C), 20. (120 °C) dakikalarda sferlitlerin geliřimi



Şekil 11. RPP/NA-11 UH/I-168 üçlü karışımı için 50 µm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 10. (130 °C), 15. (125 °C) dakikada sferülitlerin gelişimi



Şekil 12. RPP/HPN 68L/I-168 çl karışımı için 50 µm yakınlařtırma hızında 5. (135 °C), 10. (125 °C), 15. (125 °C) dakikada sferlitlerin geliřimi



Şekil 13. RPP/HPN 20E/I-168 üçlü karışım için 50 µm yakınlaştırma hızında 5. (135 °C), 15. (125 °C), 21. (119 °C) dakikalarda sferülitlerin gelişimi

3.5. Çekme ve Darbe Testleri ile Mekanik Özellik Analizleri

Tekli, ikili ve/veya üçlü karışımların RPP bazlı bileşiklerin mekanik özellikleri Tablo 6'da verilmiştir. Değişken oranlarda EPDM, çekirdekleştirici maddeler ve antioksidanın farklı yükleme seviyelerinde RPP bileşiklerinin mekanik özellikleri üzerindeki etkilerini değerlendirmek için çekme testleri yapılmıştır.

Sonuçlar, EPDM'nin %5 ve %10 eklenmesiyle çekme mukavemeti ve elastisite modülünün azaldığını göstermiştir. RPP'ye kıyasla yüzde uzama artar. RPP'nin çekme mukavemeti yaklaşık 25 MPa idi ve EPDM çekme mukavemetini 20 MPa'ya kadar düşürmüştür.

Elastisite modülü için benzer sonuçlar elde edilmiştir. RPP'nin elastisite modülü 1206 MPa civarındaydı ve EPDM elastisite modülünü 880 MPa'ya kadar düşürmüştür. Öte yandan, EPDM eklenmiş bileşiklerin ağırlıkça %10'luk yükleme seviyesi, RPP'ye kıyasla %143,8 gibi daha yüksek yüzde uzama değerine sahiptir. Bununla birlikte, elastik modülü, antioksidan içeren veya içermeyenlerde, çekirdekletirici ajanların eklenmesiyle arttırmıştır. Bu da %uzama değerlerini düşürme eğiliminde olduğu saptanmıştır. RPP'nin elastik modülü 1210 MPa, çekirdekli RPP'nin elastik modülü yaklaşık 1250 MPa olarak saptanmıştır.

EPDM, çekirdekletirici ajanlar ve antioksidan ikili karışımlarda etkilerini sürdürmüştür. Çekme mukavemetinin ve elastik modülünün arttığını ve bu nedenle, EPDM eklenen mono karışımların sonuçlarına kıyasla uzama yüzdesinin azaldığını göstermiştir.

Tablo 6. Hazırlanan geri dönüşüm esaslı RPP bazlı bileşiklerin ait mekanik özellikleri

<i>Numuneler</i>	<i>Çekme Mukavemeti (MPa)</i>	<i>Kopma Uzaması (%)</i>	<i>Elastisite Modülü (MPa)</i>	<i>Darbe Mukavemeti (kJ/m²)</i>
R1	25 ± 2	35,6 ± 2,3	1210 ± 35	4,0 ± 0,2
R2	23 ± 1	77,2 ± 1,8	960 ± 67	6,5 ± 0,2
R3	20 ± 2	143,8 ± 0,9	880 ± 78	8,9 ± 0,1
R4	25 ± 1	31,9 ± 0,5	1250 ± 23	4,2 ± 0,1
R5	25 ± 1	29,5 ± 1,2	1260 ± 56	4,3 ± 0,1
R6	25 ± 1	32,1 ± 1,7	1240 ± 40	4,1 ± 0,3
R7	25 ± 1	22,4 ± 2,1	1170 ± 37	4,2 ± 0,2
R8	27 ± 1	28,6 ± 3,1	1240 ± 97	3,6 ± 0,2
R9	27 ± 2	26,7 ± 3,2	1280 ± 88	3,8 ± 0,1
R10	26 ± 3	31,9 ± 2,4	1120 ± 56	3,5 ± 0,2
R11	24 ± 3	39,5 ± 2,9	1070 ± 103	6,1 ± 0,2
R12	24 ± 1	54,8 ± 1,8	1040 ± 96	5,8 ± 0,1
R13	22 ± 1	67,4 ± 1,5	1000 ± 109	5,4 ± 0,2
R14	22 ± 2	100,8 ± 0,8	930 ± 123	8,4 ± 0,1
R15	22 ± 3	110,2 ± 0,6	900 ± 76	8,2 ± 0,2
R16	21 ± 1	115,6 ± 0,5	880 ± 103	7,9 ± 0,2
R17	23 ± 1	98,6 ± 0,3	1110 ± 92	5,7 ± 0,2
R18	21 ± 1	165,8 ± 1,1	860 ± 34	8,1 ± 0,1
R19	24 ± 2	70,6 ± 1,4	1100 ± 45	8,5 ± 0,1
R20	23 ± 1	75,7 ± 2,1	1050 ± 22	8,2 ± 0,2
R21	23 ± 1	76,9 ± 2,7	1000 ± 35	7,9 ± 0,3
R22	21 ± 2	127,6 ± 2,8	980 ± 19	11,8 ± 0,3
R23	21 ± 2	132,5 ± 2,5	950 ± 28	11,5 ± 0,2
R24	20 ± 1	141,8 ± 3,4	910 ± 32	10,4 ± 0,1

