

**PENCIRIAN DAN SIFAT-SIFAT KOMPOSIT POLIPROPILENA
(PP)/ETILENA PROPILENA DIENA MONOMER (EPDM) TERISI
SLUDGE KERTAS**

oleh

SALMAH

**Tesis yang diserahkan untuk memenuhi keperluan bagi
Ijazah Doktor Falsafah**

September 2005

PENGHARGAAN

Alhamdulillahi Rabbil a'lamin, segala puji bagi Allah dengan izinnya dan limpahan rahmatnya serta kurnianya dapatlah saya menyiapkan projek penyelidikan seperti mana yang telah dijadualkan.

Saya ingin mengambil kesempatan ini untuk mengucapkan ucapan terima kasih yang tidak terhingga kepada penyelia utama penyelidikan ini, Profesor Hanafi Ismail di atas segala bimbingan, tunjuk ajar dan nasihat kepada saya selama menjalankan projek penyelidikan ini dan Dr. Azhar Abu Bakar selaku penyelia bersama yang telah membantu dalam menyelesaikan kajian saya ini. Mereka berdua amat bermakna bagi saya dalam menjayakan projek penyelidikan ini. Tidak lupa juga kepada semua pensyarah-pensyarah di bahagian polimer.

Setinggi-tinggi penghargaan ditujukan khusus buat pembantu-pembantu makmal di Pusat Pengajian Kejuruteraan Bahan Dan Sumber Mineral, iaitu Encik Segaran a/l N. B Dorai, Encik Md Zandar Bin Md Saman, En. Mohamad Bin Hassan, En. Syahrul Ami Bin Zainal Abidin, En Kemuridan Md Desa, En. Abdul Rasyid Selamat, Puan Fong Lee Lee, En. Mokthar Muhammad, En. Samayamutthirian Palaniady dan En. Mohd Sayuti Bin Aziman yang telah banyak membantu saya di dalam menjalankan kajian ini.

Kepada kedua orang yang amat terpenting di dalam hidup saya, iaitu suami tercinta Suryadiansyah atas dorongan, semangat, sokongan dan kesempatan yang diberikan kepada saya untuk melanjutkan pengajian sampai ke peringkat PhD. Ananda tersayang Salahuddinsyah yang menjadikan semangat di dalam hidup saya. Rakaman terima kasih juga ditujukan kepada ahli keluarga saya ibu bapa, kakak dan adik.

Penghargaan khas ditujukan kepada Supri yang telah memberi tunjuk ajar FTIR dan juga kepada Hamidah Harahap dan Dr. Susantha Siriwardena (Sri Lanka) atas segala bantuan yang diberikan. Tidak lupa untuk kawan-kawan ijazah tinggi, Halimah, Hakimah, Yanti, Zurina, Ainur, Siti Masnah, Zaiza, Arjulizan, Neoh Siew Bee, Teh Pe Ling, Lim Wei Lee, Okti, Husni, Hariharan, Roshan, Lam, Bashree, Syed, Nura, Gay Su, Ah Meng, Ah Sia, Nadras dan rakan-rakan ijazah tinggi yang lain, saya mengucapkan terima kasih atas kebersamaan kita di dalam menjalankan projek.

Akhir sekali, penghargaan kepada Universiti Sains Malaysia, Pusat Pengajian Kejuruteraan Bahan dan Sumber Mineral dan Institut Pengajian Siswazah di atas segala kemudahan-kemudahan yang disediakan.

Salmah

September 2005

JADUAL KANDUNGAN

	Muka surat
PENGHARGAAN	ii
JADUAL KANDUNGAN	iv
SENARAI JADUAL	x
SENARAI RAJAH	xii
SENARAI SIMBOL	xxi
SENARAI SINGKATAN	xxii
SENARAI PENERBITAN DAN SEMINAR	xxiv
ABSTRAK	xxvi
ABSTRACT	xxviii

BAB 1. PENDAHULUAN DAN KAJIAN PERPUSTAKAAN

1.1 Komposit Elastomer Termoplastik (ETP) Yang Diperkuat Pengisi Semula Jadi	1
1.1.1 Potensi <i>Sludge</i> Kertas Sebagai Pengisi Semula Jadi	4
1.2 Komposit Polimer	5
1.2.1 Pengenalan Dan Definisi	5
1.2.2 Pengelasan komposit	6
1.2.3 Kelebihan Komposit	8
1.2.4 Fasa Matriks Bagi Komposit	9
1.2.5 Fasa Pengukuhan Dalam Komposit	11
1.2.6 Antara Muka Pengisi-Matriks	11
1.2.7 Faktor-Faktor Yang Mempengaruhi Sifat Mekanik Komposit	14
1.2.8 Ciri-Ciri Pengisi	16
1.3 Elastomer Termoplastik	19
1.3.1 Pengenalan	19
1.3.2 Pengelasan Elastomer Termoplastik	23
1.3.3 Elastomer Termoplastik Olefin (ETO)	24
1.3.4 Adunan PP/EPDM	25
1.4 Polipropilena	29
1.4.1 Pengenalan Dan Sifat-Sifat Polipropilena	29
1.4.2 Komposit Polipropilena	30

1.5	Getah Etilena Propilena Diena Monomer (EPDM)	32
1.5.1	Pengenalan Dan Sifat-Sifat EPDM	32
1.6	Pengisi <i>Sludge</i> Kertas (SK)	34
1.6.1	<i>Sludge</i> Kertas Dan Komposit <i>Sludge</i> Kertas	34
1.7	Pengisi Kaolin	36
1.7.1	Sifat-Sifat Dan Aplikasi Pengisi Kaolin	36
1.8	Agen Pengserasi Dan Agen Pengkupel	40
1.8.1	Jenis-Jenis Agen Pengserasi Dan Agen Pengkupel	40
1.8.2	Agen Pengserasi	41
1.8.3	Agen Pengkupel	42
1.9	Rawatan Permukaan Pengisi	46
1.10	Analisis Terma	48
1.11	Pemvulkanan Dinamik	49
1.12	Reologi	52
1.12.1	Pengenalan	52
1.12.2	Kepentingan Kajian Reologi	53
1.12.2.1	Aliran Newtonian	54
1.12.2.2	Aliran Bukan Newtonian	55
1.12.3	Kesan Suhu Ke Atas Kelikatan	58
1.12.4	Kesan penambahan Pengisi Dan Partikel Getah Yang Tersambung Silang	59
1.13	Objektif Penyelidikan	63
BAB 2. BAHAN DAN EKSPERIMEN		66
2.1	Bahan-Bahan	66
2.1.1	Polimer	66
2.1.1.1	Polipropilena (PP)	66
2.1.1.2	Etilena Propilena Diena Monomer (EPDM)	66
2.1.2	Pengisi	67
2.1.2.1	Penyediaan <i>Sludge</i> kertas (SK)	67
2.1.2.2	Kaolin	68
2.1.3	Agen Pengserasi Dan Agen Pengkupel	69
2.1.3.1	Agen Pengserasi	69
2.1.3.2	Agen Pengkupel	69

2.1.4 Rawatan Pengisi	70
2.1.4.1 Pengesteran	70
2.1.4.2 Pengasitelan	70
2.1.5 Bahan-Bahan Aditif	71
2.2 Penyebatian	71
2.3 Pengacuanan Mampatan	74
2.4 Jenis-Jenis Ujian	75
2.4.1 Ujian Tensil	75
2.4.2 Ujian Penyerapan Air	76
2.4.3 Ujian Mikroskop Penskanan Elektron	76
2.4.4 Ujian Sinaran Infra Merah Fourier (FTIR)	77
2.4.5 Ujian Analisis Termogravimetri (TGA)	77
2.4.6 Ujian Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	78
2.4.7 Ujian Reologi	79
2.4.7.1 Kaedah Pengambilan Data	79
2.4.7.2 Kaedah Pengolahan Data	80
BAB 3. KESAN PEMBEBANAN PENGISI DAN SAIZ ZARAH PENGISI KE ATAS KOMPOSIT PP/EPDM TERISI SLUDGE KERTAS	82
3.1 Pendahuluan	82
3.2 Keputusan Dan Perbincangan	83
3.2.1 Kesan Terhadap Perkembangan Tork	83
3.2.2 Kekuatan Tensil	85
3.2.3 Pemanjangan Pada Takat Putus	87
3.2.4 Modulus Young	89
3.2.5 Kesan Terhadap Penyerapan Air	90
3.2.6 Kajian Morfologi Permukaan Rekahan	92
3.2.7 Sifat-Sifat Terma	97
3.2.7.1 Analisis Termogravimetri (TGA)	97
3.2.7.2 Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	99
3.2.8 Kajian Reologi Ke Atas Komposit PP/EPDM Terisi Sludge Kertas (SK)	100

BAB 4. PERBANDINGAN KESAN PENGGUNAAN <i>SLUDGE</i> KERTAS DAN KAOLIN SEBAGAI PENGISI DI DALAM KOMPOSIT PP/EPDM	106
4.1 Pendahuluan	106
4.2 Keputusan Dan Perbincangan	107
4.2.1 Kesan Terhadap Perkembangan Tork	107
4.2.2 Kekuatan Tensil	109
4.2.3 Pemanjangan Pada Takat Putus	110
4.2.4 Modulus Young	111
4.2.5 Kesan Terhadap Penyerapan Air	112
4.2.6 Kajian Morfologi Permukaan Rekahan	114
4.2.7 Sifat-Sifat Terma	116
4.2.7.1 Analisis Termogravimetri (TGA)	116
4.2.7.2 Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	118
4.2.8 Kajian Reologi Ke Atas Komposit PP/EPDM Terisi <i>Sludge</i> Kertas (SK) Dan Kaolin	119
BAB 5. KESAN AGEN PENGSERASI DAN AGEN PENGKUPEL KE ATAS KOMPOSIT PP/EPDM TERISI <i>SLUDGE</i> KERTAS	125
5.1 Pendahuluan	125
5.2 Keputusan Dan Perbincangan	126
5.2.1 Kesan Terhadap Perkembangan Tork	126
5.2.2 Kekuatan Tensil	128
5.2.3 Pemanjangan Pada Takat Putus	129
5.2.4 Modulus Young	130
5.2.5 Kesan Terhadap Penyerapan Air	131
5.2.6 Kajian Morfologi Permukaan Rekahan	133
5.2.7 Sifat-Sifat Terma	137
5.2.7.1 Analisis Termogravimetri (TGA)	137
5.2.7.2 Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	139
5.2.8 Kajian Sinaran Infra Merah Fourier (FTIR)	141
5.2.9 Kajian Reologi Ke Atas Komposit PP/EPDM/SK Tanpa Rawatan Dan Dengan Rawatan MAPP atau LICA	145

BAB 6. KESAN RAWATAN KIMIA KE ATAS KOMPOSIT PP/EPDM TERISI <i>SLUDGE</i> KERTAS	151
6.1 Pendahuluan	151
6.2 Keputusan Dan Perbincangan	152
6.2.1 Kesan Terhadap Perkembangan Tork	152
6.2.2 Kekuatan Tensil	154
6.2.3 Pemanjangan Pada Takat Putus	155
6.2.4 Modulus Young	156
6.2.5 Kesan Terhadap Penyerapan Air	157
6.2.6 Kajian Morfologi Permukaan Rekahan	159
6.2.7 Sifat-Sifat Terma	162
6.2.7.1 Analisis Termogravimetri (TGA)	162
6.2.7.2 Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	164
6.2.8 Kajian Sinaran Infra Merah Fourier (FTIR)	166
BAB 7. KESAN PEMVULKANAN DINAMIK DAN BAHAN PENGSERASI KE ATAS KOMPOSIT PP/EPDM TERISI <i>SLUDGE</i> KERTAS	169
7.1 Pendahuluan	169
7.2 Keputusan Dan Perbincangan	170
7.2.1 Kesan Terhadap Perkembangan Tork	170
7.2.2 Kekuatan Tensil	172
7.2.3 Pemanjangan Pada Takat Putus	174
7.2.4 Modulus Young	175
7.2.5 Kesan Terhadap Penyerapan Air	176
7.2.6 Kajian Morfologi Permukaan Rekahan	178
7.2.7 Sifat-Sifat Terma	182
7.2.7.1 Analisis Termogravimetri (TGA)	182
7.2.7.2 Analisis Kalorimeter Imbasan Perbezaan (DSC)	184
7.2.8 Kajian Sinaran Infra Merah Fourier (FTIR)	186
7.2.9 Kajian Reologi Ke Atas Komposit PP/EPDMSK Tanpa Pemvulkanan Dinamik Dan Pemvulkanan dinamik Dengan Agen pengserasi (MAPP)	187

