

## Sifat Mekanik dan Terma Nanokomposit Asid Polilaktik/Cecair Getah Asli/ Polianilina Diperkukuhkan Berpenguat Grafina pada Kandungan Rendah (Mechanical and Thermal Properties of Toughened Polylactic Acid/Liquid Natural Rubber/Polyaniline Nanocomposites Reinforced Graphene at Low Loading)

DALILA SHAHDAN, RUEY SHAN CHEN\* & SAHRIM AHMAD

### ABSTRAK

Kajian ini dijalankan bagi mengkaji kesan penambahan bahan pengisi grafina berplat nano (GNP) ke atas sifat mekanik dan terma bagi nanokomposit polilaktik asid (PLA)/cecair getah asli (LNR)/polianilina (PANI). Nanokomposit PLA/LNR/PANI berpengisi GNP disediakan melalui kaedah adunan leburan dengan menggunakan mesin pengadun dalaman. Tahap pengisian kandungan bahan pengisi GNP dipelbagaikan daripada 0.2 sehingga 1.0 % bt. Spesimen yang telah dicirikan melalui ujian mekanik serta analisis termogravimetri (TGA), kalorimetri imbasan pembezaan (DSC) dan analisis kekonduksian terma (TCA) menunjukkan peningkatan sifat yang positif dengan penambahan GNP pada kandungan rendah dalam matriks polimer. Keputusan sifat regangan, hentaman dan kestabilan terma menyatakan kandungan optimum dicapai pada 0.4 % bt. Berdasarkan ujian lenturan dan TCA pula, peningkatan optimum masing-masing didapati pada kandungan yang berbeza iaitu 0.6 dan 0.8 % bt. GNP.

*Kata kunci:* Grafina berplat nano; kekonduksian terma; kestabilan terma; komposit termoplastik

### ABSTRACT

This study was conducted to study the effect of adding graphene nanoplatelets (GNP) nanofiller on the mechanical and thermal properties of polylactic acid (PLA)/liquid natural rubber (LNR)/polyaniline (PANI) nanocomposite. The PLA/LNR/PANI nanocomposites filled with GNP was prepared via melt blending method using an internal mixer. The contents of the GNP fillers were varied from 0.2 to 1.0 wt.%. Specimen was characterized through a series of test such as mechanical test, thermogravimetry analysis (TGA), differential scanning calorimetry (DSC), and thermal conductivity analyzer (TCA) showed positive properties improvement with the addition of GNP at low content in the polymer matrix. The results of tensile, impact, and thermal stability properties indicated the optimum content was achieved at 0.4 wt. %. Based on the flexural and the TCA tests, the optimum improvement was obtained at 0.6 and 0.8 wt. % of GNP, respectively.

*Keywords:* Graphene nanoplatelets; thermoplastic composite; thermal conductivity; thermal stability

### PENGENALAN

Pada masa kini, terdapat pelbagai bidang kajian yang lebih menumpukan penghasilan produk yang lebih ringan, murah, mudah diproses dan mesra alam (Yadav & Cho 2013). Hal ini kerana kemajuan dalam pelbagai lapangan industri yang mendorong kepada peningkatan dalam permintaan terhadap bahan yang lebih ringan, mempunyai kriteria yang lebih baik dari segi sifat mekanik, terma dan dalam masa yang sama merupakan bahan yang mesra alam terutamanya bahan komposit. Pelbagai kajian telah mendapat tarikan dan perhatian daripada ramai penyelidik kerana ia dapat memenuhi kriteria bahan komposit yang diinginkan (Bi & Qiu 2020; Gaska et al. 2017; Kim et al. 2016; Wang et al. 2017).

Namun begitu, pada zaman moden ini, penggunaan bahan komposit adalah lebih meluas dengan pelbagai campuran dan kombinasinya. Sebagai contoh dalam menghasilkan bahan polimer komposit yang mesra alam, matriks biopolimer seperti PLA menjadi pilihan utama kerana bersifat terbiodegradasi dan bioerasi (Pinto et al. 2013b). Sifat istimewa PLA adalah ia memiliki kitaran hidup yang tertutup kerana kitarannya bermula daripada bahan semula jadi seperti jagung dan seterusnya diproses bagi penghasilan asid laktik kepada asid polilaktik untuk diguna pakai dalam pelbagai barang keperluan seperti pembungkusan makanan, seterusnya menjalani proses degradasi yang mengembalikan ia kepada biojisim (Paul et al. 2003). Selain daripada menghasilkan produk baru

bersifat mesra alam, kriteria lain seperti sifat mekanik, terma atau fizikal juga perlu diambil kira.

Selain daripada itu, terdapat juga hasil campuran atau adunan komposit yang memiliki lebih daripada satu jenis polimer. Adunan polimer ini adalah bertujuan untuk mengatasi kekurangan yang terdapat pada polimer tunggal yang digunakan di samping mengubah atau menambah ciri dan sifat sesuatu adunan. PLA sangat dikenali sebagai bahan biopolimer yang kuat, namun sebaliknya ia memiliki satu kekurangan yang paling utama iaitu sifat kerapuhannya yang tinggi. Pengubahsuaian PLA boleh dilakukan dengan penambahan bahan tambahan atau bahan polimer dan pengisi bagi mempertingkatkan sifat ketahanan patahnya. Kajian lapangan ini menggunakan LNR sebagai agen pengukuhan bagi memperbaiki sifat kerapuhan dan kelenturan PLA seperti yang disokong oleh kajian lepas (Rosli et al. 2016). Kajian kepustakaan juga melaporkan pengadunan PLA dengan polihidroksibutirat (PHB) (Arrieta et al. 2014), PANI (Abdul Rahman 2012; Peng et al. 2012; Shah et al. 2017) dan agen penukleusan (pengisi bio, BF) (Simmons et al. 2019).

