ปัจจัยที่มีอิทธิพลต่อการกระจายตัวของผงสีในโพลิสไตรีน เมื่อใช้เครื่องนวดผสมชนิดสกรูแฝดแบบต่อเนื่อง

นางสาวเนาว์รัตน์ พึ่งชื่น

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
ภาควิชาวิศวกรรมเคมี
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
พ.ศ.2539

ISBN 974-634-460-9

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

I16834.2

FACTORS INFLUENCING THE DISPERSION OF PIGMENTS IN POLYSTYRENE UPON USING A CONTINUOUS TWIN-SCREW KNEADER

Miss Naorat Phingchin

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering

Department of Chemical Engineering
Graduate School
Chulalongkorn University

1996

ISBN 974-634-460-9

Thesis Title	FACTORS INFLUENCING THE DISPERSION OF PIGMENTS IN POLYSTYRENE UPON USING A CONTINUOUS TWIN-SCREW KNEADER
By	Miss Naorat Phingchin
Department	Chemical Engineering
Thesis Advisor	Professor Wiwut Tanthapanichakoon, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Sirijutaratana Covavisaruch, Ph.D.

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

Santi Thoongsuwan
..... Dean of Graduate School
(Associate Professor Santi Thoongsuwan, Ph.D.)

Thesis Committee

S. Phatanasri
..... Chairman
(Suphot Phatanasri, Dr. Eng)

Wiwut Tanthapanichakoon
..... Thesis Advisor
(Professor Wiwut Tanthapanichakoon, Ph.D.)

S. Covavisaruch
..... Thesis Co-advisor
(Sirijutaratana Covavisaruch, Ph.D.)

T. Charinpanitkul
..... Member
(Tawatchai Charinpanitkul, Dr. Eng.)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

เนาวรัตน์ พึ่งชื่น : ปัจจัยที่มีอิทธิพลต่อการกระจายตัวของผงสีในโพลิสไตรีนเมื่อใช้เครื่องนวดผสมชนิดสกรูแฝดแบบต่อเนื่อง (FACTORS INFLUENING THE DISPERSION OF PIGMENTS IN POLYSTYRENE UPON USING A CONTINUOUS TWIN-SCREW KNEADER) อ.ที่ปรึกษา : ศ.ดร.วิวัฒน์ ตัณฑะพานิชกุล, อ.ที่ปรึกษาร่วม : ดร.สิริจุฑารัตน์ โควาวิสารัช, 170 หน้า. ISBN 974-634-460-9

งานวิทยานิพนธ์นี้ศึกษาถึงปัจจัยหลักต่างๆที่มีอิทธิพลต่อการกระจายตัวของผงสีในโพลิสไตรีนเมื่อใช้เครื่องนวดผสมแบบต่อเนื่อง ปัจจัยที่ศึกษาได้แก่ อุณหภูมิที่ใช้ในการนวดผสม, ความเร็วในการหมุนของสกรูแฝด (Twin Screw) และอัตราป้อนของของผสมระหว่างโพลิเมอร์และผงสี เพื่อหาภาวะการทำงานที่เหมาะสมของเครื่องนวดผสมแบบต่อเนื่องนี้ ทั้งนี้ในการวิเคราะห์หาระดับการกระจายตัวของผงสีนั้นจะประยุกต์ใช้แนวคิดใหม่ตามหลักการของเรขาคณิตแฟรคตัล (Fractal geometry) โพลิเมอร์ที่ใช้ในการทดลองนี้คือโพลิสไตรีน และผงสีที่ใช้คือเหล็กออกไซด์ และคาร์บอนดำซึ่งเป็นผงสีอนินทรีย์และอินทรีย์ ตามลำดับ นอกจากการศึกษาถึงปัจจัยต่างๆ ดังกล่าวข้างต้นแล้ว ยังได้ศึกษาวิธีการจำลองและการประเมินระดับการกระจายตัวของสีผงสำหรับกรณีการกระจายตัวในอุดมคติสองกรณี (แบบสม่ำเสมอ และแบบนอร์มัล) โดยการใช้ค่ามิติแฟรคตัลในการประเมินผล

