

การอัดขึ้นรูปโพลีโพรพิลีนเสริมแรงด้วยใยแก้ว



นางสาวสุนัตรา ฐานไชยยั้ง

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชาปิโตรเคมี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2537

ISBN 974-584-267-2

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

11425934X

COMPRESSION MOLDING OF GLASS FIBER REINFORCED POLYPROPYLENE

MISS SUPHATTRAR THANCHAIYING

A THESIS SUBMITTED IN PARTIAL FULFILLMENT OF THE REQUIREMENTS

FOR THE DEGREE OF MASTER OF SCIENCE

PROGRAM OF PETROCHEMISTRY

GRADUATE SCHOOL

CHULALONGKORN UNIVERSITY

1994

ISBN 974-584-267-2

COPYRIGHT OF THE GRADUATE SCHOOL, CHULALONGKORN UNIVERSITY

Thesis Title Compression Molding of Glass Fiber Reinforced
 Polypropylene
By Miss Suphatrar Thanchaiying
Department Petrochemistry
Thesis Advisor Phongsak Wiwattanadate, Ph.D.
Thesis Co-advisor Assistant Professor Dawan Wiwattanadate, Ph.D.



Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University in
Partial Fulfillment of the Requirements for Masters' Degree.

Thavorn Vajjarabhaya
.....Dean of Graduate School
(Professor Thavorn Vajjarabhaya, Ph.D.)

Thesis committee

Pattarapan Prasassarakich
.....Chairman
(Associate Professor Pattarapan Prasassarakich, Ph.D.)

Phongsak Wiwattanadate
.....Thesis Advisor
(Phongsak Wiwattanadate, Ph.D.)

Dawan Wiwattanadate
.....Thesis Co-advisor
(Assistant Professor Dawan Wiwattanadate, Ph.D.)

Khemchai Hemachandra
.....Member
(Assistant Professor Khemchai Hemachandra, Ph.D.)

Nuanphun Chantarasiri
.....Member
(Nuanphun Chantarasiri, Ph.D.)



สุพิตรา ฐานไชยยิ่ง : การอัดขึ้นรูปโพลีโพรพิลีนเสริมแรงด้วยใยแก้ว (COMPRESSION MOLDING OF GLASS FIBER REINFORCED POLYPROPYLENE) อ. ที่ปรึกษา อ.ดร. พงศ์ศักดิ์ วิศวกรรมะเดช อ. ที่ปรึกษาร่วม ผศ. ดร. ดาวัลย์ วิศวกรรมะเดช, 120 หน้า. ISBN 974-584-267-2

ในงานวิจัยนี้ ได้ศึกษาสภาวะที่เหมาะสมสำหรับการอัดขึ้นรูปโพลีโพรพิลีนเสริมแรงด้วยใยแก้ว พบว่าสภาวะที่เหมาะสมคือ เสริมแรงด้วยใยแก้วประมาณ 30-40 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก หลอมที่อุณหภูมิ 200 องศาเซลเซียส แล้วหล่อเย็นทันทีภายใต้ความดัน 200 ปอนด์ต่อตารางนิ้ว เนื่องจากวัสดุเสริมแรงที่ตึ้นนั้นนอกจากจะต้องขึ้นรูปที่สภาวะเหมาะสมแล้วยังต้องเลือกใช้สารปรับสภาพผิวที่เหมาะสมด้วยในงานวิจัยนี้จึงทำการศึกษาเปรียบเทียบประสิทธิภาพการเพิ่มความเข้ากันได้ระหว่างใยแก้วกับโพลีโพรพิลีนโดยใช้สารปรับสภาพผิว 5 ชนิด คือ โพลีไวนิลแอลกอฮอล์, คาร์บอกซีเมทิลเซลลูโลส, อีโพลีน-43พี, เอ-174 ไซเลน และ ฟอกเกอร์ ตามลำดับ