BAB 8. KESIMPULAN DAN CADANGAN KAJIAN LANJUTAN	194
8.1 Kesimpulan	194
8.2 Cadangan Kajian Lanjutan	197
SENARAI RUJUKAN	198
LAMPIRAN	216

SENARAI JADUAL

	Muka surat	
Jadual 2.1	Spesifikasi polipropilena Titan Pro	66
Jadual 2.2	Spesifikasi etilena propilena diena monomer	67
Jadual 2.3	Sifat-sifat fizikal daripada <i>sludge</i> kertas	68
Jadual 2.4	Komposisi kimia <i>sludge</i> kertas	68
Jadual 2.5	Komposisi kimia kaolin	69
Jadual 2.6	Komposisi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas	72
Jadual 2.7	Komposisi komposit PP/EPDM terisi kaolin	72
Jadual 2.8	Turutan penyebatian di dalam setiap komposit	73
Jadual 2.9	Turutan penyebatian di dalam komposit pemvulkanan dinamik.	73
Jadual 2.10	Keadaan pemprosesan pengacuanan mampatan	75
Jadual 3.1	Hubungan suhu akhir perosotan dan jumlah kehilangan berat bagi komposit PP/EPDM/SK dengan pembebanan dan saiz pengisi yang berbeza.	98
Jadual 3.2	Parameter terma DSC bagi komposit PP/EPDM/SK dengan pembebanan dan saiz pengisi yang berbeza	100
Jadual 3.3	Nilai indek hukum kuasa (n) dan tenaga pengaktifan(Ea) bagi komposit PP/EPDM/SK dengan pembebanan pengisi yang berbeza	105
Jadual 4.1	Hubungan suhu akhir perosotan dan jumlah kehilangan berat bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin	117
Jadual 4.2	Parameter terma DSC bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin	119
Jadual 4.3	Nilai indek hukum kuasa (n) dan tenaga pengaktifan (Ea) bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin dengan pembebanan pengisi yang berbeza	124
Jadual 5.1	Hubungan suhu akhir perosotan dan jumlah kehilangan berat bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA, atau 3-APE	139

Jadual 5.2	Parameter terma DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE dengan pembebanan pengisi yang berbeza	140
Jadual 5.3	Nilai indek hukum kuasa (n) dan tenaga pengaktifan (E_a) bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	150
Jadual 6.1	Hubungan suhu akhir perosotan dan jumlah kehilangan berat bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	163
Jadual 6.2	Parameter terma DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	165
Jadual 7.1	Hubungan suhu akhir perosotan dan jumlah kehilangan berat bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	183
Jadual 7.2	Parameter terma DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP dengan pembebanan pengisi yang meningkat	185
Jadual 7.3	Nilai indek hukum kuasa (n) dan tenaga pengaktifan (E_a) bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik dan dengan pemvulkanan dinamik + MAPP	193

SENARAI RAJAH

	Muka surat
Rajah 1.1 Pengelasan komposit	7
Rajah 1.2 Mekanisme penjerapan dan pembasahan	12
Rajah 1.3 Mekanisme resapan	13
Rajah 1.4 Mekanisme daya tarikan elektrostatik	13
Rajah 1.5 Mekanisme pengikatan kimia	14
Rajah 1.6 Mekanisme pengikatan mekanik	14
Rajah 1.7 Skematic bagi struktur partikel, agregat dan aglomerat	18
Rajah 1.8 Pengelasan pengisi	19
Rajah 1.9 Morfologi elastomer termoplastik (ETP)	20
Rajah 1.10 Struktur molekul polipropilena	29
Rajah 1.11 Struktur molekul getah etilena propilena diena monomer	32
Rajah 1.12 Struktur molekul selulosa	35
Rajah 1.13 Struktur molekul kaolin	37
Rajah 1.14 Struktur 3-amino propiltrietoksisilana	43
Rajah 1.15 Struktur agen pengkupel titanat (LICA 12)	44
Rajah 1.16 Struktur organo titanat dan peranannya dalam pengkupelan	44
Rajah 1.17 Mekanisme tindak balas esterifikasi selulosa semula jadi	47
Rajah 1.18 Mekanisme tindak balas asetilasi selulosa semula jadi	47
Rajah 1.19 Skematic fasa morfologi bagi adunan elastomer termoplastik sebelum dan sesudah pemvulkanan dinamik.	50
Rajah 1.20 Canggaan ricih untuk aliran Newtonian pada dua plat yang selari	54
Rajah 1.21 Hubungan $\tau / \dot{\gamma}$ untuk aliran tidak bersandar masa	55
Rajah 1.22 Hubungan $\eta / \dot{\gamma}$ untuk aliran tidak bersandar masa	56

Rajah 1.23	Lakaran kuantitatif daripada pengaruh penambahan pecahan isipadu pengisi ke atas kelikatan aliran	61
Rajah 2.1	Peralatan Haake Reomix Polydrive model R600/610	74
Rajah 2.2	Silinder sepaksi Haake Reomix Polydrive model R 600/610	81
Rajah 3.1	Kesan pembebahan <i>sludge</i> kertas ke atas tork bagi komposit PP/EPDM	84
Rajah 3.2	Kestabilan tork melawan pembebahan pengisi bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas dengan saiz yang berbeza	85
Rajah 3.3	Kesan pembebahan pengisi ke atas kekuatan tensil bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas dengan saiz yang berbeza	86
Rajah 3.4	Skematik pelekatan antara muka di antara rantai elastomer termoplastik dan pengisi <i>sludge</i> kertas berdasarkan saiz zarah	87
Rajah 3.5	Kesan pembebahan pengisi ke atas pemanjangan pada takat putus bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas dengan saiz yang berbeza	88
Rajah 3.6	Kesan pembebahan pengisi ke atas modulus Young bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas dengan saiz yang berbeza	89
Rajah 3.7	Kesan pembebahan pengisi ke atas penyerapan air bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (saiz 63 μm)	90
Rajah 3.8	Keseimbangan penyerapan air melawan pembebahan pengisi bagi komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas dengan saiz yang berbeza.	91
Rajah 3.9	Mikrograf SEM pengisi <i>sludge</i> kertas dengan pembesaran 151X	93
Rajah 3.10	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan adunan PP/EPDM: 50/50 dengan pembesaran 200X	94
Rajah 3.11	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (30% berat, 63 μm) dengan pembesaran 200X	94
Rajah 3.12	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (60% berat, 63 μm) dengan pembesaran 200X	95

Rajah 3.13	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (30% berat, 13 μm) dengan pembesaran 200X	95
Rajah 3.14	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (60%, 13 μm) dengan pembesaran 200X	96
Rajah 3.15	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (30% berat, 218 μm) dengan pembesaran 200X	96
Rajah 3.16	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM terisi <i>sludge</i> kertas (60% berat, 218 μm) dengan pembesaran 200X	97
Rajah 3.17	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit PP/EPDM/SK dengan peningkatan pembebahan pengisi <i>sludge</i> kertas	98
Rajah 3.18	Termogram DSC bagi komposit PP/EPDM/SK (63 μm) dengan peningkatan pembebahan pengisi	100
Rajah 3.19	Kesan pembebahan pengisi ke atas log tork melawan log kelajuan rotor bagi komposit PP/EPDM/SK	101
Rajah 3.20	Kesan pembebahan pengisi ke atas log tegasan ricih melawan log kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK	102
Rajah 3.21	Kesan pembebahan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK	103
Rajah 3.22	Kesan pembebahan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan suhu (1/T) bagi komposit PP/EPDM/SK	104
Rajah 4.1	Kesan pembebahan pengisi kaolin ke atas lengkungan tork bagi komposit PP/EPDM	108
Rajah 4.2	Kestabilan tork melawan pembebahan pengisi bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	109
Rajah 4.3	Kesan pembebahan pengisi ke atas kekuatan tensil bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	110
Rajah 4.4	Kesan pembebahan pengisi ke atas pemanjangan pada takat putus bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin	111
Rajah 4.5	Kesan pembebahan pengisi ke atas modulus Young bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin	112
Rajah 4.6	Kesan pembebahan pengisi ke atas penyerapan air bagi komposit PP/EPDM/Kaolin	113

Rajah 4.7	Keseimbangan penyerapan air melawan pembebanan pengisi bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	114
Rajah 4.8	Mikrograf SEM pengisi kaolin dengan pembesaran 1000X.	115
Rajah 4.9	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/Kaolin (30% berat kaolin) pada pembesaran 200X	115
Rajah 4.10	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/Kaolin (60% berat kaolin) pada pembesaran 200X	116
Rajah 4.11	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin dengan pembebanan pengisi yang meningkat.	117
Rajah 4.12	Termogram DSC bagi komposit PP/EPDM/SK dan komposit PP/EPDM/Kaolin dengan pembebanan pengisi yang meningkat.	119
Rajah 4.13	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tork melawan log kelajuan rotor bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	120
Rajah 4.14	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tegasan ricih melawan log kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	121
Rajah 4.15	Kesan pembebanan pengisi ke atas kelikatan ketara melawan kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	122
Rajah 4.16	Kesan pembebanan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan suhu ($1/T \cdot 10^{-3}$) bagi komposit PP/EPDM/SK dan PP/EPDM/Kaolin	123
Rajah 5.1	Kesan pembebanan pengisi ke atas lengkungan tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	127
Rajah 5.2	Kesan pembebanan pengisi ke atas kestabilan tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	128
Rajah 5.3	Kesan pembebanan pengisi ke atas kekuatan tensil bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	129

Rajah 5.4	Kesan pembebanan pengisi ke atas pemanjangan pada takat putus bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	130
Rajah 5.5	Kesan pembebanan pengisi ke atas modulus Young bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	131
Rajah 5.6	Kesan pembebanan pengisi ke atas penyerapan air bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	132
Rajah 5.7	Kesan pembebanan pengisi ke atas keseimbangan penyerapan air bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	133
Rajah 5.8	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan MAPP (pembesaran 200X)	134
Rajah 5.9	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan LICA (pembesaran 200X)	134
Rajah 5.10	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan 3-APE (pembesaran 200X)	135
Rajah 5.11	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan MAPP (pembesaran 200X)	135
Rajah 5.12	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan LICA (pembesaran 200X)	136
Rajah 5.13	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan rawatan 3-APE (pembesaran 200X)	136
Rajah 5.14	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	138
Rajah 5.15	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan 3-APE	138
Rajah 5.16	Termogram DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP, LICA atau 3-APE	140
Rajah 5.17	Spektra FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	142

