

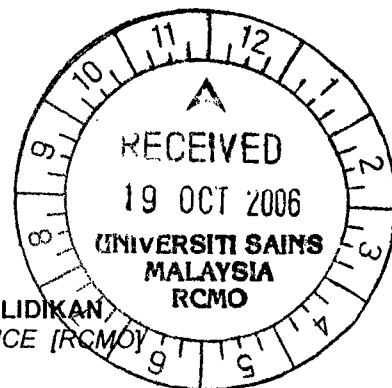


Laporan Akhir Projek Penyelidikan Jangka Pendek

Kesan Agen Pengkupel Multifungsi Titanat Terhadap Polipropilena Terisi Kalsium Karbonat

**oleh
Azlan Ariffin
Prof. Zainal Arifin Mohd. Ishak**

2006



PEJABAT PENGURUSAN & KREATIVITI PENYELIDIKAN
RESEARCH CREATIVITY AND MANAGEMENT OFFICE (RCMO)

LAPORAN AKHIR PROJEK PENYELIDIKAN JANGKA PENDEK FINAL REPORT OF SHORT TERM RESEARCH PROJECTS

- 1) Nama Ketua Penyelidik :
Name of Research Leader :

Ketua Penyelidik Research Leader	PTJ School/Centre
Azlan Bin Ariffin	PPK Bahan Dan Sumber Mineral

- Nama Penyelidik Bersama
(Jika berkaitan) :
Name/s of Co-Researcher/s
(if applicable)

Penyelidik Bersama Co-Researcher	PTJ School/Centre
Prof. Zainal Arifin Mohd. Ishak	PPK Bahan dan Sumber Mineral

- 2) Tajuk Projek :

Kesan Agen Pengkupel Multifungsi titanat terhadap polipropilena terisi kalsium karbonat.

3) **Abstrak untuk penyelidikan anda**

(Perlu disediakan di antara 100 – 200 perkataan di dalam Bahasa Malaysia dan Bahasa Inggeris. Ini kemudiannya akan dimuatkan ke dalam Laporan Tahunan Bahagian Penyelidikan & Inovasi sebagai satu cara untuk menyampaikan dapatan projek tuan/puan kepada pihak Universiti & luar).

Abstract of Research

(Must be prepared in 100 – 200 words in Bahasa Malaysia as well as in English. This abstract will later be included in the Annual Report of the Research and Innovation Section as a means of presenting the project findings of the researcher/s to the university and the outside community)

Agens pengkupel titanat komersial iaitu Lica 12 telah digunakan di dalam kajian ini untuk melihat kesannya terhadap PP berpengisi Kalsium Karbonat. Dua teknik telah digunakan, teknik yang pertama ialah kaedah konvensional i.e. kaedah percampuran secara teru, atau serentak. Dalam kaedah unu agens pengkupel, pengisi dan resin PP dicampur secara serentak sebelum proses percampuran dilakukan. Teknik yang kedua menggunakan kaedah pra-rawatan. Dalam kaedah ini agens pengkupel dicampur dengan pengisi secara seragam atau pengisi dilitupi dengan agens pengkupel terlebih dahulu sebelum proses percampuran dilakukan. Ciri-ciri pemprosesan kedua-dua teknik dikaji dengan menggunakan Brabender plasticoder. Kedua-dua teknik memberikan kesan yang berbeza terhadap ciri-ciri pemprosesan plastic PP pada semua peratusan Lica 12. Kajian percampuran menunjukkan kaedah pra-rawatan memberikan ciri pemprosesan plastic PP yang lebih baik berbanding dengan kaedah percampuran serentak. Sifat-sifat mekanikal yang dipamerkan oleh kaedah pra-rawatan jugs adalah lebih baik. Walau bagaimanapun apabila jumlah pengisi pra-rawatan ditingkatkan dari 10 p.h.r. ke 40 p.h.r. sifat-sifat tensil plastic semakin merosot dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan kecuali pemanjangan takat putus. Kekuatan hentaman sebatian PP menunjukkan peningkatan apabila jumlah KK pra-rawatan dari 10 p.h.r. ke 40 p.h.r. peningkatan jumlah KK pra-rawatan juga mengubah ciri-ciri pemprosesannya, di mana tenaga yang lebih tinggi diperlukan untuk menjalankan proses penyebatan plastic PP.

A commercial coupling agent (Lica 12) has been used in this study to see its effect on calcium carbonate filled polypropylene. Two methods of incorporation of the filler to the PP matrix were used i.e. A conventional method and the pre-treatment method. In the former methods, the coupling agent, filler and the PP matrix were mixed together in the internal mixer while the later, calcium carbonate was pre-treated with Lica 12 in a homogeneous manner prior to mixing. Processing characteristic of both methods were studied using a Brabender plasticoder internal mixer. Both methods gave a very clear difference of characteristic for all the percentages of Lica 12. Mixing studies shows that the pre-treatment technique gave a better mixing characteristic of filled polypropylene compare to direct mixing. The mixing torque and temperature were much lower with the pre-treatment filler indicating that the method gives a better adhesion and distribution of filler in the PP matrix as also observed from the SEM micrograph. Direct mixing shows more agglomeration than pre-treatment method. Similar trend for mechanical properties were also observed for the same percentage of filler. However, the mechanical properties except for the elongation at break decreased with the increment of filler for both methods. Impact strength increased with increasing amount of pre-treatment filler to the PP matrix due to the plasticizing effect of the coupling agent.

- 4) Sila sediakan Laporan teknikal lengkap yang menerangkan keseluruhan projek ini.
 [Sila gunakan kertas berasingan]
*Kindly prepare a comprehensive technical report explaining the project
 (Prepare report separately as attachment)*

Senaraikan Kata Kunci yang boleh menggambarkan penyelidikan anda :
List a glossary that explains or reflects your research:

<u>Bahasa Malaysia</u>	<u>Bahasa Inggeris</u>
<i>percampuran terus</i>	<i>direct mixing</i>
<i>prapemprosesan</i>	<i>preprocessing</i>
<i>perekatan</i>	<i>adhesion</i>
<i>penyerakan</i>	<i>dispersion</i>

- 5) **Output Dan Faedah Projek**
Output and Benefits of Project

(a) * Penerbitan (termasuk laporan/kertas seminar)
Publications (including reports/seminar papers)
(Sila nyatakan jenis, tajuk, pengarang, tahun terbitan dan di mana telah diterbitkan/dibentangkan).
(Kindly state each type, title, author/editor, publication year and journal/s containing publication)

- **Telah menyerahkan manuskrip asal kepada polymer jurnal.**
 - **PJ-2003022GA**
- **Akan menghantar 2 lagi manuskrip kepada jurnal.**

(b) **Faedah-Faedah Lain Seperti Perkembangan Produk, Prospek Komersialisasi Dan Pendaftaran Paten atau impak kepada dasar dan masyarakat.**
Other benefits such as product development, product commercialisation/patent registration or impact on source and society

.....

.....

.....

.....

.....

.....

.....

.....

.....

.....

- * Sila berikan salinan
- * *Kindly provide copies*

1.3	Pengisi	9
1.3.1	Ciri-ciri Pengisi	10
1.3.2	Kelas Pengisi	10
1.3.3	Tindak Balas Pengisi	11
1.3.4	Sifat-sifat Fizikal Pengisi	11
	<i>1.3.4.1 Bentuk Pengisi</i>	12
	<i>1.3.4.2 Taburan Saiz Partikel</i>	12
	<i>1.3.4.3 Permukaan Pengisi</i>	13
	<i>1.3.4.4 Tenaga Permukaan</i>	14
	<i>1.3.4.5 Haba Spesifik dan Konduktiviti Termal</i>	14
	<i>1.3.4.6 Geseran Mesin Pemproses</i>	15
1.3.5	Kalsium Karbonat	16
1.4	Agan Pengkupel	19
1.4.1	Pengkelasan Agan Pengkupel	20
	<i>2.4.1.1 Agan Pengkupel Silane</i>	20
	<i>2.4.1.2 Agan Pengkupel Bukan Silane</i>	20
	<i>a) Kompleks Kromium</i>	21
	<i>b) Titanat</i>	21
	<i>c) Zirkonat</i>	24
1.4.2	Agan pengkupel didalam penyebatian plastik	24

BAB 2

2.0	SOROTAN LITERATUR	25
2.1	Objektif	34

BAB 3

3.0	EKSPERIMEN	36
3.1	Kaedah penyelidikan dan bahan	36
3.2	Kajian pencampuran	36
3.2.1	Pencairan agen pengkupel dan pra-rawatan pengisi	37
3.3	Pemprosesan	38
3.4	Sifat-sifat mekanikal	38
3.5	DSC (Differential Scanning Calorimetry)	39

BAB 4

4.0	KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN	41
4.1	Kesan agen pengkupel multifungsi titanat (APT) terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal plastik polipropelina (PP) berpengisi kalsium karbonat (KK)	41
4.1.1	Ciri-ciri pemprosesan	42
4.1.2	Sifat-sifat mekanikal	49
<i>a) Sifat-sifat tensil</i>		49
<i>b) Sifat-sifat hentaman</i>		54
4.1.3	Morfologi (S.E.M)	55

SENARAI RAJAH

Rajah	Tajuk	Mukasurat
1.2.1	Tindakbalas pemolimeran propilena	4
1.2.2	Struktur polipropilena	5
1.2.3	Taktisiti propilena	6
1.3.1	Struktur kalsium karbonat	16
1.4.1	Ilustrasi tindakbalas di antara pengisi dengan agen pengkupelel titanat untuk membentuk satu lapisan molekul terhadap pengisi tak organik	22
1.4.2	Kurva perbandingan di antara CPVC sistem KK/minyak galian yang dirawat dengan titanat dan tidak di rawat dengan titanat	23
2.0.1	Struktur kimia LICA 12	32
2.0.2	Teknik pencampuran	33
3.1.1	“Differential Scanning Calorimetry”	40
4.1.1	Ilustrasi menunjukkan penambahan agen pengkupelel titanat di dalam polimer organik berpengisi bahan tak organik meningkatkan keserasian termoplastik	41
4.1.2	Graf tipikal torque melawan masa	44
4.1.3	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP berpengisi KK pada pelbagai peratusan APT	46

4.1.4	Kesan APT terhadap masa pencampuran sebatian PP berpengisi KK	47
4.1.5	Kesan APT terhadap kadar pencampuran KK dan PP	47
4.1.6	Kesan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP berpengisi KK	50
4.1.7	Kesan APT terhadap pemanjangan pada takat putus sebatian PP berpengisi KK	50
4.1.8	Kesan APT terhadap E-modulus sebatian PP berpengisi KK	51
4.1.9	Ilustrasi menunjukkan APT berlebihan bertindak sebagai pelincir dalaman	52
4.1.10	Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP berpengisi KK	54
4.1.12	Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 0.8% APT	56
4.1.13	Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT	57
4.2.1	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan pada pelbagai peratusan APT	59
4.2.2	Pembentukan ikatan PP-pengisi	60
4.2.3	Kesan APT terhadap masa pencampuran sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan.	63
4.2.4	Kesan APT terhadap kadar pencampuran KK pra-rawatan PP.	64
4.2.5	Kesan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan	65

4.2.6	Kesan APT terhadap pemanjangan pada takat putus sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan.	66
4.2.7	Kesan APT terhadap E-modulus sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan.	66
4.2.8	Ilustrasi pengurangan pembentukan liang (voids) melalui tindak balas neoalkoksi dalam fasa organik	67
4.2.9	Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan	69
4.2.12	Mikrograf sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan (0.8% APT)	71
4.2.13	Mikrograf sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan (2.0% APT)	71
4.3.1	Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (0.4%)	72
4.3.2	Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (0.8%)	73
4.3.3	Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (1.2%)	73
4.3.4	Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (1.6%)	74
4.3.5	Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (2.0%)	74
4.3.6	Perbandingan torque pengstabilan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan	76

4.3.7	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap masa pencampuran sebatian PP	77
4.3.8	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap kadar pencampuran KK dan PP	78
4.3.9	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap kekuatan tensil sebatian PP	79
4.3.10	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap pemanjangan takat putus sebatian PP	80
4.3.11	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap E-modulus sebatian PP	81
4.3.12	Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap kekuatan hentaman sebatian PP	82
4.3.14	Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 0.8% APT dengan kaedah pencampuran terus	83
4.3.15	Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT dengan kaedah pencampuran terus	84
4.3.17	Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT dengan kaedah pra-rawatan	85
4.4.1	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK	87
4.4.2	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 0.4% APT	88
4.4.3	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 0.8% APT	88

4.4.3	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 0.8% APT	88
4.4.4	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 1.2% APT	89
4.4.5	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 1.6% APT	89
4.4.6	Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 2.0% APT	90
4.4.7	Kesan APT terhadap masa pencampuran pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan PP	92
4.4.8	Kesan APT terhadap kadar pencampuran pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan PP	93
4.4.9	Kesan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan	97
4.4.10	Kesan APT terhadap pemanjangan pada takat putus sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan	99
4.4.11	Kesan APT terhadap E-Modulus sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan	101
4.4.12	Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan	103
4.4.13	Kurva DSC menunjukkan suhu penghabluran	106

SENARAI JADUAL

Jadual	Tajuk	Mukasurat
2.0.1	Sifat-sifat tipikal produk berpengisi kalsium karbonat	26
2.0.2	Sifat-sifat tipikal produk berpengisi “talc”	27
4.1.1	Perubahan torque pada jumlah peratusan APT yang berbeza	45
4.2.1	Perubahan torque sebatian PP pada jumlah peratusan APT yang berbeza	62
4.4.1	Nilai torque B pada pelbagai jumlah APT dan KK pra-rawatan	94
4.4.2	Nilai torque X pada pelbagai jumlah APT dan KK pra-rawatan	95
4.4.3	Suhu “onset”penghabluran sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan peratusan APT.	107
4.4.4	Suhu penghabluran sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan peratusan APT.	108
4.4.5	Haba spesifik peleburan sebatian PP pada pelbagai peratusan APT dan jumlah KK pra-rawatan.	110

ABSTRAK

Agen pengkupel titanat komersil iaitu Lica 12 yang dibekalkan oleh Kentrich Petrochemical telah digunakan dalam kajian ini untuk melihat kesannya terhadap PP berpengisi kalsium karbonat. Dua teknik telah digunakan, teknik yang pertama ialah kaedah konvensional i.e kaedah pencampuran secara terus atau serentak. Dalam kaedah ini agen pengkupel, pengisi dan resin PP dicampur secara serentak sebelum proses pencampuran dilakukan. Teknik yang kedua menggunakan kaedah pra-rawatan. Dalam kaedah ini agen pengkupel dicampur dengan pengisi secara seragam atau pengisi dilitupi dengan agen pengkupel terlebih dahulu sebelum proses pencampuran dilakukan. Ciri-ciri pemprosesan kedua-dua teknik dikaji dengan menggunakan Brabender Plasticoder. Kedua-dua teknik memberikan kesan yang berbeza terhadap ciri-ciri pemprosesan plastik PP pada semua peratusan Lica 12. Kajian pencampuran menunjukkan kaedah pra-rawatan memberikan ciri-ciri pemprosesan plastik PP yang lebih baik berbanding dengan kaedah pencampuran secara serentak. Sifat-sifat mekanikal yang dipamirkan oleh kaedah pra-rawatan juga adalah lebih baik. Walau bagaimanapun apabila jumlah pengisi pra-rawatan ditingkatkan dari 10 p.h.r ke 40 p.h.r sifat-sifat tensil plastik PP semakin merosot dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan kecuali pemanjangan takat putusanya. Kekuatan hentaman sebatian PP menunjukkan peningkatan apabila jumlah KK pra-rawatan ditingkatkan dari 10 p.h.r ke 40 p.h.r. Peningkatan jumlah KK pra-rawatan juga mengubah ciri-ciri pemprosesannya, dimana tenaga yang lebih tinggi diperlukan untuk menjalankan proses penyebatian plastik PP.

**THE EFFECT OF TITANATE MULTIFUNCTIONAL COUPLING AGENT
ON MIXING CHARACTERISTIC AND MECHANICAL PROPERTIES OF
CALCIUM CARBONATE FILLED POLYPROPYLENE.**

ABSTRACT

A commercial coupling agent (Lica 12) from Kentrich Petrochemicals has been used in this study to see its effect on calcium carbonate filled polypropylene. Two methods of incorporation of the filler to the PP matrix were used i.e. A conventional method and the pre-treatment method. In the former methods, the coupling agent, filler and the PP matrix were mixed together in the internal mixer while the later, calcium carbonate was pre-treated with Lica 12 in a homogeneous manner prior to mixing. Processing characteristic of both methods were studied using a Brabender plasticoder internal mixer. Both methods gave a very clear difference characteristic for all the percentages of Lica 12. Mixing studies shows that the pre-treatment technique gave a better mixing characteristic of filled polypropylene compare to direct mixing. The mixing torque and temperature were much lower with the pre-treatment filler indicating that the method gives a better adhesion and distribution of filler in the PP matrix as also observed from the SEM micrograph. Direct mixing shows more agglomeration than pre-treatment method. Similar trend for mechanical properties were also observed for the same percentage of filler. However, the mechanical properties except for the elongation at break decreased with the increment of filler for both methods. Impact strength increased with increasing amount of pre-treatment filler to the PP matrix due to the plasticizing effect of the coupling agent.

1.0 PENGENALAN

Setiap tahun permintaan ke atas produk plastik semakin meningkat. Peningkatan terhadap penggunaan produk plastik adalah hasil dari penyelidikan yang dilakukan dari masa ke semasa untuk memperbaiki sifat-sifat plastik. Dari penyelidikan yang telah dijalankan plastik telah dapat menggantikan kebanyakan penggunaan tembikar, kaca, besi dan lain-lain lagi.

Plastik mempunyai kelebihan tersendiri yang menyebabkan ia berkembang begitu cepat, seperti ringan dan penebat elektrik yang baik. Disamping itu, kelebihan dalam penambahan pigmen semasa pemprosesan, membuatkan warnanya tahan lebih lama jika dibandingkan dengan kayu dan besi. Penambahan sedikit bahan kimia semasa pemprosesan dapat memperbaiki sifat-sifatnya dengan mudah dan pelbagai lagi kelebihan yang sukar diperolehi dari bahan yang lain.

Pada masa kini penggunaan plastik tidak hanya terhad kepada produk harian, penggunaannya telah meluas sehingga ke bidang yang begitu mencabar seperti kejuruteraan dan angkasa lepas.

Menurut kamus dewan, plastik bermaksud boleh dibentuk [Robert, 1973]. Namun begitu definasi ini terlalu luas ia meliputi kaolin, wax, simen, plaster, kaca dan besi di mana bahan-bahan ini boleh dibentuk di bawah keadaan tertentu dan mengekalkan bentuk yang baru tersebut.

Plastik disediakan secara sintetik dari bahan kimia ringkas yang ditemui secara semulajadi. Sintetik plastik merupakan sebatian kimia yang dihasilkan dari unsur kimia yang asas seperti karbon, hidrogen, nitrogen, dan oksigen [Robert, 1973]. Atom-atom ini apabila dicantumkan dalam keadaan yang tertentu ia akan membentuk rantaian molekul yang panjang dan membentuk suatu bahan yang solid yang dipanggil "polimer".

Polimer didefinisikan sebagai suatu molekul yang besar yang terbentuk daripada unit ulangan yang kecil atau unit-unit kimia yang ringkas [Brydson, 1982]. Polimer inilah yang membentuk plastik. Plastik resin terdapat dalam pelbagai bentuk seperti cecair, serbuk dan pelet. Plastik boleh dibahagikan kepada 3 kategori yang utama [Robert, 1973]:

- a) Termoset - plastik ini tidak dapat dilebur atau dilarut semula setelah mengalami perubahan kimia semasa pemrosesan. Contoh plastik ini ialah fenolik, amino, epoksi dan poliester.
- b) Termoplastik - plastik jenis ini boleh dilembutkan apabila dipanaskan dan mengeras apabila disejukkan dan ia juga boleh dilakukan secara berulang kali. Contoh plastik ini ialah nilon, akrilik, selulos aetat dan vinil.
- c) Elastomer - plastik ini boleh diregang dan pemanjangannya adalah duakali ganda panjangnya yang asal (pada suhu bilik), dan kembali kepada panjang asal apabila dilepaskan. Contoh plastik ini ialah silikon, uretane, getah nitril dan PE terklorin.

Di antara ketiga-tiga jenis plastik ini, plastik jenis termoplastik semakin digemari kerana kelebihanannya yang boleh dikitar semula. Poliolefin merupakan salah

satu plastik termoplastik yang penting dan semakin meluas penggunaannya di dalam industri plastik.

1.1 Poliolefin

Poliolefin merupakan rantai hidrokarbon alifatik yang panjang. Secara umum poliolefin mempunyai kerintangan yang tinggi terhadap air ; ini bererti secara praktikal tiada air diserap , tidak larut di dalam pelarut pada suhu bilik dan akhir sekali ia bukan penghalang yang baik terhadap gas seperti oksigen, nitrogen, karbon dioksida dan lain-lain gas tetapi keadaan ini berubah-ubah mengikut jenis poliolefin [Theodore, 1969].

Polietylena (PE) merupakan poliolefin yang paling ringkas dan bahan yang terbanyak dikeluarkan. Secara komersial PE dihasilkan dari etilena yang diperolehi daripada petroleum. Terdapat 4 -cara yang sering digunakan untuk menyediakan molekul polimer yang tinggi dari etilena, iaitu [Brydson, 1982] :

- a) Proses tekanan tinggi (High pressure proses)
- b) Proses Ziegler
- c) Proses Philip
- d) Piawai minyak - Proses Indiana (The standard oil)

Kajian terhadap PE telah dijalankan dengan giatnya sehingga terhasilnya HDPE (high density PE), LDPE (Low density PE), LLDPE (Low linear density PE) dan VLDPE (Very low density PE).

Kejayaan dalam penghasilan PE linear, menjadi pemangkin kepada para penyelidik plastik untuk terus mengkaji sehingga akhirnya mereka menemui Polipropilena (PP) [George, 1982].

1.2 Polipropilena

PP dihasilkan dari propilena yang didapati daripada pemecahan hidrokarbon di dalam industri petroleum bersama-sama dengan olefin yang lain. Propilena ini seterusnya akan membentuk polipropilena melalui proses pempolimeran seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 1.2.1.



Rajah 1.2.1 Tindakbalas pempolimeran propilena. [Theodore, 1969]

PP merupakan resin termoplastik berhablur (crystalline) [Fuad, 1993]. Ia dianggap istimewa kerana strukturnya yang “stereoregular” dan merupakan salah satu ahli keluarga polimer sintetik “stereoregular” yang dianggap penting dalam industri plastik.

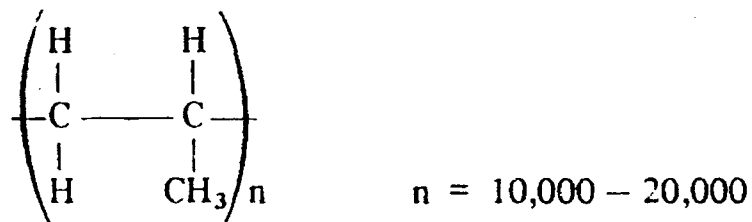
PP boleh dibahagikan kepada 3 kelas yang utama seperti berikut :

- a) PP homopolimer
- b) PP kopolimer, PP monomer utama.
- c) “Rubber modified PP blend”.

Antara faktor yang menarik para pengeluar menggunakan PP selain daripada harganya yang murah ialah ia merupakan penebat elektrik yang baik pada julat frekuensi yang besar, mempunyai kerintangan yang tinggi terhadap bahan kimia, mudah diproses, kuat, fleksibel dan lutsinar.

1.2.1 Struktur Polipropilena

Seperti yang di pamerkan oleh Rajah 1.2.2, PP mempunyai struktur makromolekul yang terdiri daripada 10,000 hingga 20,000 unit monomer, bergantung kepada darjah pempolimeran [Ingenieuruisen, 1979]. Bagi produk komersil, panjang rantai adalah berbeza-beza bergantung kepada penggunaannya, contohnya untuk pengekstrudan paip, penyebaran molekul yang lebar diperlukan tetapi untuk “melt spinning” penyebaran molekul yang sempit diperlukan.

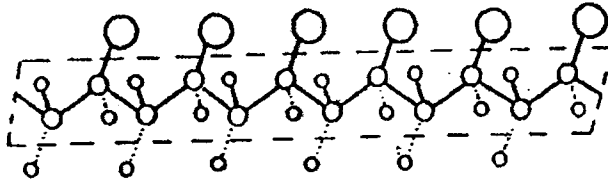


Rajah 1.2.2 Struktur polipropilena [Ingenieuruisen, 1979]

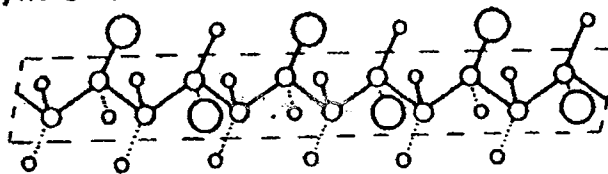
Rajah 1.2.3 menunjukkan terdapat tiga jenis struktur yang biasa ditemui di dalam PP iaitu isotaktik, sindiotaktik dan ataktik [Ingenieuruisen, 1979]. Struktur ini bergantung kepada kedudukan kumpulan metil, jika kumpulan metil ini berada pada satu bahagian sahaja ia dipanggil isotaktik sebaliknya jika kumpulan metil itu tersusun

secara berselang-seli di kedua-dua belah rantai PP ia dipanggil sindiotaktik. Ataktik PP pula mempunyai susunan secara rawak.

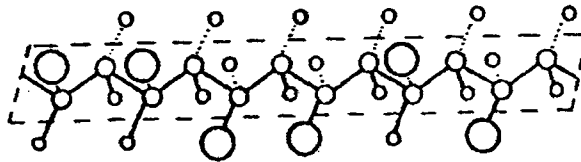
isotactic



syndiotactic



atactic



Rajah 1.2.3 Taktisiti polipropelina [Ingenieuruisen, 1979]

1.2.2 Sifat-sifat Polipropilena.

PP merupakan polimer linear hidrocarbon yang mengandungi sedikit atau tiada langsung rantai tak tegar [Brydson, 1982]. Oleh sebab itu PP dan PE mempunyai sifat yang hampir sama terutama dalam pembengkakkan, kelarutan dan sifat-sifat elektrik. Walau bagaimanapun kehadiran kumpulan metil menyebabkan perubahan dalam sifat-sifat ketegaran rantai dan mengganggu simetri molekul.

1.2.2.1 Penghabluran

Kehadiran kumpulan metil memberi kesan yang paling ketara terhadap taksiti sesuatu PP itu. Struktur isotaktik adalah struktur yang paling biasa didapati di dalam PP. Molekul seperti ini tidak boleh menghablur pada planar zigzag seperti PE kerana kesan halangan sterik oleh kumpulan metil. Sebaliknya ia menghablur dalam bentuk heliks dengan tiga molekul diperlukan pada satu pusingan [Brydson, 1982].

Ataktik polimer adalah amorfus sementara isotaktik polimer pula lebih tegar, berhablur dan mempunyai takat lebur yang tinggi. Semakin banyak polimer isotaktik semakin tinggi penghabluran sesuatu PP itu. Sifat penghabluran yang tinggi ini menyebabkan PP polimer komersil benganungi 90 - 95% isotaktik.

1.2.2.2 Keterlarutan

Oleh kerana sifat PP yang berhablur, maka seperti poliolefin berhablur yang lain, ia melarut pada suhu yang tinggi [Frank, 1969]. Secara umum kelarutan poliolefin dan khususnya PP juga dipengaruhi oleh perosotan pengoksidaan pada suhu yang tinggi.

PP menunjukkan keterlarutan yang baik pada suhu melebihi 80°C di dalam larutan yang dikenali sebagai "larutan baik" iaitu xylene, tetralin, aromatik terklorin dan hidrokarbon alifatik [Frank, 1969]. Di dalam "larutan lemah" seperti ester, eter, alkohol yang tinggi dan lain-lain, PP akan melarut pada suhu yang lebih tinggi.

1.2.2.3 Sifat-sifat Termal

Kehadiran kumpulan metil yang telah merubah ketegaran rantai telah menyebabkan peningkatan takat lebur dan penghabluran. Sebaliknya gangguan simetri molekul pula merendahkan takat lebur dan penghabluran [Brydson, 1982]. Biasanya takat lebur PP lebih kurang 50°C lebih tinggi daripada kebanyakan PE.

Suhu peralihan kaca bagi PP homopolimer ialah -10°C [Ingenieuruisen, 1979]. Takat lebur bagi PP berhablur ialah di antara 160°C - 168°C. Untuk mengelakkan perosotan daripada berlaku suhu pemprosesan tidak boleh melebihi 300°C.

1.2.2.4 Sifat-sifat Mekanikal

Sifat-sifat mekanikal PP dipengaruhi oleh penghabluran ; fasa menghablur yang mempunyai takat lebur yang tinggi akan mengekalkan kekuatan mekanikal sesuatu PP itu sehingga suhu yang tinggi [Frank, 1969]. Oleh kerana penghabluran ditentukan oleh berat molekul maka kedua-dua faktor ini juga akan menentukan sifat-sifat mekanikal sesuatu PP itu.

Berat molekul akan mempengaruhi sifat pukal sesuatu PP . Walau bagaimanapun pengaruh berat molekul ke atas sifat pukalnya adalah berlawanan dengan polimer-polimer yang lain [Brydson, 1982]. Walaupun pertambahan berat molekul akan meningkatkan kepekatan lebur dan kekuatan hentaman seperti polimer-polimer yang lain tetapi ia juga melemahkan kekuatan alah ketegaran dan takat melembut (softening point).

Kesan ini berlaku disebabkan polimer yang mempunyai berat molekul yang tinggi tidak dapat mengablur semudah polimer yang mempunyai berat molekul yang rendah yang mana ia mempengaruhi sifat-sifat pukal sesuatu PP tersebut. Peningkatan berat molekul juga menyebabkan penurunan dalam takat kerapuhan (brittle point).

PP merupakan plastik yang paling ringan. Ia lebih kuat dan keras (rigid) jika dibandingkan dengan HDPE, tetapi ia tidak sebaik polistirena dan PVC terutama pada suhu yang rendah [Ingenieuruisen, 1979].

1.2.2.5 Sifat-sifat Kimia.

Kehadiran kumpulan metil dalam rantaian PP mempengaruhi sifat-sifat kimianya. Tindakbalas kimia akan berlaku pada hidrogen atom yang terdapat pada karbon ketiga (tertiary) dalam unit PP [Frank, 1969]. Contohnya, kehadiran kumpulan metil menyediakan tempat untuk proses pengoksidaan berlaku menyebabkan PP kurang stabil terhadap oksigen jika dibandingkan dengan PE [Brydson, 1982]. Penambahan termal dan tenaga yang tinggi pula akan lebih menggalakkan berlakunya proses pengguntingan rantai daripada proses ikatan silang.

1.3 Pengisi

Sebelum sesuatu plastik digunakan, ia perlu menjalani satu proses yang penting yang dikenali sebagai proses penyebatian. Penyebatian didefinisikan sebagai pengeluaran produk yang lebih berguna, lebih sekata dalam bentuk yang lebih berguna.

Berbagai-bagai jenis bahan dicampurkan semasa proses penyebatian mengikut formulasi yang ditetapkan. Di antara bahan yang penting ialah pengisi [David, 1998].

1.3.1 Ciri-ciri Pengisi

Pengisi didefinisikan sebagai bahan tambah (additives) dalam bentuk pepejal yang berbeza daripada matrix plastik dari segi komposisi dan strukturnya [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Perkataan pengisi juga biasa digunakan untuk bahan tambah yang dimasukkan ke dalam polimer untuk mengubahsui sifat-sifat fizikalnya (biasanya sifat-sifat mekanikal) [Brydson, 1982].

Pada asalnya penggunaan sesuatu pengisi adalah untuk menjadikan kos sesuatu barangan itu lebih efektif [Sekutowski, 1990]. Pada masa kini penggunaan pengisi telah diperluaskan untuk mengubahsui sifat-sifat sesuatu plastik itu mengikut kehendak pengguna.

1.3.2 Kelas Pengisi

Pengisi boleh dibahagikan kepada pengisi butiran (particulate fillers), “rubbery fillers”, resin, pengisi serabut dan gabus. Pengisi butiran pula boleh dibahagikan kepada pengisi penguat dan pengisi lengai. Pengisi lengai atau pengisi penyebar akan meningkatkan nilai pukal dan mengurangkan kos, manakala pengisi penguat atau pengisi aktif akan meningkatkan sifat-sifat mekanikal atau fizikal yang tertentu di dalam sesuatu sebatian plastik [Brydson, 1982].

1.3.3 Tindak Balas Pengisi

Pengisi dapat mengubah sifat sesuatu plastik itu melalui beberapa cara. Cara yang pertama ialah membentuk ikatan kimia dengan polimer, contohnya hitam karbon (carbon black) membentuk ikatan silang dengan elastomer melalui tindakbalas yang radikal [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Ada pula segmen polimer yang melekat pada permukaan pengisi melalui ikatan “valence” sekunder atau primer yang mengurangkan pergerakan segmen yang bertentangan dan berlaku orientasi di dalam matrix polimer.

Bahagian yang menyentuh permukaan pengisi secara terus di mana penyusunan struktur berlaku akan menyebabkan bahan secara keseluruhan menjadi lebih tegar, merendahkan kebolehan merubah bentuk dan meningkatkan kekuatan sesuatu bahan itu.

Tindakan pengisi aktif yang seterusnya ialah melalui menyerapan tenaga apabila bebanan dikenakan terhadap sesuatu molekul polimer yang menyebabkan ia menggelunsur di atas permukaan pengisi tersebut [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Oleh itu tenaga hentaman dapat disebarkan secara sama rata dan menyebabkan kekuatan hentaman meningkat sebagaimana di dalam sistem “unplasticised PVC / chalk”.

1.3.4 Sifat-sifat Fizikal Pengisi

Secara umum sifat fizikal sesuatu pengisi mempunyai pengaruh yang amat besar terhadap sifat-sifat mekanikal sesuatu komposit [Sekutowski, 1990]. Di antara sifat-sifat fizikal yang penting ialah bentuk sesuatu partikel, taburan saiz partikel, permukaan spesifik dan tenaga permukaan [Schlumpf, 1983].

1.3.4.1 Bentuk Pengisi

Bentuk sesuatu partikel pengisi juga dikenali sebagai “nisbah aspek”, iaitu nisbah di antara panjang dengan ketebalan digunakan untuk memastikan samada sesuatu bahan tambah itu bertindak sebagai pengisi atau bahan penguat [Schlumpf, 1983].

Bentuk pengisi terbahagi kepada dua, iaitu :

- a) Bentuk bola, kiub, blok dan plat kecil dengan nisbah aspek yang rendah bertindak sebagai pengisi (penyebar) biasanya tidak memperbaiki sifat mekanikal sesuatu plastik kecuali sifat ketegaran plastik tersebut di mana terdapat peningkatan bagi sifat-sifat ini. Walau bagaimanapun dengan pelekatan yang kuat di antara permukaan pengisi dengan rantai polimer, pengisi yang mempunyai nisbah aspek yang rendah juga dapat meningkatkan kekuatan sesuatu plastik. Contohnya hitam karbon di dalam getah dan kalsium karbonat tanpa penglitup di dalam poliamida.
- b) Struktur berbentuk plat kecil dengan nisbah aspek yang tinggi dan bergentian biasanya akan menguatkan sesuatu sebatian plastik.

1.3.4.2 Taburan Saiz Partikel

Purata diameter partikel dan “top cut” iaitu saiz terbesar di dalam sesuatu sample partikel, merupakan ukuran yang terpenting di dalam taburan saiz sesuatu partikel. “Top cut” memberikan kesan yang ketara terhadap sifat mekanikal barangan siap. Ini kerana partikel yang paling besar ini akan menjadi tempat tumpuan tegasan

yang paling tinggi di mana sesuatu kepatahan atau kegagalan akan berlaku apabila tegasan dikenakan.