จากการทดลองพบว่าเมื่ออุณหภูมิของการนวดผสมเพิ่มสูงขึ้นในช่วง 170 ถึง 210 องศาเซลเซียส ผงสีจะมีแนวโน้มกระจายตัวได้ดีขึ้น เมื่อความเร็วในการหมุนของสกรูสูงขึ้น จะทำให้ผงสีสามารถกระจายตัวในของผสมได้ดีขึ้นอย่างเด่นชัด เนื่องจากการที่สกรูหมุนเร็วขึ้นเป็นการเพิ่มแรงเฉือนให้กับของผสม ทำให้สีผงเกิดการแตกตัวและกระจายตัวในของผสมได้ดีขึ้น ส่วนผลของอัตราป้อนนั้นพบว่าเมื่ออัตราการป้อนช้าลง การกระจายตัวของผงสีจะสูงขึ้น ทั้งนี้ผงสีทั้งสองชนิดต่างให้ผลในทำนองเดียวกัน แต่ค่ามิติแฟรคตัลของกรณีที่ใช้ผงสีคาร์บอนดำจะมีค่าสูงกว่า เพราะมีจำนวนอนุภาคในตัวอย่างที่นำมาวิเคราะห์ผลมากกว่า ซึ่งสอดคล้องกับผลที่ได้จากการจำลองกรณีอุดมคติ (การทดลองด้วยคอมพิวเตอร์) อนึ่งเมื่อทำการนอร์มัลไลซ์ค่ามิติแฟรคทัลที่ได้จากการทดลองด้วยผลที่ได้จากการจำลอง ก็พบว่าผงสีคาร์บอนดำยังคงมีดัชนีที่สูงกว่า ที่เป็นเช่นนี้เนื่องจากสมบัติเฉพาะของผงสี กล่าวคือผงคาร์บอนดำซึ่งเป็นสารอินทรีย์มีคุณสมบัติเข้ากันกับโพลิสไตรีนได้ดีกว่ากรณีของเหล็กออกไซด์ซึ่งเป็นสารอนินทรีย์

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ภาควิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่อนิสิต เนาวรัตน์ พึ่งชื่น

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา วิวัฒน์ ตัณฑะพานิชกุล

ปีการศึกษา 2538 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม สิริจุฑารัตน์ โควาวิสารัช

C616824 : MAJOR CHEMICAL ENGINEERING
KEY WORD: DISPERSION/ KNEADER/ POLYSTYRENE/ PIGMENTS
NAORAT PHINGCHIN : FACTORS INFLUENCING THE DISPERSION OF PIGMENTS IN POLYSTYRENE UPON USING A CONTINUOUS TWIN-SCREW KNEADER. THESIS ADVISOR : PROF. WIWUT TANTHAPANICHAKOON, Ph.D., THESIS CO-ADVISOR : SIRIJUTARATANA COVAVISARUCH, Ph.D., 170 pp. ISBN 974-634-460-9

Major factors that affect the dispersion of pigments in polystyrene upon using a continuous kneader were investigated in this thesis. The factors were the kneading temperature, the rotational speed of the screw, and the feed rate of polystyrene-pigment mixture, so as to determine the suitable kneading conditions. In evaluating the degree of dispersion of pigments, the novel concept of fractal geometry was applied. The polymer used in this study was polystyrene while the pigments were either iron oxide or carbon black, which are inorganic and organic pigments, respectively. In addition to the factors mentioned above, methods to simulate and evaluate the degree of pigment dispersion were studied for two ideal cases (uniform random and normal random mixing) with the use of the fractal dimension in the evaluation.

From the experimental results, it has been found that as the kneading temperature increased from 170 to 210 °C, the dispersion of pigment particles was enhanced. Furthermore, the higher the rotational speed of the screw, the better the dispersion. This is because the higher rotational speed of the screw intensified shear stresses in the mixture, resulting in more breakage of the agglomerates and better dispersion. Moreover, the lower the feed rate, the higher the dispersion of the pigment. The same trends were exhibited by both pigments. However, the observed values of the fractal dimension in the case of the carbon black were greater because the numbers of particles in the samples that were analyzed were greater, which corresponded the simulated ideal-case results (computer experiments). Even when the experimental values of the fractal dimension were normalized with the corresponding values obtained from simulation, it was found that the normalized values of the fractal dimension in the case of carbon black were still greater. This may be attributed to the fact that carbon black which is organic has better compatibility with polystyrene than iron oxide which is inorganic.

