สมบัติเชิงกลของวัสดุประกอบโพลิโพรพิลีนผสมด้วยผงไม้

นายสมชาย ลำฐูพินิจพงศ์

หอสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชาเทคโนโลยีปิโตรเคมี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2537

ISBN 974-584-048-3

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

Mechanical Properties of Wood Flour-Filled Polypropylene Composites

Mr. Somchai Lumpoopinitpong

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering

Program of Petrochemical Technology

Graduate School

Chulalongkorn University

1994

ISBN 974-584-048-3

Copyright of Graduate School, Chulalongkorn University

[illegible]

Thesis Title Mechanical Properties of Wood Flour-Filled Polypropylene Composites

By Mr. Somchai Lumpoopinitpong

Department Petrochemistry-Polymer

Thesis Advisor Associate Professor Pattarapan Prasassarakich, Ph.D.

Thesis Co-advisor Associate Professor Suda Kiatkamjornwong, Ph.D.

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

................................Dean of Graduate School

(Professor Thavorn Vajarabhaya, Ph.D.)

Thesis Committee

................................Chairman

(Professor Piyasan Praserthdam, Ph.D.)

................................Thesis Advisor

(Associate Professor Pattarapan Prasassarakich, Ph.D.)

................................Thesis Co-advisor

(Associate Professor Suda Kiatkamjornwong, Ph.D.)

................................Member

(Assistant Professor Khemchai Hemachandra, Ph.D.)

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

สมชาย ลำภูพินิจพงศ์ : สมบัติเชิงกลของวัสดุประกอบโพลิโพรพิวลินผสมด้วยผงไม้ (MECHANICAL PROPERTIES OF WOOD FLOUR-FILLED POLYPROPYLENE COMPOSITES) อ.ที่ปรึกษา : รศ.ดร. ภัทรพรรณ ประศาสน์สารกิจ อ.ที่ปรึกษาร่วม : รศ.ดร. สุดา เกียรติกำจรวงศ์, 14[illegible] หน้า. ISBN 974-584-048-3

การวิจัยนี้เป็นการศึกษาผลของปริมาณผงไม้ และสารประสานคู่ควบต่อสมบัติเชิงกลโพลิโพรพิลีนผสมด้วยผงไม้ ตั้งแต่ปริมาณ 10 - 50% โดยทำการผสมตัวอย่างด้วยลูกกลิ้งแบบคู่ แล้วจึงขึ้นรูปด้วยเครื่องอัดขึ้นรูปพลาสติกแบบไฮโดรลิก จากการทดลองพบว่า การเติมผงไม้ในโพลิโพรพิลีนสามารถเพิ่ม ค่ามอดูลัส และค่าความแข็งได้ แต่ผงไม้นี้ทำให้ค่าความต้านทานแรงดึง ค่าการยืดตัวเมื่อขาด และค่าความต้านทานแรงกระแทกลดลง เพื่อที่จะปรับปรุงแรงยึดติดระหว่าง ตัวเติมและโพลิเมอร์เมทริกซ์ จึงมีการปรับปรุงผงไม้ด้วยสารประสานคู่ควบประเภท ไซเลน หรือ อิโพลีน อี-43 พี ก่อนการผสมกับโพลิโพรพิลีน ผลที่ได้คือ วัสดุประกอบที่มีอิโพลีน อี-43 พี เป็นสารประสานคู่ควบจะให้ค่าความต้านทานแรงดึง ค่ามอดูลัส และค่าความแข็งดีกว่าวัสดุประกอบที่มีไซเลนเป็นสารประสานคู่ควบ การเติมอิโพลีน อี-43 พี เพียง 2% ในวัสดุประกอบก็เพียงพอที่จะทำให้สมบัติเชิงกลดังกล่าวมีผลดีขึ้นแต่จะมีผลเสียเล็กน้อยกับการลดลงของค่าความต้านทานแรงกระแทก การเติมสารประสานคู่ควบ และอุณหภูมิที่สูงในกระบวนการจะทำให้มีการเสื่อมสลายของผงไม้ และการลดความมีขั้วที่ผิวของผงไม้ จากผลการทดลองชี้ให้เห็นว่า อิโพลีน อี-43 พี แสดงพฤติกรรมที่เป็นสารประสานคู่ควบ ซึ่งทำให้สมบัติเชิงกลของวัสดุประกอบมีค่าดีขึ้น เมื่อพิจารณาในแง่ของต้นทุนราคาที่สูงขึ้นของอิโพลีน อี-43 พี สามารถทดแทนด้วยสัดส่วนที่เพิ่มขึ้นของปริมาณผงไม้ต่อโพลิโพรพิลีน