Di samping itu “top cut” juga mempengaruhi kekuatan hentaman, sifat-sifat permukaan, kekuatan tensil, kekasaran barangan siap dan kekasaran terhadap mesin pemproses. Sebagai contoh filem LLDPE berpengisi kalsium karbonat dengan “top cut” yang rendah iaitu 4 μm dengan darjah pengisian 50% lebih tinggi, diukur dengan ujian menjatuhkan pemberat, mempunyai kekuatan hentaman yang lebih tinggi berbanding dengan bahan yang mempunyai “top cut” 8 μm .

1.3.4.3 Permukaan Pengisi

Selain daripada nisbah aspek dan taburan saiz partikel, permukaan pengisi atau bahan penguat merupakan sifat yang penting yang perlu di ambil kira [Schlumpf, 1983]. Parameter ini menentukan bilangan tempat pelekatan di antara rantai polimer dan bahan tambah. Permukaan pengisi yang besar akan meningkatkan bilangan tempat pelekatan dan seterusnya memberikan sifat mekanikal yang lebih baik jika dibandingkan dengan permukaan yang kecil.

Walau bagaimanapun semasa pemprosesan dengan tegasan yang tidak mencukupi, permukaan pengisi atau bahan penguat yang terlalu besar akan menyebabkan masalah penyebaran dan kepekatan yang tidak terkawal. Bagi pengisi yang tidak tersebar dengan baik gumpalan akan terbentuk dan akan bertindak sebagai pengisi yang mempunyai “top cut” yang besar.

Kesannya yang utama ialah terhadap ujian kekuatan hentaman yang ada “notched” dimana pengurangan yang mendadak berlaku dengan pengisi yang mempunyai gumpalan. Oleh itu unit pengisi dan permukaan pengisi perlu diubahsuai mengikut keadaan tegasan sesuatu mesin pemproses supaya pengisi dapat disebar tanpa sebarang masalah.

1.3.4.4 Tenaga Permukaan

Tenaga permukaan ditentukan oleh komposisi kimia pada bahagian luar lapisan atom. Tenaga permukaan akan menentukan daya interaksi di antara plastik dan pengisi ataupun kekuatan permukaan bahan dan seterusnya mempengaruhi sifat-sifat mekanikal sebatian plastik [Schlumpf, 1983]. Keadaan ini biasanya berlaku ke atas plastik berpolar.

Seperti saiz permukaan pengisi, tenaga permukaan yang terlalu tinggi juga, akan menyebabkan timbulnya masalah penyebaran di dalam polimer, contohnya seperti mika dan kaolin. Dengan itu kelebihan daya interaksi yang tinggi di antara pengisi dan polimer tidak wujud lagi. Pengeluar pengisi atau bahan penguat dapat menukar tenaga permukaan sehingga mencapai nilai tertentu dengan melakukan proses penglitupan.

1.3.4.5 Haba Spesifik dan Konduktiviti Termal

Kebanyakan plastik mempamerkan konduktiviti termal yang rendah dan haba spesifik yang tinggi. Plastik tanpa pengisi mengambil masa pemanasan yang lama

sebelum mencapai suhu pemrosesan yang dikehendaki. Keadaan ini berlaku disebabkan oleh konduktiviti termal yang lemah di dalam plastik [Schlumpf, 1983].

Dengan menggunakan pengisi mineral penggunaan tenaga semasa pemrosesan dapat dikurangkan. Ini disebabkan konduktiviti termal pengisi mineral adalah 20 kali ganda lebih tinggi berbanding dengan plastik. Masa pusingan bagi pengacuan suntik akan berkurangan dengan penambahan pengisi. Contohnya penambahan 30% kalsium karbonat di dalam PP akan meningkatkan produktiviti di antara 25 ke 30%.

1.3.4.6 Geseran Mesin Pemproses.

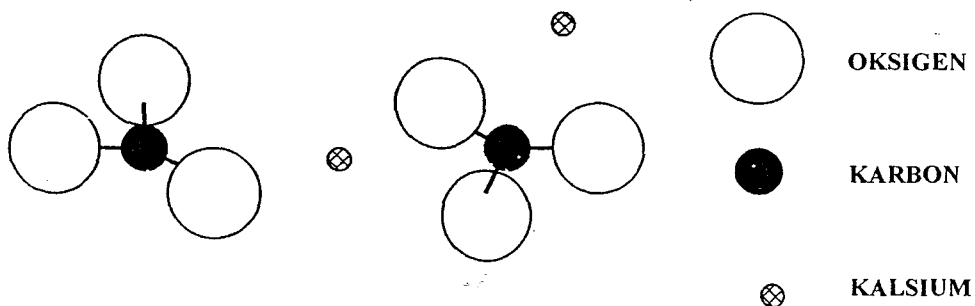
Kebanyakan pengisi dan bahan penguat akan menyebabkan hakisan pada mesin pemproses. Antara parameter yang penting yang menyebabkan berlakunya geseran ialah kekerasan Mohs', bentuk partikel, saiz partikel, kepekatan pengisi, kelikatan, perbezaan kelajuan di antara dinding dengan pengisi dan hakisan disebabkan oleh plastik [Schlumpf, 1983].

Antara pengisi yang terdapat di pasaran pada masa kini ialah kalsium karbonat, silikat, silika, barium sulfat, serbuk besi dan hitam karbon. Silikat pula terdiri daripada gentian kaca, bebola kaca (glass sphere), asbestos, "talc", kaolin, mika, felspar dan "wallastonite". Setiap jenis pengisi ini terbahagi kepada pelbagai gred mengikut purata saiz partikel dan taburan saiz, bentuk partikel dan keporosan, sifat kimia pada permukaan dan bendasing .

Sebelum pemilihan sesuatu pengisi dilakukan faktor-faktor yang telah disebutkan sebelum ini perlu diambil kira. Selain daripada itu kos merupakan salah satu kriteria yang paling penting dalam pemilihan sesuatu pengisi itu. Antara pengisi yang termurah ialah kalsium karbonat .

1.3.5 Kalsium Karbonat

Kalsium karbonat (KK) merupakan salah satu bahan galian yang berwarna putih yang paling banyak (15%) didapati pada kerak bumi. Ia dikenali dengan berbagai-bagai nama seperti “marble”, “limestone”, “calcite”, “chalk”, “aragonite”, “dolomite” (CaCO_3 / MgCO_3), “coral”, “shell” dan “whiting”. Berkemungkinan KK merupakan bahan tambah yang paling meluas penggunaannya disebabkan ia putih, kesan geseran yang rendah, boleh didapati pada julat saiz partikel yang besar dan kosnya yang lebih rendah berbanding dengan pengisi lain [Sekutowski, 1990].



Rajah 1.3.1 Struktur kalsium karbonat

Rajah 1.3.1 menunjukkan dalam keadaan pepejal KK terdiri daripada kation kalsium dan planar trigonal anion karbonat. Cara penyusunan bahan ini akan menentukan samada ia struktur "calcite" atau "aragonite". Hablur "calcite" berbentuk

heksagonal dan "aragonite" berbentuk ortorombik. Pembentukan struktur hablur yang berlainan memberikan sifat-sifat fizikal yang berlainan.

KK boleh dibahagikan kepada tiga jenis iaitu:[Bosshard & Schlumpf, 1983]

- a) "Chalk"- rangkaian yang longgar, terdiri daripada hablur "calcite" yang halus, terhasil daripada cengkerang dan skeleton daripada fosil. Deposit "chalk" yang terbesar ditemui di Eropah, terutama di sekitar pantai Channel dan lembah Paris.
- b) "Limestone - rangkaian lebih baik, seperti "Urgonian limestones" di Selatan Perancis, terdiri daripada makrofosil cengkerang laut.
- c) Marmar ("Marble") - terbentuk semasa proses metamorfosis pemendakan batu seperti penghabluran semula pada bahagian pusat bumi, pada tekanan yang tinggi dan suhu 600°C. Batu yang terhasil adalah lebih keras.

Di Malaysia kebanyakan KK adalah dari jenis marmar . Marmar dikatakan di antara batu kapur yang terbaik di dunia. Batu kapur diperolehi melalui aktiviti kuari dipermukaan ataupun perlombongan di dalam tanah [King, 1972].

Batu kapur yang diperolehi biasanya mempunyai warna yang berbeza dari warna putih kepada hitam, kekerasan, ketumpatan, keporosan, tekstur, ketulenan adalah berubah-ubah walaupun dalam satu kawasan yang sama. Batu kapur dan marmar yang telah dikisar sehingga halus akan digunakan sebagai pigmen atau pengisi di dalam industri plastik.

KK biasanya mempunyai komposisi 40.0% kalsium, 12.0% karbon dan 48.0 % oksigen. Batu kapur dari tanah biasanya mempunyai 94 % atau lebih kandungan KK

sementara gred mendakan (precipitate) mengandung lebih daripada 98% KK. Lain-lain bendasing yang terdapat dalam batu kapur ialah aluminium oksida (Al_2O_3), Silika (SiO_2) dan Ferum oksida (Fe_2O_3) di mana jumlahnya tidak melebihi 0.6% [Sekutowski, 1990].

KK dianggap sebagai bahan yang tidak merbahaya kepada kesihatan. Secara umum, ketulenannya yang tinggi menyebabkan ia dianggap sebagai salah satu mineral yang paling selamat. Ia tidak mudah terbakar atau meletup. "Food and Drug Administration" memberi pengiktirafan kepada KK tulen untuk digunakan sebagai bahan tambah dalam makanan [Sekutowski, 1990]. KK dipasarkan dalam dua bentuk iaitu berpenglitup dan tidak berpenglitup. Kedua-dua jenis KK ini boleh digunakan dalam industri pembungkusan makanan.

Penglitupan dilakukan ke atas KK untuk mengurangkan tenaga permukaan, mengurangkan kelikatan leburan, memperbaiki penyebaran KK, memudahkan pemprosesan, kalis air dan dapat memperbaiki mutu permukaan barangan siap [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Di samping itu penambahan bahan penglitup juga akan mengurangkan penyerapan agen penstabil dan pelincir dan seterusnya mengurangkan kos pembuatan barangan plastik tersebut [Bosshard & Schlumpf, 1983].

Walau bagaimanapun bagi industri yang menggunakan air sebagai asas pemprosesan seperti pemprosesan sarung tangan dan cat, tidak dapat menggunakan KK berpenglitup kerana produk ini kalis air. KK yang sesuai digunakan ialah KK tak berpenglitup. Itulah sebabnya dua jenis produk dikeluarkan oleh pengeluar serbuk KK iaitu KK tak berpenglitup dan KK berpenglitup.

KK berpenglitup biasanya menggunakan stearat sebagai bahan penglitup. Selain daripada stearat, titanat dan zirkoaluminat juga dilaporkan sesuai digunakan. Bahan-bahan ini dikenali sebagai agen pengkupel. Walau bagaimanapun penggunaan bahan-bahan ini masih dalam kajian.

1.4 Agen Pengkupel

Salah satu cara untuk meningkatkan pelekatan di antara polimer dan pengisi ialah dengan meningkatkan tahap pembasahan polimer ke atas pengisi [Brydson, 1982]. Salah satu cara ialah dengan melitupi pengisi dengan bahan yang mempunyai dua bahagian yang aktif.

Satu bahagian serasi dengan pengisi manakala satu bahagian lagi serasi dengan polimer. Satu contoh terbaik yang diketahui ialah dengan melitupi KK dengan asid sterik. Bahagian yang berpolar akan bersambung dengan pengisi dan bahagian hidrokarbon alifatik pula akan bersambung dengan polimer.

Satu lagi percubaan yang dianggap lebih positif untuk meningkatkan pelekatan di antara polimer dan pengisi ialah membentuk ikatan kovalen di antara kedua-dua bahan ini dengan menggunakan agen pengkupel. Agen pengkupel akan dapat mengelakkan kegagalan sesuatu plastik dari berlaku di kawasan perlekatan di antara pengisi dan polimer

Formula umum bagi agen pengkupel ialah $R' - O - M - R - X$. M terdiri daripada silikon, titanium, zirkonium dan adakalanya lain- lain logam [Grossman, 1990].

1.4.1 Pengelasan Agen Pengkupel

Agen pengkupel boleh dibahagikan kepada agen pengkupel silane dan agen pengkupel bukan silane.

1.4.1.1 Agen Pengkupel Silane.

Agen pengkupel silane lebih dikenali berbanding dengan agen pengkupel bukan silane. Contoh agen pengkupel silane ialah kationik vinilbenzil silane, Triklorovinilsilane, Trimetoksisilane dan Aminopropiltrioksisilane.

Viniltriklorosilane adalah agen pengkupel silane yang pertama di temui. Penggunaan silane yang utama ialah untuk menguatkan termoplastik dengan menggunakan gentian kaca [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Silane merupakan molekul tetrafungsi, formula umumnya ialah $YR' - Si(OR)_3$.

Ia terdiri daripada 3 kumpulan metoksi atau etoksi dengan silikon ditengah-tengah, di mana proses hidrolisis akan menukarkannya kepada Si-OH. Kumpulan Si-OH akan membentuk ikatan dengan gentian kaca (silikat atau silika) dan Y akan membentuk ikatan valen dengan plastik. Dengan itu perekatan di antara pengisi dengan polimer akan menjadi lebih baik.

1.4.1.2 Agen Pengkupel Bukan Silane

Agen pengkupel bukan silane pula terdiri dari kompleks krome , titanat, aluminozirkonium, organometalik dan zirkonat.

a) Kompleks Kromium

Kompleks kromium merupakan agen pengkupel yang terawal ditemui oleh manusia. Metakrilato-krome klorida ialah agen pengkupel yang terawal ditemui iaitu pada pertengahan tahun 1940-an [Brydson, 1982]. Kegunaan utama bahan ini ialah untuk industri gentian kaca dan di pasaran ia dikenali sebagai Volan. Ikatan kimia terbentuk di permukaan gentian kaca melalui ikatan Cr-O-Si.

b) Titanat

Seterusnya pada tahun 60-an dan 70-an penggunaan agen pengkupel telah berkembang untuk pengisi butiran seperti silika, silikat dan kaolin dalam industri getah [Brydson, 1982]. Setelah itu, penggunaannya telah dikembangkan kepada KK.

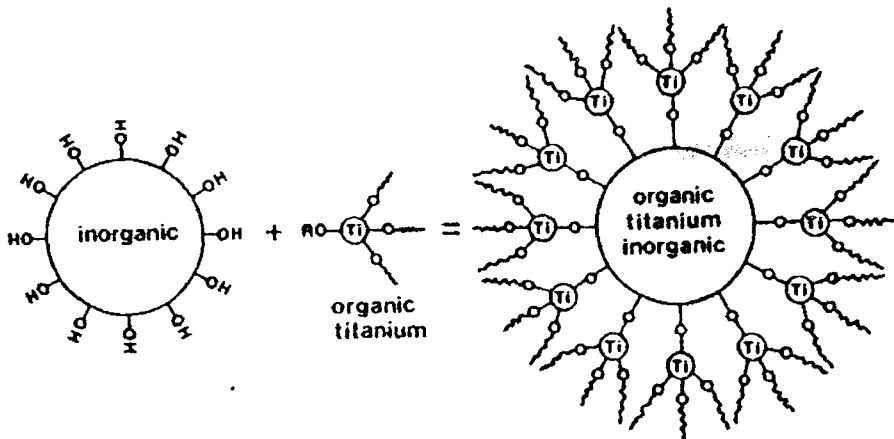
Penggunaan KK lebih popular di dalam plastik PVC berbanding dengan plastik yang lain. Ini disebabkan oleh keserasian KK dan plastik PVC yang amat baik, kos efektif dan pemprosesan yang mudah. Penggunaannya boleh mencapai sehingga 70%

KK juga digunakan di dalam PP tetapi penggunaannya di antara 10 - 30 % . Peratusan ini dianggap rendah berbanding dengan plastik PVC. Antara faktor yang membatasi penggunaan KK di dalam plastik PP ialah keserasiannya yang rendah dan pemprosesannya yang lebih kompleks.

Keserasian antara KK dan plastik PP tidak sebaik plastik PVC. Pemprosesannya pula terpaksa melalui dua peringkat iaitu penyebatian antara KK dengan plastik PP

dilakukan terlebih dahulu kemudian barulah diikuti oleh penyebatan dengan bahan tambah yang lain.

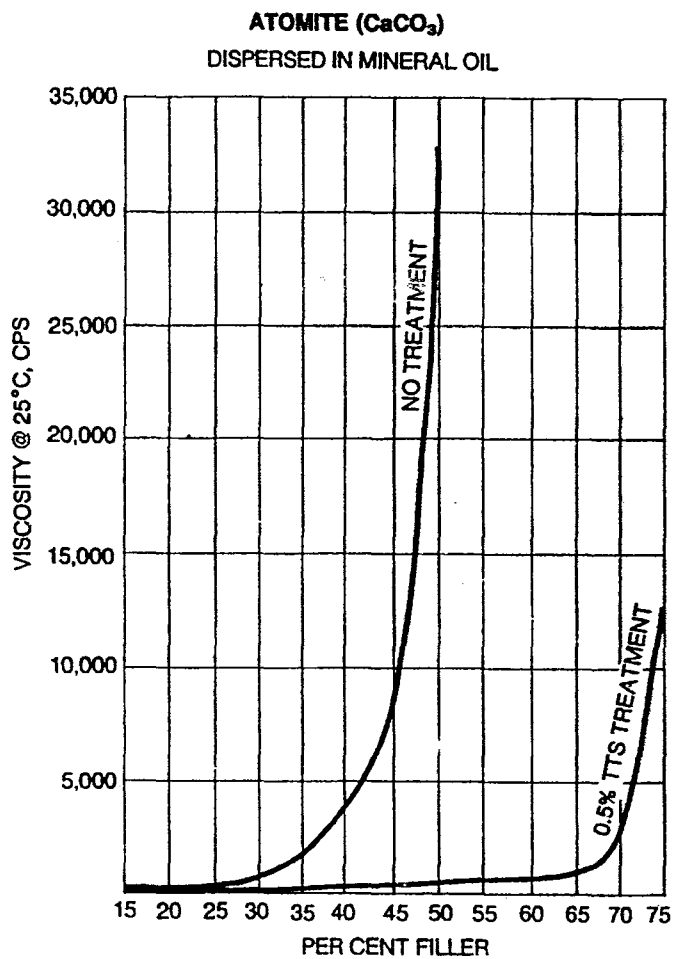
Dipercayai penggunaan agen pengkupel dapat memperbaiki masalah di atas. Walau bagaimanapun tidak semua agen pengkupel dapat digunakan dengan KK. Pemilihan yang teliti perlu dilakukan. Dari kajian yang lalu di dapati agen pengkupel multifungsi titanat (APT) di katakan paling sesuai dengan KK [Monte & Sugarman, 1985].



Rajah 1.4.1 Ilustrasi tindakbalas di antara pengisi tak organik dengan agen pengkupel titanat untuk membentuk satu lapisan molekul terhadap pengisi tak organik. [Monte & Sugarman, 1985].

Titanat juga seperti silane , merupakan sebatian tetrafungsi [Bosshard & Schlumpf, 1983]. Cara ia bertindakbalas juga hampir sama dengan silane. Formulanya secara umum ialah $(RO)_m-Ti-(OX-R-Y)_n$ [Brydson, 1982]. Rajah 1.4.1 menunjukkan ilustrasi tindakbalas antara agen pengkupel dengan pengisi mineral seperti KK.

Agen pengkumpul titanat dikatakan memberi kesan yang baik apabila digunakan dengan pengisi KK. Contohnya dengan hanya 0.1% di dalam formulasi ia dapat mengurang kepekatan plastisol PVC berpengisi seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 1.4.2. 70% penggunaan KK yang telah dilitupi dengan APT dapat meningkatkan 7.5 kali ganda kekuatan hentaman jika dibandingkan dengan polimer yang biasa.



Rajah 1.4.2 Kurva perbandingan di antara CPVC sistem KK /minyak galian yang dirawat dengan titanat dan tidak dirawat dengan titanat. [Monte & Sugarman, 1985].

c) **Zirkonat**

Agen pengkupel zirkonat juga merupakan sebatian tetrafungsi. Cara ia bertindak juga hampir sama dengan titanat dan silane. Di antara kelebihan agen pengkupel zirkonat ialah ia memberikan kestabilan UV yang tinggi dan tidak memberi kesan ke atas warna sesuatu produk plastik. Walau bagaimanapun penggunaannya agak terbatas kerana harganya yang terlalu tinggi.

1.4.2 **Agen pengkupel di dalam penyebatian plastik**

Terdapat dua cara bagaimana sesuatu agen pengkupel ditambah dalam penyebatian plastik. Cara pertama ialah dengan menambah agen pengkupel kepada pengisi sebelum proses pencampuran dengan plastik dilakukan.

Cara yang kedua ialah dengan menambah pengisi dan agen pengkupel secara serentak dengan bahan tambah yang lain semasa proses pencampuran dilakukan. Walau bagaimanapun cara yang pertama dianggap lebih efektif berbanding dengan cara yang kedua kerana penyebarannya lebih baik tetapi kosnya adalah lebih tinggi .

2.0 SOROTAN LITERATUR

Penggunaan pengisi di dalam industri plastik amat meluas. Penggunaan bahan ini dapat mengurangkan kos pengeluaran di samping meningkatkan sifat-sifat fizikal dan mekanikal sesuatu plastik. Menurut Khunova [1999], penggunaan pengisi dapat memperbaiki kekuatan, ketegaran, kekerasan dan sebagainya.

Contohnya penggunaan Kalsium Karbonat (KK) dalam pembuatan tikar Polivinil Klorida (PVC) bukan sahaja dapat mengurangkan kos tetapi juga dapat mengurangkan pengecutan (shrinkage) dan memperbaiki kerintangan terhadap hentaman [Titow, 1984]. Dalam pembuatan tikar PVC jumlah KK yang digunakan di antara 200 hingga 500 phr. Antara penggunaan KK yang terpenting di Malaysia ialah dalam pembuatan kabel dan paip. Ia dapat memudahkan pemprosesan dan menghasilkan penyebaran yang baik. Di samping itu ia juga memberikan sifat-sifat fizikal dan mekanikal yang baik [Titow, 1984]. Jumlah KK yang digunakan dalam pembuatan paip dan kabel ialah antara 20 – 200 phr.

Walau bagaimanapun penggunaan KK di dalam PP tidak sebaik penggunaannya di dalam PVC. Biasanya penggunaan KK dalam PP akan menyebabkan pengurangan dalam sifat-sifat mekanikalnya sebagaimana yang ditunjukkan oleh Jadual 2.0.1.

Jadual 2.0.1: Sifat-sifat tipikal produk berpengisi kalsium karbonat [Frank, 1979]

Sifat-sifat	Homopolimer			Kopolimer				
	CaCO ₃ piawai			CaCO ₃ piawai			CaCO ₃ berubah	
	Tiada pengisi	20%	40%	Tiada pengisi	20%	40%	20%	40%
Kadar aliran leburan keadaan L, g/10min	4	4	4	4	4	4	4	4
Ketumpatan, Kg/m ³	903	1050	1220	899	1030	1200	1040	1220
Kekuatan tensil, MPa	35.5	32.1	26.5	27.6	25.5	21.0	22.1	19.3
Modulus flektural, MPa	1653	2308	2721	1309	1791	2239	1412	1722
Rockwell R kekerasan	99	98	97	82	86	87	82	82
Suhu haba membengkok (455 MPa), °C	84	104	107	72	82	91	78	79

Ketidakterasian kedua-dua bahan juga menyebabkan penyebatian PP menggunakan KK perlu melalui dua peringkat iaitu penyebatian untuk membentuk baya induk yang terdiri daripada KK dan PP, seterusnya baya induk ini akan digunakan untuk penyebatian dengan bahan tambah yang lain.

Penggunaan "talc" adalah lebih baik jika dibandingkan dengan KK. Penggunaan "talc" menghasilkan produk PP yang mempunyai sifat-sifat mekanikal yang lebih baik. Rujuk Jadual 1.0.2.

Jadual 2.0.2 : Sifat-sifat tipikal produk berpengisi " talc " [Frank, 1979]

Sifat-sifat	Homopolimer			Kopolimer		
	Tiada pengisi	20%	40%	Tiada pengisi	20%	40%
Kadar aliran leburan keadaan L, g/10min	4	4	4	4	4	4
Ketumpatan, Kg/m ³	903	1050	1220	899	1030	1200
Kekuatan tensil, MPa	35.5	34.6	31.4	27.6	27.9	25.8
Modulus flektural, MPa	1653	2480	3272	751	2204	2893
Rockwell R kekerasan	99	98	97	82	86	87
Suhu haba membengkok (66 psi), °F	83	103	268	71	81	90

Keadaan ini berlaku kerana PP dan KK mempunyai keserasian yang kurang baik jika dibandingkan dengan " talc ". " Talc " mempunyai keserasian yang lebih baik disebabkan oleh strukturnya yang nipis sedangkan KK berbentuk bulat ataupun hampir bulat. Keserasian yang kurang baik ini menyebabkan perekatan di antara PP dan KK tidak kuat dan seterusnya menyebabkan sifat-sifat mekanikalnya menjadi lemah.

Walau bagaimanapun teknologis membentuk formula komposisi polimer yang dapat memaksa penggunaan pengisi atau bahan penguat untuk menghasilkan keadaan yang lebih seimbang di antara pemprosesan dan sifat-sifat bahan tersebut pada kos yang berpatutan [Schlumpf, 1983]. Untuk mendapatkan komposisi yang optima, pembuat formula akan membuat perubahan kepada kumpulan reaktif permukaan. Tujuan perubahan ini dilakukan adalah untuk memperbaiki keserasian di antara hidrofilik mineral dan hidrofobik resin tak berpolar.

Contoh terbaik yang diketahui setakat ini ialah dengan melakukan perubahan kepada kalsium karbonat dengan menggunakan kaedah pra-rawatan dengan asid sterik. Asid sterik ini digunakan dengan hidrokarbon seperti getah dan plastik [Sekutowski, 1990].

Percubaan yang lebih positif untuk meningkatkan perekatan di antara polimer dan bahan pengisi ialah dengan mengikat keduanya dengan ikatan kovalen dengan menggunakan agen pengkupel. Terdapat pelbagai agen pengkupel komersil yang digunakan dengan pengisi mineral. Walaupun kesan yang menguntungkan dipamirkan oleh bahan ini terhadap pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal sistem termoplastik dan termoset, pemahaman asas secara terperinci masih lagi elusif [Sekutowski, 1990].

Terdapat pelbagai jenis agen pengkupel seperti silane, titanate dan zirkonat. Di antara agen pengkupel ini, silane merupakan penggerak utama industri agen pengkupel. Antara agen pengkupel silane yang terdapat di pasaran ialah Prosil 2020. Dari kajian yang lalu didapati agen pengkupel Prosil 2020 bertindak dengan dua cara di dalam komposit abu putih kulit padi yang digunakan dalam penyebatian plastik PP [Fuad, 1993].

Pertama sebagai agen pengkupel iaitu untuk memperbaiki perekatan (adhesion) di antara pengisi abu putih kulit padi (APKP) dan matrix plastik PP dan yang kedua ia bertindak sebagai pelincir dengan memudahkan pengaliran sebatian tersebut semasa pemprosesan [Fuad, 1993]. Penggunaan agen pengkupel prosil 2020 juga menunjukkan peningkatan di dalam kekuatan tensil PP komposit APKP.

Walau bagaimanapun menurut Sekutowski [1990], KK yang mungkin pengisi mineral yang terpenting di pasaran tidak dapat bertindak balas dengan agen pengkupel

silane kerana di permukaannya tidak mempunyai kumpulan hidroksil -OH untuk membentuk ikatan dengan silane. Disamping itu kebanyakan permukaan vinil telah menjalani rawatan dengan kalsium stearat yang telah mengurangkan kereaktifan permukaannya [Grossman, 1998].

Kini kekurangan ini telah dapat di atasi dengan menggunakan agen pengkupel multifungsi yang dapat melakukan kondensasi sendiri . Proses kondensasi sendiri ini dapat memerangkap pengisi seperti KK dalam jaringannya. Agen pengkupel multifungsi ini akan mengalami proses kondensasi sendiri di antara permukaan pengisi dengan permukaan polimer. Kekusutan polimer akan memerangkap permukaan pengisi yang tidak rata dalam jaringannya [Kent Rich Manual].

Di antara contoh agen pengkupel yang berada di dalam kumpulan ini ialah titanat, zirkonat multifungsi dan silane polimerik. Agen pengkupel ini dapat meningkatkan keserasian di antara polimer dan pengisi sebagaimana yang di nyatakan oleh Monte [1985]. Peningkatan keserasian kedua-dua bahan ini akan dapat diperbaiki melalui proses perekatan di antara polimer dengan pengisi.

Perekatan kedua-dua bahan ini dapat ditingkatkan kerana agen pengkupel bertindak balas pada sempadan atau antara fasa (interphase) di antara polimer dan pengisi. Antara fasa bermaksud sempadan di antara dua fasa (biasanya pepejal) yang bersentuhan, yang mempunyai komposisi, struktur atau sifat-sifat adalah berbeza di sepanjang kawasan perekatan [Sharpe, 1993].

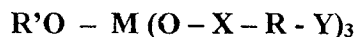
Perekatan di antara polimer dan pengisi akan menentukan sifat-sifat mekanikal sesuatu plastik [Bucher & Hinkey, 1992, Galenski, 1990, Nardin & Schultz, 1992, Pukansky & Tudos, 1990] . Penggunaan agen pengkupel akan menghasilkan tindak

balas di kawasan antara fasa yang biasanya meningkatkan kekuatan produk plastik yang dihasilkan.

Ghosh dan Maiti pula menggunakan agen pengkupel Lica 38 untuk mengubahsuai antara permukaan PP berpengisi serbuk perak di mana sifat-sifat mekanikal dapat diperbaiki dengan jayanya [Ghosh & Maiti, 1996]

Dari kajian yang dilakukan oleh Monte dan Bruins didapati agen pengkupel multifungsi telah dapat digunakan dengan jayanya terhadap pengisi KK [Monte & Sugarman, 1985] . Pra-rawatan KK dengan menggunakan agen pengkupel multifungsi titanat dianggap berjaya berdasarkan gambar yang diambil dari SEM (Scanning Electron Microscope) yang menunjukkan tiada sebarang pembentukan lapisan atom.

Agen pengkupel multifungsi mempunyai formula umum seperti berikut [Monte & Sugarman, 1985] :



M = logam tetravalen tengah

X = pengikat kumpulan berfungsi

R = kumpulan berfungsi termoplastik

Y = kumpulan berfungsi termoset

R'O = kumpulan monohidrolisis

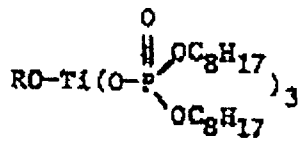
Kumpulan (O-X-R-Y)₃ direkabentuk supaya menghasilkan interaksi yang kuat dengan matrix polimer tertentu [Sekutowski, 1990]. Kumpulan R'O merupakan kumpulan yang mudah disingkirkan apabila tindak balas alkoholisis di antara kumpulan hidroksil atau air dan permukaan tak organik berlaku. Seterusnya agen pengkupel akan mengikat permukaan tak organik dan membentuk fasa satu lapisan.

Molekul agen pengkupel yang berlebihan akan bertindak samada secara terus atau tidak untuk mengikat permukaan tak organik, membentuk lapisan antara fasa di antara matrix polimer dan pengisi tak organik. Perkataan antara permukaan (interfacial) perlu dibezakan dengan perkataan antara fasa (interphase) . Antara permukaan adalah kawasan di mana substrat tak organik bersentuh dengan permukaan organik, tetapi antara fasa ialah satu lapisan nipis subfasa yang wujud di antara fasa penyebaran tak organik dan fasa matrix.

Kajian juga menunjukkan agen pengkupel multifungsi yang paling sesuai digunakan untuk penyebatian poliolefin seperti PP ialah LICA 12 dan LICA 38 [Brydson, 1981]. LICA 12 dan LICA 38 merupakan agen pengkupel titanat multifungsi. Kedua-dua jenis agen pengkupel ini sesuai digunakan dengan PP dan KK seperti yang dinyatakan oleh Manual Kent Rich [Kent Rich Manual].

Dalam kajian ini LICA 12 telah dipilih untuk digunakan dalam penyebatian PP kerana ia baru diperkenalkan dan kajian mengenainya tidak begitu meluas terutama untuk penyebatian PP dan KK. Nama kimia LICA 12 ialah Titanium IV 2,2 (bis 2-propenolatomethyl) butanolato, tris (dioctyl) pyrophosphato – O.

Struktur kimianya seperti yang ditunjukkan Rajah 2.0.1 di bawah :



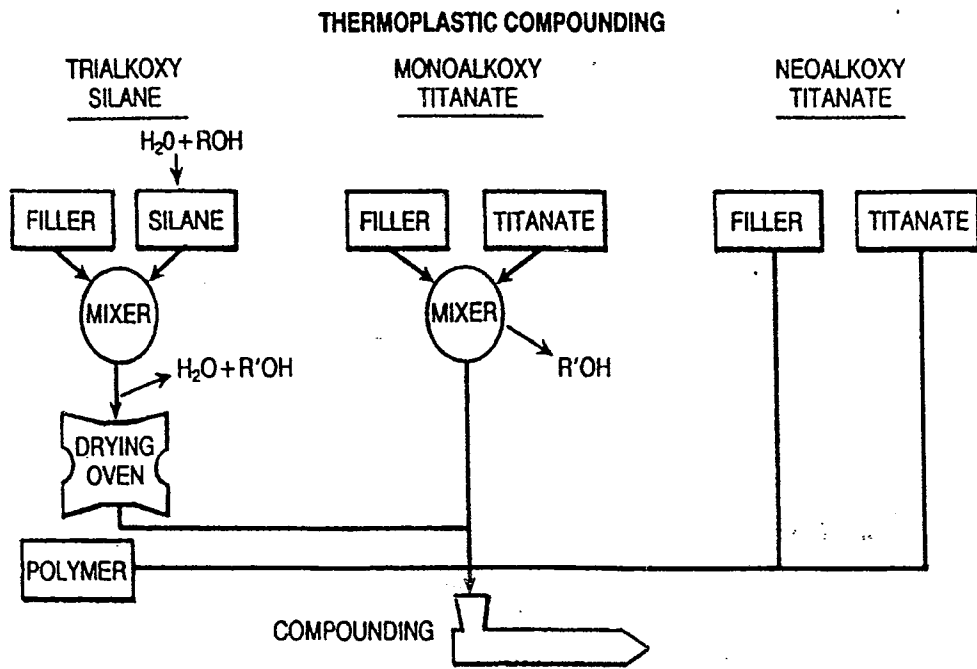
Rajah 2.0.1 Struktur kimia LICA 12

Sharma et al [1982] dalam kajiannya terhadap kesan penggunaan agen pengkupel titanat dalam PP berpengisi KK, mendapati rawatan pengisi dengan agen pengkupel isopropoksi tri-isosteroil titanat, memberikan peningkatan kekuatan hentaman sebanyak 20% dan kekuatan pemanjangan takat putus hanya rendah sedikit dari PP tanpa sebarang pengisi. Mereka menyatakan peningkatan kekuatan hentaman ini tidak sebaik yang diperolehi oleh Han et al [1981], dalam kajiannya terhadap sistem PP/CaCO₃ dan pengisi yang dirawat dengan agen pengkupel titanat. Pemanjangan takat putus yang dilaporkan oleh Han et al [1981] adalah menghampiri PP yang tidak berpengisi.

Ai Wah et al [2000] pula melaporkan penggunaan agen pengkupel multifungsi titanat, iaitu partikel PP dirawat dengan Lica 12, dapat memperbaiki aliran leburan dan penyebaran partikel pengisi. Tindak balas pengguntingan rantai di samping kesan pemplastikan dan pelinciran agen pengkupel, menyebabkan kelikatan leburan berkurangan. Sifat-sifat tensil dan flektural komposit dilaporkan berkurangan, sebaliknya kekuatan hentaman dan pemanjangan pada takat putus meningkat dengan penambahan agen pengkupel.