Rajah 5.18	Spektra FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan 3-APE	143
Rajah 5.19	Mekanisme tindak balas diantara 3-APE dengan komposit PP/EPDM/SK	143
Rajah 5.20	Mekanisme tindak balas di antara permukaan pengisi sludge kertas dengan MAPP	144
Rajah 5.21	Mekanisme tindak balas agen pengkupel titanat (LICA) dengan permukaan pengisi	145
Rajah 5.22	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tork melawan log kelajuan rotor bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	146
Rajah 5.23	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tegasan rincih melawan log kadar rincih bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	147
Rajah 5.24	Kesan pembebanan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan log kadar rincih bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	148
Rajah 5.25	Kesan pembebanan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan suhu ($1/T \cdot 10^{-3}$) bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan MAPP atau LICA	149
Rajah 6.1	Kesan pembebanan pengisi <i>sludge</i> kertas ke atas lengkungan tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	153
Rajah 6.2	Kesan pembebanan pengisi <i>sludge</i> kertas ke atas kestabilan tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	154
Rajah 6.3	Kesan pembebanan pengisi ke atas kekuatan tensil bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	155
Rajah 6.4	Kesan pembebanan pengisi ke atas pemanjangan pada takat putus bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	156
Rajah 6.5	Kesan pembebanan pengisi ke atas modulus Young bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	157
Rajah 6.6	Kesan pembebanan pengisi ke atas penyerapan air bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	158

Rajah 6.7	Keseimbangan penyerapan air ke atas pembebanan pengisi bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, dengan rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan	159
Rajah 6.8	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK dengan rawatan pengesteran (30% berat <i>sludge</i> kertas) pada pembesaran 200X	160
Rajah 6.9	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK dengan rawatan pengesteran (60% berat <i>sludge</i> kertas) pada pembesaran 200X	160
Rajah 6.10	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK dengan rawatan pengasitelan (30% berat <i>sludge</i> kertas) pada pembesaran 200X	161
Rajah 6.11	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit PP/EPDM/SK dengan rawatan pengasitelan (60% berat <i>sludge</i> kertas) pada pembesaran 200X	161
Rajah 6.12	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan dengan pembebanan pengisi yang meningkat	163
Rajah 6.13	Termogram DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan, rawatan pengesteran dan rawatan pengasitelan pada pembebanan 30% <i>sludge</i> kertas	165
Rajah 6.14	Spektra perbandingan FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan pengesteran	167
Rajah 6.15	Spektra perbandingan FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa rawatan dan dengan rawatan pengasitelan	167
Rajah 6.16	Skematik tindak balas di antara selulosa <i>sludge</i> kertas dan asid akrilik (rawatan pengesteran)	168
Rajah 6.17	Skematik tindak balas di antara selulosa <i>sludge</i> kertas dan asid asetik (rawatan pengasitelan)	168
Rajah 7.1	Kesan pembebanan pengisi <i>sludge</i> kertas ke atas tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik (PD) dan pemvulkanan dinamik dengan agen pengserasi (PD+ MAPP)	171

Rajah 7.2	Kesan pembebanan pengisi ke atas ketabilan tork bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP dengan pembebanan pengisi yang berbeza	172
Rajah 7.3	Kesan pembebanan pengisi ke atas kekuatan tensil bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	173
Rajah 7.4	Skematik pembentukan sambung silang sulfur pada pemvulkanan dinamik	174
Rajah 7.5	Kesan pembebanan pengisi ke atas pemanjangan pada takat putus bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	175
Rajah 7.6	Kesan pembebanan pengisi ke atas modulus Young bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	176
Rajah 7.7	Kesan pembebanan pengisi ke atas penyerapan air bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	177
Rajah 7.8	Keseimbangan penyerapan air melawan pembebanan pengisi bagi komposit tanpa pemvulkanan dinamik, dengan pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	178
Rajah 7.9	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan pemvulkanan dinamik adunan PP/EPDM: 50/50 dengan pembesaran 200X	179
Rajah 7.10	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan pemvulkanan dinamik dengan agen pengserasi (MAPP) adunan PP/EPDM: 50/50 dengan pembesaran 200X	180
Rajah 7.11	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit pemvulkanan dinamik PP/EPDM/SK (30% berat <i>sludge</i> kertas) dengan pembesaran 200X	180
Rajah 7.12	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit pemvulkanan dinamik PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan pembesaran 200X	181
Rajah 7.13	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit pemvulkanan dinamik + MAPP PP/EPDM/SK (30% berat <i>sludge</i> kertas) dengan pembesaran 200X	181

Rajah 7.14	Mikrograf SEM bagi permukaan rekahan komposit pemvulkanan dinamik + MAPP PP/EPDM/SK (60% berat <i>sludge</i> kertas) dengan pembesaran 200X	182
Rajah 7.15	Termogravimetri (TGA) hubungan kehilangan berat melawan suhu bagi komposit pemvulkanan dinamik PP/EPDM/SK dengan pembebanan pengisi yang berbeza	183
Rajah 7.16	Termogram DSC bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik, pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP pada pembebanan pengisi 30% berat <i>sludge</i> kertas	185
Rajah 7.17	Spektra perbandingan FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik	186
Rajah 7.18	Spektra perbandingan FTIR bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik + MAPP	187
Rajah 7.19	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tork melawan log kelajuan rotor bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa dan dengan pemvulkanan dinamik + MAPP	188
Rajah 7.20	Kesan pembebanan pengisi ke atas log tegasan ricih melawan log kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa dan dengan pemvulkanan dinamik + MAPP	189
Rajah 7.21	Kesan pembebanan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan log kadar ricih bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa dan dengan pemvulkanan dinamik + MAPP	190
Rajah 7.22	Kesan pembebanan pengisi ke atas log kelikatan ketara melawan suhu (1/T) bagi komposit PP/EPDM/SK tanpa dan dengan pemvulkanan dinamik + MAPP	191

SENARAI SIMBOL

σ	Tegasan
ε	Terikan
τ	Tegasan ricih
$\dot{\gamma}$	Kadar ricih
η	Kelikatan ketara
E_b	Pemanjangan pada takat putus
M_t	Peratus penyerapan air
W_N	Berat selepas direndam
W_d	Berat sebelum direndam
X_{kom}	Penghabluran komposit
ΔH_f	Haba perlakuran komposit
ΔH_f°	Haba perlakuran daripada penghabluran polipropilena
X_{pp}	Penghabluran komposit
$W_{f pp}$	Nisbah berat polipropilena
C_o	Pemalar yang dipengaruhi oleh geometri peralatan
b	Pemalar ciri daripada leburan polimer
S	Kelajuan rotor
M	Tork
n	Indek hukum kuasa
ΔE_a	Tenaga pengaktifan
R	Pemalar universal gas
T	Suhu
A	Pemalar Arrhenius

SENARAI SINGKATAN

ABS	Akrilonitril butadiena stirena
3- APE	3-amino propiltretoksisilana
ASSP	Abu sekam padi putih
ASTM	American standard of testing method
CAPS	Agen pengkupel sistem pelet
CBS	N-sikloheksil-2-benzol tiazolsulfenamida
DCP	Dikumil peroksida
DCPD	Disiklopentana diena
DHD	Heksadiena
DTG	Terbitan termogravimetri
DSC	Kalorimeter imbasan perbezaan
ENB	Etilena norbonena
EPM	Etilena propilena monomer
EPR	Getah etilena propilena
EPDM	Etilena propilena diena monomer
ETO	Elastomer termoplastik olefin
ETP	Elastomer termoplastik
FTIR	Sinaran infra merah Fourier
HDPE	Polietilena ketumpatan tinggi
HIPS	Polistirena hentaman tinggi
LDPE	Polietilena ketumpatan rendah
LICA	Agen pengkupel cecair
LLDPE	Polietilena linear ketumpatan rendah
MAPP	Polipropilena termaleat
NR	Getah asli
PE	Polietilena

PiB	Poliiisobutilena
PMPPIC	Polimetil polifenil isosianat
PP	Polipropilena
PPG	Polipropilena glikol
PS	Polistirena
SEM	Mikroskop penskanan elektron
TGA	Analisis termogravimetri
TMTD	Tetrametil tiuram disulfida

SENARAI PENERBITAN & SEMINAR

Muka surat

Kertas 1 (Abstrak)	The Effect of Paper Sludge Content and Size on the Properties of Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Journal of Reinforced Plastics & Composites</i> , 24 (2), 147-159, 2005.	216
Kertas 2 (Abstrak)	The Effect of Compatibilizer and Coupling Agent on the Properties of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Polymer plastic Technology & Engineering</i> , 44 , 1- 7, 2005.	217
Kertas 3 (Abstrak)	A Comparison Study on the Effect of Paper Sludge and Kaolin on Properties of Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer Composites. <i>Iranian Polymer Journal, Accepted and in Press</i> .	218
Kertas 4 (Abstrak)	Properties of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the 12th Scientific Conferences Electron Microscopy Society of Malaysia, Langkawi, 15-17th December 2003</i> .	219
Kertas 5 (Abstrak)	The Effect of Paper Sludge Content on Processibility, swelling Bahavior and Morphology of Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the 12th Scientific Conferences Electron Microscopy Society of Malaysia, Langkawi, 15-17th December 2003</i> .	220
Kertas 6 (Abstrak)	The Effect of PPMAH and LICA on Properties of Paper Sludge Filled PP/EPDM Composites. <i>Proceedings of the 3rd USM-JIRCAS Joint International Symposium, Penang, 9-11 March 2004</i>	221
Kertas 7 (Abstrak)	Mechanical Properties, Morphology and Thermal Stability of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the Regional Conference for Young Chemists, Penang, 13-14th April 2004</i> .	222
Kertas 8 (Abstrak)	The Effect of Compatibilizer on the Mechanical Properties on Morphology of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the Regional Conference for Young Chemists,, Penang, 13-14th April 2004</i> .	223

Kertas 9 (Abstrak)	Comparison of Mechanical Properties and Thermal Properties of Paper Sludge and Kaolin Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the 2nd Colloquium on postgraduate Research, National Postgraduate Colloquium on Material, Mineral Resources and Polymer, Penang, 7-8th October 2004</i>	224
Kertas 10 (Abstrak)	The Effect of Silane Based Coupling Agent on the Processibility and Morphology of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings of the 2nd Colloquium on postgraduate Research, National Postgraduate Colloquium on Material, Mineral Resources and Polymer, Penang, 7-8th October 2004</i>	225
Kertas 11 (Abstrak)	Properties of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites: The Effect of MAPP and LICA. <i>Proceedings National Postgraduate Colloquium Chemical Engineering, Penang, 8-9th December 2004.</i>	226
Kertas 12 (Abstrak)	The Effect of Silane Coupling Agent on the Mechanical Properties of paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings National Postgraduate Colloquium Chemical Engineering, Penang, 8-9th December 2004.</i>	227
Kertas 13 (Abstrak)	The Effect of A Silane Coupling Agent on the Properties of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings 13th Scientific Conference electron Microscopy Society of Malaysia, Putrajaya, 13-15th 2004.</i>	228
Kertas 14 (Abstrak)	The Efect of Paper Sludge and Kaolin on Water Absorption and Morphology of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites. <i>Proceedings 13th Scientific Conference electron Microscopy Society of Malaysia, Putrajaya, 13-15th 2004.</i>	229

Pencirian Dan Sifat-Sifat Komposit Polipropilena (PP)/Etilena Propilena Diena Monomer (EPDM) Terisi *Sludge* Kertas

