

Peningkatan Sifat Mekanik Polimer Epoksi Akibat Penambahan *Multi-Wall Carbon Nanotube* (MWCNT) Dengan Fraksi Berat 5% Melalui Metode Dispersi Ultrasonik

D. Abdullah^{1*}, H. Judawisastra¹, M. Siswosuwarno¹, M. Karina²

¹Prodi Teknik Material, Fakultas Teknik Mesin dan Dirgantara, Institut Teknologi Bandung, Ganesha 10, Bandung 40132, Indonesia

²Pusat Penelitian Fisika, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia - LIPI, Jl. Sangkuriang (komplek LIPI), Bandung 40135 Indonesia

*Corresponding author: dawamdullah@yahoo.com

Abstrak

Multi-Wall Carbon Nanotube (MWCNT) merupakan salah satu material nano terpenting sejak ditemukan pada tahun 1991 karena memiliki keunggulan berupa sifat mekanik yaitu kekuatan dan kekakuan yang sangat tinggi. Kekuatan tariknya sekitar 200 GPa, sedangkan kekakuannya mencapai 1,2 TPa. Dengan sifat mekanik sebesar ini, MWCNT memiliki potensi untuk dijadikan sebagai penguat bahan polimer seperti epoksi, tetapi MWCNT memiliki kecenderungan membentuk aglomerasi terutama pada fraksi berat lebih besar dari 2%, sehingga menghambat efek penguatannya pada komposit. Di dalam penelitian ini, dilakukan upaya untuk mengatasi masalah ini dengan cara meningkatkan dispersi MWCNT melalui metode ultrasonik dan pembersihan dengan larutan asam $H_2SO_4.1M/HNO_3.1M$ (3:1). Metode ultrasonik dilakukan dengan parameter berupa : sonikator tipe probe , frekuensi 20 kHz, daya 150 watt, durasi 3 menit dan media pendispersi kloroform ($CHCl_3$). Komposit dibuat menggunakan cara press-dingin dengan fraksi berat MWCNT 5%. Dari pengujian tarik didapatkan hasil bahwa dengan penambahan 5% MWCNT terjadi peningkatan kekuatan dan kekakuan epoksi masing-masing 109% dan 69%. Peningkatan sifat mekanik ini dapat dijelaskan dari hasil amatan terhadap permukaan bidang patahan menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) yang menunjukkan ukuran aglomerat MWCNT dan interaksi antarmuka MWCNT-epoksi. Karakterisasi *X-Ray Diffraction* (XRD) dan Spektroskopi Raman melengkapi analisis pengaruh pembersihan MWCNT yang juga turut berkontribusi terhadap peningkatan sifat mekanik komposit.

Kata kunci : MWCNT, komposit, epoksi, dispersi, ultrasonik

I. Pendahuluan

Multi-Wall Carbon Nanotube (MWCNT) merupakan material nano terpenting sejak ditemukan pertama kali pada tahun 1991^[1]. Material ini menjadi perhatian penting dalam teknologi nano karena struktur dan sifatnya yang sangat unik^[2]. Kekuatan tarik MWCNT mencapai 200 GPa, jauh lebih tinggi daripada serat karbon yang hanya 3-7 GPa, sedangkan kekakuannya dapat mencapai 1,2 TPa, atau lima kali lipat lebih besar daripada serat karbon^[3-7]. Oleh sebab itu, merujuk pada sifat mekanik ini MWCNT memiliki potensi sebagai penguat di dalam sistem komposit polimer^[8-13]. Salah satu jenis polimer yang banyak digunakan sebagai matriks dalam komposit struktural adalah epoksi.

Permasalahan dalam sistem komposit MWCNT-epoksi adalah penambahan jumlah

MWCNT lebih besar dari 2% berat ternyata tidak meningkatkan kekuatan dan kekakuannya, bahkan cenderung menurun^[14-19]. Tidak tercapainya peningkatan kekuatan dan kekakuan komposit MWCNT-polimer yang dinyatakan dalam prinsip *Rule of Mixture* (ROM) disebabkan oleh dispersi, ikatan antarmuka dan orientasi/*alignment*^[20,21]. Dalam penelitian ini dilakukan upaya untuk mengatasi masalah ini dengan cara meningkatkan dispersi MWCNT melalui metode ultrasonik dan pembersihan dengan larutan asam.