จากผลการวิจัย พบว่าหากทำการเคลือบผิวใยแก้วซึ่งปราศจากสารเคลือบผิวใดๆ ด้วย สารปรับสภาพผิวดังกล่าว สมบัติเชิงกลของสารเสริมแรงจะเพิ่มขึ้นอย่างเด่นชัด โดยเฉพาะเมื่อเคลือบด้วย เอ-174 ไซเลน หรือ โพลีไวนิลแอลกอฮอล์ ส่วนกรณีเคลือบสารดังกล่าวบนใยแก้ว เอจีไอ ซึ่งมีสารเคลือบผิวทั้งชนิดที่เหมาะสมกับเทอร์โมพลาสติกและชนิดที่เหมาะสมกับเทอร์โมเซตติงพลาสติก จะพบว่า สารเคลือบผิวดังกล่าวไม่แสดงประสิทธิภาพการเพิ่มความเข้ากันได้ระหว่างใยแก้วกับโพลีโพรพิลีน ในทางตรงกันข้าม หากเคลือบสารดังกล่าวบนใยแก้ว เอ็นอีจี ซึ่งมีสารเคลือบผิวที่เหมาะสมเฉพาะกับเทอร์โมเซตติงพลาสติกจะพบว่า สารเคลือบผิวแต่ละชนิดแสดงประสิทธิภาพการเพิ่มความเข้ากันได้ระหว่างใยแก้วกับโพลีโพรพิลีนอย่างเด่นชัด โดยเฉพาะ อีโพลีน-43พี มีแนวโน้มประสิทธิภาพสูงสุด นอกจากนี้ได้มีการตรวจสอบการเพิ่มความเข้ากันได้ระหว่างใยแก้วกับโพลีโพรพิลีนแต่ปรากฏว่าไม่สังเกตการเปลี่ยนแปลงอย่างเด่นชัด สำหรับการวิเคราะห์ข้อมูลในงานวิจัยนี้ได้มีการนำวิธีการคำนวณทางสถิติมาใช้เพื่อให้ได้ข้อมูลที่น่าเชื่อถือมากขึ้น

ภาควิชา.....สหสาขาวิชาปิโตรเคมี-โพลีเมอร์.....
สาขาวิชา.....ปิโตรเคมี.....
ปีการศึกษา.....2536.....

ลายมือชื่อนิสิต.....สุพิตรา ฐานไชยยิ่ง.....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....[Signature].....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....[Signature].....

##C385157: MAJOR PETROCHEMISTRY

KEY WORD: FIBER GLASS/REINFORCEMENT/POLYPROPYLENE/FIBER SURFACE TREATMENT

SUPHATTRAR THANCHAIYING: COMPRESSION MOLDING OF GLASS FIBER REINFORCED POLYPROPYLENE. THESIS ADVISOR :

PHONGSAK WIWATTANADATE, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR : ASSO.

PROF. DAWAN WIWATTANADATE, Ph.D. 120 pp. ISBN 974-584-267-2

Optimum condition for compression molding of glass fiber reinforced polypropylene was investigated in the present study. It was observed that the optimum condition should be 30-40 weight percent of glass content, melted at 200°C without any applied pressure and immediately cooled under 200 psi pressure. However, in order to achieve a good composite, not only an optimum condition but also appropriate surface treating agents or surface coupling agents should be used. Polyvinylalcohol, carboxymethyl cellulose, Epolene-43-P, A-174 silane and Fogger were used as surface treating agents in the present study. Compatibility enhancement of each surface treating agent between glass fiber surface and polypropylene matrix was comparatively investigated. The results show that in case of surface treating agent coated on heat-cleaned glass fiber, all of the five surface treating agents exhibit compatibility enhancement, but A-174 silane and PVA seem to be the most appropriate. In case of surface treating agent coated together with coupling agents available on commercial general purpose AGI glass fiber, no compatibility enhancement was observed for each surface treating agent. Inversely, compatibility enhancement was observed when the surface treating agent was coated together with coupling agents available on commercial NEG glass fiber which was special for thermoset, not for polypropylene thermoplastic. Compatibility enhancement by the surface treating agent was also confirmed by microstructural analysis with optical microscope; however, no significant difference could be observed. In order to achieve more reliable data, the polynomial regression equation method was also used to calculate the flexural strength and modulus of the composites.

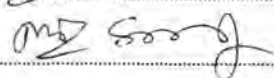
ภาควิชา สหสาขาวิชาปิโตรเคมี-โพลีเมอร์

สาขาวิชา ปิโตรเคมี

ปีการศึกษา 2536

ลายมือชื่อนิสิต 

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา 

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม 



ACKNOWLEDGMENTS

The author wishes to express her sincere gratitude and appreciation to her advisor, Dr. Phongsak Wiwattanadate and to her co-advisor, Assist. Prof. Dr. Dawan Wiwattanadate, for their valuable guidance, kindness, and encouragement throughout the course of this thesis.

The author also wishes to thank Assoc. Prof. Dr. Pattarapan Prasassarakich, Assist. Prof. Dr. Khemchai Hemachandra and Dr. Nuanphun Chantarasiri, respectively for their kind serving on committee as chairperson and members of this thesis committee.

Petroleum and Petrochemical College, Metallurgy and Materials Science Research Institute, and Department of Materials Science, Faculty of Science, Chulalongkorn University are also gratefully acknowledged for supporting chemicals, equipments and instruments.

Thanks are also extended to HMC Polymer Co., Ltd, AGI Co., Ltd., Unitech Co., Ltd., ASC Senal Co., Ltd., Union Carbide Co., Ltd. and White Group Co., Ltd. for providing the materials.

