

สมบัติเชิงกลของพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์และกลาสไฟเบอร์



นายศรายุทธ์ คูสกุล

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2551
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

**MECHANICAL PROPERTIES OF POLYPROPYLENE COMPOSITES REINFORCED BY
ORGANOCLAYS AND GLASS FIBERS**

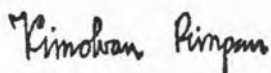
Mr. Sarayut Kusakul

**A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Petrochemistry and Polymer Science
Faculty of Science
Chulalongkorn University
Academic Year 2008
Copyright of Chulalongkorn University**

511433

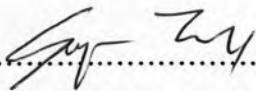
Thesis Title MECHANICAL PROPERTIES OF POLYPROPYLENE COMPOSITES
REINFORCED BY ORGANOCCLAY AND GLASS FIBERS
By Mr.Sarayut Kusakul
Field of study Petrochemistry and Polymer Science
Thesis Advisor Assistant Professor Voravee P. Hoven, Ph.D.
Thesis Co-advisor Associate Professor Pitt Supaphol, Ph.D.

Accepted by the Faculty of Science, Chulalongkorn University in Partial
Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

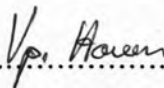


..... Deputy Dean for Administrative Affairs,
Acting Dean, The Faculty of Science
(Associate Professor Vimolvan Pimpan, Ph.D.)

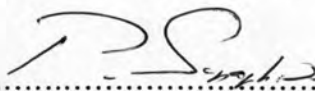
THESIS COMMITTEE



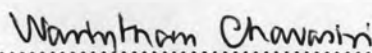
..... Chairman
(Associate Professor Supawan Tantayanon, Ph.D.)



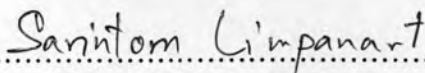
..... Thesis Advisor
(Assistant Professor Voravee P. Hoven, Ph.D.)



..... Thesis Co-advisor
(Associate Professor Pitt Supaphol, Ph.D.)



..... Member
(Assistant Professor Warinthorn Chavasiri, Ph.D.)



..... Member
(Sarintorn Limpanart, Ph.D.)

ศรายุทธ์ อุตกุล: สมบัติเชิงกลของพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์และ
 กลาสไฟเบอร์ (MECHANICAL PROPERTIES OF POLYPROPYLENE COMPOSITES
 REINFORCED BY ORGANOCCLAYS AND GLASS FIBERS)

อ. ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก: ผศ. ดร. วรวิทย์ โยเว่น, อ. ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ร่วม: รศ. ดร.
 พิชญ์ ศุภผล, 51 หน้า.

ในงานวิจัยนี้พอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์ถูกเตรียมขึ้นด้วยเครื่องผสมอครีคแบบเกลียวหนอนคู่ในการหลอมเหลวผสมพอลิโพรพิลีนกับออการ์โนเคลย์การใช้สารลดแรงตึงผิวมีผลทำให้ชั้นผลึกซิกลิคของออการ์โนเคลย์ในพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์ขยายตัวกว้างออกของชั้นผลึก จากนั้นจึงทำการผสมพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์กับพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยกลาสไฟเบอร์ในสัดส่วนต่างๆ กันด้วยเครื่องผสมอครีคแบบเกลียวหนอนคู่ จากนั้นจึงนำไปฉีดขึ้นรูปเป็นคัมเบล ชิ้นงานพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตผสมที่เตรียมได้ถูกวิเคราะห์เพื่อศึกษาถึงสัมพันธภาพ และสมบัติด้านต่างๆ เช่น สมบัติทางความร้อนและสมบัติเชิงกล ผลการวิเคราะห์ชิ้นงานด้วยการกระเจิงของรังสีเอ็กซ์ระบุว่า การจัดเรียงตัวของชั้นผลึกซิกลิคของออการ์โนเคลย์ในพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตมีความเป็นระเบียบสูงกว่าออการ์โนเคลย์ก่อนผสม และการผสมทำให้เกิดการแทรกสอดของพอลิโพรพิลีนในชั้นผลึกซิกลิคด้วย ซึ่งได้รับการยืนยันจากการวิเคราะห์ด้วยเครื่องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบทะลุผ่าน นอกจากนี้ การเติมออการ์โนเคลย์ลงไป ในพอลิโพรพิลีนช่วยทำให้สัดส่วนของโครงสร้างผลึกเบตา (β) เฟอร์เซ็นด์ผลึก และอุณหภูมิของการเกิดผลึก เพิ่มขึ้นสูงกว่าพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยกลาสไฟเบอร์ซึ่งยืนยันได้จากผลการทดลองทางความร้อนและการกระเจิงของรังสีเอ็กซ์ ในด้านสมบัติเชิงกล พอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์ให้ค่าความแข็งแรงต่ำกว่าพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยกลาสไฟเบอร์เป็นที่น่าสนใจเป็นอย่างยิ่งว่า พอลิโพรพิลีนคอมพอสิตผสมให้ค่าความแข็งแรงสูงกว่าพอลิโพรพิลีนคอมพอสิตที่เสริมแรงด้วยออการ์โนเคลย์และที่เสริมแรงด้วยกลาสไฟเบอร์