PLA yang bersifat penebat menjadi penghalang kepada penggunaan PLA dalam pelbagai bidang aplikasi. Namun begitu, bagi membolehkan PLA digunakan dalam bidang elektrik, terdapat beberapa kajian dilakukan dengan mencampurkan PLA dengan bahan polimer berkonduktor. Bahan polimer berkonduktor telah menarik perhatian ramai saintis bermula sejak penemuannya pada tahun 1960 (Bhadra et al. 2009). Bahan polimer berkonduktor yang sering mendapat perhatian adalah PANI. Dalam kajian ini, PANI diadun bersama PLA, dengan pengubahsuaian matriks menggunakan LNR. Penggunaan PANI ini menurut Bhadra et al. (2009) adalah kerana PANI lebih mudah disintesis, kos monomernya rendah, ciri yang boleh diubah dan memiliki kestabilan yang lebih baik berbanding bahan polimer konduktif yang lain seperti polipirol (PPy) dan poli(p-phenylena). Oleh yang demikian, adunan PLA dan PANI dapat menghasilkan satu adunan bahan polimer yang konduktif, terbiodegradasi dan bioserasi.

Secara amnya, penambahan gentian berpenguat dan pengisi sering dilakukan untuk meningkatkan kekuatan dan kekakuan bahan polimer (Hu et al. 2014). Terdapat pelbagai bahan pengisi yang terdiri daripada bahan asli, mineral dan pengisi bukan organik serta gentian yang lebih mahal seperti kaca, karbon dan Kevlar. Penggunaan gentian seperti gentian kaca, karbon atau silika boleh meningkatkan kekuatan dan kekakuan polimer tersebut walaupun pada kandungan pengisi yang sedikit (kurang daripada 5 % bt.) (Chen & Ahmad 2017; Hu et al. 2014; Margolin 2018). Dalam kajian ini, GNP, sejenis bahan pengisi daripada keluarga karbon digunakan sebagai bahan pengisi. GNP adalah bahan pengisi bersaiz nanozarah yang mempunyai ciri dan sifatnya yang unik seperti

sifat terma, elektrik dan mekanik. Kajian terdahulu telah membuktikan keberkesanan penambahan GNP ke dalam matriks polimer LLDPE sangat sesuai digunakan sebagai bahan penghalang kepada penelapan gas dan dalam masa yang sama mengekal dan mengukuhkan parameter utama sedia ada dalam bahan komposit yang dihasilkan (Gaska et al. 2017). Oleh yang demikian, kajian ini akan menjurus kepada penambahan GNP bagi meningkatkan sifat kestabilan terma (akibat kesan penghalang) dan mekanik (bertindak sebagai bahan pengukuh) matriks polimer PLA/LNR/PANI. Serakan bahan pengisi yang baik dan homogen dalam matriks polimer adalah sangat penting untuk mendapatkan morfologi serakan yang baik dan sifat mekanik yang tinggi (Yadav & Cho 2013). Hal ini boleh dicapai dengan menggunakan kaedah rawatan ultrasonik dan rawatan tersebut melibatkan getaran bagi memberikan tenaga kepada bahan pengisi untuk terlepas/terpisah daripada kekangan sekatan persekitaran (Shahdan et al. 2013). Tarawneh et al. (2013) telah menjalankan kajian rawatan ultrasonik pada masa yang berbeza iaitu pada 1, 3 dan 5 jam bagi mendapatkan masa yang optimum untuk memperbaiki serakan tiub nanokarbon berbilang dinding (MWCNT) dalam termoplastik getah asli. Kajian Kadiman et al. (2018) pula telah membuktikan 60 min rawatan sonikasi dapat menghasilkan serakan GNP yang seragam dan sehati.

Walaupun kajian telah banyak dijalankan untuk mengkaji kesan penggunaan GNP sebagai bahan pengisi, namun kesan penambahan GNP ke dalam matriks polimer PLA dan PANI dengan pengubahsuaian matriks menggunakan cecair getah asli (LNR) dengan mengaplikasikan kaedah adunan leburan dengan bantuan rawatan ultrasonik masih belum banyak dijalankan. Objektif kajian ini akan memfokuskan kesan penambahan GNP ke atas nanokomposit PLA/LNR/PANI dengan mengambil kira faktor penambahan GNP pada kandungan yang rendah iaitu daripada 0.2 sehingga 1.0 % bt.

#### BAHAN DAN KAEDAH KAJIAN

Matriks polimer: Kajian ini menggunakan PLA komersial (*Natureworks Ingeo™ Biopolymer 3251D*) yang diperolehi dari Unic Technology Ltd, China. Ia mempunyai nilai ketumpatan  $1.24 \text{ g/cm}^3$  dan indeks aliran lebur 30-40 g/10 min ( $190 \text{ }^\circ\text{C}/2.16 \text{ kg}$ ) berserta suhu takat lebur daripada 188 hingga  $210 \text{ }^\circ\text{C}$ . Getah asli gred SMR-L diperolehi dari Lembaga Getah Malaysia (LGM). Polimer berkonduktif, PANI dibekalkan oleh syarikat E-TEK Co., LTD dari Korea. PANI (berstruktur kimia  $\text{C}_6\text{H}_5\text{N}$ ) yang digunakan dalam kajian ini adalah daripada jenis garam emeraldina berwarna hijau. Bahan pengisi yang digunakan adalah grafin berplat nano (GNP) daripada jenis KNG-150 yang dibekalkan oleh Xiamen Knano Graphene Technology Corporation, China.

