

**PREPARATION OF NATURAL RUBBER/HIGH DENSITY  
POLYETHYLENE COMPOSITE REINFORCED RICE HUSK TREATED  
WITH LIQUID EPOXIDIZED NATURAL RUBBER (LENR)**

- 1. Rahmadini Syafri, B.Sc (Hons), M.Sc.**
- 2. Prof Dr. Ibrahim Abdullah**
- 3. Prof Madya Dr. Ishak Ahmad**

- 1. Master student of National University Malaysia*
- 2. Lecturer at Faculty of Science and Technology of National University  
Malaysia*
- 3. Lecturer at Faculty of Science and Technology of National University  
Malaysia*

**ABSTRACT**

Thermoplastic natural rubber (TPNR) composites with rice husk (RH) as filler were prepared via melt blending using an internal mixer Brabender Plasticorder. TPNR matrix was prepared from natural rubber (NR) and high density polyethylene (HDPE) with a composition ratio of 60:40. The optimum processing parameters for NR/HDPE matrix was obtained at 135 °C, at mixing rate of 50 rpm and blending time of 12 minutes, while the parameters for the NR/HDPE/RH composite was at 135 °C mixing rate of 45 rpm and blending time of 12 minute. Addition of rice husk into the NR/HDPE matrix was aimed to reinforce the composites with the filler. The high silica content of rice husk has made rice husk to be used as potential reinforcement filler for composites. However, the application of rice husk as filler is limited due to the hydrophilic nature of rice husk surface causing incompatibility and weak interfacial adhesion between rice husk and the hydrophobic polymer matrix. Hence, the cellulose surface of rice husk has to be modified. The rice husk was treated with sodium hydroxide (NaOH) as pre-treatment and later coated with liquid epoxidized natural rubber (LENR). Several concentrations of NaOH solution were used for alkali treatment of untreated rice husk (RHi) and the most effective was at 5% NaOH in aqueous solution (RHiNa). LENR coating was also carried out at several concentrations from 5% to 20% LENR in toluene. Characterizations of rice husk surfaces were analyzed by FTIR, optical microscope and SEM micrograph. The mechanical properties of rice husk filled composites observed, showed that the maximum value obtained were for composites reinforced with alkali treated and coated with 10% of LENR (RHiNaLE 2). The tensile and impact strength obtained were 6.9 MPa and 24.6 kJ/m<sup>2</sup> respectively. Effects of RHiNaLE 2 loading on tensile and impact strengths of composites showed that the properties decreased at higher loadings due to agglomeration of filler particles. However the tensile modulus and hardness were found to increase with filler loading. The dynamic mechanical thermal analysis also showed that composites prepared exhibited a shift in the tan delta peak (T<sub>g</sub>) to a higher temperature due to the increased RHiNaLE 2-Matrix interaction. In conclusion, modification of rice husk surface via NaOH treatment and coating with LENR was successful in reducing the hydrophilic nature of rice husk powder. The RHi-Matrix interfacial adhesion had improved which lead to higher mechanical properties of the composites prepared.

## PENDAHULUAN

Plastik mula digunakan sebagai bahan asas dalam industri iaitu pada awal tahun 1970. Perkembangan industri plastik yang diawali dengan penghasilan polimer sintetik, menimbulkan masalah pencemaran kepada alam sekitar. Ini disebabkan polimer sintetik sukar untuk dibiodegradasi dan dikitar semula. Plastik mempunyai sifat mekanik dan termal yang maksimum, tetapi bagi aplikasi bidang kejuruteraan sifat hentaman yang diberikan plastik biasanya tidak memuaskan. Oleh sebab itu, plastik dimodifikasikan dengan getah untuk memperbaiki sifat tersebut (Wal et al. 1999).

Sifat-sifat plastik dan getah ini apabila diadunkan akan menghasilkan bahan Termoplastik Getah Asli (TPNR) yang memberikan ciri-ciri keutamaan getah dan plastik. Adunan TPNR mempunyai kelebihan dari segi kos penyediaan bahan yang rendah serta berupaya untuk diproses dalam mesin termoplastik tanpa agen pemvulkanan. Bahan buangan dan serpihan dari adunan TPNR boleh digunakan semula. Hasil dari pemprosesan semula ini didapati mempunyai kekuatan tegangan yang hampir sama walaupun telah dikitar semula sebanyak 10 kali (Al-Malaika & Amir 1986). Secara umum, getah asli termoplastik (TPNR) boleh dibahagi kepada dua kategori iaitu TPNR bergred lembut dan TPNR bergred separa tegar

Beberapa tahun kebelakangan ini, penggunaan adunan TPNR dengan penambahan pengisi telah menunjukkan perkembangan yang sangat pesat. Pelbagai kajian telah dilakukan dan dijalankan secara meluas di seluruh dunia bagi menghasilkan polimer komposit dengan sifat mekanik yang optimum, antaranya dengan kaedah penambahan pengisi serabut semulajadi ke dalam matriks polimer. Pengisi serabut semulajadi memberi sifat penguatan dengan ciri kekuatan dan kekakuan strukturnya. Sementara matrik polimer bertindak sebagai pelekat yang memegang bahan penguat dalam sistem komposit.

