

SINTESA DAN KARAKTERISASI MORFOLOGI, MEKANIK, DAN TERMAL TERMOPLASTIK NANOKOMPOSIT BERBASIS LEMPUNG BENTONIT

(SYNTHESIS AND MORPHOLOGICAL, MECHANICAL, AND THERMAL CHARACTERIZATIONS OF BENTONITE CLAY BASED THERMOPLASTIC NANOCOMPOSITE)

Seto Roseno, Agus Hadi Santosa Wargadipura, Masmui, dan Yelvia Deni
Pusat Teknologi Material (PTM) - BPPT
Gedung BPPT 2, Lantai 22, Jl M H Thamrin No 8, Jakarta 10340
roseno@engineer.com

ABSTRAK

Nanokomposit berbasis polimer termoplastik muncul sebagai kelas baru dari material dan telah banyak penelitian yang dilakukan sejak beberapa dekade yang lalu. Pada penelitian ini, clay komersial berbasis lempung bentonit, yaitu *Bentone SD-1*, digunakan sebagai *nanofiller* ke dalam polimer. Nanokomposit *polypropylene-bentone SD1 (PP-SD1)* telah berhasil dibuat dengan menggunakan metode *melt intercalation*. PP dan lempung bentonit dicampur dengan *maleic anhydride (MA)* dan inisiator *diphenylamine GR (DPA)* dalam proses menggunakan *rhomix* untuk kemudian dicetak menggunakan *hot press machine*. Struktur morfologi material dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffraction (XRD)* dan *Transmission Electron Microscopy (TEM)*. Difraktogram XRD dan citra TEM memperlihatkan adanya interaksi antara organoclay dan matriks PP yang ditunjukkan dengan adanya struktur interkalasi pada nanokomposit. Dispersi clay pada matriks PP memberikan peningkatan nilai modulus kelenturan. Penambahan filler organik ini juga mempengaruhi sifat termal material, yaitu *Heat Deflection Temperature (HDT)*. Pada penelitian ini, penurunan HDT pada nanokomposit dipengaruhi oleh parameter selama proses pembentukan nanokomposit.

Kata kunci : termoplastik nanokomposit, *nanofiller*, polipropilen, bentone SD-1, *hot press*, *flexural modulus*, XRD, TEM, HDT

ABSTRACT

Thermoplastic polymer based nanocomposites have emerged as a new class of material and numerous related research have been done recently. In this research, a commercial nanoclay from Indonesia, *Bentone SD-1*, was used as *nanofiller* to reinforce polypropylene as matrix material. *Polypropylene-bentone SD1 (PP-SD1)* nanocomposites were successfully prepared by a *melt intercalation* method. *Polypropylene* and bentone clay were modified with *maleic anhydride (MA)* and *diphenylamine GR (DPA)* initiator in a melting process, before being casted into a *hot press machine*. The resulting samples were subsequently characterized. The nanostructure of the materials was characterized using *X-Ray Diffraction (XRD)* and *Transmission Electron Microscopy (TEM)*. XRD diffractogram and TEM images show that there was an interaction between organoclay and matrix PP which indicates an intercalation process in nanocomposites. Dispersion of clay in PP matrix provides mechanical reinforcement indicated by an increase of *flexural modulus*, respectively. Furthermore, the insertion of inorganic fillers during the the nanocomposite production process had influenced thermal properties of nanocomposite which was characterized using *Heat Deflection Temperature (HDT)*.

Keywords : Thermoplastic polymer based nanocomposites, *nanofiller*, polypropylene, bentone SD-1, *hot press*, *flexural modulus*, XRD, TEM, HDT

PENDAHULUAN

Nanokomposit polimer muncul sebagai kelas baru dari material dan telah banyak penelitian yang dilakukan sejak dua dekade lalu. Secara umum nanokomposit polimer dibuat dengan menambahkan nanopartikel inorganik atau organik sebagai *filler* ke dalam polimer termoplastik atau termoset. Beberapa jenis polimer telah banyak dipergunakan dalam komposit, misalnya *epoxy*, *polyurethane*, *polyimide*, *polyester*, *polypropylene*, *polystyrene*, dan *polysiloxane*.

Penambahan partikel nano dapat meningkatkan sifat mekanik^[1-3], menurunkan pelarut dengan cepat, menaikkan stabilitas termal, meningkatkan sifat listrik dan optik serta meningkatkan ketahanan terhadap api^[4] dibandingkan dengan makro dan mikrokompisit. Peningkatan sifat komposit diakibatkan oleh eksfoliasi *clay* atau penyebaran lapisan *nanoclay* secara merata pada matriks polimer.

Teknik untuk menghasilkan partikel nano anisotropik selama proses pembentukan nanokomposit telah banyak dikembangkan. Eksfoliasi lapisan silika dibentuk dengan amina organik yang dapat dicapai menggunakan tiga pendekatan, yaitu : (1) memasukkan monomer yang sesuai ke dalam lapisan silika dan mengakibatkan terjadinya polimerisasi, (2) memasukkan secara langsung rantai polimer ke dalam lapisan silika dalam bentuk larutan atau lelehan, (3) memasukkan polimer melalui polimerisasi dengan bantuan katalis pada silika^[5].

Saat ini *nanofiller* anisotropik yang banyak digunakan adalah montmorillonite (MMT) yang memiliki struktur berlapis, dua lapisan tetrahedral dan satu lapisan oktahedral. Karena MMT bersifat hidrofilik, MMT tidak cocok dengan sebagian besar polimer sehingga harus dimodifikasi secara kimia untuk membuat permukaan lebih hidrofobik. Perlakuan yang populer dilakukan adalah reaksi pertukaran ion dengan menggunakan kation amonium organik dengan gugus alkil nonpolar yang panjang. Hal ini tidak hanya membuat permukaan lebih hidrofobik tetapi juga memperluas jarak antara lapisan silika.

Polypropylene (PP) adalah salah satu jenis termoplastik yang telah dipergunakan secara luas. Beberapa penelitian telah dilakukan dalam pembuatan dan karak-

terisasi nanokomposit *polypropylene-clay*. Di Indonesia, *polypropylene* telah diproduksi dalam bentuk film, butiran dan serat. PP dalam bentuk serat dapat berupa jalinan (*woven*) atau dalam bentuk serat biasa (*non-woven*). PP memiliki sifat hidrofobik, tahan terhadap zat kimia, stabil terhadap cahaya dan udara pada suhu kamar.