#### PROSES PENGADUNAN LEBURAN PLA/LNR/PANI DIPERKUAT GNP

Pengadunan nanokomposit PLA/LNR/PANI/GNP dilakukan melalui penyebatian secara tidak langsung (IDT) secara berasingan pada LNR dan PANI dengan menggunakan kaedah sonikasi selama 1 jam sebelum dicampurkan dengan PLA di dalam mesin pengadun dalaman, diikuti dengan pembentukan sampel adunan melalui tekanan panas/sejuk. Sebelum proses pengadunan dijalankan, PLA dikeringkan di dalam relau pada suhu 80 °C selama 24 jam bagi menyingkirkan lembapan. Pada peringkat pengadunan ini, rawatan sonikasi antara LNR/PANI dan GNP dilakukan selama 1 jam. Pengadunan nanokomposit PLA/LNR/PANI/GNP dimulakan dengan memasukkan palet PLA ke dalam mesin pengadun dalaman terlebih dahulu dan dibiarkan selama 3 min bagi memastikan PLA lebur. Kemudiannya pra-campuran LNR/PANI/GNP terawat dicampurkan ke dalam adunan dan diadun selama 15 min. Kandungan PANI telah ditetapkan pada 0.09 % bt. dan kandungan GNP dibezakan daripada 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 dan 1.0 % bt. Parameter pemrosesan adunan dilaraskan pada suhu 190 °C, kelajuan rotor pada 100 rpm dan masa pemrosesan selama 15 min.

#### PENCIRIAN SAMPEL

##### UJIAN REGANGAN

Ujian regangan digunakan untuk mengukur kekuatan regangan, pemanjangan takat putus dan modulus Young yang dikaji. Ia dilakukan bagi mengkaji daya tarikan sampel dan menentukan sampel boleh meregang sebelum patah. Sampel yang diuji adalah dalam bentuk dumbell. Tebal sampel diukur pada kawasan leher dumbell pada tiga tempat berbeza menggunakan angkup vernier model Mitutoyo ( $\pm 0.01$  mm). Ujian regangan dilakukan menggunakan mesin Testometric M350-10CT berdasarkan piawai ASTM D638-03 Jenis I dengan kelajuan kepala rentas 5 mm/min dan beban 5000 N, digunakan pada suhu dan lembapan atmosfera makmal. Lima sampel diuji dan bacaan purata diambil. Data yang diperoleh diplotkan dalam bentuk graf.

#### PEMERIKSAAN MORFOLOGI MIKROSKOP IMBASAN ELEKTRON (SEM)

Pemeriksaan morfologi ini dijalankan bertujuan untuk melihat morfologi pada kawasan sampel yang telah menjalani ujian regangan menggunakan mikroskop imbasan elektron, *Variable Pressure Scanning Electron Microscopy* (VPSEM). Analisis ini dilakukan untuk melihat morfologi matriks-matriks dan matriks-pengisi. Pemeriksaan dilakukan dengan menggunakan mesin SEM model Philips XL-30. Sebelum pemeriksaan dilakukan, permukaan patah spesimen komposit perlu disalut dengan logam emas bagi mengelakkan sebarang cas daripada berlaku.

#### UJIAN LENTURAN

Ujian lenturan dijalankan mengikut piawai ASTM D790-03 menggunakan mesin Testometric M350-10CT dengan kelajuan kepala rentas 5 mm/min pada suhu dan lembapan atmosfera makmal. Lima sampel diuji dan bacaan puratanya diambil untuk diplotkan dalam bentuk graf.

#### UJIAN HENTAMAN

Ujian kekuatan hentaman Izod dengan takikan menggunakan *Ray-Ran Universal Pendulum Impact System* dilakukan mengikut piawai ASTM 256. Ia dijalankan bagi menentukan kerapuhan dan ketahanan sesuatu sampel terhadap daya yang dikenakan secara tiba-tiba. Melalui ujian ini, tenaga yang diperlukan bagi memecahkan sesuatu bahan dapat diukur. Kelajuan ayunan, berat beban dan tenaga penentuukuran yang digunakan masing-masing adalah 3.46 ms<sup>-1</sup>, 0.452 kg dan 2.765 J. Enam sampel diuji dan nilai purata diambil. Data yang diperoleh diplotkan dalam bentuk graf.

#### DSC

Analisis ini dilakukan dengan menggunakan mesin DSC model *Mettler Toledo-DSC*. Proses pemanasan dilakukan pada julat suhu dari 25 hingga 250 °C dengan kadar pemanasan 10 °C/min. Perbezaan dalam aliran haba direkodkan sebagai fungsi suhu dan masa. Daripada graf, bacaan suhu lebur ( $T_m$ ), suhu peralihan kaca ( $T_g$ ) dan penentuan penghabluran spesimen dapat diambil. Ujian dijalankan di bawah aliran gas nitrogen.

#### TGA

Analisis termogravimetri melibatkan perubahan jisim bahan yang diukur sepanjang peningkatan suhu pada kadar kenaikan suhu yang ditentukan. Bahan yang termeruap menyebabkan kehilangan jisim bahan pada suhu yang tinggi. Maka, suhu penguraian polimer dapat ditentukan dengan pertukaran keadaan bahan berubah daripada pepejal kepada wap. Penganalisis termogravimetri bermodel TGA/STDA 851° (Mettler Toledo) digunakan dalam uji kaji ini. Jisim yang diperlukan adalah kurang daripada 20 mg. Bahan diuji bermula daripada 30 hingga 600 °C dengan kadar pemanasan 10 °C/min. Ujian dijalankan di bawah aliran gas nitrogen.