Katz et al [1987] pula mendapati penggunaan PP berpengisi KK menghasilkan kekuatan hentaman dan kestabilan termal yang tinggi, memperbaiki kekuatan “fatigue” tetapi ketegaran berkurang jika dibandingkan dengan gred berpengisi “talc”.

Kajian sebelum ini mendapati bahawa penggunaan kaedah pra-rawatan dapat memberikan penyebaran yang lebih baik berbanding dengan kaedah pencampuran secara terus atau pukal [Grossman , 1990]. Kaedah pencampuran plastik dengan agen pengkupel ditunjukkan oleh Rajah 2.0.2.



Rajah 2.0.2 Teknik pencampuran [Monte & Sugerman, 1985]

Dalam teknik pra-rawatan, KK akan dirawat terlebih dahulu dengan APT dengan menggunakan kaedah tertentu. Kemudian barulah pencampuran dengan APT dilakukan.

1.1 Objektif

Objektif utama kajian ini dijalankan ialah untuk melihat kesan Agen Pengkupel Multifungsi Titanat terhadap ciri-ciri pemprosesan sebatian Polipropelina (PP) berpengisi Kalsium Karbonat (KK). Penggunaan APT bertujuan meningkatkan keserasian di antara PP dan KK. Dengan meningkatkan keserasian kedua-dua bahan ini maka pemprosesan sebatian PP berpengisi KK dapat dipermudahkan.

Kajian ini juga bertujuan untuk melihat kesan APT terhadap sifat-sifat mekanikal sebatian PP berpengisi KK. Sifat-sifat mekanikal sebatian PP berpengisi KK dapat ditingkatkan melalui penggunaan APT yang dikatakan dapat meningkatkan keserasian di antara PP dan KK. Peningkatan keserasian kedua-dua bahan ini akan menyebabkan ikatan terbentuk di antara PP dan KK. Ikatan-ikatan tersebut akan meningkatkan kekuatan sebatian PP apabila sesuatu bebanan dikenakan.

Di dalam kajian ini juga dua kaedah yang berbeza telah digunakan . Kaedah yang digunakan ialah kaedah pencampuran terus dan kaedah pra-rawatan. Kesan kedua-dua kaedah terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal diperhatikan. Kaedah yang berbeza memberikan kesan yang berbeza kerana kaedah yang berbeza ini akan mempengaruhi penyebaran pengisi KK di dalam sebatian PP.

3.0 EKSPERIMEN

3.1 Kaedah penyelidikan dan bahan

Kajian ini dijalankan dengan menggunakan KK yang disediakan oleh Omya Malaysia Sdn Bhd yang terletak di Shah Alam, Selangor. KK yang digunakan ialah gred Omyacarb 2 – SA dengan purata saiz partikel $3\mu\text{m}$ dan “top cut” pada 99%, $15\mu\text{m}$. Peratusan kalsium karbonat melebihi 98%.

PP dibekalkan oleh Polypropylene (M) Sdn. Bhd. adalah jenis homopolimer (Propelinas 600G) dengan ketumpatan 0.9 g/cm^2 dan “Melt Flow Index” 12g/10 min.

Agen pengkupel yang dipilih ialah agen pengkupel multifungsi titanat yang dikenali sebagai Lica 12. Ia dipilih kerana dari manual yang diperolehi dari pembekal di dapati agen pengkupel ini adalah yang paling sesuai untuk PP dan KK. Agen pengkupel titanat (APT) ini disediakan oleh Kenrich Petrochemicals, Inc.

3.2 Kajian pencampuran

Kajian pencampuran dilakukan dengan menggunakan Brabender Plasticoder PL2000. PP dicampur dengan KK yang telah ditetapkan pada 10 p.h.r dan jumlah APT pula diubah-ubah pada peratusan yang berlainan iaitu 0.4%, 0.8%, 1.2%, 1.6% dan 2.0%. Kesemua bahan ini dicampur dalam Brabender Plasticoder PL 2000 pada suhu 180°C dengan kelajuan 50 rpm selama 5 minit.

Untuk kajian yang dilakukan dengan menggunakan kaedah pra-rawatan, KK dirawat terlebih dahulu dengan 0.4%, 0.8%, 1.2%, 1.6% dan 2.0% APT. Kemudian 10 p.h.r KK pra-rawatan dicampurkan dengan PP dalam Brabender Plasticoder PL 2000 pada suhu 180°C dengan kelajuan 50 rpm selama 5 minit.

Untuk kajian selanjutnya jumlah KK pra-rawatan yang digunakan diubah-ubah kepada 20, 30 dan 40 p.h.r. Graf torque dengan fungsi masa diperolehi dari setiap sampel.

3.2.1 Pencairan agen pengkupel dan pra-rawatan pengisi

Agan pengkupel yang dibekalkan dalam bentuk cecair yang pekat. Bagi kaedah pra-rawatan, agan pengkupel dicairkan terlebih dahulu sebelum proses seterusnya dilakukan. Dalam kajian ini minyak DOP dipilih sebagai pelarut. Minyak DOP dicampurkan dengan APT dengan nisbah 1:4, iaitu satu bahagian agan pengkupel akan dicampur dengan 4 bahagian minyak DOP mengikut berat.

Setelah selesai proses pencairan barulah agan pengkupel yang cair itu menjalani proses pra-rawatan. Tujuan proses pra-rawatan dilakukan ialah untuk melitupi semua permukaan KK dengan APT.

Alat yang digunakan dalam proses penglitupan ini ialah "high speed mixer". KK dimasukkan ke dalam alat ini pada kelajuan 3000 rpm. Kemudian APT yang telah dicairkan dimasukkan sedikit demi sedikit. Kedua-dua bahan dibiarkan bercampur sehingga suhu mencapai 100°C. Apabila suhu ini dicapai oleh "high speed mixer", ia diberhentikan dan KK yang telah dirawat dengan APT dikeluarkan. Peratusan APT

yang digunakan untuk merawat KK dipelbagaikan iaitu 0.4%, 0.8 %, 1.2%, 1.6% dan 2.0% untuk melihat kesan APT terhadap plastik PP.

3.3 Pemprosesan

Untuk penyediaan sampel, Roller Mill Lab Tech dan Pengacuan Tekanan Lab Tech digunakan. Roller Mill dijalankan pada suhu 160^o C bagi “roller” belakang dan 165^oC bagi “roller” hadapan untuk proses penyebatian. Kemudian sampel tersebut diacuankan pada suhu 180^o C di dalam acuan tekanan Lab Tech.

Bagi sampel ujian tensil masa yang diambil untuk pra-pemanasan ialah 10 minit dan pemanasan dengan tekanan 150 kg/cm² selama 8 minit. Bagi sampel ujian hentaman pula masa yang diambil untuk pra-pemanasan ialah 15 minit dan pemanasan dengan tekanan 150 kg/cm² selama 10 minit. Akhir sekali sampel yang telah siap, dikeluarkan dari acuan tekanan dan seterusnya dipotong mengikut keperluan ujian.

3.4 Sifat-sifat Mekanikal

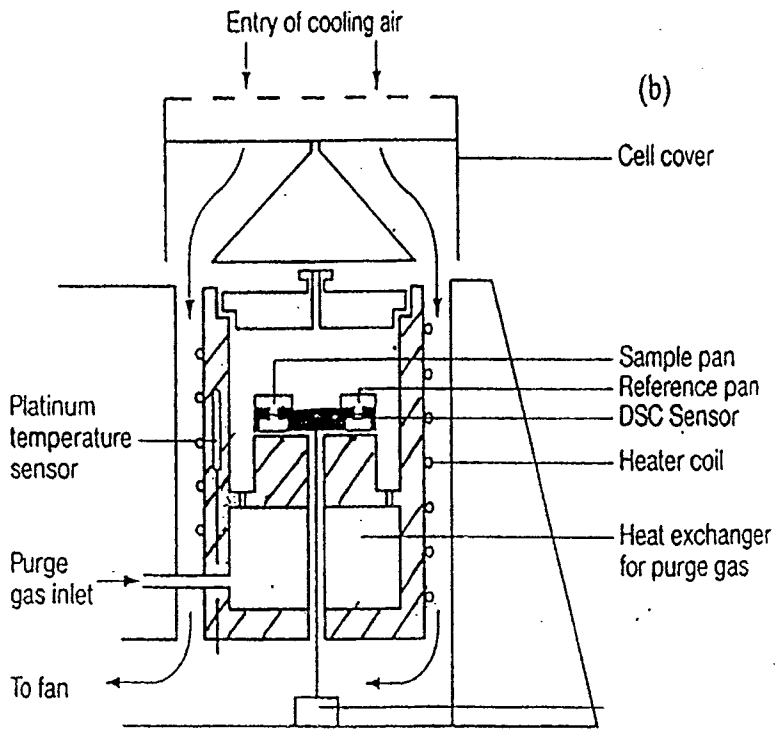
Ujian Tensil dilakukan dengan menggunakan Zwick 1445 dengan f_{max} 10 kN. Ujian tensil dilakukan berdasarkan ASTM D638-89 . Sebanyak 6 sampel diuji bagi setiap peratusan APT dan KK yang berbeza.

Ujian Hentaman Izod dilakukan dengan menggunakan tukul 2 joule. Alat yang digunakan ialah alat ujian hentaman Ceast yang mematuhi ASTM 256. "Notch" yang

dibuat pada specimen (45^o) menggunakan alat pemotong Ceast. Sebanyak 6 sampel diuji bagi setiap peratusan APT dan jumlah KK yang berbeza.

3.5 DSC (Differential Scanning Calorimetry)

Ciri-ciri penghabluran dan leburan sebatian PP dianalisis dengan menggunakan “differential scanning calorimetry” (DSC) iaitu Perkin-Elmer DSC7 yang dipanas dan disejukkan pada kadar 20 °C/min dalam keadaan bernitrogen seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 3.1.1. Pada peringkat pemanasan dan penyejukan yang pertama, sampel dipanaskan dari 50 °C sehingga 220 °C, dibiarkan pada suhu ini selama 1 minit untuk menyingkirkan sejarah termal, kemudian proses penghabluran bukan isothermal direkodkan dari 220 °C sehingga 50 °C, dan status penghabluran piawai diperolehi.

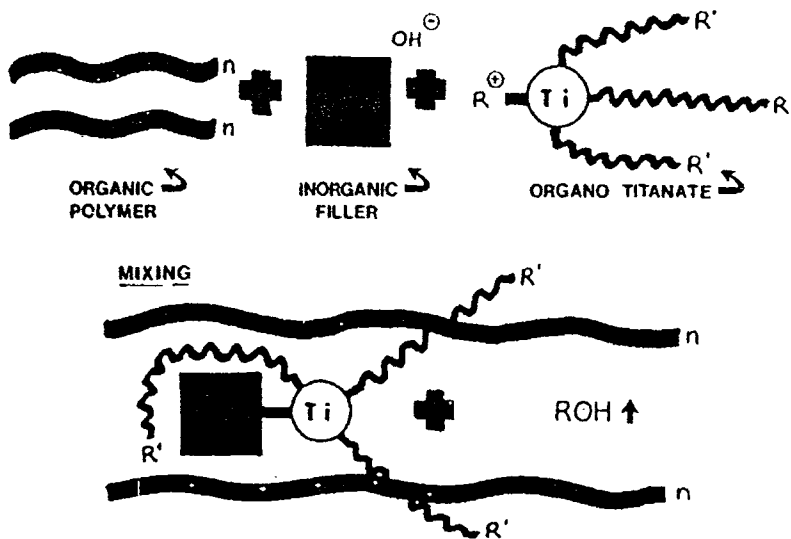


Rajah 3.1.1 "Differential Scanning Calorimetry"

4.0 KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

4.1 Kesan Agen Pengkupel Multifungsi Titanat (APT) terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal sebatian Polipropelina (PP)

Penggunaan KK agak terhad di dalam industri plastik PP kerana ia mempunyai keserasian yang kurang baik dengan resin ini. Untuk mengatasi masalah ini kajian sedang giat dijalankan oleh para penyelidik termasuk menghibridkan KK dengan “talc” dan menambah bahan yang lain seperti “wax” dan agen pengkupel [Leong , 2002].



Rajah 4.1.1 Ilustrasi menunjukkan penambahan agen pengkupel titanat di dalam polimer organik berpengisi bahan tak organik meningkatkan keserasian sistem termoplastik [Kent Rich Manual].

Di dalam kajian ini bahan tambah agen pengkupel multifungsi titanat (APT) dipilih untuk meningkatkan keserasian di antara PP dengan KK kerana APT dapat bertindak balas dengan KK dan pada masa yang sama ia juga akan bertindak balas dengan sebatian PP seperti digambarkan dalam Rajah 4.1.1. Kaedah yang digunakan ialah penambahan secara serentak yang dikatakan lebih kos efektif.

4.1.1 Ciri-ciri pemprosesan

Kesan APT terhadap sifat reologi dikaji dengan menggunakan Brabender Plasticoder. Tatacara yang digunakan ialah dengan memerhatikan daya terikan dan suhu tertentu terhadap proses peleburan PP berpengisi KK di dalam Brabender plasticoder dan torque dengan fungsi masa (Lutz, 1984, Hawkins, 1982). Sifat-sifat reologi bagi leburan polimer amat dipengaruhi oleh keadaan pemprosesan (Martuscelli, 1980).

Penyelidikan ini dilakukan untuk melihat kesan APT dan terhadap ciri-ciri pemprosesan sebatian PP. Purata saiz partikel KK yang digunakan ialah 3 μm . APT dicampurkan secara serentak dengan KK dan PP.

Untuk meneruskan kajian ciri-ciri pemprosesan sebatian PP, suhu dan kelajuan perlu ditentukan terlebih dahulu. Dari kajian yang dilakukan oleh Fuad (1993) semasa membuat kajian terhadap penggunaan agen pengkupel di dalam sebatian PP berpengisi abu sekam padi, di dapati suhu yang digunakan oleh beliau ialah 180^o C; kelajuan 40 rpm selama 5 minit.

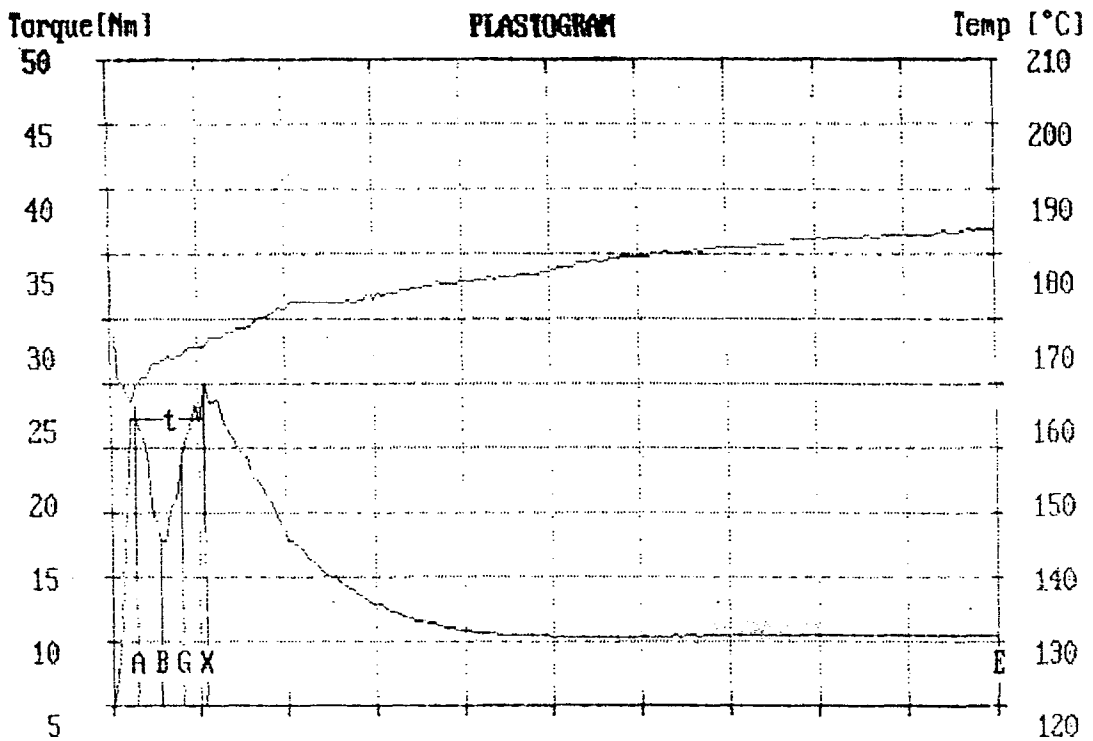
Apabila keadaan ini digunakan terdapat lebihan serbuk KK dipermukaan sampel yang diperolehi. Untuk mengatasi masalah ini berat sampel ditukar kepada 43g.

Langkah seterusnya ialah menentukan jumlah pengisi yang perlu digunakan dalam pemprosesan sebatian PP . Disebabkan tujuan utama penyelidikan ini ialah melihat kesan APT terhadap ciri-ciri pemprosesan sebatian maka faktor-faktor lain perlu ditetapkan kecuali peratusan APT, supaya kesan APT dapat diperhatikan.

Untuk tujuan tersebut jumlah KK ditetapkan pada 10 p.h.r. Dos yang rendah dipilih untuk memastikan tidak timbul banyak masalah semasa proses pencampuran dilakukan. Jumlah KK yang rendah dapat menghindarkan masalah torque tidak mencukupi, penyebaran kurang baik dan pencampuran juga dapat dilakukan dengan lebih mudah.

Hasil dari percubaan-percubaan tadi keadaan pemprosesan yang dipilih ialah pada 180° C dengan kelajuan 50 rpm selama 5 minit dengan berat sampel 43g dan jumlah pengisi KK 10 p.h.r. Dari kajian ciri-ciri pemprosesan yang dilakukan graf torque melawan masa diperolehi bagi setiap sampel. Graf tipikal torque melawan masa adalah seperti ditunjukkan oleh Rajah 4.1.2.

Terdapat dua puncak yang ketara sebelum pencampuran menjadi stabil sebagai mana yang ditunjukkan oleh Rajah 4.1.2. Puncak yang pertama muncul sebaik sahaja sampel dimasukkan ke dalam Brabender Plasticoder PL 2000. Semasa campuran memasuki Brabender Plasticoder, nilai torque meningkat dengan mendadak kerana resin masih lagi dalam keadaan serbuk .



Rajah 4.1.2 Graf tipikal torque melawan masa

Campuran juga masih sejuk dan belum lebur menyebabkan torque yang tinggi diperlukan untuk melakukan proses pencampuran. Secara perlahan-lahan torque mula berkurang apabila PP mula melebur sehinggalah semua PP bertukar menjadi leburan (titik B iaitu torque minimum).

Kemudian torque meningkat semula disebabkan serbuk KK mula meresap masuk ke dalam leburan PP sehingga ia mencecah nilai torque tertinggi yang menunjukkan pencampuran PP dengan KK telah sempurna atau lengkap. Masa yang diperlukan untuk polimer mencapai torque maksimum dimana pencampuran polimer dengan KK dianggap telah sempurna sepenuhnya di kenali sebagai masa pencampuran (titik X iaitu torque maksimum).

Selepas pencampuran di antara KK dan PP telah menjadi sempurna, proses pemanasan seterusnya akan menyebabkan torque menurun dan stabil dalam tempoh 5 minit. Penurunan nilai torque berkemungkinan disebabkan oleh beberapa perkara iaitu ; pengembangan termal, proses peleburan seterusnya , pengguntingan rantai atau penipisan ricih (Nardin & Schultz ,1992).

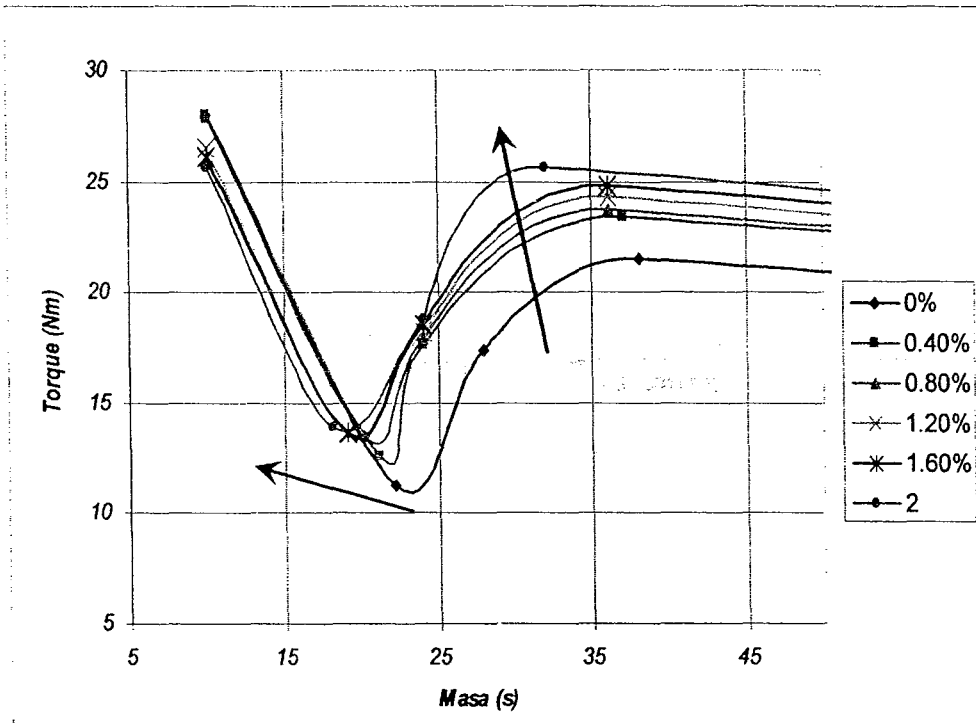
Jadual 4.1.1 Perubahan torque pada jumlah peratusan APT yang berbeza

%APT	Torque (Nm)				
	A	B	G	X	E
0	28	11.3	17.4	21.5	5.7
0.4	28	12.6	17.6	23.4	5.6
0.8	27.9	13.5	17.9	23.7	5.6
1.2	26.5	13.6	18.2	24.3	5.6
1.6	26.1	13.7	18.5	24.8	5.6
2	25.6	13.9	18.8	25.6	5.6

Jadual 4.1.1 menunjukkan peningkatan APT di dalam sistem PP berpengisi KK tidak memberikan kesan yang ketara terhadap nilai torque kestabilan (torque pada E). Keadaan ini tidak menepati jangkaan yang dibuat iaitu penambahan APT akan mengurangkan nilai torque kestabilan melalui sifat pemplastik sesuatu agen pengkumpul.

Ini mungkin disebabkan oleh sifat APT yang likat menyebabkan ia tidak tersebar dengan baik di dalam fasa plastik. Penyebaran yang kurang baik ini menyebabkan APT tidak dapat menjalankan fungsinya sebagai pemplastik dengan baik di dalam sebatian PP. Kelikatan APT yang tinggi juga menyebabkan proses pencampuran menjadi bertambah susah dan seterusnya menyumbang kepada peningkatan torque.

Rajah 4.1.3 menunjukkan kesan penambahan APT kepada KK dan PP semasa proses pencampuran dilakukan. Pemerhatian menunjukkan peningkatan APT menyebabkan kurva pencampuran bergerak ke arah peningkatan torque dan pengurangan masa pencampuran.



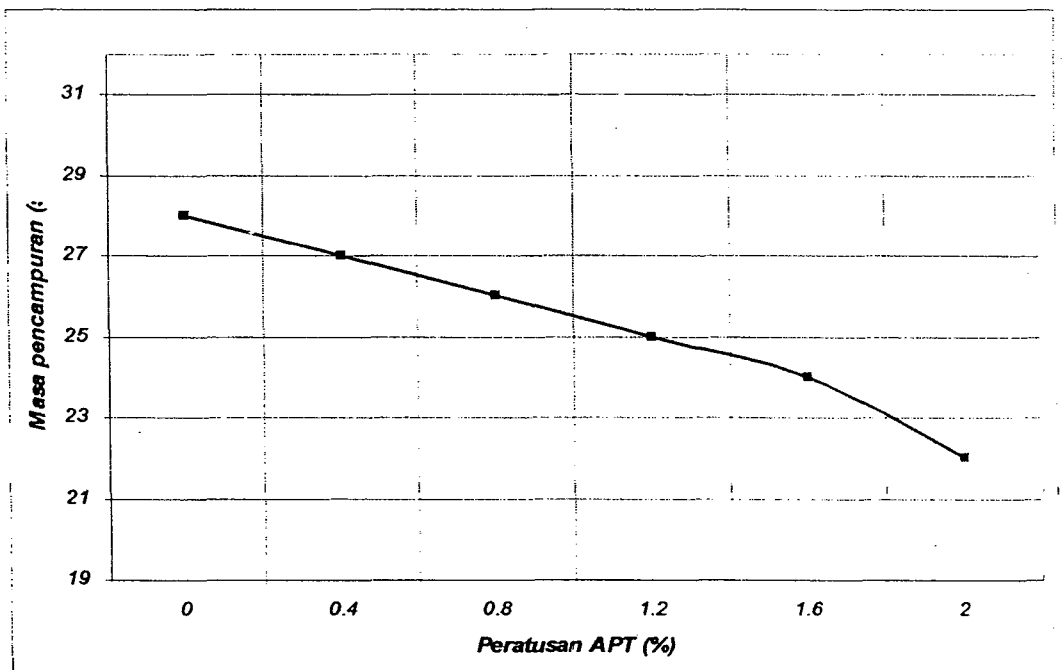
Rajah 4.1.3 Plot torque melawan masa bagi sebatian PP berpengisi KK pada pelbagai peratusan APT.

Dalam kajian ini kaedah pencampuran yang dijalankan ialah kaedah pencampuran terus. Partikel KK yang digunakan ialah KK tak berpenglitup. Biasanya partikel KK tak berpenglitup akan bercantum dan membentuk “aggregates” yang seterusnya bertukar menjadi satu struktur yang besar yang dikenali sebagai gumpalan (agglomerates) (Nielsen, 1979). Kehadiran gumpalan ini akan meningkatkan torque sebatian PP sebagaimana yang diperolehi oleh Fuad (1993), dalam kajiannya terhadap abu sekam padi hitam.

Di samping itu sifat agen pengkupel yang merupakan cecair yang likat juga menyebabkan torque meningkat. Kelikatan yang tinggi ini memberikan rintangan tambahan kepada proses pencampuran.

Apabila jumlah APT semakin tinggi maka rintangan tambahan ini juga turut meningkat. Peningkatan rintangan tambahan ini ditunjukkan oleh peningkatan torque semasa proses pencampuran. Mungkin juga sifat APT yang likat juga menyebabkan lebih banyak gumpalan terbentuk. Oleh itu semakin banyak APT ditambah maka semakin tinggi torque sebatian PP sebagaimana yang dipamirkan oleh Rajah 4.1.3.

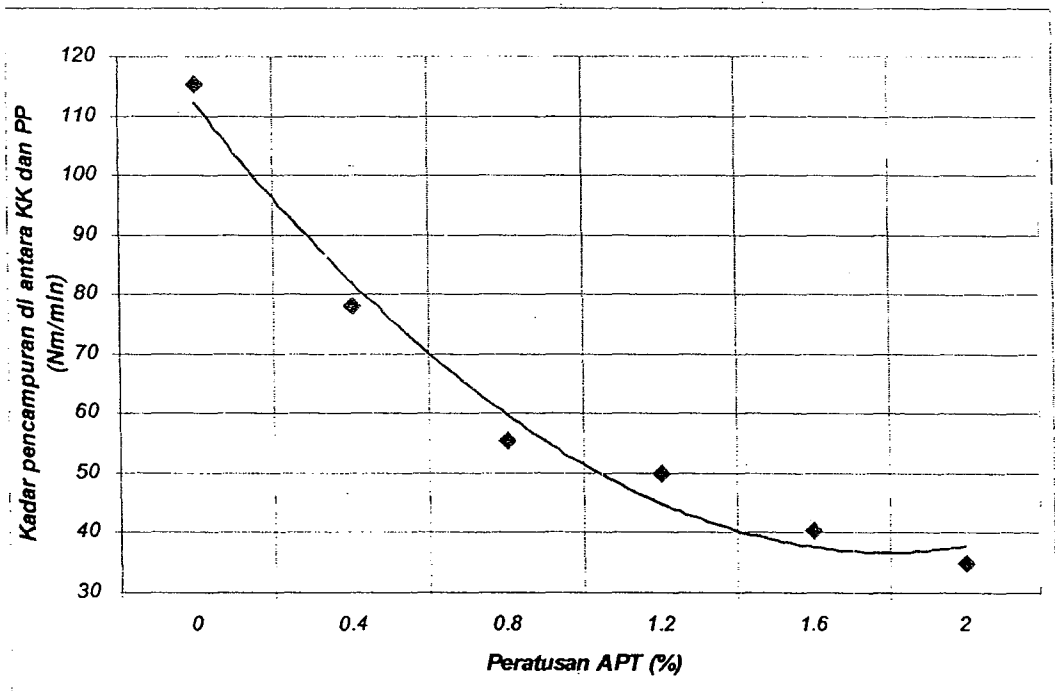
Rajah 4.1.4 menunjukkan masa pencampuran semakin berkurangan dengan peningkatan peratusan APT. Masa pencampuran yang semakin berkurangan juga ada kaitan dengan peningkatan torque yang terhasil. Peningkatan torque adalah kesan daripada peningkatan tenaga mekanikal yang diperlukan untuk proses pencampuran.



Rajah 4.1.4 Kesan APT terhadap masa pencampuran sebatian PP berpengisi KK

Menurut Saha (2001) dalam kajiannya ke atas kesan torque terhadap suhu dan komposisi bagi campuran PVC dengan polikloroprena (PCP), mendapati tenaga mekanikal yang digunakan untuk menjalankan proses pencampuran menghasilkan haba geseran yang meningkatkan suhu stok (stock temperature). Semakin tinggi tenaga mekanikal diperlukan maka semakin tinggi haba geseran yang terhasil di dalam sistem pencampuran APT dan plastik PP. Haba yang tinggi akan mengurangkan masa pencampuran plastik PP berpengisi KK.

Rajah 4.1.4 menunjukkan dengan lebih jelas kesan penambahan APT terhadap masa pencampuran sebatian PP. Graf ini menyokong penerangan yang telah diberikan bagi Rajah 4.1.3 iaitu peningkatan torque akan menghasilkan haba, yang seterusnya membantu mempercepatkan PP melebur. Semakin cepat PP melebur maka semakin cepat masa pencampuran sebatian PP sebagaimana yang dipamirkan oleh Graf 4.1.4.



Rajah 4.1.5 Kesan APT terhadap kadar pencampuran KK dan PP

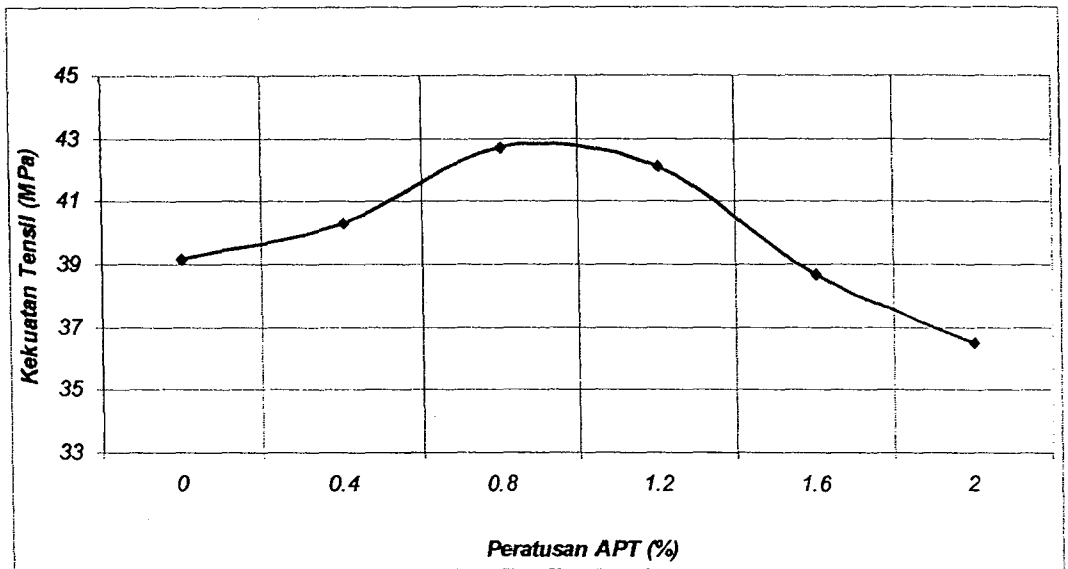
Rajah 4.1.5 menunjukkan kesan APT terhadap kadar kemasukkan KK ke dalam fasa leburan PP iaitu kadar pencampuran antara KK dan PP. Kadar pencampuran tersebut semakin berkurang dengan peningkatan APT. Menurut Guoquan (1991), apabila pemplastik di dalam sesuatu sebatian plastik meningkat, masa yang lebih panjang diperlukan untuk pemplastik dan resin polimer berinteraksi. Apabila masa yang lebih lama diambil oleh polimer dan pemplastik untuk berinteraksi maka masa yang lebih panjang diperlukan untuk proses pencampuran atau proses kemasukkan KK ke dalam fasa leburan PP berlaku. Ini menyebabkan kadar pencampuran KK dan PP semakin berkurang.

Disebabkan APT mempunyai sifat pemplastik maka kesan yang sama akan berlaku dengan penambahan APT. Semakin tinggi jumlah APT maka semakin panjang masa berinteraksi yang diperlukan seterusnya menyebabkan kadar pencampuran KK dan PP semakin perlahan.

4.1.2 Sifat-sifat mekanikal

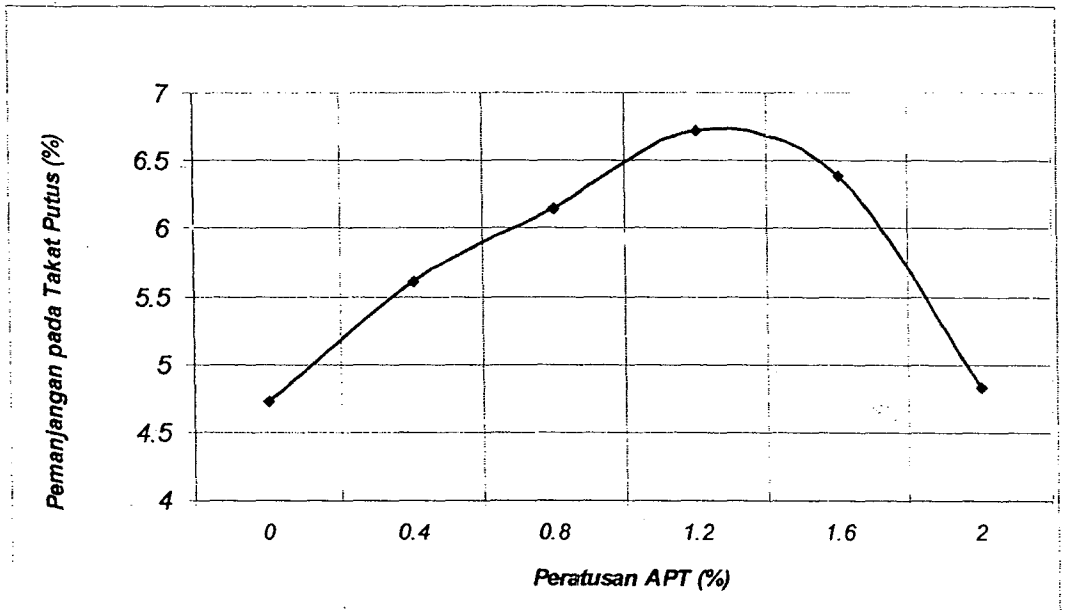
a) Sifat-sifat tensil

Rajah 4.16, 4.1.7 dan 4.1.8 menunjukkan kekuatan tensil, pemanjangan takat putus dan E-modulus sebatian PP meningkat dengan penambahan peratusan APT. Walau bagaimanapun apabila peratusan APT melebihi 1.2% sifat-sifat mekanikal ini mula menurun dengan peningkatan peratusan APT.



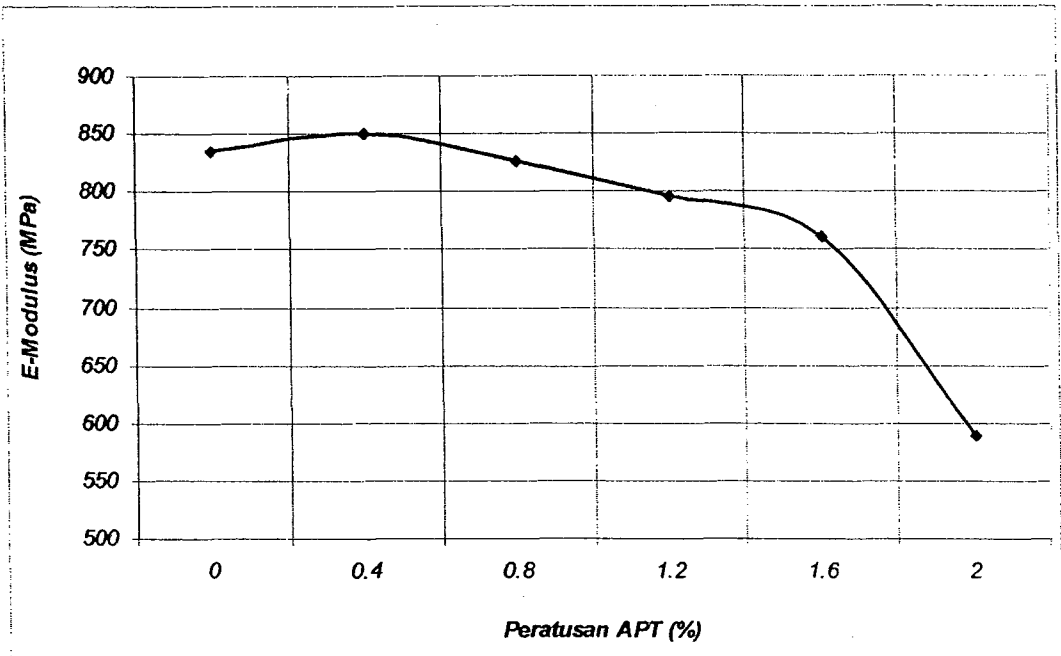
Rajah 4.1.6 Kesan penambahan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP berpengisi

KK



Rajah 4.1.7 Kesan penambahan APT terhadap pemanjangan takat putus sebatian PP

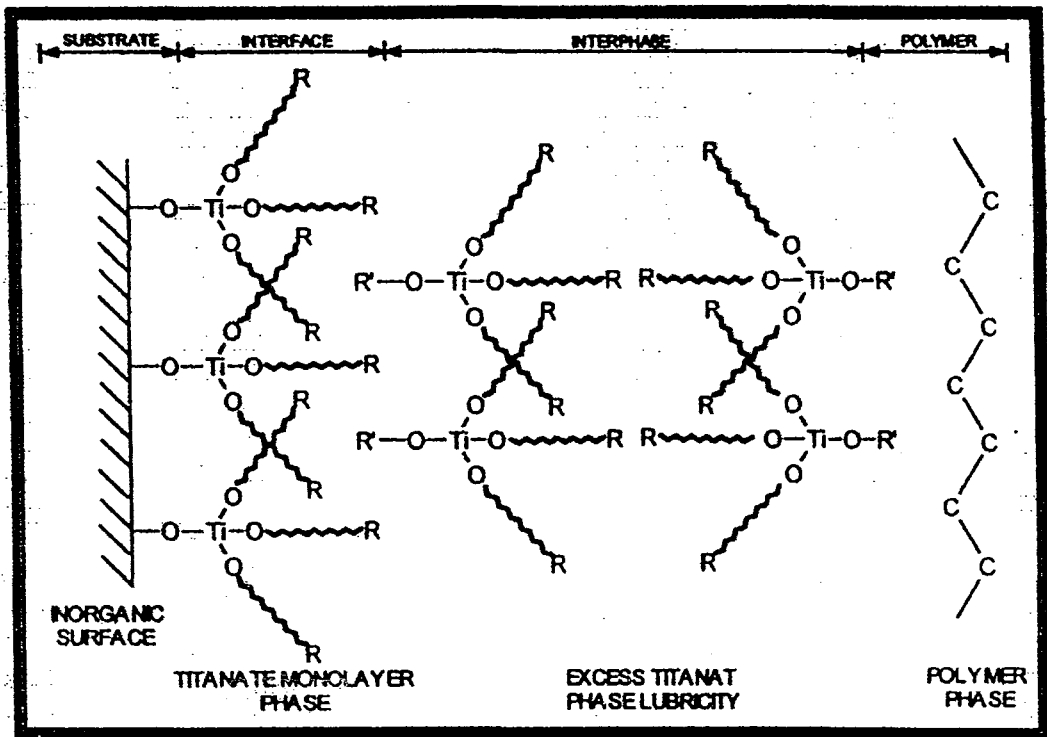
berpengisi KK



Rajah 4.1.8 Kesan penambahan APT terhadap E-Modulus sebatian PP berpengisi KK

Agen pengkupel yang berlebihan akan bertindak sebagai pelincir di antara matrix dan permukaan tak organik seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 4.1.9. Pelincir ini akan melambatkan pembentukan “voids” dan rekahan apabila tegasan tensil dikenakan terhadap bahan plastik tersebut (Chiang & Hu, 1999).

Peningkatan jumlah APT akan meningkatkan jumlah agen pengkupel yang berlebihan maka pembentukan ruang halus (“voids”) dan rekahan akan menjadi semakin lambat, dengan itu kekuatan tensil terus bertambah.



Rajah 4.1.9 Ilustrasi menunjukkan APT berlebihan bertindak sebagai pelincir dalaman.

[Chiang & Hu, 1999]

Pelincir ini akan melambatkan pembentukan “voids” dan rekahan apabila tegasan tensil dikenakan terhadap bahan plastik tersebut (Chiang & Hu, 1999). Peningkatan jumlah APT akan meningkatkan jumlah agen pengkupel yang berlebihan maka pembentukan ruang halus (“voids”) dan rekahan akan menjadi semakin lambat, dengan itu kekuatan tensil terus bertambah.

Sifat pelinciran APT yang melambatkan pembentukan “voids” dan rekahan apabila tegasan dikenakan terhadap bahan plastik tersebut juga menyebabkan kekuatan pemanjangan takat putus dan E-modulus turut meningkat. Pemerhatian yang sama juga diperolehi oleh Chuah et al (1999) yang mendapati penggunaan 0.5% APT meningkatkan pemanjangan takat putus sebatian PP berpengisi “talc”.

Walau bagaimana pun apabila jumlah APT melebihi 1.2% berlaku perosotan sifat-sifat mekanikal pada sebatian ini. Keadaan ini wujud disebabkan oleh pembentukan gumpalan di dalam sebatian PP. Gumpalan terbentuk kerana penyebaran yang kurang baik yang terhasil disebabkan oleh teknik pencampuran yang dilakukan secara terus atau pukal.

Liu [2002] juga mendapati keadaan yang sama dalam kajiannya terhadap penambahan agen pengkupel di dalam HDPE berpengisi KK. Dimana beliau mendapati agen pengkupel yang berlebihan akan menyebabkan pembentukan gumpalan.

Ini menunjukkan penambahan 1.2% APT berkemungkinan telah berlebihan oleh itu pembentukan gumpalan berlaku di dalam sebatian PP. Gumpalan ini menyebabkan sifat-sifat mekanikal sebatian PP berkurangan apabila APT melebihi 1.2%.

Pemerhatian ini menyokong penerangan yang telah diberikan pada Rajah 4.1.3 mengenai pembentukan gumpalan. Gumpalan yang wujud ini memberikan pengaruh yang sangat besar terhadap sifat-sifat mekanikal.

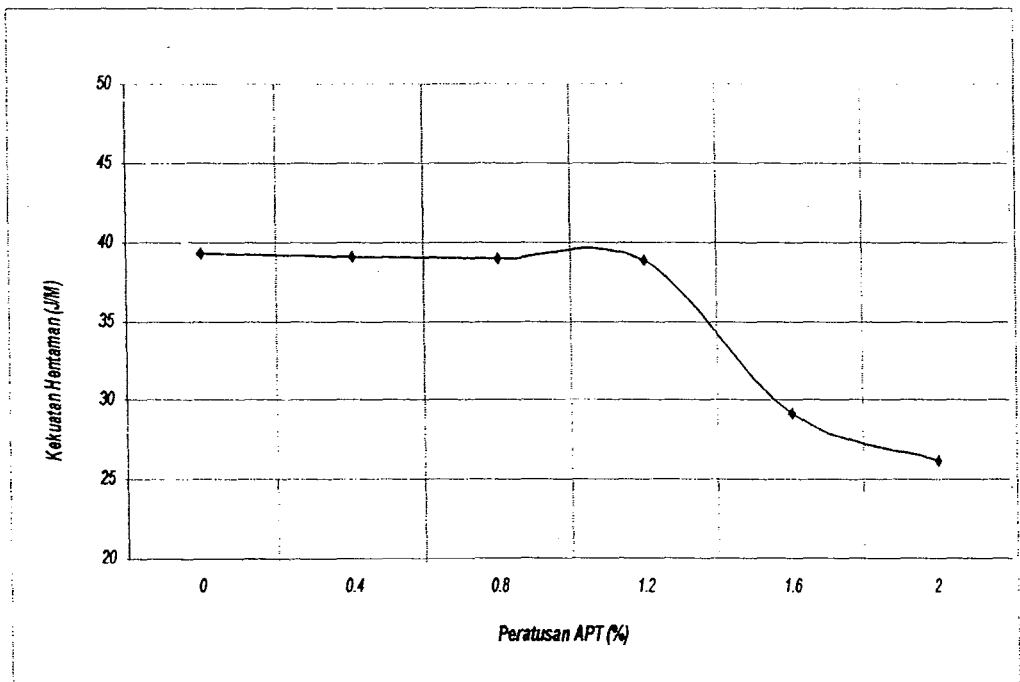
Perosotan E-modulus sebatian PP juga mungkin disebabkan oleh kesan pemplastikan oleh APT. Sebagaimana yang dinyatakan oleh Brydson (1989) pemplastik akan menjadikan sesuatu sebatian plastik itu lembut. Disebabkan APT dapat berfungsi sebagai pemplastik maka ia menyebabkan sebatian PP menjadi lembut, dan seterusnya E-modulusnya akan menjadi lemah. Semakin banyak jumlah APT maka semakin lemah kekuatan E-modulus sebatian PP.

Di sini dapat disimpulkan bahawa faktor pelinciran, pemplastikan bersama-sama dengan pembentukan gumpalan mempengaruhi sifat mekanikal yang dipamirkan oleh plastik PP. Oleh itu untuk mendapatkan sifat-sifat tensil yang optimum penambahan peratusan APT tidak boleh melebihi 1.2%.

b) Sifat-sifat hentaman

Rajah 4.1.10 menunjukkan penambahan APT di dalam PP berpengisi KK tidak memberikan sifat hentaman yang baik. Ini bertentangan dengan keputusan yang didapati oleh Chuah et. al [1999] bagi sistem PP berpengisi “talc” yang dilitupi dengan APT di mana kekuatan hentaman meningkat dengan peningkatan APT. Dalam kajian ini di dapati kekuatan hentaman stabil pada peringkat permulaan tetapi mula berkurang apabila jumlah APT mencapai 1.2%.

Sebagaimana yang telah dibincang dalam ciri-ciri pemrosesan, kaedah pencampuran ini memberikan penyebaran yang kurang baik. Penyebaran yang kurang baik ini menyebabkan tiada kesan yang ketara diperhatikan apabila jumlah APT ditingkatkan. Walau bagaimanapun apabila jumlah APT melebihi 1.2%, kekuatan hentaman menjadi semakin lemah.



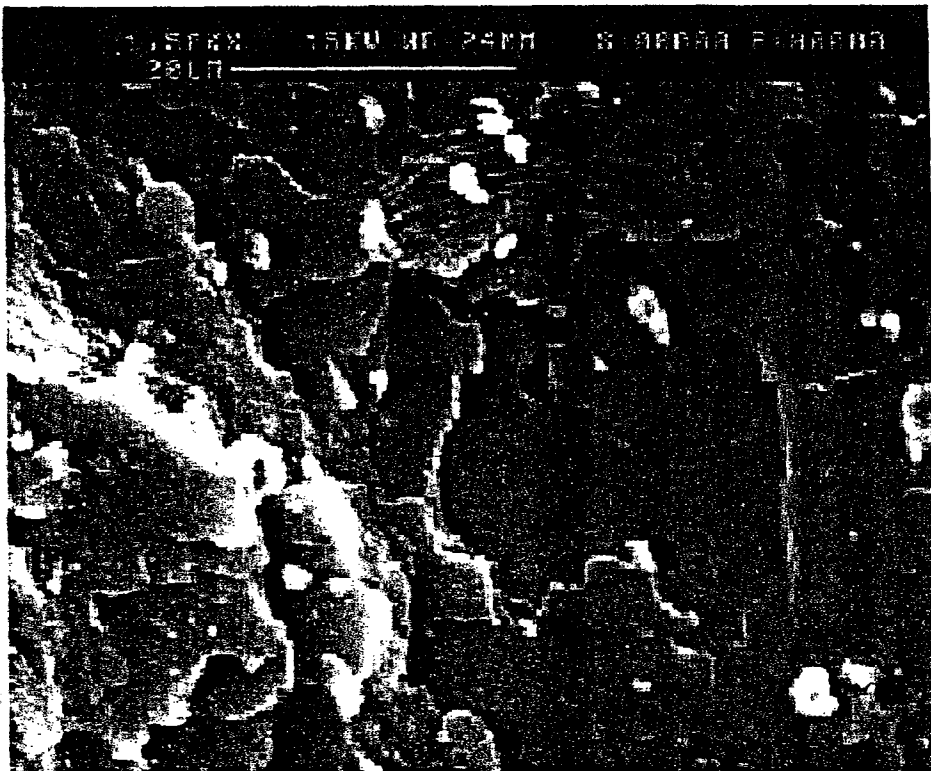
Rajah 4.1.10 Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP berpengisi KK

Pengurangan kekuatan hentaman apabila APT melebihi 1.2% ini adalah sama dengan sifat-sifat tensil seperti yang dipamirkan oleh rajah-rajah yang terdahulu, di mana penurunan sifat-sifat tensil juga berlaku pada 1.2%. Berdasarkan kenyataan Liu [2002], anggapan yang boleh dibuat ialah jumlah APT yang melebihi 1.2% adalah berlebihan dan ini menggalakkan pembentukan gumpalan di dalam sebatian plastik. Semakin tinggi jumlah APT semakin banyak gumpalan terbentuk maka semakin lemah kekuatan hentaman. Ini ditunjukkan dengan jelas oleh Rajah 4.1.10.

Selain daripada itu faktor pengguntingan rantai, juga boleh mempengaruhi kekuatan hentaman sebatian PP. Sebagaimana yang dinyatakan oleh Chuah [1999] penambahan APT mungkin boleh menyebabkan berlakunya proses pengguntingan rantai. Proses pengguntingan rantai ini menyebabkan rantai menjadi pendek, ini mengakibatkan keliatan sebatian PP berkurang. Ini kerana keliatan bergantung kepada kekuatan matriks [Ishikawa et al, 1996]. Pengurangan keliatan akan menyebabkan kekuatan hentaman semakin berkurang seperti yang dipamirkan oleh Rajah 4.1.10.

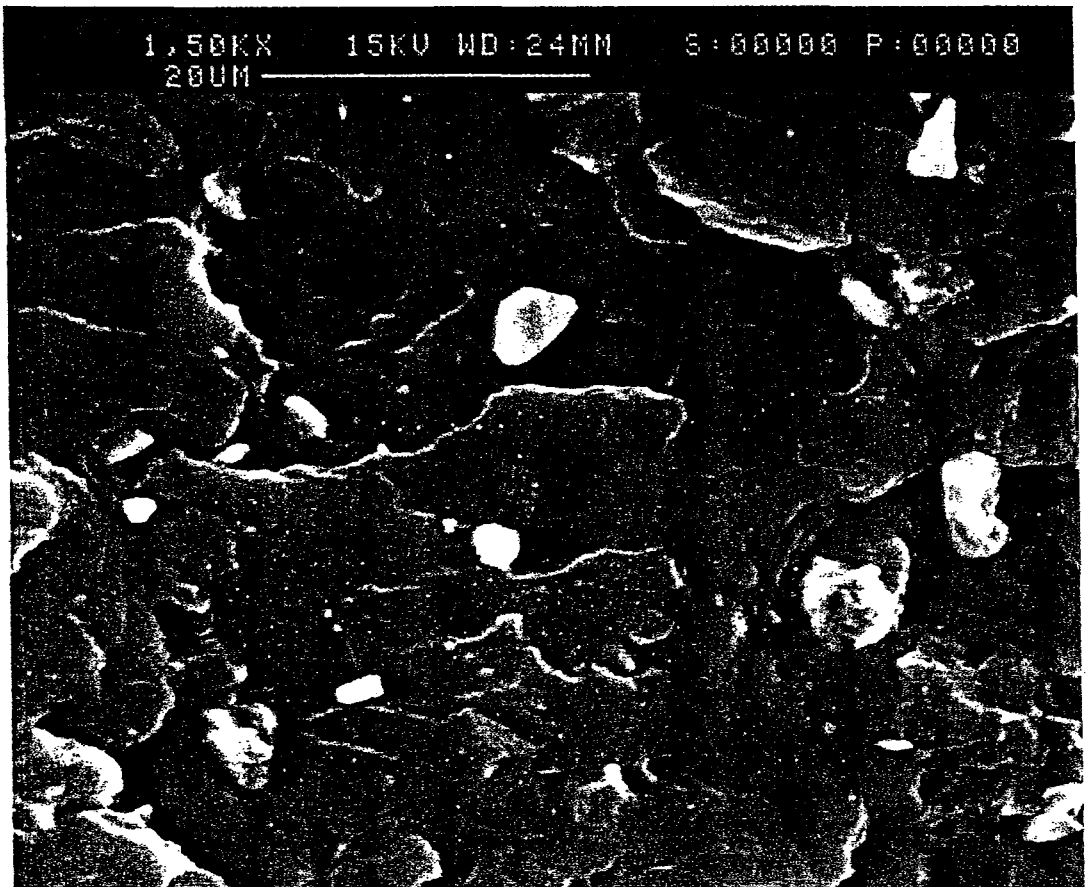
4.1.3 Morfologi (S.E.M)

Morfologi plastik PP berpengisi KK dengan menggunakan kaedah pencampuran terus dilihat dengan menggunakan S.E.M. Sampel yang mengalami kepatahan semasa ujian tensil digunakan untuk tujuan ini. Pemerhatian ini dilakukan untuk mengetahui kesan APT terhadap penyebaran partikel KK dan pembentukan gumpalan di dalam sebatian plastik tersebut.



Rajah 4.1.11 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 0.8% APT.

Rajah 4.1.11 menunjukkan pencampuran KK di dalam matrix plastik PP tidak begitu baik. Partikel-partikel putih yang terdapat di dalam Rajah 4.1.11 menunjukkan pencampuran di antara partikel KK dengan plastik PP secara masih belum sempurna kerana masih terdapat partikel KK yang belum memasuki matrix PP. Di samping itu terdapat gumpalan sebagaimana yang ditanda di dalam mikrograf tersebut.



Rajah 4.1.12 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT

Rajah 4.1.12 pula menunjukkan pencampuran di antara matrix PP dan partikel adalah lebih baik dengan penambahan 2.0 % APT kerana hampir semua partikel KK telah memasuki matrix PP. Walau bagaimanapun terdapat pembentukan gumpalan adalah lebih banyak berbanding dengan penambahan 0.8% APT. Mikrograf ini membuktikan bahawa semakin tinggi jumlah APT semakin banyak gumpalan terbentuk sebagai mana yang dibincangkan di dalam topik ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal sebelum ini.

4.2 Kesan pra-rawatan kalsium karbonat (KK) dengan agen pengkumpul multifungsi titanat (APT) terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal sebatian polipropelina (PP).

Kajian sebelum ini mendapati bahawa penambahan APT di dalam penyebatian plastik PP telah dapat mempercepatkan masa pemprosesan. Walau bagaimanapun penambahan APT ini tidak dapat memperbaiki sifat-sifat sebatian PP di sebabkan oleh pembentukan gumpalan di dalam matrix PP. Gumpalan ini terbentuk di sebabkan oleh penyebaran KK yang kurang baik di matrix plastik. Untuk memperbaiki keadaan ini kaedah yang berlainan akan digunakan dalam kajian pada kali ini.

Kaedah yang dipilih ialah kaedah pra-rawatan. Dalam kaedah ini, KK akan dirawat terlebih dahulu dengan APT dengan menggunakan kaedah tertentu. Selepas proses tersebut, penyebatian dengan PP dilakukan. Teknik ini dikatakan dapat memberikan penyebaran yang lebih baik berbanding dengan kaedah terdahulu iaitu kaedah pencampuran secara terus (Grossman , 1990).

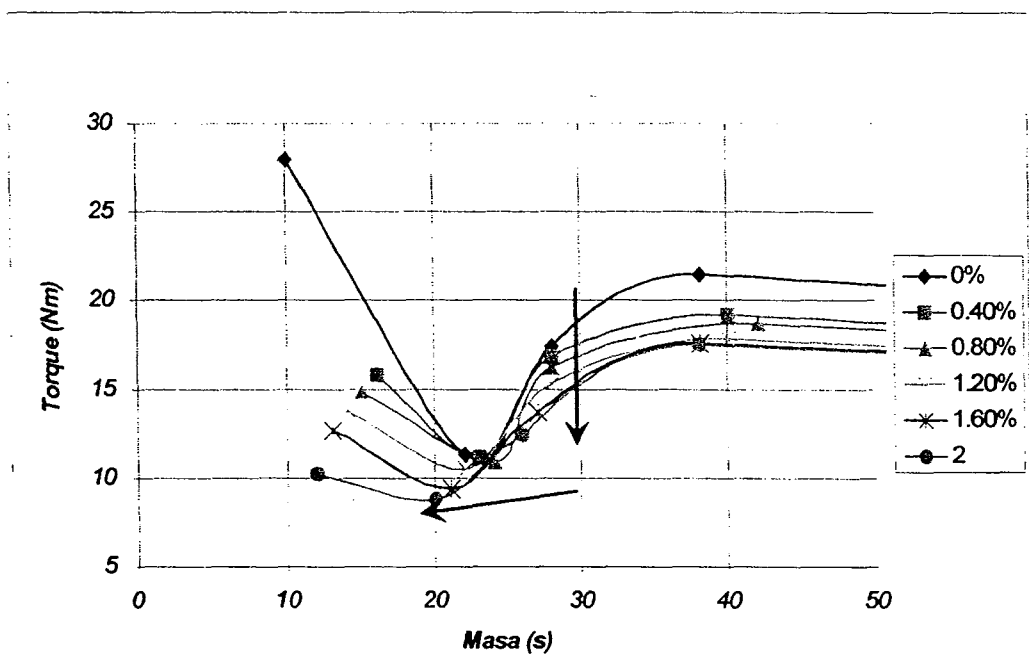
Sebelum kajian menggunakan teknik ini diteruskan, beberapa faktor perlu dipertimbangkan. Antaranya ialah kelikatan APT. Kelikatan APT perlu dikurangkan. Ini adalah kerana teknik yang terdahulu (pencampuran terus) menunjukkan kelikatan APT yang tinggi berkemungkinan bertindak meningkatkan torque semasa proses pencampuran dilakukan. Oleh itu tenaga yang tinggi diperlukan untuk menjalankan proses pencampuran sebatian PP.

Kelikatan APT dikurangkan melalui proses pencairan dengan menggunakan minyak DOP .Setelah pencairan APT dilakukan barulah proses pra-rawatan KK dilakukan dengan PP dilakukan.

4.2.1 Ciri-ciri pemrosesan

Kajian terhadap proses peleburan sebatian PP berpengisi KK adalah penting untuk menentukan ciri-ciri reologi sistem berpengisi tersebut. Tatacara kajian yang dipilih adalah berdasarkan daya tegasan dan suhu yang betul di dalam Brabender Plasticoder untuk mendapatkan torque sebagai fungsi kepada masa.

Melalui rawatan mekanikal dan termal, semua partikel peringkat pertama akan musnah menghasilkan keadaan yang sekata (homogeneous) yang ditunjukkan oleh kurva torque-masa. Kurva torque melawan masa diperolehi daripada proses pencampuran KK pra-rawatan pada pelbagai peratusan APT. Nilai torque campuran dicatatkan oleh perisian (software) alat pencampur.

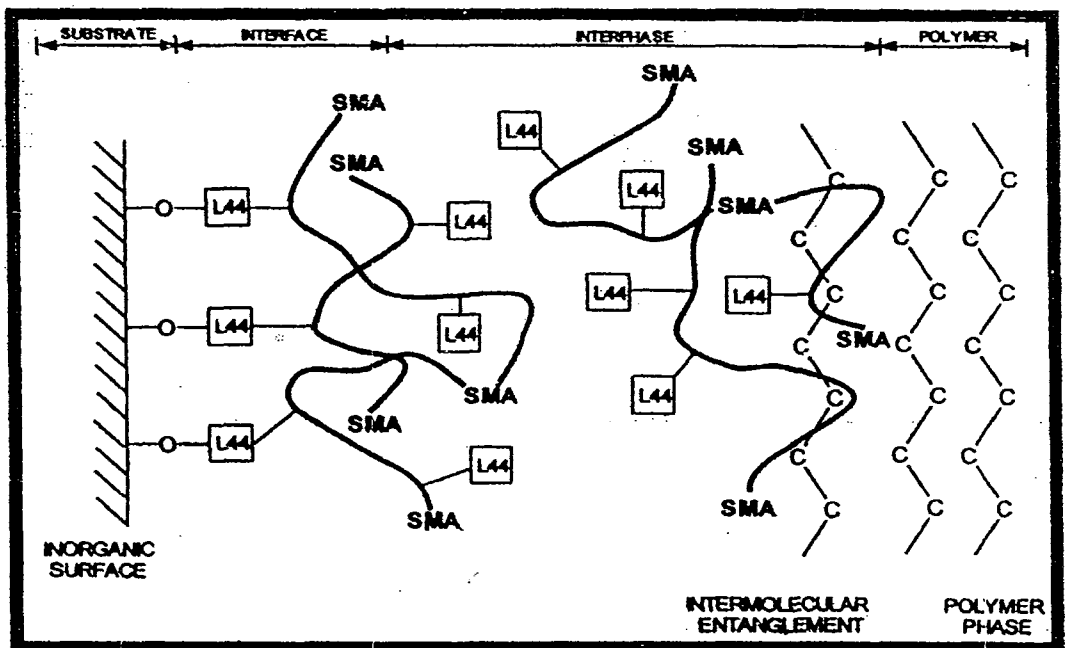


Rajah 4.2.1 Plot torque melawan masa bagi sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan pada pelbagai peratusan APT

Kesan APT terhadap plot torque - masa menggunakan teknik pra-rawatan KK ditunjukkan oleh Rajah 4.2.1. Plot graf ini menunjukkan kurva pencampuran bergerak ke arah pengurangan torque dengan peningkatan peratusan APT.

Pengurangan nilai torque mungkin disebabkan oleh kesan pelinciran dan jumlah agen pengkumpul yang mencukupi untuk memperbaiki kebolehasahan dalam menghasilkan keserasian di antara matrix dan pengisi. Pada jumlah yang lebih tinggi kecerunan kurva pencampuran bergerak ke kiri ke arah torque yang lebih rendah dan masa pencampuran yang lebih pendek.

Melalui proses pra-rawatan pembentukan “grafting” oleh kumpulan titanat yang telah sedia melekat pada permukaan KK, akan melekat pada matrix polimer untuk membentuk ikatan PP-pengisi seperti ditunjukkan oleh Rajah 4.2.2. Ini menyebabkan berlaku penyahgumpalan partikel KK dan menghasilkan penyebaran yang lebih sekata di dalam sebatian PP.



Rajah 4.2.2 Pembentukan ikatan PP-pengisi. [Chiang & Hu, 1999]

Pengurangan torque juga mungkin terhasil daripada kelikatan leburan yang rendah di dalam sistem sebatian PP disebabkan oleh proses pencairan yang dilakukan dengan DOP sebelum proses pra-rawatan dilakukan . Ini selaras dengan dengan laporan yang dibuat oleh Saha dan rakan-rakan (2001) terhadap Polivinil Klorida (PVC) di mana pada kandungan PVC 90% torque berkurang di sebabkan oleh proses pencairan atau kesan pemplastikan oleh 10% molekul Polikloprena.

Ini menunjukkan proses pencairan dapat mengurangkan torque proses pencampuran sesuatu sebatian plastik. Di samping itu berlakunya perubahan aliran campuran adalah disebabkan oleh kesan pemplastikan agen pengkupel dan minyak DOP yang meresap ke dalam matrix polimer untuk bertindak sebagai pelincir dalaman (Chuah et al, 1999, Gacher & Muller, 1987, Monte & Sugarman).

Jadual 4.2.1 menunjukkan peningkatan APT di dalam proses pra-rawatan menyebabkan penurunan nilai torque kestabilan . Nilai torque kestabilan menjadi rendah kerana sebatian plastik PP menjadi lebih lembut. Ini menunjukkan APT bertindak sebagai pemplastik dalam penyebatian plastik PP. Keadaannya yang lebih lembut menyebabkan hanya tenaga yang rendah diperlukan dalam proses penyebatian.

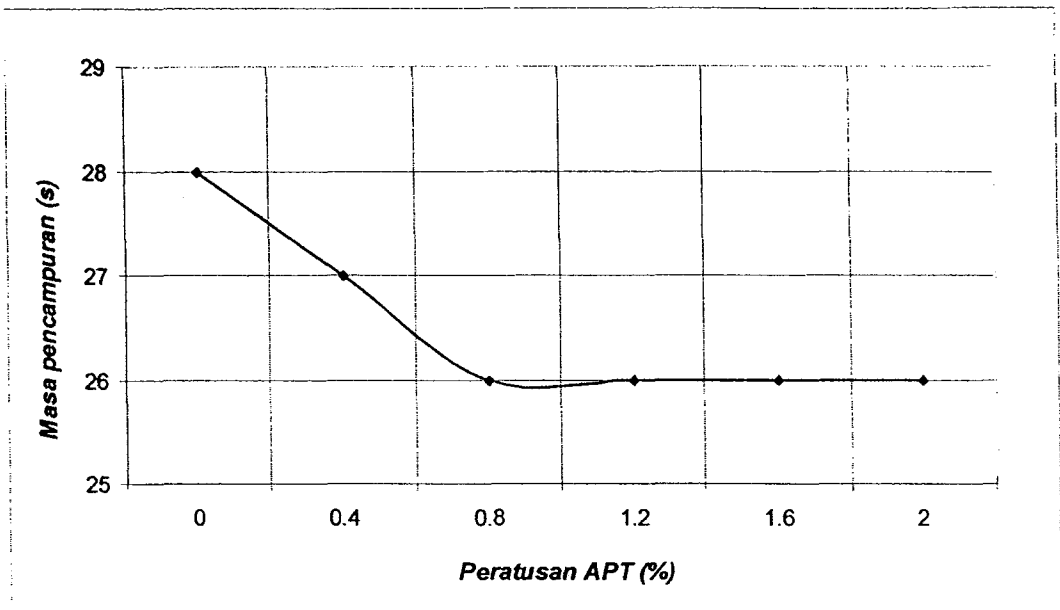
Jadual 4.2.1 Perubahan torque sebatian PP pada jumlah peratusan APT yang berbeza

%APT	%DOP	Torque (Nm)				
		A	B	G	X	E
0	0	28	11.3	17.4	21.5	5.7
0.4	1.6	15.8	11.2	16.8	19.2	5.6
0.8	3.2	14.9	10.9	16.2	18.7	5.3
1.2	4.8	13.8	10.5	15.3	17.8	5.3
1.6	6.4	12.7	9.4	13.7	17.6	5
2	8	10.2	8.8	12.4	17.5	4.7

Penambahan APT yang menyebabkan sebatian plastik menjadi lembut ini di buktikan oleh Chuah et. al (1999) dengan pengukuran suhu peralihan kaca (T_g) bagi agen pengkumpul multifungsi titanat di dalam PP berpengisi "talc", di mana ia mendapati kehadiran APT merendahkan T_g sebatian plastik tersebut.

T_g yang rendah menunjukkan sebatian tersebut melembut disebabkan oleh tindakan APT. Ini selaras dengan sifatnya sebagai pemplastik yang merendahkan T_g sesuatu polimer iaitu mengubah sifat komposit dari keras dan rapuh kepada lembut, fleksibel dan liat .

Kesan pelbagai jumlah APT terhadap masa pencampuran dengan menggunakan kaedah pra-rawatan KK ditunjukkan oleh Rajah 4.2.3. Masa pencampuran semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah APT dan menjadi stabil apabila jumlah APT mencecah 0.8%.



Rajah 4.2.3 Kesan APT terhadap masa pencampuran sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan

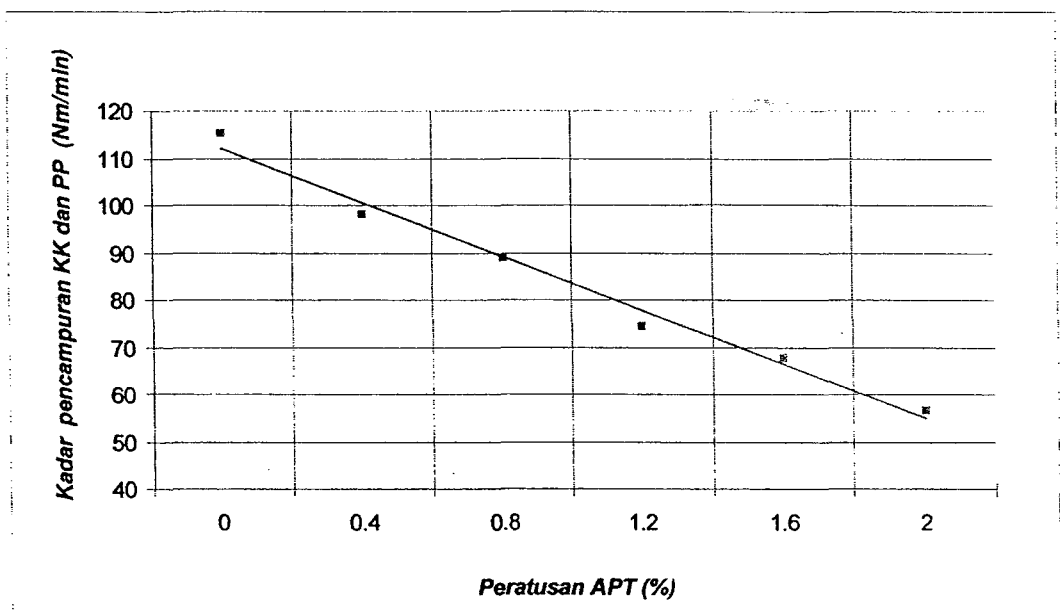
Sebagaimana yang telah dibincangkan dalam Jadual 4.2.1, penambahan APT akan menyebabkan sebatian menjadi lembut iaitu pengurangan takat ia melembut (softening point). Pengurangan takat melembut ini akan mempercepatkan proses pencampuran [Gould & Player, 1979]. Semakin tinggi jumlah APT maka semakin rendah takat melembut, keadaan ini menyebabkan proses pencampuran menjadi semakin cepat.

Seperti yang dinyatakan oleh Chuah (1999), penambahan APT boleh menyebabkan proses pengguntingan rantai. Proses pengguntingan rantai akan menyebabkan berat molekul polimer menjadi rendah.

Pengurangan berat molekul ini akan melambatkan proses pencampuran selaras dengan pernyataan Garcia bahawa peningkatan berat molekul akan mempercepatkan proses pencampuran. Dipercayai gabungan di antara kesan pengguntingan rantai yang melambatkan proses pencampuran dan kesan takat melembut yang mempercepatkan

proses pencampuran menyebabkan proses pencampuran menjadi stabil seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 4.2.3.

Kesan APT terhadap kadar pencampuran atau kadar kemasukkan KK ke dalam fasa leburan PP dengan menggunakan kaedah pra-rawatan KK ditunjukkan oleh Rajah 4.2.4. Semasa proses kemasukkan KK ke dalam fasa leburan PP, APT yang mempunyai sifat pemplastik akan meresap masuk ke dalam polimer yang telah lebur. Proses ini berterusan sehingga sempurna iaitu tiada lagi pemisahan fasa di dalam sebatian PP [Croese et al, 1985].



Rajah 4.2.4 Kesan APT terhadap kadar pencampuran KK pra-rawatan dan PP

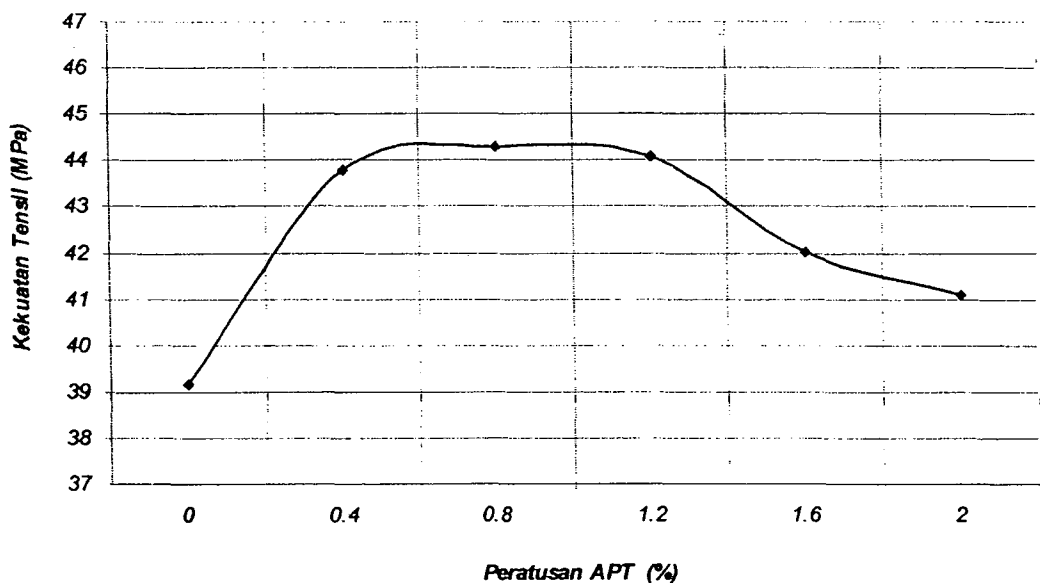
Kadar pencampuran atau kadar kemasukkan KK ke dalam fasa leburan PP bergantung kepada suhu leburan dan daya yang dikenakan semasa pemprosesan [Zajchowski et al (2001), Teh J.W. et al (1989), Kriger E.J. (1985)]. Di sini daya yang dikenakan semasa pemprosesan ditunjukkan oleh torque pemprosesan.

Seperti yang dipamirkan oleh Rajah 4.2.1, torque pemposesan semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah APT. Pengurangan torque ini menyebabkan proses percampuran atau peresapan di antara kedua-dua fasa menjadi lambat. Keadaan ini seterusnya melambatkan kadar percampuran KK dan PP. Oleh itu semakin tinggi jumlah APT maka semakin perlahan kadar percampuran KK dan PP .

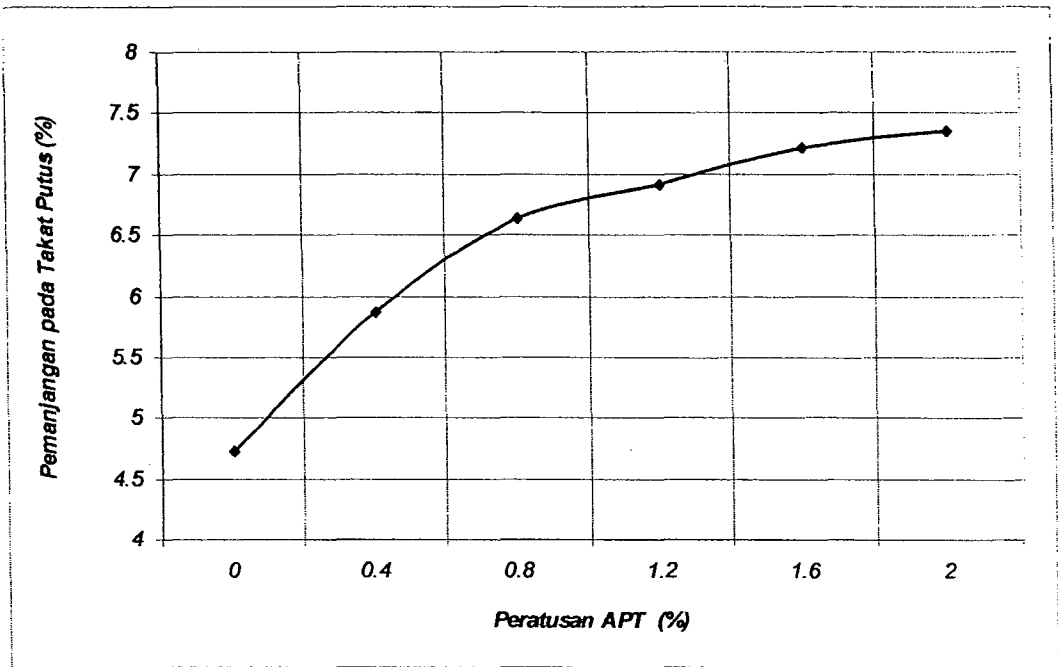
4.2.2 Sifat-sifat mekanikal

a) Sifat-sifat tensil

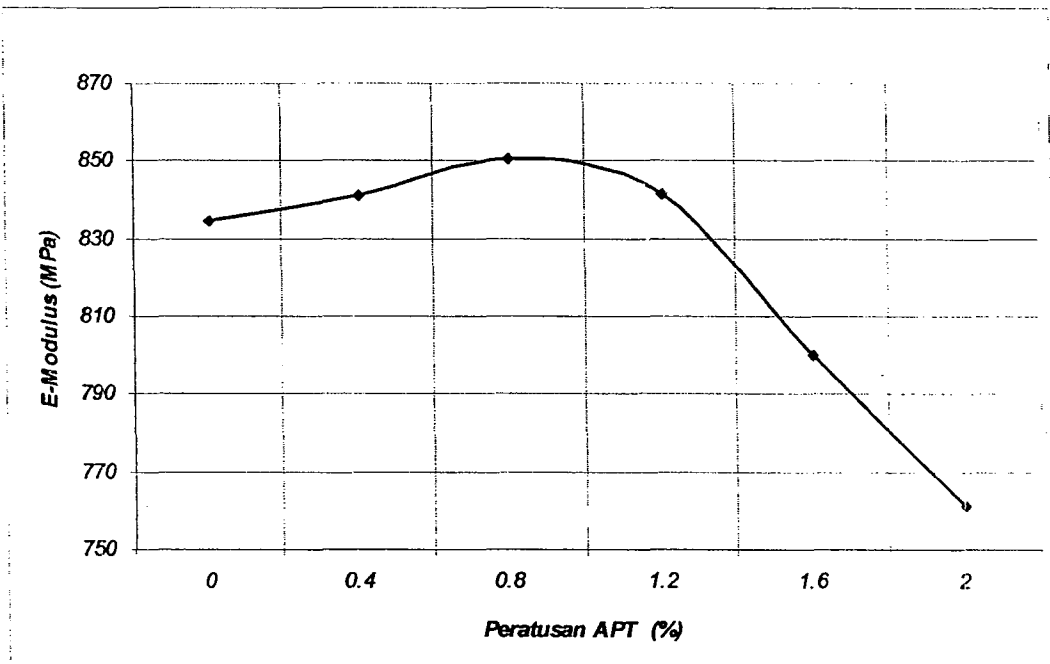
Rajah 4.2.5, 4.2.6 dan 4.2.7 menunjukkan penggunaan APT untuk merawat KK di dalam sebatian PP telah dapat meningkatkan sifat-sifat mekanikal sebatian PP. Peningkatan sifat-sifat mekanikal ini adalah disebabkan perekatan di antara pengisi KK dengan matrix PP yang bertambah baik dengan penambahan APT .



Rajah 4.2.5 Kesan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan



Rajah 4.2.6 Kesan APT terhadap pemanjangan takat putus sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan

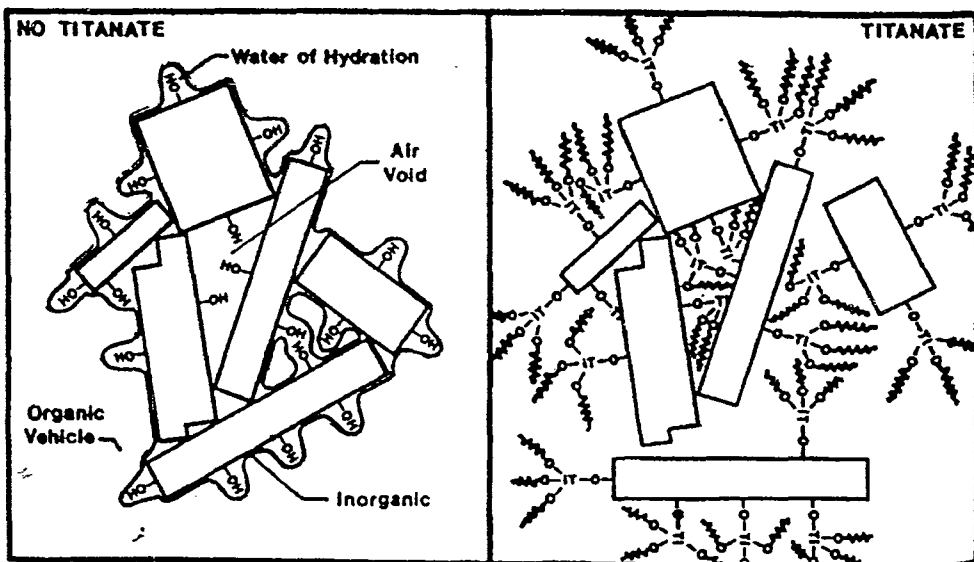


Rajah 4.2.7 Kesan APT terhadap E-Modulus sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan

Ini selaras dengan penemuan Tabtiang dan Venables (2000) yang mendapati bahawa pengisi yang tidak dirawat akan menghasilkan perekatan yang kurang baik berbanding dengan pengisi yang melalui proses pra-rawatan .

Perekatan yang baik terhasil pada pengisi yang menjalani proses pra-rawatan kerana proses tersebut memberikan pembasahan yang baik. Pembasahan yang baik ini seterusnya menyediakan tempat tindak balas antara pengisi-matrix dengan lebih banyak dan APT dapat berfungsi dengan lebih efektif. [Monte et al, 1985].

Semakin banyak APT digunakan semakin banyak tindak balas pengisi – matrix dapat dihasilkan. Lebih banyak tindak balas pengisi – matrix terhasil maka lebih banyak tempat berlakunya perekatan antara permukaan pengisi dengan matrix. Oleh itu pembentukan “voids” atau lubang halus semakin berkurangan seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 4.2.8. Ini memberikan kekuatan yang lebih baik kepada kekuatan tensil, pemanjangan takat putus, E-modulus dan tegasan kepatahan. [Chiang & Hu, 1999].



Rajah 4.2.8 Ilustrasi pengurangan pembentukan liang (voids) melalui tindak balas neoalkoksi dalam fasa organik (Kent Rich Manual)

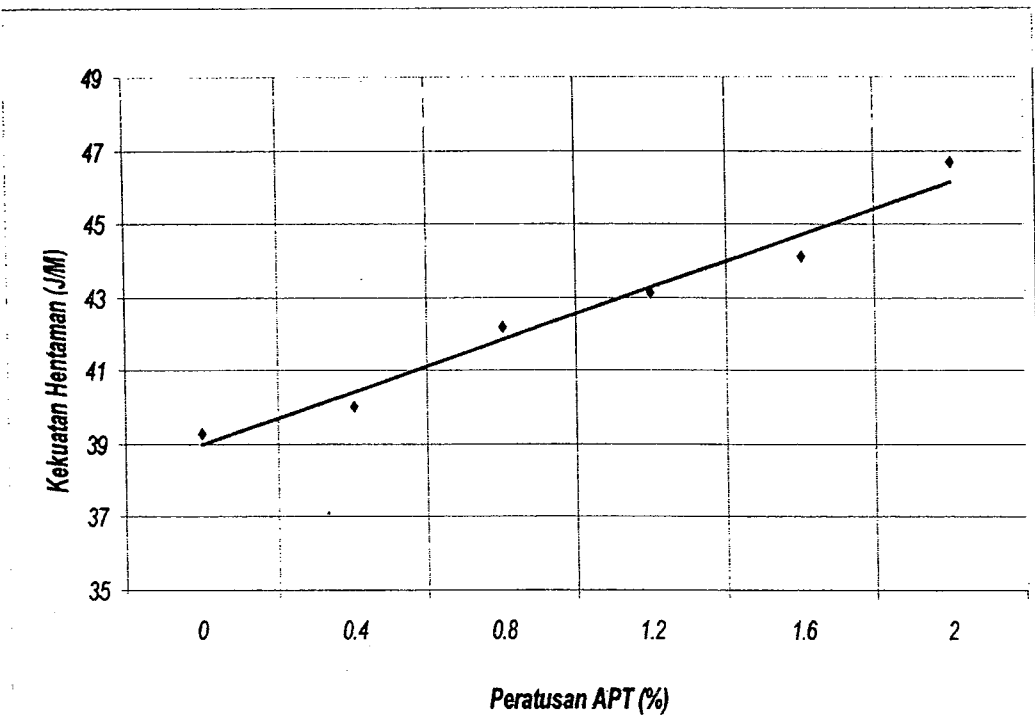
Walaupun bagaimanapun apabila nilai APT melebihi 1.2%, peningkatan kekuatan tensil dan E-modulus tidak berlaku lagi. Ini kerana apabila jumlah APT melebihi 1.2% berlaku pengurangan pada sifat-sifat mekanikal. Walaupun perekatan antara pengisi-matrix terus meningkat namun dengan dengan jumlah APT yang semakin tinggi menyebabkan kesan sifat pemplastik agen pengkumpul APT dan minyak DOP menjadi semakin dominan.

Kesan pemplastikan atau pelinciran APT juga diperhatikan oleh Monte [1985] dan Han [1981]. Kesan pemplastikan ini menyebabkan kekuatan tensil dan E-modulus semakin berkurang dengan peningkatan peratusan APT.

Sebaliknya kesan pemplastikan ini menyebabkan pemanjangan pada takat putus terus meningkat. Kesan pemplastikan ini menjadikan sebatian PP semakin lembut dan dapat merubah bentuk apabila tegasan dikenakan. Semakin tinggi jumlah APT maka kebolehan sebatian PP merubah bentuk semakin besar. Ini menyebabkan pemanjangan pada takat putus semakin tinggi dengan penambahan APT.

b) Sifat-sifat hentaman

Telah diketahui umum penambahan KK di dalam sebatian PP memberikan kekuatan hentaman yang baik [Rubin, 1990]. Rajah 4.2.9 menunjukkan kesan APT terhadap kekuatan hentaman dengan menggunakan kaedah pra-rawatan KK. Pemerhatian menunjukkan kekuatan hentaman semakin tinggi dengan peningkatan peratusan APT.



*Rajah 4.2.9 Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP berpengisi
KK pra-rawatan*

Faktor-faktor yang mempengaruhi kekuatan hentaman sebatian PP yang menggunakan KK pra-rawatan adalah sama seperti faktor-faktor yang mempengaruhi sifat-sifat tensil. Faktor-faktor tersebut ialah kesan pemplastikan APT dan perekatan antara permukaan pengisi-matrix. Kedua-dua faktor ini memainkan peranan yang penting dalam menentukan kekuatan hentaman sebatian PP.

Penyebaran yang lebih baik yang terhasil dari penambahan minyak DOP yang mengurangkan kelikatan APT dan peratusan APT yang tinggi memberi peluang tindak balas pengisi-matrix yang banyak. Tindak balas yang lebih banyak menghasilkan titik perekatan yang lebih banyak dan seterusnya menghasilkan perekatan yang lebih baik.

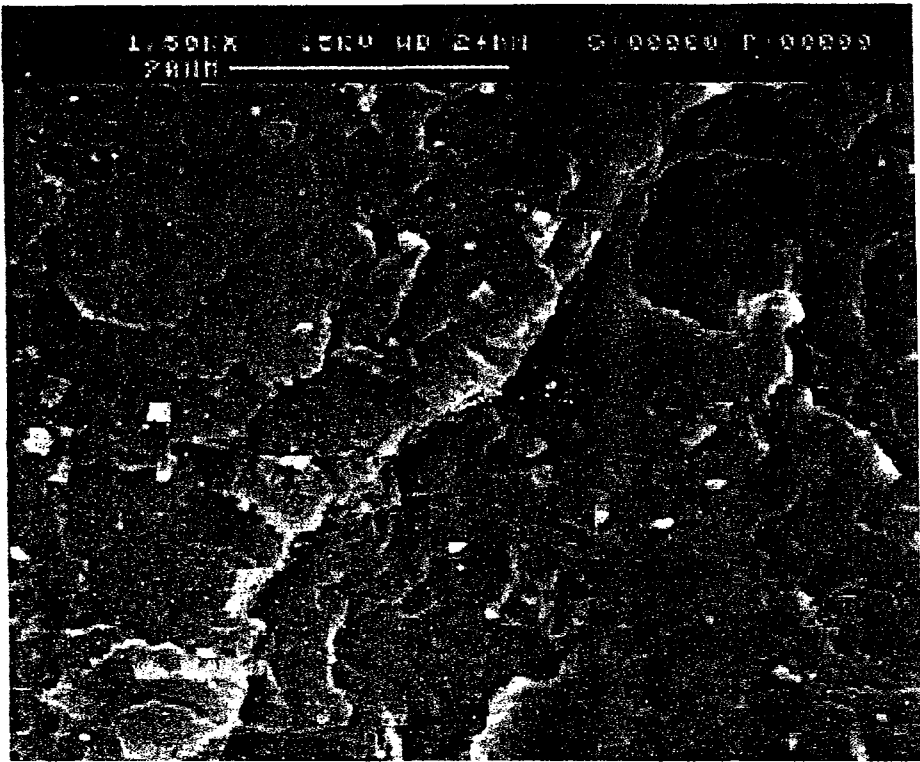
Di samping itu sifat pemplastikan APT dan minyak DOP turut menyumbangkan kepada peningkatan kekuatan hentaman ini. Sebagaimana yang telah dibincangkan dalam topik torque penstabilan, penambahan APT akan menukarkan sifat komposit dari rapuh kepada lembut, fleksibel dan liat. Sifat liat ini memberikan pengaruh yang besar kepada kekuatan hentaman. Semakin tinggi keliatan sesuatu komposit maka semakin tinggi kekuatan hentaman komposit tersebut

Semasa ujian kekuatan hentaman dilakukan rekahan akan bergerak sepanjang polimer dan kawasan antara fasa. Umumnya keliatan yang semakin tinggi bersama-sama dengan perekatan antara fasa pengisi /matrix yang kuat akan meyediakan kerintang terhadap pergerakan rekahan yang efektif semasa ujian hentaman dijalankan. Semakin tinggi jumlah APT yang digunakan maka semakin tinggi rintangan terhadap ujian hentaman. Ini seterusnya menghasilkan kekuatan hentaman semakin tinggi.

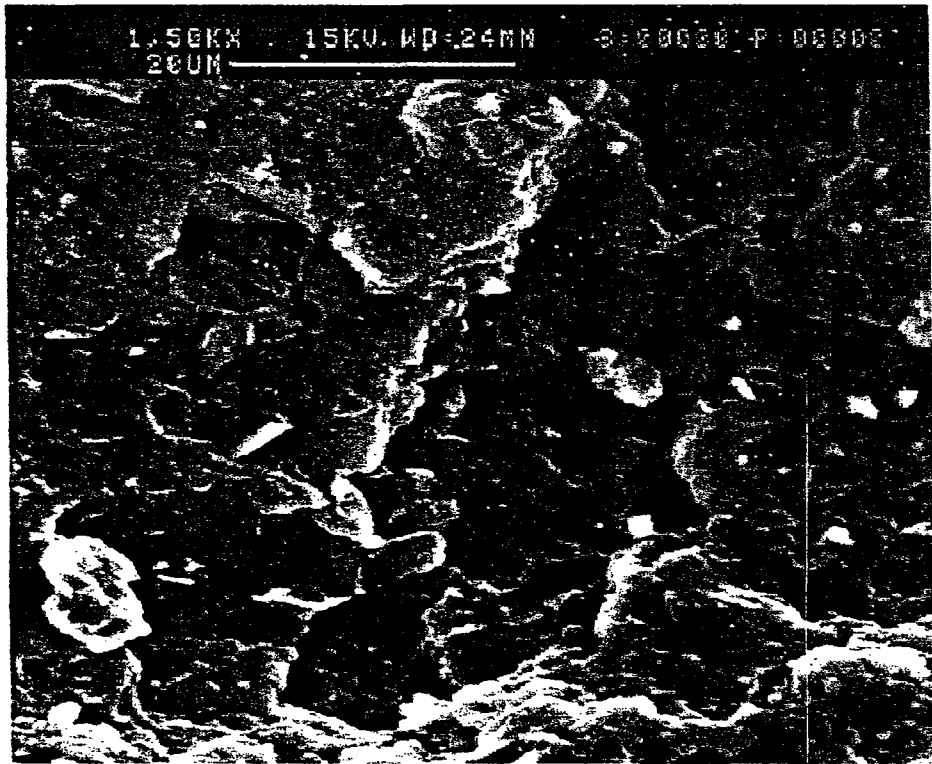
4.2.3 Morfologi (S.E.M)

Rajah 4.1.10 dan Rajah 4.1.11 menunjukkan gambar mikrograf sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan pada 0.8% APT dan 2.0% APT. Sampel yang mengalami kepatahan semasa ujian tensil digunakan untuk tujuan ini sama seperti dalam kajian pencampuran secara terus.

Kedua-dua mikrograf ini menunjukkan taburan partikel KK di dalam matrix sebatian PP adalah sekata. Di samping itu pembentuk partikel yang besar yang menunjukkan gumpalan juga tidak kelihatan.



Rajah 4.2.10 Mikrograf sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan (0.8% APT)



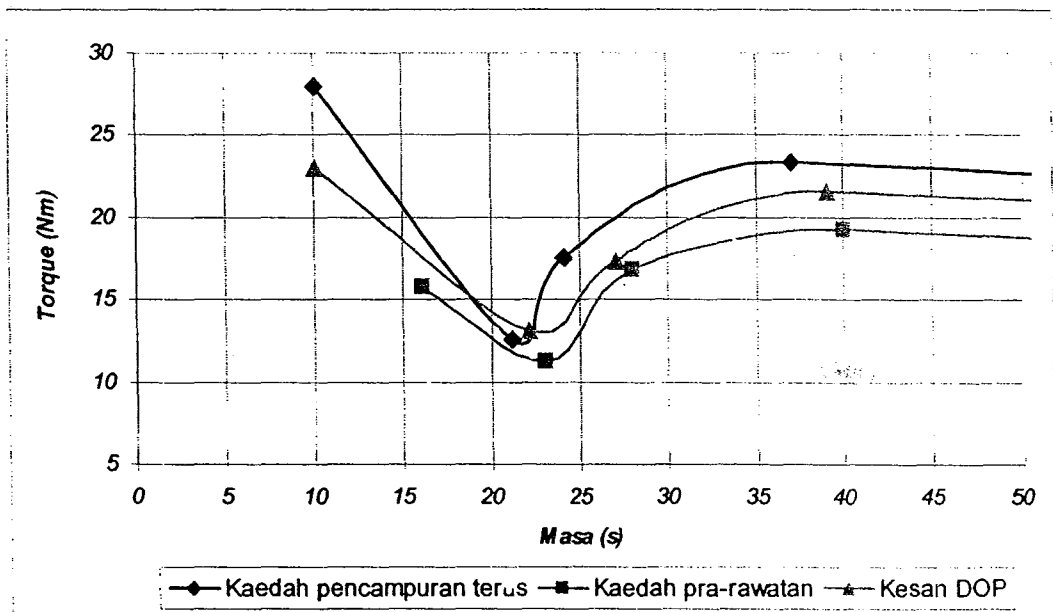
Rajah 4.2.11 Mikrograf sebatian PP berpengisi KK pra-rawatan (2.0% APT)

4.3 Perbandingan kedua-dua jenis teknik pencampuran

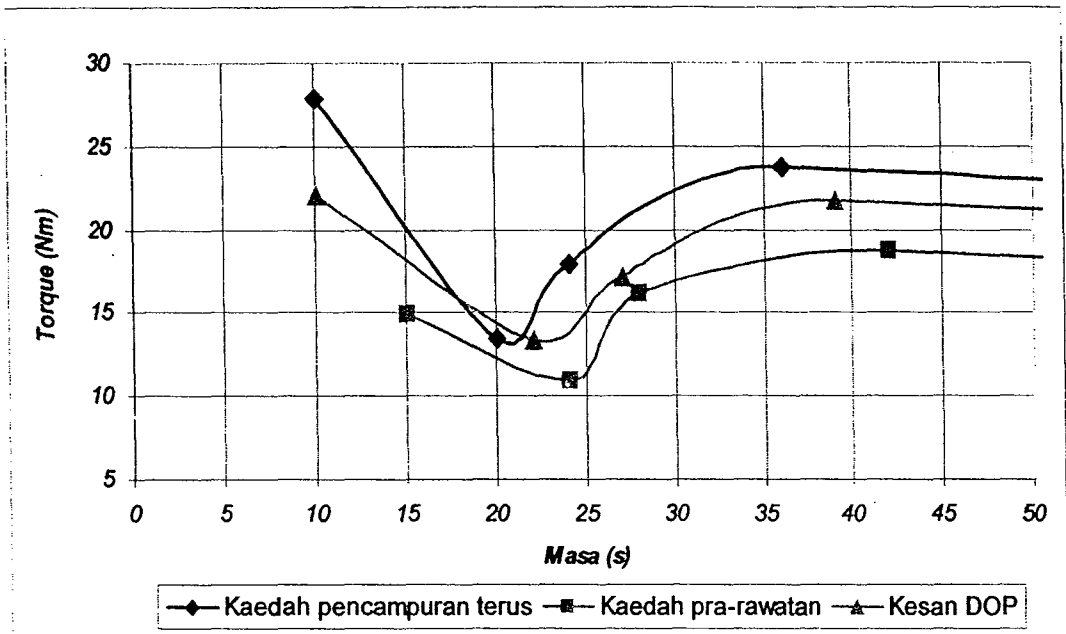
Untuk melihat kesan penggunaan kaedah yang berbeza iaitu kaedah pencampuran secara terus (kaedah 1) dan kaedah pra-rawatan (kaedah 2) perbandingan terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal dilakukan.

4.3.1 Ciri-ciri pemprosesan

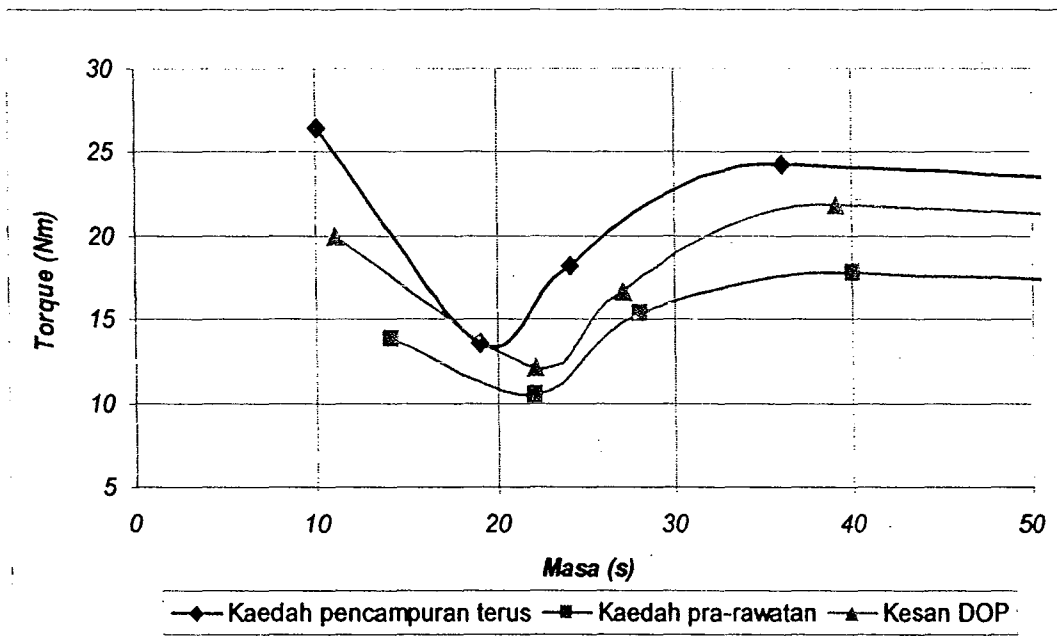
Perbandingan kesan pelbagai jumlah APT terhadap plot torque-masa menggunakan kedua-dua kaedah ditunjukkan oleh Rajah 4.3.1, 4.3.2, 4.3.3, 4.3.4 dan 4.3.5. Pemerhatian menunjukkan kaedah pra-rawatan KK menghasilkan torque yang lebih rendah tetapi masa yang lebih panjang berbanding dengan kaedah pencampuran terus. Semakin tinggi jumlah APT yang digunakan semakin besar perbezaan plot torque-masa.



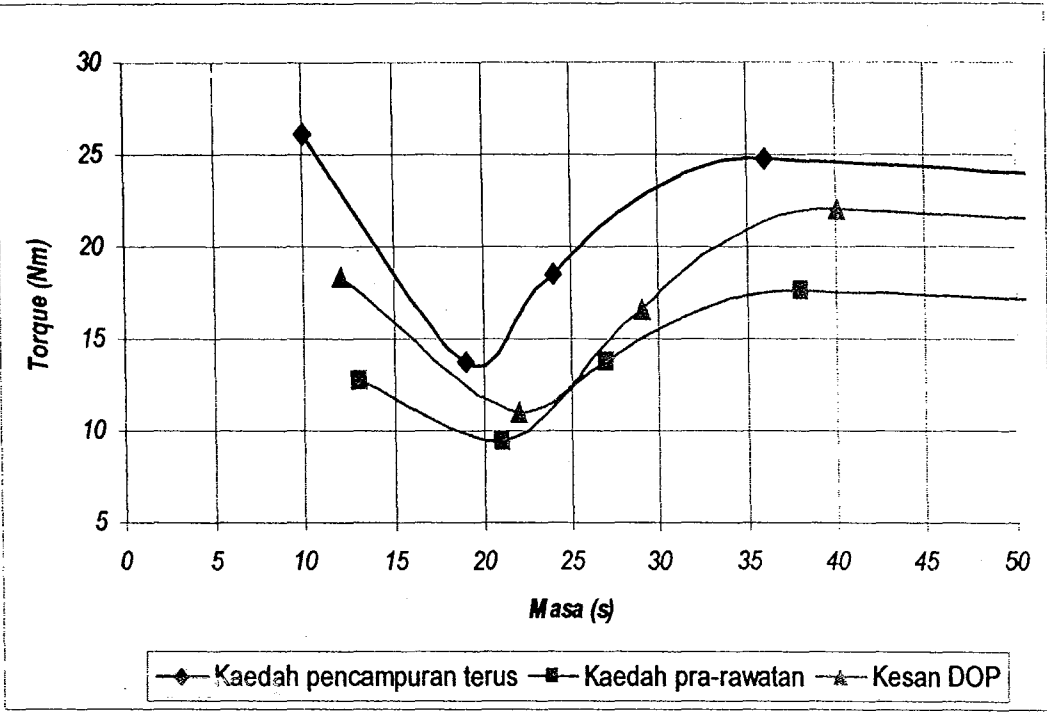
Rajah 4.3.1 Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (0.4%)



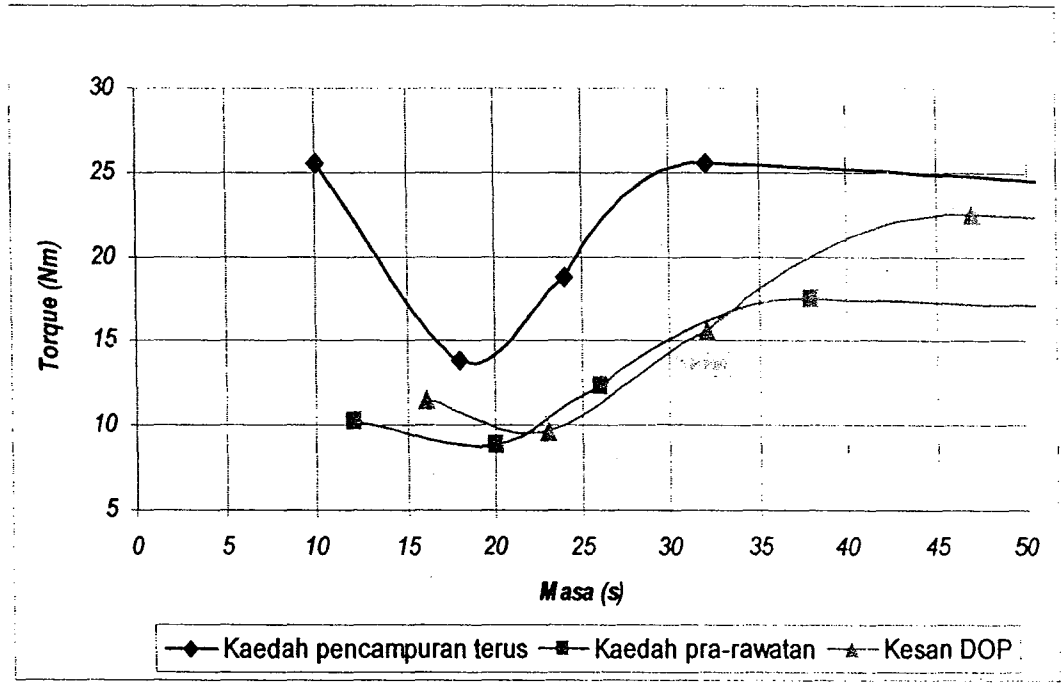
Rajah 4.3.2 Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (0.8%)



Rajah 4.3.3 Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (1.2%)



Rajah 4.3.4 Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (1.6%)



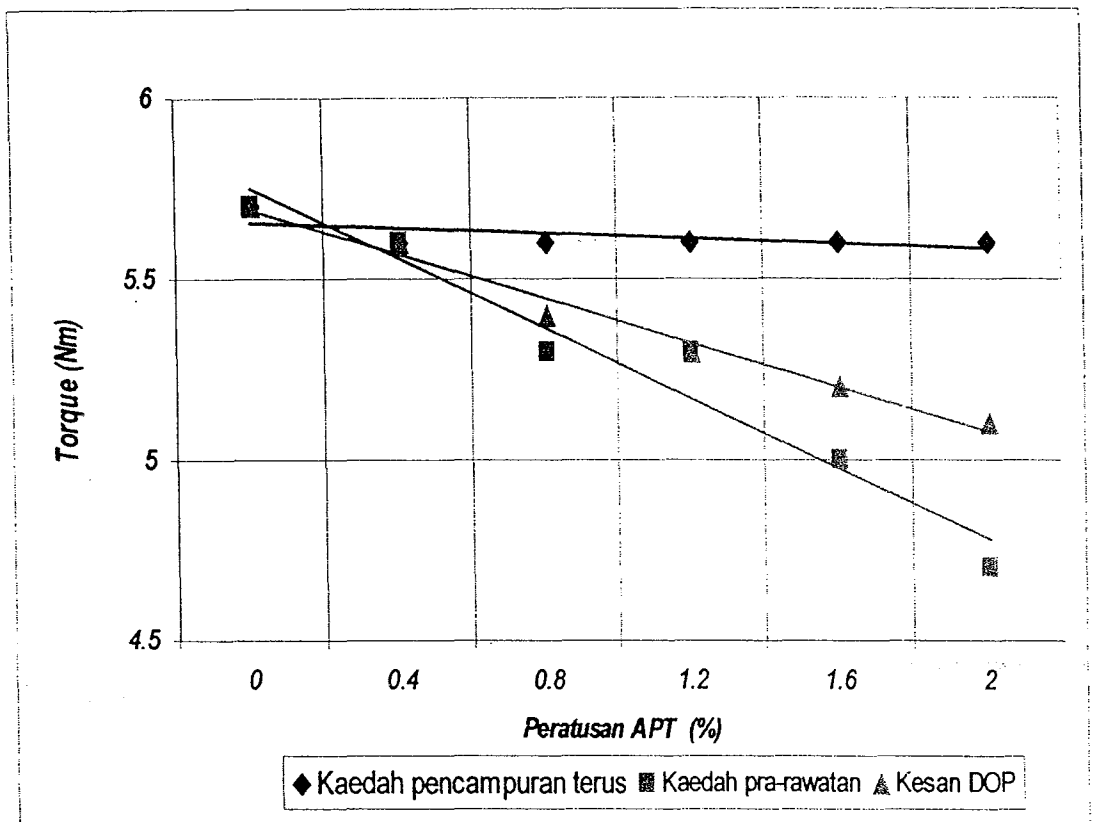
Rajah 4.3.5 Perbandingan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan bagi plot torque melawan masa sebatian PP (2.0%)

Ini menunjukkan kaedah pra-rawatan memberikan penyebaran yang lebih baik berbanding dengan kaedah pencampuran secara terus. Keadaan ini adalah selaras dengan penyelidikan yang dilakukan oleh Liao dan rakan-rakan (1995) yang mendapati bahawa pra-rawatan permukaan partikel pengisi tak organik dengan agen pengkupet dapat memperbaiki penyebaran partikel pengisi di dalam matrix plastik dan dapat mengelakkan pembentukan gumpalan .