Dalam penyelidikan ini, penyediaan adunan TPNR dengan sekam padi sebagai pengisi untuk menghasilkan bahan polimer komposit berasaskan pengisi serabut semulajadi dikaji. Serabut semulajadi dapat mengurangkan masalah pencemaran kerana komponen utama berupa lignoselulosa boleh dibiodegradasi di samping mengekalkanimbangan ekosistem. Penggunaan sekam padi yang merupakan serabut semulajadi dalam penghasilan komposit memiliki potensi sebagai alternatif menggantikan penggunaan gentian kaca, karbon dan gentian sintetik lainnya yang membahayakan alam sekitar selain kos bahan yang mahal.

Namun demikian, penambahan pengisi dalam adunan polimer juga boleh menimbulkan beberapa masalah seperti masalah kelembapan dan pembentukan aglomerat. Untuk itu, dalam kajian ini modifikasi permukaan sekam padi dengan menggunakan larutan alkali sebagai pra-rawatan dan penyalutan dengan getah asli teroksidasi cecair (LENR) dijalankan. LENR dijangkakan boleh bertindak sebagai bahan pengserasi antara pengisi dan matriks polimer.

1. objektif terperinci terbahagi kepada tiga bahagian Pencirian pengisi SP sebelum dan selepas rawatan dan penentuan parameter pemprosesan NR/HDPE/sekam padi menggunakan pengadun dalaman. Parameter pemprosesan yang paling asas ditentukan dalam kajian ini iaitu suhu pengadunan, kadar percampuran dan masa pengadunan.

2. Mengkaji kesan modifikasi permukaan sekam padi dengan LENR terhadap sifat mekanik komposit berpengisi sekam padi yang disediakan.
3. Mengkaji kesan pengisian sekam padi terawat LENR ke dalam komposit pada pelbagai peratus isipadu terhadap sifat mekanik dan interaksi antara fasa komposit.

## **ULASAN KEPUSTAKAAN**

### **Getah asli (NR)**

Getah Asli (NR) merupakan sejenis polimer asli yang memiliki berat molekul yang tinggi dan boleh berubah apabila dikenakan daya. NR adalah suatu hidrokarbon tak tepu dengan unit ulangan isoprena  $C_5H_8$ . Terdapat 2 jenis NR iaitu *Havea Brasiliensis* yang menghasilkan NR berstruktur kimia cis-1,4-poliisoprena dan *Gutta Percha* yang menghasilkan NR dengan struktur kimia trans-1,4-poliisoprena.

### **Polietilena (PE)**

Polietilena merupakan polimer yang mempunyai struktur molekul yang paling ringkas. Unit struktur ulangannya (mer) ialah  $--\{CH_2-CH_2\}_n--$  yang tersusun secara tiga dimensi dengan atom hidrogen terlekat disepanjang rantai 'zig-zag' atom karbon. Ada tiga jenis polietilena yang sedia ada di pasaran iaitu polietilena berketumpatan rendah (LDPE), polietilena berketumpatan rendah linear (LLDPE) dan polietilena berketumpatan tinggi (HDPE).

### **Adunan Termoplastik Elastomer (TPE)**

Pelbagai jenis elastomer telah pun diadun dengan plastik untuk menghasilkan TPE dan telah dikomersilkan beberapa tahun kebelakangan. Elastomer yang digunakan adalah berupa elastomer sintetik mahupun semulajadi seperti getah asli (NR). Antara termoplastik yang telah digunakan ramai adalah poliolefin seperti polietilena (PE), polipropilena (PP), polivinilklorida (PVC) dan polistirena (PS). Salah satu contoh TPE adalah adunan getah asli termoplastik (TPNR) iaitu adunan antara poliolefin dengan elastomer semulajadi.

Secara umumnya bahan TPNR boleh dibahagikan kepada dua kategori iaitu TPNR lembut dan TPNR keras. TPNR lembut memiliki kandungan NR yang lebih tinggi daripada kandungan termoplastik dalam adunan serta mempunyai sifat-sifat kekuatan yang tinggi dan keupayaan pemulihan yang baik. TPNR keras mengandungi kandungan NR yang rendah serta mempunyai kerintangan hentaman yang tinggi terutamanya pada suhu rendah.

### **Keserasian adunan polimer**

Secara umumnya, pengadunan polimer sama ada secara kimia atau fizikal menghadapi masalah utama iaitu keserasian di antara polimer-polimer yang diadunkan. Keserasian dan kehomogenan adunan polimer adalah penting untuk menghasilkan interaksi yang baik antara bahan-bahan dalam matriks yang akan memberikan nilai sifat mekanik yang optimum.

## **Pengisi**

Dalam pengadunan polimer, pengisi biasanya digunakan sebagai pewarna, penguat mahu pun pengukuh bahan polimer. Pengisi dikelaskan kepada dua iaitu pengisi penguat dan pengisi lengai. Pengisi lengai merupakan pengisi yang hanya hadir secara fizikal di dalam sistem polimer yang tak berkutub dan tiada interaksi. Pengisi penguat pula merupakan pengisi yang hadir di dalam matrik polimer yang mana permukaannya dibasahi oleh matrik polimer samada disebabkan oleh keafinan polimer atau pengisi yang telah dirawat untuk mewujudkan keafinan.

