

Sains Malaysiana 43(8)(2014): 1231–1237

Penyediaan dan Pencirian Nanokomposit Epoksi Berpenguat Getah Asli Terepoksida

(Preparation and Characterisation of Epoxidized Natural Rubber Reinforced Epoxy Nanocomposites)

SE YONG EH NOUM*, SAHRIM AHMAD, ROZAIDI RASID, YEW CHIN HOCK,
LEE YIP SENG & MOU'AD A. TARAWNEH

ABSTRAK

Komposit epoksi berpengisi hibrid OMMT (organo-montmorilonit) dan getah asli terepoksida (ENR) telah dihasilkan dengan menggunakan kaedah penyemperitan berskru kembar pusingan searah. Ujian regangan ke atas sistem epoksi yang dihasilkan menunjukkan modulus Young bagi komposit hibrid epoksi adalah lebih tinggi daripada resin tanpa pengisi dan nilai modulus didapati meningkat dengan peningkatan komposisi OMMT dalam matriks (setinggi 40% peningkatan). Hal ini dipercayai adalah disebabkan oleh sifat tegar lapisan MMT. Sementara itu, peningkatan luas permukaan kawasan antara fasa ekoran kehadiran fasa penambah didapati telah mengurangkan tegasan alah dan terikan akhir komposit hibrid yang dihasilkan. Pemeriksaan mikrostruktur komposit hibrid epoksi melalui TEM dan XRD mendedahkan taburan OMMT dalam matriks epoksi dengan susunan interkalasi dan pengelupasan. Analisis DSC ke atas sampel yang termatang menunjukkan bahawa T_g sistem komposit hibrid adalah rendah berbanding dengan sistem perduaan (E5B dan E5LE). Pengurangan ketumpatan taut silang disyaki merupakan punca penyusutan T_g ini.

Kata kunci: Getah asli terepoksida; komposit epoksi; organo-montmorilonit; penyemperitan berskru kembar

ABSTRACT

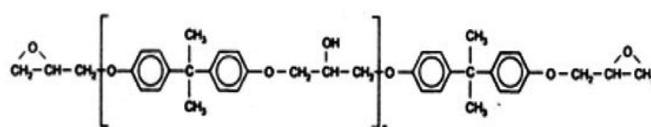
OMMT (organo-montmorillonite) and epoxidized natural rubber (ENR) filled epoxy hybrid composites were produced via co-rotating twin-screw extrusion technique. Tensile test on the epoxy composites systems shows that the Young's modulus of the epoxy hybrid composites were higher than the Young's modulus of unfilled epoxy and the value of the modulus were found to be increasing with the increase of OMMT composition in the matrix (exceeding 40% increment). This finding is believed to be attributed to the stiff characteristic of MMT. Meanwhile, the presence of fillers resulted in the decrement of yield stress and strain at break of the hybrid composites. Microstructure examination on the hybrid composites via TEM and XRD techniques showed that the distribution of OMMT in the matrix consist of intercalation and exfoliation. DSC analysis on the cured sample showed that the T_g of the hybrid system is lower than the binary system (E5B and E5LE). It was suggested that the decrement of the cross link density is the reason for the decline in T_g .

Keywords: Epoxidized natural rubber; epoxy composites; organo-montmorillonite; twin screw extruder

PENGENALAN

Resin epoksi, walaupun setelah dimatangkan, mempunyai kekuatan mekanik dan sifat lengai kimia yang tinggi, pemodifikasian terhadap resin ini merupakan subjek pengajian yang masih giat dijalankan. Pelbagai jenis agen modifikasi telah digunakan bagi mempertingkatkan prestasi sistem epoksi, antaranya getah sintetik dan getah asli (Hong & Wu 2000; Padmanabhan 2008), polimer termoplastik (Poisson et al. 1998), silika (Li et al. 2007) dan nanozarah (Frohlich et al 2004; Lim 2006).

Keupayaan resin epoksi dalam pengubahsuaian dengan pelbagai jenis agen pemodifikasi adalah disebabkan sifat kumpulan berfungsinya yang sedia dan mudah berinteraksi dengan fasa lain yang hadir dalam sistem. Rajah 1 menunjukkan struktur kimia resin epoksi (gred umum diglisidil eter bis-fenol A, DGEBA). Kumpulan berfungsi epoksida yang hadir pada akhir rantaian didapati dapat menghasilkan ikatan dengan bahan kimia lain seperti kumpulan hidroksil, beramina dan anhidrida (May & Tanaka 1973).



