

Spektroskopi Impedans Getah Asli Terepoksida (SMR5 dan ENR25)

Mohd Noor Mat, W. Mahmood Mat Yunus, W. M. Daud W. Yusoff
& Zainul Abidin Hassan

*Jabatan Fizik
Fakulti Sains dan Pengajian Alam Sekitar
Universiti Putra Malaysia
43400 UPM, Serdang, Selangor, Malaysia*

Diterima: 20 Julai 2000

ABSTRAK

Kertas ini melaporkan pengukuran spektroskopi impedans getah asli terepoksida yang dilakukan dengan menggunakan spektrometer dielektrik pada suhu 303, 313, 333, 353 dan 373 K dalam julat frekuensi 10^2 ke 10^6 Hz. Hasil eksperimen menunjukkan bahawa frekuensi santonian atau cirian bagi Z'' , komponen maya impedans, bertambah dengan penambahan suhu. Model rangkaian litar setara (RC) yang dicadangkan di dalam kajian ini adalah bersetuju dengan data uji kaji yang diperoleh untuk julat frekuensi $10^2 - 10^6$ Hz.

ABSTRACT

This paper reports the measurement of impedance spectroscopy of epoxydized natural rubber by using a dielectric spectrometer at temperatures of 303, 313, 333, 353 and 373 K in the frequency range of 10^2 to 10^6 HZ. Experimental results showed that the characteristic or relaxation frequency of Z'' , the imaginary component of the impedance, increased with increasing temperature. The equivalent circuit network model (RC) proposed in this work is in good agreement with the experimental data obtained for the frequency range of $10^2 - 10^6$ Hz.

Kata kunci : Impedans, masa santonian, litar setara

PENGENALAN

Spektroskopi impedans banyak digunakan terutama untuk menganalisis santonian elektrik pada bahan ionik (Zhigao *et al.* 1992) dan kaca pengalir (Wong dan Angell 1976; Macedo *et al.* 1972). Oleh itu pencirian impedans dalam getah asli terepoksida dapat diperihalkan daripada pengukuran impedans spektroskopi menggunakan sumber ulang alik yang dikenakan kepada sampel berkenaan.

Bila suatu medan ulang alik dengan keupayaan $V^*(\omega) = V_0 \exp j(\omega t)$ merentasi suatu litar RC selari, arus ulang alik $I^*(\omega) = I_0 \exp j(\omega t + \theta)$ akan teraruh dalam sistem tersebut, iaitu V_0 dan I_0 merupakan amplitud bagi voltan dan arus, manakala j dan ω adalah masing-masing nombor kompleks ($j^2 = -1$) dan frekuensi sudut medan ulang alik serta θ adalah beza fasa (Hippel 1954). Oleh itu impedans bagi sistem adalah

$$Z^*(\omega) = \frac{V(\omega)}{I(\omega)} = Z'(\omega) - jZ''(\omega) \tag{1}$$

Kaitan impedans kompleks dengan kapasitan boleh ditulis sebagai berikut:

$$Z^*(\omega) = \frac{1}{j\omega C^*(\omega)} \tag{2}$$

dengan $C^*(\omega) = C'(\omega) - jC''(\omega)$, iaitu C' adalah bahagian nyata dan C'' adalah bahagian khayal yang mana $C'(\omega)$ adalah nilai pengukuran kapasitan nyata (C) terhadap frekuensi dan $C''(\omega)$ dikira dari nilai konduktans (G) terhadap frekuensi ($C''(\omega) = G/\omega$). Oleh itu

$$Z^*(\omega) = \frac{C^*(\omega)}{\omega(C'(\omega) + C''^2(\omega))} - j \frac{C'(\omega)}{\omega(C'^2(\omega) + C''^2(\omega))} \tag{3}$$

dengan membandingkan (1) dan (3), bahagian nyata dan khayal impedans untuk kes ini boleh ditentukan.

