การพัฒนาฟิล์มอุตสาหกรรม จากเอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอีเบลนด์

หอสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

นางสาวหทัยรัตน์ ปริฉัตร์ตระกูล

สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชาปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ปีการศึกษา 2540

ISBN 974-638-861-4

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

T17916367

DEVELOPMENT OF INDUSTRIAL FILM FROM HDPE/MLLDPE BLEND

Miss Hatairat Parichattakul

สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Science in Petrochemistry and Polymer Science

Program of Petrochemistry and Polymer Science

Graduate School

Chulalongkorn University

Academic Year 1997

ISBN 974-638-861-4

Thesis Title	DEVELOPMENT OF INDUSTRIAL FILM FROM HDPE/MLLDPE BLEND
By	Miss Hatairat Parichattakul
Department	Petrochemistry and Polymer Science
Thesis Advisor	Associate Professor Supawan Tantayanon, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Mr. Pailin Chuchottaworn, Dr. Eng.

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

.... Dean of Graduate School

(Professor Supawat Chutivongse, M.D.)

Thesis committee

....Chairman

(Professor Pattarapan Prasassarakich, Ph.D.)

.... Thesis Advisor

(Associate Professor Supawan Tantayanon, Ph.D.)

....Thesis Co-advisor

(Mr. Pailin Chuchottaworn, Dr. Eng.)

....Member

(Assistant Professor Prapaipit Chamsuksai Ternai, Ph.D.)

....Member

(Mr. Kitipan Sermsak)

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

หทัยรัตน์ ปริฉัตร์ตระกูล : การพัฒนาฟิล์มอุตสาหกรรม จากเอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอีเบลนด์ (DEVELOPMENT OF INDUSTRIAL FILM FROM HDPE/MLLDPE BLEND) อ.ที่ปรึกษา : รศ. ดร. ศุภวรรณ ตันตยานนท์, อ. ที่ปรึกษาร่วม : ดร. ไพรินทร์ ชูโชติถาวร ; 79 หน้า.
ISBN 974-638-861-4

พอลิเมอร์ผสมระหว่างพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูง(เอชดีพีอี) กับเมทัลโลซีนพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นต่ำเชิงเส้น(เอ็มแอลแอลดีพีอี) และพอลิเมอร์ผสมระหว่างพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูง(เอชดีพีอี) กับซิลเกอร์-แนตทาพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นต่ำเชิงเส้น (แซด-เอ็นแอลแอลดีพีอี) ถูกเตรียมขึ้นโดยวิธีการหลอมละลายด้วยเครื่องอัดรีดแบบสกรูเดี่ยว โดยมีอัตราส่วนของการผสมตั้งแต่ 0-40% โดยน้ำหนักของเอ็มแอลแอลดีพีอีหรือแซด-เอ็นแอลแอลดีพีอีแล้วเป่าเป็นฟิล์มที่มีความหนา 25 ไมครอน ฟิล์มที่ผลิตได้ถูกนำไปทดสอบสมบัติเชิงกล ได้แก่ การทนต่อแรงดึง การยืดออกที่จุดขาด ความแข็งแรงของฟิล์ม ความแข็งแรงของรอยเชื่อม ตามมาตรฐานแต่ละเรื่องของเอเอสทีเอ็ม จากการวิจัยนี้พบว่า สมบัติเชิงกลของเอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอีฟิล์มดีกว่าเอชดีพีอี/แซด-เอ็นแอลแอลดีพีอีฟิล์ม ได้ตรวจสอบความใสของฟิล์มโดยใช้เครื่องเดนซิโตมิเตอร์ซึ่งพบว่าฟิล์มทั้ง 2 ชนิดมีความใสใกล้เคียงกัน เอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอีฟิล์มที่มีความหนา 15 ไมครอนได้ถูกเตรียมขึ้นด้วยและนำไปทดสอบสมบัติเชิงกล พบว่าสมบัติเชิงกลของฟิล์มเหล่านี้มีค่าใกล้เคียงกันและบางสมบัติมีค่าค่อนข้างดีกว่าเอชดีพีอี/แซด-เอ็นแอลแอลดีพีอีฟิล์มที่อัตราส่วนเดียวกันแต่มีความหนา 25 ไมครอน

มอไฟโลยีของพอลิเมอร์ผสมของเอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอี ศึกษาโดยใช้เครื่อง ไดนามิก เมคคานิคัล เทอร์มอล อะนาลิซีต (ดีเอ็มเอ) และเครื่องดิฟเฟอร์เรนเชียล สแกนนิง คาลอริมิเตอร์ (ดีเอชซี) จากการวิจัยพบว่าเอชดีพีอี/เอ็มแอลแอลดีพีอีมีความเข้ากันได้ในส่วนของผลึก แต่ไม่มีความเข้ากันได้ในส่วนของอสันฐาน

ภาควิชา .... ลายมือชื่อนิสิต ....
สาขาวิชา ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์ ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา ....
ปีการศึกษา 2540 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม ....