ภาควิชา สหสาขาวิชาปิโตรเคมี-โพลิเมอร์

สาขาวิชา เทคโนโลยีปิโตรเคมี

ปีการศึกษา 2537

ลายมือชื่อนิสิต สมชาย ลำภูพินิจพงศ์

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

C385149 MAJOR PETROCHEMICAL TECHNOLOGY
KEY WORD: WOOD FLOUR/MECHANICAL PROPERTIES/POLYPROPYLENE/COUPLING AGENT

SOMCHAI LUMPOOPINITPONG: MECHANICAL PROPERTIES OF WOOD FLOUR-FILLED POLYPROPYLENE COMPOSITES. THESIS ADVISOR: ASSO. PROF. PATTARAPAN PRASASSARAKICH, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR: ASSO. PROF. SUDA KIATKAMJORNWONG, Ph.D. 141 pp. ISBN 974-584-048-3

The effects of wood flour (WF) content and coupling agents on mechanical properties of compression moulded polypropylene composites containing 10-50% by weight of WF were investigated. WF was obtained from sawdust. The addition of WF in polypropylene increased the stiffness and hardness of the composite while the tensile strength, elongation at rupture and impact resistance decreased. To improve the adhesion between WF and polypropylene, WF was treated with silane coupling agents or Epolene wax before compounding. Tensile strength, tensile modulus and hardness of polypropylene-Epolene E-43P treated WF composites were marginally better than those of polypropylene-silane treated WF composites. Approximately 2 percent of Epolene E-43P in the composite was sufficient to provide most of the useful properties provided by that material in terms of tensile strength, modulus and hardness, with only a small sacrifice in impact behavior. Both the additive and the high processing temperature led to some wood degradation and to a less polar WF surface. Overall, these findings indicate that Epolene E-43P exerts some degrees of the coupling agent action which results in improvements in mechanical properties that are of practical value. The higher cost of Epolene E-43P can be compensated by the ratio of WF/polypropylene.

ภาควิชา Petrochemistry - Polymer	ลายมือชื่อนิสิต Somchai Lumpoopinitpong
สาขาวิชา Petrochemical Technology	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา [signature]
ปีการศึกษา 1994	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม Suda Kiatkam[signature]

หอสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ACKNOWLEDGMENTS

At first, I wish to express my sincere gratitude to my advisor Associate Prof. Dr. Pattarapan Prasassarakich and to my co-advisor, Associate Prof. Dr. Suda Kiatkamjornwong, for their guidance, advice, kindness, and encouragement throughout the course of this research.

I am very grateful to the Department of Industrial Chemistry, King Mongkut's Institute of Technology, North Bangkok, and Department of Chemistry, Mahidol University, for the use of their laboratories, equipment, and their excellent facilities. Many thanks are due to the Thai Petrochemical Industry Co., Ltd. and White Group Limited for their raw materials support. I am very appreciative to my family and my good friends for their love, assistance, and encouragements throughout the long years of work.

I would also like to thank the following organizations for the provision of experiment facilities: Department of Chemical Technoloy, Department of Chemistry, and Scientific and Technological Research Equipment Center, Chulalongkorn University.

Finally, I wish to thank the thesis committee for their comments. Thanks are also due to everyone who has contributed suggestions and given me moral support in the writing up of thesis work.