## **Pengisi Serabut Lignoselulosa**

Serabut semulajadi lignoselulosa seperti sisal, sabut kelapa, rami, hemp, jut, serat daun nanas, daun pisang, kenaf, tandan kosong kelapa sawit, sekam padi dan masih banyak lagi telah menarik perhatian ramai penyelidik untuk digunakan sebagai pengisi dalam komposit berbanding penggunaan gentian kaca dan serabut sintetik lainnya. Ini disebabkan serabut semulajadi memiliki potensi sebagai pengisi alternatif menggantikan pengisi konvensional seperti serabut sintetik dan gentian kaca.

## **Sekam Padi**

Sekam padi (SP) merupakan kulit bahagian luar daripada butir beras dan diperolehi semasa proses penggilingan. Kerana jumlah penghasilan sekam padi yang cukup banyak dan apabila dibuang begitu sahaja ke persekitaran akan menimbulkan masalah pencemaran, untuk itu sekam padi digunakan dalam pelbagai aplikasi sebagai bahan yang boleh diperbaharui. Kegunaan lainnya daripada sekam padi ialah sebagai agregat dan pengisi untuk penghasilan konkrit mahupun polimer komposit berpengisi serabut. Sekam padi yang dihasilkan daripada pengisar padi semasa proses penghasilan beras, mengandungi tahap silika yang tinggi. Oleh sebab itu sekam padi mempunyai potensi untuk dijadikan pengisi penguatan komposit

## **Masalah Pengisian Serabut Lignoselulosa**

Masalah utama bagi pengisi lignoselulosa ialah sifat hidrofilik yang menyebabkan ianya kurang serasi dengan matriks termoplastik yang bersifat hidrofobik. Oleh kerana masalah tersebut, maka kekuatan ikatan antara muka pengisi-matriks berkurang kerana pembasahan yang tidak sempurna oleh matriks polimer. Pembasahan merupakan syarat utama untuk membentuk ikatan yang baik antara pengisi-matrik. Di samping itu, pengisian serabut semulajadi ini juga menimbulkan masalah pergerakan yang lemah dalam matriks dan kecenderungan terjadinya gumpalan atau aglomerasi semasa pemprosesan serta rintangan terhadap lembapan yang lemah

## **Rawatan pengisi selulosa**

### **Rawatan alkali**

Rawatan alkali serabut selulosa dengan natrium hidroksida (NaOH) adalah salah satu kaedah yang telah digunakan untuk meningkatkan ikatan antara muka pengisi dengan matriks polimer. NaOH menyingkirkan lignin, lapisan lilin dan lemak semulajadi pada permukaan serabut selulosa dan mendedahkan kumpulan berfungsi reaktif secara kimia seperti kumpulan  $-OH$ .

## **Rawatan Getah Asli Terepoksida Cecair (LENR)**

Getah asli terepoksida cecair (LENR) diyakini boleh bertindak sebagai agen pengserasi antara serabut pengisi dengan matriks. Kajian oleh Ashida (1996) telah merawat gentian menggunakan agen pengikatan lateks formaldehid resorsinol (RFL) untuk gentian nilon, dan larutan isosianat serta RFL bagi gentian poletilena tereftalat (PET). Gentian ini telah digunakan sebagai pengisi bagi matrik termoplastik elastomer. Terdapat dua pendekatan yang telah dilakukan dalam penghasilan LENR iaitu pengepoksidaan LNR dan pendepolimeran pepejal ENR. Kebelakangan ini, kaedah yang kedua yang lebih popular diguna pakai oleh ramai penyelidik (Derauet et al. 1990; Brosse et al. 1992; Xuan & Decker 1993). Dalam kajian ini, kaedah penghasilan LENR adalah mengikut kaedah pendegradasian ENR secara pengoksidaan fotokimia mengikut yang telah dipatenkan oleh UKM (Ibrahim, 1996). ENR dihasilkan daripada tindak balas getah asli dengan asid parasetik yang akan membentuk kumpulan epoksi.

### **Teori ikatan antara muka**

Interaksi antara muka pengisi dan matrik memainkan peranan penting dalam menentukan sifat mekanik komposit polimer. Ini disebabkan tegasan yang dikenakan ke atas matrik dipindahkan kepada pengisi melalui antara muka. Ikatan antara muka yang lemah akan menyebabkan komposit mempunyai kekuatan dan ketegaran yang rendah tetapi mempunyai rintangan patah yang tinggi iaitu lebih bersifat mulur. Sekiranya ikatan antara muka kuat, komposit akan mempunyai ketegaran dan kekuatan yang tinggi tetapi lebih bersifat rapuh. Mengadakan rawatan terhadap pengisi yang digunakan merupakan salah satu cara mewujudkan perekatan antara muka, interaksi ini seterusnya akan dapat meningkatkan sifat mekanik bahan.