RAJAH 1. Struktur kimia resin epoksi DGEBA

Dalam pada itu, komposit epoksi berpenguat getah dan nanokomposit epoksi berpenguat tanah liat merupakan dua sistem komposit epoksi yang popular dalam kalangan para penyelidik. Komposit berpenguat getah dilaporkan mempunyai modulus simpanan yang tinggi (Thomas et al. 2007) dan ketahanan patahan dan kekuatan impak yang tinggi (Padmanabhan 2008). Bussi dan Ishida (1994) melaporkan kelebihan penggunaan getah asli terepoksida (ENR) sebagai agen peningkatkan ketahanan patah. Kehadiran kumpulan berfungsi epoksida meningkatkan kepolaran molekul getah justeru meningkatkan keserasian fasa penguat dengan fasa matriks. Namun begitu, beberapa laporan telah menunjukkan bahawa komposit epoksi berpenguat getah yang dihasilkan mempunyai kelemahan daripada segi sifat mekanik dengan kekuatan regangan dan modulus Young berkurangan dengan penambahan fasa getah ke dalam sistem tersebut (Barcia et al. 2003; Padmanabhan 2008). Sementara itu, selain agen penguat getah, bahan pengisi yang kian diterima adalah nanozarah tanah liat (OMMT). Nanokomposit yang terhasil dilaporkan mempunyai kekuatan regangan dan modulus Young yang tinggi di samping memperoleh sifat sawar gas dan kelembapan yang baik (Kim et al. 2004; Pinnavaia et al. 2000; Treece et al. 2007; Wang & Qin 2007; Wang et al. 2006). Peningkatan sifat fizik ini adalah lantaran nisbah aspek nanozarah tanah liat yang bernilai antara 100-1000 serta sifat ketegaran lapisan-lapisan tanah liat yang tinggi (Ha et al. 2007).

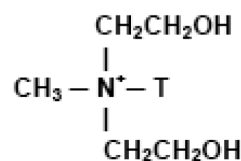
Tahap keberkesanan sesuatu nanokomposit bergantung kepada taburan mikrostruktur fasa penguat dalam matriksnya. Antara pendekatan yang digunakan bagi tujuan pengelasan taburan mikrostruktur pengisi nano adalah jarak di antara lapisan OMMT. Pengaglomeratan pengisi-nano tanah liat berlaku apabila lapisan OMMT masih berada dalam susunan berlapis asal dan jarak antara lapisan biasanya dalam lingkungan 1 nm. Pada keadaan dengan satu atau lebih rantaian polimer matriks berjaya meresap masuk ke dalam galeri ruang di antara lapisan OMMT, mikrostruktur ini dikenali sebagai struktur interkalasi dengan jarak di antara lapisan OMMT adalah dalam lingkungan 3-8 nm (Pinnavaia et al. 2000). Apabila lapisan tunggal silikat OMMT berselerak secara rawak dan seragam dalam matriks polimer, nanokomposit yang terhasil dikatakan mencapai tahap pengelupasan dan merupakan penyelerakan pengisi yang paling digemari. Pada tahap mikrostruktur ini, jarak di antara lapisan tunggal OMMT adalah besar dan tidak seragam dalam matriks. Fungsi proses penyemperitan nanokomposit polimer adalah untuk menyelerakkan pengisi nano daripada struktur pengaglomeratan bersaiz mikron sehingga ke tahap interkalasi dan pengelupasan. Proses ini merupakan suatu langkah pemrosesan yang mencabar dan kompleks kerana ia melibatkan penggandaan bilangan partikel yang tinggi iaitu daripada 10^9 ke 10^{11} sementara luas antaramuka di antara permukaan OMMT dengan polimer meningkat dalam penggandaan 10^5 .

Tujuan laporan penyelidikan ini adalah untuk membincangkan prestasi sifat mekanik dan sifat

morfologi nanokomposit epoksi yang disediakan melalui kaedah penyemperitan berskru kembar. Perkembangan mikrostruktur dikaji untuk memperoleh tahap keberkesanan kaedah penyemperitan dalam penghasilan nanokomposit. Pemerhatian mikrostruktur kemudiannya akan dikaitkan dengan sifat mekaniknya untuk mendapat gambaran yang lebih jelas mengenai kelakuan nanokomposit yang dihasilkan.