#### TCA

Kekonduksian terma diukur dengan menggunakan kaedah kilat laser model NETZSCH LFA 447/2-41. Sampel yang diuji adalah dalam bentuk cakera berdiameter 12.7 mm dengan ketebalan 1 mm. Sampel disalut dengan grafit dan kemudiannya diletakkan di dalam relau elektrik. Kaedah laser kilat adalah kaedah yang menggunakan tenaga laser bagi memanaskan permukaan sampel. Suhu yang meningkat melawan masa akan dicatat menggunakan pengesanan inframerah. Tiga maklumat penting yang

boleh diperoleh adalah kekonduksian terma ( $\lambda$ ,  $\text{Wm}^{-1} \text{K}^{-1}$ ), kemerasan haba ( $\alpha$ ,  $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) dan kapasiti ketentuan haba ( $C$ ,  $\text{Jg}^{-1} \text{K}^{-1}$ ). Maklumat rujukan yang digunakan untuk menghitung kapasiti haba ialah 12.7 mm spesimen *pyroceram*. Kekonduksian terma bahan diuji pada suhu 30, 60, 90 dan 120 °C.

## KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

### UJIAN REGANGAN

Berdasarkan data yang diperoleh dalam Jadual 1, penambahan kandungan GNP daripada 0.2 sehingga 1.0 % bt. menunjukkan terdapat peningkatan pada kekuatan regangan bahan adunan sehingga satu nilai optimum GNP diperoleh iaitu pada 0.4 % bt. GNP. Kekuatan regangan nanokomposit didapati meningkat sehingga 24.2 MPa dengan peningkatan sebanyak 17.5%, berbanding sampel PLA/LNR/PANI tanpa GNP dengan kekuatan regangannya adalah 20.6 MPa. Apa yang menariknya adalah peningkatan terhadap sifat mekanik sampel nanokomposit ini diperoleh pada komposisi bahan pengisi yang rendah dalam matriks. Kajian terdahulu turut membuktikan bahawa penambahan GNP pada komposisi peratus berat yang rendah (0.4 % bt.) dapat meningkatkan kekuatan regangan bahan (Pinto et al. 2013a).

Peningkatan kekuatan regangan sampel disebabkan wujudnya interaksi antara muka antara GNP dan matriks PLA/LNR/PANI. Interaksi ini adalah faktor paling utama dalam menentukan kemampuan sampel nanokomposit dalam menahan atau menampung agihan tegasan yang disalurkan padanya. Menurut Yadav dan Cho (2013), ikatan kovalen yang wujud antara adunan polimer dan grafin telah meningkatkan kekuatan ikatan antara muka dan eksfoliasi bahan, seterusnya kekuatan mekanik nanokomposit dapat dipertingkatkan. Oleh itu apabila beban dikenakan, matriks akan mengagihkan beban kepada zarah GNP yang seterusnya akan menampung hampir kesemua bebanan. Manakala nilai kekuatan regangan yang rendah diperoleh adalah disebabkan kekurangan atau kecacatan yang terhasil daripada serakan pengisi GNP yang tidak homogen dalam matriks. Kecacatan ini bertindak sebagai kawasan tumpuan tegasan yang seterusnya menyebabkan ikatan antara bahan pengisi dan matriks putus atau patah.

Jadual 1 menunjukkan bahawa penambahan GNP pada pelbagai komposisi dalam PLA/LNR/PANI turut memberikan peningkatan terhadap modulus regangan. Penambahan GNP dalam polimer matriks didapati meningkat sehingga 1187.4 MPa iaitu sebanyak 24.3% peningkatan berbanding PLA/LNR/PANI dengan nilai modulus regangan 955.31 MPa. Kehadiran grafin dalam matriks polimer mampu menghalang pergerakan segmen rantai polimer apabila tegasan tegangan dikenakan ke atas sampel nanokomposit, seterusnya meningkatkan nilai modulus sampel nanokomposit (Vadukumpully et

al. 2011). Peningkatan nilai modulus regangan sampel nanokomposit pada takat optimum 0.4 % bt. turut dipengaruhi oleh hasil serakan yang homogen dan juga orientasi bahan pengisi di dalam matriks polimer.

Pada masa yang sama, penambahan GNP melebihi 0.4 % bt. menunjukkan sedikit penurunan sifat akibat daripada gumpalan dan serakan GNP yang tidak sekata (seperti yang ditunjukkan dalam mikrograf SEM pada Rajah 1(b)) berbanding sampel takat optimum 0.4 % bt. GNP yang memiliki serakan GNP yang homogen (Rajah 1(a)). Pinto et al. (2013a) turut menyatakan perkara yang sama dengan kandungan GNP yang melebihi takat optimum menyebabkan berlakunya gumpalan yang boleh mengganggu kelebihan dan manfaat yang terdapat pada bahan pengisi GNP sebagai bahan pengukuh. Selain daripada itu, penurunan nilai modulus pada kandungan GNP melebihi takat optimum adalah disebabkan terdapat lengkakan, penggulingan/penggelekan atau pemendekan kepingan-kepingan grafin akibat daripada kesan daya ricihan yang kuat ketika proses pengadunan leburan. Ini menyebabkan nisbah aspek berkurangan dan seterusnya menghalang penyebaran bahan pengisi yang sekata dalam matriks polimer (Galpaya et al. 2012).

### UJIAN LENTURAN

Merujuk kepada Jadual 1, kekuatan lenturan dan modulus lenturan sampel nanokomposit menunjukkan terdapat peningkatan pada kandungan GNP sehingga 0.6 % bt. Peningkatan ini adalah sebanyak dua kali ganda bagi kekuatan lenturan dan sebanyak 4.3% bagi modulus lenturan berbanding sampel tanpa bahan pengisi GNP. Keputusan ini membuktikan bahawa GNP sangat sesuai digunakan untuk bahan pengukuh polimer. Kajian lepas turut menunjukkan arah aliran yang sama dengan penambahan GNP ke dalam matriks polimer boleh meningkatkan sifat lenturan sesuatu bahan nanokomposit (King et al. 2012). Dalam kajian ini peningkatan nilai modulus lenturan dipengaruhi oleh bahan pengisi yang bertindak sebagai bahan pengukuh tegar.