Üçlü karışımlarda, özellikle elastik modülü ve yüzde uzamada farklılıklar gözlenmiştir. Esneklik modülü 980 MPa'ya yükseldi ve yüzde gerinim RPP/% 10 3092PM/NA-11UH/I-168 üçlü karışım için %127,6 olarak elde edilmiştir.

Izod darbe testi sonuçlarına göre; EPDM darbe dayanımını artırırken, çekirdekleştirici ajan ve antioksidan mono karışımlarda darbe dayanımında yeterince artış sağlayamamıştır. RPP'nin darbe dayanımı (E Izod) 4 kJ/m² ve bu değer EPDM yüklenerek 8,9 kJ/m²'ye çıkmıştır. Ancak yükleme çekirdekleştirici ajan, yaklaşık 4,2 kJ/m² olarak biraz değiştirmiştir. İkili karışımların sonuçlarına göre; çekirdekleştirici ajanlar ve antioksidan EPDM'nin darbe dayanımı üzerindeki olumlu etkisini azaltmıştır. EPDM darbe dayanımını 8,9 kJ/m²'ye kadar yükseltirken, çekirdekleştirici maddeler bu değeri yaklaşık 8,2 kJ/m²'ye kadar düşürmüştür. Üçlü karışımlarda, darbe dayanımı önemli ölçüde arttı ve sinerjik bir etki elde edildi. NA-11 UH, HPN 68L ve HPN 20E kullanılarak sırasıyla 11,8 kJ/m², 11,5 kJ/m² ve 10,4 kJ/m² olarak yüksek değerler elde edilmiştir.

4. Sonuçlar

Bu çalışmada elastomerik katkı maddesi, α -NA'lar ve antioksidanın geri dönüşümlü PP üzerindeki etkilerini birleştirme yöntemi ile gözlemlenmek için tekli, ikili ve üçlü karışımlar hazırlanmıştır. Ham maddeler önce önceden karıştırılmış ve daha sonra birlikte dönen ekstrüderde birleştirilmiştir. EPDM'yi dağıtmak için vida hızı 500 rpm olarak belirlenmiş ve RPP için uygun sıcaklık profili kullanılmıştır. Numunelerin hazırlanmasında ek etkileri önlemek için tüm işlem parametreleri sabit tutulmuştur.

Yoğunluk ölçümleri EPDM, çekirdekleştirici ajan ve antioksidan içeren karışımlar arasında herhangi bir fark olmadığını göstermiştir. RPP'nin yoğunluğu 0,92 g/cm³'tür ve EPDM/N.A/A.O içeren bileşikler yaklaşık 0,93-0,94 g/cm³ yoğunluğa sahiptir, bu nedenle sonuçlar yoğunluk değerleri açısından RPP bazlı bileşikler için önemli bir fark olmadığını göstermiştir. Buradaki en dikkat çekici sonuç, RPP'nin yoğunluk değeri, önceki üretiminden bazı inorganik katkı maddelerinin varlığından dolayı işlenmemiş PP'ninkinden daha yüksektir.

Reolojik özellikler, EPDM'nin matrise farklı yükleme seviyelerinde eklenmesinden etkilenmiştir. Sonuçlar, eriyik akış indeksi (MFI) değerlerinin, artan EPDM yükleme seviyesi ile önemli ölçüde azaldığını göstermiştir. RPP'nin MFI değeri 15 g/10 dk ağırlıkça %10 EPDM'lik en yüksek yükleme, MFI'yi 8,1 g/10 dk'ya kadar düşürmüştür. EPDM'nin matrise dahil edilmesi ile eriyik akış indeksi değerleri, RPP'nin zincir hareketlerinin azalmasına bağlı olarak azalmıştır. Bununla birlikte, çekirdekleştirici ajan veya antioksidan, MFI'de herhangi bir farklılığa neden olmamıştır.