BAHAN DAN KAEDAH

Bahan kajian utama yang digunakan sepanjang penyelidikan ini adalah resin epoksi diglisidil eter bis-fenol A (DGEBA) bergred *epikote* 1004 yang diperolehi daripada syarikat Asachem (M) Sdn. Bhd. bersama dengan agen pematang yang setara *epikure* P104 (jenis disain-diamida). Getah asli terepoksida (ENR) bergred ENR-50 dipasarkan oleh RRM-Consult Corp. telah digunakan sebagai agen penguat getah dalam nanokomposit yang dihasilkan. Sementara itu, nanozarah tanah liat (OMMT) yang digunakan sebagai pengisi bersaiz nano adalah nanozarah tanah liat terawat dengan nama komersial *Cloisite* 30B yang diperolehi daripada Southern Clay (Malaysia) Sdn. Bhd (Rajah 2).



RAJAH 2. Struktur kimia MT2EtOH agen perawat permukaan nanozarah tanah liat *Cloisite* 30B. T merujuk kepada tallow dengan komposisi kimia 65% C¹⁸, 30% C¹⁶ dan 5% C¹⁴

Matriks epoksi dan agen pematang dicampurkan dengan menggunakan mesin pencampuran berkelajuan tinggi pada 1000 rpm untuk 30 min sebelum proses penyemperitan berskru kembar dijalankan. ENR cecair disediakan melalui proses pencairan kaedah foto-degradasi (Ibrahim & Zuriati 1989). Proses penyediaan sampel dijalankan dengan menggunakan kaedah penyemperitan berskru kembar pemusingan searah (Prism TSE 16PC/TC keluaran Thermo Scientific) dengan suhu penyemperitan 105°C, 108°C, 112°C dan 115°C masing-masing bagi 4 zon pemanasan. Bahan penyemperitan kemudiannya diacuankan kepada dimensi yang berpadanan dengan kaedah pencirian yang dilakukan. Sifat mekanik nanokomposit yang dihasilkan telah dikaji melalui kaedah ujian regangan dan ujian impak, dengan masing-masing mengikut standard ASTM D638 dan ASTM D256. Sampel nanokomposit yang terhasil kemudiannya diperhatikan di bawah pembesaran kuasa tinggi mikroskopi transmisi elektron (TEM) untuk mengkaji penyesaran OMMT dalam matrik epoksi serta kaitannya dengan sifat mekanik. Di samping itu, sampel nanokomposit juga dikaji dengan analisis pembelauan sinar-X (XRD) bagi memeriksa

tahap penyelerakan lapisan OMMT dalam matriks epoksi. Julat sudut analisis XRD adalah 2° ke 10°. Bagi tujuan pengajian sifat terma bahan, analisis kalorimetri imbasan pembedaan (DSC) telah dijalankan ke atas semua sampel. Kadar pengimbasan 10°C per minut digunakan dan julat pengimbasan adalah 25°C sehingga 200°C.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

Set bahan nanokomposit epoksi berpenguat getah asli terepoksida cecair disediakan mengikut perbezaan komposisi pengisi dalam matriks dan disenaraikan pada Jadual 1 di bawah.

UJIAN REGANGAN

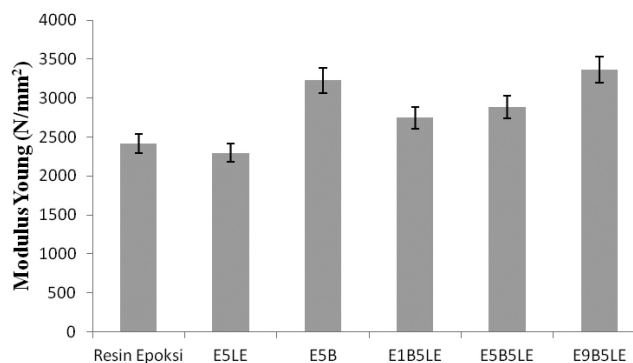
Ujian regangan telah dijalankan ke atas sampel nanokomposit epoksi yang dihasilkan sepanjang kajian ini. Daripada Rajah 3, didapati nanokomposit epoksi berpenguat getah asli terepoksida dan berpengisi nanozarah tanah liat (komposit hibrid) mewarisi sifat modulus Young yang tinggi daripada sistem perduaan nanokomposit epoksi. Membandingkan komposit hibrid E1B5LE, E5B5LE dan E9B5LE dengan resin epoksi kosong tanpa pengisi, peningkatan pada modulus yang diperhatikan masing-masing adalah 14%, 20% dan 40%. Corak perubahan modulus komposit hibrid dengan peningkatan komposisi OMMT ini adalah setara dengan hasil kerja yang dilaporkan oleh kumpulan penyelidik lain (Chozhan et al. 2007; Liu