Pemanfaatan sifat-sifat *polypropylene* seperti kerapatan yang rendah, tahan terhadap kelembaban, kekuatan mekanik yang tinggi dan titik leleh relatif tinggi menjadikan PP mempunyai prospek yang sangat besar untuk menggantikan bahan-bahan seperti *styrene*, *HDPE*, kertas, *PVC*, gelas, resin rekayasa, dan *PET*. Akan tetapi, diantara sifat-sifat yang menguntungkan, *polypropylene* mempunyai kekurangan yaitu tidak jernih (keruh) apabila digunakan dalam *injection molding*. Untuk menaikkan kadar kejernihannya maka dilakukan penambahan agen nukleasi.

Pada penelitian ini, digunakan metode *melt intercalation* untuk mensintesis nanokomposit. *Bentonite* SD-1 merupakan *rheological additive* yang akan digunakan sebagai *filler* pada pembuatan nanokomposit sedangkan *polypropylene* yang digunakan adalah *polypropylene* dengan *melt flow index* 20g/10 min. *Polypropylene* dan *organoclay* dicampur pada proses peleburan dan dicetak dengan *hot press*. Nano-komposit yang dihasilkan akan diuji untuk mendapatkan karakteristik mekanik dan termal.

1. Bentonite

Salah satu jenis lempung yang sudah banyak dipelajari dan diketahui manfaatnya adalah bentonit. Bentonit mempunyai kandungan mineral montmorillonite (MMT) lebih dari 85% dengan rumus kimianya $Al_2O_3 \cdot 4SiO_2 \cdot xH_2O$ ^[6,7].

Nama bentonit pertama kali digunakan pada tahun 1896 oleh Knight untuk menamai suatu jenis *clay* koloid yang ditemukan pada formasi benton pada daerah Rock Creek Montana di negara bagian Wyoming, Amerika Serikat. Penamaan istilah bentonit diusulkan sebagai pengganti dari istilah nama lain sebelumnya yaitu "Soapy Clay" atau "Taylorit" yang dipopulerkan oleh Taylorite (1888). Sedangkan nama montmorillonite itu sendiri berasal dari Perancis pada tahun 1847 untuk penamaan sejenis

clay yang terdapat di Montmorillon Perancis yang dipublikasikan pada tahun 1853-1856^[9]. Pada tahun 1926, Ross dan Shannon mengemukakan bahwa bentonit adalah istilah batuan untuk endapan clay, yang pada dasarnya tersusun dari kristal clay yang dibentuk secara alterasi dari material batuan beku debu vulkanik^[8]. Pada tahun 1968, Grim menganggap bahwa bentonit merupakan endapan clay yang terdiri dari mineral smektit yang biasanya didominasi oleh MMT. Grim mengelompokkan montmorillonite ini ke dalam grup smektit sub kelompok *smektit di-oktahedral* (heptaphyllitic) bersama dengan beidelit dan nontronit. Sedangkan sub kelompok lainnya adalah smektit *tri-oktahedral* (cetaphyllitic) yang terdiri dari mineral hektorit dan saponit^[9].

Struktur mineral montmorillonite seperti yang terlihat pada Gambar 1 terdiri dari tiga unit lapisan, yaitu dua unit lapisan tetrahedral (mengandung ion silikon) mengapit satu lapisan oktahedral (mengandung ion besi dan magnesium).

Kisi kristal terdiri atas dua dimensi, ketebalan lembaran sekitar 1 nm yang tersusun atas lapisan tetrahedral - oktahedral - tetrahedral (TOT). Dimensi lain lapisan ini beragam dari 300 Å sampai beberapa mikron bergantung pada silika. Tumpukan lapisan biasanya menimbulkan *van der Waals gap* di antara lapisan tersebut dan biasanya disebut *interlayer* atau *gallery*. Jarak *gallery* biasanya 0.96-4 nm. Di dalam satu unit sel MMT terdapat dua atau tiga lapisan TOT.

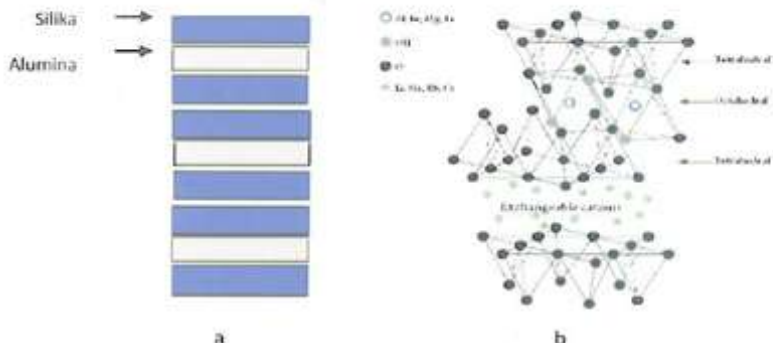
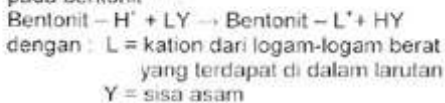
Berdasarkan hasil citra *Scanning Electron Microscopy* (SEM) bentone SD1 mempunyai struktur seperti pada Gambar 2



Gambar 2. Hasil SEM dari bentonite^[10].

Struktur berlapis ini menunjukkan bahwa ada interaksi permukaan-permukaan di antara partikel.

Bentonit merupakan jenis clay yang tersusun dari mineral MMT yang tidak murni, kristal dari bentonit berbentuk seperti lembaran dengan struktur kisi menyerupai *phirophilite* pada tiap unit lembaran. Di antara lembaran-lembaran MMT terdapat ruangan yang berisi molekul-molekul air dan kation-kation lain. Ruang-ruang di antara lembaran ini dapat mengembang bila mineral ini dilarutkan di dalam air^[13, 14]. Unit struktur utama MMT selalu bermuatan negatif walaupun pada lapisan oktahedral ada kelebihan muatan positif yang akan dikompensasikan oleh kekurangan muatan positif pada lapisan tetrahedral. Hal ini terjadi karena adanya substitusi isomorfik ion-ion. Pada lapisan tetrahedral terjadi substitusi ion Si^{4+} oleh Al^{3+} , sedangkan pada lapisan oktahedral terjadi substitusi ion Al^{3+} oleh Mg^{2+} dan Fe^{2+} . Reaksi pertukaran kation pada bentonit^[15].