Bagi litar setara RC selari (*Rajah 1a*), impedans kompleks pada frekuensi sudut ialah

$$Z^*(\omega) = \frac{R}{1 + (\omega\tau)^2} - j \frac{R\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \tag{4}$$

dengan $\tau = RC$ ialah masa santaian. Oleh kerana impedans yang diperoleh melalui hubungan (4) adalah lebih sesuai untuk sampel seperti cecair elektrolit (kes unggul), selanjutnya perlu mengubah suai formula empirik untuk menyesuaikan kes-kes uji kaji yang tidak unggul khususnya sampel pepejal. Oleh itu, kapasitor semesta yang diperkenalkan oleh Jonscher (Jonscher 1983) perlu digunakan iaitu

$$C^*(\omega) = B(j\omega)^{p-1} = C_0 \left(\frac{f}{f_0} \right) \left(\sin\left(p \frac{\pi}{2}\right) - j \cos\left(p \frac{\pi}{2}\right) \right) \tag{5}$$

dengan B ditakrifkan sebagai $C_0 \left(\frac{1}{\omega_c} \right)^{p-1}$ dan $\omega_c = 2\pi f_c$, dengan menggunakan kapasitor semester, pemerihalhan spektroskopi impedans bagi sistem ini akan menjadi lebih mudah.

Bagi menyesuaikan hasil uji kaji dengan pengiraan formula empirik, p mengambil nilai di antara 0 dan 1. $C^*(\omega)$ sebenarnya adalah gabungan selari antara kapasitor $C(\omega) = b\omega^{p-1}$ dan konduktans $G(\omega) = a\omega^p$ (4). Jika $p = 1$, ianya adalah kapasitor dan bila $p = 0$, ianya adalah impedans. Walau bagaimanapun rangkaian litar setara boleh dibentuk berdasarkan gabungan selari atau siri kapasitor semesta (Rajah 1b) yang bersiri dengan rintangan elektrod, R_s , impedans boleh dinyatakan sebagai

$$Z^*(\omega) = \frac{1}{j\omega(C_1^* + C_2^*)} + R_s$$

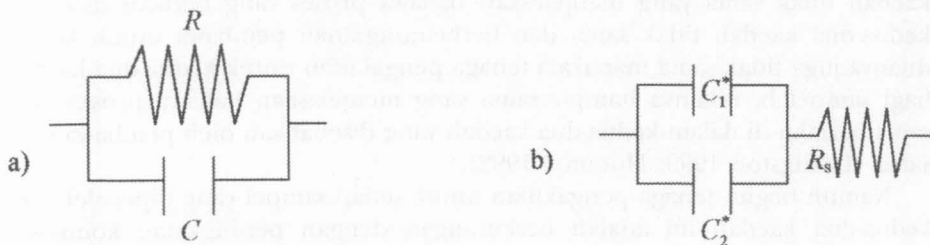
$$= \frac{R_0}{\left(\frac{f}{f_c}\right)^p \cos\left(p\frac{\pi}{2}\right) + \left(\frac{f}{f_c}\right)^q \cos\left(q\frac{\pi}{2}\right) + j\left[\left(\frac{f}{f_c}\right)^p \sin\left(p\frac{\pi}{2}\right) + \left(\frac{f}{f_c}\right)^q \sin\left(q\frac{\pi}{2}\right)\right]} + R_s \quad (6)$$

dengan $C_1^* = A(j\omega)^{p-1}$ dan $C_2^* = B(j\omega)^{q-1}$ (12), manakala A dan B ditakrifkan sebagai $A = \frac{1}{R_0} \left(\frac{1}{\omega_c}\right)^{p-1}$ dan $B = \frac{1}{R_0} \left(\frac{1}{\omega_c}\right)^{q-1}$ dengan $\omega_c = 2\pi f_c$. Pemalar p dan q mengambil nilai di antara 0 dan 1.