et al. 2004; Mishra et al. 2007). Modulus Young komposit hibrid juga didapati meningkat dengan penambahan komposisi OMMT dalam matriks epoksi yang diperkuat dengan getah asli terepoksida. Antara satu pemerhatian yang menarik yang diperhatikan adalah modulus Young komposit hibrid yang berada pada perantaraan modulus bagi kedua-dua jenis komposit perduaan E5LE dan E5B. Pemerhatian ini merupakan indikasi yang pertama yang menunjukkan komposit hibrid yang dihasilkan berupaya mengumpulkan kelebihan bahan pengisinya dalam sistem komposit pertigaan.

Sementara itu, Rajah 4 menunjukkan keputusan tegasan alah komposit hibrid epoksi berbanding dengan resin epoksi tanpa pengisi dan sistem komposit perduaan. Daripada graf bar ini, sekali lagi didapati kemasukan fasa asing ke dalam matriks epoksi menyebabkan pengurangan daripada segi tegasan alah sistem komposit. Penyusutan ini turut dikaitkan dengan kehadiran fasa pengisi nanozarah OMMT dan penguat getah asli terepoksida yang turut mendatangkan ketaksempurnaan pada kawasan antara fasa. Ketaksempurnaan ini menyebabkan sistem komposit hibrid yang dihasilkan gagal pada beban yang lebih rendah daripada sistem epoksi tulen dan juga sistem komposit perduannya. Pemerhatian yang sama turut dilaporkan oleh Mishra et al. (2007). Di samping itu, terikan sampel sebelum patah telah ditunjukkan pada Rajah 5. Melihat kepada terikan sebelum patahan sampel komposit hibrid, didapati peratusan terikan menyusut dengan penambahan

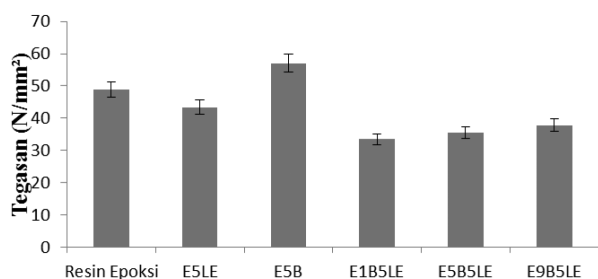
JADUAL 1. Kod sampel yang dihasilkan

Kod sampel	Peratusan berat (wt.%)		
	Resin epoksi	Getah asli terepoksida	OMMT
Resin Epoksi	100	-	-
E5LE	95	5	-
E5B	95	-	5
E1B5LE	94	5	1
E5B5LE	90	5	5
E9B5LE	86	5	9

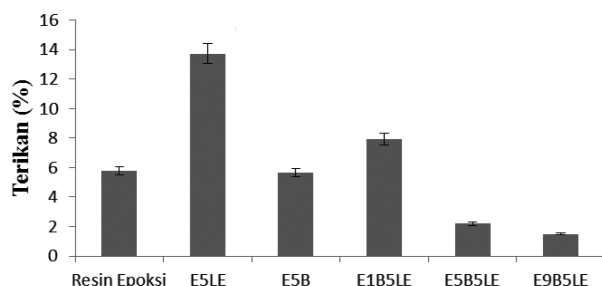


RAJAH 3. Modulus Young bagi sampel komposit epoksi

OMMT. Jika membandingkan komposit hibrid dengan resin epoksi tulin tanpa pengisi, didapati hanya sampel E1B5LE berupaya menunjukkan peratusan terikan yang lebih tinggi daripada resin epoksi manakala sistem komposit hibrid epoksi dengan komposisi nanozarah yang lebih tinggi menunjukkan peratusan terikan yang jauh lebih rendah. Keputusan ini bercanggah dengan laporan hasil kerja yang dibuat oleh penyelidik lain (Chozhan et al. 2007; Liu et al. 2004; Mishra et al. 2007) yang mendapati terikan pada sistem pertigaan adalah lebih tinggi daripada sistem perduaan mereka. Dalam kes kajian ini, pemerhatian ini boleh dijelaskan dengan mengambil kira keputusan tegasan alah yang telah dibincangkan sebelum ini. Ketaksempurnaan yang menyebabkan sampel komposit epoksi hibrid gagal sebelum tegasan maksimum sebenar boleh tercapai serta menghadkan tahap terikan yang boleh berlaku pada sampel.



