

**MECHANICAL, RHEOLOGICAL PROPERTIES AND PHASE  
MORPHOLOGY OF POLYMER BLENDS BASED ON POLY(BUTYLENE  
TEREPATHALATE) AND HIGH DENSITY POLYETHYLENE  
CARBOXYLATE IONOMER COMPATIBILIZER**

Keyu Chen

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment 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  
2013

**Thesis Title:** Mechanical, Rheological Properties and Phase Morphology of Polymer Blends Based on Poly(butylene terephthalate) and High Density Polyethylene Carboxylate Ionomer Compatibilizer

**By:** Keyu Chen

**Program:** Polymer Science

**Thesis Advisors:** Asst. Prof. Manit Nithitanakul

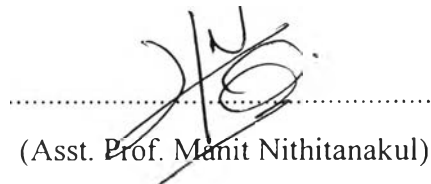
---

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

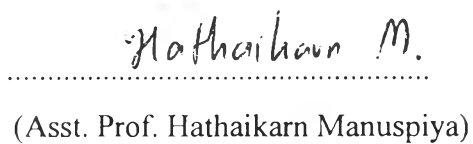


..... College Dean  
(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

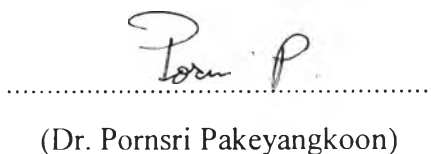
**Thesis Committee:**



.....  
(Asst. Prof. Manit Nithitanakul)



.....  
(Asst. Prof. Hathaikarn Manuspiya)



.....  
(Dr. Pornsri Pakeyangkoon)

## ABSTRACT

5472018063: Polymer Science Program

Keyu Chen: Mechanical, Rheological Properties and Phase Morphology of Polymer Blends Based on Poly(butylene terephthalate) and High Density Polyethylene Carboxylate Ionomer Compatibilizer.

Thesis Advisors: Asst. Prof. Manit Nithitanakul 60 pp.

Keywords: Na-EMAA ionomer/HDPE/PBT blend/ Rheology/ Mechanical properties

Polymer blending is a well-established route for the development of new polymer. In this study, poly(butylene terephthalate) and high density polyethylene blended with a ethylene/methacrylic acid copolymer, in which the MAA acid groups had been partially neutralized with sodium ions (Surlyn®), were used as compatibilizer. The blend samples were prepared with different concentrations of compatibilizer (0, 1, 2.5, 5, 10 phr) and added to different ratios of PBT/HDPE (100/0, 80/20, 70/30, 50/50, 30/70, 20/80, 0/100). The blend samples were analyzed by a series of instruments: rheometer, universal tensile machine, dynamic mechanical analysis and scanning electron microscope. By varying the amount of compatibilizer, the viscosity of the blend increased, finer and smaller dispersed droplet size micrographs were observed. and the impact strength of the new material was reduced compared to blends without added compatibilizer. The tensile modulus were not remarkably changed, but 1 phr of Surlyn obviously increased tensile strength when compared with uncompatibilized blend.

## บทคัดย่อ

keywords: การศึกษาคุณสมบัติเชิงกลและคุณสมบัติการไหลของพอลิบิวทิลีนเทเรฟทาเลตกับพอลิเอทิลีนความหนาแน่นสูงโดยใช้คาร์บอกซีเลตไอโอโนเมอร์เป็นสารเป็นสารเพิ่มความเข้ากันได้ (Mechanical and Rheological Properties and Phase Morphology of Polymer Blends Based on Poly(butylene terephthalate) and High Density Polyethylene Carboxylate Ionomer Compatibilizer) อ. ที่ปรึกษา ผศ. ดร. มานิตย์ นิธิ ธินากุล 60 หน้า