II. Metode Eksperimen

Material MWCNT yang digunakan dalam penelitian ini diperoleh dari Chengdu Alpha Nano Tech, Co.,Ltd (OD > 50 nm), sedangkan resin epoksi dan hardener berjenis *digycydyl ether of bisphenol-A* (DGEBA) dan *polyaminoamide*

(PAMAM) perbandingan 1:1 keduanya bermerk Epochson produk PT. Justus Kimia Raya. Larutan asam yang digunakan adalah asam sulfat (H_2SO_4) dan asam nitrat (HNO_3) (Merck, Co). Untuk media pendispersi, digunakan larutan kloroform ($CHCl_3$) produk PT. Bratachem.

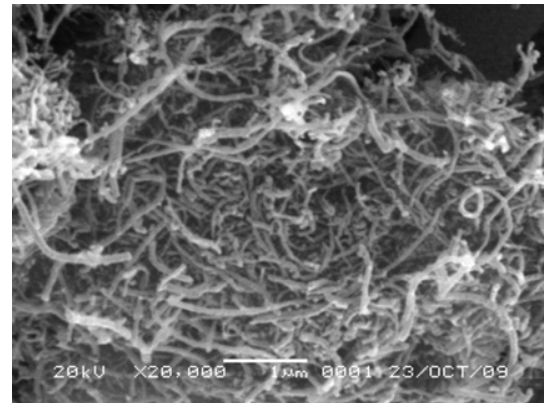
Sebelum diproses menjadi komposit, MWCNT terlebih dahulu dibersihkan menggunakan larutan H_2SO_4 .1M / HNO_3 .1M (3:1) dengan metode refluks selama 30 menit pada temperatur $100^\circ C$. MWCNT kemudian didispersikan kedalam media kloroform ($CHCl_3$) menggunakan alat ultrasonik merk B. Braun Labsonic U Homogenizer dengan parameter : daya 150 watt, *duty cycle* 75% dan durasi 3 (tiga) menit. Larutan MWCNT-kloroform hasil pendispersian dicampur dengan resin epoksi, kemudian diuapkan dengan cara dipanaskan sehingga yang tersisa hanya MWCNT-epoksi saja. Pencampuran MWCNT-epoksi dan *hardener* dilakukan pada temperatur kamar ($25^\circ C$) dan fraksi berat MWCNT 5%. Press dingin dengan tekanan konstan 50 kg/m^2 dilakukan pada adonan di dalam cetakan dengan tebal 3 mm. Komposit yang sudah *cured* kemudian dilepaskan dari cetakan setelah 12 jam. Untuk membandingkan sifat antara komposit MWCNT/epoksi dan *neat*-polimer maka dibuat juga sampel kontrol berupa *neat*-polimer (epoksi-hardener) dengan proses yang sama.

Dalam penelitian ini dilakukan karakterisasi morfologi MWCNT untuk memastikan bahwa ukurannya berdimensi nanometer dengan menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM). XRD dan Spektroskopi Raman dilakukan untuk mengamati pengaruh pembersihan pada MWCNT. Sifat mekanik (kekuatan dan kekakuan) komposit didapatkan dengan uji tarik menggunakan alat *Universal Testing Machine*, *load range* 500 kgf. Jumlah spesimen per sampel sebanyak empat buah, dengan dimensi dan geometri berdasarkan referensi ASTM 3039. Kecepatan penarikan adalah 1 mm/menit. Pengukuran regangan pada pengujian kekakuan menggunakan ekstensometer dengan *gauge length* : 50 mm dan *strain* maksimal 2 mm. Sedangkan analisa fraktografi berupa pengamatan permukaan patahan dilakukan dengan menggunakan SEM.