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ภาควิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่อนิสิต เนาวรัตน์ พึ่งชิน

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา วิโรจน์ ตันทะพานิชกูล

ปีการศึกษา 2538 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม สิริจุฑารัตน์ โควาวิสารุช

ศูนย์วิทยทรัพยากร

ACKNOWLEDGEMENT

The author wishes to sincerely express her gratitude to her advisor, Professor Wiwut Tanthapanichakoon and co-advisor, Dr. Sirijutaratana Covavisaruch for their encouraging guidance, advice, discussion and helpful suggestions throughout the course of this work.

The author would like to thank Dr. Suphot Phatanasri and Dr. Tawatchai Charinpanitkul for their stimulative comments and participation as thesis committee. Special thanks are due to Dr. Supakanok Thongyai for his helpful suggestions and encouragement to her study.

Due thanks go to Bayer Thai Co.,Ltd. and Degussa (Thailand) Co.,Ltd. for supplying pigment samples and to Pacific Plastic (Thailand) Co.,Ltd. for polystyrene resin used in this work.

The author is very grateful to the National Metal and Materials Technology Center (MTEC) for providing financial support to the project, which this work forms part of.

Furthermore, the author wishes to convey her most sincere gratitude to her parents for their morale support.

Finally, many thanks go to her friends and all those who have encouraged her to pursue the study.

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CONTENTS

Page

ABSTRACT IN THAI iv

ABSTRACT IN ENGLISH v

ACKNOWLEDGEMENT vi

LIST OF TABLES x

LIST OF FIGURES xi

NOMENCLATURES xiv

CHAPTER

1. INTRODUCTION 1
   - 1.1 Objectives of present study 3
   - 1.2 Scope of this study 4
2. LITERATURE REVIEWS 5
3. THEORY 15
   - 3.1 Polystyrene 15
   - 3.2 Colorants for plastics 16
     - 3.2.1 Pigments 17
     - 3.2.2 Dyes 22
     - 3.2.3 Coloration criteria of styreic polymers 22
   - 3.3 Kneading 23
   - 3.4 Compounding 25
   - 3.5 Dispersion of pigments in plastics 32
   - 3.6 Dispersion methods 37

3.7 Evaluation of dispersibility 45
3.7.1 ASTM D2663..... 45
3.7.2 BS 2782..... 46
3.7.3 The fractal analysis method..... 47
3.8 Ideal-case simulation of particle dispersibility in plastics..... 55
3.8.1 Uniform random dispersion..... 55
3.8.2 Normal random dispersion..... 55
4. EXPERIMENTAL EQUIPMENT AND PROCEDURE..... 57
4.1 Raw material..... 57
4.1.1 Polystyrene..... 57
4.1.2 Pigment..... 57
4.2 Equipment..... 59
4.2.1 Accurate feeder..... 60
4.2.2 Continuous kneader..... 61
4.2.3 Press roller..... 62
4.2.4 Roller temperature controller..... 63
4.3 Experimental condition..... 65
4.4 Experimental procedure..... 65
5. RESULTS AND DISCUSSION..... 67
5.1 Computer-simulated experiments on pigment dispersibility..... 67
5.1.1 Random pathern of pigment dispersion..... 67
5.1.2 Effect of sample population size on fractal dimension..... 68

5.2 Effects of kneading conditions on the dispersibility of pigments in polyethylene 76
5.2.1 Kneading temperature 78
5.2.2 Rotational speed of screw 78
5.2.3 Feed rate 83
5.3 Comparison between pigment type 86
5.2.1 Kneading temperature 90
5.2.2 Rotational speed of screw 90
5.2.3 Feed rate 90
5.4 Dispersion efficiency of present kneader 95
6. CONCLUSIONS 97
6.1 Conclusions 97
6.2 Recommendation for future work 98
REFERENCES 99
APPENDIX 103
A1. Specification of equipment 104
A2. Experimental data 108
A3. Simulation program 141
A4. Example of calculation of fractal dimension 153
VITA 156

LIST OF TABLES

Page

Table 3.1 Scaling law for fractional dimension.....49

Table 4.1 Characteristics of the polystyrene used.....57

Table 4.2 Characteristics of the iron oxide pigments used.....58

Table 4.3 Characteristics of the carbon black pigments used.....58

Table 5.1 Computer-simulated results (fractal dimension is found using equation (3.34) for the region of large n).....69

Table 5.2 Computer-simulated results (fractal dimension is found using equation (3.4) for the region of n which provided the maximum slope).....73

