COATING OF GLASS FIBER TO IMPROVE ADHESION IN GLASS FIBER REINFORCED POLYETHYLENE

Ms. Bongkot Sitthitham

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Acadamic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
and Case Western Reserve University
2002

ISBN 974-03-1599-2

Thesis Title	:	Coating of Glass Fiber to Improve Adhesion in Glass Fiber Reinforced Polyethylene
By	:	Ms. Bongkot Sitthitham
Program	:	Polymer Science
Thesis Advisors	:	Asst. Prof. Nantaya Yanumet
		Mr. John W. Ellis
		Assoc. Prof. Brain P. Grady
		Prof. Edgar A. O'Rear

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

K. Bunyakiat
..... College Director

(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Thesis Committee:

N. Yanumet
.....

(Asst. Prof. Nantaya Yanumet)

.....

(Mr. John W. Ellis)

.....

(Assoc. Prof. Brain P. Grady)

.....

(Prof. Edgar A. O'Rear)

R. Magaraphan
.....

(Asst. Prof. Rathanawan Magaraphan)

.....

(Dr. Pitt Supaphol)

ABSTRACT

4372003063: POLYMER SCIENE PROGRAM
Bongkot Sitthitham: Coating of Glass Fiber to Improve Adhesion in Glass Fiber Reinforced Polyethylene
Thesis Advisors: Asst. Prof. Nantaya Yanumet, Mr. John W. Ellis Assoc. Prof. Brain P. Grady and Prof. Edgar A. O'Rear,
55 pp. ISBN 940-03-1599-2
Keywords: Admicellar polymerization/Glass fiber reinforced composite/polyethylene/Interfacial adhesion

A new process for coating reinforcing fibers in thermoplastic polymer composites to improve polymer/filler adhesion was evaluated. This process, termed admicellar polymerization, produced organized thin polyethylene films on glass fiber surfaces using sodium dodecyl sulfate as the surfactant template. It appeared that polymerization was not restricted to the surface of the glass fiber, as originally envisaged, but a significant amount of polymerization also took place in the aqueous supernatant. Polyethylene film coated on the glass fiber surface was observed by SEM. The treated glass fiber was used to make glass fiber/polyethylene composites. The mechanical properties of composites made from admicellar-treated glass fibers were almost the same as for composites made from solution-treated glass fibers, but were superior to those made from as-received and untreated glass fibers. This study therefore demonstrates that both the admicellar and solution polymerization techniques for coating glass fibers with polymer improve the fiber-matrix adhesion in thermoplastic composites.

บทคัดย่อ

บงกช สิทธิธรรม: การเคลือบผิวเส้นใยแก้วเพื่อที่จะปรับปรุงแรงยึดติดของเส้นใยแก้วเสริมแรงพอลิเอทธิลีน (Coating of Glass Fiber to Improve Adhesion in Glass Fiber Reinforced Polyethylene) อ.ที่ปรึกษา ผศ. ดร. นันทยา ยานุเมศ, นาย จอห์น แอลลิส, รศ. ดร. ไบรอัน เกรดี้, และ ศ. ดร. เอ็ดการ์ โอเรียร์ 55 หน้า ISBN 974-03-1599-2