Çekirdekleştirici ajanların kristalleşme davranışı üzerindeki etkileri XRD sonuçlarına göre araştırılmıştır. α çekirdekli RPP örnekleri $2\theta = 14,1^\circ, 16,9^\circ, 18,5^\circ, 21,2^\circ$ difraksiyon açılarında monoklinik α -formu gösterir ve bu kırınım açıları, HPN 68L veya HPN 20E içeren bileşiklerde görülmüştür. Ayrıca, α -NA'lar üçlü karışımlarda geri dönüştürülmüş PP'nin " θ " açılarına karşılık gelen yoğunluğu önemli ölçüde değiştirmiştir. Bu sonuç, üçlü bileşiklerin geri dönüştürülmüş PP üzerinde daha dayanıklı kristal yapılar sağladığını göstermiştir.

Numunelerin mekanik özellik analizi, özellikle üçlü karışımların, bu malzemelerin gerilme özellikleri üzerinde belirgin bir etkiye sahip olduğunu göstermiştir. Mekanik sonuçlar, EPDM'nin artan yükleme seviyesi ile çekme mukavemetinin ve elastik modülünün azaldığını göstermiştir. Geri dönüştürülmüş PP'nin çekme mukavemeti ve elastik modülü sırasıyla yaklaşık 25 MPa ve 1210 MPa olarak saptanmıştır. Çekme mukavemeti %10 EPDM eklenerek 20 MPa'ya düşürülmüştür. Ayrıca EPDM ilavesi ile yüzde uzama değerleri %143,8'e yükselmiştir. Öte yandan, çekirdekleştirici maddenin yüklenmesi EPDM'e göre olumsuz etkiye neden olmuştur. Shore-D sertlik ölçüm sonuçları, EPDM yüklemesinin sertliği azalttığını göstermiştir.

Bu noktada; Katkı maddeleri arasındaki sinerjik etkilerin etkisini vurgulamak için darbe, çekme testi ve sertlik sonuçları birlikte değerlendirilmelidir. EPDM kullanılarak elde edilen yüksek darbe dayanımı, karışımlarda sadece çekirdekleştirici ajan kullanıldığında görülememiştir. Çekirdekleştirici

maddeler kullanılarak yüksek çekme mukavemeti, elastik modül ve sertlik değerleri elde edilmiş, ancak aynı karışımlarda çok düşük darbe dayanımı değerleri görülmüştür. Aynı zamanda, çekirdekleştirici ajan veya antioksidan içeren ikili karışımlar yüksek çekme mukavemetine, elastik modülüne ve sertliğe sahiptirler, bu da yüzde uzama ve darbe mukavemeti değerlerini düşürme eğiliminde olmuştur. Ayrıca, sadece EPDM içeren ikili karışımlara kıyasla üçlü karışımlarda da darbe dayanımı artmıştır. Özellikle NA-11 UH'nin EPDM ile kullanılması en belirgin etkiyi sağlamıştır. Kısaca; Üçlü karışımların kullanılması, geri dönüştürülmüş polipropilen mühendislik plastiği olarak değerlendirildiğinde hem yüksek darbe dayanımı hem de yüksek çekme özellikleri sağlamıştır.

DSC diyagramları, geri dönüştürülmüş PP'nin %5 polietilen içerdiğini göstermiştir. Bu detay aslında mekanik özellikler ve EPDM kullanımı açısından çok önemli bir noktadır. Bileşiğin yapısında polietilen ve EPDM bulunmasının çekme ve darbe gibi daha yüksek mekanik özelliklere neden olduğu görülmüştür. Birleştirme işlemi sırasında, polietilen ve EPDM arasında etkileşim elde edilir. Dolayısıyla bu durum mekanik özellik sonuçlarını etkilemektedir.

DSC sonuçlarında, α -NA'ların etkisi kristalleşme davranışı açısından açıkça gözlemlenmiştir. Kristalizasyon sıcaklığı, 121,2 °C'den 131,8 °C'ye çekirdekleştirici madde eklenerek artırılmıştır. Bu etki, POM görüntülerinden de elde edilmiştir. Kristalizasyon geri dönüştürülmüş PP daha geç kristalleşmeye başlarken, α -NA'lar eklenen formülasyonlar daha erken kristalleşmeye başlamıştır. En fazla etki HPN 68L kullanılarak gözlenmiştir. Ayrıca α -NA'ların sferülit boyutu açısından etkisi POM görüntülerinde gözlenmiştir. Geri dönüştürülmüş PP'nin sferülit boyutu, α çekirdekli olanlardan daha büyüktür. Kristalizasyon oluşumu açısından en belirgin görüntü RPP/%10 3092PM/NA-11UH/I-168 üçlü karışımdaki POM görüntüsü ile elde edilmiştir