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

3972749023 : MAJOR PETROCHEMISTRY AND POLYMER SCIENCE
KEY WORD: METALLOCENCE LINEAR LOW DENSITY POLYETHYLENE / HIGH DENSITY POLYETHYLENE / INDUSTRIAL FILM

HATAIRAT PARICHATTAKUL : DEVELOPMENT OF INDUSTRIAL FILM FROM HDPE/MLLDPE BLEND. THESIS ADVISOR : ASSO. PROF. SUPAWAN TANTAYANON, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR : PAILIN CHUCHOTTAWORN, Dr. Eng. 79 pp. ISBN 974-638-861-4

High Density Polyethylene(HDPE)/Metallocene Linear Low Density Polyethylene (MLLDPE) blend and High Density Polyethylene/Ziegler-Natta Linear Low Density Polyethylene (Z-NLLDPE) blend were prepared by melt mixing in a single screw extruder. The composition of the blends had been varied, 0-40% by weight of MLLDPE or Z-NLLDPE and the blown films with 25 micron thickness of each blend were made. All these films were subject to the mechanical testing, i.e., tensile strength, elongation at break, film impact strength and seal strength according to the corresponding ASTM methods. The results reveal that the mechanical properties of HDPE/MLLDPE film are superior than HDPE/Z-NLLDPE film. The clarity of the films had also been determined by using Densitometer. Both types of the film had about the same clarity. The HDPE/MLLDPE films with 15 micron thickness had also been prepared and subject to the mechanical testing. Their mechanical properties are approximate to, with some properties slightly better than, HDPE/Z-NLLDPE films of the corresponding compositions but with 25 micron thickness.

The morphology of the blends were examined by dynamic mechanical thermal analysis (DMA) and differential scanning calorimeter (DSC). The results revealed that HDPE/MLLDPE blends were miscible in the crystalline phase but immiscible in the amorphous phase.

ภาควิชา	ลายมือชื่อนิสิต ....
สาขาวิชา ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา ....
ปีการศึกษา 2540	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม ....

สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ACKNOWLEDGMENT

With the assistance of many valuable people, this research work and thesis are finally completed. I would like to express gratitude towards my advisor, Associate Professor Supawan Tantayanon, who has given me important advises during the course of this research. Furthermore, I would like to thank to all members of my thesis committee, Dr. Pailin Chuchotttaworn, and Mr. Kitipan Sermsak who have kindly given their valuable times to comment on my thesis. And my sincere thanks are also extended to Bangkok Polyethylene Public Company Limited (BPE) for its supply of materials and the incomparable help on the use of the company's excellent testing equipment. The last, I thanks all members of my family for their full support and encouragement.

หอสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CONTENTS

	PAGE
ABSTRACT (in Thai)	iv
ABSTRACT (in English)	v
ACKNOWLEDGMENT	vi
CONTENTS	vii
LIST OF TABLES	x
LIST OF FIGURES	xi
CHAPTER	
I INTRODUCTION	1
1.1 General introduction	1
1.2 The purpose of the research	3
1.3 Scope of research	3
II THEORY	4
2.1 Ziegler-Natta catalyst	4
2.2 Metallocene catalyst	7
2.3 Metallocene linear low-density polyethylene (MLLDPE)	11
2.4 Polymer blend	13
2.5 Determination of polymer/polymer blend	15
2.6 Literature reviews	15
III EXPERIMENTAL	18

CHAPTER PAGE

3.1 Materials 18
3.1.1 High density polyethylene (HDPE) 18
3.1.2 Linear low density polyethylene (LLDPE) 18
3.2 Blending and sample preparation 19
3.2.1 Blending 19
3.2.2 Molding and specimen preparation 21
3.2.3 Blown film extrusion sample 21
3.3 Mechanical testing of sample 22
3.3.1 Tensile strength and elongation testing 22
3.3.2 Stiffness testing 23
3.3.3 Film impact testing 23
3.3.4 Seal strength testing 24
3.4 Clarity of film testing 24
3.5 Sample characterization 25
3.5.1 Melt flow index (MFI) analysis 25
3.5.2 Density measurement 25
3.5.3 Differential scanning calorimetry (DSC) 25
3.5.4 Dynamic mechanical thermal analysis (DMA) 26