ในปัจจุบันได้มีการนำเอาวิธีการใหม่ที่ใช้สำหรับเคลือบผิวเส้นใยแก้วก่อนที่จะนำไปเสริมแรงกับพอลิเอทธิลีนในวัสดุเชิงประกอบมาใช้กันอย่างแพร่หลาย เพื่อที่จะปรับปรุงแรงยึดติดของเส้นใยแก้วกับพอลิเอทธิลีน วิธีใหม่นี้เป็นวิธีที่เคลือบผิวเส้นใยแก้วด้วยพอลิเอทธิลีนฟิล์มซึ่งเป็นการทำพอลิเมอร์ไรเซชั่นในชั้นของสารลดแรงตึงผิว เรียกว่า แอดไมเซลาร์พอลิเมอร์ไรเซชั่น งานวิจัยนี้ได้นำเทคนิคแอดไมเซลาร์พอลิเมอร์ไรเซชั่นมาใช้ในการเคลือบพื้นผิวเส้นใยแก้วด้วยพอลิเอทธิลีนฟิล์ม โดยการทำปฏิกิริยาพอลิเมอร์ไรเซชั่นของเอทธิลีนมอนอเมอร์ในชั้นของสารลดแรงตึงผิวโซเดียมโดเดคซิลซัลเฟต จากการศึกษาพบว่า ปฏิกิริยาพอลิเมอร์ไรเซชั่นสามารถเกิดได้ทั้งในชั้นของสารลดแรงตึงผิวและในชั้นของสารละลายน้ำ เรียกวิธีที่เอทธิลีนมอนอเมอร์เกิดการพอลิเมอร์ไรซ์ในน้ำว่า โซลูชั่นพอลิเมอร์ไรเซชั่น หลังจากนั้นกล้องสแกนนิ่งอิเล็กตรอนไมโครสโครปจะถูกใช้ในการศึกษาการเคลือบของพอลิเอทธิลีนบนพื้นผิวเส้นใยแก้ว เส้นใยแก้วที่เคลือบผิวด้วยเทคนิคแอดไมเซลลาร์แล้วจะถูกนำไปเสริมแรงพอลิเอทธิลีน และนำไปศึกษาสมบัติเชิงกลของวัสดุเชิงประกอบ จากการศึกษาพบว่า วัสดุเชิงประกอบนี้มีค่าความทนต่อแรงดึงและค่าความทนต่อแรงหักงอเท่ากับวัสดุเชิงประกอบที่ทำจากเส้นใยแก้วที่ผ่านการเคลือบผิวที่เกิดจากการพอลิเมอร์ไรซ์เอทธิลีนมอนอเมอร์ในสารละลายน้ำ แต่มีค่าสูงกว่าวัสดุเชิงประกอบที่ทำจากเส้นใยแก้วที่ไม่มีการเคลือบผิวและเส้นใยแก้วที่ผ่านการเคลือบผิวด้วยสารที่ใช้กันอยู่ในอุตสาหกรรม ดังนั้นจากงานวิจัยนี้พบว่าการเคลือบพื้นผิวเส้นใยแก้วด้วยวิธีแอดไมเซลลาร์พอลิเมอร์ไรเซชั่นและโซลูชั่นพอลิเมอร์ไรเซชั่นสามารถปรับปรุงแรงยึดติดของเส้นใยแก้วกับพอลิเอทธิลีนในวัสดุเชิงประกอบ

ACKNOWLEDGEMENTS

The author would like to gratefully thank all of those who encouraged her throughout the study. She greatly appreciates all Professors for the valuable knowledge at the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University.

I am also deeply indebted to my Thai advisor, Dr. Nantaya Yanumet, who gave intensive suggestion, invaluable guidance, and constructive advice. Moreover, I would like to give special thanks to my co-advisor, Mr. John Ellis, for his recommendations in polymer testing and his vital help throughout this research work.

I gratefully acknowledge my U.S. advisors, Assoc. Prof. Brain P. Grady and Prof. Edgar A. O'Rear, for their guidance and encouragement during the course of this work.

In addition, I feel fortunate to have spent the years with a collection of graduate students who not only made the experience bearable, but also quite pleasant. Therefore, I simply say thanks to the entire college members and all my good friends at the Petroleum and Petrochemical College.

Finally, extreme appreciation is to my family for their love, understanding, encouragement and advice.

TABLE OF CONTENTS

		PAGE
	Title Page	i
	Abstract (in English)	iii
	Abstract (in Thai)	iv
	Acknowledgements	v
	Table of Contents	vi
	List of Tables	viii
	List of Figures	x
CHAPTER		
I	**INTRODUCTION**	1
II	**LITERATURE SURVEY**	6
III	**EXPERIMENTAL**	10
	3.1 Materials	10
	3.2 Instrumentation	11
	3.3 Methodology	13
	3.3.1 Fiber Preparation	13
	3.3.2 Admicellar Polymerization of Polyethylene onto Glass Fiber	13
	3.3.3 Surface Morphology of Glass Fibers	14
	3.3.4 Gravimetric Analysis (Percentage Weight Loss)	14
	3.3.5 Polymer Composite Preparation	14
	3.3.6 Mechanical Properties of HDPE/Glass Fiber Composites	15
	3.3.6.1 Tensile property testing	15
	3.3.6.2 Flexural property testing	15