สาขาวิชา... ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์... ลายมือชื่อนิติศรายุทธ์ อุตกุล
 ปีการศึกษา... 2551... ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา...
 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา... T. S. ...

4773428823: MAJOR PETROCHEMISTRY AND POLYMER SCIENCE
KEY WORD: LAYERED SILICATES / ORGANOCLAY / POLYPROPYLENE
NANOCOMPOSITE

SARAYUT KUSAKUL: MECHANICAL PROPERTIES OF POLYPROPYLENE COMPOSITES REINFORCED BY ORGANOCLAYS AND GLASS FIBERS.
THESIS ADVISOR: ASST. PROF. VORAVEE HOVEN, Ph.D., THESIS CO-ADVISOR: ASSOC. PROF. PITT SUPAPHOL, Ph.D., 51 pp.

In this study, isotactic-polypropylene (iPP) composites reinforced with an organoclay were prepared by a twin-screw extruder by blending iPP with clay that modified with an amine surfactant. The use of surfactant caused the layered silicate of organoclay in iPP/organoclay nanocomposites to move further apart. After that iPP/organoclay nanocomposites were then blended with iPP that had been reinforced with glass fibers using the twin-screw extruder in various blend ratios. The iPP/glass fibers/organoclay nanocomposites were then characterized for their morphology and various properties, thermal and mechanical integrity. X-ray diffraction (XRD) analysis indicated that the silicate layers of the organoclay in the nanocomposites were more ordered than those of the original organoclay, which was confirmed by transmission electron microscopy (TEM). The iPP/organoclay nanocomposites showed greater content of β -crystalline phase, increased degree of crystallinity, and increased crystallization temperature than the iPP/glass fibers composites, which was confirmed by both XRD and differential scanning calorimetry (DSC) results. With regards to the mechanical properties, iPP/organoclay nanocomposites exhibited lower stiffness than iPP/glass fibers composites. Interestingly, the iPP/glass fibers/organoclay nanocomposites exhibited much improved stiffness than both of the iPP/organoclay nanocomposites and the iPP/glass fibers composites.

Field of study Petrochemistry and Polymer Science Student's signature: Sarayut Kusakul

Academic year 2008 Advisor's signature: V. Hoven

Co-advisor's signature: P. Supaphol

ACKNOWLEDGEMENTS

I would like to express gratitude and deep appreciation to my thesis advisor, Assistant Professor Voravee Hoven and Associate Professor Pitt Supaphol for their guidance, encouragement, kindness and helping me throughout my thesis and editing of this thesis.

I am sincerely greatly grateful to Professor Pattarapan Prasassarakich, Assistant Professor Warinthorn Chavasiri and Dr. Sarintorn Limpanart for their invaluable comment and suggestions as the committee members.

I would like to thank Dr. Sarintorn Limpanart for her help with preparation of organoclay, giving good advice and helping me with the background knowledge which involved with my thesis.

Moreover, I would like to thank Mr. Srichalai khunthon and all members of Metallurgy and materials science research institute for fruitful discussion, exchanging an opinion, giving some advice and supporting instrument.

Finally, I would like to thank my family and friends for their love and encouragement throughout my entire study.

CONTENTS

	Page
ABSTRACT IN THAI.....	iv
ABSTRACT IN ENGLISH.....	v
ACKNOWLEDGEMENTS.....	vi
LIST OF FIGURES	ix
LIST OF TABLES.....	xi
CHAPTER	
I INTRODUCTION.....	1
1.1 Statement of problems	1
1.2 Objectives.....	2
1.3 Scopes of the investigation	2
II THEORY AND LITERATURE REVIEW.....	4
2.1 Glass fiber.	4
2.2 Clay	5
2.2.1 Clay modification	6
2.3 Polymer/clay nanocomposites.....	7
2.3.1 Type of polymer/clay nanocomposites	7
2.3.2 Preparation methods.....	8
2.4 Extrusion process.....	8
2.5 Literature review.....	9
III EXPERIMENTAL.....	16
3.1 Materials.....	16
3.2 Preparation of organoclay.....	16
3.3 Preparation of iPP/organoclay nanocomposite by melt processing method.....	17
3.4 Preparation of iPP/glass fiber composite blended with	

iPP/organoclay nanocomposite	17
3.5 Characterization techniques.....	18
3.5.1 X-ray Diffraction (XRD).....	18
3.5.2 Scanning Electron Microscopy (SEM).....	18
3.5.3 Transmission Electron Microscopy (TEM).....	18
3.5.4 Differential Scanning Calorimetry (DSC).....	19
3.5.5 Tensile measurement.....	19
IV RESULTS AND DISCUSSION.....	20
4.1 Degree of organoclay dispersion in iPP composite.....	20
4.2 Thermal properties of iPP composite.....	26
4.3 Mechanical properties of iPP composite.....	30
V CONCLUSIONS.....	35
REFERENCES.....	37
APPENDICES.....	40
Appendix A.....	41
Appendix B.....	44
Appendix C.....	45
VITAE.....	51

LIST OF FIGURES

Figure	Page
2.1	Molecular structure of glass fiber..... 4
2.2	Silicon-oxygen tetrahedron, SiO ₄ 5
2.3	Aluminum octahedron, Al(OH) ₆ ³⁻ 5
2.4	Structural scheme of montmorillonite..... 6
2.5	Types of polymer/clay nanocomposites..... 7
2.6	Scheme for a typical single-screw extruder..... 9
2.7	WAXS patterns for neat PP, PP20%GF and PP30%GF..... 9
2.8	Tensile strength of fiber reinforced polypropylene composites..... 11
2.9	TEM micrographs of lower molecular weight and high content of compatibilizer..... 12
2.10	XRD patterns of composites prepared with different ratios of PP-g-MA..... 13
2.11	TEM micrographs of PP/Clay nanocomposites at different temperature profile and screw speed..... 14
2.12	Tensile modulus of PP/Clay nanocomposite with various clay loading..... 15
2.13	Flexural modulus of PP/Clay nanocomposite with various clay loading..... 15
3.1	Molecular structure of octadecyl trimethyl ammonium chloride..... 16
4.1	XRD patterns of clay and organoclay..... 20
4.2	XRD patterns of organoclay, neat iPP, iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite..... 22

	Page
4.3 XRD patterns of blended nanocomposite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	24
4.4 XRD patterns of blended nanocomposite at $2\theta = 3^{\circ}$ - 6°	24
4.5 SEM micrographs of blended nanocomposite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	25
4.6 TEM micrographs of blended nanocomposite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	25
4.7 DSC heating profiles of neat iPP and iPP composites at a heating rate of $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$	27
4.8 DSC cooling profiles of neat iPP and iPP composites at a cooling rate of $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$	28
4.9 DSC heating profiles of blended composite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite at a heating rate of $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$	29
4.10 DSC cooling profiles of blended composite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite at a cooling rate of $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$	29
4.11 Tensile modulus of neat iPP and iPP composites.....	31
4.12 Yield strength of neat iPP and iPP composites.....	32
4.13 Elongation at break of neat iPP and iPP composites.....	32
4.14 Tensile modulus of composite and blended composite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	33
4.15 Yield strength of composite and blended composite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	33
4.16 Elongation at break of composite and blended composite at various ratios of iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	34

LIST OF TABLES

Table		Page
2.1	Comparison of properties between natural fibers and glass fibers.....	10
3.1	Composition percentage of composites.....	18
4.1	Degree of crystallinity of iPP composites calculated from the area of diffraction peak of XRD.....	23
4.2	Melting(T_m) and crystallization temperature(T_c) of composites	26
4.3	Area under DSC heating curve and enthalpy of composites.....	30
A.1	Diffraction peak and d-spacing of pristine clay, organoclay, neat iPP, iPP/GF composite and iPP/organoclay nanocomposite.....	42
C.1	Mechanical properties of neat iPP.....	45
C.2	Mechanical properties of iPP/GF composites (10 wt% GF loading).....	46
C.3	Mechanical properties of iPP/organoclay nanocomposites (3 wt% organoclay loading).....	47
C.4	Mechanical properties of blended composites at iPP/GF: iPP/organoclay ratios of 90:10.....	48
C.5	Mechanical properties of blended composites at iPP/GF: iPP/organoclay ratios of 70:30.....	49
C.6	Mechanical properties of blended composites at iPP/GF: iPP/organoclay ratios of 50:50.....	50