Gambar 1. a. Susunan lapisan kisi betonit^[10] b. Struktur lapisan silikat 2:1^[11].

2. Polypropylene

Polypropylene (PP) merupakan termoplastik yang luas perkembangannya saat ini. PP mudah diproses dengan berbagai cara, misalnya cetak, ekstrusi, film dan serat.

Semula PP belum berkembang sampai Ziegler menemukan katalis yang menghasilkan polimer dengan isotaktik yang tinggi. Sintesis pertama kristal PP diperkenalkan oleh Natta pada tahun 1950. PP baru diproduksi secara komersial pada tahun 1957. Perusahaan yang pertama kali memproduksi PP adalah Farbwerk Hoechst AG di Jerman, Hercules Incorporated di USA dan Montecatini di Italia. Masing-masing menggunakan katalis tipe Ziegler dalam proses polimerisasi *propylene*. Sejak itu di Amerika mulai menjamur perusahaan yang memproduksi PP.

PP adalah polimer yang mempunyai satuan ulang atau monomer *propylene* dengan formula kimia $(C_3H_6)_n$. Polimerisasi *propylene* dilakukan dengan bantuan katalis, dimana pengaturan kondisi operasi harus diperhatikan benar untuk mendapatkan produk PP yang mempunyai nilai komersial. Polimerisasi *propylene* menjadi PP dapat menghasilkan produk yang berbeda kedudukan gugus metil dalam ruang pada rantai polimer PP^[16].

Produk-produk tersebut antara lain isotaktik, sindiotaktik dan ataktik^[17]. PP isotaktik adalah jenis PP yang mempunyai struktur semi kristal dan kekakuan yang baik serta temperatur leleh yang tinggi. PP ataktik bersifat lembut, elastis dan amorf sedangkan PP jenis sindiotaktik menarik bagi para ilmuwan yang mendalami bidang PP karena tidak mudah untuk membuat dan mengisolasinya.

PP merupakan polimer hidrokarbon linier yang tidak mengandung ikatan tak jenuh. Adanya gugus metil pada rantai utama memberikan sifat kaku dan perbedaan simetri molekul dibandingkan polimer jenis lain. Hal ini menyebabkan perbedaan titik leleh dan sifat kimia lainnya, yaitu adanya ikatan atom karbon tersier yang memudahkan terjadinya oksidasi sehingga polimer bersifat kurang stabil terhadap oksidasi.

PP merupakan plastik yang teringan dari bagian terbesar plastik, dengan tingkat berat jenis 0.905. PP dengan berat jenis ringan ini menghasilkan kristalisasi tinggi ke daya rentang tinggi, kekakuan dan kekerasan.

Beberapa sifat dasar PP memberikan karakterisasi polimer tersebut. Indikasi struktur molekul ini sangat berhubungan dengan sifat dan perlakuannya. Sifat-sifat dasar lain yang penting adalah : berat molekul, distribusi berat molekul, titik leleh, kristalinitas, taktisitas, suhu transisi gelas, dan lain-lain.

PP memiliki berat molekul polidispers yaitu terdiri dari campuran molekul homolog dari macam-macam berat molekul sehingga berat molekul PP dapat dikatakan berat rata-rata. Berat molekul heterogen ini, selain mempengaruhi sifat kimia, juga memberikan pengaruh pada sifat fisik, mekanik dan sifat reologi polimer. Yang paling sering dipakai adalah jumlah rata-rata berat molekul M_n , dan berat molekul rata-rata M_w . M_w sensitif terhadap jumlah molekul yang besar sedangkan M_n sensitif terhadap adanya molekul kecil. Perbandingan M_w dengan M_n dipakai sebagai ukuran dari daerah distribusi berat molekul^[18].

3. Nanokomposit polimer-clay

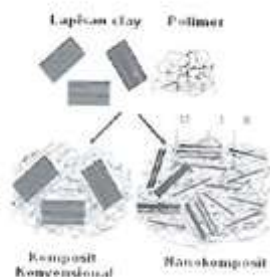
Nanokomposit polimer-clay merupakan material dengan matriks polimer yang diperkuat dengan *nanofiller* seperti butiran silika, zeolit dan lainnya. Penelitian yang mempelajari interaksi antara polimer dan clay sudah dikerjakan sejak tahun tujuh puluhan. Penemuan penting yang menjadi pelopor dalam penelitian ini adalah pembuatan nilon 6 / MMT oleh peneliti S. Fujiwara dan Sakamoto^[19]. Giannelis menemukan bahwa pembuatan material tersebut dapat dilakukan dengan metode *melt mixing* tanpa pemakaian pelarut^[10]. Saat ini penelitian mengenai nanokomposit polimer-clay semakin meluas. Hal ini dikarenakan sifat termal dan mekanik yang dihasilkan meningkat sangat signifikan. Peneliti Makoto Kato, Mitsumasa Matsuhita dan Kenzo Fukumori menekankan pada pembuatan clay yang belum dicelah untuk mengurangi biaya sebab harga surfaktan yang mahal^[20].

Beberapa proses untuk membuat nanokomposit polimer-clay, antara lain polimerisasi *in-situ*^[21], eksfoliasi larutan^[22] dan *melt intercalation*^[22]. Tiap teknik terdiri atas beberapa langkah untuk mencapai nanokomposit polimer dan dimulai dari *organoclay* atau kadang-kadang *clay* murni. Pada polimerisasi *in-situ*, monomer terinterkalasi ke dalam lapisan *clay* dan kemudian dipolimerisasi ke dalam *gallery*

melalui panas, radiasi dan inisiator pre-interkalasi/katalis. Pada eksfoliasi larutan, lapisan *clay* di-eksfoliasi ke dalam *single platelets* menggunakan pelarut yang dapat melarutkan polimer. Polimer kemudian dicampur dengan suspensi *clay* dan diabsorpsi ke dalam *platelets*. Akhirnya, pelarut dieliminasi dari polimer-*clay* kompleks melalui penguapan. Pada proses *in situ intercalation*, lapisan *clay* secara langsung bercampur dengan matriks polimer dalam cetakan.

Selain bentuk partikel, permukaan atau morfologi, dispersi dan kumpulan matriks, yang perlu diperhatikan adalah sifat dan hasil dari partikel nano komposit mempengaruhi sifat dari material nanokomposit. Efek nano pada nanokomposit telah membentuk akselerasi kristalisasi polimer, induksi kristalisasi polimer, fenomena induksi larutan kristalin dan fenomena optik yang abnormal^[24]. (Gambar 3).