RAJAH 4. Tegasan alah bagi sampel komposit epoksi

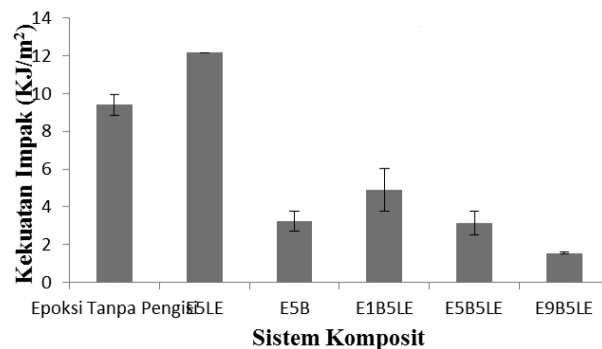


RAJAH 5. Terikan akhir bagi sampel komposit epoksi

UJIAN IMPAK

Kekuatan impak bagi sampel komposit hibrid epoksi telah dibandingkan dengan resin epoksi tanpa pengisi dan juga sistem komposit perduaan pada Rajah 6. Dengan membandingkan prestasi kekuatan impak komposit hibrid epoksi dengan komposit perduaan, didapati hanya E1B5LE berada dalam julat di antara komposit perduaan E5LE dan E5B. Kekuatan impak bagi sampel E5B5LE dan E9B5LE pula adalah lebih rendah daripada sampel komposit perduaan dan sistem tanpa pengisi. Penyusutan kekuatan impak ini adalah disebabkan oleh peningkatan ketegaran akibat kehadiran OMMT dalam sistem. Selain itu, oleh kerana ujian impak melibatkan pembebanan ke atas sampel pada kadar yang tinggi, maka keberkesanan ikatan

antara fasa pada sempadan fasa adalah sangat kritikal. Peningkatan komposisi nanozarah mengeksploitasi ketidak-selajaran mikrostruktur sistem komposit epoksi hibrid, malahan pengelupasan nanozarah tanah liat menampakkan lagi fenomena ini ekoran peningkatan luas permukaan sempadan fasa.



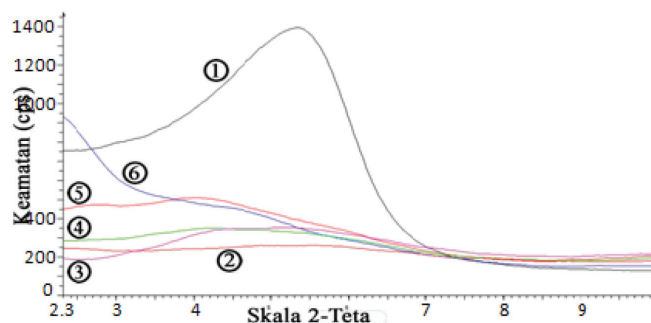
RAJAH 6. Kekuatan impak bagi sampel komposit epoksi

ANALISIS PEMBELAUAN SINAR-X

Daripada Rajah 7, puncak tunggal yang muncul merujuk kepada jarak d bagi lapisan OMMT (16.53\AA) yang tersusun secara aglomerat selepas dirawat dengan agen pengkupelan dari kilang. Sementara itu, didapati tiada puncak yang jelas dapat diperhatikan bagi sistem resin epoksi dan sistem kompositnya. Pemerhatian ini membuat andaian bahawa tiada pengaglomeratan bahan pengisi, terutamanya nanozarah tanah liat dalam matriks epoksi. Di samping itu, didapati terdapat penganjakan pada graf analisis XRD bagi sampel E9B5LE pada sudut 2θ yang rendah. Fenomena ini mungkin mencadangkan bahawa terdapat puncak tajam yang hadir pada sampel tersebut tetapi gagal ditunjukkan dengan jelas ekoran had kelengkapan analisis. Keputusan ini merupakan keputusan yang dijangkakan memandangkan peningkatan peratusan berat OMMT dalam sistem nanokomposit epoksi akan menghadkan penyerakan lapisan tunggal pengisi tanah liat dan menggalakkan pembentukan struktur interkalasi dalam matriks. Selain daripada itu, bagi mendapat gambaran yang lebih jelas taburan lapisan-lapisan nanozarah tanah liat dalam matriks epoksi seterusnya diuji dengan analisis TEM.