IV RESULTS AND DISCUSSION 27
4.1 Film sample preparation 27
4.2 Mechanical properties 27
4.2.1 Tensile strength 27
4.2.2 Elongation 30
4.2.3 Film impact strength 33

CHAPTER PAGE

4.2.4 Stiffness testing 35

4.2.5 Seal strength 36

4.3 Clarity of film testing 37

4.4 Sample characterization 39

4.4.1 Melt flow index and density 39

4.4.2 Dynamic mechanical thermal analysis (DMA) 43

4.3.3 Differential scanning calorimeter (DSC) 47

4.5 Downgauging of HDPE/MLLDPE film 57

V CONCLUSION AND SUGGESTION 60

5.1 Conclusion 60

5.2 Suggestion for further study 62

REFERENCES 63

APPENDIX A 67

APPENDIX B 71

VITA 79

LIST OF TABLES

TABLE PAGE

2.1 The properties of HDPE and LLDPE 6

3.1 The basic properties of Dowlex D2045 and Elite 5100 18

3.2 Formulation of HDPE/LLDPE blends 19

4.1 The transmittance of HDPE/MLLDPE film 37

4.2 Melt flow index of HDPE/MLLDPE blend from measurement and calculation 40

4.3 Density of HDPE/MLLDPE blend from measurement and calculation 42

4.4 Comparing the mechanical properties of HDPE/MLLDPE at 15 micron thickness to HDPE/Z-NLLDPE at 25 micron 58

A1 Tensile strength of HDPE/LLDPE film at 25 micron thickness................. 72

A2 Elongation at break of HDPE/LLDPE film at 25 micron thickness........... 73

A3 Impact strength of HDPE/LLDPE film at 25 micron thickness.................. 74

A4 Heat seal strength of HDPE/LLDPE film at 25 micron thickness 75

A5 Stiffness of HDPE/LLDPE sheet 76

A6 DSC test of HDPE/LLDPE blend 77

A7 Tensile strength of HDPE/MLLDPE film at 15 micron thickness 78

A8 Elongation at break of HDPE/MLLDPE film at 15 micron thickness 78

A9 Impact strength of HDPE/MLLDPE film at 15 micron thickness 78

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
2.1	The iron sandwich - The first metallocene Ferrocence; Dicyclopentadienyliron; $(C_5H_5)_2Fe$	7
2.2	Primary metallocene catalysts	8
2.3	Cyclic and linear methyl aluminoxane (MAO)	9
2.4	Schematic of the relative effects of blending polymer	13
3.1	Single screw extruder	20
3.2	Blown film processing	21
3.3	The dimensions of the dumbell specimen of type IV	22
3.4	The impact tester	23
4.1	Tensile strength in machine direction of HDPE/LLDPE film	28
4.2	Tensile strength in transverse direction of HDPE/LLDPE film	28
4.3	Elongation at break in machine direction of HDPE/LLDPE film	31
4.4	Elongation at break in transverse direction of HDPE/LLDPE film	31
4.5	Film impact strength of HDPE/LLDPE film	34
4.6	Stiffness of HDPE/LLDPE sheet	35
4.7	Seal strength of HDPE/LLDPE film	36
4.8	MFI of HDPE/MLLDPE blend	39
4.9	Density of HDPE/MLLDPE blend	41
4.10	DMA of HDPE	43
4.11	DMA of MLLDPE	44
4.12	DMA of Z-NLLDPE	44
4.13	DMA of HDPE/MLLDPE blend (75/25)	45
4.14	DMA of HDPE/Z-NLLDPE blend (75/25)	45

FIGURE PAGE

4.15 DSC of HDPE/MLLDPE blend 95/5 47
4.16 DSC of HDPE/MLLDPE blend 90/10 48
4.17 DSC of HDPE/MLLDPE blend 85/15 48
4.18 DSC of HDPE/MLLDPE blend 80/20 49
4.19 DSC of HDPE/MLLDPE blend 75/25 49
4.20 DSC of HDPE/MLLDPE blend 70/30 50
4.21 DSC of HDPE/MLLDPE blend 60/40 50
4.22 DSC of HDPE/Z-NLLDPE blend 75/25 51
4.23 DSC of HDPE/Z-NLLDPE blend 70/30 51
4.24 DSC of HDPE/Z-NLLDPE blend 60/40 52
4.25 DSC of HDPE 52
4.26 DSC of MLLDPE 53
4.27 DSC of Z-NLLDPE 53
4.28 Melt temperature of HDPE/MLLDPE blend 54
4.29 % crystallinity of HDPE/LLDPE blend 56
4.30 U.S. prices for polyethylene 59

สถาบันวิทยบริการ
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย