STUDI SINERGI *CROSSLINK AGENT* DAN *COUPLING AGENT* TERHADAP PENINGKATAN KINERJA SIFAT MEKANIK KOMPOSIT POLIETILENA MASSA JENIS TINGGI (HDPE) – TEMBAGA (Cu)

Mashuri[1], A.A. Sujud[1], dan Aloma Karo Karo[2]
[1]Jurusan Fisika FMIPA, ITS
Keputih Sukolilo, Surabaya 60111
[2]Puslitbang Iptek Bahan (P3IB), BATAN
Kawasan Puspiptek Serpong 15314, Banten

ABSTRAK

STUDI SINERGI *CROSSLINK AGENT* DAN *COUPLING AGENT* TERHADAP PENINGKATAN KINERJA SIFAT MEKANIK KOMPOSIT POLIETILENA MASSA JENIS TINGGI (HDPE) - TEMBAGA (Cu). Telah dilakukan penelitian pengaruh *crosslink agent, coupling agent* dan sinerginya terhadap sifat kekuatan tarik bahan komposit HDPE-Cu. *Crosslink agent* yang digunakan *dycumyl peroxide* (DCP) dengan konsentrasi 2% sedang *coupling agent* yang digunakan 3-*amino propyl triethoxysilane* dengan konsentrasi 0,5%. Hasil pengujian menunjukkan rantai ikat silang dan ikatan antar muka matriks-pengisi mampu meningkatkan kekuatan tarik dan perpanjangan putus komposit HDPE-Cu. Sinergi dari *crosslink agent* dan *coupling agent* tersebut dapat meningkatkan kekuatan tarik sebesar 20% dan perpanjangan putus sebesar 23% dari bahan komposit HDPE-Cu.

Kata kunci : *Crosslink agent, coupling agent*, komposit.

ABSTRACT

STUDY OF CROSSLINK AGENT AND COUPLING AGENT SYNERGISM ON MECHANICAL PROPERTIES OF HDPE-Cu COMPOSITES. The effects of crosslink agents, coupling agents and synergism on mechanical properties of HDPE-Cu composites materials has been investigated. The crosslink was made with dycumyl peroxide as crosslink agents of 2% concentration, so the interface adhesion of matrix-filler was made with 3-amino propyl triethoxysilane as coupling agents of 0.5% concentration. The results of researchs showed that the crosslink and interface adhesion of matrix-filler can increase tensile strength and elongation at break of HDPE-Cu composites. The synergism of two agents can increase tensile strength to 20% and elongation at break to 23% of HDPE-Cu composites materials.

Key words : Crosslink agents, coupling agents, composite.

PENDAHULUAN

Bahan komposit merupakan perpaduan antara berbagai jenis bahan yang berbeda, diantaranya logam, keramik dan polimer. Sifat bahan komposit yang dapat dikendalikan dengan cara memilih bahan-bahan penyusun komposit, sehingga menjadikan bahan ini dipilih sebagai salah satu bahan alternatif untuk keperluan dalam rekayasa dan rancang bangun material[1].

Bahan komposit polimer tersusun oleh polimer sebagai matriks dan bahan jenis lain yang dicampurkan sebagai pengisi. Beberapa alasan dipergunakan bahan pengisi dalam komposit antara lain memperbaiki konduktivitas dan difusivitas termal, meningkatkan konduktivitas listrik dan *permeabilitas* magnetik, mereduksi terjadinya *creep*, mereduksi internal *stress*, memperbaiki penampilan produk akhir dan memperbaiki sifat mekanik[2]. Sifat akhir bahan komposit yang dihasilkan sangat bergantung pada karakteristik bahan pengisinya, yang meliputi konsentrasi, bentuk dan ukuran, distribusi partikel pengisi dan terbentuknya ikatan antar muka bahan matriks-pengisi.

Dalam penelitian yang mengkaji sifat mekanik telah dilakukan percobaan pengukuran kebergantungan kekuatan tarik, tegangan luluh, regangan patah serta *modulus elastisitas* pada variasi konsentrasi bahan pengisi. Hasil menunjukkan bahwa bahan pengisi berperanan menurunkan tegangan luluh, kekuatan tarik dan regangan patah tetapi meningkatkan *modulus elastisitas* [3]. Sementara pengisi dari jenis logam (Cu) lebih meningkatkan kekuatan tarik komposit dibanding pengisi dari jenis keramik (Al_2O_3). Sedangkan ukuran partikel pengisi yang makin membesar akan menurunkan regangan patah, yang disebabkan oleh pembentukan

Vol. 2 No. 2, Februari 2001, hal : 7 - 11
ISSN : 1411-1098

sobekan *(craze)* awal pada ikatan antar muka matriks-pengisi [4].

Pada penelitian yang telah dilakukan seperti yang dijelaskan di atas, upaya perbaikan sifat mekanik dengan melakukan upaya perlakuan awal pada bahan matriks maupun pengisi belum dilakukan sehingga pada adesi antar muka matriks pengisi belum terbentuk sehingga akibatnya, transfer tegangan antar fasa terhambat dan terjadi pengumpulan tegangan di daerah antar muka matriks-pengisi. Hal ini mengakibatkan terbentuknya *craze* yang berawal dari daerah antar muka. Dipihak lain bahan polimer mudah terkena retakan regangan *(stress cracking)* tanpa adanya rantai ikat silang [5]. Dengan rantai ikat silang bahan polimer juga akan lebih tahan terhadap pelarut, cuaca dan berkurang sifat rapuhnya pada suhu rendah.

Perlakuan awal pada bahan polimer sebagai matriks dengan melakukan penumbuhan rantai ikat silang dapat dilakukan dengan dua metoda yaitu iradiasi energi tinggi (berkas electron atau sinar-γ) dan menggunakan *crosslink agent* (peroksida). Hasil menunjukan dengan meningkatnya konsentrasi peroksida, kekuatan tarik dan perpanjangan putus polietilena meningkat[5,6,7]. Sedangkan kelemahan ikatan antar muka bahan matriks pengisi dapat diperbaiki dengan membentuk ikatan antar muka dengan menggunakan *coupling agents*[8].

Dari uraian di atas pada penelitian ini bertujuan untuk mengkaji pengaruh *crosslink agent,* pengaruh pemberian *coupling agent* terhadap sifat mekanik komposit polietilena. Selanjutnya mengkaji pengaruh pemakaian secara bersama dalam bentuk sinergi *crosslink agent* dengan *coupling agent* terhadap sifat mekanik bahan komposit HDPE dengan pengisi Cu.

METODA PENELITIAN

Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. HDPE dengan massa jenis 0,968 g/cm^3, MFI 0,58 g/menit, berbentuk butiran yang diproduksi PT Tri Polyta Indonesia., Tbk.
2. Cu dengan massa jenis 8,92 g/cm^3 berbentuk serbuk merupakan produksi PT Cerac Incorporated.
3. 3-*Amino propyl triethoxysilane*, produksi E. Merck Damstadt, Germany.
4. *Dicumyl peroxide*, produksi Gaoqiao Petrochemical Co., China.
5. *Xylene*, produksi E. Merck Damstadt, Germany.

Percobaan

Serangkaian percobaan yang mencakup tahap persiapan dan pengujian dilakukan di dua tempat yaitu Laboratorium Proses Industri, Pusat Penelitian dan Pengembangan Teknologi Isotop dan Radiasi (P3TIR), BATAN, Pasar Jumat, Jakarta Selatan dan Laboratorium Bidang Bahan Industri, Pusat Penelitian dan Pengembangan Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Bahan (P3IB), BATAN, Serpong, Tangerang. Tahap percobaan tersebut adalah :

1. Persiapan

   Coupling agent berupa 3-*amino propyl triethoxysilane* dihidrolisis ke dalam air dengan konsentrasi 0,5% v/v. Selanjutnya masukkan serbuk tembaga (Cu) ke dalam larutan tersebut dan didiamkan selama 1 jam. Tahap berikutnya memisahkan tembaga dari air dengan memanaskan dalam oven pada suhu 100 °C sehingga dicapai terjadinya reaksi hidrolisis antara gugus silanol dari *coupling agent* dengan permukaan serbuk Cu. Penggunaan *crosslink agent* DCP, diambil nilai konsentrasi yang memberikan kontribusi sifat mekanik terbaik dari penelitian pendahuluan yaitu 2%.
2. Pembuatan Sampel

   Sampel uji yang dibuat terdiri tiga macam yaitu:
   a. HDPE/Cu.
   b. HDPE(2% DCP)/Cu.
   c. HDPE(2% DCP, 0,5% CA)/Cu.

   Ketiga macam sampel bahan komposit, serbuk Cu sebagai pengisi konsentrasinya divariasi 0%, 5%, 10%, 15%, 20%, 25% dan 30% v/v. Selanjutnya setelah dilakukan penimbangan dan pencampuran sesuai komposisi sampel, dimasukkan ke dalam alat *Blending Labo Plastomil* model 30R 150 buatan Toyoseiki & Co Jepang, selama 8 menit pada temperatur 150 °C. Setelah tercampur homogen diambil untuk dibuat berupa lembaran film dengan ketebalan 0,5 mm menggunakan alat cetak tekan panas merek Toyoseiki, Jepang dengan tekanan 150 kg/cm^2 dan dipindahkan pada alat cetak tekan dingin dengan merek dan spesifikasi yang sama hingga pada temperatur ruang.
3. Pengujian.

   Pengujian kekuatan tarik dilakukan dengan alat Strograph R1 merk Toyoseiki Jepang. Sampel uji berupa lembaran film, dibuat dengan melakukan pemotongan dengan ukuran mengacu ASTM D-1022-L.

   Identifikasi terbentuknya rantai ikat silang pada HDPE dilakukan uji kristalinitas dengan *X-rays Difractometry* merek Shimadzhu Jepang dan ekstraksi dengan pelarut *xylene* pada temperatur 111 °C selama 24 jam.

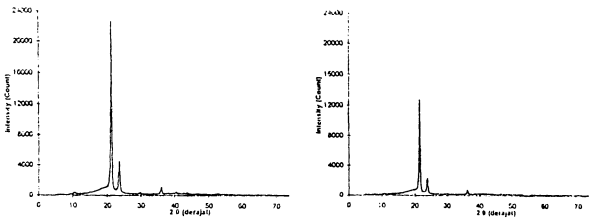
   Untuk mengetahui terbentuknya ikatan antar muka oleh pemberian *coupling agents (CA)* dilakukan pengujian struktur mikro sebelum dan sesudah dilakukan penarikan dengan menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM) merek Philip Type 505.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sifat mekanik bahan komposit polimer ditentukan oleh karakteristik dari bahan polimer dan bahan pengisinya. Upaya perbaikan sifat mekanik dapat

dilakukan perlakuan awal terhadap matriks dan atau bahan pengisi. Perlakuan awal pada matriks polimer salah satunya dengan menumbuhkan rantai ikat silang dengan cara menggunakan *crosslink agents* sedangkan perlakuan awal pada pengisi dengan cara membuat ikatan antar muka matriks-pengisi terbentuk lebih baik dapat dilakukan dengan menggunakan *coupling agents.*

Penumbuhan rantai ikat silang pada polietilena (HDPE) dengan *dicumyl peroxide* (DCP), menunjukkan hasil bahwa pada konsentrasi 2% v/v DCP merupakan nilai terbaik yang memberikan kontribusi meningkatnya sifat kuat tarik dan *elongation at break* dari HDPE[1,2,9,10]. Hal ini sesuai hasil ekstraksi dengan menggunakan pelarut *xylene* fraksi gel yang terbentuk sebesar 96%, dimana gel menunjukkan terbentuknya rantai ikat silang dalam HDPE. Sedangkan hasil dari uji kristalinitas dengan XRD, menunjukkan bahwa terbentuknya rantai ikat silang menyebabkan derajat kristalinitas HDPE menurun dan struktur kristal tidak mengalami perubahan, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1. Penurunan derajat kristalinitas disebabkan terjadinya perubahan dari rantai-rantai linier menjadi rantai yang berikatan silang secara tiga dimensi. Terbentuknya XPE *(crosslinked polyethylene)* inilah yang akan digunakan sebagai matriks komposit HDPE-Cu.



(a) (b)

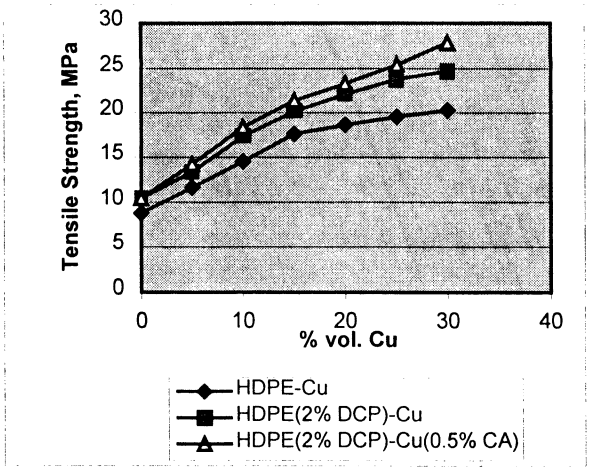
Gambar 1. Difraktogram XRD bahan komposit (a) HDPE (b) HDPE(2% DCP).

Pembentukan ikatan antar muka matriks-pengisi menggunakan *coupling agent 3-amino propyl triethoxysilane* dengan konsentrasi 0,5% v/v, konsentrasi terbaik dalam membentuk ikatan antar permukaan pada bahan komposit[8,11].

Kajian pengaruh *crosslink agent, coupling agent* dan sinergi dari keduanya terhadap sifat kekuatan tarik bahan komposit HDPE-Cu, mencakup kekuatan tarik, perpanjangan putus dan *Modulus Young.*

Kekuatan Tarik

Kekuatan tarik *(tensile strength)* bahan adalah kemampuan bahan dalam menahan tegangan tarikan yang tertinggi sebelum mengalami perpatahan. Hasil pengujian tarik dari komposit HDPE-Cu ditunjukkan Gambar 2. Kekuatan tarik bahan komposit HDPE-Cu meningkat seiring dengan meningkatnya konsentrasi Cu. Peningkatan yang terjadi cenderung linier hingga



Gambar 2. *Tensile strength* komposit HDPE-Cu

konsentrasi 15% sedangkan di atas konsentrasi 15% peningkatan tidak signifikan dan cenderung menuju kejenuhan. Hal ini disebabkan pada konsentrasi Cu (<15%), kontak antar muka matriks-pengisi relatif sedikit sehingga pada saat mengalami deformasi, sobekan awal masih dapat dieliminir oleh matriks HDPE, sedangkan pada konsentrasi Cu (>15%) terjadinya sobekan awal yang terjadi pada ikatan antar muka kurang dapat dieliminir oleh HDPE, demikian juga distribusi kurang homogen dan dimungkinkan terjadinya kontak permukaan antar partikel Cu.

Keberadaan rantai ikat silang dalam HDPE sebagai matriks komposit dapat meningkatkan kemampuan komposit dalam menahan beban penarikan. Hal ini terjadi karena dengan rantai-rantai polimer yang berbentuk ikat silang (rantai jaring) secara tiga dimensi dan terbentuk dengan ikatan kovalen, tegangan penarikan dari luar lebih dapat ditahan (direduksi) oleh matriks sebelum sampai pada kontak permukaan matriks-pengisi. Selain itu dengan struktur rantai ikat silang diharapkan partikel Cu dapat terjebak lebih kuat dalam matriks sehingga daya rekat Cu kuat dan tidah mudah lepas.