Selain penyerakan terhadap frekuensi, impedans kompleks juga berubah dengan suhu. Oleh itu tenaga pengaktifan boleh diperoleh dari kecerunan plot Arrhenius melalui hubungan (7) iaitu (Jonscher 1977):

$$f_c = f_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (7)$$

dengan f_c adalah frekuensi apabila magnitud impedans khayalan maksimum, f_0 merupakan frekuensi pada suhu $T^{-1} = 0$, E, k dan T masing-masing merupakan tenaga pengaktifan, pemalar Boltzman dan suhu dalam unit Kelvin.



Rajah 1 : (a) Kombinasi RC secara selari (b) Kombinasi kapasitor secara selari

KAEDAH UJI KAJI

Dua jenis sampel getah asli terepoksa iaitu SMR5 dan ENR25 dengan setiap satunya mengandungi komposisi karbon 50 dan 75 peratus, sama seperti yang dilaporkan oleh Mohd Noor (Mohd Noor *et al.* 1999), telah digunakan untuk kajian ini. Sampel-sampel ini kemudiannya dirujuk sebagai a_1 dan a_2 untuk SMR5 (50% karbon) dan SMR5 (75% karbon) serta b_1 dan b_2 untuk ENR25 (50% karbon) dan ENR25 (75% karbon). Penyediaan sampel untuk kegunaan kajian ini divulatkan pada suhu 423 K di dalam satu bekas besi yang dibuat khusus bersaiz dalaman 17.6 cm x 17.6 cm dengan ketebalan 0.05, 0.1 dan 0.2 cm dengan masa pemvulkanan masing-masing 10, 7, 10 dan 7 minit untuk setiap satu.

Impedans kompleks sampel-sampel ini dapat ditentukan dari pengukuran kapasitans kompleks melalui persamaan (3). Bagi tujuan ini, sampel-sampel berkenaan diletakkan di antara dua elektrod dalam sel yang boleh dikawal suhunya. Pengukuran kapasitans kompleks sampel-sampel ini dilakukan dengan teknik piawai (Mohd Noor *et al.* 2001) menggunakan Spektrometer Dielektrik dalam julat frekuensi 10^{-2} ke 10^6 Hz pada suhu 303, 313, 333, 353 dan 373 K.

HASIL DAN PERBINCANGAN

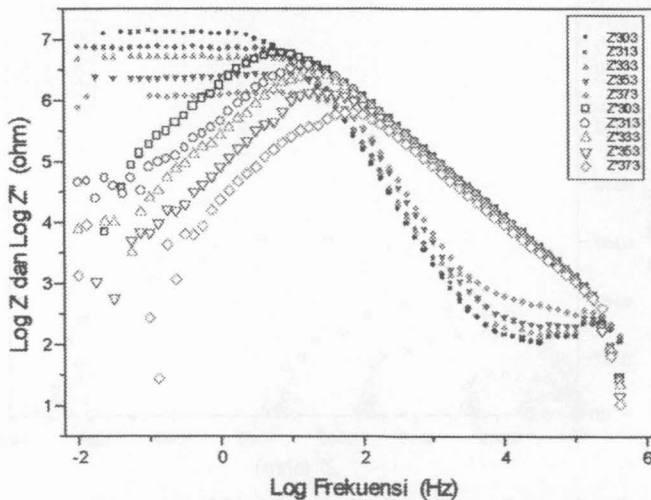
Rajah 2 menunjukkan penyerakan impedans iaitu log impedans kompleks lawan log frekuensi untuk setiap suhu. Hasil penyerakan ini, maklumat masa santaian f_c dalam julat frekuensi (jenis proses pengutuban) dikenal pasti. *Rajah 2* juga menunjukkan bahawa nilai frekuensi puncak setiap penyerakan impedans khayal sampel a_1 , teranjak kekanan (meningkat) iaitu meningkat dengan peningkatan suhu. Plot Arrhenius frekuensi puncak f_c lawan T^{-1} (Jonscher 1977) untuk sampel ini ditunjukkan dalam *Rajah 3*.