Namun begitu, didapati optimum kandungan GNP tercatat pada kandungan yang lebih tinggi bagi ujian lenturan (0.6 % bt.) berbanding dengan ujian regangan (0.4 % bt.). Keputusan ini boleh dikaitkan dengan perbezaan orientasi tegasan ketika ujian regangan (meregangkan) dan lenturan (membengkok) dengan kekuatan regangan mewakili sejenis tegasan yang bertindak dalam satu arah manakala kegagalan sifat lenturan adalah akibat daripada dua tegasan iaitu tegasan regangan dan mampatan (Chen et al. 2015). Oleh itu, orientasi dan serakan pengisi GNP dalam sistem nanokomposit memainkan peranan yang penting bagi menentukan sifat lenturan sesuatu bahan. Seperti yang dilaporkan oleh Hu et al. (2014), sifat mekanik sesuatu bahan komposit sangat dipengaruhi oleh luas permukaan, nisbah aspek, susunan/aturan pengisi,



kandungan bahan pengisi, serakan dan kekuatan ikatan antara muka pengisi dalam matriks polimer.

#### UJIAN HENTAMAN

Secara umumnya, kekuatan hentaman sesuatu bahan saling bergantung dengan tiga faktor utama iaitu kekuatan ikatan, modulus Young dan tenaga permukaan (Soundararajah et al. 2009). Penambahan GNP pada komposisi yang berbeza menunjukkan terdapat penurunan pada peringkat awal iaitu komposisi nanokomposit pada 0.2 % bt. GNP dan meningkat pada kandungan pengisi sebanyak 0.4 % bt. GNP, kemudiannya menurun semula apabila melebihi takat optimum kekuatan hentaman sampel nanokomposit (0.6-1.0 % bt. GNP) berbanding sampel kawalannya (Jadual 1). Nilai kekuatan hentaman yang tertinggi pada kandungan 0.4 % bt. (dengan peningkatan sebanyak 11%) adalah disebabkan kekuatan ikatan antara muka antara matriks polimer-pengukuh GNP dan modulus Young yang tinggi dalam keadaan serakan GNP yang baik dan dalam struktur yang tereksfoliasi. Hasil kajian terdahulu turut menunjukkan bahawa penambahan bahan pengisi nano dengan serakan pengisi yang baik telah menyebabkan peningkatan terhadap kekuatan hentaman sampel nanokomposit yang dihasilkan (Ahmad et al. 2011). Namun, apabila melebihi 0.4 % bt. GNP, kekuatan hentaman PLA/LNR/PANI/GNP didapati menurun sedikit demi sedikit dan penurunan yang ketara didapati pada 1.0 % bt. GNP iaitu sebanyak 21%. Tren penurunan kekuatan hentaman dipersetujui oleh hasil kajian terdahulu (Jiang & Drzal 2010; Wang et al. 2017) yang mengkaji bahan komposit HDPE/PANI berpengisi GNP. Fenomena ini boleh dikaitkan dengan fakta bahawa GNP adalah sejenis bahan pengisi tegar (Wang et al. 2017), maka kandungan GNP yang tinggi menyebabkan kerapuhan bahan meningkat (nilai kekuatan hentaman semakin rendah).

#### KALORIMETER IMBASAN PERBEZAAN (DSC)

Analisis DSC dilakukan terhadap sampel nanokomposit bagi mengkaji sifat terma bahan. Rajah 2 menunjukkan lengkung kalorimetri bagi sampel PLA/LNR/PANI dan sampel PLA/LNR/PANI pada kandungan GNP yang berbeza. Berdasarkan pada Rajah 2, lengkung suhu peralihan kaca,  $T_g$  bagi kesemua bahan terbentuk pada suhu antara 61 hingga 65 °C, puncak suhu penghabluran,  $T_c$  pula kelihatan pada suhu antara 90 hingga 94 °C, dan akhir sekali suhu takat lebur,  $T_m$  pula wujud antara 169 hingga 177 °C.

Merujuk kepada Rajah 2, apabila bahan pengisi GNP ditambah ke dalam PLA/LNR/PANI,  $T_g$  bahan nanokomposit didapati meningkat berbanding sampel tanpa bahan pengisi GNP. Peningkatan pada  $T_g$  ini adalah kerana mobiliti atau pergerakan molekul yang terhad disebabkan oleh interaksi antara muka antara bahan

matriks dan bahan pengisi yang baik dan juga serakan pengisi yang baik oleh GNP dalam matriks polimer.

Penambahan GNP ke dalam matriks polimer menyebabkan sifat terma bahan meningkat, ini kerana GNP memiliki satah geometri yang membolehkan pengendalian yang lebih berkesan terhadap pergerakan segmen rantaian (Miltner et al. 2006). Didapati  $T_g$  adalah maksimum pada sampel nanokomposit berpengisi 0.4 % bt. GNP. Hal ini adalah bersesuaian dengan nilai optimum pengisi bagi ciri-ciri mekanik yang ditunjukkan dalam Jadual 1 dengan peningkatan nilai  $T_g$  menerangkan bahan berubah daripada amorfus menjadi lebih berkeadaan kaca yang kukuh. Tambahan lagi apabila bahan pengisi grafin berselerak dengan baik dalam matriks, tekstur berkedut dan luas permukaannya yang tinggi mempengaruhi suhu aliran haba eksotermik yang maksimum dengan cara menghalang pergerakan rantaian polimer dan seterusnya menyebabkan peningkatan terhadap suhu  $T_g$  (Saharudin et al. 2017).