Bergantung pada sifat dasar dari konstituen penyusun komposisinya (misal: lapisan silikat, kation organik dan matriks polimer) dan metode preparasinya maka dapat dihasilkan dua bentuk struktur untuk nanokomposit polimer-*clay*. Apabila polimer tidak dapat terinterkalasi di antara lembaran silikat atau kedua fasa saling terpisah maka sifat yang dihasilkan akan menyamai sifat dari nanokomposit konvensional. Struktur interkalasi dihasilkan jika polimer dapat masuk di antara lembaran-lembaran silikat dan nanokomposit yang dihasilkan mempunyai struktur *multilayer* (alternansi polimer dan lapisan silikat). Struktur eksfoliasi terbentuk jika seluruh lapisan silikat terdispersi secara homogen di dalam matriks polimer.



Gambar 3. Skema komposit polimer-*clay*, termasuk komposit konvensional dan struktur nanokomposit interkalasi (I), eksfoliasi (II) atau cluster (III)^[24].



Gambar 4. Hasil TEM PPCN-ORG^[20].

Alat yang lazim digunakan untuk mempelajari struktur nanokomposit adalah *X Ray Diffraction* (XRD) dan *Transmission Electron Microscopy* (TEM). Baik XRD maupun TEM memiliki keterbatasan dalam mengkarakterisasi struktur nanokomposit. XRD paling cocok untuk struktur interkalasi dan memeriksa daerah dekat permukaan sampel. Perbedaan puncak pada pola XRD dapat digunakan untuk menentukan jarak antar lapisan *clay* dan daerah di bawah puncak memberikan indeks konsentrasi struktur interkalasi.

Makoto Kato menjelaskan tidak ada puncak dan kekuatan difraksi (intensitas sinyal) berangsur-angsur menurun dari sudut rendah ke sudut tinggi pada pola XRD dari pencampuran nanokomposit PP-*clay*. Hal ini menunjukkan lapisan silika dari *clay* tereksfoliasi sedangkan pada pola XRD homo-PP turun dengan cepat sampai sudut 1° kemudian secara asimtot cenderung menuju nilai nol^[20].

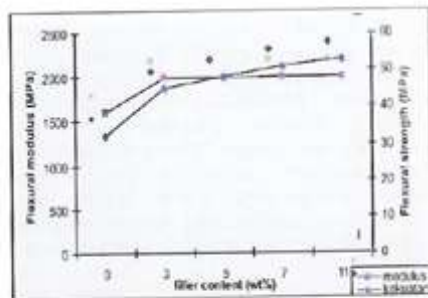
TEM merupakan alat yang bermanfaat, khususnya ketika puncak tajam hilang dari pola XRD. Citra TEM dapat menunjukkan homogenitas dari proses pencampuran nanokomposit. Pada Gambar 4 dapat terlihat bahwa lapisan silika tersebar secara homogen pada matriks PP.

Peningkatan pada sifat mekanik dari nanokomposit polimer dapat dihubungkan dengan perbandingan tingginya kekerasan dan afinitas antara polimer dan *organoclay*. Pada nanokomposit PP kenaikan tajam pada tegangan tarik dihubungkan dengan berkurangnya gaya adhesi di permukaan antara PP nonpolar dan *clay polar*. Hal ini ditingkatkan dengan menambah *maleic anhydride* pada matriks. Kenaikan modulus secara langsung berhubungan dengan perbandingan ketinggian baik lapisan *clay* maupun struktur nano^[21]. Modulus tarik dari material polimer telah menunjukkan kenaikan

yang mengagumkan saat nanokomposit dibentuk oleh lapisan silika. Liu menggunakan PP dicampur dengan *organoclay* dengan kandungan clay 1 wt %, 3 wt %, 5 wt % dan 7 wt % menghasilkan modulus tarik dan kekuatan tarik seperti pada Gambar 5^[25]. Modulus tarik dan kekuatan tarik meningkat sebanding dengan meningkatnya kandungan clay.

A. Monami, dkk melaporkan bahwa pada pencampuran PP dengan PP-g-MA dan Nanofil 5, MMT akan menghasilkan modulus lentur dan kekuatan lentur meningkat seiring dengan meningkatnya kandungan filler dari 0 sampai 3 wt % tetapi kemiringannya berkurang. Hal ini dapat terlihat pada Gambar 6^[26].

Penguatan mekanik dari PP yang berdasarkan pada pembentukan nanokomposit tidak terbatas hanya pada kenaikan modulus tarik, dispersi clay pada matriks PP juga memberikan kenaikan sifat Heat



Gambar 6. Modulus lentur dan kekuatan lentur nanokomposit PP-clay^[26].

Deflection Temperature (HDT). HDT yang meningkat menunjukkan adanya level eksfoliasi pada filler inorganik.

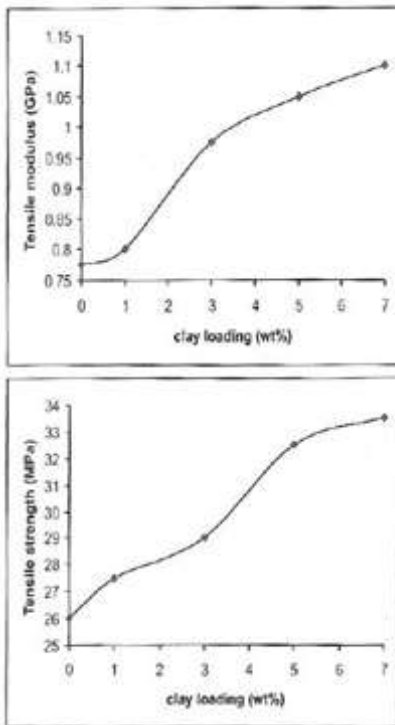
Stabilitas termal dari komposit polimer secara umum berhubungan dengan hilangnya berat selama pemanasan yang menghasilkan pembentukan uap. Kenaikan stabilitas termal pada nanokomposit berdasarkan pada *clay platelets* yang membatasi difusi *volatiles* dan membantu pembentukan lapisan setelah dekomposisi termal^[3].

E. Manias, dkk melaporkan HDT dari nanokomposit PP dengan f-MMT dan alkylammonium MMT meningkat dari 109°C untuk PP murni sampai 152°C untuk nano-komposit 6 wt %^[7]. Kenaikan HDT ini merefleksikan tingkat eksfoliasi dari *organoclay*.