Tenaga pengaktifan untuk semua sampel a_1 , a_2 , b_1 dan b_2 didapati masing-masing bernilai 0.25 ± 0.03 eV, 0.12 ± 0.03 eV, 0.35 ± 0.02 eV dan 0.20 ± 0.08 eV. Penganalisisan berdasarkan kekonduksian arus terus di dalam sampel-sampel ini mendapati tenaga pengaktifan untuk sampel-sampel a_1 , a_2 , b_1 dan b_2 masing-masing bernilai 0.31 ± 0.03 eV, 0.17 ± 0.04 eV, 0.34 ± 0.03 eV dan 0.27 ± 0.08 eV (Mohd Noor *et al.* 2000). Perbandingan di antara kedua-dua nilai ini didapati bahawa tenaga pengaktifan yang diperoleh melalui kedua-dua kaedah tidak sama yang menjelaskan bahawa proses yang berlaku di dalam kedua-dua kaedah tidak sama dan berkemungkinan pembawa untuk kedua-duanya juga tidak sama manakala tenaga pengaktifan untuk kedua-dua kaedah bagi sampel b_1 nilainya hampir sama yang menjelaskan bahawa proses yang sama berlaku di dalam kedua-dua kaedah yang disebabkan oleh pembawa yang sama (Livingston 1999; Hummel 1992).

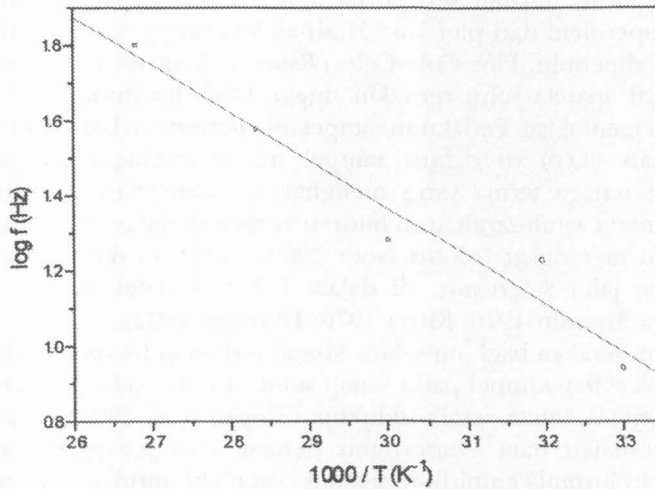
Namun begitu tenaga pengaktifan untuk setiap sampel yang diperoleh dari kedua-dua kaedah ini adalah berkurangan dengan peningkatan komposisi karbon. Penjelasan tentang perlakuan ini akan dibincangkan dalam kertas yang berasingan.

Plot Cole-Cole pula ditunjukkan dalam *Rajah 4*. Pada asasnya diharapkan lengkung separuh bulatan sempurna atau hampir kepada separuh bulatan sempurna diperolehi dari plot ini. Hasil uji kaji yang diperolehi menunjukkan harapan ini dipenuhi. Plot Cole-Cole (*Rajah 4*) juga menjelaskan bahawa Z_0 semakin kecil apabila suhu semakin tinggi. Oleh itu impedans berkurangan apabila suhu meningkat. Perlakuan sampel ini menyerupai bahan semikonduktor. Kekonduksian ($1/\rho$) di dalam sampel ini berkurangan disebabkan oleh peningkatan tenaga terma yang menghalang kelincuhan lompatan elektron iaitu jarak antara zarah-zarah atau butiran karbon di dalam bahan semakin jauh apabila suhu meningkat (Mohd Noor 2000). Elektron dipindahkan daripada satu jalur ke jalur seterusnya di dalam bahan melalui transisi antara jalur (Ashroft dan Mermin 1976; Kittel 1976; Hummel 1992).