ABSTRAK

Komposit elastomer termoplastik bagi adunan polipropilena (PP) dan getah etilena propilena diena monomer (EPDM) yang diperkuat *sludge* kertas (SK) (PP/EPDM/SK) telah dikaji. Secara keseluruhannya, didapati pembebanan *sludge* kertas yang semakin meningkat telah meningkatkan nilai kestabilan tork, modulus Young, penyerapan air, kestabilan terma dan penghabluran komposit manakala kekuatan tensil dan pemanjangan pada takat putus didapati berkurang. Kesan saiz zarah yang berbeza menunjukkan bahawa komposit PP/EPDM/SK dengan saiz zarah paling kecil (13 μm) mempunyai kekuatan tensil, pemanjangan pada takat putus, modulus Young, penyerapan air dan penghabluran komposit yang lebih tinggi berbanding komposit dengan saiz zarah 63 μm dan 218 μm . Kestabilan terma komposit tidak menunjukkan berbezaan yang ketara untuk ketiga-tiga saiz zarah *sludge* kertas yang digunakan. Komposit PP/EPDM/Kaolin menunjukkan kekuatan tensil, pemanjangan pada takat putus dan kestabilan terma yang lebih tinggi tetapi penyerapan air yang lebih rendah berbanding komposit PP/EPDM/SK. Sebaliknya komposit PP/EPDM/SK pula menunjukkan modulus Young dan penghabluran komposit yang lebih tinggi berbanding komposit PP/EPDM/Kaolin. Agen pengserasi, MAPP dan agen pengkupel LICA 12 atau 3-APE digunakan untuk meningkatkan sifat-sifat mekanikal komposit. Kehadiran MAPP, LICA 12 atau 3-APE telah meningkatkan kekuatan tensil, modulus Young, kestabilan terma, penghabluran komposit kecuali pemanjangan pada takat putus dan penyerapan air yang didapati semakin berkurang. Kajian mikroskop penskanan elektron (SEM) menunjukkan bahawa kehadiran MAPP, LICA 12 atau 3-APE telah meningkatkan interaksi antara muka pengisi-matrik. Komposit dengan rawatan pengesteran dan pengasitan menunjukkan peningkatan di

dalam kekuatan tensil, pemanjangan pada takat putus, modulus Young, kestabilan terma dan penghabluran komposit tetapi penyerapan air didapati berkurang. Morfologi SEM menunjukkan komposit dengan rawatan pengesteran dan pengasitelan menghasilkan penyebaran pengisi di dalam matrik yang lebih baik. Pemvulkanan dinamik dan pemvulkanan dinamik dengan agen pengserasi MAPP dilakukan dengan menggunakan kepekatan sulfur yang tetap. Didapati bahawa sambung silang dinamik telah meningkatkan sifat-sifat mekanikal dan sifat-sifat terma. Peningkatan ini dihubungkan kepada kehadiran sambung silang pada fasa getah dan keserasian pada fasa plastik yang ditunjukkan dengan pengurangan penyerapan air oleh komposit PP/EPDM/SK.

Kesan kelajuan rotor dan suhu terhadap kelakuan reologi komposit telah juga dikaji. Peningkatan pembebanan pengisi telah meningkatkan kadar ricih, tegasan ricih, kelikatan ketara dan tenaga pengaktifan (E_a) tetapi mengurangkan indek hukum kuasa (n). Komposit PP/EPDM/SK adalah pseudoplastik dan memberikan fenomena elastik, di mana menunjukkan ciri-ciri reologi leburan polimer atau cecair. Komposit berasaskan *sludge* kertas mempunyai sifat-sifat reologi lebih tinggi berbanding komposit berasaskan kaolin. Penambahan agen pengserasi, MAPP dan agen pengkupel, LICA 12 telah meningkatkan sifat-sifat reologi berbanding komposit tanpa rawatan. Pemvulkanan dinamik dengan agen pengserasi, MAPP meningkatkan kelikatan lebur komposit. Komposit berpengisi tervulkan dengan MAPP menunjukkan kelakuan pseudoplastik berbanding komposit tidak tervulkan.

Characterization and Properties of Paper Sludge Filled Polypropylene (PP)/Ethylene Propylene Diene Terpolymer (EPDM) Composites

ABSTRACT

Composite of thermoplastic elastomer blend of polypropylene (PP) and ethylene propylene diene monomer rubber reinforced paper sludge (PS) (PP/EPDM/SK) was investigated. In general, increase in paper sludge loading have increased the value of stabilization torque, Young's modulus, water absorption, thermal stability and crystallinity of composite, whereas tensile strength and elongation at break reduced. The effect of different particle size of PP/EPDM/PS composite with smaller size (13 μm) showed the higher tensile strength, elongation at break, Young's modulus, water absorption and crystallinity of composites than composites with particle size of 63 μm and 218 μm . For all particle size the thermal stability was similar. Comparison of PP/EPDM/Kaolin composite showed the higher tensil strength, elongation at break and thermal stability but lower water absorption than PP/EPDM/PS. However, PP/EPDM/PS composites have higher Young's modulus and crystallinity of composite compared to PP/EPDM/Kaolin composites. A compatibilizer, MAPP and coupling agent, LICA 12 or 3-APE were used to improve the mechanical properties of the composites. The presence of MAPP, LICA 12 or 3-APE improved tensile strength, Young's modulus, thermal stability, crystallinity of composites, whereas elongation at break and water absorption reduced. Result from scanning electron microscopy (SEM) showed that filler-matrix interaction was improved with incorporation of MAPP, LICA 12 or 3-APE. Esterification and acetylation of paper sludge in PP/EPDM composite increased tensile strength, elongation at break, Young's modulus, thermal stability and crystallinity composite but water absorption reduced. Morphology by SEM analysis indicates that esterified and asetylated composites show better filler dispersion in matrix. The effect of dynamic vulcanization and dynamic vulcanization with compatibilizer, MAPP have increased mechanical and thermal properties. It was

attributed to the crosslinking in EPDM phase and compatibility in plastic phase, which showed reduced water absorption of PP/EPDM/SK composites.

The effect of rotor speed and temperature on rheological behavior of composite was also studied. Increased paper sludge loading has increased shear rate, shear stress, apparent viscosity and activation energy (E_a) but power law index (n) decreased. PP/EPDM/PS composites are pseudoplastic in nature and exhibit elastic phenomenon. It was found that paper sludge based composites have slightly higher melt viscosity than kaolin based composites. Incorporation compatibilizer, MAPP and coupling agent LICA12 increased rheology behavior: shear rate, shear stress, apparent viscosity, activation energy (E_a) and power law index (n) than untreated composite. The dynamic vulcanization with MAPP compatibilizer increased melt viscosity of the composites. Dynamic vulcanization with MAPP filled composites showed pseudoplastic behavior compared to unvulcanized composites.

**PENCIRIAN DAN SIFAT-SIFAT KOMPOSIT
POLIPROPILENA (PP)/ETILENA PROPILENA
DIENA MONOMER (EPDM) TERISI SLUDGE
KERTAS**

SALMAH

UNIVERSITI SAINS MALAYSIA

September 2005

BAB 1. PENDAHULUAN DAN KAJIAN PERPUSTAKAAN

1.1 Komposit Elastomer Termoplastik (ETP) Yang Diperkuat Pengisi Semula Jadi

Penghasilan bahan baru menerusi pengadunan fizikal pelbagai polimer telah menjadi semakin popular kerana mempunyai beberapa kelebihan antaranya ialah memperoleh sifat yang dikehendaki berdasarkan kegunaan akhir, keupayaan untuk meningkatkan sifat tertentu dan memperoleh sifat yang tidak terdapat di dalam polimer tunggal serta kelebihan-kelebihan apabila digunakan dalam keadaan servis (Ultracki, 1990; Folkes & Hope, 1993; Mathew *et al.*, 1998). Walau bagaimanapun, kelebihan dari segi ekonomi yang diperoleh melalui teknologi ini di mana bahan-bahan yang mempunyai sifat-sifat yang dikehendaki tetapi dengan kos yang rendah merupakan faktor utama kepada perkembangannya (Ultracki, 1990; Walker & Rader, 1988). Antara pelbagai jenis adunan polimer yang semakin mendapat perhatian adalah seperti adunan elastomer-elastomer, plastik-plastik dan elastomer termoplastik (ETP) kerana ciri-ciri pemprosesannya yang sama seperti termoplastik dan sifat teknikalnya yang sama seperti elastomer tervulkan (De & Bhowmick, 1990; Elliot, 1990).

Lazimnya pengisi ditambahkan kepada elastomer termoplastik (ETP) sama ada untuk meningkatkan sifat tertentu, untuk mengurangkan kos bahan atau mencapai kedua-dua objektif secara serentak. Ini adalah meningkatnya kesedaran berkaitan masalah pelupusan sisa pertanian dan industri dan penggunaan pengisi yang mempunyai kos yang rendah. Kesannya bahan-bahan buangan yang mendatangkan masalah kepada persekitaran ini telah berjaya ditukar menjadi bahan-bahan industri yang berguna. Di samping itu pengisi semula jadi banyak digunakan untuk menggantikan pengisi bukan organik, kerana mempunyai kelebihan yang banyak di antaranya: sumber yang tidak terhad, kosnya murah, mudah diperoleh, senang untuk

dilakukan pengolahan kimia dan mekanik, dan tidak membahayakan kesihatan (Hanafi, 2000).

Joseph et al. (1996) telah melaporkan kelebihan penggunaan pengisi semula jadi di dalam matrik termoplastik. Mereka mengatakan bahawa komposit termoplastik gentian semula jadi adalah lebih ekonomik daripada komposit termoplastik lain untuk dihasilkan. Selain itu menurut *Joseph et al.* (1996) penggunaan gentian semula jadi di dalam termoplastik mempunyai manfaat yang tinggi kerana kekuatan dan keliatan plastik boleh ditingkatkan. Akan tetapi kekurangan pelekatan antara muka dan rintangan penyerapan air telah menghadkan penggunaan pengisi semula jadi. Masalah ini boleh diatasi dengan pengolahan pengisi dengan bahan kimia yang sesuai.

Penggunaan elastomer yang murah dan termoplastik yang mahal akan menghasilkan pengurangan dari segi kos bahan, disamping dapat meningkatkan beberapa sifat mekanik seperti kekuatan hentaman dan sifat-sifat tensil (Saroop & Mathur, 1997a). Di samping itu penambahan bahan aditif yang murah juga dapat mengurangkan kos bahan, ini termasuklah penggunaan pengisi pengukuh dan pengisi bukan pengukuh.

Banyak kajian telah dilakukan menggunakan bahan-bahan semula jadi sebagai pengisi di dalam elastomer, plastik dan elastomer termoplastik (ETP). Kelapa sawit, abu sekam padi, gentian jut, serbuk kayu getah, abu sekam padi putih dan partikel-partikel sisa getah telah digunakan sebagai pengisi di dalam elastomer, plastik dan elastomer termoplastik (*Mohd. Ishak et al.*, 1998; *Rozman et al.*, 1998; *Ismail et al.*, 1999a; *Ismail et al.*, 1997; *Ahmad Fuad et al.*, 1994; *Ismail et al.*, 2003a; *Siriwardena et al.*, 2001; *Minh Tan*, 1997). Kegunaan pelbagai pengisi ini menunjukkan peningkatan di dalam modulus tensil dan kekerasan, di mana kekuatan tensil berkurang dengan pembebanan pengisi.

Ismail *et al.* (2001a) telah mengkaji pem vulkanan dinamik adunan polipropilena/getah asli terisi serbuk kayu getah. Mereka melaporkan bahawa dengan peningkatan dari 0 hingga 2 % berat sulfur didapati meningkatkan kekuatan tensil, modulus Young dan modulus fleksur.

Ismail *et al.* (2001b) juga telah mengkaji kesan bahan pengserasi propilena- etilena-akrilik asid (PPEAA) terhadap sifat-sifat mekanikal dan pembengkakan bahan dengan menggunakan adunan getah asli (NR)/LLDPE terisi abu sekam padi putih (ASPP). Mereka mendapati bahawa peningkatan ASPP di dalam adunan NR/LLDPE telah mengakibatkan penurunan terhadap kekuatan tensil, pemanjangan pada takat putus dan pembengkakan bahan manakala modulus tensil dan kekerasannya didapati meningkat. Pada pembebanan pengisi yang sama dan dengan kehadiran PPEAA, kekuatan tensil, modulus tensil, kekerasan dan pemanjangan pada takat putus meningkat manakala pembengkakan bahan menurun.