Kontak permukaan matriks-pengisi sebagai awal terjadinya sobekan saat pembebanan, dapat direduksi dengan terbentuknya ikatan antar muka yang lebih kuat. Pembentukan ikatan antar muka dengan menggunakan *crosslink agent* dapat meningkatkan nilai kekuatan tarik bahan komposit HDPE-Cu. Terlihat pada konsentrasi Cu (>15%) dimana banyak potensi terjadinya sobekan awal dapat dikurangi dengan efektifnya terbentuknya ikatan antar muka yang dilakukan oleh *coupling agent.*

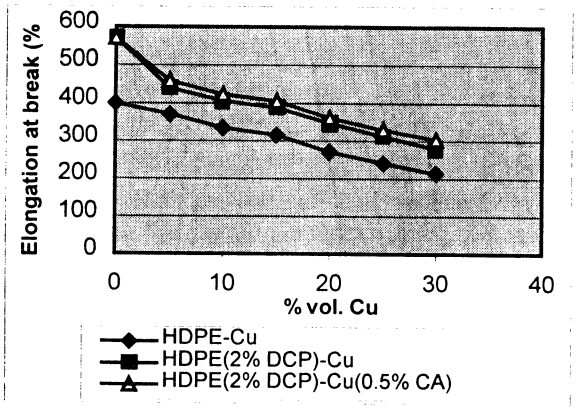
Dengan melihat keefektifan terbentuknya rantai ikat silang dan ikatan antar muka terhadap deformasi, maka dalam penggunaan secara bersama *crosslink agent* dan *coupling agent* membentuk sinergi, kekuatan tarik komposit HDPE-Cu lebih meningkat. Hal ini dikarenakan saat adanya beban tarikan, beban ditahan lebih dahulu oleh matriks yang mempunyai rantai jaring dengan ikatan yang lebih kuat, dan transfer beban dari matriks menuju pengisi lebih mampu di tahan oleh adanya ikatan antar

Vol. 2 No. 2, Februari 2001, hal : 7 - 11
ISSN : 1411-1098

muka-pengisi yang terbentuk dengan baik dan terakhir baru ditanggung oleh Cu sebagai pengisi yang mempunyai kekuatan tarik lebih tinggi dari matriks. Mekanisme pereduksian beban tarikan yang dilakukan oleh HDPE, ikatan antar muka dan Cu berlangsung secara berantai, sehingga dalam bentuk komposit kekuatan tariknya menjadi lebih tinggi sekitar 20%.

Perpanjangan Putus

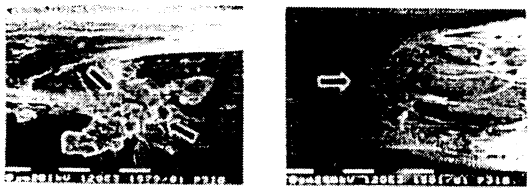
Perpanjangan putus (*elongation at break*) adalah kemampuan bahan dalam menahan beban penarikan hingga keadaan putus. Perpanjangan putus komposit HDPE-Cu mengalami penurunan dengan meningkatnya konsentrasi Cu, seperti yang ditunjukkan Gambar 3. Penurunan perpanjangan putus yang terjadi dikarenakan pada saat pembebanan tarikan, semakin besar konsentrasi Cu semakin besar pula terjadinya potensi sobekan awal pada kontak permukaan Cu dengan HDPE. Kontak antar muka Cu dengan HDPE membentuk ikatan yang ikatannya relatif kurang kuat, terlihat pada hasil foto mikro (SEM) pada Gambar 4(a), nampak setelah mengalami patahan partikel Cu terlepas dari HDPE.