CONTENTS

PAGE

ABSTRACT (IN THAI).. iv

ABSTRACT.. v

ACKNOWLEDGMENTS... vi

CONTENTS.. vii

LIST OF TABLES.. x

LIST OF FIGURES... xi

CHAPTER I INTRODUCTION.. 1

1.1 The Roles of the Polymer Composite Materials......... 1

1.2 Objectives of the Research Work.................... 3

1.3 Scopes of the Research Work........................ 4

CHAPTER II THEORY AND LITERATURE REVIEW.......................... 5

2.1 Composite Materials............................ 5

2.1.1 Classification of Composite Materials......... 5

2.1.2 Theory of the Action of Fillers and Reinforcements................................ 7

2.1.3 Properties of Filled and Reinforced Plastic.... 8

2.2 Matrix.. 10

2.2.1 Polypropylene................................ 10

2.2.2 Manufacture of Polypropylene Homopolymer....... 11

2.2.3 Classification of Polypropylene 14

2.3 Fillers....................................... 19

2.3.1 Organic Fillers.............................. 22

2.3.2 Wood Flour................................... 25

CONTENTS (continued)

	PAGE
2.4 Coupling Agents	26
2.4.1 Organofunctional Silanes	27
2.4.2 Epolene Waxes	32
2.5 Literature Review	34
CHAPTER III APPARATUS AND EXPERIMENTAL PROCEDURES	48
3.1 Raw Materials and Reagents	48
3.2 Apparatus and Equipment	52
3.3 Experimental Procedures	53
3.3.1 Wood Flour Analysis	53
3.3.2 Treatment of Organofunctional Silane on Wood Flour	53
3.3.3 Preparation of the Composites	54
3.3.4 Mechanical Testing	56
3.3.5 Microstructure of the Fracture Surface of the Composites	58
3.3.6 Examination of the Polarity in Wood Flour Residue	59
3.3.7 Differential Thermal Analysis (DTA) of the Composites	59
CAHPTER IV RESULTS AND DISCUSSION	60
4.1 Characteristic of Wood Flour	60
4.2 Effect of Epolene E-43P Concentration on Mechanical Properties of Composite	63

CONTENTS (continued)

PAGE

4.3 Stress-Strain Curve of the PP-WF Composite with Different Coupling Agents.......................... 67

4.4 Effect of Filler Content on Mechanical Properties of the PP-WF Composites.................................. 72

4.5 Comparison of Mechanical Properties of the PP-WF Composite with Different Coupling Agents............ 78

4.6 Scanning Electron Micrograph (SEM) of Composites..... 86

4.7 Effect of the Coupling Agent on the Polarity of Wood Flour.. 94

4.8 Differential Thermal Analysis (DTA) of Wood Flour Filled Polypropylene................................ 95

4.9 Economic Consideration............................ 97

CHAPTER V CONCLUSION.. 98

REFERENCES.. 101

APPENDIXES.. 105

Appendix A Data of Tensile Properties................. 106

Appendix B Data of Izod Impact Property............... 133

Appendix C Data of Hardness Property.................. 137

VITA.. 141

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE
1.1	Estimated Fillers Consumption in Plastics (USA)............	3
2.1	Some Mechanical and Thermal Properties of Commercial Polypropylene....................................	18
2.2	Classification of Fillers..............................	19
2.3	Particle Characteristics...............................	20
2.4	Typical Plastic Fillers and Their Uses....................	21
2.5	Organic Material that have been Used as Fillers for Plastics	23
2.6	Properties of Common Organic Fillers......................	24
2.7	Silane Coupling Agents: Structure and Recommend Polymer Systems..	29
2.8	Classification of Epolene Waxes...........................	32
2.9	Comparison of Tensile Properties of HDPE-Wood Fiber, Glass Fiber, and Mica Composites.............................	43
2.10	Cost Analysis of HDPE Reinforced with Different Fillers.....	44
3.1	Typical Data of POLENE N-700P.............................	49
3.2	Typical Physical Properties of Silane A-1100 and A-174......	50
3.3	Typical Properties of Epolene E-43P Wax...................	51
4.1	Some Properties of Wood Flour.............................	61
4.2	Particle Size Distribution of Wood Flour..................	61
4.3	Properties of Wood Flour-Filled Polypropylene (20% filler) at Various Epolene E-43P Concentrations..................	64
4.4	Effect of Different Coupling Agents on Mechanical Properties of the Composites at Various Percents of the Filler........	79
4.5	Cost Analysis of PP-Epolene E-43P treated WF Composites.....	97