Oleh itu dapat disimpulkan di sini bahawa kaedah kedua dapat mengurangkan pembentukan gumpalan. Gumpalan ialah penggabungan partikel-partikel halus membentuk satu ikatan “aggregates” yang bertukar menjadi satu struktur yang besar. Torque yang lebih tinggi diperlukan dalam kaedah pencampuran secara terus mungkin disebabkan oleh pembentukan gumpalan ini. Pembentukan gumpalan memberikan kesan yang sangat besar terhadap peningkatan torque di dalam sesuatu sistem komposit (Fuad, 1993).

Disamping itu penggunaan DOP sebagai pelarut APT telah memberi kesan kepada ciri-ciri pemprosesan sebatian PP. DOP telah memainkan peranannya sebagai pemplastik dimana tanpa APT ia telah mengurangkan torque pemprosesan pada semua peratusan seperti yang dipamirkan oleh Rajah 4.3.1, 4.3.2, 4.3.3, 4.3.4 dan 4.3.5.

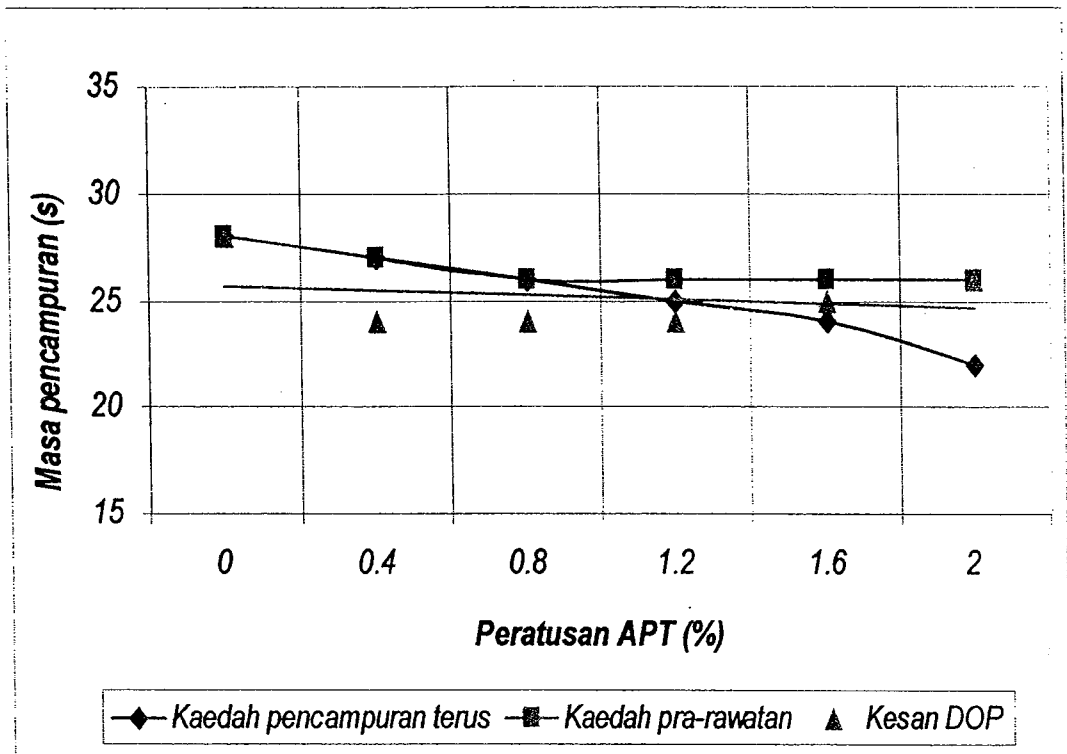
Penggunaan APT dapat meningkatkan interaksi di antara polimer matrix dengan pengisi, DOP pula membantu memberikan penyebaran yang baik dengan mengurangkan pembentukan gumpalan. Tindakan kedua-dua bahan ini iaitu APT bersama-sama DOP telah menyebabkan torque sebatian PP menjadi lebih rendah berbanding dengan penggunaan APT sahaja ataupun DOP sahaja.



Rajah 4.3.6 Perbandingan torque pengstabilan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan.

Nilai torque pengstabilan bagi kedua-dua kaedah pencampuran ditunjukkan oleh Rajah 4.3.6. Penggunaan kaedah pencampuran secara terus tidak memberikan perubahan yang ketara kepada torque pengstabilan tetapi apabila kaedah pra-rawatan digunakan torque kestabilan semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah APT.

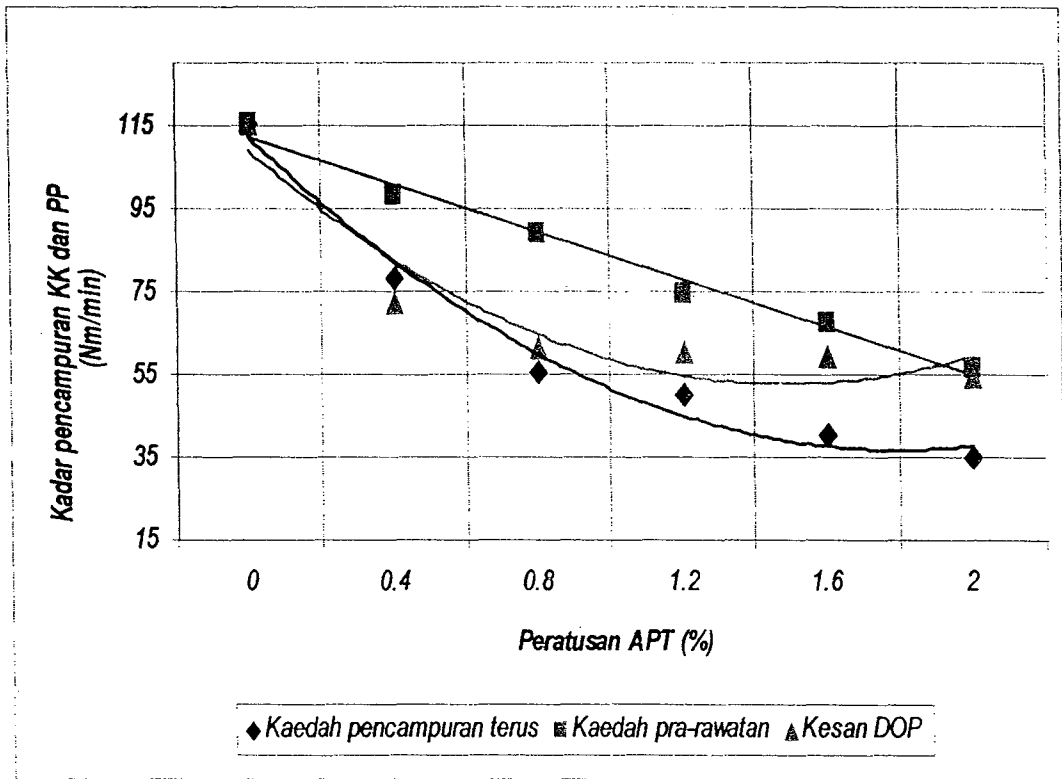
Kaedah pra-rawatan memberikan torque pengstabilan yang lebih rendah disebabkan oleh faktor yang sama seperti yang telah dibincangkan dalam rajah-rajah terdahulu iaitu sifat APT sebagai pemplastik dan kehadiran DOP yang membantu penyebaran pengisi KK di dalam matrix polimer sebagai mana yang telah dibincang sebelum ini.



Rajah 4.3.7 Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap masa pencampuran sebatian PP

Rajah 4.3.7 menunjukkan tiada perbezaan masa pencampuran yang ketara di antara kedua-dua kaedah pencampuran. Penggunaan DOP pula tidak memberikan kesan yang ketara terhadap masa pencampuran. Walau bagaimanapun sedikit penurunan masa pencampuran dipamirkan oleh kaedah pencampuran terus apabila penambahan APT melebihi 0.8%.

Sebagaimana yang telah diketahui, kaedah pencampuran terus tidak mengandungi DOP yang dapat membantu penyebaran pengisi dan mengurangkan pembentukan gumpalan. Oleh itu pembentukan gumpalan yang mungkin terhasil disebabkan oleh kelikatan APT. Keadaan ini telah meningkatkan torque sebatian PP. Peningkatan torque ini telah mempercepatkan proses pencampuran melalui penghasilan haba geseran di dalam sistem sebatian PP [Saha, 2001].



Rajah 4.3.8 Kesan kaedah pencampuran terus dan pra-rawatan terhadap kadar pencampuran KK dan PP

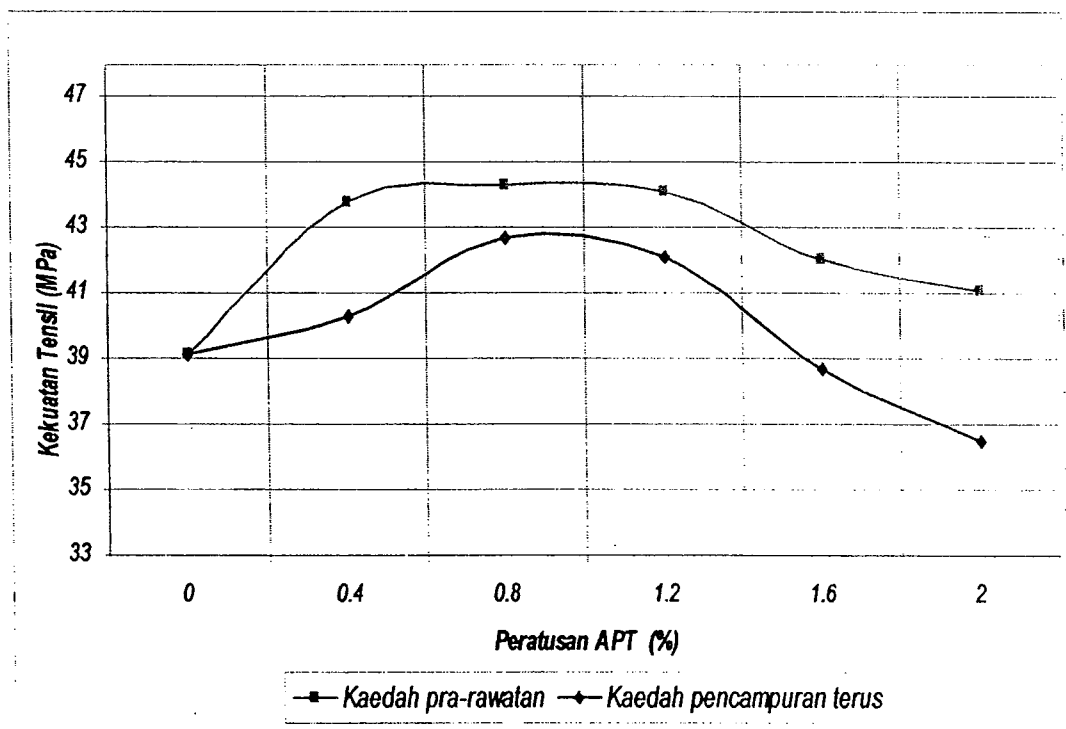
Kedua-dua kaedah pencampuran dan penggunaan DOP memberikan kesan yang sama iaitu kadar pencampuran atau kadar memasukkan KK ke dalam fasa leburan PP semakin berkurangan dengan penambahan APT. Walau bagaimanapun kaedah pencampuran terus memberikan kadar pencampuran KK dan PP yang lebih rendah berbanding dengan kaedah pra-rawatan dan penggunaan DOP.

Saiz pengisi yang digunakan di dalam kedua-dua kaedah pencampuran adalah sama. Walau bagaimanapun pembentukan gumpalan dalam kaedah pencampuran terus menyebabkan terdapat saiz partikel yang lebih besar di dalam sistem ini berbanding dengan kaedah pra-rawatan.

Kewujudan partikel yang lebih besar ini menyebabkan kadar pencampuran KK dan PP dalam kaedah pencampuran terus adalah lebih lambat berbanding dengan kaedah pra-rawatan.

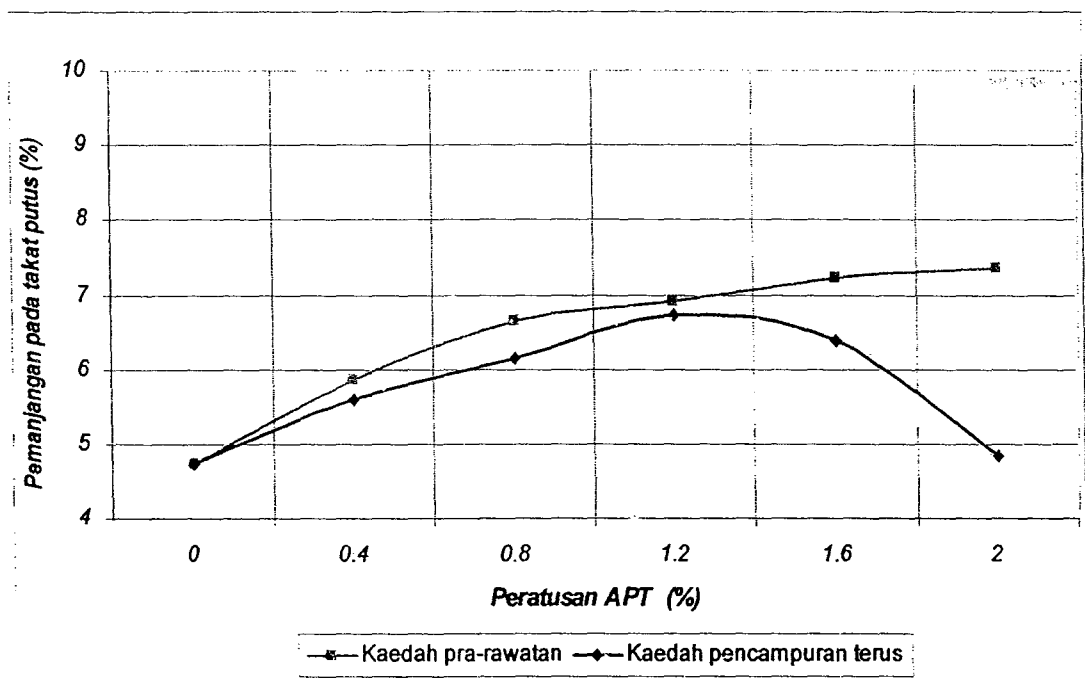
4.3.2 Sifat-sifat mekanikal

Penggunaan agen pengkupel titanat ke atas PP berpengisi KK menghasilkan perubahan terhadap sifat-sifat mekanikal. Rajah 4.3.9, 4.3.10 dan 4.3.11 mempamerkan perbandingan kekuatan tensil, pemanjangan pada takat putus dan E-modulus sebatian PP berpengisi KK dengan menggunakan kedua-dua teknik pencampuran.

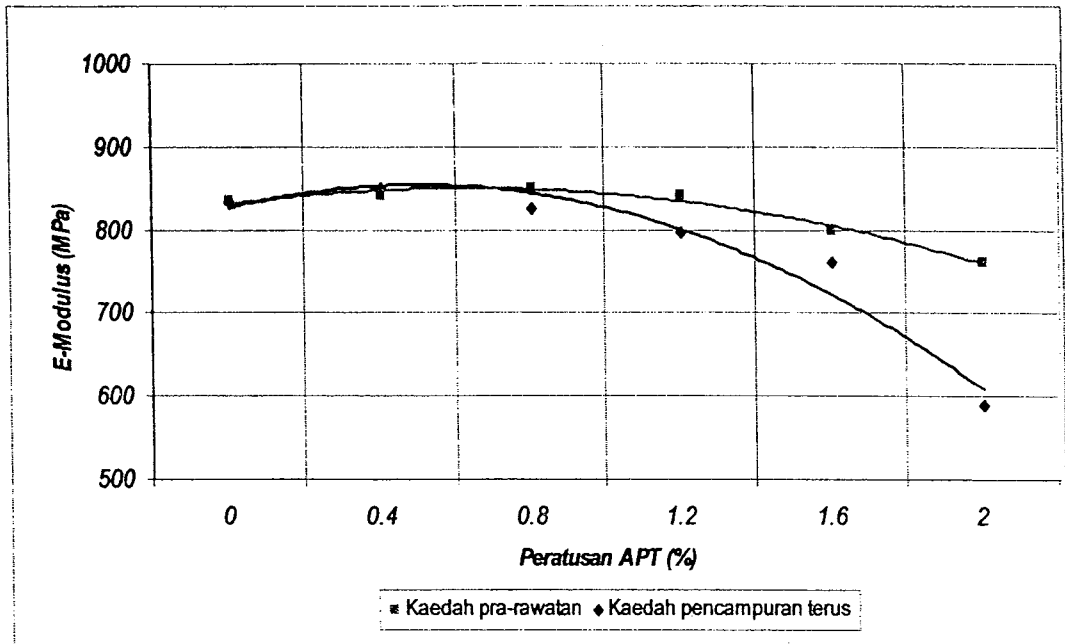


Rajah 4.3.9 Kesan kaedah pra-rawatan dan pencampuran terus terhadap kekuatan tensil sebatian PP.

Dalam semua kes penggunaan kaedah pra-rawatan KK dengan APT sebelum pencampuran dengan PP dilakukan memberikan kekuatan yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan kaedah pencampuran secara terus. Kaedah pra-rawatan memberikan sifat mekanikal yang lebih baik kerana pra-rawatan pengisi dapat memperbaiki penyebaran partikel pengisi di dalam matrix dan menghalang berlakunya gumpalan. Ini menyebabkan sifat mekanikal sebatian PP yang menggunakan kaedah pra-rawatan menjadi lebih baik.



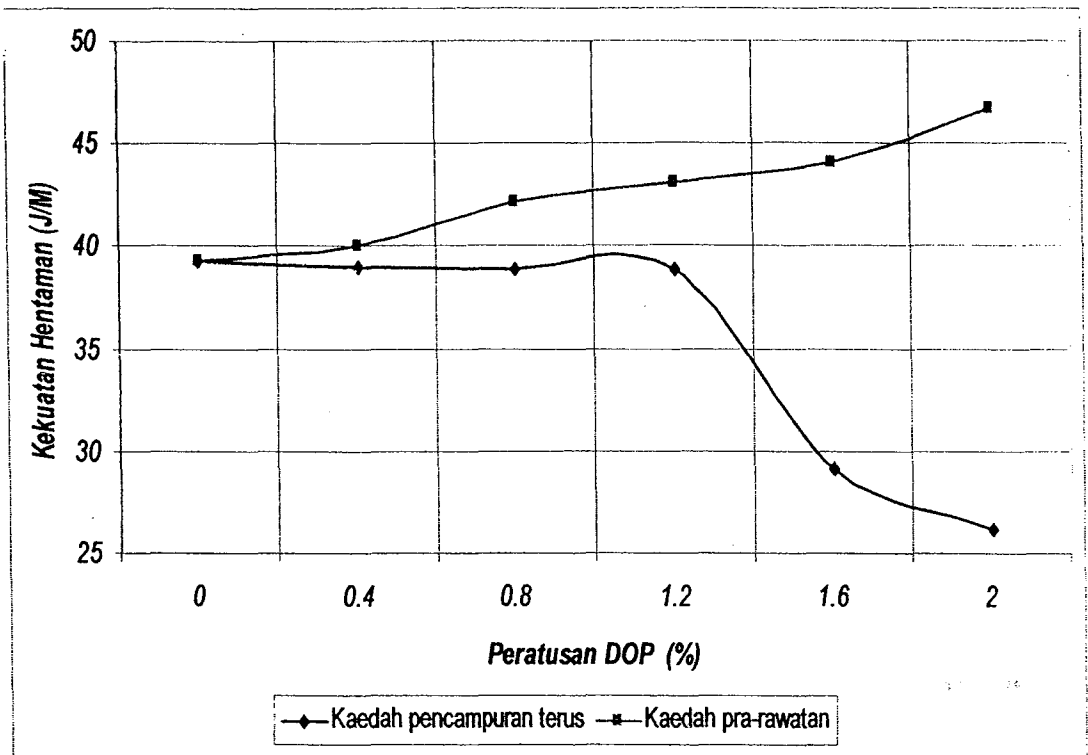
Rajah 4.3.10 Kesan kaedah pra-rawatan dan pencampuran terus terhadap pemanjangan pada takat putus sebatian PP.



Rajah 4.3.11 Kesan kaedah pra-rawatan dan pencampuran terus terhadap E-modulus sebatian PP.

Perosotan sifat mekanikal kedua-dua kaedah pencampuran apabila APT melebihi 1.2% mungkin disebabkan penambahan APT yang berlebihan yang menyebabkan pembentukan gumpalan sebagaimana yang telah dibincangkan dalam topik 4.2.2. Ini menyokong kenyataan yang dibuat oleh Liu et al [2002] bahawa penambahan APT berlebihan akan menyebabkan gumpalan terbentuk.

Di samping itu tindakan APT dan minyak DOP sebagai pemplastik juga turut menyumbang kepada perosotan sifat-sifat mekanikal sebatian PP kedua-dua kaedah pencampuran.



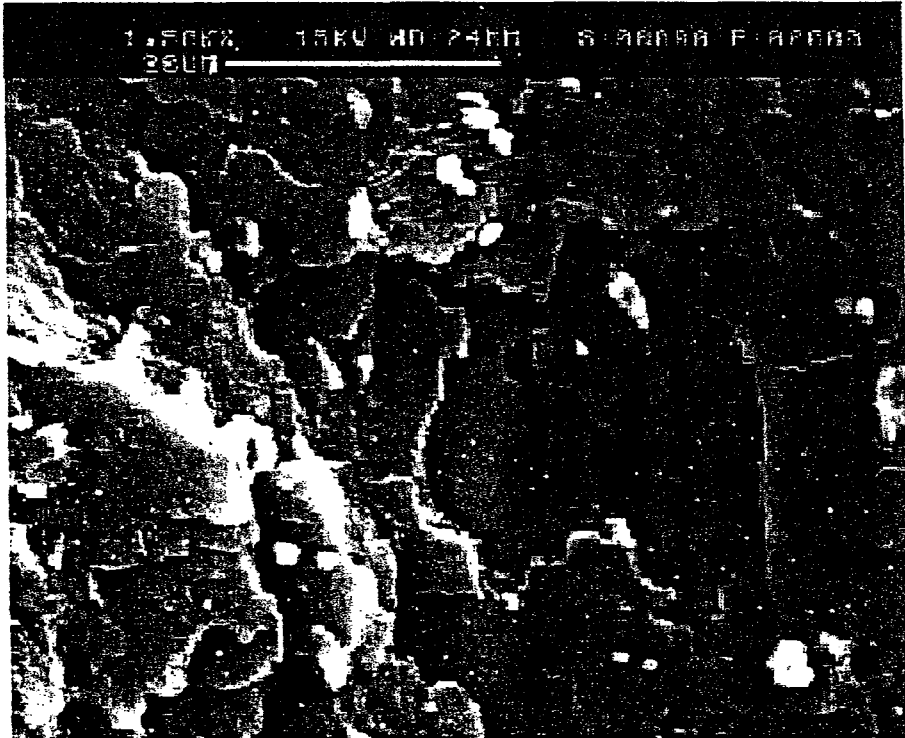
Rajah 4.3.12 Kesan kaedah pra-rawatan dan pencampuran terus terhadap kekuatan hentaman sebatian PP.

Rajah 4.3.12 menunjukkan kekuatan hentaman sebatian PP yang menggunakan kaedah pra-rawatan adalah lebih baik berbanding dengan kaedah pencampuran secara terus. Ini menunjukkan bahawa penyebaran yang seragam dan perekatan yang baik lebih menyumbang kepada peningkatan kekuatan hentaman.

4.3.3 Morfologi (S.E.M)

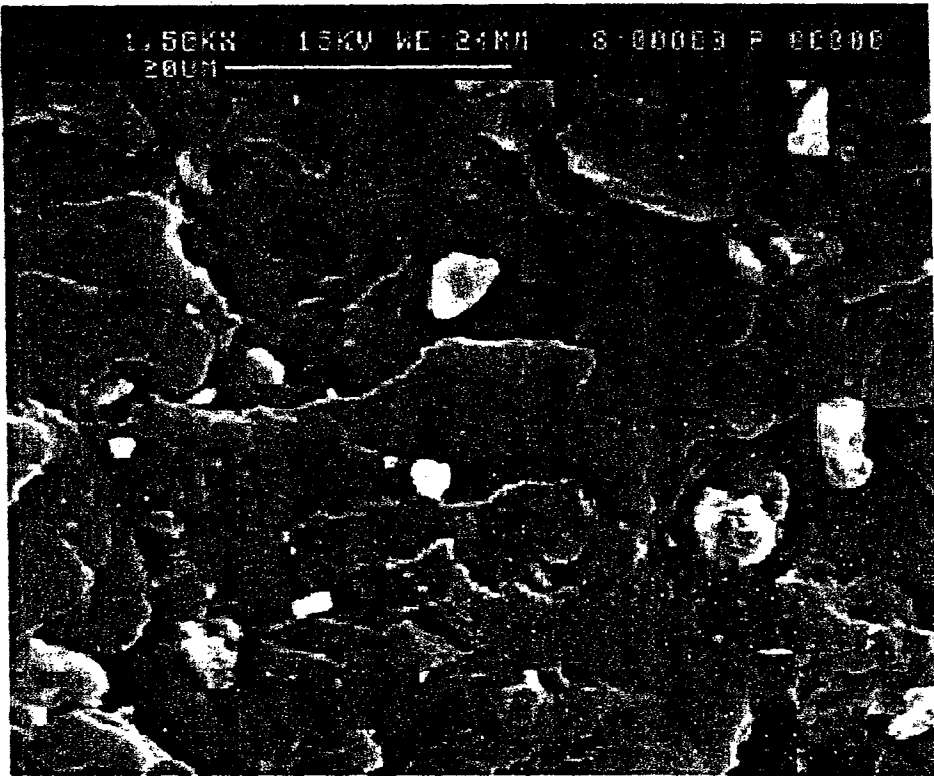
Rajah 4.3.13 dan 4.3.14 menunjukkan mikrograf sebatian PP yang menggunakan kaedah pencampuran secara terus. Manakala Rajah 4.3.15 dan 4.3.16 menunjukkan mikrograf sebatian yang menggunakan kaedah pra-rawatan.

Keempat-empat mikrograf ini menunjukkan dengan jelas kaedah pencampuran terus memberikan penyebaran yang tidak seragam iaitu terdapat kawasan yang mempunyai lebih pengisi berbanding dengan kawasan yang lain. Di samping itu terdapat gumpalan iaitu partikel yang lebih besar berbanding dengan partikel yang lain. Ini ditunjukkan oleh mikrograf pada Rajah 4.3.15.

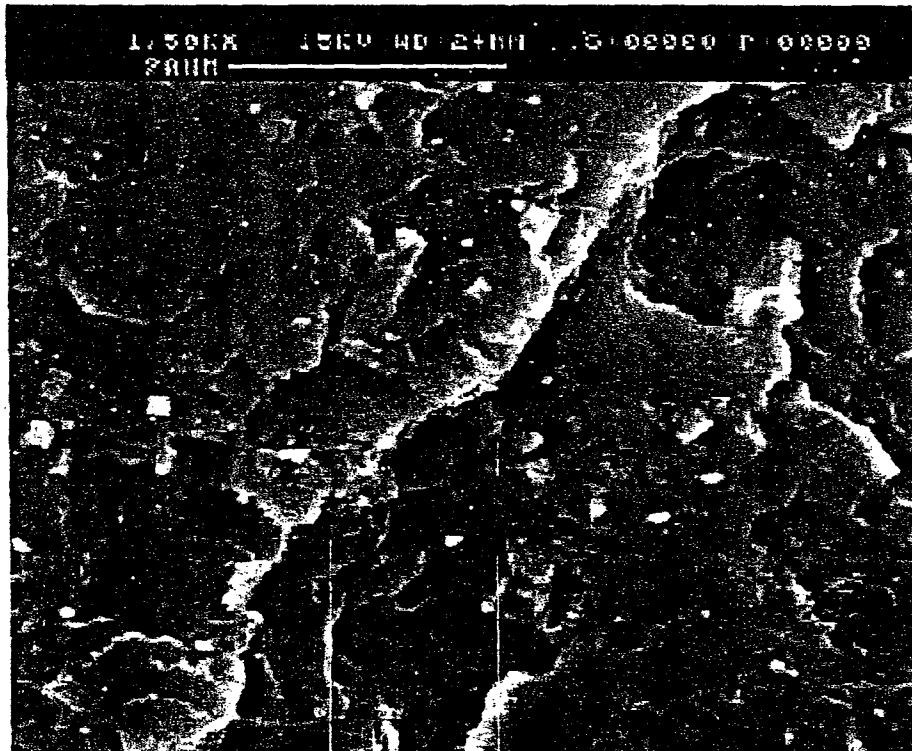


Rajah 4.3.14 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 0.8% APT dengan kaedah pencampuran terus

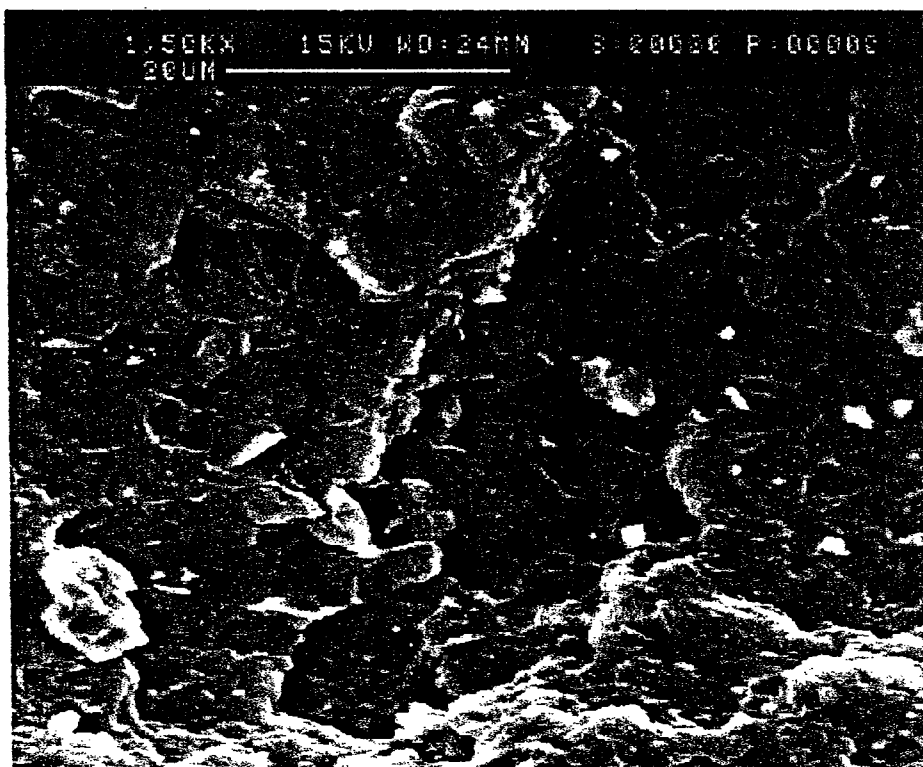
Sebaliknya mikrograf bagi kaedah pra-rawatan adalah lebih seragam. Ini menunjukkan penyebaran yang baik yang terhasil dari kaedah pra-rawatan. Mikrograf-mikrograf ini menyokong kenyataan yang dibuat sebelum ini mengenai penyebaran yang baik melalui kaedah pra-rawatan dan pembentukan gumpalan dalam kedah pencampuran secara terus.



Rajah 4.3.15 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT dengan kaedah pencampuran terus



Rajah 4.3.16 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 0.8% APT dengan kaedah pra-rawatan



Rajah 4.3.17 Mikrograf sebatian PP yang mengandungi 2.0% APT dengan kaedah pra-rawatan

4.4 Kesan pelbagai jumlah pra-rawatan kalsium karbonat (KK) dengan agen pengkupel multifungsi titanat (APT) terhadap ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal plastik polipropilena (PP)

Secara keseluruhan kajian dalam bab yang terdahulu mendapati kaedah pra-rawatan yang dilakukan ke atas KK dengan menggunakan APT memberikan ciri-ciri pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal yang lebih baik jika dibandingkan dengan kaedah pencampuran secara terus. Sebagai lanjutan dari kajian tersebut, kajian pada kali ini dilakukan untuk melihat kesan penambahan KK pra-rawatan pada pelbagai peratusan APT.

KK dirawat dengan peratusan APT yang berbeza-beza iaitu 0.4, 0.8, 1.2, 1.6 dan 2.0 %. Jumlah KK yang telah dirawat dengan APT ini kemudiannya digunakan pada jumlah yang berbeza iaitu 10,20,30 dan 40 p.h.r. Dengan ini kesan penambahan KK pra-rawatan dapat diperhatikan pada setiap peratusan APT.