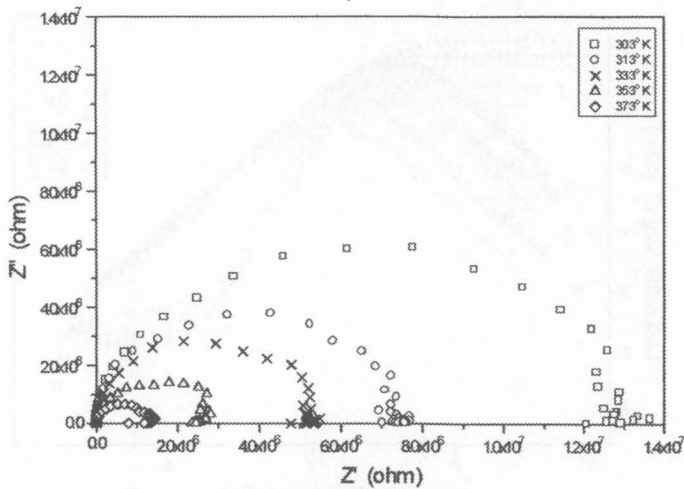
Lengkung serakan bagi impedans khayal terhadap frekuensi adalah bersifat simetri untuk setiap sampel pada setiap suhu. Ini menjelaskan bahawa sampel ini adalah sejenis bahan semikonduktor (Zhigao *et al.* 1992). *Rajah 5* adalah contoh kesesuaian data eksperimen dengan data pengiraan yang dibuat menggunakan formula empirik impedans kompleks untuk sampel a_1 pada suhu 373 K. Nilai-nilai dari formula empirik yang bersesuaian dengan data kajian disenaraikan dalam Jadual 1.



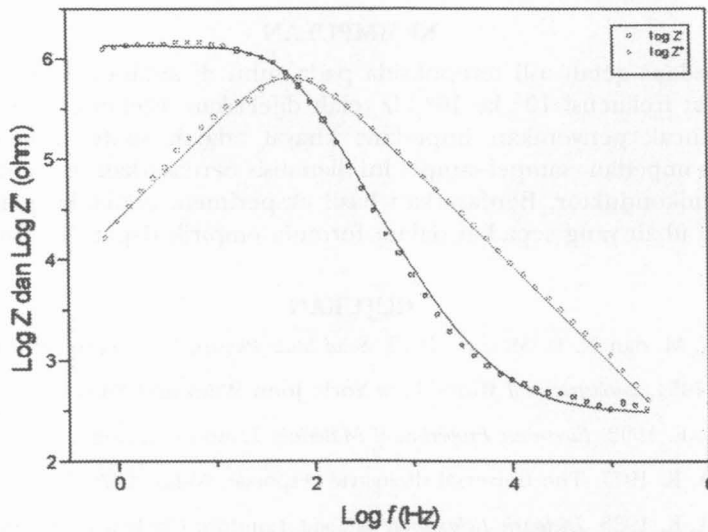
Rajah 2 : Log impedans kompleks lawan log frekuensi pada setiap suhu bagi sampel SMR5 dengan kandungan karbon 50 peratus (sampel a_1)



Rajah 3: Plot frekuensi puncak melawan T_{-1} bagi sampel SMR5 dengan kandungan karbon 50 peratus (sampel a₁)



Rajah 4 : Plot impedans Cole-Cole bagi sampel SMR5 dengan kandungan karbon 50 peratus pada suhu 303, 313, 333, 353 dan 373 K



Rajah 5 : Contoh kesesuaian hasil uji kaji dan formula empirik bagi sampel SMR5 dengan 50 peratus komposisi karbon pada suhu 373 K. Simbol adalah data eksperimen manakala garis adalah berdasarkan perkiraan dari litar setara

JADUAL 1

Hasil kesesuaian secara empirik eksperimen dan perkiraan menggunakan persamaan (6) untuk setiap sampel pada setiap suhu