Gambar 3. *Elongation at break* komposit HDPE-Cu

Perlakuan awal pada matriks dengan menumbuhkan rantai ikat silang, ternyata dapat meningkatkan kemampuan perpanjangan putus komposit HDPE-Cu sekitar 11%. Komposit dengan kandungan Cu (<15%v/v), kemampuan putusnya di atas nilai perpanjangan putus bahan HDPE murni dan komposit HDPE-Cu. Hal ini disebabkan struktur rantai ikat silang secara tiga dimensi dengan ikatan jenis kovalen dari matriks HDPE mampu mereduksi beban penarikan serta kelemahan ikatan antar muka matriks pengisi. Sedangkan di atas konsentrasi 15% Cu, perpanjangan putus komposit juga mengalami kenaikan namun dibawah harga perpanjangan putus HDPE murni. Fenomena ini dimungkinkan karena keefektifan rantai ikat silang dalam mereduksi kelemahan ikatan antar muka tidak cukup kuat.

Kelemahan pada ikatan antar muka HDPE-Cu, ternyata dapat diperbaiki dengan menggunakan *coupling agent*. Terlihat kemampuan perpanjangan putus komposit dengan Cu yang telah diberi *coupling agent* lebih tinggi dari komposit HDPE-Cu. Dalam penggunaan secara bersama *crosslink agent* dan *coupling agent* dalam menentukan perpanjangan putus ternyata mampu meningkatkan kemampuan perpanjangan putus sebesar 23%. Hal ini terjadi karena kemampuan komposit dalam menahan beban penarikan lebih kuat, dan sinergi dari keduanya ini mampu mengurangi kelemahan-kelemahan sifat kuat tarik dari komposit HDPE-Cu dari segi matriksnya dan permukaan kontak antara HDPE-Cu, terlihat pada Gambar 4(b) partikel Cu ada kelekatan dengan matriks HDPE saat terjadinya penarikan. Sehingga secara keseluruhan bahwa tegangan tarikan dapat direduksi secara baik dari matriks, ikatan antar muka dan Cu sebagai pengisi yang mempunyai nilai perpanjangan putus lebih tinggi dari HDPE. Mekanisme pereduksian beban tarikan ini terjadi secara berantai sehingga sinergi ini dapat memperbaiki kemampuan perpanjangan putus komposit HDPE-Cu.

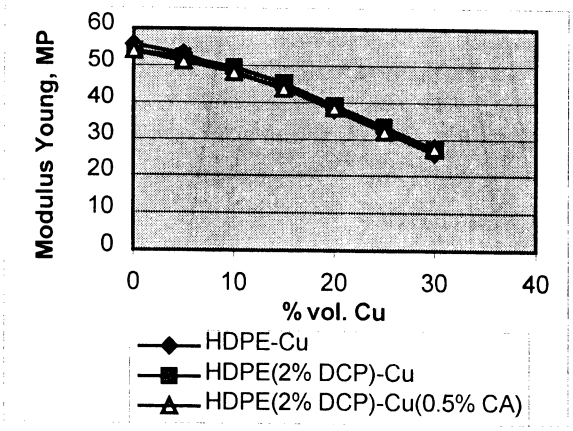


(a) (b)

Gambar 4. Gambar mikro komposit HDPE-Cu sesudah patah (a) HDPE-Cu, (b). HDPE (2% DCP)-Cu(0,5% CA).

Modulus Young

Modulus Young adalah angka yang menggambarkan tingkat keelastisitasan bahan. *Modulus Young* bahan komposit HDPE-Cu menurun dengan meningkatnya konsentrasi Cu. Sedangkan upaya penumbuhan rantai ikat silang dan perbaikan ikatan antar permukaan matriks-pengisi mengalami peningkatan tetapi peningkatan yang terjadi tidak signifikan, seperti yang ditunjukkan Gambar 5. Fenomena ini memberikan gambaran bahwa sinergi *crosslink agent* dengan *coupling agent* pada struktur komposit HDPE-Cu tidak mengubah tingkat keelastisitasan bahan.