Tujuan penelitian ini adalah memanfaatkan bahan *clay bentone* sebagai *filler* pada pembuatan nanokomposit, mempelajari teknik fabrikasi nanokomposit *polypropylene-clay* dengan proses *mill intercalation*, mendapatkan dan mempelajari karakteristik mekanik dan termal material nanokomposit *polypropylene-clay*.

BAHAN DAN METODA

Pembuatan nanokomposit pada penelitian ini, menggunakan bahan PP dengan MFR (230°C/2.16 kg, ASTM D1238) 9 g/ 10 min, densitas 900 kg/m³, hasil kekuatan lentur (50 mm/min, ASTM D838) 25 Mpa, modulus kelenturan (13 mm/min, ASTM D790A) 1000 Mpa, temperatur terdefleksi (0.455 Mpa, 4.64 kg/cm, ASTM D648) 95°C dan temperatur leleh DSC (10°C/min, ASTM D3418) 121-163°C. Clay yang digunakan yaitu bentone SD1. Selain itu, digunakan pula



Gambar 5. a. Modulus tarik PP-clay, b. kekuatan tarik dari PP-clay^[25].

maleic anhydride dan inisiator diphenylamine GR (DPA).

Prosedur Percobaan

Semua bahan yaitu PP, MA, DPA dan OC ditimbang sesuai dengan perhitungan pada Tabel 1. Semua bahan dibuat sebanyak 4 kali dan dimasukkan ke dalam plastik.

Setelah bahan ditimbang, semua bahan dicampur di dalam alat *Haake Rheomix*. Parameter rheomix yang digunakan adalah sebagai berikut: suhu alat 190°C, waktu 20 menit dan kecepatan rotor 120 rpm. Daya tampung maksimum alat untuk sekali bekerja adalah 60 gr. Material yang telah selesai dicampur kemudian dibentuk pellet di dalam *crusher Tatung co 4-35647*.

Setelah nanokomposit berbentuk pelet, bahan dimasukkan ke dalam cetakan berdiameter 14 cm, tebal 2 mm dan massa 28 gr (untuk pengujian tarik) serta tebal 4 mm dan massa 56 gr (untuk pengujian HDT dan kelenturan). Selanjutnya cetakan dimasukkan ke dalam *Compression Molding Collin P300P*. Sebelumnya cetakan diolesi *Max Mold Release Wax Megulars Mirror Glaze*. Parameter *compression molding* adalah 180°C, waktu 30 menit, tekanan 1 bar dari fase 1 sampai fase 5.

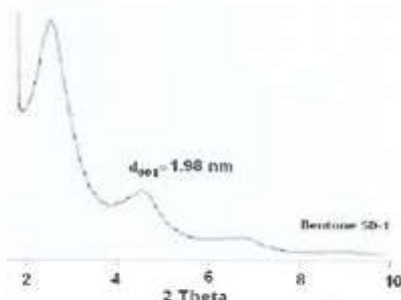
Sampel nanokomposit yang sudah jadi, kemudian dipotong untuk pengujian tarik dengan pisau *punching Mini test press-10 Toyo Seiki*, sesuai dengan dimensi untuk uji tarik. Selain itu, dilakukan juga pemotongan sample dari cetakan *hot press* disesuaikan dengan ukuran sesuai standar pengujian untuk HDT dan bending dengan gergaji mesin BS350 GÖLZ selanjutnya permukaan dihaluskan dengan mesin gerinda DS041175 Rema.

Pengujian Difraksi sinar-X

Seperti halnya difraksi cahaya oleh kisi (*optical grating*) atau kristal dengan struktur berulangannya yang teratur maka memungkinkan pula terjadinya difraksi dari radiasi yang memiliki panjang gelombang yang setara dengan jarak antar atom, yaitu

Tabel 1. komposisi bahan

Wt %	PP (gr)	OC (gr)	MA (gr)	DPA (gr)
0	67	-	2.01	-
1	67.32	0.68	1.36	0.17
3	63.05	1.95	3.9	0.48
5	58.9	3.1	6.2	0.77
7	55.8	4.2	8.4	1.05



Gambar 7. Spektre XRD organoclay bentone SD-1^[26].

sekitar 1Å. Radiasi itu dapat berupa radiasi sinar-X, elektron dan neutron. Difraksi sinar-X merupakan teknik yang sangat luas digunakan untuk karakterisasi polimer, khususnya untuk mendapatkan informasi keadaan kristalin maupun amorf. Ketika berkas elektron berinteraksi dengan atom maka sebagian akan diabsorpsi, diteruskan dan sebagian lagi dihamburkan. Berdasarkan hukum Bragg^[26],

$$n \lambda = 2 d \sin \theta \dots\dots\dots (\text{Persamaan 3 1})$$

dapat ditentukan kemungkinan adanya interkalasi atau eksfoliasi pada lapisan silika karena adanya penetrasi oleh polimer ke dalam lapisan *clay*.

Gambar 7 merupakan spektra XRD dari bentone SD1 setelah dimasukkan surfaktan. Penambahan surfaktan mengindikasikan peningkatan jarak antar lapisan akibat interkalasi molekul organik, *d-spacing* SD1 adalah 1.98 nm.

Pengujian

Seluruh pengujian baik termal maupun mekanik dilakukan di Sentra Teknologi Polimer, Serpong. Pengujian XRD dilakukan di Universitas Gajah Mada menggunakan XRD dengan sumber Cu. Pengamatan TEM dilakukan di Lembaga Eijkmann Jakarta menggunakan JEM-1010 JEOL *Electron Microscope*. Sebelum dilakukan pengamatan TEM, sampel terlebih dahulu dipotong menggunakan REICHERT ULTRACUT S Leica.

a. Pengujian Sifat Mekanik

Uji Tarik

Uji tarik bertujuan untuk mengevaluasi reaksi mekanik dari material sehingga dapat

diketahui tegangan atau kecepatan deformasinya. Pengujian ini memberikan grafik tegangan terhadap regangan dimana dari informasi tersebut dapat diamati modulus tank atau mengindikasi kekakuan material, kekuatan material, regangan maksimum. Uji tarik dilakukan menggunakan alat Shimadzu AGS 10kNG SPL-10kN. Sebelum melakukan pengujian, seluruh material yang telah dikondisikan pada suhu 23°C, Rh 50% selama 48 jam. Pada saat pengujian, suhu ruangan 24.1°C, Rh 54.5%. Kemudian mengukur lebar dan tebal seluruh sampel (PP-MA 0 wt%, PP-SD1 1 wt%, PP-SD1 3 wt%, PP-SD1 5wt%, PP-SD1 7wt%) yang akan diuji tarik dengan jangka sorong digital DIGIMET. Selanjutnya mengeset peralatan dan komputer. Peralatan telah terkomputensasi. Pengujian ini menggunakan standar ASTM D838 IV.