## **METODOLOGI**

### **Penyediaan Getah Asli Terepoksida Cecair (LENR)**

Getah asli terepoksida (ENR-50) sebanyak 1 kg dipotong kecil dan dimasukkan balang lalu direndam dengan toluena selama 24 jam. Seterusnya, sebanyak 0.15 g ros bengal dan 0.1 g metilena biru dilarutkan dalam 10 ml methanol dan ditambahkan rendaman ENR. Degradasi dan pemutusan rantai ENR kepada rantai yang lebih pendek berlaku semasa ENR didedahkan kepada cahaya daripada lampu dan dikacau dengan pengacau mekanik selama  $\pm 14$  hari. Bagi penentuan berat kering atau jumlah kandungan pepejal (TSC) LENR, lebih kurang 2 titik LENR dititiskan ke atas piring kaca kecil dan diletakkan di dalam ketuhar pada suhu 50°C selama satu hari. Seterusnya, piring kaca kecil yang terdapat titisan LENR ini ditimbang dan berat dicatatkan. Kemudian, piring kaca ini diletakkan semula ketuhar. Proses penimbangan ini dilakukan setiap hari selepas bacaan yang sekata diperolehi. Rumus untuk menentukan peratusan berat kering LENR adalah seperti persamaan (3.1) di bawah:

$$\% \text{ Berat kering LENR (TSC)} = \frac{\text{Berat LENR yang kering}}{\text{Berat LENR yang basah}} \times 100 \quad (3.1)$$

### **Rawatan Alkali (NaOH)**

Rawatan dengan natrium hidroksida (NaOH) dilakukan dengan merendam serbuk sekam padi dalam larutan 5%-15% (untuk mencari kepekatan yang paling berkesan)

wt/v NaOH dalam 1 liter air suling selama 3 jam pada suhu bilik. Larutan NaOH yang telah dicampur dengan serbuk sekam padi kemudian dikacau dengan menggunakan pengacau magnetik secara perlahan-lahan selama  $\pm$  60 minit untuk mempercepat tindak balas. Selepas itu, serbuk sekam padi kemudian dibilas dengan air suling dan dibilas sekali lagi dengan air suling bercampur dengan sedikit asid asetik. Serbuk sekam padi yang telah dirawat dengan larutan NaOH dikeringkan dalam ketuhar pada suhu 70°C selama 24 jam. Setelah kering serbuk sekam padi dikisar semula untuk memecahkan gumpalan atau aglomerasi.

### **Penyalutan LENR**

kaedah penyalutan serbuk sekam padi dengan cecair getah asli terepoksida (LENR) dilakukan pada tiga kepekatan kandungan LENR dalam pelarut toluena yang berbeza. Kepekatan yang digunakan iaitu 5%, 10%, dan 20% jumlah kandungan pepejal (TSC). Kaedah yang dilakukan iaitu dengan mencampurkan serbuk sekam padi larutan LENR sesuai kepekatan yang hendak dikaji. Campuran dikacau dengan menggunakan pengacau mekanik selama  $\pm$  60 minit kemudian dimasukkan mesin ultrasonik selama 30 minit. Seterusnya, serbuk sekam padi terawat LENR ditapis dan dikeringkan dalam ketuhar selama  $\pm$  14 hari pada suhu 70°C. Setelah kering, gumpalan-gumpalan serbuk sekam padi dikisar semula untuk mengelakkan terjadinya aglomerasi semasa penyediaan komposit.

### **Analisis Imbasan Inframerah (FTIR)**

Analisis FTIR ini dilakukan dengan alat spektrometer Perkin Elmer Spektrum GX. Spektrum yang dianalisis adalah pada julat 4000-500  $\text{cm}^{-1}$ . Teknik pelet kalium Bromida (KBr) digunakan bagi sampel serbuk sekam padi. Setelah dicampurkan dengan serbuk KBr, sampel dimampatkan menjadi plat dengan alat pemampat dan kemudian dimasukkan ke dalam ruang sampel dan puncaknya diukur. Analisis serapan inframerah ini bertujuan untuk menentukan kumpulan berfungsi yang wujud dan terjadi pada serabut sekam padi sebelum dan selepas rawatan.

### **Analisis Morfologi Permukaan SP menggunakan mikroskop optik**

Analisis dilakukan dengan menggunakan alat mikroskop optik model Olympus CH20 dengan pembesaran sebanyak 100 kali ganda. Sampel serbuk sekam padi ditaburkan secara nipis di atas kepingan kaca. Kepingan kaca yang telah ditaburi sampel dilihat melalui mikroskopi. Analisis ini bertujuan untuk melihat perubahan struktur permukaan serbuk sekam padi sebelum dan selepas rawatan.

### **Analisis Morfologi Permukaan SP menggunakan Mikrograf SEM**

Analisis mikrograf dilakukan dengan alat mikroskop elektron imbasan (SEM), model Philips XL 30 dengan kemampuan voltan 20 kV. Sampel serbuk sekam padi disalut nipis dengan emas menggunakan alat penyalut jenis *bioered microscience-SC500* pada permukaan SP sebelum analisis SEM. Sampel diperhatikan pada pembesaran 250x dan 500x untuk melihat perubahan yang terjadi pada permukaan serbuk sekam padi sebelum dan selepas rawatan dilakukan.