III. Hasil dan Diskusi

Material MWCNT yang digunakan di dalam penelitian ini memiliki morfologi sesuai dengan ciri material nano yaitu berukuran 10-100 nm^[22], seperti ditunjukkan pada **Gambar 1**, yaitu tampak bahwa diameter MWCNT kurang dari 100 nm. Pengamatan terhadap geometri MWCNT menunjukkan bahwa strukturnya menyerupai *fiber* (aspek rasio tinggi) dan membentuk kurfatur^[23,24]. Dengan geometri seperti ini menjadikannya mudah

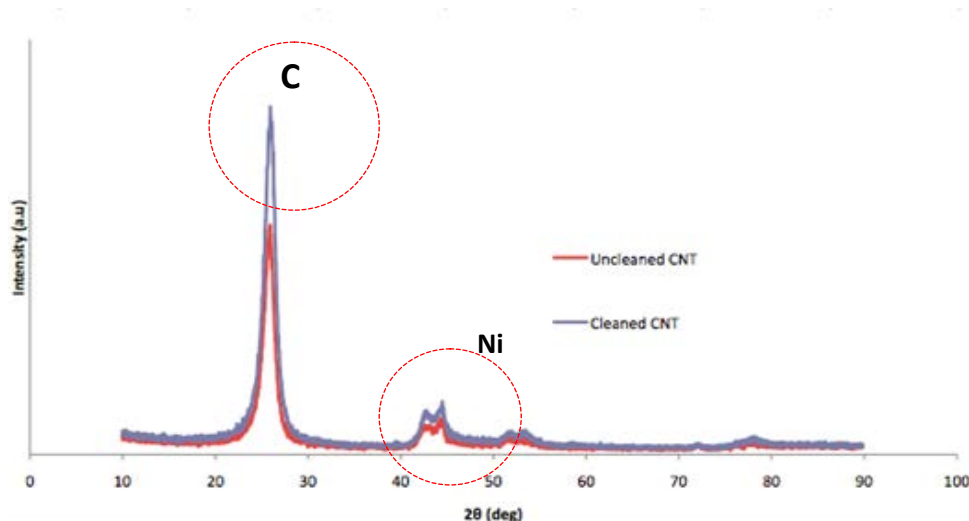
membentuk aglomerat akibat *entanglement* satu dengan yang lain^[25].