Uji Kelenturan

Uji kelenturan dilakukan dengan menggunakan alat Shimadzu AGS 10kNG SPL-10kN. Untuk pengujian kelenturan, terlebih dahulu mengubah parameter peralatan dan komputer dari uji tarik menjadi uji lentur. Peralatan telah terkomputensasi. Pengujian ini berdasarkan standar ASTM D790.

b. Pengujian Sifat Termal

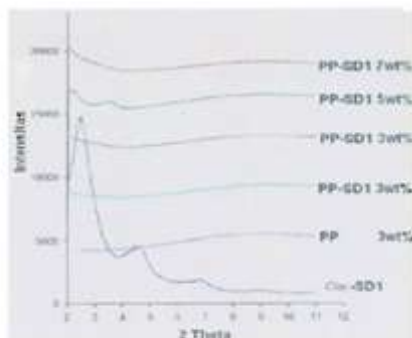
Pengujian dilakukan dengan alat HDT Lauda FRANK Prüfgerate GmbH 40071. Sebelum melakukan pengujian, disiapkan dulu PP-MA 0wt% dan PP-SD1 1wt% pada temperature 23°C, Rh 50% selama 48 jam kemudian mengukur lebar dan tebal seluruh specimen (PP-MA 0wt% dan PP-SD1 1wt%) yang akan diuji HDT dengan jangka sorong lalu sampel tersebut dimasukkan ke dalam alat. Uji HDT ini menggunakan standar T1-029 (ISO75).

HASIL DAN PEMBAHASAN

1. Hasil Karakterisasi XRD

XRD adalah cara untuk mengkarakterisasi pembentukan nanokomposit. Dari spektra XRD yang dihasilkan dapat diamati kemungkinan adanya struktur interkalasi atau eksfoliasi pada lapisan silika yang menyebabkan kemungkinan adanya penetrasi PP ke dalam lapisan *clay*.

Gambar 8 memperlihatkan hasil difraksi dari PP, *clay* SD1 dan nanokomposit PP-SD1. Pada Gambar 8, *clay* SD1 menun-



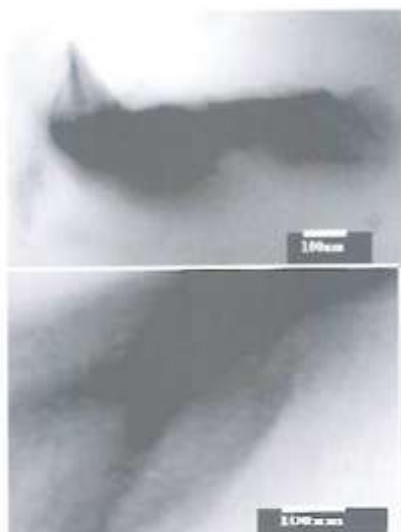
Gambar 8. Difrakogram PP, *clay* SD1 dan nanokomposit

jukkan puncak difraksi pada sudut $2\theta = 4.54^\circ$ setara dengan 198 nm. Kurva difraksi PP merupakan kurva tipikal untuk polimer dan merupakan kurva acuan untuk sampel nanokomposit. Untuk kurva 1 wt% PP-SD1, 3 wt% PP-SD1 dan 5 wt% PP-SD1 tidak terlihat adanya puncak difraksi. Hal ini menunjukkan bahwa untuk 1 wt% PP-SD1, 3 wt% PP-SD1 dan 7 wt% PP-SD1, lapisan *clay* tidak terinterkalasi melainkan terjadi struktur eksfoliasi. Pada 5 wt% PP-SD1 terjadi interkalasi pada *galleries* dan menyebabkan kenaikan *d-spacing* pada sampel nanokomposit yang dihasilkan. Posisi puncak untuk PP-SD1 dengan kandungan *clay* 5 wt% pada $2\theta = 3.64^\circ$ setara dengan *d-spacing* sebesar 2.41 nm. Jelas terlihat adanya kenaikan *d-spacing* dan 198 nm menjadi 2.41 nm, dan ini menunjukkan lapisan *clay* terinterkalasi.

2. Hasil Pengamatan TEM

Pengamatan TEM dilakukan terhadap PP-SD1 dengan kandungan *clay* 1 wt% dan 7 wt%. Citra TEM dari 1 wt% PP-SD1 ditunjukkan pada Gambar 9. Pada Gambar 9 dapat terlihat bahwa *clay* tersebar tidak merata pada material tetapi dari citra tersebut dapat terlihat juga adanya struktur interkalasi dan aglomerasi pada nanokomposit. Bagian gelap menunjukkan lapisan *clay* sedangkan bagian terang menunjukkan matriks PP.

Sedangkan pada citra TEM 7 wt% PP-SD1 yang terlihat di Gambar 42b terlihat seperti ada formasi kosong pada bagian yang gelap. Dengan perbesaran tidak dapat terlihat lapisan-lapisan.



Gambar 9 Citra TEM a. 1 wt% PP - SD1, b. 7 wt% PP-SD1.

3. Analisa Hasil Uji Tarik

Modulus tarik nanokomposit PP tertera pada Gambar 10. Dari Gambar 10 dapat dilihat bahwa modulus tarik nanokomposit memiliki kecenderungan meningkat dibandingkan dengan PP meskipun saat kandungan clay 3 wt% nilai modulus mengalami penurunan dan 0.58 GPa untuk 1 wt% menjadi 0.56 GPa untuk 3 wt%. Penurunan ini tidak terlalu berpengaruh karena nilai modulus ini tetap lebih besar dibandingkan PP. Pada kandungan clay 7 wt% memiliki kenaikan modulus lebih tinggi dibandingkan kandungan clay 1 wt%, 3 wt%, 5 wt% yaitu sebesar 0.098. Nilai modulus tarik yang dihasilkan pada penelitian ini lebih rendah dibandingkan dengan literatur pada Gambar 5 karena pada penelitian ini PP telah mengalami pencampuran dengan MA. Pencampuran ini dapat menurunkan sifat mekanik [21]. Seharusnya saat gugus fungsi MA dimasukkan ke dalam PP tegangan lebih efisien ditransfer dari matriks PP menuju filler organik sehingga sifat mekanik mengalami peningkatan.