## **Adunan Matriks**

Adunan NR/HDPE dengan komposisi 60/40 dihasilkan dengan menggunakan mesin pengadun dalaman Brabender PL 2000 dengan kapasiti isipadu kebuk adunan  $60 \text{ cm}^3$ . Parameter pemprosesan adunan matriks NR/HDPE terlebih dahulu divariasikan bagi menetapkan keadaan pemprosesan yang optimum. Setiap satu parameter sebanyak lima julat yang berbeza dipilih, bagi suhu pengadunan mulai  $130^\circ\text{C}$  hingga  $150^\circ\text{C}$ , kadar pencampuran 40 rpm hingga 60 rpm dan masa pengadunan 6 minit hingga 14 minit.

## **Adunan Komposit**

Adunan matriks NR/HDPE (60/40) yang telah dikisar dan pengisi sekam padi ditimbang mengikut peratus komposisi yang ditetapkan. Parameter pengadunan ialah suhu  $135^\circ\text{C}$  dengan kadar pencampuran 45 rpm dan masa pengadunan adalah 10 minit.

## **Ujian Regangan**

Ujian ini melibatkan pengukuran keupayaan sampel komposit untuk melawan daya yang menyebabkan komposit itu terpisah. Ujian regangan dilakukan bertujuan untuk mengukur kebolehan suatu bahan untuk menanggung beban yang dikenakan ke atasnya untuk meregang sebelum pemutusan berlaku. Mesin ujian tensil universal (UTM) model INSTRON 5566 mengikut piawaian ASTM D412 digunakan untuk mengukur kekuatan regangan bagi sampel komposit dengan sel muatan 1 kN dan kelajuan terikan 50 mm/minit.

## **Ujian Kekerasan**

Kekerasan juga ditakrifkan sebagai kerintangan suatu bahan terhadap canggaan. Ujian kekerasan dilakukan dengan menentukan rintangan permukaan sampel komposit kepada suatu penebuk yang dikenakan suatu daya. Sampel yang berketebalan 3 mm digunakan untuk ujian ini. Pengukuran dilakukan dengan menggunakan alat Durometer ASTM D2240 buatan Zwick model 3310 jenis *Shore D* dengan bebanan 15 N. Pengukuran dilakukan sebanyak sepuluh kali dan lima purata bacaan terbaik dipilih.

## **Ujian Hentaman**

Ujian hentaman dilakukan bagi menentukan ketahanan sesuatu bahan terhadap daya yang dikenakan secara tiba-tiba. Ujian hentaman bandul jenis Izod dilakukan mengikut kaedah piawaian ASTM D256. Sampel yang berketebalan 3 mm dipotong dengan menggunakan alat pemotong Hollow Die Punch buatan Ceast. Sampel yang telah dipotong dibuat takukan dengan alat penakuk jenis Daven Port. Penakukan dibuat sepanjang 1 mm (Rajah 3.3). Oleh kerana sampel yang hendak diuji adalah liat, maka ia harus dicelupkan dalam cecair nitrogen terlebih dahulu supaya lebih tegar untuk melakukan ujian patahan.

## **Analisis Mekanik Dinamik (DMA)**

Analisis mekanik dinamik dilakukan ke atas sampel dengan menggunakan mesin analisis mekanik dinamik (DMA) model 2980 dari TA instrument. Julat suhu analisis

yang dijalankan bermula dari suhu  $-100^{\circ}\text{C}$  hingga  $150^{\circ}\text{C}$  dengan kadar kenaikan suhu  $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . Frekuensi ujian yang digunakan adalah 1 Hz dan amplitud  $20\ \mu\text{m}$ .

### **Pemeriksaan Morfologi**

Pemeriksaan morfologi dilakukan dengan menggunakan alat mikroskop imbasan elektron (SEM) jenis philip XL 30. Sampel yang digunakan bagi analisis SEM ialah permukaan putus selepas ujian regangan dijalankan, seperti Rajah 3.4 di bawah. Permukaan putus tersebut dipotong dan diletakkan di atas stub aluminium dan disimpan dalam ketuhar selama 24 jam pada suhu  $60^{\circ}\text{C}$  untuk menyingkirkan lembapan. Sebelum pemeriksaan morfologi dijalankan, potongan sampel terlebih dahulu disalut dengan lapisan emas setebal  $0.01$  hingga  $0.1\ \mu\text{m}$  dalam kebuk penyalutan dengan menggunakan penyalut Sputter model SC 500. Mikrograf dengan pembesaran  $100\times$  dan  $300\times$  menggunakan voltan  $20\ \text{kV}$  diambil.

## **KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN**

### **Analisa pengisi sekam padi menggunakan Spektroskopi Infra Merah (FTIR)**

Setelah rawatan NaOH puncak OH muncul pada  $3435\ \text{cm}^{-1}$ . Keamatan puncak OH menjadi semakin kuat menunjukkan bilangan kumpulan OH bebas yang tak mengambil bahagian dalam ikatan hidrogen semakin bertambah. Rawatan alkali akan membekalkan lebih banyak terminal aktif OH pada permukaan serabut menyebabkan ia bersifat hidrofobik dan mengurangkan kadar serapan air. Keamatan spektrum FTIR untuk sekam padi terawat NaOH dilanjutkan penyalutan LENR (SPiNaLE 2) memperlihatkan perubahan yang signifikan berbanding spektrum FTIR sekam padi terawat NaOH sahaja. memperlihatkan perubahan yang signifikan berbanding spektrum FTIR sekam padi terawat NaOH sahaja.

### **Pemeriksaan pengisi sekam padi melalui Morfologi SP (Mikroskop Optik)**

Permukaan sekam padi diperhatikan berserabut dengan jalur-jalur yang disaluti oleh lapisan yang kelihatan berminyak serta terdapat tompok-tompok di beberapa bahagian permukaan. Lapisan tersebut dijangkakan merupakan lignin, hemiselulosa, lilin dan minyak serta kotoran lainnya yang terdapat di permukaan SP. Setelah dilakukan rawatan alkali dengan larutan 5% NaOH (SPiNa), permukaan SP tampak lebih kasar dengan jalur-jalur serabut atau disebut juga mikrofibril terdedah

rawatan alkali dilanjutkan dengan penyalutan LENR 20%, lapisan LENR terlihat sangat tebal menyaluti permukaan luar SP yang mana jalur-jalur mikrofibril di permukaan SP tak tampak lagi. Kepekatan penyalutan LENR 20% dirasakan terlampau tinggi yang mana ianya boleh menyebabkan terjadinya aglomerasi sekam padi di dalam komposit.

### **Pemeriksaan pengisi sekam padi melalui Morfologi SP (Mikrograf SEM)**

Selepas rawatan alkali (5% NaOH), permukaan sekam padi menunjukkan permukaan yang kasar dan tidak sekata disebabkan oleh sebahagian lapisan lignin dan hemiselulosa telah melarut dalam larutan alkali. Selepas penyalutan 5% LENR (SPiNaLE 1), didapati permukaan SP tampak agak licin dan rata disebabkan sebahagian jalur-jalur mikrofibril SP telah tersaluti oleh LENR. Namun penyalutan tidak berlaku dengan sempurna. Penyalutan dengan 10% LENR (SPiNaLE 2) memberikan permukaan sekam padi yang licin dan sekata serta jalur-jalur fibril

terlihat telah tersaluti dengan sempurna oleh lapisan LENR. Kepekatan ini dirasakan terlalu tinggi yang akan membawa masalah aglomerasi semasa pengadunan dengan matriks komposit dalam penghasilan sampel.

#### **Adunan matriks NR/HDPE (60/40)**

Keputusan menunjukkan masa pengadunan yang optimum ialah 12 minit dengan tegasan maksima 8.3 MPa dan modulus regangan 57.6 MPa. Masa pengadunan yang terlalu singkat ataupun di bawah suhu optimum menyebabkan pencampuran adunan komposit tidak sempurna dan akan menurunkan nilai tegasan dan modulus regangan bahan. Sebaliknya masa pengadunan yang lebih lama memberikan kehomogenan adunan bahan yang lebih baik dan nilai tegasan serta modulus yang lebih tinggi diperolehi.

#### **Adunan Komposit (NR/HDPE)/SP (90/10)**

Keputusan menunjukkan suhu pemprosesan yang optimum ialah 135 °C dengan nilai tegasan maksima sebanyak 6.1 MPa dan modulus regangan 58.5 MPa. Sekam padi tidak tersebar dengan sekata pada suhu yang rendah disebabkan oleh kelikatan komposit yang tinggi. Kadar pencampuran adunan TPNR/SP (90/10) yang paling optimum ialah pada kelajuan 45 rpm dengan nilai tegasan maksima diperolehi 6.6 MPa dan modulus regangan komposit 70.9 MPa. Namun dengan peningkatan kadar pencampuran diatas kelajuan optimum terlihat menurunkan nilai kekuatan regangan komposit.

Kajian yang dilakukan terhadap adunan TPNR berpengisi serabut kayu getah melalui pemerhatian SEM didapati masa pengadunan di bawah masa optimum menyebabkan gentian tidak terserak dengan sekata di dalam matrik. Apabila masa pemprosesan ditingkatkan melebihi masa pengadunan optimum diperhatikan gentian mengalami patahan dan seterusnya menurunkan kekuatan regangan komposit.

### **KESAN RAWATAN ALKALI SP TERHADAP SIFAT MEKANIK KOMPOSIT NR/HDPE/SP (10%)**

#### **Sifat Mekanik Komposit**

kepekatan NaOH optimum untuk rawatan alkali (pra-rawatan) iaitu 5% akan digunakan sebagai rujukan bagi rawatan SP selanjutnya kerana kepekatan tinggi menyebabkan degradasi struktur serabut.

#### **Analisis Terma Mekanik Dinamik (DMA)**

Menunjukkan bahawa  $T_g$  komposit didapati beranjak meningkat daripada -53.8°C kepada -42.9°C apabila rawatan alkali dilakukan ke atas pengisi sekam padi. Nilai  $T_g$  semakin beranjak ke positif dalam urutan matrik NR/HDPE komposit NR/HDPE/SPi komposit NR/HDPE/SPiNa. Nilai  $T_g$  semakin meningkat dengan penambahan pengisi ke dalam matrik NR/HDPE. Peningkatan nilai  $T_g$  selepas rawatan alkali menunjukkan bahawa interaksi antara muka TPNR-pengisi dan keserasian antara fasa meningkat selepas rawatan larutan NaOH 5% dilakukan ke atas sekam padi meskipun peningkatan nilai  $T_g$  tersebut tidak terlalu signifikan. Didapati juga modulus simpanan mengalami peningkatan yang signifikan dengan penambahan

pengisi sekam padi ke dalam matriks NR/HDPE pada julat suhu  $-100^{\circ}\text{C}$  hingga suhu  $50^{\circ}\text{C}$ .

### **Pemeriksaan Morfologi Komposit**

Diamati berlakunya taburan sekam padi yang tidak sekata dalam sistem matrik dan hanya tertumpu pada sebahagian kawasan sahaja sementara kawasan lain tidak dijumpai pengisi sekam padi. Mikrograf komposit dengan sekam padi terawat 5% NaOH (SPiNa tampak memberikan sebaran yang lebih sekata dalam sistem matrik.

### **KESAN RAWATAN/PENYALUTAN LENR KE ATAS SP DALAM KOMPOSIT NR/HDPE/SP (10%)**

#### **Sifat Mekanik Komposit**

Diperolehi komposit TPNR/SPiNaLE 2 memberikan nilai tegasan maksima yang paling tinggi berbanding komposit TPNR/SP lainnya. Dapat disimpulkan bahawa kandungan peratusan LENR yang paling optimum untuk penyalutan SP ialah 10% wt/v LENR dalam larutan toluena. Modifikasi permukaan SP dengan penyalutan LENR sebagai agen pengserasian memberikan nilai modulus regangan komposit yang lebih rendah berbanding komposit dengan pengisi SP tanpa rawatan, sebagai kesan meningkatnya kandungan getah dalam komposit membawa kepada penurunan sifat kekakuan komposit terhasil. Selepas rawatan dengan LENR sebagai agen pengserasian, didapati nilai kekuatan hentaman memberikan peningkatan yang ketara.

#### **Analisis Terma Mekanik Dinamik (DMA)**

Menunjukkan bahawa penambahan pengisi sekam padi (SP) ke dalam sistem matrik TPNR menyebabkan nilai  $T_g$  semakin beranjak ke positif dan memberikan peningkatan yang signifikan iaitu daripada  $-53.8^{\circ}\text{C}$  kepada  $-43.2^{\circ}\text{C}$ . Bagaimanapun, untuk kepekatan LENR yang tinggi ( $> 10\%$  LENR) menunjukkan penurunan  $T_g$  sebagaimana keputusan yang diberikan oleh komposit TPNR/SPiNaLE 3 ( $-41.7^{\circ}\text{C}$ ). Didapati penambahan pengisi ke dalam sistem matrik meningkatkan nilai modulus simpanan komposit.

#### **Pemeriksaan Morfologi Komposit**

Menunjukkan mikrograf SEM adunan NR/HDPE/SP dengan rawatan LENR 5% ke atas SP (SPiNaLE 1) yang sebelumnya terlebih dahulu di rawat dengan alkali (larutan NaOH 5%) didapati serabut SP tercabut dan sebahagian lain patah dari fasa matrik apabila dikenakan tegasan pada sampel komposit menunjukkan wujudnya interaksi daya lekatan pengisi pada fasa matriks. Ia juga menunjukkan bahawa rawatan LENR ke atas pengisi SP dengan 10% peratus kepekatan LENR dalam toluena dipercayai lebih berkesan dan menggalakkan daya lekatan antara muka pengisi-matriks yang lebih tinggi.

## **KESAN KANDUNGAN ISIPADU PENGISI SEKAM PADI (SP) TERAWAT DAN TANPA RAWATAN TERHADAP SIFAT MEKANIK KOMPOSIT NR/HDPE/SP**

### **Tegasan Maksima Komposit**

menunjukkan secara keseluruhan tegasan maksima komposit menurun dengan penambahan pengisi SP dalam komposit NR/HDPE/SP dengan dan tanpa rawatan. Hal ini disebabkan oleh kurangnya interaksi antara muka sekam padi-matrik menyebabkan penurunan nilai tegasan maksima dari tegasan awal.

### **Modulus Regangan Komposit**

Didapati modulus regangan meningkat dengan penambahan kandungan pengisi. Peningkatan optimum berlaku pada kandungan pengisi 20% isipadu bagi komposit TPNR/SPi, TPNR/SPiNa dan komposit TPNR/SPiNaLE 2 berbanding matrik TPNR.

### **Kekuatan Hentaman Komposit**

Bagi komposit tanpa rawat dan terawat alkali nilai kekuatan optimum masing-masing ialah  $17.3 \text{ kJ/m}^2$  dan  $18.9 \text{ kJ/m}^2$  pada 20% isipadu pengisi. Manakala bagi komposit dirawat dengan LENR tenaga hentaman optimum ialah  $28.6 \text{ kJ/m}^2$  pada kandungan gentian yang sama.

### **Kekerasan Komposit**

Menunjukkan peningkatan kekerasan yang hampir linear dengan penambahan kandungan pengisi. Penambahan kandungan pengisi menyebabkan kekerasan bahan komposit meningkat.

## **KESIMPULAN DAN CADANGAN**

### **Kesimpulan**

Daripada keputusan analisis FTIR, mikroskop optik dan pemeriksaan morfologi (SEM), sekam padi terawat LENR menunjukkan terjadinya interaksi secara fizikal ataupun mekanik antara sekam padi dan rantai poliisoprena. Daripada pemeriksaan morfologi, diperolehi zarah pengisi sekam padi dengan salutan getah yang homogen, nipis dan sekata diperolehi pada peratus kepekatan LENR 10%, dan semakin tebal dengan peratus kepekatan LENR yang terlampau tinggi.