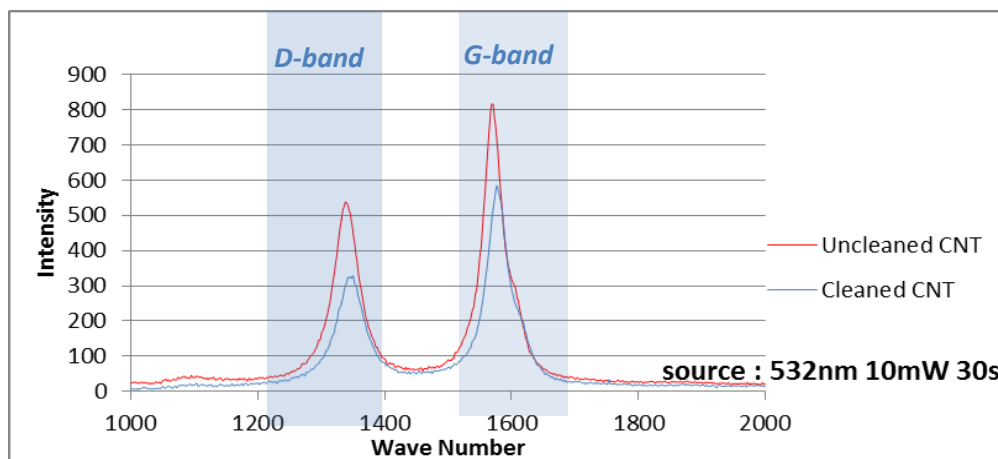
Gambar 1. Foto SEM MWCNT

Efek pembersihan dengan larutan asam pada MWCNT dapat diamati dari hasil karakterisasi XRD seperti ditunjukkan pada **Gambar 2**. Untuk MWCNT yang belum dilakukan pembersihan (warna merah), nilai rasio intensitas puncak Ni (nikel) terhadap C (karbon) adalah 0,35. Sedangkan MWCNT setelah pembersihan (warna biru), rasio intensitas puncak Ni terhadap C berkurang menjadi 0,26. Hal ini menunjukkan terjadinya penurunan unsur Ni yang terkandung di dalam MWCNT. Material nikel merupakan unsur yang tersisa akibat penggunaannya sebagai katalis logam dalam sintesa MWCNT. Unsur pengotor ini harus dikurangi karena dapat mengganggu ikatan antarmuka MWCNT-epoksi^[26].

Efek pembersihan juga diamati dari hasil analisa Spektroskopi Raman seperti tertera pada **Gambar 3**. Melalui analisa raman dapat dibedakan jenis struktur unsur karbon, khususnya karbon grafit (MWCNT) dan karbon amorf. Karbon grafit dicirikan dengan spektrum pada bilangan gelombang 1580 cm^{-1} atau disebut daerah G-band. Sedangkan karbon amorf memiliki bilangan gelombang disekitar 1350 cm^{-1} atau disebut daerah D-band^[26]. Nilai rasio yang membandingkan intensitas D-band terhadap G-band (I_d/I_g) dapat digunakan untuk mengidentifikasi suatu unsur karbon^[26]. Rasio I_d/I_g sebelum pembersihan adalah 0,65 sedangkan setelah pembersihan adalah 0,56. Hal ini menunjukkan terjadinya penurunan nilai I_d/I_g sebesar 0,11. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa *fraksi disorder* (berupa karbon amorf) telah mengalami pengurangan akibat pembersihan. Hal ini sesuai dengan tujuan pembersihan MWCNT yaitu untuk mengurangi unsur karbon amorf yang dapat menghalangi ikatan antarmuka antara MWCNT dan epoksi^[26].



Gambar 2. Karakterisasi XRD MWCNT



Gambar 3. Spektroskopi Raman MWCNT

Pada **Tabel 1** disajikan data hasil pengujian tarik komposit MWCNT/epoksi dan epoksi. Epoksi memiliki kekuatan (σ_m) = 17,6 MPa dan kekakuan (E_m) = 1,13 GPa. Sedangkan komposit MWCNT/epoksi memiliki kekuatan (σ_c) = 36,8 MPa dan Kekakuan (E_c) = 1,91 GPa. Peningkatan kekuatan dan kekakuan komposit terhadap neat-polimer masing-masing adalah 109% dan 69% . Peningkatan ini disebabkan oleh distribusi MWCNT yang merata didalam matriks epoksi akibat pendispersian dengan metode ultrasonik (**Gambar 4**).

Analisa terhadap dispersifitas MWCNT di dalam matriks epoksi dilakukan dengan pengamatan terhadap foto SEM patahan seperti ditunjukkan pada **Gambar 4**. Daerah yang dilingkari dengan warna kuning merupakan daerah aglomerat MWCNT dengan garis-garis putih yang menunjukkan MWCNT. Sedangkan daerah warna gelap merupakan matriks epoksi. Jarak antar

aglomerat dan ukurannya menunjukkan tingkat dispersifitas dari MWCNT. Semakin kecil ukuran aglomerat dan jarak antarannya semakin rata menunjukkan dispersifitas yang semakin baik^[6,27].

Dengan dispersi yang baik maka jumlah antarmuka MWCNT-epoksi menjadi lebih dominan. Dengan demikian, transfer beban antara matriks dan penguat menjadi lebih efisien^[20]. Aglomerat yang berukuran besar akan mereduksi kekuatan dan kekakuan komposit disebabkan pengaruhnya menyerupai defek / cacat pada material yaitu menimbulkan konsentrasi tegangan. Pengaruh ini akan semakin signifikan dengan material matriks yang bersifat getas seperti epoksi^[7].