Sampel	Suhu (K)	p	q	fc (Hz)	R0 (ohm)	Rs (ohm)
SMR5 50% karbon	303	0.997	0.00	9	1.28E+7	170
	313	0.997	0.002	14	7.50E+6	170
	333	0.993	0.0005	19	6.50E+6	170
	353	0.993	0.0005	38	3.10E+6	170
	373	0.98	0.0005	60	1.45E+6	170
SMR5 75% karbon	303	0.99	0.0004	850	1.70E+5	45
	313	0.993	0.0015	850	1.80E+5	45
	333	0.992	0.0005	1100	1.30E+5	45
	353	0.992	0.0009	1300	1.00E+5	45
	373	0.991	0.0005	1650	5.00E+5	45
ENR25 50% karbon	303	0.95	0.00001	35	5.10E+5	130
	313	0.95	0.005	45	3.77E+5	130
	333	0.90	0.02	80	1.99E+5	130
	353	0.86	0.04	170	9.00E+4	130
	373	0.80	0.16	350	4.40E+4	130
ENR25 75% karbon	303	0.98	0.00001	250	2.20E+5	80
	313	0.987	0.0004	440	1.00E+5	80
	333	0.984	0.00003	450	9.70E+4	80
	353	0.98	0.002	500	8.30E+4	80
	373	0.98	0.006	1430	1.50E+4	80

KESIMPULAN

Sifat impedans getah asli terepoksida pada suhu di antara 303 K dan 373 K dalam julat frekuensi 10^{-2} ke 10^6 Hz telah dijelaskan. Frekuensi santon atau cirian puncak penyerakan impedans khayal adalah suatu proses teraktif. Perlakuan impedans sampel-sampel ini dianalisis berdasarkan pemerihalalan sifat bahan semikonduktor. Berdasarkan hasil eksperimen, nilai-nilai pemalar dan pemboleh ubah yang sepadan dalam formula empirik dapat ditentukan.

RUJUKAN

- ASHROFT. N. M. dan N. D. MERMIN. 1976. *Solid State Physics*. US : Saunders Company.
- HIPPEL. V. 1954. *Dielectric and Waves*. New York: John Wiley and Sons.
- HUMMEL. R. E. 1992. *Electronic Properties of Materials*. London: Springer-Verlag.
- JONSCHER. A. K. 1977. The universal dielectric response. *Nature* **267**: 673-679.
- JONSCHER. A. K. 1983. *Dielectric Relaxation in Solid*. London: Chelsea Dielectric Press.
- KITTEL, C. 1976. *Introduction to Solid State Physics*. 5th Ed. New York: John Wiley and Sons.
- LIVINGSTON, J. D. 1999. *Electronic Properties of Engineering Materials*. New York: John Wiley and Sons.
- MACEDO, P. B., R. BOSE, V. PROVENZANO dan T. A. LIVITZ. 1972. *Amorphous Materials*. New York: Wiley.
- MOHD NOOR MAT, W. M. DAUD W. YUSOFF, ZAINUL ABIDIN HASSAN dan W. MAHMOOD MAT YUNUS. 2001. Sifat dielektrik getah asli terepoksida (ENR50). *Pertanika J. Sci. & Technol.* **9(2)**: 237 - 244.
- MOHD NOOR MAT, WAN MAHMOOD MAT YUNUS, ZAIDAN ABDUL WAHAB, ZAINUL ABIDIN HASSAN dan MOHD MAAROF MOKSIN. 1999. Pengukuran pekali resapan terma getah asli terepoksida dengan kaedah lindapan. *J. Solid St. Sci. and Tecno.* **7(1)** : 148-155.
- MOHD NOOR MAT, ZAINUL ABIDIN HASSAN, W. M. DAUD W. YUSOFF dan W. MAHMOOD MAT YUNUS. 2000. Kekonduksian elektrik dalam getah asli (SMR5). *J. Solid State and Technology* **8(1 & 2)**: 67 - 73.
- MOHD NOOR MAT. 2000. Pengukuran pekali peresapan terma dan sifat dielektrik getah asli terepoksida. Tesis Master. Universiti Putra Malaysia.
- WONG, J. dan C. A. ANGELL. 1976. *Glass Structure by Spectroscopy*. New York: Marcell Dekker.
- ZHIGAO, L., J. P. BONNET, J. RAVEZ, J. M. REAU dan P. HEGANMULLER. 1992. An impedance study of $Pb_2KNb_5O_{15}$ ferroelectric ceramic. *J. Phys. Chem. Olids.* **53**.