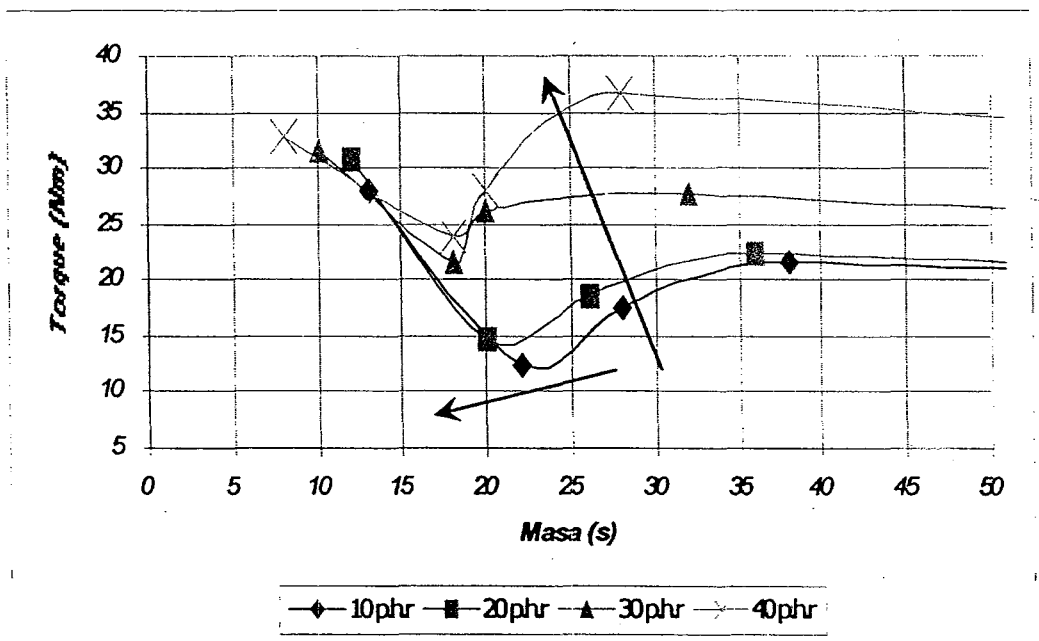
4.4.1 Ciri-ciri pemprosesan

Sifat-sifat reologi leburan polimer, terutamanya gaulan polimer, adalah penting dan ianya amat bergantung kepada keadaan pemprosesan [Martuscelli et al , 1980]. Bagi kes pengaliran polimer, ia bergantung kepada mobiliti rantaian molekul dan daya atau kekusutan rantai yang memegang molekul-molekul dalam aliran tersebut [Brydson, 1981 & Grossman, 1990].

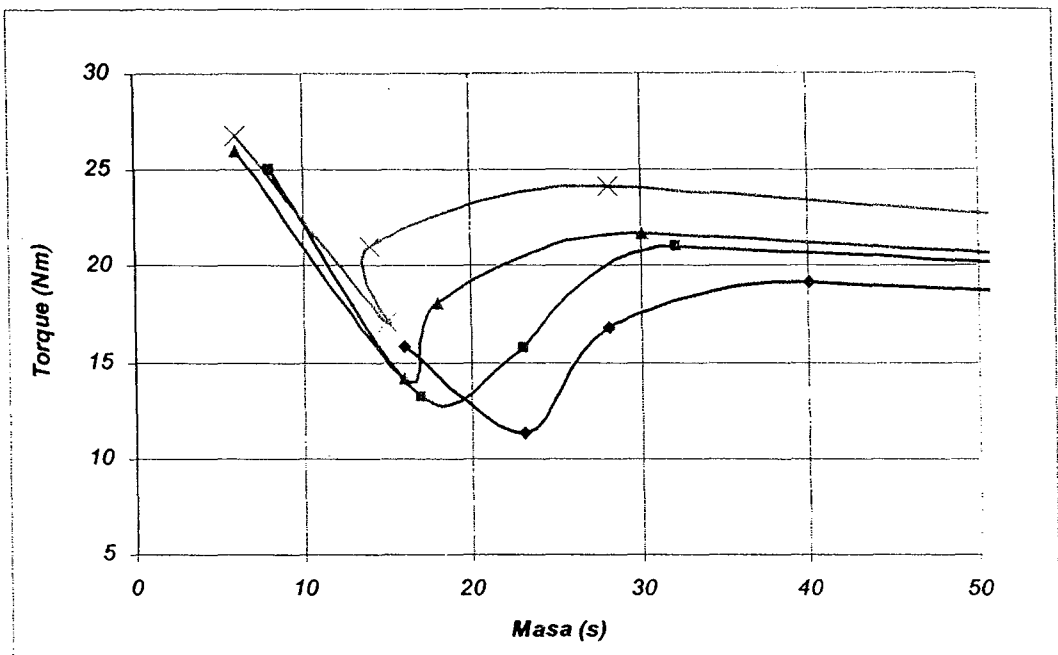
Aliran leburan sesuatu gaulan elastomer atau polimer bergantung kepada sejarah pencampuran dan morfologinya sebagaimana yang dinyatakan oleh Flot dan Smith [1973]. Coran dan Patel [1981] , semasa menjalankan kajiannya terhadap gaulan

termoplastik elastomer, membuat kesimpulan bahawa tegasan modulus sesuatu sebatian bergantung kepada kelikatan fasa getah dan penghabluran fasa plastik. Vinogradov et al [1975], Ablazova [1975] dan Tsebrenko [1979] melaporkan kelikatan leburan sangat bergantung kepada tegasan ricih yang dikenakan.

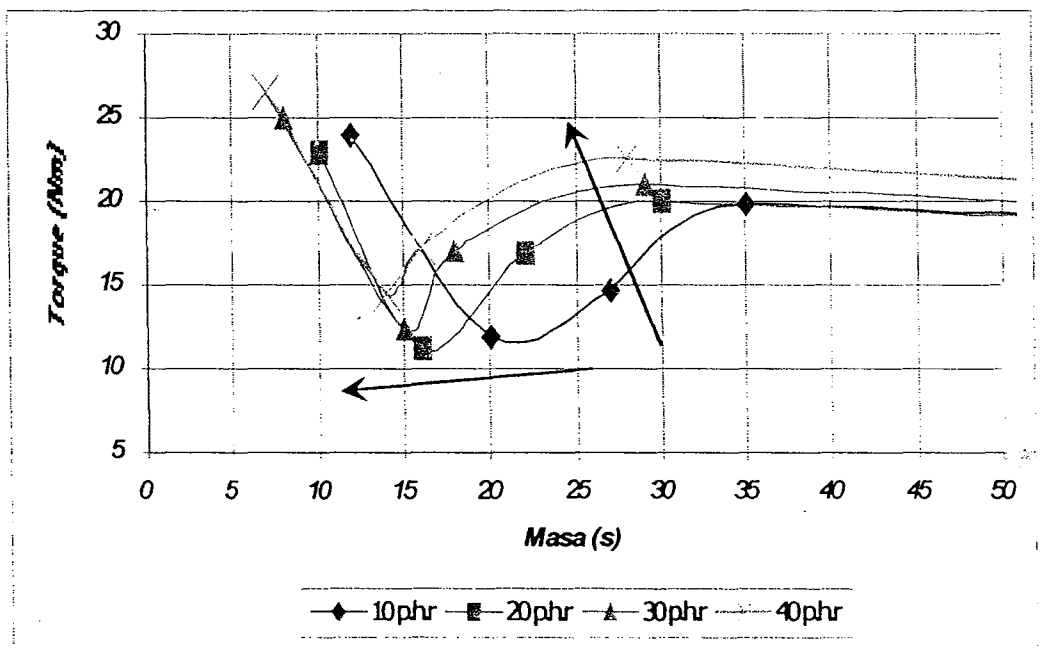
Rajah 4.4.1, 4.4.2, 4.4.3, 4.4.4, 4.4.5 dan 4.4.6 menunjukkan torque semakin meningkat dan bergerak ke kanan iaitu ke arah masa peleburan yang lebih panjang, dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan pada semua peratusan APT. Keadaan ini wujud disebabkan oleh penambahan partikel pengisi di dalam sebatian PP yang menyebabkan mobiliti rantaian makromolekul di dalam matrix polimer berkurang.



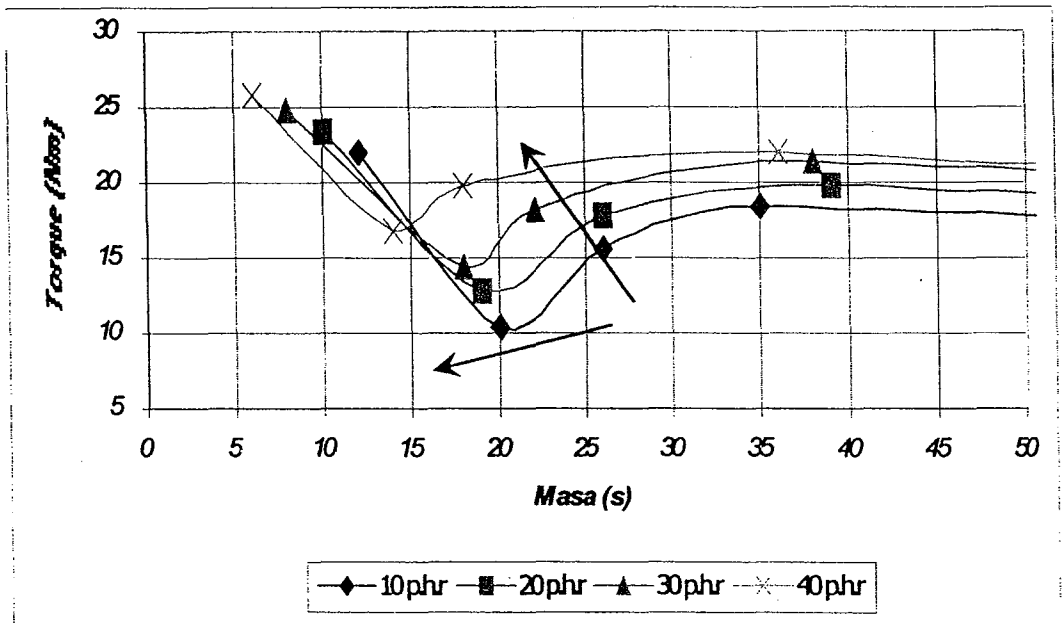
Rajah 4.4.1 Plot torque melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK



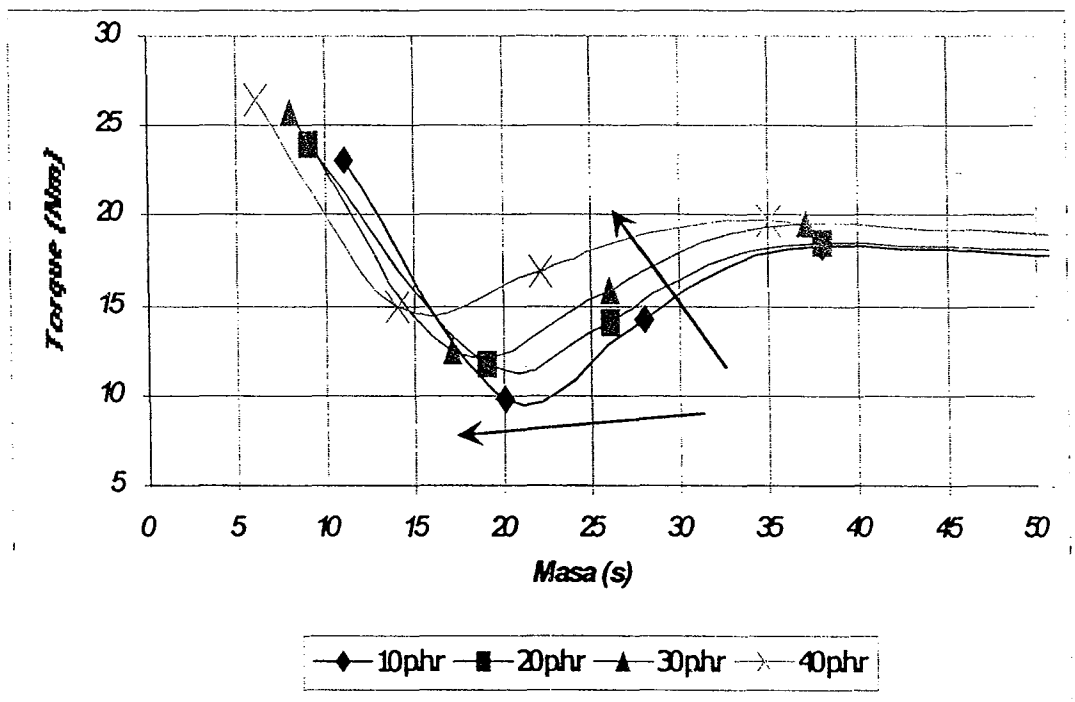
Rajah 4.4.2 Plot torqe melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 0.4% APT



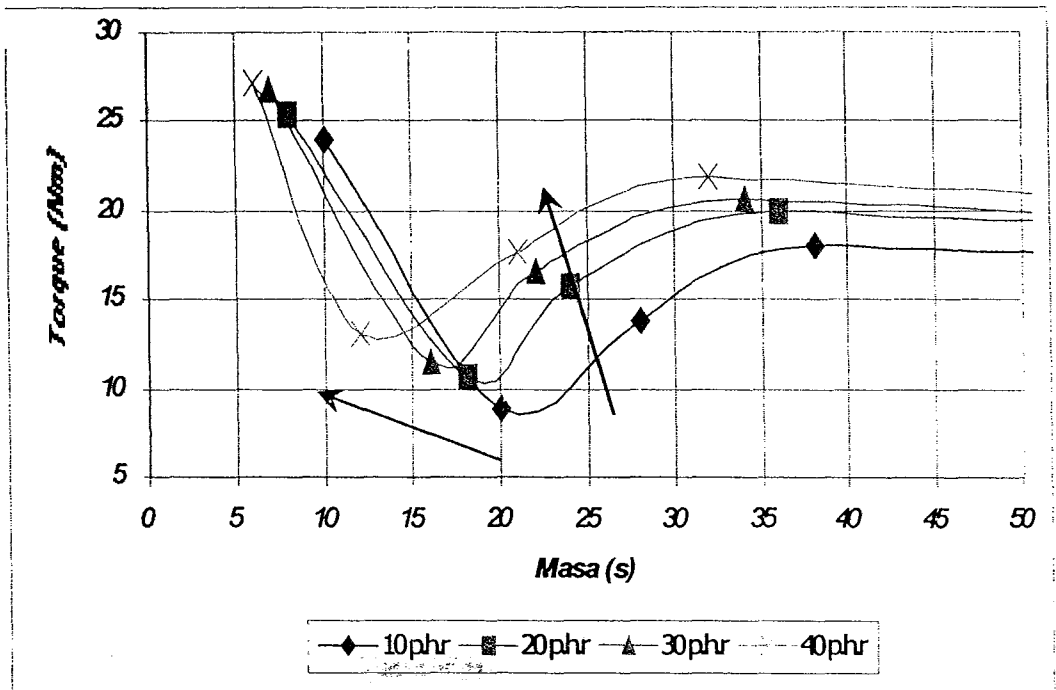
Rajah 4.4.3 Plot torqe melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 0.8% APT



Rajah 4.4.4 Plot torqe melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 1.2% APT



Rajah 4.4.5 Plot torqe melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 1.6% APT



Rajah 4.4.6 Plot torqe melawan masa bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan 2.0% APT

Penambahan pengisi yang mengurangkan mobiliti rantai makromolekul ini menghasilkan rintangan terhadap aliran rantaian polimer. Rintangan aliran polimer yang terhasil ini ditunjukkan oleh peningkatan torque pemprosesan dengan penambahan pengisi. Ini selaras dengan keputusan yang diperolehi oleh Fuad (1993) ketika menggunakan abu sekam padi sebagai pengisi plastik PP untuk melihat kesan penambahan agen pengkupel di dalam plastik tersebut .

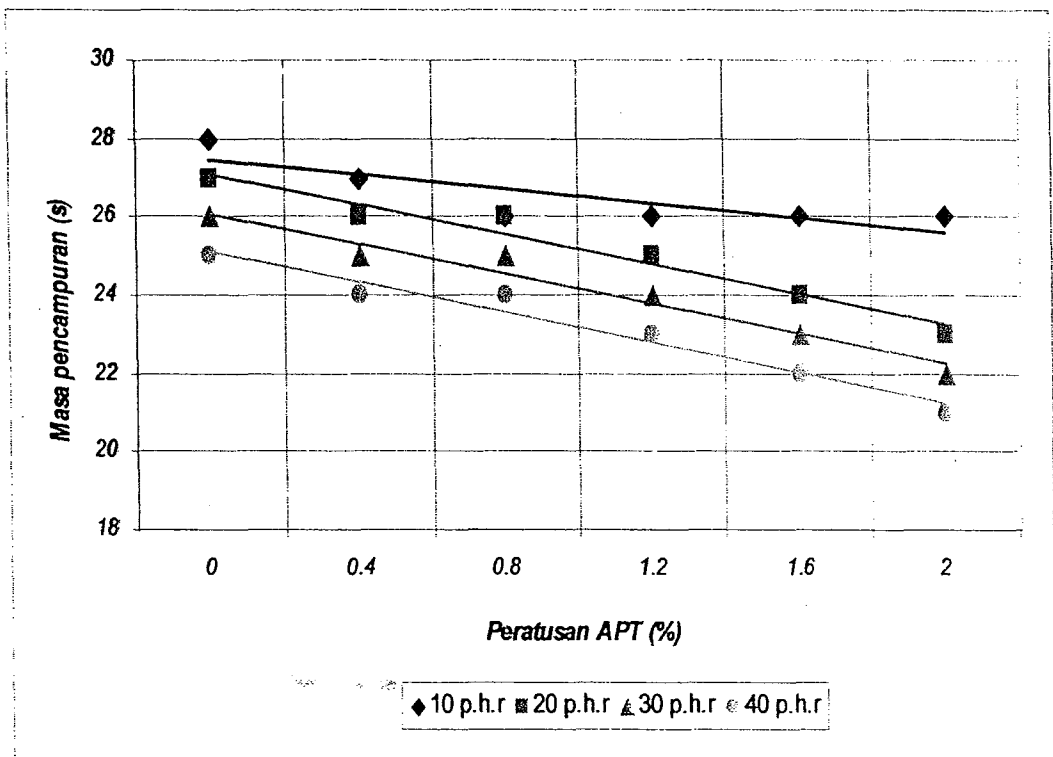
Dari pemerhatian ini juga didapati corak graf bagi semua peratusan APT adalah sama. Rajah-rajah ini juga menunjukkan kesan peningkatan torque semakin berkurangan apabila peratusan APT semakin meningkat. Bagi sistem tanpa agen pengkupel, peningkatan torque dapat dilihat dengan jelas apabila jumlah KK

ditingkatkan. Walau bagaimanapun apabila peratusan agen pengkupel semakin tinggi peningkatan torque yang dialami oleh sistem PP berpengisi semakin tidak ketara.

Peningkatan torque yang semakin berkurangan dengan peningkatan peratusan APT ini berlaku kerana pergerakan molekul di antara rantai polimer bertambah baik. Ini mungkin disebabkan oleh proses perubahan penyebaran berat molekul terhasil dari tindakan pelinciran/ pemplastikan oleh agen pengkupel dan pemplastik minyak DOP .

Menurut Chuah et al (1999) berdasarkan data indeks aliran leburan, terbukti yang APT memainkan peranan dalam menghasilkan pengguntingan rantai molekul untuk menghasilkan perubahan kepada penyebaran berat molekul dalam kajiannya terhadap kesan APT terhadap PP berpengisi "talc". Tetapi mereka membuat kesimpulan bahawa aliran leburan bertambah baik adalah di sebabkan oleh kesan pemplastikan agen pengkupel di mana ia meresap ke dalam matrix polimer untuk bertindak sebagai pelincir dalaman.

Masa pencampuran ialah masa yang diperlukan untuk polimer mencapai torque maksimum dimana polimer dianggap bercampur dengan KK pra-rawatan secara sempurna atau lengkap (titik X iaitu torque maksimum) . Rajah 4.4.7 menunjukkan masa pencampuran sebatian PP semakin singkat dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan pada semua peratusan APT. Masa pencampuran juga menjadi semakin singkat dengan penambahan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan.



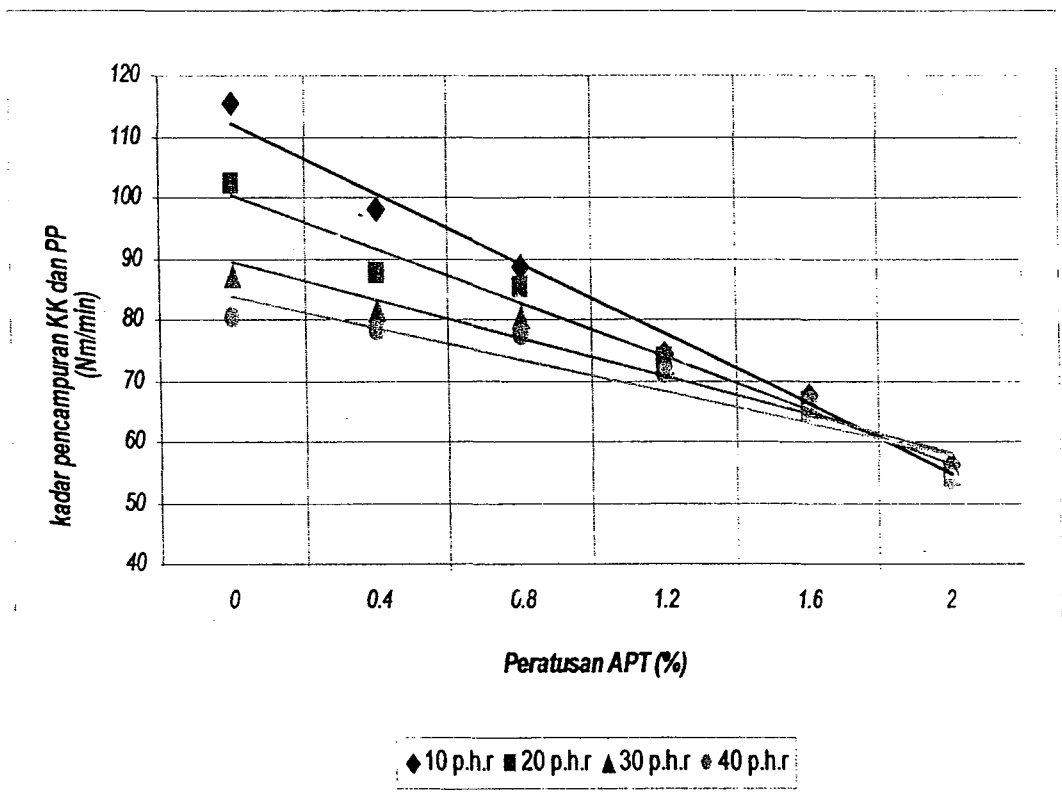
Rajah 4.4.7 Kesan APT terhadap masa pencampuran pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan PP

Masa pencampuran sebatian PP semakin singkat dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan pada semua peratusan APT berlaku kerana semakin banyak pengisi digunakan semakin banyak geseran yang terhasil di dalam proses pencampuran. Semakin banyak geseran berlaku maka semakin banyak haba geseran yang terhasil untuk mempercepatkan proses polimer melebur dan bercampur dengan KK pra-rawatan secara sempurna. Oleh itu masa pencampuran menjadi semakin pendek.

Masa pencampuran menjadi semakin singkat dengan penambahan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan pula disebabkan oleh pengurangan takat ia melembut (softening point). Sebagaimana yang telah dibincangkan dalam dalam Bab 4.2, penambahan APT akan menyebabkan sebatian menjadi lembut iaitu takat sebatian

PP melembut (softening point) akan berkurangan. Pengurangan takat melembut ini akan mempercepatkan proses peleburan [Gould & Player, 1979]. Semakin tinggi jumlah APT maka semakin rendah takat melembut, keadaan ini menyebabkan proses peleburan dan seterusnya proses pencampuran menjadi semakin cepat.

Dari Rajah 4.4.7. didapati masa pencampuran semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan. Pengurangan masa pencampuran ini menyebabkan kadar pencampuran atau kadar kemasukkan KK pra-rawatan ke dalam fasa leburan PP semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan yang digunakan sebagaimana yang dipamirkan oleh Rajah 4.4.8.



Rajah 4.4.8 Kesan APT terhadap kadar pencampuran pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan PP

Rajah 4.4.8 juga menunjukkan kadar pencampuran KK dan PP semakin berkurangan dengan penambahan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan. Keadaan ini berlaku disebabkan oleh pengurangan daya atau torque untuk merangsang kemasukkan KK pra-rawatan ke dalam fasa leburan PP semasa proses pencampuran dilakukan. Pengurangan torque ini ditunjukkan oleh Jadual 4.4.1 dan 4.4.2. Pengurangan torque pemprosesan ini menyebabkan kadar pencampuran KK dan PP semakin perlahan. Ini kerana kadar kemasukkan KK pra-rawatan ke dalam fasa leburan PP bergantung kepada daya yang dikenakan semasa pemprosesan dilakukan [Zajchowski et al (2001), Teh J.W. et al (1989), Kriger E.J. (1985)].

Jadual 4.4.1 Nilai torque B pada pelbagai jumlah APT dan KK pra-rawatan.

Pengisi (p.h.r)/ APT (%)	Torque B (Nm)					
	0	0.4	0.8	1.2	1.6	2.0
10	11.3	11.3	10.9	10.5	9.4	8.8
20	14.1	13.2	11.2	11.5	11.7	10.7
30	15.1	14.2	13.4	12.8	12.5	11.5
40	24.4	17.1	14.5	14.8	14.9	13.1

Jadual 4.4.2 Nilai torque X pada pelbagai jumlah APT dan KK pra-rawatan

Pengisi (p.h.r)/ APT (%)	Torque X (Nm)					
	0	0.4	0.8	1.2	1.6	2.0
10	21.5	19.2	18.7	17.8	17.6	17.5
20	22	21	20	19.8	18.5	18.4
30	22.6	21.7	21.6	21.5	19.5	18.7
40	35	24.1	22.6	22	19.8	18.5

Jadual 4.4.1 dan 4.4.2 menunjukkan torque pada B dan X. Pada titik B proses peresapan masuk KK ke dalam fasa leburan PP atau kadar pencampuran KK dan PP bermula sehingga nilai maksimum X tercapai, di mana pada titik X sebatian PP telah bercampur dengan KK pra-rawatan secara sempurna.

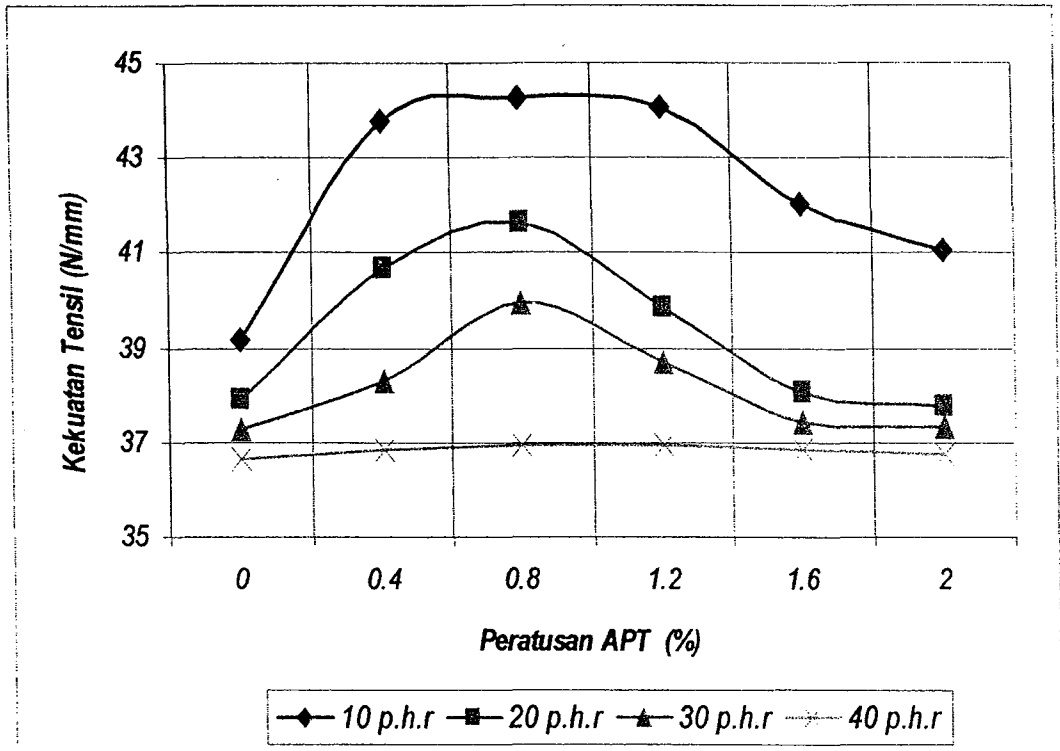
4.4.2 Sifat-sifat mekanikal

Kebanyakan produk akhir polimer adalah campuran di antara polimer, bahan tambah (additives) dan pengisi. Disebabkan bahan siap polimer terdiri dari pelbagai bahan campuran maka struktur morfologi dalamannya terdiri daripada multifasa. Keserasian antara fasa polimer “alloy” dan perekatan antara permukaan polimer komposit akan bertindak sebagai penentu sifat-sifat fizikal dan pencapaian sesuatu produk akhir tersebut [Plueddemann, 1974].

Sebagai contoh, bagi polimer komposit yang mengandung pengisi tak organik yang tinggi, sempadan antara permukaan di dalam komposit biasanya menjadi titik kegagalan. Agen pengkupel digunakan dan direkabentuk supaya dapat bertindak sebagai jambatan untuk memperbaiki ketidakserasian di antara permukaan polimer .

a) Sifat-sifat tensil.

Rajah 4.4.9 menunjukkan kekuatan tensil sebatian PP semakin berkurangan dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan yang digunakan pada semua peratusan APT. Ia juga menunjukkan kekuatan tensil meningkat dengan penambahan APT tetapi mula menurun apabila jumlah APT mencapai 0.8%. Corak graf yang sama ditunjukkan pada 10, 20, dan 30 p.h.r. Hanya penambahan 40 p.h.r tidak menunjukkan sebarang perubahan dengan peningkatan peratusan APT.



Rajah 4.4.9 Kesan APT terhadap kekuatan tensil sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan

Bagi pengisi bergentian biasanya kekuatan tensil dapat diperbaiki dengan penambahan jumlah pengisi kerana gentian dapat menampung tegasan dan seterusnya menghantarnya kepada polimer. Walau bagaimanapun bagi pengisi yang mempunyai bentuk yang tidak menentu seperti KK, kekuatan komposit akan berkurang dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan kerana pengisi tidak dapat menampung tegasan bagi menghantarnya kepada matrix polimer [Bigg, 1987]. Pemerhatian ini juga selaras dengan pemerhatian yang diperolehi oleh Maiti et al yang menggunakan KK yang tak di rawat dan KK yang dirawat di dalam komposit PP [Maiti et al, 1991].

Penambahan pengisi tak bergentian seperti KK juga menghasilkan rintangan terhadap pergerakan molekul [Bajaj, 1989 & Arroyo, 1994]. Rintangan yang terbentuk

menyebabkan rantai molekul polimer tidak dapat menggelungsur di antara satu sama lain. Semakin tinggi jumlah KK semakin tinggi rintangan terhadap pergerakan molekul, ini menyebabkan apabila tegasan tensil dikenakan sebatian PP tidak dapat merubah bentuk dan seterusnya menjadikannya mudah putus. Oleh itu semakin tinggi jumlah KK maka kekuatan tensil menjadi semakin lemah seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 4.4.9.

Peningkatan APT menyebabkan semakin banyak tindak balas pengisi – matrix terhasil yang meningkatkan perekatan antara permukaan pengisi dengan matrix. Oleh itu pembentukan “voids” atau lubang halus semakin berkurangan [Wake, 1971]. Ini meningkatkan kekuatan tensil sebatian PP [Chiang & Hu, 1999]. Ini ditunjukkan oleh corak Graf 4.4.9 pada APT tidak melebihi 0.8%.

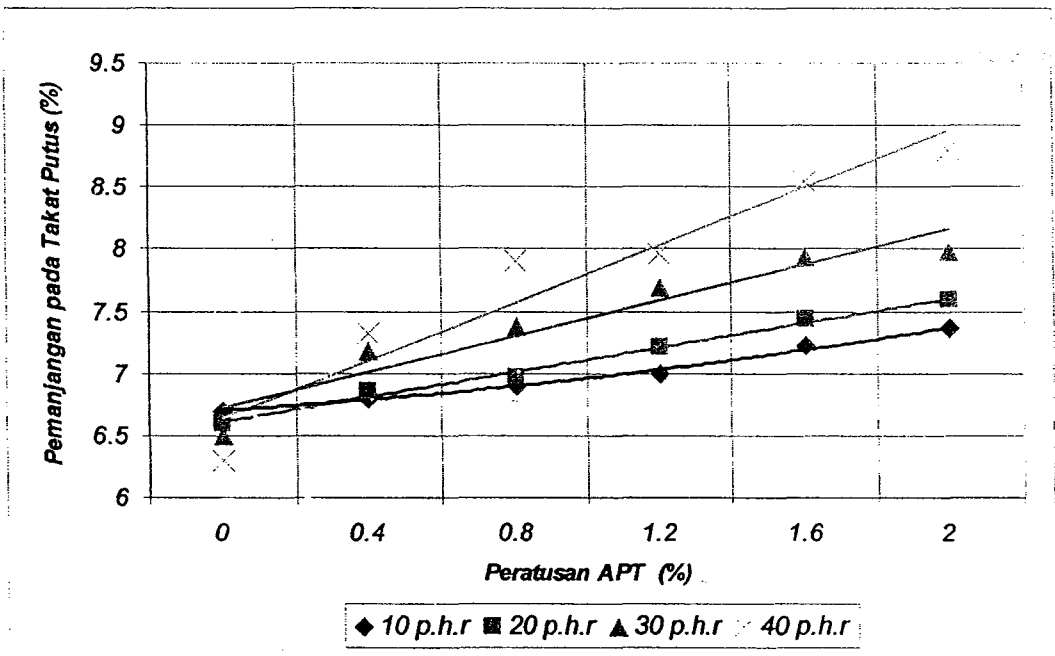
Walau bagaimanapun apabila nilai APT melebihi 0.8%, peningkatan kekuatan tensil, tidak berlaku lagi. Walaupun perekatan antara pengisi-matrix terus meningkat namun dengan jumlah APT yang semakin tinggi menyebabkan sifat pemplastik APT dan minyak DOP menjadi semakin dominan. Kesan pemplastikan ini menyebabkan kekuatan tensil semakin lemah dengan peningkatan peratusan APT seperti mana yang ditunjukkan oleh Rajah 4.4.9 pada APT melebihi 0.8%.

Pada penambahan KK 40 p.h.r., penambahan APT tidak memberikan sebarang kesan terhadap kekuatan tensil sebatian PP. Ini mungkin disebabkan penambahan KK pra-rawatan yang terlalu tinggi menyebabkan kesan perekatan di antara pengisi-matrix dan pemplastikan APT tidak dapat berfungsi dengan baik.

Kekuatan pemanjangan pada takat putus menunjukkan darjah penukaran sifat rapuh kepada liat semasa sebatian plastik mengalami perubahan bentuk (deformation) sebagai mana yang dicadangkan oleh Wu [1985]. Ikatan yang lemah di antara pengisi-

matrix akan menghasilkan pemanjangan pada takat putus yang tinggi kerana ikatan yang lemah ini mudah putus dan mencukupi untuk sebatian PP merubah bentuk sebelum ia putus.

Rajah 4.4.10 menunjukkan kekuatan pemanjangan pada takat putus semakin meningkat dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan dan peningkatan peratusan APT. Hanya KK yang tak di rawat iaitu pada 0% menunjukkan kekuatan pemanjangan takat putus berkurang dengan peningkatan jumlah pengisi.