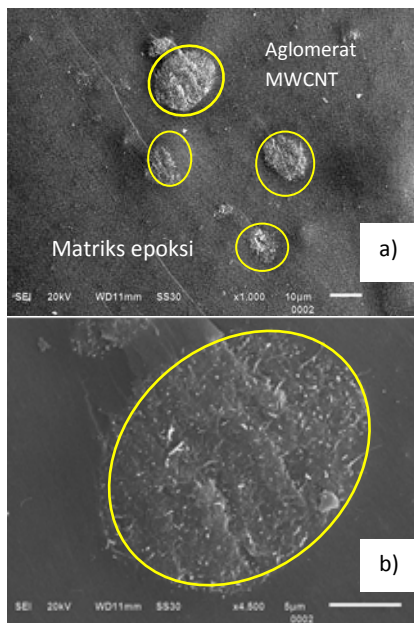
Kondisi ideal yang diharapkan terjadi pada komposit adalah MWCNT dapat tersebar merata di dalam matriks dan keberadaan MWCNT tidak dalam aglomerat namun secara individual^[27]. Dengan distribusi individual maka efek penguatan

akibat MWCNT akan terjadi secara maksimal mengikuti prinsip *Rule of Mixture* (ROM)^[6]. Namun demikian, untuk menghasilkan dispersi semacam ini tidaklah mudah. Dua hal yang menyebabkan kondisi dispersi ideal sulit dicapai adalah geometri MWCNT yang cenderung membentuk *kurvatur-entanglement* dan adanya ikatan *van der Waals* antar MWCNT^[25]. Oleh sebab itu, metode dispersi MWCNT didalam penelitian ini dilakukan dengan metode ultrasonik guna menghasilkan dispersifitas MWCNT seoptimal mungkin.

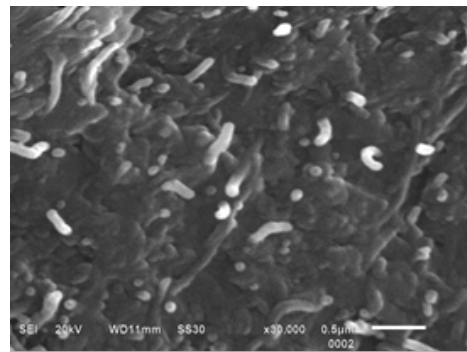
Prinsip ultrasonikasi adalah energi vibrasi yang ditransfer oleh media pendispersi (kloroform) yang dihasilkan oleh getaran ultrasonik probe^[25]. Energi vibrasi ini berupa gelembung mikro menghasilkan gaya geser yang dapat melepaskan *entanglement* dan ikatan *van der Waals* sehingga menyebabkan aglomerat MWCNT pecah^[25]. Mekanisme yang terjadi secara berulang-ulang ini akan memperkecil ukuran aglomerat MWCNT^[20]. Ukuran aglomerat yang semakin kecil menghasilkan distribusi MWCNT yang semakin merata sebagaimana yang diharapkan.

Tabel 1. Hasil Uji Tarik

Sampel	Kekuatan (MPa)	Kekakuan (GPa)
Epoksi	17,6 ± 0,9	1,13 ± 0,21
MWCNT/Epoksi	36,8 ± 0,7	1,91 ± 0,40



Gambar 4. Foto SEM dispersi MWCNT
 :a) perbesaran 1000x ; b) perbesaran 4500x



Gambar 5. Mekanisme *Pull-Out* MWCNT

Pada Gambar 5 ditunjukkan perbesaran daerah aglomerat. Berkas berwarna terang menunjukkan MWCNT yang terlepas dari matriksnya sedangkan bagian gelap adalah matriks epoksi. Disini dapat disimpulkan bahwa modulus kegagalan masih didominasi oleh mekanisme *fiber pull-out* dengan ciri MWCNT yang tercerabut dari matriks. Hal ini mengindikasikan masih lemahnya ikatan antarmuka antara MWCNT dan matriks epoksi. Kualitas ikatan antarmuka MWCNT-matriks yang kurang kuat menyebabkan penguatan terhadap epoksi belum maksimal^[28].