Dari segi penghabluran, sampel nanokomposit diperkuat 0.2-0.6 % bt. GNP menunjukkan peningkatan  $T_c$  seperti yang dilihat dalam Rajah 2 dengan anjakan  $T_c$  kepada suhu yang lebih tinggi (dalam anggaran 3 °C) berbanding dengan sampel tanpa GNP. Keadaan ini menunjukkan bahawa GNP bertindak sebagai agen penukleusan di dalam sampel nanokomposit yang dihasilkan (Milani et al. 2013). Menurut Simmons et al. (2019), agen penukleusan boleh meningkatkan kehabluran bahan dengan cara memperkenalkan kawasan nukleasi dan meningkatkan kadar penghabluran, seterusnya dapat meningkatkan sifat mekanik bahan komposit (seperti yang dipersetujui dengan keputusan mekanik dalam Jadual 1). Bagi  $T_m$  pula, bahan nanokomposit menunjukkan  $T_m$  yang lebih tinggi (berbanding sampel kawalan) dengan penambahan GNP sehingga 0.6 % bt. Ini boleh dikaitkan dengan keupayaan penghabluran yang lebih tinggi (Bi & Qiu 2020) seperti yang dibuktikan dalam  $T_c$  dan membuktikan keberkesanan GNP yang bertindak sebagai bahan pengisi yang membolehkan peningkatan yang baik terhadap sifat terma bahan. Namun begitu, apabila GNP bertambah melebihi takat optimum 0.4 % bt. GNP,  $T_m$  menurun (termasuk kadar peningkatan yang lebih rendah bagi 0.6 % bt. GNP) disebabkan terdapat kehadiran fasa pemisahan antara matriks dan pengisi (Murariu et al. 2010).

#### TGA

Analisis termogravimetri (TGA) bagi adunan PLA/LNR/PANI dan nanokomposit diperkuat GNP pada peratus berat yang berbeza ditunjukkan dalam Jadual 2. Seperti yang dapat diperhatikan dalam Rajah 3, adunan PLA/LNR/PANI dan nanokomposit PLA/LNR/PANI/GNP menunjukkan sifat dan kelakuan degradasi terma yang

serupa. Namun, penambahan GNP dalam PLA/LNR/PANI menunjukkan peningkatan yang positif terhadap kestabilan terma bahan adunan dengan lengkung kehilangan berat sampel bergerak ke kanan kepada suhu yang lebih tinggi. Suhu permulaan ( $T_{\text{onset}}$ ) merujuk kepada suhu apabila sampel mula menunjukkan kehilangan berat dalam julat 300 hingga 330 °C. Penambahan GNP walaupun pada kandungan yang rendah telah menyebabkan peningkatan pada  $T_{\text{onset}}$ . Seperti yang telah disenaraikan di dalam Jadual 2,  $T_{\text{onset}}$  bagi sampel PLA/LNR/PANI adalah pada 317 °C, manakala sampel PLA/LNR/PANI dengan kehadiran GNP pula mula menunjukkan penguraian pada suhu yang lebih tinggi iaitu pada sekitar suhu 320-330 °C. Perbezaan peningkatan suhu bagi kestabilan terma sampel nanokomposit adalah sebanyak 3-13 °C. Kestabilan terma sampel nanokomposit didapati meningkat dengan penambahan komposisi GNP daripada 0.2 hingga 1.0 % bt. Peningkatan kestabilan terma bagi sampel PLA/LNR/PANI/GNP nanokomposit boleh melambatkan degradasi matriks dan ini adalah disebabkan oleh beberapa perkara. Pertama, proses pirolisis telah mengakibatkan sekatan fizikal oleh bahan pengisi yang menghalang pelepasan molekul bergas. Kedua, pengasingan nano yang tertakluk kepada rantaian makromolekul. Ketiga, serakan bahan pengisi yang homogen dalam matriks polimer telah menyekat/menghalang pergerakan rantaian molekul (Papageorgiou et al. 2015).

Suhu kehilangan berat 50% ( $T_{50}$ ) adalah suhu penurunan berat sampel adalah sangat mendadak iaitu pada kadar penurunan yang sangat tinggi dan ia juga merujuk kepada titik infleksi. Kesemua sampel PLA/LNR/PANI dengan kehadiran GNP menunjukkan nilai  $T_{50}$  yang lebih tinggi, iaitu pada julat suhu 356-369 °C berbanding sampel PLA/LNR/PANI yang berlaku pada sekitar 351 °C. Peningkatan terhadap kestabilan terma ini adalah disebabkan penggunaan GNP dalam matriks polimer yang telah menghasilkan sampel nanokomposit PLA/LNR/PANI/GNP yang optimum dengan hasil serakan GNP yang baik dalam matriks PLA/LNR/PANI. Serakan GNP yang baik membantu peningkatan terhadap kestabilan terma nanokomposit (Yadav & Cho 2013). Kesan penambahan GNP ke dalam matriks polimer menyebabkan halangan terhadap pengaliran haba di dalam polimer dan seterusnya melambatkan kemerosotan terma sampel nanokomposit dan meningkatkan suhu kemerosotan sampel. Pada kehilangan berat sampel sebanyak 50%, peningkatan terhadap kestabilan terma sampel nanokomposit 0.2 dan 0.4 % bt. GNP adalah masing-masing sebanyak 6 dan 17 °C berbanding sampel tanpa GNP.