Rajah 4.4.10 Kesan APT terhadap pemanjangan pada takat putus sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan

Semakin tinggi jumlah KK pra-rawatan, kesan pembasahan resin PP terhadapnya semakin berkurangan. Pengurangan kesan pembasahan ini menyebabkan ikatan pengisi dan matrix menjadi semakin lemah. Keadaan ini menyebabkan ikatan

pengisi-matrix lebih mudah putus dan mencukupi bagi sebatian PP merubah bentuk sebelum ia putus.

Kebolehan merubah bentuk (deformation) menyebabkan pemanjangan pada takat putusnya akan menjadi semakin tinggi. Oleh itu semakin tinggi jumlah KK prawatan maka semakin tinggi kekuatan pemanjangan pada takat putus sebatian PP pada semua peratusan APT sebagaimana yang dipamirkan oleh Rajah 4.4.10.

Walau bagaimanapun bagi KK yang tidak dirawat iaitu pada APT 0%, pemanjangan takat putus semakin menurun dengan peningkatan jumlah KK. Keadaan ini berlaku kerana sebatian PP berubah dari keadaan liat kepada rapuh. Ini disebabkan oleh ketiadaan pemplastik.

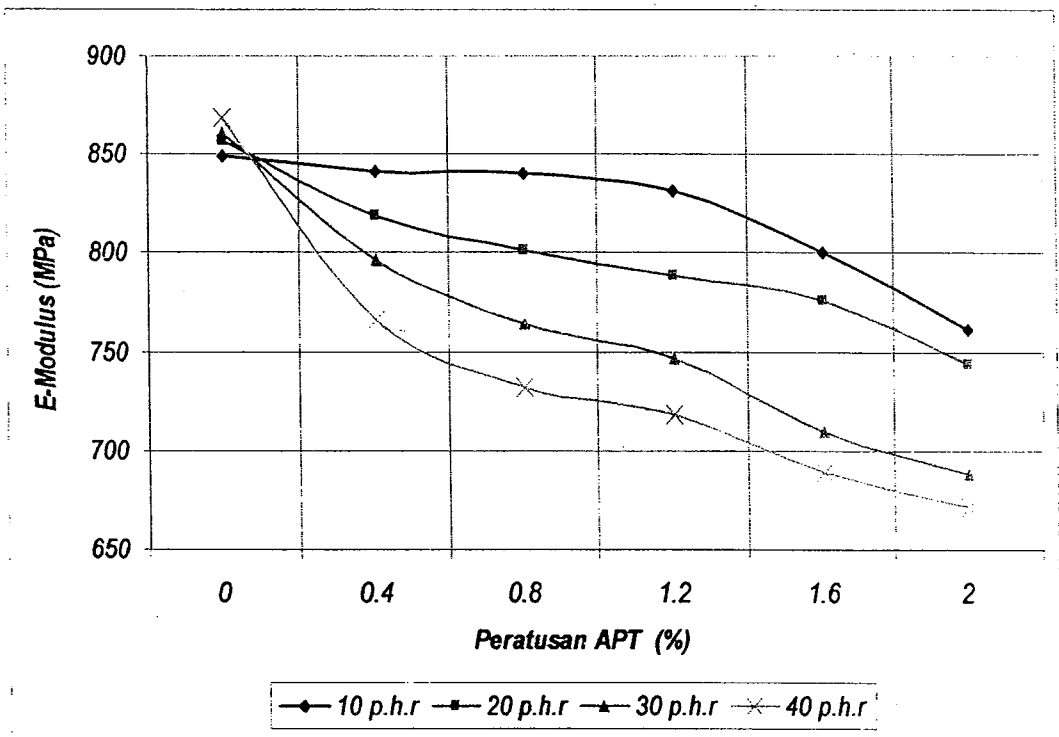
Perubahan sebatian PP berpengisi KK dari liat kepada rapuh menyebabkan ia tidak dapat berubah bentuk apabila bebanan dikenakan. Keadaan ini menyebabkan sebatian PP akan mudah patah, iaitu pemanjangan takat putus berkurang.

Rajah 4.4.10 juga menunjukkan kekuatan pemanjangan pada takat putus semakin meningkat dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK prawatan. Keadaan ini berlaku disebabkan oleh kesan pemplastikan yang terhasil dari rawatan yang dilakukan dengan APT terhadap KK [Ai Wah, 2000]. Semakin tinggi peratusan APT maka semakin besar kesan pemplastikan. Ini menyebabkan kekuatan pemanjangan pada takat putus semakin tinggi.

Bagi kekuatan modulus pula, ia diukur sebelum sesuatu plastik mengalami sebarang perubahan bentuk yang ketara, yang bermaksud ia tidak mengambil kira interaksi di antara pengisi dengan matrix polimer. Oleh itu peningkatan modulus PP adalah disebabkan oleh dua faktor iaitu penggantian resin PP dengan pengisi yang lebih

tegar atau keras dan rintangan terhadap mobiliti rantai polimer yang terhasil dari penambahan pengisi.

Seperti yang telah diketahui, penambahan APT akan memberikan kesan pemplastikan terhadap sebatian PP. Kesan pemplastikan ini akan mengurangkan rintangan mobiliti rantai polimer yang seterusnya mengurangkan kekuatan E-modulus sebatian PP. Oleh itu semakin tinggi peratusan APT maka semakin rendah E-modulus sebatian PP seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 4.4.11. Kesan yang sama dipamirkan pada semua jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r.



Rajah 4.4.11 Kesan APT terhadap kekuatan E-modulus sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan

Di samping rajah ini juga menunjukkan kekuatan E-modulus yang semakin berkurangan dengan penambahan KK pra-rawatan pada semua jumlah APT kecuali pada APT 0% iaitu KK yang tidak dirawat.

Bagi KK yang tidak dirawat keputusan yang diperolehi adalah selaras dengan jangkaan bahawa penambahan partikel pengisi akan meningkatkan ketegaran matrix plastik yang seterusnya meningkatkan E-modulus sebatian PP [Rubin, 1990]. Oleh itu semakin tinggi jumlah pengisi maka sebatian PP menjadi semakin tegar dan seterusnya menyebabkan E-modulus semakin rendah.

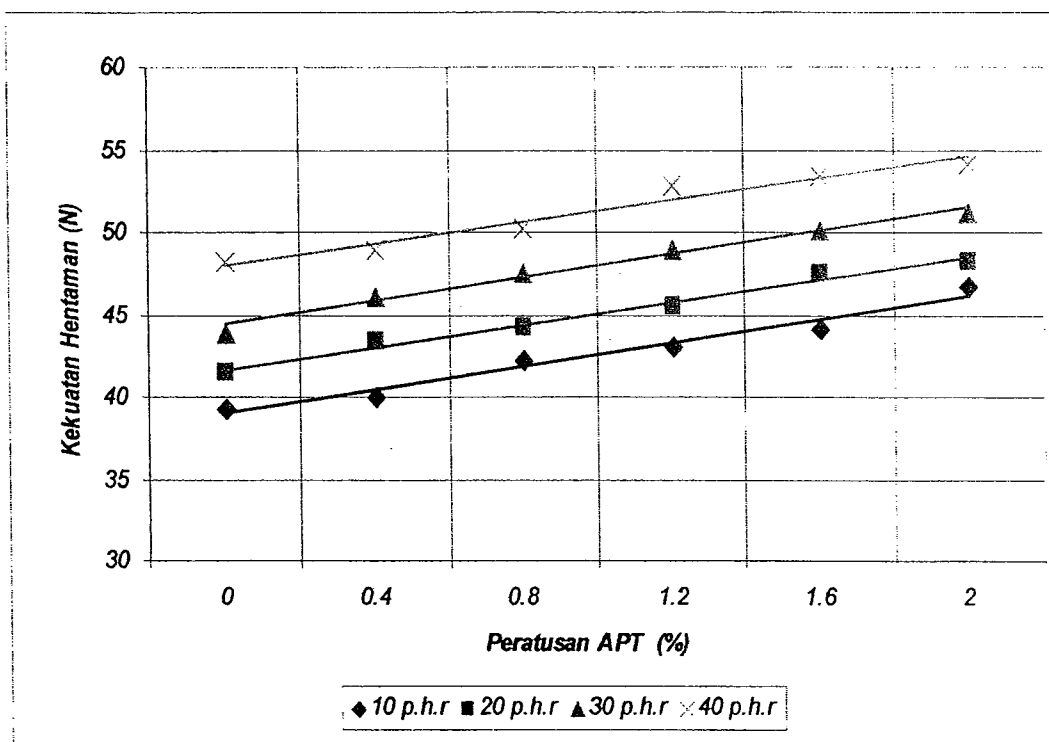
Bagaimanapun apabila KK dirawat dengan APT maka keadaan sebaliknya berlaku dimana E-modulus semakin meningkat dengan penambahan KK pra-rawatan. Keadaan ini wujud mungkin disebabkan oleh kesan pra-rawatan yang dilakukan dengan APT yang mungkin meningkatkan mobiliti rantai polimer di dalam sebatian PP.

Di samping itu kehadiran pemplastik minyak DOP juga menyebabkan mobiliti rantai semakin meningkat. Peningkatan mobiliti rantai menyebabkan sebatian PP semakin kenyal (fleksibel) dan seterusnya meningkatkan E-modulus sebatian PP tersebut.

b) Sifat-sifat hentaman

Telah diketahui umum, KK dapat memberikan kekuatan hentaman yang amat baik berbanding dengan pengisi yang lain [Rubin, (1990)]. Ini selaras dengan penemuan Leong [2003], yang mendapati KK merupakan pengisi yang terbaik untuk memperbaiki kekuatan hentaman sesuatu sebatian plastik. Oleh itu semakin tinggi jumlah KK ditambah maka semakin tinggi kekuatan hentaman seperti yang dipamirkan

oleh Rajah 4.4.13 dimana peningkatan kekuatan hentaman ini berlaku pada semua peratusan APT.



Rajah 4.4.13 Kesan APT terhadap kekuatan hentaman sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan

Rajah 4.4.13 juga menunjukkan kekuatan hentaman sebatian PP meningkat dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r. Peningkatan ini berlaku disebabkan oleh perekatan antara permukaan yang semakin baik dan kesan pemplastikan yang semakin meningkat telah menghasilkan sebatian PP yang liat. Peningkatan keliatan ini menyebabkan kekuatan hentaman meningkat [Demjen (1998), Alonso (1997)].

Rajah 4.4.13 juga menunjukkan kekuatan hentaman sebatian PP meningkat dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r. Peningkatan ini berlaku disebabkan oleh perekatan antara permukaan yang semakin baik dan kesan pemplastikan yang semakin meningkat telah menghasilkan sebatian PP yang liat. Peningkatan ketiadaan ini menyebabkan kekuatan hentaman meningkat [Demjen (1998), Alonso (1997)].

4.4.3 Sifat-sifat termal

Penggunaan teknik termoanalitikal semakin banyak digunakan untuk mengkriteriakan sesuatu polimer, iaitu pengukuran suhu yang bersandarkan kepada sifat-sifat mekanikal atau fizikal dan dikaitkan dengan strukturnya [Bark & Allen, 1982].

Analysis termal merupakan satu siri teknik yang digunakan untuk mengukur perubahan fizikal atau sifat-sifat reaktif sesuatu bahan yang bersandarkan kepada suhu dan masa [Korshark, 1970]. Ia menghasilkan satu informasi yang unik yang mengkriteriakan sesuatu polimer, bahan kimia organik dan bukan organik, besi, kaca, seramik dan bahan-bahan lain.

Kelebihan analisis termal jika dibandingkan dengan ujian pengkriteria yang lain ialah masa yang diperlukan untuk sesuatu ujian adalah pendek, saiz sampel yang kecil, penyediaan sampel yang minima, peralatan yang automatik, korelasi dengan sifat-sifat akhir yang mudah dan keputusan yang kuantitatif [Donald, 1991]. Teknik analisis termal boleh dibahagikan kepada "Differential Scanning Calorimetry"(DSC), "Thermal Gravimetric Analysis" (TGA), "Thermomechanical Analysis" (TMA) dan "Dynamic Mechanical Analysis" (DMA).

4.4.3.1 DSC (Differential Scanning Calorimetry)

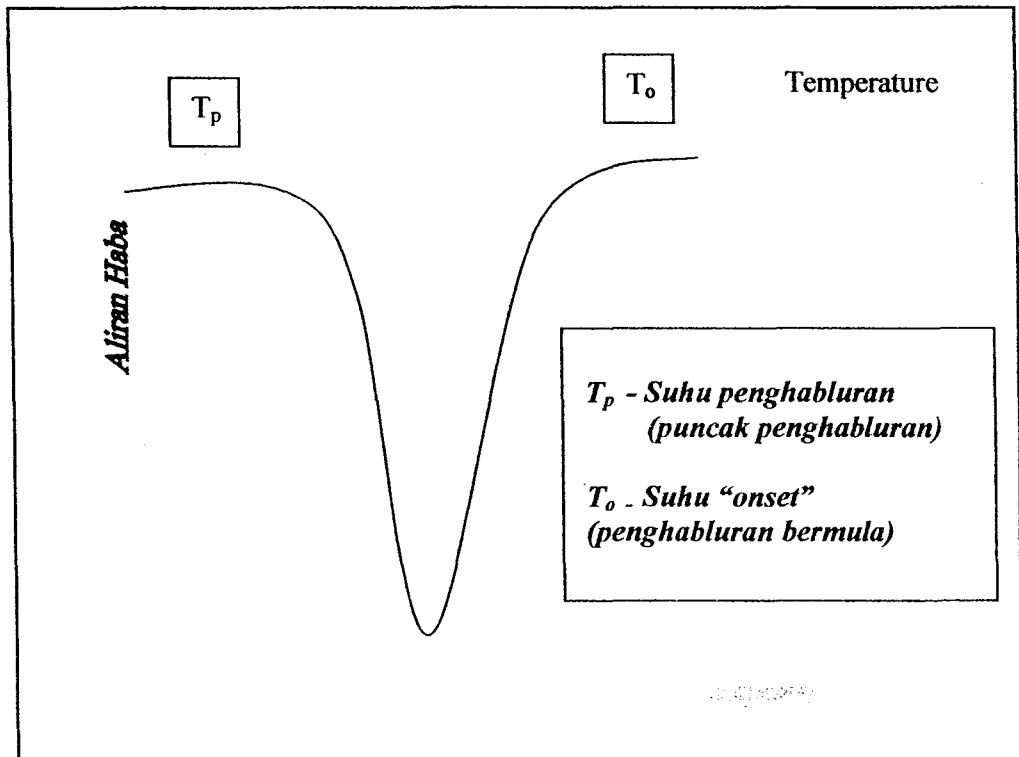
DSC merupakan teknik yang paling popular dalam termal analisis untuk mengkriteriakan bahan polimer. Oleh itu ia dipilih untuk penyelidikan ini. Dalam teknik DSC aliran haba yang masuk dan keluar dari sesuatu sampel akan diukur. Pengukuran ini dapat menghasilkan data yang amat penting bagi menentukan kadar penghabluran, peratusan penghabluran, suhu peralihan kaca (T_g), suhu takat lebur dan haba spesifik [Korshark, 1970].

a) Penghabluran

Penggunaan DSC merupakan teknik yang tepat dan paling sesuai dalam menentukan penghabluran sesuatu polimer [Lee, 1995 & Ferrage et al, 2002].

Penghabluran sesuatu polimer akan mempengaruhi sifat mekanikalnya.

Rajah 4.1.13 menunjukkan kurva yang terhasil apabila sesuatu sampel diuji dengan DSC. Kurva ini menunjukkan suhu penghabluran sesuatu sampel.



Rajah 4.4.13 Kurva DSC menunjukkan suhu penghabluran

Jadual 4.4.3 menunjukkan T_o iaitu suhu dimana penghabluran bermula, meningkat dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan pada semua peratusan APT. Sebaliknya T_o berkurang dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan.

Jadual 4.4.3 Suhu “onset” penghabluran bagi sebatian PP pada pelbagai jumlah KK pra-rawatan dan peratusan APT.

Jumlah KK berpenglitup (p.h.r)/ Peratusan APT (%)	Suhu “onset” penghabluran (T_o) ($^{\circ}\text{C}$)			
	10 p.h.r	20 p.h.r	30 p.h.r	40 p.h.r
0	99	100	101	102
0.4	98	98	97	99
0.8	96	96	96	96
1.2	95	96	96	96
1.6	95	95	95	95
2.0	94	95	95	95

Ini menunjukkan bahawa penambahan KK pra-rawatan mempercepatkan proses penghabluran. Ini kerana penambahan pengisi seperti menyediakan “nucleus” bagi merangsang proses penghabluran sebatian PP. Semakin tinggi jumlah KK maka semakin banyak tapak bagi proses penghabluran bermula maka semakin cepat proses penghabluran berlaku.

Sebalik penambahan APT melambatkan proses penghabluran. Ini mungkin disebabkan proses penglitupan dengan APT mengurangkan “nucleus” bagi merangsang proses penghabluran sebatian PP. Semakin tinggi proses penglitupan maka semakin kurang tapak untuk proses penghabluran berlaku maka semakin lambat proses penghabluran berlaku.

T_p iaitu suhu penghabluran juga menunjukkan kesan yang sama seperti T_o iaitu T_p meningkat dengan penambahan KK pra-rawatan pada semua peratusan APT dan

berkurang dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan.

Keadaan ini ditunjukkan oleh Jadual 4.4.4.

Jadual 4.4.4 Suhu penghabluran sebatian PP pada pelbagai peratusan APT dan KK pra-rawatan.

Jumlah KK berpenglitup (p.h.r)/ Peratusan APT (%)	Suhu penghabluran (T_p) ($^{\circ}\text{C}$)			
	10 p.h.r	20 p.h.r	30 p.h.r	40 p.h.r
0	91.11	93.65	95.09	96.29
0.4	89.96	91.02	92.22	93.32
0.8	88.8	89.31	89.79	90.35
1.2	88.52	88.81	89.17	89.58
1.6	88.19	88.62	89.13	89.65
2.0	87.87	88.34	88.86	89.39

Peningkatan T_p juga menunjukkan proses “nucleation” sedang berlaku dimana bagi kes ini “nuclei heterogeneous” yang merangsang proses penghabluran di dalam matrix PP. “Nuclei heterogeneous” merupakan “nuclei” yang berasal dari bahan luaran iaitu bukan dari polimer plastik tersebut. Bagi kes ini “nuclei” adalah KK pra-rawatan.

Pemerhatian yang dilakukan juga menunjukkan perbezaan di antara T_p dan T_0 semakin berkurangan dengan penambahan KK pra-rawatan. Pengurangan perbezaan T_p dan T_0 bermakna penghabluran turut berkurang.

Penemuan ini adalah bertentangan dengan penemuan yang diperolehi oleh Alonso et al [1993] yang melaporkan bahawa penghabluran meningkat dengan

penambahan pengisi bagi sistem PP berpengisi talc. Keadaan ini berlaku disebabkan oleh pra-rawatan yang dilakukan terhadap KK. Kehadiran APT sebagai penglitup menyebabkan penghabluran semakin berkurangan dengan penambahan KK pra-rawatan.

b) Haba spesifik

Menentukan kapasiti haba spesifik dengan menggunakan DSC adalah penting dalam analisis termal. Kapasiti haba adalah sifat dalaman sesuatu bahan. Ia bermakna tenaga yang diperlukan bagi satu unit bahan untuk meningkatkan suhu sebanyak 1°C. Setiap bahan mempunyai haba spesifik. Jika tidak berlaku pertukaran fasa atau sebarang tindak balas, haba spesifik adalah positif dan berubah dengan suhu [Galanski, 1990].

Haba spesifik peleburan ialah sejumlah haba yang diperlukan untuk meleburkan sesuatu polimer. Nilai ini adalah ukuran relatif kepada jumlah penghabluran didalam polimer [Steven, 1998]. Oleh itu ukuran haba peleburan spesifik adalah relatif kepada T_g sesuatu sebatian plastik.

Jadual 4.4.5 menunjukkan haba spesifik peleburan sebatian PP berpengisi KK berkurang dengan peningkatan jumlah APT pada semua jumlah KK pra-rawatan. Sebaliknya ia meningkat dengan peningkatan jumlah KK pra-rawatan pada semua peratusan APT.

Jadual 4.4.5 Haba spesifik peleburan sebatian PP pada pelbagai peratusan APT dan KK pra-rawatan.

Jumlah KK berpenglitup (p.h.r)/ Peratusan APT (%)	Haba Spesifik Peleburan (J/g)			
	10 p.h.r	20 p.h.r	30 p.h.r	40 p.h.r
0	104.02	103.99	103.97	103.95
0.4	100.27	98.76	96.85	94.33
0.8	97.17	94.38	87.63	84.72
1.2	96.73	90.97	82.56	73.68
1.6	95.38	84.25	73.52	62.53
2.0	95.18	83.65	68.17	54.77

Dapat juga diperhatikan bahawa semakin tinggi peratusan APT semakin besar pengurangan tenaga spesifik peleburan yang dialami oleh sebatian PP. Contohnya pada peratusan APT 0.4% dan jumlah KK pra-rawatan berkurang dari 30 kepada 40 p.h.r, pengurangan tenaga spesifik peleburan sebatian PP ialah 2.52 J/g tetapi pada peratusan APT 2.0%, pada jumlah KK pra-rawatan yang sama pengurangannya ialah 13.4 J/g. Ini menunjukkan semakin tinggi peratusan APT maka pengurangan tenaga yang diperlukan untuk meleburkan sebatian PP semakin besar.

Sepatutnya tenaga peleburan spesifik sebatian PP semakin meningkat dengan penambahan jumlah KK pra-rawatan kerana penambahan KK pra-rawatan akan meningkatkan penghabluran di dalam sebatian PP . Ia menjadikan sebatian PP semakin tegar kerana kehadiran pengisi akan menghalang pergerakan rantai polimer sebatian

PP. Disebabkan tenaga ini ukuran relatif kepada penghabluran maka ia turut meningkat dengan peningkatan KK pra-rawatan.

Walau bagaimanapun dari pemerhatian yang dilakukan ini tidak berlaku, sebaliknya tenaga spesifik peleburan semakin berkurangan dengan penambahan KK pra-rawatan. Keputusan ini menyokong pemerhatian yang dilakukan dalam topik penghabluran di mana kesan yang sama diperolehi iaitu penghabluran semakin berkurang dengan penambahan KK pra-rawatan.

Penambahan APT juga menyebabkan jumlah tenaga peleburan semakin berkurang dengan peningkatan peratusan APT. Ini kerana salah satu fungsi APT ialah ia boleh bertindak seperti pemplastik. Sifat pemplastik ini akan melembutkan sebatian PP. Apabila takat melembutnya semakin berkurangan maka ia akan lebih mudah melebur. Ini menyebabkan tenaga yang diperlukan untuk meleburkan sebatian PP ini menjadi semakin berkurangan.

Pengurangan tenaga peleburan spesifik ini menunjukkan keliatan sebatian PP semakin meningkat dengan penambahan APT. Ini menyokong kenyataan yang dibuat bahawa keliatan semakin meningkat dengan penambahan APT sebagaimana yang telah dibincangkan dalam Bab 4.4.2. yang menyatakan bahawa peningkatan keliatan menyebabkan kekuatan pemanjangan takat putus dan kekuatan hentaman semakin meningkat dengan peningkatan jumlah APT.

5.0 KESIMPULAN DAN PENUTUP

Tujuan utama kajian ini dijalankan ialah untuk melihat kesan agen pengkupep titanat multifungsi terhadap sebatian PP berpengisi kalsium karbonat. Secara keseluruhan terdapat dua kesan penambahan APT yang utama iaitu APT meningkatkan perekatan antara permukaan pengisi dan matrix plastik dan APT memberikan kesan pemplastikan atau pelincir dalaman terhadap sebatian PP.

Peningkatan perekatan antara permukaan permukaan pengisi dan matrix plastik dapat diperhatikan dengan jelas dengan menggunakan kaedah pencampuran pra-rawatan melalui peningkatan sifat-sifat mekanikal pada APT tidak melebihi 1.2%. Kekuatan hentaman dengan menggunakan kaedah pra-rawatan pula didapati meningkat dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r. Sebaliknya penggunaan kaedah pencampuran terus tidak dapat memberikan perekatan yang baik disebabkan oleh masalah penyebaran yang tidak baik dan pembentukan gumpalan. Ini dibuktikan oleh mikrograf SEM yang diambil dari sampel yang mengalami kepatahan semasa ujian tensil dijalankan.

Kesan pemplastikan didalam sebatian PP pula diperhatikan melalui perosotan sifat-sifat mekanikal pada APT melebihi 1.2%. Kesan ini diperhatikan dengan penggunaan kedua-dua kaedah iaitu samada kaedah pencampuran terus ataupun

kaedah pra-rawatan. Kesan pemplastikan juga diperhatikan dalam kaedah pra-rawatan melalui penurunan torque pemprosesan dan peningkatan kekuatan hentaman.

Keadaan ini menunjukkan APT mempunyai sifat pemplastik. Ini kerana walaupun tiada DOP dalam pencampuran secara terus kesan pemplastikan masih dipamirkan oleh sebatian PP

Kesan pemplastikan juga dapat diperhatikan pada sifat-sifat termal sebatian PP. Kesan pemplastikan ini menyebabkan penghabluran sebatian PP tidak meningkat dengan penambahan KK pra-rawatan pada semua peratusan APT sebaliknya pengurangan penghabluran diperhatikan. Pengurangan penghabluran menjadi semakin ketara pada peratusan APT yang tinggi. Kesan ini juga menyebabkan penghabluran semakin berkurangan dengan peningkatan peratusan APT pada semua jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r.

Penggunaan kaedah pencampuran yang berbeza menunjukkan penggunaan kaedah pra-rawatan KK adalah lebih efektif berbanding dengan kadah pencampuran terus. Ini kerana kaedah pra-rawatan dapat memberikan penyebaran yang lebih baik dengan meminimakan pembentukkan gumpalan. Penyebaran yang lebih baik ini dibuktikan oleh mikrograf kedua-dua teknik pencampuran.

Di samping itu kaedah pra-rawatan juga memudahkan pemprosesan dan memberikan sifat-sifat mekanikal yang lebih baik berbanding dengan kaedah pencampuran terus. Pemprosesan sebatian PP menjadi semakin senang dapat diperhatikan melalui pengurangan penggunaan tenaga semasa proses penyebatian di lakukan.

Kajian ini juga menunjukkan bahawa penambahan jumlah KK pra-rawatan iaitu 10, 20, 30 dan 40 p.h.r menyebabkan proses pencampuran menjadi semakin

sukar dan sifat mekanikal semakin merosot. Proses pencampuran menjadi semakin sukar ditunjukkan oleh penggunaan tenaga yang tinggi untuk menjalankan proses penyebatian PP pada semua peratusan APT. Ini kerana penambahan pengisi akan menghalang pergerakan rantai molekul yang menghasilkan rintangan terhadap aliran polimer semasa proses penyebatian dilakukan.

Sifat mekanikal plastik PP pula semakin merosot dengan penambahan KK pra-rawatan kerana KK pra-rawatan atau pengisi tak bergentian menyebabkan rintangan terhadap pergerakan molekul semakin meningkat. Ini menyebabkan molekul polimer tidak dapat menggelungsur diantara satu sama lain apabila tegasan dikenakan. Ini menyebabkan sifat-sifat mekanikalnya merosot.

Secara keseluruhannya penggunaan APT dapat meningkatkan sifat-sifat mekanikal dan memudahkan pemprosesan dengan menggunakan kaedah pra-rawatan dan penggunaannya tidak boleh melebihi 1.2%.

6.0 KAJIAN LANJUTAN

Kajian yang dapat dijalankan pada masa akan datang ialah menggunakan agen pengkupel lain atau yang terbaru untuk memperbaiki keserasian di antara KK dengan plastik PP. Penggunaan “wax” bersama-sama dengan agen pengkupel pada nisbah yang berbeza juga boleh dicuba kerana “wax” juga dapat meningkatkan keserasian di antara matrix plastik dengan pengisi KK. Di samping itu penggunaan “wax” juga boleh mengurangkan kos barang siap kerana harganya lebih murah berbanding dengan APT.

Selain daripada “wax”, asid sterik yang telah lama digunakan sebagai penglitup KK juga boleh digunakan dengan agen pengkupel atau “wax” untuk meningkatkan keserasian di antara PP dan KK. Telah diketahui umum bahawa asid sterik mempunyai keserasian yang baik dengan KK, melalui penambahan APT diharapkan keserasian dengan PP dapat ditingkatkan.

Di samping itu penggunaan agen pencairan yang berlainan, selain DOP juga dapat memastikan kesan sebenar APT. Kebanyakan pencair juga bertindak sebagai agen pemplastikan, pelincir luaran dan juga pelincir dalaman. Oleh itu penggunaan setiap agen pencairan akan memberikan kesan yang berlainan terhadap keserasian, pemprosesan dan sifat-sifat mekanikal sebatian PP.

RUJUKAN

- Ablazova TI, Tsebrenko MV, Yudin AV, Vinogrov GV, Yarlykov BV, (1975). *J Appl Polymer Sci* 19:1781.
- Alonso M., Gonzales A., de Saja J.A., Requejo A, (1993). On the Morphology of Compression- Moulded Isotactic Polypropylene Filled with Talc. *Plast. Rubber Comp. Process Appl.*, 3, 163-168.
- Alonso M., Velasco J.I., de Saja J.A., (1997), Constrained crystallization and activity of filler in surface modified talc polypropylene composites. *European Polymer Journal*, 33, 255-262.
- Arroyo, M. Sanchez, M. and Vigo J. (1994), Effect of talc surface treatment on the mechanical properties of composites based on PP /LDPE blend matrices *Polym. Eng. Sci.* 31 p. 245-252.
- Bajaj P., Jha N.J. and Rajiv K. (1989). Effect of titanate coupling on mechanical properties of mica-filled PP. *Polym Eng. Sci.* 29 p. 557-563.
- Bigg , D.M., (1987) Mechanical Properties of Particulate Filled Polymer. *Polym. Composites* p. 115-122.
- Bark L.S. & Allen N.S. (1982), *Analysis of Polymer System*. Applied Science Publisher Ltd London.
- Bosshard A.W. & Dr. Schlumpf (1983) Filler and Reinforcements. In: *Plastics Additives Handbook*,(Edited by Gachter and H. Muller) 2nd Edition Carl Hanser Verlag, Munich, p. 397-400.
- Brydson J.A. (1982). *Plastics Materials (5th Edition)* Butterworth Scientific.

- Brydson J.A (1981). *Flow Properties of Polymer Melts 2nd edition*. London : George Godwin (chapter 3&4)
- Bucher, R.A and Hinkky, J.A. (1992). Fiber /Matrix Adhesion in Graphite /PEEK Composites. *Journal Thermoplastic Comp. Mater.* , 5, 2 – 13.
- Chiang, W.Y., Hu, C.H. (1999), The relationship between molecular structure and the affect of coupling agents in flame-retardant ABS blends. *European Polymer Journal* (1295-1303).
- Chuah A.W., Leong Y.C., Gan S.N. (1999), Effect of Titanate Coupling Agent on Rheological Behaviour, Dispersion Characteristics and Mechanical Properties of Talc Filled Polypropylene. *European Polymer Journal* 36 (2000) 789-801
- Coran A.Y, Patel R (1981). *Rubber Chem Technol* 54:91.
- Coran A.Y, Patel R (1981). *Rubber Chem Technol* 54:892.
- Croze G.P., Glatti F., Rippa R., Vidotto G. (1985). Interaction Between Polyvinylchloride Resins and Di-2-Ethylhexyphthalate. *Journal of Vinyl Technology*. Vol 7, No. 4.
- David B.T. (1998). *Plastics Compounding Equipment & Processing* (Edited by David B.T.) Chapter 1. Hanser Publisher, Munich.
- Demjen Z. (1997). Modification of interfacial interaction with trialkoxyfunctional silane compounds in polypropylene-CaCO₃ composites. *PhD thesis, Technical University of Budapest*, 65-82.
- Donald V.R., david P.D., Dominick V.R. (1991), *Designing with Plastics and Composites : A Handbook*. Van Nostrand Reinhold New York.
- Ferrage E., Martin F., Boudet A., Petit S., Fourty G., Jouffret F., Micoud P., De Parseval P., Salvi S., Bourgerette C., Ferret J., Saint-Gerard Y., Buratto S., Fortune J.P. (2002). Talc as Nucleating Agent of Polypropylene : Morforlogy Induced by Lamellar Particles Addition and Interface Mineral-matrix Modelization. *Journal Of Material Science*, 37, 1561-1573.
- Frank H.P (1969). *Polypropylene*. McDonald Technical & Scientific, London.

- Flot VL, Smith RW (1973). *Rubber Chem Technol* 46 : 1193.
- Fuad M.Y.A., Rahmad S.(1993), Rice Ash As Filler in Polypropylene Effect of Wax & Silane Coupling Agent. *Plastics, Rubber & Composites Processing & Applications* 21 p. 225-235.
- Fuad M.Y.A., Rahmad S., Application of Rice Husk Ash as Fillers in Polypropylene: Effect Titanate, Zirconate and Silane Coupling Agent. *Eur. Polym. J. Vol (3)*
- Gachter R, Muller H.,(1987). *Plastics Additive Handbook* Munnich, Vienna, New York: Hanser (chapter 5)
- Galenski, A. (1990). Toughening of Crystalline Polyolefines Containing Particulate Fillers by Interface Modification. In *Controlled Interphases Modification. In Composites Materials.* (Ishida, H., ed.) p. 623-636. New York : Elsevier Science Publishing Co. Inc.
- Garcia J.C & Marcilla A. (1997). *Influence of the type of resin in the gelation and fusion processes of PVC plastisols.* Elsevier Science Ltd.
- George M (1982). *Polymer Mixing Technology.* Applied Science.
- Ghosh K. Maiti N. (1996) *J. Appli. Polym. Sci.* 60:323
- Gould R.W. & Player J.M. (1979), *Kunststoffe*, 69,7.
- Grossman, R.F. (1990). *Plastics Additives & Modifiers Handbook (edited by Edenbaum, J.)*, Chapter 75 Coupling Agent. Reinhold, New York.
- Guoguan W., Yiaotin C. (1991). *Polymer Testing*, 10, 315.
- Han C.D. (1981) *Multiphase flow in polymer processing.* New York : Academic Press.

- Han C.D., Van Den Weghe T., Shete P., Haw J.R., (1981). Effect of coupling agents on the rheological properties, processability and mechanical properties of filled polypropylene. *Polymer Engineering and Science*, 21, 196-204.
- Hawkins T.J. (1982). *Vinyl Tech* 4:116.
- Ingenieurruissen (1979). *Film, Woven & Nonwoven Fabrics Made from Polypropylene*. VDI-Verlag GmbH.
- Ishikawa M, Ushui K, Kondo Y (1996). *Polymer*; 24:5375.
- Jenkins A.D. (1972) *Polymer Science A Material Science Handbook, Vol 2*, North-Holland-Amsterdam, London..
- Katz H.S. & Milewski J.V. (1987), *Handbook of fillers for Plastics*. Van Nostrand Reinhold New York, 117-242.
- Kent Rich Manual [1985], *Titanate Effect on Inorganic Level*.
- Kent Rich Manual [1985], *Polyolefins Application Data*
- Kent Rich Manual [1985], *Titanate Coupling Agent*
- Kent Rich Manual [1985], *Titanate Dosage*.
- Khunova V., Hurst J., Janigova I., Smatko V., (1999). Plasma treatment of particulate composites for analyses by scanning electron microscopy, part II. A Study of Highly Filled Polypropylene / Calcium Carbonate Composites. *Polymer Testing*, 18, 501-509.
- King A. (1972). *Plasticisers, Stabilisers and Fillers (Edited by Ritchie P.D.)* chapter 18. Fillers. London.
- Kosior E.I. & Stachursk Z.H. (1986), The Effect of Polymethyl Methacrylate on the Fusion of Rigid Poly(vinyl Chloride). *British Polymer Journal*, Vol 18, No. 2
- Korshak V.V. (1970) *The Chemical Structure and Thermal Characteristic of Polymers*. Moskva.