



## รายงานการวิจัยฉบับสมบูรณ์

เรื่อง

ผลของซิลิกาและเคลย์ต่อสมบัติการไหล สมบัติเชิงกลและเชิงความร้อนของ  
เทอร์โมพลาสติกวัลคาไนซ์จากการเบลนด์ยางธรรมชาติอีพอกไซด์กับพอลิโพรพิลีน  
(Effect of Silica and Clay on Rheological, Mechanical and Thermal Properties of  
Thermoplastic Vulcanizates based on Epoxidized Natural Rubber and Polypropylene Blends)

โดย

ผศ.ดร.กรรณิการ์ สหกะโร  
ผศ.ดร.ณัฐณี โล่ห์พัฒนานนท์  
นางสาวกานดา แซ่ลอยเลื่อน

ภาควิชาเทคโนโลยียางและพอลิเมอร์  
คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยสงขลานครินทร์ วิทยาเขตปัตตานี

ทุนสนับสนุนการวิจัยจากงบประมาณแผ่นดิน มหาวิทยาลัยสงขลานครินทร์  
ประจำปีงบประมาณ 2552-2553

## บทคัดย่อ

เตรียมเทอร์โมพลาสติกวัลคาไนซ์ (TPVs) จากการผสมยางธรรมชาติอีพอกไซด์ (ENR) กับพอลิโพรพิลีน (PP) ภายใต้สภาวะหลอมที่อุณหภูมิ 180 °C ด้วยเครื่องผสมแบบปิด วัลคาไนซ์เฟสยาง ENR ด้วยระบบฟีนอลิกเรซินชนิด HRJ-10518 ใช้พอลิโพรพิลีนที่ดัดแปลงโมเลกุลด้วยฟีนอลิกเรซิน (PhHRJ-PP) ปริมาณ 5 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักของพอลิโพรพิลีนเป็นสารเพิ่มความเข้ากันได้ จากการศึกษาลักษณะของการผสม ENR/PP ที่ 60/40 และ 70/30 พบว่า TPVs จากการผสมที่สัดส่วน 60/40 ทั้งสูตรที่ไม่ใส่และใส่สารตัวเติมมีความต้านทานต่อแรงดึงและความสามารถในการยืดสูงกว่าที่สัดส่วน 70/30 เมื่อเปรียบเทียบผลของปริมาณโมลเปอร์เซ็นต์อีพอกไซด์ที่ 25 กับ 50 (ENR-25 กับ ENR-50) พบว่า TPVs ที่เตรียมจากยาง ENR-25 มีสมบัติเชิงกลดีกว่า ENR-50 และอนุภาคยางมีขนาดเล็กกว่า เมื่อใส่ซิลิกาเป็นสารตัวเติมโดยใช้ไดเอทิลีนไกลคอล (DEG) ปริมาณ 6 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักของซิลิกา ร่วมกับไซเลนทำให้ TPVs มีสมบัติเชิงกลดีกว่าสูตรที่ใส่ DEG หรือไซเลนเพียงอย่างเดียว โดยการใช้ไซเลนชนิด Vinyltrimethoxysilane (VTMS) จะให้สมบัติดีกว่าการใช้ Bis-(3-triethoxysilyl-propyl)-tetrasulfide (TESPT) ซึ่งปริมาณของ VTMS ที่เหมาะสม คือ 6 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักของซิลิกา จากการแปรปริมาณของซิลิกาตั้งแต่ 0-50 phr พบว่า สมบัติเชิงกลของ TPVs เพิ่มขึ้นเมื่อใส่ซิลิกาปริมาณไม่เกิน 30 phr เนื่องจากซิลิกามีการกระจายตัวที่ดีในยาง อนุภาคยางมีขนาดเล็ก และปริมาณผลึกในเฟสของ PP เพิ่มขึ้น แต่เมื่อใส่ซิลิกามากกว่า 30 phr ทำให้สมบัติเชิงกลเริ่มลดลง อนุภาคยางมีขนาดใหญ่ขึ้น และปริมาณผลึกในเฟสของ PP ลดลง โดยมีอุณหภูมิสถานะและความหนืดเชิงซ้อนมีค่าเพิ่มขึ้น ส่วนแทนเจนต์สูญเสียมีค่าลดลงตามปริมาณของซิลิกาที่เพิ่มขึ้น ในกรณีของสารตัวเติมดินขาวหรือโซนาเคลย์ พบว่า การเพิ่มปริมาณดินขาวทำให้สมบัติเชิงกลของ TPVs เพิ่มขึ้นเล็กน้อย แต่เมื่อใส่ดินขาวมากกว่า 30 phr สมบัติเชิงกลของ TPVs เริ่มลดลงและปริมาณผลึกในเฟสของ PP ลดลงด้วยเช่นกัน ส่วนสมบัติเชิงกลพลวัตจะมีแนวโน้มเหมือนกับกรณีที่ใช้ซิลิกา TPVs ทั้งสูตรที่ใส่ซิลิกาและดินขาวเป็นสารตัวเติมมีการบวมพองในน้ำมัน ASTM หมายเลข 1 น้อยกว่าในน้ำมัน IRM 903 การเพิ่มปริมาณของซิลิกาและดินขาวมีผลต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิกลาสทรานซิชัน ( $T_g$ ) ของ TPVs น้อยมาก แต่ส่งผลให้ TPVs มีความทนทานต่อการบ่มเร่ง และมีอุณหภูมิการสลายตัวเพิ่มขึ้น โดยการใช้ซิลิกาเป็นสารตัวเติมทำให้ TPVs มีสมบัติเชิงกลดีกว่าและทนทานต่อความร้อนสูงกว่าการใช้ดินขาวเป็นสารตัวเติม