Pada suhu penguraian akhir ( $T_{\text{akhir}}$ ) bahan nanokomposit, didapati peratus kehilangan berat sampel lebih tinggi berbanding bahan PLA/LNR/PANI tanpa GNP. Peratus berat baki sampel nanokomposit adalah seperti yang disenaraikan dalam Jadual 2. Penguraian bahan

nanokomposit GNP adalah sedikit perlahan berbanding sampel tanpa bahan pengisi. Ini kerana terdapat halangan pada pergerakan rantaian polimer yang berhampiran dengan permukaan grafin (Kim et al. 2010). Didapati pada  $T_{\text{akhir}}$  iaitu pada suhu melebihi 450 °C, baki sampel nanokomposit yang diperoleh adalah pada kuantiti yang lebih tinggi berbanding bahan adunan PLA/LNR/PANI iaitu dalam anggaran 3-5 % bt. baki sampel yang tinggal. Peningkatan terhadap suhu penguraian dengan penambahan GNP membolehkan ia digunakan pada suhu yang lebih tinggi dan seterusnya memperbaiki kelemahan yang sememangnya dimiliki oleh bahan polimer iaitu memiliki suhu degradasi yang rendah berbanding bahan seramik dan logam (Galpaya et al. 2012). Peningkatan terhadap kestabilan terma sampel dan suhu akhir penguraian sampel membuktikan bahawa bahan pengisi grafin berkebolehan sebagai bahan rencat nyala (Milani et al. 2013).

#### TCA

Seperti yang diplotkan dalam Rajah 4 pada suhu 30 °C, didapati kekonduksian terma sampel nanokomposit polimer meningkat dengan peningkatan kandungan GNP. Pada kandungan GNP yang rendah iaitu pada 0.2 dan 0.4 % bt., kekonduksian terma tidak menunjukkan peningkatan berbanding sampel PLA/LNR/PANI. Walau bagaimanapun, kekonduksian terma semakin bertambah dengan peningkatan kandungan bahan berpengisi GNP. Namun pada komposisi yang lebih tinggi iaitu pada 0.6 dan 0.8 % bt. GNP, kekonduksian terma bahan adalah tinggi dan nilai ini didapati menurun pada 1.0 % bt. GNP. Kajian yang dijalankan oleh Teng et al. (2011) turut membuktikan terdapat peningkatan terhadap kekonduksian terma sampel apabila kandungan bahan pengisi bertambah. Terdapat beberapa faktor yang boleh mempengaruhi penghantaran terma bagi bahan komposit iaitu darjah eksfoliasi, orientasi dan interaksi antara muka (Kim et al. 2010). GNP yang tereksfoliasi akan menghasilkan serakan pengisi yang homogen dan interaksi antara muka yang kuat (< 0.6 % bt. dalam kes ini) membolehkan aliran dan sentuhan haba dan fonon-fonon antara pengisi-matriks dan pengisi-pengisi seterusnya dapat meningkatkan kekonduksian terma bahan. Bagi faktor orientasi platlet pula, kekonduksian adalah lebih tinggi dalam arah penjajaran grafit berbanding berorientasikan serenzang anisotropi atau rawak (seperti dalam kes ini disebabkan dengan kaedah pengadunan leburan).

Nilai kekonduksian terma yang lebih rendah dengan penambahan GNP pada kandungan yang rendah (0.2 dan 0.4 % bt. GNP) dalam matriks polimer berkemungkinan disebabkan oleh serakan bahan pengisi GNP yang baik dalam matriks polimer. Menurut Xie et al. (2005),

bagi menghasilkan nanokomposit CNT dengan ciri kekonduksian terma yang baik adalah sangat penting sekiranya dapat mengawal pembentukan agglomerasi CNT dalam matriks polimer. Ini kerana dengan mengawal pembentukan gumpalan bahan pengisi dapat menghasilkan rangkaian saling hubung yang sesuai untuk pemindahan haba. Namun, serakan bahan pengisi yang terpencil dan jauh antara satu sama lain akan menghasilkan sentuhan yang sedikit atau tiada sentuhan antara bahan pengisi menyebabkan kecekapan kekonduksian terma yang rendah (Xie et al. 2005). Seperti yang telah dibincangkan oleh Han dan Fina (2011), secara teori, dalam senario bahan pengisi yang tersebar dengan sangat baik tanpa bersentuhan antara satu sama lain dan pemindahan haba berlaku dengan persekitaran matriks menyebabkan sukar untuk mensasarkan bahan/sampel yang mempunyai pengaliran haba yang cekap. Tambah mereka lagi, keutamaan bagi pengaliran tenaga terma sepanjang zarah yang membentuk rangkaian perkolasi adalah merupakan konsep asas di sebalik penggunaan nanozarah yang sangat konduktif dan tinggi nisbah aspek seperti CNT. Sememangnya bahan pengisi yang memiliki kekonduksian terma yang tinggi mampu memindahkan atau menggerakkan fonon, tetapi pemindahan atau pergerakan fonon adalah perlahan pada antara muka polimer-pengisi bagi sampel nanokomposit yang disebabkan oleh ciri-ciri amorfus polimer yang memiliki kekonduksian terma yang rendah serta ikatan antara muka yang tidak sempurna (Huxtable et al. 2003). Fonon boleh dikatakan sebagai penyebab kepada pengkonduksian terma bagi polimer bersifat amorfus, oleh itu, penyerakan fonon atau impedans akustik yang tidak sepadan hendaklah dikurangkan dalam sampel komposit pengaliran terma (Papageorgiou et al. 2015).

Selain itu, kehadiran eksfoliasi grafin boleh menyebabkan pengurangan penyerakan fonon dengan mewujudkan satu ikatan yang kuat antara bahan pengisi dan matriks polimer. Ia juga disebabkan struktur satah monolapisan  $sp^2$  grafin yang rosak/cacat ketika proses penyediaan sampel nanokomposit, hal ini menyebabkan pembentukan yang terganggu antara pengisi-pengisi dan pengisi-matriks seterusnya nilai kekonduksian sampel menurun (Galpaya et al. 2012).

