

**INFLUENCE OF CARBON BLACK AGGREGATE STRUCTURE
ON AGGLOMERATE DISPERSION BEHAVIOR**

Mr. Anucha Leelertsakulwong

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of The Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
In Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma
and Case Western Reserve University

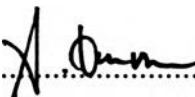
1997

ISBN 974-636-173-2

117697745

Thesis Title : Influence of Carbon Black Aggregate Structure
on Agglomerate Dispersion Behavior
By : Mr. Anucha Leelertsakulwong
Program : Polymer Science
Thesis Advisors : Prof. Ica Manas-Zloczower
Dr. Suwabun Chirachanchai

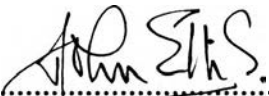
Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfillment of the requirement for the Degree of Master of Science.


..... Director of the College
(Prof. Somchai Osuwan)

Thesis Committee


.....
(Prof. Ica Manas-Zloczower)


.....
(Dr. Suwabun Chirachanchai)


.....
(Mr. John W. Ellis)

ABSTRACT

952001 : POLYMER SCIENCE PROGRAM

KEY WORD : CARBON BLACK AGGREGATE / AGGLOMERATE / DISPERSION BEHAVIOR. ANUCHA LEELERTSAKULWONG: INFLUENCE OF CARBON BLACK AGGREGATE STRUCTURE ON AGGLOMERATE DISPERSION BEHAVIOR. THESIS ADVISORS: PROF. ICA MANAS ZLOCZOWER AND DR. SUWABUN CHIRACHANCHAI 56 pp. ISBN 974-636-173-2

Carbon black is one of the most commonly used fillers in the rubber and plastics industries. In order to utilize carbon black in industrial applications and achieve the maximum mechanical, optical and electrical properties, it is necessary to understand the properties of carbon black, especially its dispersion behavior. Most research work is therefore focused mainly on the carbon black dispersion behavior in the rubber. The present work is initiated in order to understand how the agglomerate carbon black is influenced by its aggregate structure in the case of polypropylene.

The dispersion of high structure and low structure aggregate and the blending was studied by varying the shear time. As the shear time proceeds, the torque curves show two peaks corresponding to the phase transitions of polypropylene and the mixing system of carbon black with polypropylene. Dispersion rate constants calculated from the torque curves exhibit that the high structure is more difficult to disperse than the low structure carbon black aggregate. Agglomerate size and size distribution reveals that the high structure aggregate is less influenced by the shear time than for the case of low structure aggregate. Dynamic shear modulus shows that polypropylene with the low structure carbon black aggregate has superior mechanical properties compared with PP/high structure aggregate blends. It is also found that there

is an optimum blending system of high and low structure carbon black which can improve the mechanical properties of polypropylene.

บทคัดย่อ

อนุชา ลีเลิศสกุลวงษ์ : อิทธิพลของโครงสร้างข่อยคาร์บอนแบล็คที่มีผลต่อพฤติกรรมการกระจายตัวของกลุ่มรวม (Influence of Carbon Black Aggregate Structure on Agglomerate Dispersion Behavior) อ. ที่ปรึกษา : ศ.ดร. อิกา มานัส-ซลือก โชเวอร์ (Prof. Dr. Ica Manas-Zloczower) และ ดร. สุวบุญ จิรชาญชัย 56 หน้า ISBN 974-636-173-2

คาร์บอนแบล็คเป็นสารเติมแต่งชนิดหนึ่งที่ใช้กันมากในอุตสาหกรรมยาง และอุตสาหกรรมพลาสติก ในการที่จะนำคาร์บอนแบล็คไปประยุกต์ใช้ในอุตสาหกรรมการผลิต เพื่อให้พัฒนาเกิดประโยชน์สูงสุดทางด้านสมบัติเชิงกล สมบัติด้านความทึบแสง และสมบัติด้านไฟฟ้านั้น จำเป็นจะต้องเข้าใจถึงสมบัติต่างๆของคาร์บอนแบล็คโดยเฉพาะอย่างยิ่งพฤติกรรมการกระจายตัวของคาร์บอนแบล็ค งานวิจัยต่างๆที่ผ่านมาส่วนใหญ่ให้ความสำคัญถึงพฤติกรรมการกระจายตัวในยาง งานวิจัยนี้เป็นการเริ่มต้นเพื่อที่จะให้เกิดความเข้าใจเกี่ยวกับอิทธิพลของโครงสร้างข่อยที่เกาะกลุ่มของคาร์บอนแบล็ค(อะกรีเกต) มีผลกระทบต่อพฤติกรรมการกระจายตัวในโพลีโพรพิลีน