Penelitian komposit MWCNT/epoksi telah dilakukan juga oleh sejumlah peneliti. Hasil-hasil peningkatan sifat mekanik yang dicapai disajikan dalam grafik seperti tertera dalam Gambar 6^[14,16,18,21]. Pada grafik ini ditampilkan persen peningkatan sifat mekanik yang dicapai di dalam penelitian ini (Dawam,2012). Hasilnya menunjukkan bukti bahwa terdapat perbaikan yang signifikan dalam upaya perbaikan sifat mekanik epoksi. Pada beberapa penelitian pambanding (Peres,2008 dan Gozny,2005) bahkan menunjukkan keadaan dimana penambahan MWCNT sama sekali tidak mampu meningkatkan sifat mekanik epoksi .



*Peningkatan bernilai negatif (-) berarti penurunan
Gambar 6. Penelitian pambanding^[14,16,18,21]

IV. Kesimpulan dan Saran

Dari hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa metode ultrasonik telah berhasil mendispersikan MWCNT kedalam matriks epoksi yang dibuktikan dengan foto SEM morfologi patahan. Akibat distribusi yang cukup merata, penambahan MWCNT mampu meningkatkan sifat mekanik polimer epoksi secara signifikan. Disamping itu, perlakuan pembersihan MWCNT terbukti mampu menurunkan jumlah pengotor Ni dan karbon amorf sebagaimana disarankan dalam sintesa komposit MWCNT/epoksi. Penelitian ini mampu menunjukkan hasil perbaikan terhadap penelitian-penelitian sebelumnya yaitu dalam persen peningkatan sifat mekanik (kekuatan dan kekakuan).

V. Ucapan Terima kasih

Kami ucapkan terima kasih bahwa sebagian dana penelitian ini dibiayai oleh DIPA-LIPI 2010