Dari Gambar 11 dapat dilihat kekuatan tarik pada nanokomposit bertambah pada kandungan clay 1 wt%, 3 wt%, 5 wt% dan PP sedangkan turun pada 7 wt% PP-SD1. Penurunan ini menjadi 12.7 Mpa. Hal ini

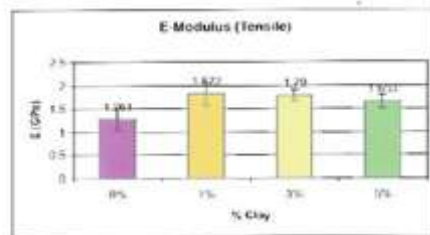
disebabkan sifat dari clay yang dapat mendukung sifat material menjadi lebih brittle [22].

Baik modulus maupun kekuatan tarik dari nanokomposit hasilnya lebih baik daripada PP murni. Perbedaan yang jauh dengan literatur terjadi karena pada proses pembuatan nanokomposit dalam mesin hot press kurang maksimal. Hal ini didukung oleh citra TEM PP-SD1 yang dihasilkan.

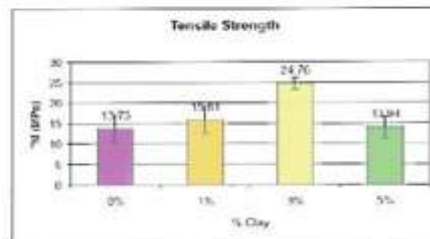
4. Analisa Hasil Uji Lentur

Pada Gambar 12 modulus kelenturan meningkat hanya pada kandungan clay 1 wt% sebesar 0.06 dibandingkan dengan PP. Sedangkan untuk 3 wt% dan 7 wt% mengalami penurunan. Pada kandungan clay 5 wt% tidak dimasukkan datanya karena pada proses compression molding temperatur berbeda. Hal ini dikarenakan pada suhu yang sama dengan kandungan clay yang lain, sampel tidak dapat terbentuk. Hasil penelitian tidak berbeda jauh dengan literatur pada Gambar 6.

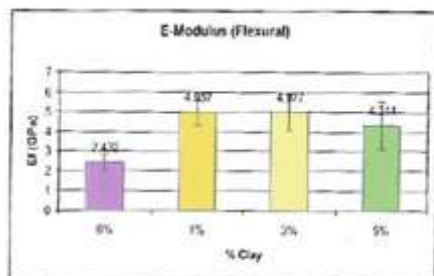
Pada Gambar 13 dapat diketahui penurunan nilai kekuatan kelenturan pada kandungan clay 1 wt%, 3 wt% dan 7 wt% sekitar 6.5 % dibandingkan dengan PP. Pada Gambar 13 dapat terlihat penurunan



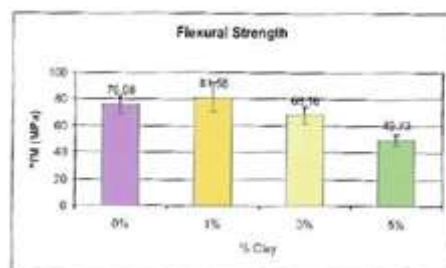
Gambar 10. Modulus tarik nanokomposit PP.



Gambar 11. Kekuatan tarik nanokomposit PP.



Gambar 12 Modulus kelenturan nanokomposit PP.



Gambar 13. Kekuatan kelenturan nanokomposit

kekuatan kelenturan pada nanokomposit PP-SD1 dimana seharusnya pada literatur Gambar 6 mengalami kenaikan. Hal ini disebabkan sifat dari *clay* yang jika komposisinya di dalam PP ditambah maka dapat mendukung sifat material menjadi lebih *brittle* [30].

5. Analisa Hasil Uji Termal

Pengujian termal yang dilakukan adalah uji HDT. Hasil uji HDT dapat dilihat pada Tabel 4.1. Uji HDT ini akan memperlihatkan penyebaran dalam ukuran nano dari *bentone* SD1 pada matriks PP.

Pada pengujian ini data yang diambil sangat terbatas sehingga belum dapat menunjukkan apa pun dampak dari struktur nanokomposit PP-*clay* tapi dari dua data yang ada terlihat adanya penurunan suhu

Tabel 4.1 Hasil uji HDT

Kandungan <i>clay</i> (wt%)	HDT
0	57.3 °C
1	56.9 °C

komposisinya di dalam PP ditambah maka dapat mendukung sifat material menjadi lebih *brittle* [30].

dari PP-SD1 1 wt% terhadap PP murni. Hal ini berbeda dengan hasil yang diperlihatkan pada literatur dimana seharusnya suhu mengalami kenaikan karena adanya penambahan *clay* pada PP. Penurunan ini disebabkan kurang baiknya stabilitas mekanik dari nanokomposit [31].

KESIMPULAN DAN SARAN

Kesimpulan

Kesimpulan yang dapat ditarik dari penelitian tentang karakterisasi mekanik dan termal polypropylene-bentone SD1 antara lain sebagai berikut:

1. Dari hasil difraktogram XRD didapatkan struktur interkalasi untuk 5 wt% PP-SD1 dan eksfoliasi pada 1 wt% PP-SD1, 3 wt% PP-SD1 dan 7 wt% PP-SD1. Hal ini menunjukkan adanya penetrasi PP ke dalam lapisan *clay*.
2. Dari hasil pengamatan TEM didapatkan struktur interkalasi yang menunjukkan adanya penetrasi lapisan *clay* ke dalam matriks PP.
3. Dari hasil uji tarik 7 wt% PP-SD1 memiliki modulus tarik tertinggi sedangkan untuk kekuatan tarik 1 wt% PP-SD1 yang memiliki nilai tertinggi.
4. Dari hasil uji kelenturan, hanya 1 wt% PP-SD1 nanokomposit yang meningkat daripada PP untuk nilai modulus lentur sedangkan untuk kekuatan mengalami penurunan. Penurunan disebabkan sifat dari *clay* yang jika komposisinya di dalam PP ditambah maka dapat mendukung sifat material menjadi lebih *brittle*.
5. Penurunan HDT pada nanokomposit PP-SD1 dibandingkan PP dapat dipengaruhi oleh proses pembentukan nanokomposit.