Special thanks are also expressed to Mr. Arthorn Wichitamornloet and Mr. Kongsak Dokbua for their kind assistance in part of experimental works, especially fabrication of the cutting machine. Mr. Sompong Chutikulswat and everyone in the department, the institute and the college are also thanked for their kind assistance and encouragement throughout the course of study.

Finally, the author would like to express her sincere thanks to her parents for their patience, support and encouragement over the years of her study.



CONTENTS

	PAGE
ABSTRACT (IN THAI).....	iv
ABSTRACT (IN ENGLISH).....	v
ACKNOWLEDGEMENTS.....	vi
CONTENTS.....	vii
LIST OF TABLES.....	
LIST OF FIGURES.....	
CHAPTER I. INTRODUCTION.....	
1.1 Background.....	1
1.2 Purpose of the Investigation.....	2
1.3 Objectives of the Study.....	2
1.4 Scope of the Investigation.....	3
CHAPTER II. THEORY AND LITERATURE REVIEW.....	
2.1 Theory.....	5
2.1.1 Particulate Composites.....	8
2.1.2 Fibrous Composites.....	9
2.1.3 Thermoplastic Matrix Composites.....	16
2.1.4 Polymer Matrix.....	19
2.1.5 Fiber Reinforcement.....	22
2.1.6 Glass Fiber.....	23
2.1.7 Types of Glass Fiber Reinforcements.....	25
2.1.8 Arrangement and Amount of Reinforcements.....	27
2.1.9 Production of Glass Fiber Reinforced Polypropylene.....	31

CONTENTS (continued)

	PAGE
2.1.10 Void Formation in Melt Flow Thermoplastic Composites.....	35
2.1.11 Mechanical Properties.....	39
2.2 Surface Treatment on Polymer-Filler Interactions....	50
2.3 Applications and Recycling.....	52
2.4 Review of the Literatures.....	53
CHAPTER III. EXPERIMENTAL.....	
3.1 Chemicals and Materials.....	62
3.2 Machines and Equipments.....	65
3.3 Determination of the Optimum Condition for Glass Fiber Reinforced Polypropylene Preparations.....	66
3.3.1 Determination of the Optimum Pressure at Melting Period.....	67
3.3.2 Determination of the Optimum Pressure at the Cooling Stage.....	68
3.3.3 Determination of the Optimum Holding Time....	68
3.3.4 Determination of the Optimum Melting Temperature.....	69
3.3.5 Determination of the Optimum Fiber Content...	69
3.4 Investigation of the Effect of the Surface Treating Agent on Flexural properties.....	70
3.4.1 Effect of the Surface Treating Agent together with the Coupling Agents on Commercial Glass Fiber.....	70

CONTENTS (continued)

	PAGE
3.4.1.1 Water Soluble Surface Treating Agents.....	70
3.4.1.2 Toluene Soluble Surface Treating Agent.....	71
3.4.2 Effect of the Surface Treating Agents Coated on Coupling Agent-Free Glass Fiber.....	72
3.5 Estimated Polynomial Regression Equation.....	72
3.6 Flexural Testing Procedure.....	73
3.7 Fiber and Void Content Determination.....	74
3.7.1 Determination of the Glass Fiber Content.....	74
3.7.2 Determination of the Void Content.....	75
3.8 Investigation of the Effect of the Holding Time on Molecular Degradation by Using of the Melt Flow Rate.....	76
3.8.1 Preparation of the Sample.....	76
3.8.2 Determination of the Melt Flow Rate by Melt Indexer.....	76
3.9 Study of Microstructure of the Composites.....	78
3.9.1 Preparation of Specimens.....	78
CHAPTER IV. RESULTS AND DISCUSSIONS.....	
4.1 Determination of the Optimum Condition for Glass Fiber Reinforced Polypropylene.....	80
4.1.1 Determination of Optimum Pressure at Melting Perior.....	80

CONTENTS (continued)

	PAGE
4.1.2 Determination of Optimum Pressure at Cooling Stage.....	82
4.1.3 Determination of Optimum Holding Time.....	83
4.1.4 Determination of Optimum Melting Temperature.....	88
4.1.5 Determination of Optimum Glass Fiber Content.....	90
4.2 Investigation of Effect of the Surface Treating Agent on Flexural Properties of the GRP.....	92
4.2.1 Effect of the Surface Treating Agent Coated on Coupling Agent Free Glass Fiber.....	92
4.2.2 Effect of the Surface Treating Agent coated together with the Coupling Agent available on Commercial General Purpose Glass Fiber.....	98
4.2.3 Effect of Surface Treating Agent coated together with the Coupling Agent available on Commercial Glass Fiber Speacial for Thermosets.....	100
4.3 Polynomial Regression Equation for Estimation of Flexural Properties.....	105
CHAPTER V. CONCLUSION AND SUGGESTIONS.....	108
REFERENCES.....	111
APPENDIX.....	117
VITA.....	120