การผสมพอลิเมอร์เป็นทางเลือกที่เหมาะสมสำหรับการพัฒนาพอลิเมอร์แบบใหม่ ในงานวิจัยนี้ ทำการผสมพอลิบิวทิลีนเทเรฟทาเลตกับพอลิเอทิลีนความหนาแน่นสูงโดยใช้คาร์บอกซีเลตไอโอโนเมอร์เป็นสารเป็นสารเพิ่มความเข้ากันได้ พอลิเมอร์ผสมถูกเตรียมโดยใช้คาร์บอกซีเลตไอโอโนเมอร์ที่ความเข้มข้นที่แตกต่างกันคือ ( 0, 1, 2.5, 5, และ 10 ต่อร้อยละของพอลิเมอร์ผสม) ในสัดส่วนของพอลิบิวทิลีนเทเรฟทาเลตกับพอลิเอทิลีนความหนาแน่นสูง ดังต่อไปนี้ (100/0, 80/20, 70/30, 50/50, 30/70, 20/80, 0/100) ตัวอย่างของพอลิเมอร์ที่ผสมแล้วถูกวิเคราะห์โดยเครื่องมือต่อไปนี้ เครื่องรีโอมิเตอร์ เครื่องทดสอบแรงดึงแรงกดอเนกประสงค์ เครื่องทดสอบสมบัติเชิงพลวัต และ กล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนชนิดส่องกราด เมื่อทำการเพิ่มปริมาณของสารเพิ่มความเข้ากันได้ ความหนืดของพอลิเมอร์ผสมมากขึ้น เม็ดพอลิเมอร์ของวัตภาคภายในมีขนาดลดลง ซึ่งสามารถสังเกตได้จากค่าความแข็งแรงทนต่อการกระแทกของพอลิเมอร์ผสมที่ได้ลดลง เมื่อเปรียบเทียบกับพอลิเมอร์ผสมที่ไม่ได้ใส่สารเพิ่มความเข้ากันได้ มอดูลัสเชิงเส้นของพอลิเมอร์ผสม ไม่มีการเปลี่ยนแปลง แต่พอลิเมอร์ผสมที่มีสารเพิ่มความเข้ากันได้ 1% มอดูลัสเชิงเส้นมีค่าเพิ่มขึ้นอย่างเห็นได้ชัด เมื่อเทียบกับพอลิเมอร์ผสมที่ไม่ได้ใส่สารเพิ่มความเข้ากันได้

## ACKNOWLEDGEMENTS

I am grateful for the scholarship and funding of the thesis work provided by Petroleum and Petrochemical College Chulalongkorn University, and by the Center of Excellence on Petrochemical and Material Technology of Thailand.

I am grateful to my advisor Assist. Prof. Manit Nithitanakul and Prof. Brian P. Grady for all helps and suggestion throughout the work. Special thanks to Mr. Sutep Charoenpongpool for his helpful and constructive suggestion, and thanks to all Petroleum and Petrochemical College's staff. I appreciate SCG Polyolefin Co., Ltd. for supporting HDPE. Also thanks to Kasetsart University for the use of Injection Molding Machine.

Finally, I would like to thank my parent and my family for their whole hearted support, encouragement and understanding. Also I would like to thank my friends for their help, suggestion, encouragement and cheerfulness, and last but not least special thank goes to Mr. Panu who was my co-worker.

## TABLE OF CONTENTS

	<b>PAGE</b>
Title Page	i
Abstract (in English)	iii
Abstract (in Thai)	iv
Acknowledgements	v
Table of Contents	vi
List of Tables	viii
List of Figures	ix
<b>CHAPTER</b>	
<b>I INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
<b>II LITERATURE REVIEW</b>	<b>3</b>
2.1 Poly (butylene terephthalate)	3
2.2 High-density polyethylene	6
2.3 Na-EMAA ionomer	8
<b>III EXPERIMENTAL</b>	<b>11</b>
3.1 Materials	11
3.2 Equipment	11
3.2.1 Twin-screw Extruder	11
3.2.2 Compression Presses	11
3.2.3 Injection mould machine	11
3.2.4 Differential Scanning Calorimetry	11
3.2.5 Universal Testing Machine	11
3.2.6 Zwick Impact tester	11
3.2.7 Dynamic Mechanical Analyzer	11
3.2.8 Capillary Rheometer	11
3.2.9 Scanning Electron Microscope	11