การกระจายตัวของโครงสร้างข่อยคาร์บอนแบล็คแบบเกาะกลุ่มมาก และโครงสร้างข่อยคาร์บอนแบล็คที่เกาะกลุ่มน้อย และประเภทประสมของโครงสร้างข่อยคาร์บอนแบล็คแบบเกาะกลุ่มมากและแบบเกาะกลุ่มน้อยได้ถูกนำมาศึกษาภายใต้เวลาการเฉือนต่างๆ ในขณะที่เวลาของการเฉือนดำเนินไปอย่างต่อเนื่อง กราฟความสัมพันธ์ระหว่างเวลาของการเฉือนและโมเมนต์บิด (ทอร์ค) แสดงค่าโมเมนต์บิดที่ตำแหน่งสูงสุดสองตำแหน่ง ตำแหน่งหนึ่งเป็นการเปลี่ยนสถานะโพลีโพรพิลีน และอีกตำแหน่งหนึ่งเป็นการผสมกันระหว่างคาร์บอนแบล็คกับโพลีโพรพิลีน ค่าคงที่ของอัตราการกระจายตัวซึ่งคำนวณได้จากกราฟความสัมพันธ์ระหว่างเวลาของการเฉือนและโมเมนต์บิด แสดงให้เห็นว่าโครงสร้างข่อยคาร์บอนแบล็คแบบเกาะกลุ่มมากกระจายตัวได้ไม่ดีเมื่อเทียบกับแบบเกาะกลุ่มน้อย ขนาดของกลุ่มรวมคาร์บอนแบล็ค(อะโกรีเมอเรต) และแนวโน้มการกระจายตัวของขนาด แสดงให้เห็นว่าโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มมากได้รับอิทธิพลน้อยจากเวลาการเฉือน เมื่อเทียบกับโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มน้อย ค่าพิกัดแรงเฉือนทางจลน์แสดงให้เห็นว่าโพลีโพรพิลีนกับคาร์บอนแบล็คที่มีโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มน้อยมีสายโซ่ที่แข็งแรงมากกว่ากรณีของแบบที่มีโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มมาก การทดลองยังพบว่าอัตราส่วนที่เหมาะสมระหว่างโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มมากกับโครงสร้างข่อยแบบเกาะกลุ่มน้อยจะสามารถพัฒนาสมบัติด้านเชิงกลของโพลีโพรพิลีนได้

ACKNOWLEDGMENTS

I would like to give special thanks to my advisor Prof. Ica Manas-Zloczower of Case Western Reserve University and Dr. Suwabun Chirachanchai of The Petroleum and Petrochemical College, for their guidances throughout this work. I wish to express my special gratitude to The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, for the financial support in USA., that gave me the opportunity to visit Case Western Reserve University. Very special thanks are given to JJ-Degussa (Thailand) Co., Ltd. for providing the carbon black raw materials and for their technical support.

Grateful appreciation is extended to Dr. Ratthanawan Kaewpanya for her advice regarding processing techniques and special appreciation is extended to Mr. John W. Ellis for his help and useful suggestions on testing procedures. A special thank is extended to my family for giving love, encouragement and financial support.

Last but not least, I wish to express my special appreciation to the staff of the Petroleum and Petrochemical College and also to my friends in the Polymer Science program.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER	PAGE
Title Page	i
Abstract	iii
Acknowledgments	vi
Table of Contents	vii
List of Tables	ix
List of Figures	x
I INTRODUCTION	
II A REVIEW BACKGROUND OF CARBON BLACK	
2.1 Structure of Carbon Black	5
2.1.1 Microstructure	5
2.1.2 Particle Size	5
2.1.3 Surface Area and Porosity	7
2.2 Carbon Black Aggregate and Aggregate Behavior	8
2.2.1 Aggregate Morphology	8
2.2.2 Interaggregate Interaction	9
2.2.3 Incorporation and Dispersion	10
2.3 Carbon Black Dispersion	11
2.3.1 Carbon Black in Plastics	11
2.3.2 Mixing Process and Dispersion State	12
2.3.3 The Effect of Carbon Black Dispersion	13