Saran

Penelitian ini terbatas oleh jumlah sampel sehingga diperlukan sampel lebih banyak lagi. Untuk mengetahui efek dari MA terhadap nanokomposit secara pasti perlu diadakan penelitian dengan pembandingan PP murni saja tanpa dicampur dengan MA.

Ucapan Terima Kasih

Penelitian ini dilakukan sebagai bagian dari program insentif riset dasar yang didanai Kementerian Negara Riset dan Teknologi. Tim peneliti mengucapkan terima kasih atas semua kontribusi yang telah diberikan demi kesuksesan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- 1 Grasia, M., Van Mliet, G., Jain, S., Schrauwen, B A G., Sarkissov, A., E. Van Zyl, W. and Boukamp, B., "Polypropylene/SiO₂ Nanocomposites With Improved Mechanical Properties". *Rev Adv Mater Sci* 6: 169-175. 2004
- 2 Chen K H., and Yang S M. 2002. "Synthesis Of Epoxy-Montmorillonite Nano-composite". *Journal of Applied Polymer Science*, 86: 414-421.
- 3 Zeng, Q H., Yu, A B., (Max) Lu, Q., and Paul, D R. "Clay-Based Polymer Nanocomposites; Research and Commercial Development". *J Nanosci Nanotech* 5: 10. 2005
- 4 Le Baron, Peter C., Wang, Zhen., and Pinnavaia, T J. 1999. "Polymer Layered Silicate Nanocomposite: An Overview". *Applied Clay Science*; 15:11-29.
- 5 Ma, J., Qi, Z., and Hu, Y., "Synthesis and Characterization Of Polypropylene/Clay Nanocomposites". *J Appl Polym Sci*; 82: 3611-7. 2001
- 6 Labaik, Banjar. *Kajian Terhadap Bentonit di Kabupaten Tasikmalaya dan Kemungkinannya Dijadikan Bahan Pembersih Minyak Sawit (CPO)*. Departemen Energi dan Sumber Daya Mineral Badan Geologi. Bandung. 1999
- 7 ErbstOh. "The Clay Bentonite : A Fascinating Natural Substance and Its Application In Beverage Treatment". *ErbstOh Getränke-technologie*. German. 2006
- 8 Ross, C S and Shannon E V., Minerals Of Bentonite and Related Clays, and Their Physical Properties. *Am Ceram Soc*, 9: 77-96. 1926
- 9 Grim, Ralph E. *Applied Clay Mineralogy*. Mc-Graw Hill Book Company, Inc. New York. 1962
- 10 The Clay Mineral. 1999.
- 11 Giannelis, E P., R Krishnamoorti, and E Manias. "Polymer-Silicate Nano composite: Model Systems For Confined Polymers and Polymer Brushes". *Advances in Polymer Science*. Vol 138. 1999
- 12 Onal, MÜçerref, Yüksel Sarıkaya, Tulay Alemdaroglu, and Ihsan Bozdoğan. Isolation and Characterization Of A Smectite As A Micro-Mesoporous Material From A Bentonite. *Turk J Chem*, 27: 683-693. 2003
- 13 Vaccari., *A Course Of Mineralogy*. Translation Ed. Peace Publishing Moscow. 1998
- 14 Othmer, Kirk., *Encyclopedia Of Chemical Technology*. 4th ed Vol 6. John Wiley and Sons Inc. 1995
- 15 Libes, Susan M., *An Introduction To Marine Biogeochemistry*. John Wiley and Sons Inc. Canada. 1992
- 16 Billmeyer, Fred W JR., *Textbook Of Polymer Science*. 3rd ed. Singapore. John Wiley and Sons. 1994
- 17 <http://en.wikipedia.org/wiki/Polypropylene> .*Polypropylene*.
- 18 Mark, H F., *Encyclopedia Of Polymer Science and Technology*. Vol IV Crystallinity 1969
- 19 Fujiwara, S., Sakamoto T. 1976. *Kokai Patent Application*. no. SHO 51 (1976)-109998
- 20 Kato, M., Mitsumasa Matsushita, and Kenzo Fukumori. Development Of A New Production Method For A Polypropylene Clay-Nanocomposites. *Polymer Engineering and Science*; 4: 1205-1211. 2004
- 21 Juwono, A.L., S. Kencana, Sutarno, H. and Subawi., Mechanical Properties and Fracture Mechanisms Of Epoxy-Clay-Versamide 125 Nanocomposites. *Proceeding The 15th International Conference On Composites / Nano Engineering (ICCE-15)*. China. 2007
- 22 Yano, K., Usuki A., Okada A., and Kurauchi T. 1991. "Synthesis and Properties Of Polyimide-Clay Hybrid". *Polymer Prep.*, 32(1) 65. Japan
- 23 Dennis, H.R., Hunter D., Chang D., Kim S., and Paul D.R. "Effect Of Melt Processing Condition On The Extent Of Exfoliation In Organoclay-Based Nanocomposites". *Polymer*, 42: 9513-9522. 2001
- 24 Ke, Y C and P Stroeve. 2005. *Polymer-Layered Silicate and Silica Nanocomposites*. Elsevier.
- 25 Liu, X H., and Q J Wu. *Polymer* 43: 1933. 2002
- 26 Monami, A., K Reincke, W Grellmann, and B Kretzschman. *Mechanical and Fracture Mechanical Properties Of Polypropylene /Layered Silicate Nanocomposites*. Germany.
- 27 Manias, E., A Touny, L Wu, K Strawhecker, B Lu, and T C Chung., "Polypropylene/Montmorillonite

- Nanocomposite: Review Of The Synthetic Routes and Materials Properties". *Chem Mater*, 13: 3516-3523. 2001
- 28 Cullity, B. D., *Elements Of X-Ray Diffraction*. 2nd Edition. Addison-Wesley Publishing Company, Inc. 1978
- 29 Roseno, Seta *Karakteristik Morfologi, Mekanik, dan Termal Hibrid Thermoplastic Linoselulose-Nanocomposites Berbahan dasar Lempung Lokal*. BPPT. Jakarta. 2007.
- 30 Ray, S. Sinha, and M. Okamoto., *Prog. Polym. Sci.* 28: 1539-1641. 2003