Table 5.3 Computer-simulated results (Terashita's fractal dimension).....75

Table 5.4 Effect of kneading conditions on the dispersion of pigments in polystyrene.....77

Table 5.5 Effect of kneading conditions on the dispersion of pigments in polystyrene in terms of normalized fractal dimension.....87

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

LIST OF FIGURES

Page

Figure 3.1 Polystyrene 15
Figure 3.2 Elements of a pigment 18
Figure 3.3 Structure of resulting formings 23
Figure 3.4 Typical examples of mixers 27
Figure 3.5 The Banbury mixer 28
Figure 3.6 The roll-mill batch mixer 28
Figure 3.7 Single-screw extruder 29
Figure 3.8 Twin-screw extruder 31
Figure 3.9 Flow sheet of continuous kneading 32
Figure 3.10 Determination of fractal dimension 50
Figure 3.11 Example of fractal dimension determination 50
Figure 3.12 A schematic diagram of the image analyzer 51
Figure 3.13 Example of calculation of fractal dimension 53
Figure 3.14 Dealt image showing filler dispersion state and its fractal dimension (D) 53
Figure 4.1 Schematic diagram of the continuous kneading system 59
Figure 4.2 Accurate feeder 60
Figure 4.3 Continuous kneader 61
Figure 4.4 Various types of paddles and their arrangement 62
Figure 4.5 Press roller 63
Figure 4.6 Roller temperature controller 63
Figure 4.7 The continuous kneading system in the present study 64
Figure 5.1 Example of uniform random dispersion of pigment particles obtained from computer simulation 68

Figure 5.2 Example of normal random dispersion of pigment particles obtained from computer simulation..... 68
Figure 5.3 Relationship between the observed fractal dimension and the sample population size in the present study..... 68
Figure 5.4 Relationship between the observed fractal dimension of and the sample population size in the present study (using Eq. (3.4) for the region of n which provided the maximum slope)..... 72
Figure 5.5 Relationship between the observed fractal dimension in Terashita's approach and the sample population size..... 74
Figure 5.6 Examples of SEM microphotographs..... 76
Figure 5.7 Relationship between the kneading temperature (T_k) and the fractal dimension (D) in the case of the ion oxide pigment..... 79
Figure 5.8 Relationship between the kneading temperature (T_k) and the fractal dimension (D) in the case of the carbon black pigment.... 80
Figure 5.9 Relationship between the rotational speed of screw (R) and the fractal dimension (D) in the case of the iron oxide pigment... 81
Figure 5.10 Relationship between the rotational speed of screw (R) and the fractal dimension (D) in the case of the carbon black pigment..... 82
Figure 5.11 Relationship between the feed rate (F) and the fractal dimension(D) in the case of the iron oxide pigment..... 84
Figure 5.12 Relationship between the feed rate (F) and the fractal dimension (D) in the case of the carbon black pigment..... 85
Figure 5.13 Relationship between the kneading temperature (T_k) and the normalized fractal dimension (D_1^*) in the case of the ion oxide pigment..... 88

Figure 5.14 Relationship between the kneading temperature (T_k) and the normalized fractal dimension (D_1*) in the case of the carbon black pigment..... 89

Figure 5.15 Relationship between the rotational speed of screw (R) and the normalized fractal dimension (D_1*) in the case of the iron oxide pigment..... 91

Figure 5.16 Relationship between the rotational speed of screw (R) and the normalized fractal dimension (D_1*) in the case of the carbon black pigment..... 92

Figure 5.17 Relationship between the feed rate (F) and the normalized fractal dimension (D_1*) in the case of the iron oxide pigment..... 93

Figure 5.18 Relationship between the feed rate (F) and the normalized fractal dimension (D_1*) in the case of the carbon black pigment..... 94

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

NOMENCLATURE

A = total area of the segment

A_f = area occupied by the particles

D = fractal dimension

D^* = normalized fractal dimension

Ds = coefficient of variance

L = volume percentage of carbon black in the compound

n = number of division to similarity

N = the counted number of subsections containing at least one small part of the object

N_t = total number of paddle revolutions during the mean residence time of kneaded materials

r = similarity ratio = 1/n

S = area swelling factor from the action of the solvent used to uncurl the sections

S_f = area ratio of particles

U = Total number of graticule squares that are at least half filled with carbon black

V_h = kneaded material holdup in the kneading vessel

τ = kneading paddle shearing stress

μ = apparent resin melt viscosity

σs = standard deviation of S_f