Gambar 5. *Modulus Young* Komposit HDPE-Cu

KESIMPULAN

Crosslink agent (DCP) dapat menumbuhkan rantai ikat silang pada HDPE, rantai ikat silang tidak mengubah struktur kristal tetapi menurunkan derajat kristalinitas HDPE. Kandungan rantai ikat silang dalam struktur komposit HDPE-Cu dapat meningkatkan kekuatan tarik dan perpanjangan putus.

Coupling agent dapat meningkatkan daya ikatan antar permukaan HDPE-Cu, sehingga mampu mengurangi potensi terjadinya awal sobekan saat penarikan serta memperlancar transfer tegangan penarikan dari matriks ke partikel Cu sebagai pengisi. Terbentuknya ikatan antar muka matriks-pengisi dengan baik dapat meningkatkan kekuatan tarik dan perpanjangan putus bahan komposit HDPE-Cu.

Sinergi penumbuhan rantai ikat silang dan pembentukan ikatan antar muka matriks-pengisi mampu meningkatkan kekuatan tarik sekitar 20% dan perpanjangan putus sekitar 23% dari bahan komposit HDPE-Cu. Komposisi terbaik bahan komposit yang mempunyai sifat tangguh adalah HDPE (85%)-Cu(15%) dengan nilai kekuatan tarik 21,4 MPa dan perpanjangan putus 406%.

DAFTAR ACUAN

[1]. CHAWLA, K.K, *Composite Materials Science and Engineering*, Springer Verlag, New York (1987)

[2]. TAVMAN, I.H, Thermal and Mechanical Properties of Cooper Powder Filled Poly(ethylene) Composites, *Powder Technology*, **Vol. 91** (1997)

[3]. DARMINTO DAN DIDIEK B.R, *Peranan partikel Pengisi Pada Sifat Tarik dan Hantaran Panas Komposit PE-$CaCO_3$ dan Al_2O_3*, Laporan Penelitian Lemlit ITS, Surabaya (1993)

[4]. CHANG KWON MOON, Efect of Molecular Weight and Fiber Diameter on The Inetrfacial Behavior in Glas Fiber/PP Composites, *Journal of Applied Polymer Science*, **Vol. 67** (1998)

[5]. ANDREOPOULOS, A.G, AND KAMPOURIS, E.M, Mechanical Properties of Crosslinked Polyethylene, *Journal of Applied Polymer and Science*, **Vol. 31** (1986).

[6]. LAMBERT, W.S, AND PHILLIPS, P.J, Structural and Melting Studies of Crosslinked Linear Polyehtylenes, *Polymer*, **Vol. 31** (1990)

[7]. MASHURI, *Studi Pengaruh Agen Ikat Silang Terhadap Sifat Kuat Tarik dan Titik Leleh Bahan Polietilen Densitas Tinggi,* Tesis S2 Pascasarjana Universitas Indonesia, Jakarta (1997)

[8]. EDWIN P. PLUEDDELMANN, *Coupling and Interfacial Agents and Their Effects on Mechanical Properties*, Elsiwer Applied Science Publisher, Dow Corning Co., New York (1986)

[9]. BREMNER, T. AND RUDIN, A., Effects of Polyethylene Molecular Structure on Peroxide Crosslinking of Low Density Polyethylene, *Polymer Engineering and Science*, **Vol. 32** (1992) 14.

[10]. MANLEY, T.R, AND QAYYUM, M.M, The Effects of Varying Peroxide Consentration in Crosslinked Linear Polyethylene, *Polymer*, **Vol. 12** (1971) 3.

[11]. QIANG FU, GUIHENG WANG AND CHUN XIAO LIN, Polyethylene Toughned by $CaCO_3$ Particles: The Interface Behaviour and Fracture Mechanism in High Density Polyethylene/$CaCO_3$ Blends, *Polymer*, **Vol. 36** (1995) 12.