Kaynaklar

- [1] H. Chen, U. Sundararaj, K. Nandakumar, and M. D. Wetzel, "Investigation of the melting mechanism in a twin-screw extruder using a pulse method and online measurement," *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 43, no. 21, pp. 6822–6831, 2004, doi: 10.1021/ie049650s.
- [2] K. Hamad, M. Kaseem, and F. Deri, "Recycling of waste from polymer materials: An overview of the recent works," *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 98, no. 12, pp. 2801–2812, 2013, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2013.09.025.
- [3] B. K. Deka and T. K. Maji, "Effect of coupling agent and nanoclay on properties of HDPE, LDPE, PP, PVC blend and Phargamites karka nanocomposite," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 70, no. 12, pp. 1755–1761, 2010, doi: 10.1016/j.compscitech.2010.07.010.
- [4] S. Jose *et al.*, "Phase morphology, crystallisation behaviour and mechanical properties of isotactic polypropylene/high density polyethylene blends," *Eur. Polym. J.*, vol. 40, no. 9, pp. 2105–2115, 2004, doi: 10.1016/j.eurpolymj.2004.02.026.
- [5] J. H. Lin *et al.*, "Preparation and compatibility evaluation of polypropylene/high density polyethylene polyblends," *Materials (Basel)*, vol. 8, no. 12, pp. 8850–8859, 2015, doi: 10.3390/ma8125496.
- [6] A. H. I. Mourad, "Thermo-mechanical characteristics of thermally aged polyethylene/polypropylene blends," *Mater. Des.*, vol. 31, no. 2, pp. 918–929, 2010, doi: 10.1016/j.matdes.2009.07.031.
- [7] S. A. Ahmad Ramazani, M. Abdi Valami, and M. Khak, "Effect of poly (propylene-g-maleic anhydride) on the morphological, rheological, and mechanical properties of PP/HDPE blend," *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 22, no. 5, pp. 519–530, 2009, doi: 10.1177/0892705709100662.
- [8] J. G. Gwon, S. Y. Lee, S. J. Chun, G. H. Doh, and J. H. Kim, "Effect of chemical treatments of wood fibers on the physical strength of polypropylene based composites," *Korean J. Chem. Eng.*, vol. 27, no. 2, pp. 651–657, 2010, doi: 10.1007/s11814-010-0058-1.

- [9] J. M. Eagan *et al.*, “Combining polyethylene and polypropylene: Enhanced performance with PE/ i PP multiblock polymers,” vol. 816, no. February, pp. 814–816, 2017.
- [10] C. Spicker, N. Rudolph, I. Kühnert, and C. Aumnate, “The use of rheological behavior to monitor the processing and service life properties of recycled polypropylene,” *Food Packag. Shelf Life*, vol. 19, no. September 2018, pp. 174–183, 2019, doi: 10.1016/j.fpsl.2019.01.002.
- [11] T. G. Mofokeng, S. S. Ray, and V. Ojijo, “Influence of selectively localised nanoclay particles on non-isothermal crystallisation and degradation behaviour of PP/LDPE blend composites,” *Polymers (Basel)*., vol. 10, no. 3, 2018, doi: 10.3390/polym10030245.
- [12] N. D. Tien and R. E. Prud’homme, *Crystallization behavior of semicrystalline immiscible polymer blends*. Elsevier Inc., 2018.
- [13] C. Aumnate, N. Rudolph, and M. Sarmadi, “Recycling of polypropylene/polyethylene blends: Effect of chain structure on the crystallization behaviors,” *Polymers (Basel)*., vol. 11, no. 9, 2019, doi: 10.3390/polym11091456.
- [14] M. Akbari, A. Zadhoush, and M. Haghghat, “PET / PP Blending by Using PP- g -MA Synthesized by Solid Phase,” 2006, doi: 10.1002/app.
- [15] K. Jayanarayanan, S. Thomas, and K. Joseph, “Journal of Reinforced Plastics and Composites,” 2012, doi: 10.1177/0731684412440602.
- [16] M. A. Tavanaie, A. M. Shoushtari, and F. Goharpey, “Matrix-fibril Morphology Development of Polypropylene / Poly (butylenes terephthalate) Blend Fibers at Different Zones of Melt Spinning Process and Its Relation to Mechanical Properties,” vol. 14, no. 3, pp. 396–404, 2013, doi: 10.1007/s12221-013-0396-9.
- [17] A. Review, “Recycling of Polymer-Based Multilayer Packaging: A Review,” 2018, doi: 10.3390/recycling3010001.