Siriwardena *et al.* (2001) telah mengkaji kesan pencampuran dalam penyediaan adunan polipropilena (PP)/etilena propilena diena monomer (EPDM) terisi abu sekam padi putih (ASPP). Mereka melaporkan bahawa kesan pencampuran untuk semua adunan menunjukkan keputusan yang sama di dalam kekuatan tensil, kekuatan cabikan dan kekerasan pada pencampuran adunan selama 10 minit kecuali pada masa pencampuran 4 minit. Adunan dengan masa pencampuran 4 minit menunjukkan kekuatan tensil yang paling tinggi dan pemanjangan takat putus yang paling rendah.

Kajian yang telah dijalankan oleh beberapa penyelidik (Siriwardena *et al.*, 2001; Ismail *et al.*, 2001a dan Ismail *et al.*, 2003a) mendapati pengisi semula jadi tidak serasi dengan bahan polimer. Hal ini disebabkan oleh perbezaan kepolaran bahan-bahan tersebut di mana bahan polimer merupakan bahan yang bersifat hidrofobik sedangkan pengisi semula jadi adalah bersifat hidrofilik. Oleh kerana itu beberapa langkah telah

diambil dalam mengatasi masalah ini antaranya ialah dengan menggunakan agen pengserasi, melakukan rawatan pengisi dengan bahan kimia yang sesuai dan penggunaan agen pengkupel.

1.2. Potensi *Sludge* Kertas Sebagai Pengisi Semula Jadi

Sejak akhir-akhir ini, penggunaan *sludge* kertas sebagai pengisi di dalam termoplastik semakin mendapat perhatian para penyelidik (Jang *et al.*, 2000; Jang *et al.*, 2001; Son *et al.*, 2001). *Sludge* kertas (SK) merupakan salah satu bahan selulosa yang dapat digunakan sebagai pengukuh di dalam komposit termoplastik.

Sludge kertas merupakan sisa buangan daripada pemprosesan kertas dan pulpa telah membawa masalah kepada persekitaran, kerana jumlah yang banyak dihasilkan di dalam proses pembuatan kertas (Liaw *et al.*, 1998; Boni *et al.*, 2004). Secara umumnya, kebanyakan *sludge* kertas memerlukan tempat pembuangan dan hanya sebahagian dibakar atau digunakan untuk pertanian. *Sludge* kertas mengandungi dua komposisi iaitu bahan organik (59% terdiri daripada selulosa, hemiselolusa dan lignin) dan bahan bukan organik (41%) seperti kaolin dan kalsium karbonat yang ditambahkan pada pemprosesan untuk mengurangkan kos.

Penggunaan pengisi-pengisi pengukuh semula jadi ini untuk mengurangkan kos bahan dan meningkatkan keupayaan sifat-sifat komposit adalah meningkat di dalam bidang komposit polimer. Di dalam pembuatan komposit, gentian selulosa semakin mendapat perhatian kerana keupayaannya sebagai pengisi pengukuh untuk polimer-polimer termoplastik dengan titik peleburan rendah seperti polipropilena (PP), polietilena ketumpatan tinggi (HDPE) dan polietilena berketumpatan rendah (LDPE). Selain itu komposit termoplastik berasaskan *sludge* kertas mempunyai kelebihan seperti kekuatan dan kekerasan yang tinggi, kelenturan semasa pemprosesan dengan kurang lelasan kepada peralatan, ketumpatan rendah, perosotan biologi dan kos yang

murah. Sebagai pengisi di dalam termoplastik, *sludge* kertas mempunyai kegunaan yang luas dan semakin berkembang, di samping mempunyai kos yang murah dan sifat pengubah suai daripada kedua pengisi organik dan bukan organiknya, dan yang paling penting masalah persekitaran dapat diatasi secara nyata dan untuk mengubah bahan buangan menjadi sesuatu bahan yang mempunyai nilai dapat direalisasikan.

1.2 Komposit Polimer

1.2.1. Pengenalan Dan Definisi

Komposit adalah bahan pepejal yang dihasilkan daripada gabungan dua atau lebih bahan yang berlainan untuk memperoleh ciri-ciri yang lebih baik yang tidak dapat diperoleh oleh setiap komponennya. Komposit yang dihasilkan bukan sahaja mempunyai sifat mekanik yang lebih baik, tetapi juga sifat kimia, sifat terma dan pelbagai sifat yang lain. Sebenarnya komposit mula digunakan oleh manusia sejak awal abad ke-12. Hari ini pelbagai barang sama ada untuk keperluan harian atau kegunaan kejuruteraan adalah diperbuat daripada bahan komposit termasuklah dalam bidang penerbangan, pembinaan, automobil, peralatan sukan, perabot dan lain-lain lagi.

Sebenarnya terdapat pelbagai jenis komposit, sebagai contoh komposit logam, komposit seramik, komposit konkrit dan komposit plastik yang diperkuat dengan pelbagai gentian. Jadi, komposit yang dihasilkan adalah bergantung pada bahan matriks yang digunakan, iaitu berasaskan logam, bahan organik dan bukan organik. Setiap komposit ini adalah berbeza dari segi sifat masing-masing kerana bergantung pada jenis pengisi atau bahan penguatan yang digunakan.

Secara umumnya, tiada definisi yang khusus untuk komposit. Tetapi terdapat tiga pendekatan telah diterima pakai untuk mendefinisikan bahan komposit iaitu: (Hull, 1992; Nielsen, 1974; Schwartz, 1992)

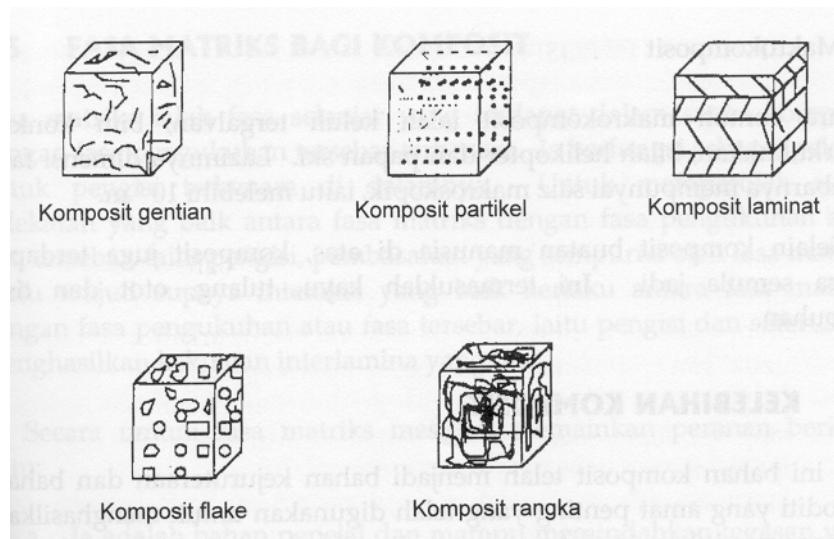
- a. Komposit mengandungi dua atau lebih bahan yang dapat dipisahkan secara fizik dan mekanik.
- b. Komposit boleh dihasilkan dengan mencampurkan bahan-bahan juzuk yang berlainan sehingga sampai kepada suatu peringkat dengan salah satu bahan juzuk tersebar dalam bahan juzuk yang satu lagi dengan kaedah yang terkawal agar suatu sifat yang optimum diperoleh.
- c. Sifat komposit yang terhasil adalah lebih baik dan mungkin unik dalam aspek tertentu berbanding komponen-komponen juzuknya.

Bahan terbesar yang dinyatakan dalam (b) di atas dikenali sebagai fasa tersebar manakala fasa yang tersebar terbenam kecuali sebagai fasa matriks. Kedua-dua fasa dipisahkan oleh antara muka.

1.2.2. Pengelasan Komposit

Seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 1.1, komposit boleh dikelaskan kepada lima jenis berdasarkan konstituennya, iaitu:

- a. Komposit gentian yang terdiri daripada gentian dengan atau tanpa matriks
- b. Komposit kepingan yang terdiri daripada kepingan dengan atau tanpa matriks
- c. Komposit partikel yang terdiri daripada partikel dengan atau tanpa matriks.
- d. Komposit terisi atau komposit rangka yang terdiri daripada matriks rangka berselanjut yang terisi dengan bahan kedua.
- e. Komposit laminat yang terdiri daripada konstituen lapisan atau laminat.



Rajah 1.1 Pengelasan komposit

Komposit juga boleh dikelaskan berdasarkan sifat dan dimensi fasa tersebarnya, iaitu: (Hull, 1992).

a. Mikrokomposit

Dimensi fasa tersebar adalah mikrokomposit yang mempunyai saiz dalam julat 10^{-8} – 10^{-6} m. Ia boleh dibahagikan kepada tiga jenis berdasarkan saiz dan bentuk fasa tersebar, iaitu:

- i. Mikrokomposit menggunakan penguatan sebaran
- ii. Mikrokomposit menggunakan penguatan zarahan
- iii. Mikrokomposit menggunakan penguatan gentian

Untuk penguatan sebaran, matriks adalah terdiri daripada logam atau aloi manakala penguatan zarahan dan gentian pula, matriks adalah terdiri daripada logam, polimer atau seramik. Contoh mikrokomposit ialah aloi logam dan termoplastik yang diperkuuhkan seperti polistirena hentaman tinggi (HIPS) dan akrilonitril butadiena stirena (ABS).

b. Makrokomposit

Antara contoh makrokomposit ialah keluli tergalvan, bim konkrit diperkuuhkan, bilah helikopter dan papan ski. Lazimnya dimensi fasa tersebarnya mempunyai saiz makroskopik, iaitu melebihi 10^{-6} m.

Selain komposit buatan manusia di atas, komposit juga terdapat secara semula jadi. Ini termasuklah kayu, tulang, otot dan tisu tumbuhan.

1.2.3 Kelebihan Komposit

Bahan komposit telah menjadi bahan kejuruteraan dan bahan komoditi yang sangat penting yang telah digunakan untuk menghasilkan pelbagai produk seperti tayar yang diperkuat gentian, tangki air, paip, kabel, komponen-komponen kapal terbang, kapal dan lain-lain lagi. Ini kerana bahan komposit mempunyai banyak kelebihan dan keistimewaan dari segi sifat mekanik, fizik, terma dan kimianya. Antaranya ialah:

- a. sifat kekuatan,kekakuan dan keliatan ditingkatkan.
- b. kestabilan dimensi dan suhu erotan haba ditingkatkan.
- c. peningkatan modulus spesifik (modulus/ketumpatan) dan kekuatan spesifik (kekuatan/ketumpatan) telah menyebabkan berat komposit semakin berkurang.
- d. peningkatan rintangan ketelapan terhadap gas dan cecair, iaitu rintangan kimia dipertingkatkan.
- e. kos pengeluaran dapat dikurangkan kerana bahan yang digunakan telah berkurang.

Kelebihan faktor [c] di atas sangat penting dalam penghasilan pelbagai komponen automotif yang mana pengurangan berat sudah pasti akan menjimatkan tenaga dan meningkatkan keefisienan produk yang menggunakan bahan komposit. Tetapi perlu diingat bahawa kesemua sifat di atas tidak dapat diperolehi secara

serentak dalam bahan komposit yang sama. Sebagai contoh, peningkatan sifat kekakuan dan kekuatan lazimnya pada masa yang sama akan mengurangkan keliatan bahan komposit tersebut. Jadi tahap optimum sifatnya hendaklah dicapai dan ia bergantung pada keperluan penggunaannya.