CHAPTER	PAGE
III	EXPERIMENTAL SECTION
3.1	Material 16
3.2	Experimental Procedures 18
3.2.1	Agglomerate Preparation 18
3.2.2	Agglomerate Density Measurement 18
3.2.3	Dispersive Mixing Process 19
3.2.4	Agglomerate Size Analysis 20
3.2.5	Dynamic Mechanical Analysis 20
IV	RESULTS AND DISCUSSION
4.1	Agglomerate Density 22
4.2	Dispersive Mixing Process 22
4.3	Dispersion Rate Constant 27
4.4	Size Agglomerate and Size Distribution 30
4.5	Agglomerate Size Analysis 37
4.6	Dynamic Mechanical Analysis 47
V	CONCLUSIONS 52
	REFERENCES 53
	CURRICULUM VITAE 56

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE
3.1	Physical properties of polypropylene	16
3.2	Morphological characteristics of carbon black aggregates	17
3.3	Blending of carbon black formulation	18
4.1	Agglomerate density of carbon black and blending of carbon black	22

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
2.1	Structure of carbon black: (a) High structure carbon black (b) Low structure carbon black	6
4.1	Mixing curve of low structure carbon black (0%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	24
4.2	Mixing curve of high structure carbon black (100%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	24
4.3	Mixing curve of 20% high structure carbon black (20%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	25
4.4	Mixing curve of 40% high structure carbon black (40%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	25
4.5	Mixing curve of 60% high structure carbon black (60%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	26
4.6	Mixing curve of 80% high structure carbon black (80%H) in polypropylene for 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, and 30% carbon black loading	26
4.7	Mixing curve of high structure carbon black (100%H) in polypropylene for 30% carbon black loading	27

FIGURE		PAGE
4.8	Dispersion rate constants of low structure carbon black (0%H), high structure carbon black (100%H), and their blends (20%H, 40%H, 60%H, and 80%H) as a function of % carbon black loading	29
4.9	Scanning electron micrographs of 60% high structure carbon black (60%H) in polypropylene at 10% carbon black loading. A :at 1 minute mixing time, B :at 3 minutes mixing time, C :at 5 minutes mixing time, and D :at 7 minutes mixing time	31
4.10	Scanning electron micrographs of 60% high structure carbon black (60%H) in polypropylene at 20% carbon black loading. A :at 1 minute mixing time, B :at 3 minutes mixing time, C :at 5 minutes mixing time, and D :at 7 minutes mixing time	33
4.11	Scanning electron micrographs of 60% high structure carbon black (60%H) in polypropylene at 30% carbon black loading. A :at 1 minute mixing time, B :at 3 minutes mixing time, C :at 5 minutes mixing time, and D :at 7 minutes mixing time	35
4.12	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from low structure carbon black (0%H) at 10% carbon black loading	38
4.13	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from high structure carbon black (100%H) at 10% carbon black loading	38

FIGURE		PAGE
4.14	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 20% high structure carbon black (20%H) at 10% carbon black loading	39
4.15	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 40% high structure carbon black (40%H) at 10% carbon black loading	39
4.16	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 60% high structure carbon black (60%H) at 10% carbon black loading	40
4.17	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 80% high structure carbon black (80%H) at 10% carbon black loading	40
4.18	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from low structure carbon black (0%H) at 20% carbon black loading	41
4.19	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from high structure carbon black (100%H) at 20% carbon black loading	41
4.20	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 20% high structure carbon black (20%H) at 20% carbon black loading.	42
4.21	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 40% high structure carbon black (40%H) at 20% carbon black loading	42

FIGURE		PAGE
4.22	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 60% high structure carbon black (60%H) at 20% carbon black loading	43
4.23	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 80% high structure carbon black (80%H) at 20% carbon black loading	43
4.24	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from low structure carbon black (0%H) at 30% carbon black loading	44
4.25	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from high structure carbon black (100%H) at 30% carbon black loading	44
4.26	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 20% high structure carbon black (20%H) at 30% carbon black loading	45
4.27	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 40% high structure carbon black (40%H) at 30% carbon black loading	45
4.28	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 60% high structure carbon black (60%H) at 30% carbon black loading	46
4.29	Volume fraction distribution of eroded fragments obtained from 80% high structure carbon black (80%H) at 30% carbon black loading	46

FIGURE		PAGE
4.30	Dynamic shear modulus versus % strain amplitude at 30% carbon black loading for low structure carbon black (0%H) and high structure carbon black (100%H)	50
4.31	at 30% carbon black loading for low structure carbon at 30% carbon black loading at 7 minutes of shear time	51