LIST OF TABLES

TABLE	PAGE
2.1 Properties of Fibers and Conventional Bulk Materials.....	11
2.2 Classification of Adhesives According to Chemical Type.....	49
3.1 Materials and Source used in the PP Glass Composites.....	63
3.2 Some Physical Properties of the Polypropylene.....	64
3.3 The Details of Compression Molding Machine.....	65
3.4 Standard Test Conditions Sample Weight and Testing Time....	78
4.1 Effect of Pressure at Melting Perior on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	80
4.2 Effect of Pressure at Cooling Stage on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	83
4.3 Effect of Holding Time on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	85
4.4 Effect of the Holding Time on Melt Flow Rate.....	87
4.5 Effect of Melting Temperature on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	88
4.6 Effect of Glass Fiber Content on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	90
4.7 Effect of the Surface Treating Agents Coated on Coupling Agents Free Glass Fiber on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	94
4.8 Effect of the Surface Treating Agents together with the Coupling Agents on Commercial Glass Fiber (AGI) on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	98

LIST OF TABLES (continued)

TABLE	PAGE
4.9 Effect of the Surface Treating Agents together with the Coupling Agents on Commercial Glass Fiber (NEG) on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	100
4.10 Effect of E43P (Surface Treating Agents) together with the Coupling Agents on Commercial Glass Fiber (NEG) on Flexural Strength and Flexural Modulus.....	103
4.11 Estimation of Flexural Strength and Modulus by Using Polynomial Regression Equation.....	107

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
2.1	Reinforcing geometries of composites classified by shape of reinforcing elements.....	6
2.2	Classification of composite materials.....	7
2.3	Dependence of strength on fiber content.....	28
2.4	Three strength patterns available in glass fiber reinforced plastics.....	29
2.5	Dependence of strength characteristics on glass content and glass arrangement.....	30
2.6	Melt glass fiber reinforced polypropylene.....	31
2.7	Wet/paper glass fiber reinforced PP process.....	32
2.8	Melt impregnation process.....	33
2.9	Powder impregnation process.....	34
2.10	Relationship between the shear strength of a polymer and the critical aspect ratio for glass fiber reinforced composites.....	43
2.11	Relationship between the reinforcement efficiency η and the critical aspect ratio for short fiber reinforced composites.....	44
2.12	Effect of glass polymer interface on advancing crack. (A) Adhesive strength of bond equals cohesive strength of matrix. (B) Adhesive strength of bond is much less than cohesive strength of matrix.....	47

LIST OF FIGURES (continued)

FIGURE	PAGE
2.13 Inter-diffusion model for adhesion of a thermoplastic to silane-primed glass: open circles indicate regions of coupling agent, closed circles indicate regions of polymer.....	51
4.1a Effect of pressure at melting period on flexural strength.....	81
4.1b Effect of pressure at melting period on flexural modulus...	81
4.2a Effect of pressure at cooling stage on flexural strength...	84
4.2b Effect of pressure at cooling stage on flexural modulus....	84
4.3a Effect of holding time on flexural strength.....	86
4.3b Effect of holding time on flexural modulus.....	86
4.4 Effect of the holding time on melt flow rate.....	87
4.5a Effect of melting temperature on flexural strength.....	89
4.5b Effect of melting temperature on flexural modulus.....	89
4.6a Effect of glass fiber content on flexural strength.....	91
4.6b Effect of glass fiber content on flexural modulus.....	91
4.7a Effect of the surface treating agent coated on coupling agent free glass fiber on flexural strength.....	95
4.7b Effect of the surface treating agent coated on coupling agent free glass fiber on flexural modulus.....	95
4.8a Effect of surface treating agent coated together with the coupling agent available on commercial general purpose glass fiber (AGI) on flexural strength.....	99

LIST OF FIGURES (continued)

FIGURE	PAGE
4.8b Effect of surface treating agent coated together with the coupling agent available on commercial general purpose glass fiber (AGI) on flexural modulus.....	99
4.9a Effect of the surface treating agent coated together with the coupling agent available on commercial glass fiber special for thermoset (NEG) on flexural strength.....	101
4.9b Effect of the surface treating agent coated together with the coupling agent available on commercial glass fiber special for thermoset (NEG) on flexural modulus.....	101
4.10a Microstructure of commercial general purpose glass fiber (AGI) reinforced polypropylene.....	102
4.10b Microstructure of commercial glass fiber special for thermoset (NEG) reinforced polypropylene.....	102
4.11a Effect of E43P (surface treating agent) coated together with the coupling agent available on commercial glass fiber (NEG) on flexural strength.....	104
4.11b Effect of E43P (surface treating agent) coated together with the coupling agent available on commercial glass fiber (NEG) on flexural modulus.....	104