<b>CHAPTER</b>	<b>PAGE</b>
3.3 Experiment procedures	11
3.3.1 Blends preparation	11
3.3.2 Specimen preparation	12
3.3.2.1 Compression molding	12
3.3.2.2 Injection molding	13
3.4 Characterization	13
3.4.1 Rheological measurement	13
3.4.2 Scanning Electron Microscope	13
3.4.3 Mechanical testing machine	14
3.4.4 Dynamic mechanical analyzer	14
3.4.5 Differential Scanning Calorimetric Analysis	14
 <b>IV RESULTS AND DISCUSSION</b>	 15
4.1 Rheological behavior	15
4.1.1 Neat components and uncompatibilized binary blends	15
4.1.2 Compatibilized ternary blends	17
4.2 Dynamic properties	21
4.2.1 The DMA results of Tan $\delta$ as a function of temperature	21
4.2.2 The DMA results of storage modulus as a function of temperature	23
4.3 SEM morphology	26
4.4 Mechanical properties	31
4.4.1 Impact strength	31
4.4.2 Tensile properties	34
4.5 Thermal properties	36
 <b>V CONCLUSIONS</b>	 41

<b>CHAPTER</b>	<b>PAGE</b>
<b>REFERENCES</b>	42
<b>APPENDICES</b>	44
<b>Appendix A</b> Scanning Electron Microscopy Analysis	44
<b>Appendix B</b> Mechanical Properties of the Blends	46
<b>CURRICULUM VITAE</b>	60



**LIST OF TABLES**

<b>TABLE</b>		<b>PAGE</b>
3.1	Temperature profile of twin screw extruder	12
3.2	Blend compositions	12
4.1	Number average diameter ( $\mu\text{m}$ ) of dispersed phase size of blends	31

## LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
4.1	Flow cures of neat components.	15
4.2	Flow curves of uncompatibilized binary blends and neat polymers.	16
4.3	Flow cures of PBT/Suryln blends	17
4.4	Flow cures of PBT/HDPE 80/20 blend containing various Surlyn contents of 0, 1, 2.5, 5, 10 phr.	18
4.5	Flow cures of PBT/HDPE 70/30 blend containing various Surlyn contents of 0, 1, 2.5, 5, 10 phr.	18
4.6	Flow cures of PBT/HDPE 50/50 blend containing various Surlyn contents of 0, 1, 2.5, 5, 10 phr.	19
4.7	Flow cures of PBT/HDPE 30/70blend containing various Surlyn contents of 0, 1, 2.5, 5, 10 phr.	20
4.8	Flow cures of PBT/HDPE 20/80 blend containing various Surlyn contents of 0, 1, 2.5, 5, 10 phr.	20
4.9	Tan $\delta$ as a function of temperature of neat compositions (a) and PBT/HDPE blends (b).	21
4.10	Tan $\delta$ as a function of temperature of different ratios of blends: PBT/HDPE 30/70 (a), PBT/HDPE 50/50 (b), PBT/HDPE 70/30 (c).	23
4.11	Storage modulus E' as a function of temperature of different ratios of blends: PBT/HDPE 30/70 (a), PBT/HDPE 50/50 (b), PBT/HDPE 70/30 (c).	25
4.12	The SEM micrographs of the uncompatibilized HDPE/PBT blends at different ratio as (a) 20/80; (b) 30/70;(c) 50/50; (d) 70/30; (e)80/20 respectively.	27

## LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
4.13	The SEM micrographs of HDPE/PBT 80/20 with 1 phr Na-EMAA.	28
4.14	SEM micrographs of fractured surfaces of HDPE/PBT 30/70 with different amount of Na-EMAA.	28
4.15	SEMmicrographs of fractured surfaces of HDPE/PBT 50/50 with different amount of Na-EMAA.	29
4.16	SEM micrographs of fractured surfaces of HDPE/PBT 70/30 with different amount of Na-EMAA.	30
4.17	Variation of impact strength with Surlyn content in the blend of PBT/HDPE 70/30.	32
4.18	Variation of impact strengthwith Surlyn content in the blend of PBT/HDPE 50/50.	33
4.19	Variation of impact strengthwith Surlyn content in the blend of HDPE/PBT 70/30.	33
4.20	Variation of tensile strength and tensile modulus with Surlyn content in the blend of HDPE/PBT 70/30 (a), HDPE/PBT 50/50 (b), and HDPE/PBT 30/70 (c).	35
4.21	DSC melt crystallization exotherms (a) and melting thermograms (b) for HDPE, PBT, and HDPE/PBT blend samples recorded during cooling and heating at 10 °C/min.	37
4.22	DSC melt crystallization exotherms for HDPE/PBT 30/70 blend (a),HDPE/PBT 50/50 blend (b) and HDPE/PBT 70/30 blend (c) samples recorded during cooling at 10 °C/min.	39