CHAPTER		PAGE
	3.3.6.3 Impact property testing	6
IV	**RESULTS AND DISCUSSION**	17
	4.1 Pressure Drop of Ethylenen gas	17
	4.2 Effect of Varying the Initiator to Surfactant Ratio	18
	4.3 Effect of Varying the amount of Surfactant Used	22
	4.4 Gravimetric Analysis (Percentage Weight Loss)	27
	4.5 Surface Characterization of Modified Glass Fiber	29
	4.6 Mechanical Properties of Glass Fiber Reinforced HDPE Composites	32
	4.6.1 Tensile Strength	32
	4.6.2 Flexural Strength	34
	4.6.3 Impact Strength	36
V	**CONCLUSIONS**	38
	REFERENCES	39
	APPENDICES	41
	Appendix A Pressure drop of ethylene during the adsolubilization and admicellar polymerization step	41
	Appendix B Percentage weight loss of various type of surface modified glass fiber	48
	Appendix C Mechanical properties of glass fiber reinforced HDPE composites	49
	CURRICULEM VITAE	55

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE
3.1	Physical properties of Marlex HHM 5502 HDPE	10
3.2	Summary of milled glass fiber product data	11
3.3	Batch composition of each component for glass fiber reinforced HDPE composites	15
4.1	Critical micelle concentration of sodium dodecyl sulfate in water at 25^0C	17
4.2	Summary of ethylene pressure drop for the first and second steps for the blank system	18
4.3	Summary of ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 8.2 mM surfactant concentration and 3:1 initiator to surfactant ratio	19
4.4	Summary of ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 8.2 mM surfactant concentration and 6:1 initiator to surfactant ratio	21
4.5	Summary of ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 15 mM surfactant concentration and 3:1 initiator to surfactant ratio	22
4.6	Summary of ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps for all systems with and without surfactant at various surfactant concentrations and initiator to surfactant ratios	26
4.7	Summary of percentage weight loss for different types of surface modified glass fibers	27

TABLE **PAGE**

4.8 Summary of tensile strengths of various types of surface modified glass fiber reinforced HDPE composites 33

4.9 Summary of flexural strengths of various types of surface modified glass fiber reinforced HDPE composites 35

4.10 Summary of impact strengths of various types of surface modified glass fiber reinforced HDPE composites 36

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
1.1	The four-step admicellar polymerization process	3
3.1	Bench-top Parr reactor	12
4.1	Dissolution of ethylene into water for the first and second steps of the admicellar polymerization process	18
4.2	Ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 8.2 mM surfactant concentration and 3:1 initiator to surfactant ratio	19
4.3	Ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 8.2 mM surfactant concentration and 6:1 initiator to surfactant ratio	21
4.4	Ethylene pressure drops for the adsolubilization and admicellar polymerization steps of the systems with and without surfactant at 15 mM surfactant concentration and 3:1 initiator to surfactant ratio	23
4.5	Ethylene pressure drops for various system conditions containing surfactant	24
4.6	Ethylene pressure drops for various system conditions of the systems in absence of surfactant	25
4.7	Relationship between the various types of surface modified glass Fiber and percentage weight loss	28
4.8	SEM micrographs of (a) untreated glass fiber and (b) as-received glass fiber	29
4.9	SEM micrographs of polyethylene coated onto glass fiber surfaces at 8.2 mM surfactant concentration and varying initiator to surfactant ratios	30

FIGURE **PAGE**

4.10 SEM micrographs of polyethylene coated onto glass fiber surfaces at 15 mM surfactant concentration and 3:1 initiator to surfactant ratio 31
4.11 Tensile strengths of different types of glass fiber/HDPE composites 34
4.12 Flexural strengths of different types of glass fiber/HDPE composite 35
4.13 Impact strengths of different types of glass fiber/HDPE composites 37