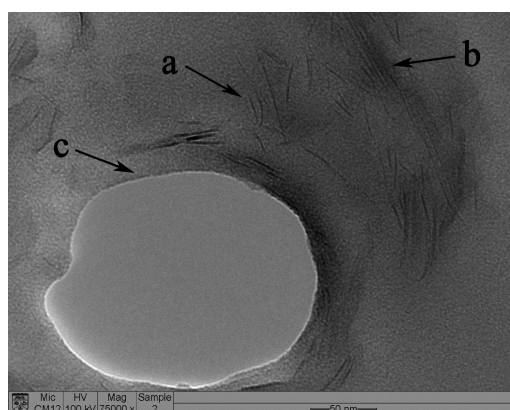
ANALISIS MIKROSTRUKTUR MIKROSKOPI TRANSMISI ELEKTRON

Bagi mengesahkan keputusan analisis XRD yang telah dibincangkan pada bahagian lepas, komposit hibrid epoksi E5B5LE, sampel komposit hibrid yang menunjukkan keputusan yang paling baik dalam ujian tersebut, telah diuji dengan kaedah TEM. Mikrograf analisis TEM sampel E5B5LE ditunjukkan pada Rajah 8 dan telah dilabelkan dengan jelas. Daripada mikrograf yang diperoleh, didapati lapisan tunggal OMMT (a) dan (b) dapat dibezakan dengan jelas daripada matriks epoksi dan lokasi partikel getah



RAJAH 7. Keputusan analisis pembelauan sinar-X bagi epoksi tanpa pengisi dan nanokomposit epoksi (1) OMMT - Cloisite 30B, (2) Epoksi tanpa pengisi, (3) E5LE, (4) E1B5LE, (5) E5B5LE dan (6) E9B5LE

asli terepoksida (c). Kawasan yang dilabelkan sebagai (a) dan (b) merupakan kawasan di mana pengisi OMMT berada. Melalui mikrograf yang ditunjukkan, dua jenis taburan mikrostruktur telah dikesan, (a) pengelupasan dan (b) interkalasi. Walaupun pada masa yang sama, dapat diperhatikan bahawa struktur pengelupasan adalah struktur dominan, namun kehadiran struktur interkalasi dalam sampel seharusnya memberi puncak tajam pada analisis XRD. Fenomena ini dijelaskan oleh Mishra et al. (2007) sebagai ketidakteraturan jarak d yang dibuat oleh fasa nanozarah tanah liat yang berinterkalasi di dalam matriks. Ketidakteraturan ini menyebabkan pungutan data pada sesuatu sudut 2θ adalah tidak berkekekapan tinggi. Kawasan (c) adalah merupakan lokasi yang pernah diduduki partikel getah dan telah ditinggal kosong akibat pemotongan semasa penyediaan sampel untuk penganalisan TEM (Liu et al. 2004).



RAJAH 8. Mikrograf analisis TEM bagi komposit hibrid epoksi (a) struktur pengelupasan pengisi nanozarah tanah liat, (b) struktur interkalasi dan (c) lokasi partikel getah asli terepoksida

ANALISIS KELORIMETRI PENGIMBASAN PEMBEDAAN

Kaedah analisis terma yang paling popular dalam pencarian suhu peralihan kaca bagi sampel polimer terutamanya polimer termoset adalah melalui kaedah kalorimeter imbasan pembedaan, DSC. Suhu T_g yang