## Abstract

Thermoplastic vulcanizates (TPVs) based on epoxidized natural rubber (ENR) and polypropylene (PP) were prepared via melt mixing process in an internal mixer at 180°C. HRJ-10518 phenolic resin was used to vulcanize ENR phase in TPVs. Phenolic resin modified PP (PhHRJ-PP) at 5wt% of PP was used as compatibilizer between ENR and PP phases. The investigation of blend ratios of ENR/PP at 60/40 and 70/30 revealed that both filled and unfilled 60/40 blends showed higher tensile strength and elongation at break. When compared an influence of epoxide levels in ENR by using ENR-25 and ENR-50, the TPVs prepared by using ENR-25 showed better mechanical properties and smaller rubber particles than those with ENR-50. A use of silica with diethylene glycol (DEG) at 6wt% of silica together with silane resulted in better mechanical properties when compared with a use of either DEG or silane only. Vinyltrimethoxysilane (VTMS) yielded better results over Bis-(3-triethoxysilyl-propyl)-tetrasulfide (TESPT) and a suitable content of VTMS was 6wt% of silica. By varying loading levels of silica in a range of 0-50 phr, the properties of TPVs increased with increasing silica up to 30 phr due to a good dispersion of silica in rubber phase, small size of dispersed rubber particles and an increase of degree of crystallinity in PP matrix. However, the use of silica over 30 phr decreased mechanical properties of TPVs as a result of large rubber particles and lower degree of crystallinity in PP phase. The increase of silica contents increased storage modulus and complex viscosity but decreased  $\tan \delta$ . In the case of clay, mechanical properties were slightly increased with increasing clay loading. The use of clay over 30 phr also decreased mechanical properties of TPVs and degree of crystallinity in PP matrix. The dynamic mechanical properties of clay filled TPVs exhibited similar trend to the case of silica filled TPVs. Both silica and clay filled TPVs showed lower degree of swelling in ASTM oil No.1 than that in IRM 903 oil. Increasing silica and clay contents had minimal effect on glass transition temperature of TPVs, but resulted in the increase of ageing resistance and decomposition temperature. In addition, silica filled TPVs displayed better mechanical properties and heat resistance when compared with the clay filled TPVs.