1.2.3. Fasa Matriks Bagi Komposit

Fasa matriks ialah fasa selanjar yang terdapat dalam suatu komposit dengan fasa pengukuhan tersebar terbenam. Ia berfungsi sebagai pelekat untuk pengisi terbenam di dalamnya. Untuk memperoleh suatu pelekatkan yang baik antara fasa matriks dengan fasa pengukuhan atau fasa tersebar, iaitu pengisi, pembasahan yang sempurna oleh fasa matriks perlu wujud supaya interaksi yang baik berlaku antara fasa matriks dengan fasa pengukuhan atau fasa tersebar, iaitu pengisi dan seterusnya menghasilkan kekuatan interlamina yang baik.

Secara umum fasa matriks mestilah memainkan peranan berikut, iaitu:

- a. Ia adalah bahan pepejal dan mampu memindahkan tegasan yang dikenakan kepada fasa tersebar atau fasa pengukuhan yang berfungsi sebagai media alas beban (Hull, 1992; Schwartz, 1992; Varma & Argawal, 1991). Di samping itu, fasa matriks hendaklah berupaya mengagihkan beban yang dikenakan semasa fasa pengukuhan yang berdekatan.
- b. Ia berupaya menjaga fasa pengukuhan atau fasa tersebar daripada kerosakan oleh agen perosotan persekitaran seperti haba dan lembapan. Contoh pengisi yang mengalami kakisan lembapan ialah gentian kaca dan poliester (Kennedy & Kelly, 1996).
- c. Sebagai pengikat yang memegang fasa pengukuhan atau fasa tersebar bagi menghasilkan antara muka fasa matriks dan fasa pengukuhan yang kuat (Nielsen, 1974; Kennedy & Kelly, 1996)

Menurut Richardson (1987), terdapat pelbagai bahan matriks yang boleh digunakan dalam komposit, iaitu polimer, logam, seramik, kaca dan karbon. Walau bagaimanapun, bahan yang digunakan sebagai fasa matriks mestilah berupaya memainkan peranan yang telah disebutkan terdahulu dan pemilihannya sebagai fasa matriks tertakluk kepada faktor-faktor berikut:

- a. Keserasiannya dengan fasa pengukuhan atau fasa tersebar kerana ia akan menentukan interaksi antara muka fasa matriks-fasa pengukuhan (pengisi).
- b. Sifat akhir komposit yang dihasilkan.
- c. Keperluan penggunaan seperti julat suhu penggunaan dan rintangan terhadap persekitaran penggunaannya seperti rintangan terhadap lembapan dan rintangan terhadap pelarut.
- d. reka bentuk komponen yang dihasilkan.
- e. Kemudahan fabrikasi atau pemprosesan
- f. Kos penghasilan.

Polimer lebih banyak digunakan kerana mempunyai beberapa kelebihan iaitu :

- a. Ia lebih senang diproses.
- b. Ia mempunyai sifat mekanik dan dielektrik yang baik.
- c. Ia merupakan bahan ketumpatan rendah.
- d. Ia mempunyai suhu pemprosesan yang yang lebih rendah berbanding suhu pemprosesan logam.

Komposit jenis polimer boleh dibahagikan kepad tiga jenis iaitu (Alger, 1989) :

- a. Komposit yang terdiri daripada gabungan polimer-polimer.
- b. Komposit yang terdiri daripada gabungan polimer-gas, iaitu polimer yang berkembang, berstruktur sel atau busa.
- c. Komposit yang terdiri daripada gabungan polimer-pengisi yang terdiri daripada komposit polimer-gentian atau polimer-zarahan.

1.2.4. Fasa Pengukuhan Dalam Komposit.

Fasa pengukuhan atau fasa tersebar merupakan bahan bersifat lengai dalam bentuk gentian, partikel, kepingan, pengisi dan lamina yang ditambahkan untuk meningkatkan sifat mekanik dan fizik komposit seperti meningkatkan sifat kekuatan, kekakuan dan keliatan. Antara sifat yang boleh diperoleh hasil penggunaan fasa pengukuhan atau fasa tersebar terutamanya pengisi unggul ialah: (Richardson, 1987)

- a. Peningkatan maksimum dalam sifat fizik.
- b. Penyerapan kelembapan yang rendah.
- c. Sifat pembasahan yang baik.
- d. Kos yang rendah dan mudah diperoleh.
- e. Rintangan api yang baik.
- f. Rintangan kimia yang baik.
- g. Sifat keterlarutan dalam air dan pelarut yang rendah.
- h. Rintangan haba yang baik.
- i. Sifat penyerakan yang baik.
- j. Dapat diperoleh dalam pelbagai saiz.

Antara pelbagai jenis pengisi fasa pengukuhan yang lazim digunakan dalam komposit ialah gentian kaca, gentian karbon, gentian kevlar dan gentian semula jadi seperti jut, kelapa, tandan kelapa sawit, kayu getah, serbuk kayu dan lain-lain lagi.

1.2.6. Antara Muka Pengisi-Matriks

Lazimnya untuk semua bahan komposit akan terdapat dua fasa berlainan yang dipisahkan oleh suatu kawasan yang dinamakan antara muka. Daya sentuhan dan daya kohesif pada bahagian antara muka sangat penting kerana antara muka pengisi-matriks ialah bahagian yang memindahkan tegasan daripada fasa matriks kepada fasa pengukuhan atau fasa tersebar (Hull, 1992; Hollyday, 1996). Keberkesanan pemindahan tegasan ini bergantung pada daya ikatan yang wujud pada antara muka.

Ada pelbagai teori yang menerangkan pengikatan pada antara muka dan kebanyakannya melibatkan ikatan kimia atau mekanik. Menurut Hull (1992) dan Schwartz (1992) terdapat lima mekanisme yang boleh berlaku pada antara muka, sama ada secara bersendirian atau secara gabungan. Lima mekanisme tersebut ialah:

- Penjerapan dan pembasahan.

Rajah 1.2 menunjukkan mekanisme penjerapan dan pembasahan. Untuk pembasahan pengisi yang berkesan, leburan fasa matriks (resin) perlulah menutupi seluruh permukaan pengisi agar udara dapat disingkirkan. Mekanisme ini diberikan oleh persamaan termodinamik yang melibatkan tenaga permukaan dalam bentuk kerja pelekatan, iaitu:

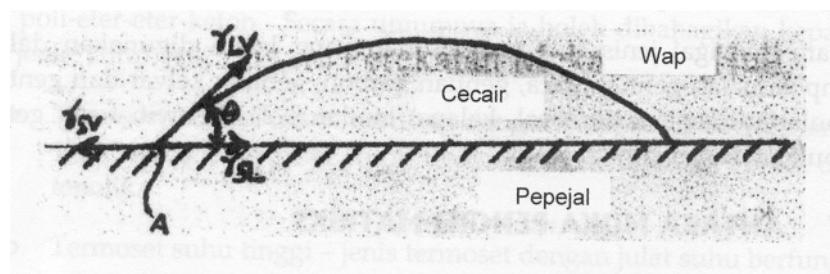
$$W_A = \gamma_{SV} + \gamma_{LV} + \gamma_{SL} \quad (1.1)$$

Dimana γ_{SV} = Tenaga bebas permukaan bagi antara muka pepejal-wap

γ_{LV} = Tenaga bebas permukaan bagi antara muka pepejal-cecair

γ_{SL} = Tenaga bebas permukaan bagi antara muka cecair-wap

W_A ialah ikatan fizikal yang disebabkan daya penyerakan antara molekul setempat yang boleh tersebar dan fasa pengukuhan.

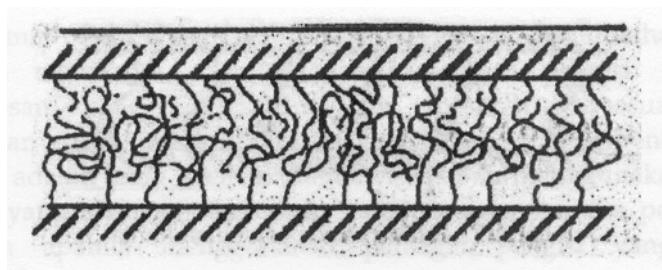


Rajah 1.2. Mekanisme penjerapan dan pembasahan (Hull,1992)

(b) Resapan

Rajah 1.3 menunjukkan mekanisme resapan. Menurut mekanisme ini, suatu ikatan akan terbentuk apabila molekul-molekul polimer meresap dari satu permukaan ke dalam struktur molekul permukaan yang satu lagi. Kekuatan ikatannya bergantung

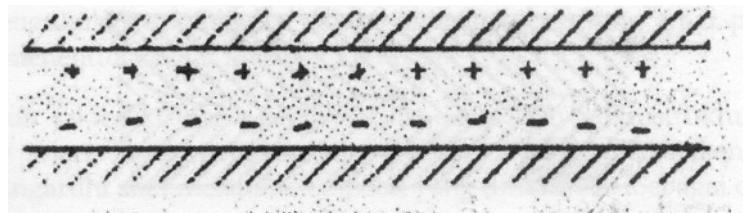
pada jumlah kekusutan molekul dan jumlah molekul yang terlibat. Jumlah resapan bergantung pada konformasi molekul, konstituen yang terlibat dan kemudahan pergerakan molekul. Selain itu, resapan juga boleh ditingkatkan dalam kehadiran pelarut dan pemplastik.



Rajah 1.3. Mekanisme resapan (Hull,1992)

(c) Daya tarikan elektrostatik

Rajah 1.4 menunjukkan mekanisme daya tarikan elektrostatik. Pengikatan daya tarikan elektrostatik terhasil apabila wujudnya perbezaan cas elektostatik antara dua konstituen. Kekuatan pengikatan bergantung pada ketumpatan perbezaan cas antara dua konstituen ini. Mekanisme ini tidak begitu menyumbang kepada ikatan antara muka kecuali apabila agen pengkupel digunakan.

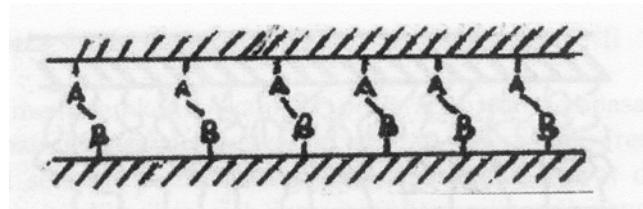


Rajah 1.4. Mekanisme daya tarikan elektrostatik (Hull,1992)

(d) Pengikatan Kimia

Mekanisme pengikatan kimia ditunjukkan dalam Rajah 1.5. Pengikatan kimia berlaku apabila komposit digunakan bersama-sama agen gandingan atau bahan pengserasi. Pengikatan terbentuk sebagai hasil tindak balas kimia antara kumpulan

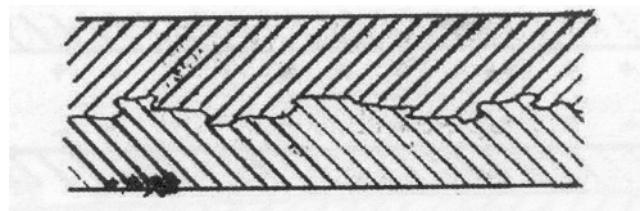
kimia di atas permukaan pengisi (fasa pengukuhan) dengan kumpulan kimia yang serasi dengan matriks. Kekuatan pengikatannya bergantung pada bilangan dan jenis ikatan kimia.



Rajah 1.5. Mekanisme pengikatan kimia (Hull,1992)

(e) Pengikatan mekanik

Rajah 1.6 menunjukkan mekanisme pengikatan mekanik. Pengikatan mekanik berlaku secara *interlocking* mekanik apabila geometri permukaan fasa matriks dan fasa pengukuhan (pengisi) tidak rata. Walau bagaimanapun, kekuatan pada arah tegangan melintang adalah lemah berbanding pada arah tegangan menegak atau mod ricih. Antara faktor yang mempengaruhi pengikatan mekanik ialah kekasaran permukaan (faktor utama dan terpenting), aspek geometri, tegasan dalaman dan tegasan baki yang terhasil semasa proses fabrikasi.