diperoleh melalui analisis DSC telah direkodkan pada Jadual 2. Dengan membandingkan sistem komposit perduaan epoksi dan resin epoksi tanpa pengisi, didapati kehadiran kedua-dua jenis bahan pengisi memberi tren perubahan yang berbeza. Kehadiran fasa getah asli terepoksida dalam matriks epoksi menyebabkan T_g sistem menurun berbanding dengan resin tanpa pengisi, dan kesan ini lebih ketara dengan peningkatan komposisi bahan penguat itu di dalam sistem. Ratna D. (2001) menjelaskan fenomena ini dengan mengaitkan kehadiran sebilangan bahan penguat getah asli terepoksida yang terlarut dalam matriks epoksi itu. Rantainya bertanggungjawab dalam merendahkan T_g sistem yang terhasil, kesan ini diamplifikasikan dengan penambahan komposisi getah. Thomas et al. (2007) menambah bahawa getah asli terepoksida yang terlarut dalam matriks epoksi bertindak sebagai agen pemfleksibel justeru menyebabkan T_g sistem berlaku pada suhu yang lebih rendah daripada resin tanpa pengisi. T_g sistem nanokomposit epoksi (E5B) didapati menyusut berbanding dengan sistem resin epoksi tanpa pengisi. Wang et al. (2006) menjelaskan bahawa penglibatan fasa asing dalam sistem komposit polimer termoset selalunya akan mengurangkan ketumpatan taut-silang. Natiujahnya, pada komposisi bahan pengisi nanozarah yang tinggi, T_g sistem beranjak ke suhu yang lebih rendah berbanding dengan sistem tanpa pengisi. Sementara itu, bagi komposit hibrid epoksi pula, didapati T_g sistem tersebut adalah relatifnya lebih rendah daripada resin epoksi tanpa pengisi. Thomas et al. (2008) menjelaskan bahawa kehadiran fasa asing ke dalam matriks epoksi telah menghadkan darjah kesempurnaan taut-silang dalam sistem tersebut. Ini adalah ekorannya penghunian fasa asing ini pada lokasi taut-silang, maka secara langsung mengurangkan suhu T_g sistem tersebut. Di samping itu, perubahan komposisi nanozarah dalam komposit hibrid epoksi telah menyebabkan T_g sistem meningkat dengan ketara. Kombinasi bahan pengisi yang paling baik adalah E5B5LE (komposit hibrid epoksi dengan 5 %berat nanozarah tanah liat Cloisite 30B dan 5 %berat getah asli terepoksida) dan kehadiran pengisi nanozarah dapat mengimbangi kesan penyusutan T_g sistem berikutan kehadiran getah dalam matriks.

JADUAL 2. Suhu peralihan kaca sistem epoksi dan komposit yang dihasilkan

Sampel	T _g (°C)
Resin epoksi tanpa pengisi	90.0
E5LE	76.0
E5B	88.0
E1B5LE	67.5
E5B5LE	83.0
E9B5LE	80.5

KESIMPULAN

Komposit epoksi berpengisi hibrid OMMT dan getah asli terepoksida telah berjaya dihasilkan dengan menggunakan kaedah penyemperitan berskru kembar pusingan searah. Ujian regangan menunjukkan modulus Young bagi komposit hibrid epoksi yang dihasilkan adalah lebih tinggi daripada resin tanpa pengisi dan nilai modulus didapati meningkat dengan peningkatan komposisi OMMT dalam matriks. Pemerhatian ini dijelaskan dengan mengambil kira sifat tegar lapisan OMMT yang terselerak dalam matriks. Sementara itu, peningkatan luas permukaan kawasan antara fasa ekoran kehadiran fasa penambah didapati telah mengurangkan tegasan alah dan terikan akhir komposit hibrid yang dihasilkan. Pemeriksaan mikrostruktur komposit hibrid epoksi melalui TEM dan XRD mendedahkan taburan OMMT dalam matriks epoksi dengan susunan interkalasi dan pengelupasan. Analisis DSC ke atas sampel yang teramat menunjukkan T_g sistem komposit hibrid merupakan antara yang paling rendah berbanding dengan sistem perduaan (E5B dan E5LE). Pengurangan ketumpatan taut silang disyaki merupakan punca penyusutan T_g ini.

PENGHARGAAN

Penulis ingin mengucapkan ribuan terima kasih kepada Kementerian Pelajaran Malaysia (MOE), Malaysia atas bantuan kewangan yang diberikan di bawah geran penyelidikan UKM-ST_FRGS0053-2006.

RUJUKAN

- Barcia, F.L., Amaral, T.P. & Soares, B.G. 2003. Synthesis and properties of epoxy resin modified with epoxy-terminated liquid polybutadiene. *Polymer* 44(19): 5811-5819.
- Bussi, P. & Ishida, H. 1994. Partially miscible blends of epoxy resin and epoxidized rubber: Structural characterization of the epoxidized rubber and mechanical properties of the blends. *Journal of Applied Polymer* 53(4): 441-454.
- Chozhan, C.K., Alagar, M., Sharmila, R.J. & Gnanasundaram, P. 2007. Thermo mechanical behavior of unsaturated polyester toughened epoxy-clay hybrid nanocomposites. *Journal of Polymer Research* 14(4): 319-328.
- Frohlich, J., Kautz, H., Thomann, R., Frey, H. & Mulhaupt, R. 2004. Reactive core/shell type hyperbranched blockcopolymers as new liquid rubbers for epoxy toughening. *Polymer* 45(7): 2155-2164.
- Ha, S.R., Ryu, S.H., Park, S.J. & Rhee, K.Y. 2007. Effect of clay surface modification and concentration on the tensile performance of clay/epoxy nanocomposites. *Materials Science and Engineering A* 448(1-2): 264-268.
- Hong, S.G. & Wu, C.S. 2000. DSC and FTIR analyses of the curing behavior of epoxy/DICY/solvent systems on hermetic specimens. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 59(3): 771-719.
- Ibrahim Abdullah & Zuriati Zakaria. 1989. Pendepolimeran fotokimia getah asli. *Sains Malaysiana* 18(2): 99-109.
- Kim, J.K., Hu, C.G., Woo, R.S.C. & Sham, M.L. 2004. Moisture barrier characteristics of organoclay-epoxy nanocomposites. *Composites Science and Technology* 65(5): 805-813.
- Li, H.Y., Zhang, Z.S., Ma, X.F., Hu, M., Wang, X.Y. & Fan, P.F. 2007. Synthesis and characterization of epoxy resin modified with nano-SiO₂ and γ -glycidoxypopyltrimethoxy silane. *Surface & Coatings Technology* 201(9-11): 5269-5272.
- Liu, W.P., Hoa, S.V. & Pugh, M. 2004. Morphology and performance of epoxy nanocomposites modified with organoclay and rubber. *Polymer Engineering & Science* 44(6): 1178-1186.
- May, C.A. & Tanaka, Y. 1973. *Epoxy Resins*. New York: Marcel Dekker Inc.
- Mishra, J.K., Chang, Y.W. & Choi, N.S. 2007. Preparation and characterization of rubber-toughened poly(trimethylene terephthalate)/organoclay nanocomposite. *Polymer Engineering & Science* 47(6): 863-870.
- Padmanabhan Babu. 2008. Understanding the extruder processing zone: The heart of a twin screw extruder. *Plastic Additives & Compounding* 10(2): 30-35.
- Pinnavaia, T.J., Lan, T., Wang, Z., Shi, H.Z. & Kaviratna, P.D. 2000. Clay-reinforced epoxy nanocomposites: Synthesis, properties, and mechanism of formation. *ACS Symposium Series* 622(17): 250-261.
- Poisson, N., Maazouz, A., Sautereau, H., Taha, M. & Gambert, X. 1998. Curing of dicyandiamide epoxy resins accelerated with substituted ureas. *Journal of Applied Polymer Science* 69(12): 2487-2497.
- Ratna, D. 2001. Phase separation in liquid rubber modified epoxy mixture: Relationship between curing conditions, morphology and ultimate behavior. *Polymer* 42(9): 4209-4218.
- Thomas, R., Durix, S., Sinturel, C., Omonov, T., Goossens, S., Groeninckx, G., Moldenaers, P. & Thomas, S. 2007. Cure kinetics, morphology and miscibility of modified DGEBA-based epoxy resin - Effects of a liquid rubber inclusion. *Polymer* 48(6): 1695-1710.
- Thomas, R., Yumei, D., He, Y.L., Yang, L., Moldenaers, P., Yang, W.M., Czigan, T. & Thomas, S. 2008. Miscibility, morphology, thermal, and mechanical properties of a DGEBA-based epoxy resin toughened with a liquid rubber. *Polymer* 49(1): 278-294.

- Treece, M.A., Zhang, W., Moffitt, R.D. & Oberhauser, J.P. 2007. Twin-screw extrusion of polypropylene-clay nanocomposites: Influence of masterbatch processing, screw rotation mode, and sequence. *Polymer Engineering and Science* 47(6): 898-911.
- Wang, L., Wang, K., Chen, L., Zhang, Y.W. & He, C.B. 2006. Preparation, morphology and thermal/mechanical properties of epoxy/nanoclay composite. *Composites: Part A* 37(11): 1890-1896.
- Wang, J.W. & Qin, S.C. 2007. Study on the thermal and mechanical properties of epoxy-nanoclay composites: The effect of ultrasonic stirring time. *Materials Letters* 61(19-20): 4222-4224.

School of Applied Physic
Faculty of Science and Technology
Universiti Kebangsaan Malaysia
43600 Bangi, Selangor
Malaysia

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: seyong01my@yahoo.co.uk

Diserahkan: 19 Disember 2011

Diterima: 4 Oktober 2013