LIST OF FIGURES

FIGURE PAGE

2.1 Typical flow sheet for polypropylene manufacture............ 13

2.2 Polypropylene structures................................. 14

2.3 Structure of cellulose................................... 25

2.4 Monolayer model for bonding in mineral-polymer composites.... 31

2.5 Bonding through silanes by interdiffusion.................. 31

2.6 Modulus VS. filler content (mix in Buss-Kneader)............ 36

2.7 Tensile strength and elongation at rupture for various matrix filled with WF.................................... 36

2.8 Impact strength (unnotched charpy) for HDPE, PP and SB filled with WF and CF.................................... 37

2.9 Mechanical properties of PP-WF composites as a function of extrusion temperature at different Epolene E-43 concentration 39

2.10 Effect of Epolene E-43 concentration on mechanical properties of PP-WF and HDPE-WF composites......................... 40

2.11 Possible coupling mechanism at the fiber-matrix interface.... 41

2.12 Effect of silane pretreatment on mechanical properties of LLDPE-Wood fiber composites............................ 42

2.13 Mechanical properties of PS-Lignin composites............... 47

3.1 Schematic of tensile test specimen (type IV)................ 56

3.2 Schematic of Izod type test specimen....................... 57

4.1 Particle size distribution curve of wood flour.............. 62

4.2 SEM micrograph of wood flour surface Original magnification 75x................................ 62

LIST OF FIGURES (continued)

FIGURE PAGE

4.3 Effect of Epolene E-43P concentration on tensile properties of the composite.. 65

4.4 Effect of Epolene E-43P concentration on impact and hardness properties of the composite.................................. 66

4.5 Stress-Strain curve of the PP-untreated WF composite at various percents of WF.. 69

4.6 Stress-Strain curve of the PP-silane A-174 treated WF composite at various percents of WF......................... 70

4.7 Stress-Strain curve of the PP-Epolene E-43P treated WF composite at various percents of WF......................... 71

4.8 Effect of the untreated WF content on mechanical properties. 73

4.9 Effect of the silane A-1100 treated WF content on mechanical properties.. 75

4.10 Effect of the silane A-174 treated WF content on mechanical properties.. 76

4.11 Effect of the Epolene E-43P treated WF content on mechanical properties.. 77

4.12 Tensile strength vs. wood flour content treated with different coupling agents.................................. 80

4.13 Tensile modulus vs. wood flour content treated with different coupling agents.................................. 80

4.14 Elongation at break vs. wood flour content treated with different coupling agents.................................. 81

LIST OF FIGURES (continued)

FIGURE PAGE

4.15 Notched impact strength vs. wood flour content treated with different coupling agents.................................. 82
4.16 Hardness vs. wood flour content treated with different coupling agents.. 83
4.17 SEM micrographs of fracture surface of the PP filled with 10% (a) and 50% untreated WF (b). Original magnification 75x 87
4.18 SEM micrographs of fracture surface of the PP filled with 30% untreated WF (a) and 50% WF treated with Epolene E-43P (b). Original magnification 75x........................... 88
4.19 SEM micrographs of fracture surface of the PP filled with 10% untreated WF (a) and 10% WF treated with Epolene E-43P (b). Original magnification 200x.......................... 89
4.20 SEM micrographs of fracture surface of the PP filled with 30% WF treated with silane A-1100 (a) and treated with silane A-174 (b). Original magnification 75x............... 90
4.21 SEM micrographs of fracture surface of the PP filled with 50% WF treated with silane A-174 (a) and treated with Epolene E-43P (b). Original magnification 750x............. 91
4.22 SEM micrograph of fracture surface of PP filled with 50% WF treated with silane A-1100. Original magnification 750x.. 92
4.23 Models for the filled polymers (Nielsen, 1966).............. 93
4.24 Theoretical curves for the elongation at break for the case of perfect adhesive and no adhesive between the filler and polymer phases.. 93

LIST OF FIGURES (continued)

FIGURE PAGE

4.25 Existence of solvent extracted wood flour residue within the ethyl ether-water two layer systems........................ 95

4.26 DTA thermographs of unfilled-PP and filled-PP (50% filler). Pure PP (a), PP-untreated WF (b), PP-silane A-1100 treated WF (c), PP-silane A-174 treated WF (d), and PP-Epolene E-43P treated WF (e).. 96