Rajah 1.6. Mekanisme pengikatan mekanik (Hull,1992)

1.2.7. Faktor-Faktor Yang Mempengaruhi Sifat Mekanik Komposit

Secara umum terdapat dua faktor utama yang mempengaruhi sifat mekanik komposit, iaitu:

- a. keadaan pemprosesan
- b. kesan mikrostruktur

Tiga parameter penting bagi keadaan pemprosesan ialah suhu, masa dan tekanan. Ketiga-tiga parameter ini perlulah mencapai takat optimum supaya leburan polimer akan mempunyai kelikatan atau sifat aliran yang dikehendaki bagi membolehkan pembasahan matriks ke atas pengisi atau fasa pengukuhan yang sempurna. Pembasahan yang optimum oleh fasa matriks sangat penting bagi memastikan kecekapan pemindahan tegasan dari fasa matriks ke atas pengukuhan, iaitu pengisi. Tekanan pemprosesan yang digunakan juga mestilah bersesuaian bagi memastikan ruang udara atau kecacatan mikro yang terbentuk dalam komposit adalah amat kecil terutamanya apabila menggunakan matriks termoset yang akan membebaskan bahan meruap semasa pematangan dan juga apabila menggunakan pelbagai pengisi yang bersifat higroskopik.

Sebenarnya kesan mikrostruktur ke atas komposit yang dihasilkan mempunyai hubungan yang rapat dengan keadaan pemprosesan. Pemilihan tekanan dan suhu yang digunakan akan mempengaruhi taburan orientasi dan taburan panjang fasa pengukuhan terutama pengisi yang terdiri daripada gentian semula jadi dan sintetik. Sebagai contoh, suhu yang digunakan akan mempengaruhi kelikatan leburan matriks polimer dan menyebabkan pematahan gentian berlaku. Tekanan yang tinggi juga akan menyebabkan pematahan gentian tetapi akan menghasilkan orientasi yang lebih tinggi. Taburan panjang dan orientasi fasa pengukuhan adalah dua faktor mikrostruktur yang amat penting dalam menentukan sifat mekanik komposit.

Selain faktor keadaan pemprosesan dan kesan mikrostruktur, sifat matriks dan fasa pengukuhan (pengisi) yang digunakan juga mempengaruhi sifat mekanik komposit yang dihasilkan. Sebagai contoh, matriks termoset mempunyai kekuatan yang lebih

baik berbanding matrik termoplastik atau elastomer termoplastik (ETP). Begitu juga apabila menggunakan gentian kevlar yang lebih liat berbanding gentian kaca. Faktor-faktor lain yang juga sangat penting ialah geometri pengisi atau gentian (fasa pengukuhan), iaitu nisbah aspeknya (l/d , iaitu panjang gentian/ diameter gentian) dan pecahan isi padu fasa pengukuhan. Lazimnya semakin kecil saiz partikel pengisi atau semakin tinggi nisbah aspek gentian dan pecahan isi padu fasa pengukuhan maka semakin baik darjah pengukuhan dan seterusnya akan meningkatkan sifat mekanik komposit yang dihasilkan.

Selain itu, pengolahan kimia yang dilakukan, sama ada ke atas fasa matriks atau fasa pengukuhan atau kedua-duanya sekali, akan meningkatkan keserasian antara kedua-dua fasa melalui peningkatan kekuatan antara muka dan seterusnya meningkatkan sifat mekanik komposit yang dihasilkan.

1.2.8. Ciri-Ciri Pengisi

Pelbagai jenis pengisi digunakan dalam polimer semula jadi dan polimer sintetik untuk memperbaiki dan meningkatkan sifat-sifat fizik bahan. Penambahan pengisi bertujuan mengurangkan kos, mewarna, menguatkan atau mengukuhkan bahan polimer. Secara umumnya, keupayaan penguatan sesuatu pengisi dipengaruhi oleh tiga ciri yang utama iaitu saiz zarah dan luas permukaan, bentuk dan struktur permukaan serta aktiviti dan sifat-sifat kimia permukaan. Pengisi penguat yang biasanya mempunyai saiz zarah yang kecil, permukaan yang aktif secara kimia, permukaan yang poros dan bentuk yang tidak seragam dapat diterangkan seperti berikut : (Hanafi, 2000)

- a. Saiz dan luas permukaan zarah

Peningkatan sifat fizik bahan polimer dikaitkan dengan saiz zarah pengisi. Contohnya, tegasan dan modulus polimer berpengisi bergantung kepada saiz zarah. Saiz zarah pengisi yang kecil meningkatkan darjah penguatan polimer berbanding dengan saiz zarah yang besar (Leblanc, 2002). Saiz zarah mempunyai hubungan

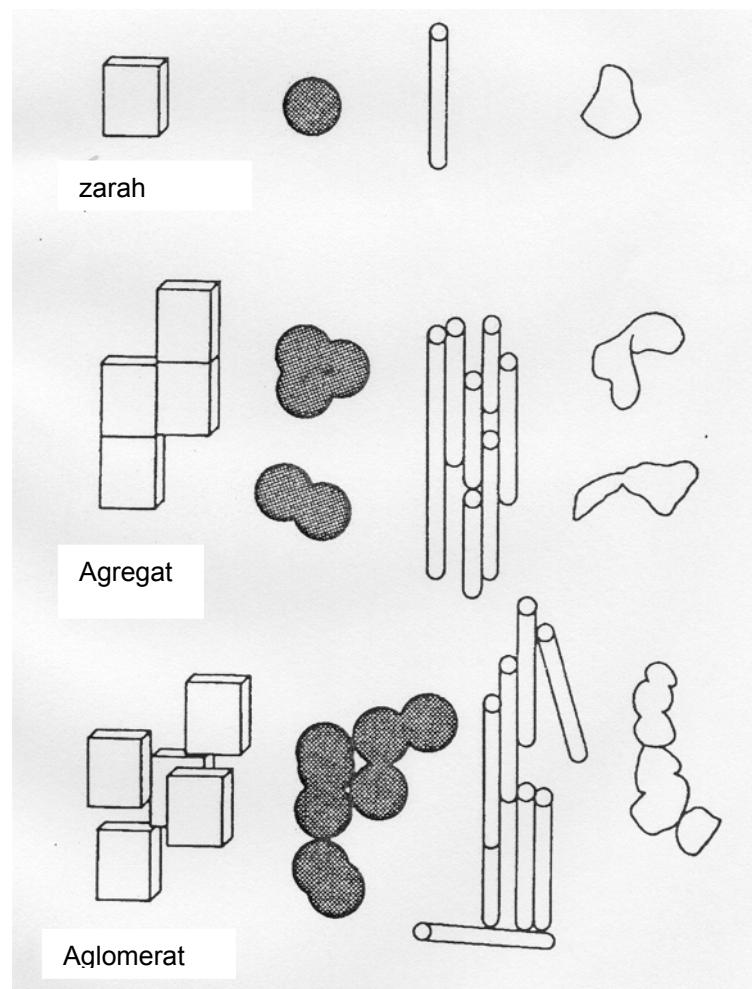
secara langsung dengan luas permukaan per gram pengisi. Oleh itu, saiz zarah yang kecil menyediakan luas permukaan yang besar bagi interaksi di antara polimer matrik dan pengisi seterusnya meningkatkan penguatan bahan polimer. Ringkasnya, semakin kecil saiz zarah semakin tinggi interaksi antara pengisi dan matrik polimer. Kohls & Beauchage (2002) melaporkan jumlah luas permukaan dapat dipertingkatkan dengan adanya permukaan yang poros pada permukaan pengisi. Dipercayai polimer menembus masuk ke dalam permukaan yang poros semasa proses pengadunan.

Selain dari luas permukaan, kehomogen serakan zarah dalam matriks polimer juga penting bagi menentukan kekuatan interaksi di antara pengisi dan matriks polimer. Zarah yang terserak secara homogen meningkatkan interaksi melalui penjerapan polimer di atas permukaan pengisi. Sebaliknya, zarah yang tidak terserak secara homogen mungkin menghasilkan aglomerat di dalam matriks polimer. Kewujudan aglomerat mengurangkan luas permukaan seterusnya melemahkan interaksi di antara pengisi dan matriks dan mengakibatkan penurunan sifat fizik bahan polimer.

(b) Bentuk dan struktur zarah

Bentuk zarah pengisi merupakan ciri yang penting selain daripada saiz zarah. Pengisi organik dan mineral terdiri daripada bentuk yang berbeza. Terdapat tiga bentuk zarah pengisi yang utama iaitu sfera, platelet dan rod. Bentuk zarah didapati mempengaruhi sifat mekanik polimer. Sifat akhir getah meningkat apabila bentuk pengisi berubah dari sfera kepada platelet dan rod (Hanafi, 2000). Struktur zarah merujuk kepada darjah pengagregatan zarah pengisi. Contohnya, hitam karbon yang berstruktur rendah terdiri dari 30 zarah manakala yang berstruktur tinggi mempunyai sehingga 200 zarah untuk setiap agregat. Agregat cenderung berkelompok antara satu sama lain untuk membentuk aglomerat semasa operasi pemprosesan. Aglomerat dikenali sebagai agregat sekunder. Walau bagaimanapun aglomerat senang dipecahkan semasa pengadunan disebabkan ikatan antara agregat adalah lemah iaitu

daya Van der Waals. Rajah 1.7 menunjukkan skematik struktur zarah, agregat dan aglomerat.



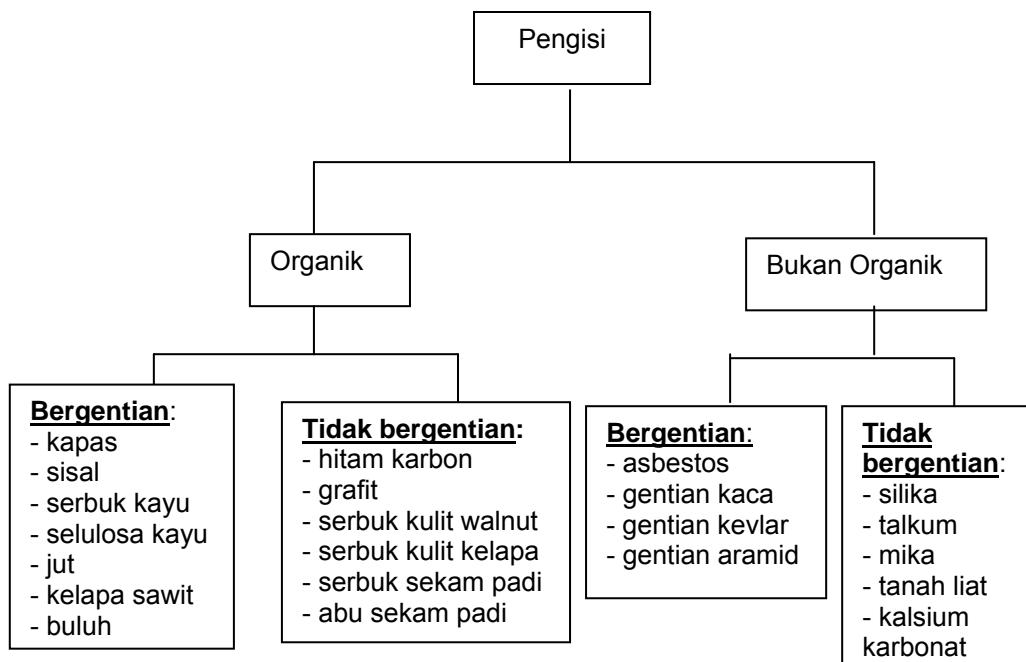
Rajah 1.7. Skematik bagi struktur zarah, agregat dan aglomerat (Sekutowski, 1996)

(c) Aktiviti dan sifat kimia permukaan

Saiz dan struktur zarah dikategorikan sebagai ciri fizikal pengisi tetapi aktiviti permukaan dikategorikan sebagai ciri kimia pengisi yang memberi kesan ke atas penguatan polimer (Kohls & Beaucage, 2002). Kimia permukaan pengisi merujuk kepada keupayaan pengisi untuk bertindak balas dengan polimer seterusnya menghasilkan ikatan. Dipercayai pembentukan ikatan antara polimer dan pengisi meningkatkan kekuatan bahan. Ikatan di antara polimer dan pengisi boleh dibentuk

sekiranya pengisi mempunyai tapak aktif yang dapat berinteraksi dengan rantai polimer.