Keadaan pemprosesan dikaji bagi memastikan sebarang perubahan sifat mekanik komposit yang disediakan, seperti perubahan nilai tegasan maksimum ataupun modulus regangan komposit yang berlaku pada tahap pengadunan. Penambahan sekam padi ke dalam komposit NR/HDPE di dapati menurunkan nilai tegasan maksimum dan kekuatan hentaman komposit, tetapi mengalami peningkatan pada nilai modulus regangan dan kekerasan komposit. Walau bagaimanapun, di dapati komposit dengan pengisi sekam padi terawat LENR 10% memberikan keputusan tegasan maksimum dan kekuatan hentaman yang lebih tinggi berbanding komposit dengan pengisi sekam padi tanpa rawat dan rawatan alkali sahaja (pra-rawatan). Namun mengalami penurunan pada modulus regangan dan kekerasan bahan.

Pengisian sekam padi terawat LENR (kepekatan optimum 10% pada pelbagai peratus pembebanan isipadu pula diperhatikan memberikan keputusan nilai tegasan

maksimum pada takat optimum 10% isipadu. Akan tetapi, nilai modulus regangan, kekuatan hentaman dan kekerasan bahan optimum diperolehi pada pembebanan 20% isipadu.

### **Cadangan**

Di antara cadangan untuk kajian lanjutan adalah sebagai berikut:

- a) Mengkaji beberapa kaedah pra-rawatan sebelum penyalutan dengan LENR ke atas sekam padi untuk mengatasi masalah aglomerasi terutamanya pada pembebanan pengisi yang tinggi. Antara rawatan yang dicadangkan adalah rawatan sekam padi dengan agen pengkupel silana, asid sulfurik, asid nitrik, asid benzoik, isosianat dan bahan peroksida.
- b) Menggunakan bahan termoplastik yang berlainan seperti polipropilena (PP), polivinil klorida (PVC) dan polistirena (PS). Di samping itu, dikaji juga menggunakan komposisi matriks yang berbeza mengikut kehendak pasaran dan sesuai dengan aplikasi yang ingin dicapai.
- c) Mengkaji penggunaan serabut panjang selulosa bagi mengganti selulosa berserabut pendek bagi dengan kaedah penyalutan LENR bagi mencari kemungkinan peningkatan kekuatan tegasan. Serabut pendek lebih mudah tercabut keluar dari sistem matrik apabila tenaga tegasan dikenakan berbanding serabut panjang.
- d) Mengkaji penambahan pengisi kedua bersama dengan sekam padi terawat LENR bagi menghasilkan komposit hibrid. Pengisi yang dicadangkan adalah karbon hitam, tanah liat, kalsium karonat, silika dan lain-lain untuk meningkatkan sifat mekanik komposit.

### **RUJUKAN**

- Al-Malaika, S. dan Amir, E. J. 1986. Thermoplastic elastomer 1: effect of processing variables on tensile properties of natural rubber/poly propylene blends. *Journal Natural Rubber Resource* 1(2): 104-121.
- Brosse, J.C., Boccaccio, G. & Pautrat, R. 1981. Chemistry of liquid natural rubber. UNIDO Symp. Powd. Liq. Thermoplastic natural rubber. Phuket: UNIDO.
- Derouet, D., Brosse, J.C. & Tillekeratne, L.M.K. 1990. Fixation of methacrylic acid onto epoxidized liquid natural rubber. *Journal National Rubber Resource* 5: 296-300.
- Ibrahim Abdullah. 1996. Process for manufacturing liquid natural rubber (LNR). Malaysia Patent, MY-108852-A.
- Folkes, M.J. 1982. *Short fiber reinforced thermoplastics*. Chicester: John Wiley & Sons Limited.
- Hanafi Ismail. 2000. *Pengisi dan Penguatan Getah*. Pulau Pinang: Universiti Sains Malaysia. 1-3.

- Katz, H.S. & Milewski, J.V. (pnyt.). 1987. *Handbook of Filler for Plastics*. New York: Van Nostrand Reinhold Company.
- Manson, J.A. & Sperling, J.H. 1976. *Polymer blends and composites*. New York: Plenum Press.
- Ong, E.L. 2003. Specialty rubbers: Expanding the usage of NR through modifications. *International Rubber Quarterly*. Mac : 52-57.
- Robson, J., Hague, J., Newman, G., Jeronimidis, G. & Ansell, M.P. 1993. Report No. C/431/92 to DTI LINK Structural Composites Committee, January 1993.
- Tinker, A.J. 1984. Preparation of PP/NR blends having high impact strength at low temperature. *Polymer Communication* 25: 325-326.
- Wal van der, A., Nijhof, R. & Gaymans, R. J. 1999. Polypropylene-rubber blends: 2. The effect of the rubber content on the deformation and impact behaviour. *Polymer* 40: 6031-6044.
- Xuan, H.L. & Decker, C. 1993. Photocrosslinking of acrylated natural rubber. *Journal Polymer Science Chemistry* 31: 769-780.