VI. Daftar Pustaka

- [1] J.N. Coleman, Umar Khan, W.J. Blau, Y.K. Gun'Ko, Small but strong : A review of the mechanical properties of carbon nanotube-polymer composite, 2006, Carbon 44 :1624 -1652,
- [2] Iijima S, Helical microtubules of graphitic carbon,1991, Nature
- [3] Hussain F, Hojjati M, Okamoto M, Gorga R E, Review article : Polymer – matrix Nanocomposite, Processing, Manufacturing, and Application : An Overview, 2006, Journal of Composite Materials, Vol.40, No. 17
- [4] Kim J Y, Park H S, and Kim S H, Multiwall-Carbon-nanotube-Reinforced Poly(ethylene terephthalate) nanocomposite by Melt Compounding, 2007, Journal of Applied Polymer Science, Vol.103 : 1450-1457
- [5] Du J H, Bai J, Cheng H M, The present status and key problem of carbon nanotube based polymer composite, 2007, eXPRESS polymer letter Vol.1 no. 5 : 253-273
- [6] Barai P, Weng G J, A theory of plasticity for carbon nanotube reinforced composite, 2011, International Journal of Plasticity 27 : 539-559
- [7] William D. Callister JR, Material Science and Engineering An Introduction, Fourth Edition, 1997, John Wiley & Sons Inc
- [8] Thiebaud F and Gellin J C, Multiwall carbon nanotube/polypropilene composite : investigation of the melt processing by injection molding and analysis of the resulting mechanical behaviour, 2009, Int J Mater form (2009) vol 2 Supl I : 149-152
- [9] Liu T, Tong Y, and Zhang W D, Preparation and Characterization of carbon nanotube/polyetherimide nanocomposite films, 2007, Composite Science and Technology 67 : 406-412
- [10] Johnson B B, Santare M H, Novotny J E, Adveny S G, Wear behaviour of carbon nanotube/ High density polyethylene composite, 2009, Mechanics of Materials 41 : 1108-1115
- [11] Satyanarayana N, Rajan K S S, Sinha S K, Shen L, Carbon nanotube reinforced polyamide thin-film for high wear durability, 2007, Tribol Lett 27 :181-188
- [12] Zoo Y S, An J W, Lim D P, and Lim D S, Effect of carbon nanotube addition on tribological behaviour of UHMWPE, 2004, Tribology Letters, vol 16
- [13] Kuan H C, Ma C C M, Chang W P, Yuen S M, Wu H H, Lee T M, Synthesis, thermal, mechanical and rheological properties of multi wall carbon nanotube/waterborne polyurethane nanocomposite, 2005, composite science and technology 65: 1703-1710
- [14] Montazeri A, and Montazeri N, Viscoelastic and mechanical properties of multi walled carbon nanotube/epoxy composite with different nanotube content, 2011, Materials and design 32 : 2301-2307
- [15] Prolongo S G, Gude M R, Urena A, Improving the flexural and thermomechanical properties of amino-functionalized carbon nanotube/epoxy composite by using a pre-curing treatment, 2011, Composite Science and Technology 71 : 765-771
- [16] F.H. Gojny, M.H.G Wichmann, U Kopke, B Fiedler, K Schulte, Carbon nanotube-reinforced epoxy-composite : enhanced stiffness and toughness at low nanotube content, 2004, Composite Science Technology 64 (2004) 2363-2371
- [17] M. Theodore, M. Hosur, J. Thomas, S. Jaelani, Influence of functionalization on properties of MWCNT-epoxy nanocomposites, 2011, Material science and engineering A 528 (2011) 1192-1200
- [18] A.H. Peres, F. Aviles, A. May-Pat, V. Gonzales, P.J. H. Franco, P. B. Perez, Effective properties of multi wall carbon nanotube/epoxy composite using two different tubes, 2008, composite science and technology 68 : 1422-1431
- [19] P.C.Ma, S.Y. Mo, B. Z. Tang, J. K. Kim, Dispersion, interfacial interaction and re-agglomeration of functionalized carbvon nanotube in epoxy composite, 2010, Carbon 48 :1824-1834
- [20] Bal S, and Samal S S, Carbon nanotube reinforced polymer composite- A state of the art, 2007, Bull. Mater. Scie, Vol. 30, pp. 379-386
- [21] Wang Q, Dai J, Li W, Wei Z and Ziang J, The effect of CNT alignment on electrical conductivity and mechanical properties of SWNT/Epoxy

- nanocomposite, 2008, Composite science and technology 68 : 1644 – 1648
- [22] M. Abdullah, Pengantar Nanosains, 2008, Penerbit ITB Bandung
- [23] Mahfuz H, Zainuddin S, Parker M R, Al-Saadi T, Rangari V K, Jeelani S, Reinforcement of SC-15 epoxy with CNT/CNF under high magnetic field : an investigation of mechanical and thermal response, 2009, J Mater Sci, 44 : 1113-1120,
- [24] Pantano A, Capello F, Numerical model for composite material with polymer matrix reinforced by carbon nanotube, 2008, Meccanica 43 : 263-270
- [25] Bal S, Dispersion and reinforcing mechanism of carbon nanotube in epoxy nanocomposite, 2010, Bull. Mater sci. Vol 33, No. 1, pp. 27-31
- [26] Jung A, Functional Material Based on Carbon Nanotube, 2007, Den Naturewissenschaftlichen Fakultaten der Friedrich-Alexander-Universitat Erlangen-Nurnberg zur Erlangung des Doktorgrades
- [27] Sul I H, Youn J R, and Song Y S, Quantitative dispersion evaluation of carbon nanotubes using a new analysis protocol, 2011, carbon 49 : 1473-1478
- [28] Wernik J M, Meguid S A, Multiscale modelling of the nonlinear response of nano-reinforced polymers, 2011, Acta Mech 217: 1-16