Pengisi diklasifikasikan mengikut sifat-sifat kimia dan fizikalnya. Pada awalnya ia boleh dibahagikan kepada pengisi organik dan bukan organik dan setiap satunya boleh dibahagikan kepada bergentian dan tidak bergentian seperti Rajah 1.8.



Rajah 1.8. Pengelasan pengisi

1.3. Elastomer Termoplastik

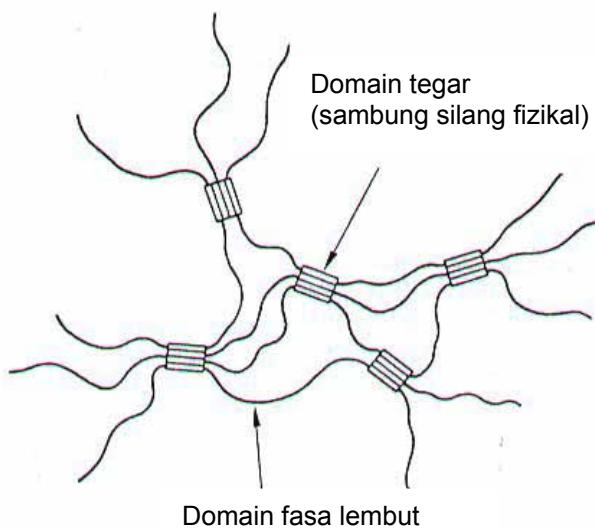
1.3.1. Pengenalan

Di antara perkembangan yang menarik di dalam penyelidikan yang melibatkan plastik dan getah adalah dengan penemuan bahan yang dikenali sebagai elastomer termoplastik (ETP). Elastomer termoplastik ialah kopolimer blok yang mempunyai sifat elastik dalam julat suhu dari suhu bilik sehingga kira-kira 70°C . Elastomer termoplastik boleh diproses seperti termoplastik konvensional tanpa perlu dilakukan proses

pem vulkanan. Sebenarnya sifat elastik ini disebabkan kewujudan sambung silang fizikal yang terhasil daripada daya antara molekul seperti ikatan hidrogen. Daya-daya ini akan terputus apabila elastomer termoplastik dipanaskan melebihi suhu tertentu dan terbentuk kembali apabila disejukkan.

ETP boleh diproses menggunakan pengacuanan suntikan, pengekstrudan, pengacuan tiupan, pencampur dalaman dan lain-lain lagi. Peralihan daripada leburan yang boleh diproses kepada elastomer keras adalah cepat dan berbalik. Skrap yang terhasil semasa pemprosesan boleh dijadikan butiran dan digunakan kembali secara adunan dengan bahan baru tanpa kehilangan sifat fizikal yang ketara.

Rajah 1.9 menunjukkan morfologi ETP secara umum, dan ETP terdiri daripada rantaian molekul yang mengandungi segmen-semen lembut dan keras. Sebenarnya segmen-semen ini tidak serasi dan setiap satunya berfungsi sebagai fasa individu. Segmen lembut adalah lebih dominan, lentur, amorfus, dan mempunyai suhu peralihan kaca yang lebih rendah. Segmen keras mempunyai takat lebur yang tinggi dan cenderung membentuk aggregat pada suhu bilik, iaitu membentuk domain tegar yang bertindak sebagai sambung silang fizikal (Hanafi, 2000).



Rajah 1.9. Morfologi elastomer termoplastik (ETP)

Apabila ETP dipanaskan sehingga suhu pemprosesan dalam alatan yang telah dinyatakan, daya lemah antara molekul yang memegang segmen keras akan dimusnahkan. Kesannya bahan ETP akan memamerkan sifat-sifat yang sama seperti bahan termoplastik lazim dan ia boleh diproses menggunakan alatan yang sama seperti yang digunakan untuk memproses bahan termoplastik. Apabila disejukkan, segmen keras akan bergabung kembali untuk membentuk domain tegar dan ini akan mempunyai sifat-sifat elastomer kembali.

Berbanding getah termoset konvensional seperti getah asli, getah stirena butadiena< getah butadiena< getah kloropena< getah butil dan lain-lain, ETP mempunyai kelebihan dari segi penggunaanya antaranya:

- (a) Kebanyakan ETP telah diformulasikan sepenuhnya serta sedia digunakan tanpa perlu dilakukan penyebatian atau pengadunan. Dengan perkataan lain, ETP telah disebatikan dan sedia untuk dilakukan fabrikasi.
- (b) Pemprosesan ETP adalah mudah, iaitu sama seperti pemprosesan bahan-bahan termoplastik. Hal ini menjadikan pemprosesan ETP lebih cekap dan memerlukan kos yang lebih rendah.
- (c) Masa fabrikasi ETP adalah jauh lebih pendek dan lebih cepat berbanding fabrikasi getah konvensional. Masa pengacuanan ETP adalah dalam beberapa saat berbanding beberapa minit untuk pengacuanan dan pem vulkanan getah termoset. Jadi produktiviti untuk getah ETP adalah lebih tinggi.
- (d) Setiap langkah pemprosesan getah termoset terdapat skrap yang terpaksa dibuang. Sebaliknya skrap produk ETP dapat digunakan kembali dan sudah tentu akan menjimatkan kos.
- (e) Oleh sebab kitaran pemprosesan ETP adalah lebih ringkas sudah pasti penggunaan tenaganya memerlukan kos yang lebih rendah. Di samping itu, antara kelebihan kelebihan lain ialah :

- i. Kawalan kualiti terhadap bahagian yang difabrikasi adalah lebih baik.
- ii. Kos untuk kawalan kualiti yang lebih rendah disebabkan sifat-sifat ETP yang lebih konsisten dan penghasilan produk ETP yang kurang skrap.
- iii. Memberikan kos penjimatan tambahan kerana untuk getah termoset yang setara, ketumpatan ETP adalah lebih rendah. Lazimnya getah dan plastik digunakan berdasarkan isipadu tetapi dari segi pembelian, kedua-dua bahan ini dibeli berdasarkan berat.

Selain kelebihan yang dinyatakan di atas, ETP juga mempunyai beberapa kekurangan antaranya :

- (a) Penggunaan ETP secara komersial masih lagi terbatas kerana teknologi pemprosesan ETP adalah baru dan tidak biasa bagi ahli-ahli pemprosesan getah konvensional seperti pencampur dalaman, penggiling bergulung dua, reometer, penekan panas , Mooney viskometer dan lain-lain.
- (b) Sebelum pemprosesan, ETP perlu dikeringkan terlebih dahulu. Langkah ini tidak dilakukan dalam pemprosesan getah lazim tetapi dilakukan dalam fabrikasi produk termoplastik
- (c) Kebanyakan ETP yang terdapat secara komersial mempunyai nilai kekerasan melebihi daripada 80 shore A. Jadi untuk penghasilan produk dengan kekerasan yang lebih rendah penggunaan ETP adalah terbatas.
- (d) ETP mudah melebur pada suhu yang tinggi terutama lebih daripada 70° C. Kekurangan ini menghalang penggunaan ETP dalam penghasilan produk yang perlu pendedahan seketika kepada suhu yang melebihi suhu peleburannya (Hanafi, 2000).

Prestasi elastomer termoplastik ditentukan oleh sifat kimia dan morfologinya. Berbanding getah termoset yang mermerlukan kehadiran pengisi penguat untuk

penguatan produk, penguatan ETP bergantung pada morfologi segmen keras dan segmen lembutnya.

1.3.2. Pengelasan Elastomer Termoplastik.

Elastomer termoplastik yang penting secara komersial boleh dikelaskan kepada dua kumpulan yang utama iaitu:

1. kopolimer blok
2. adunan

Kopolimer blok termasuklah:

1. kopolimer blok stirena
2. poliuretana termoplastik
3. kopoliester termoplastik
4. poliamida termoplastik (nilon)
5. ionomer

Adunan polimer pula termasuklah:

- a. adunan poliolefin-getah
- b. aloi elastomer yang boleh dibahagi kepada dua, iaitu:
 - i. vulkanizat termoplastik
 - ii. getah terproses lebur

Elastomer termoplastik kumpulan ini disediakan melalui tindak balas kimia yang mana ikatan-ikatan kimia terbentuk di antara fasa lembut dan fasa keras. Manakala aloi elastomer berdasarkan olefin disediakan melalui pengadunan secara fizikal dengan partikel-partikel getah termatang tersebar di dalam matriks poliolefin.

1.3.3. Elastomer Termoplastik Olefin (ETO)

Elastomer termoplastik olefin boleh ditakrifkan sebagai adunan mudah yang melibatkan pencampuran secara fizikal elastomer poliolefin dengan termoplastik poliolefin melalui tindakan ricih yang tinggi. (Wolf, 1987; Shedd, 1988) Termoplastik seperti PP, PE, nilon, PS, stirena akrilonitril, poliester dan lain-lain, dan elastomer seperti EPDM, getah asli, getah butil, getah nitril, getah stirena butadiena dan lain-lain biasanya digunakan sebagai komponen-komponen dalam adunan. Sifat-sifat yang diingini boleh didapatkan dengan pilihan kombinasi elastomer dan termoplastik yang sesuai dan nisbahnya dalam adunan bagi ETP kelas ini. Selain itu, pelbagai aditif seperti pemplastik, antipersotan dan pengisi boleh ditambahkan ke dalam adunan untuk mencapai keperluan spesifik pasaran (Shedd, 1988).

Pada suhu ambient, elastomer termoplastik olefin (ETO) mempamerkan sifat-sifat seperti modulus, kekuatan cabikan dan rintangan terhadap set yang menyerupai getah. Walau bagaimanapun, darjah sambung-silang fasa elastomer yang rendah dan interaksi fasa elastomer dengan fasa termoplastik selanjutnya yang lemah menyebabkan sifat-sifat ini merosot mendadak dengan peningkatan suhu. Faktor ini juga menjelaskan sebab kebanyakan ETO mudah diserang oleh bendalir yang mempunyai parameter keterlarutan yang sama. Ini membawa kepada masalah seperti pembengkakan pada suhu tinggi. Sebaliknya, elastomer termoplastik olefin yang dihasilkan daripada polimer dengan tulang belakang yang tepu mempunyai rintangan terhadap serangan ozon atau pengoksidaan.

ETO adalah ETP yang murah dan berprestasi rendah. Sifat dan prestasinya adalah rendah berbanding getah termoset. Meskipun demikian, ia masih sesuai digunakan dalam aplikasi yang tidak memerlukan rintangan terhadap bendalir, suhu servis maksimum yang sederhana ($\sim 80^{\circ}\text{C}$) dan krip serta set tinggi yang boleh toleran. Dengan ini, elastomer termoplastik olefin dapat menyaingi pasaran getah umum dari segi harganya dan bukannya prestasi.