Sementara itu, sampel pada komposisi 0.6 dan 0.8 % bt. menunjukkan peningkatan pada kekonduksian terma dan ini berkemungkinan pada komposisi kandungan GNP yang banyak memiliki perkolasi yang lebih baik bagi mewujudkan pembentukan rangkaian kekonduksian terma. Peningkatan adalah paling tinggi pada komposisi nanokomposit bahan pada 0.8 % bt. GNP, dengan peningkatan sebanyak 29% berbanding sampel PLA/LNR/PANI tanpa bahan pengisi (Rajah 4) pada suhu yang sama iaitu pada 30 °C. Kim et al. (2010) menyatakan bahawa kandungan pepejal yang tinggi iaitu grafin menyumbang kepada peningkatan terhadap kekonduksian terma nanokomposit. Ini menunjukkan bahawa terdapat pemindahan fonon dalam GNP nanokomposit dan juga penyebaran fonon dalam matriks polimer dan penyebaran balistik di dalam bahan pengisi (Ahmad et al. 2011).

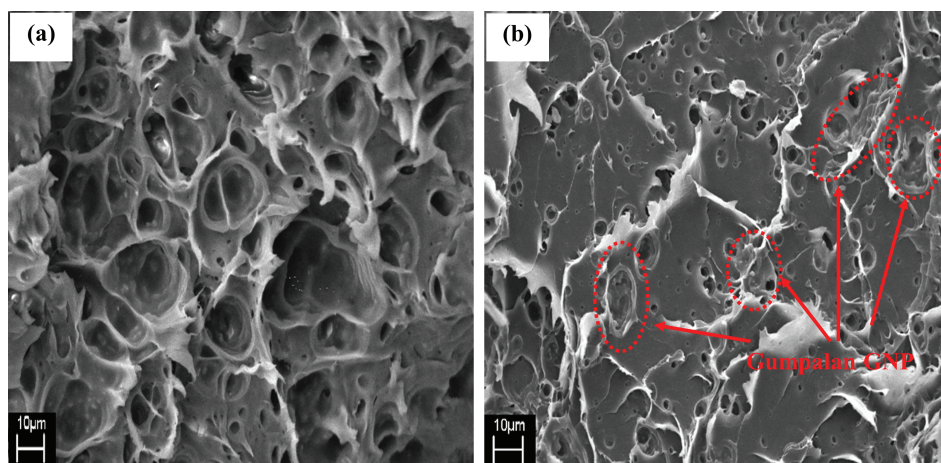
Namun pada komposisi yang lebih tinggi iaitu pada 1.0 % bt. GNP, berkemungkinan terdapat gumpalan-gumpalan GNP yang lebih besar dengan jarak antara pengisi-pengisi dan pengisi-matriks yang berjauhan mengganggu laluan rangkaian haba dan menghalang pergerakan fonon. Keadaan ini berkemungkinan akan menyebabkan nilai kekonduksian terma yang diukur menurun.

JADUAL 1. Sifat mekanik nanokomposit PLA/LNR/PANI dengan GNP pada kandungan berbeza

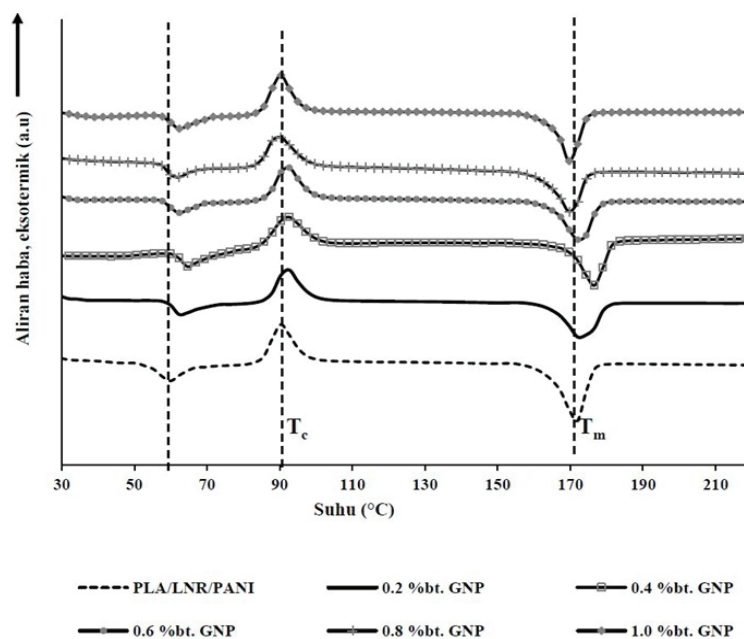
Sampel	Kekuatan regangan (MPa)	Modulus regangan (MPa)	Kekuatan lenturan (MPa)	Modulus lenturan (MPa)	Kekuatan hentaman (kJ/m <sup>2</sup> )
PLA/LNR/PANI	20.6±0.7	955.3±21.3	13.8±3.8	3245.2±1.4	1.9±0.1
0.2 % bt GNP	21.1±0.5	1079.0±22.4	15.6±0.8	3297.5±19.8	1.8±0.1
0.4 % bt GNP	24.2±0.4	1187.4±1.8	23.7±0.5	3323.3±22.1	2.1±0.2
0.6 % bt GNP	22.8±0.2	1156.7±44.2	46.2±3.9	3409.9±57.2	1.9±0.2
0.8 % bt GNP	19.2±0.7	1124.2±14.4	42.8±2.1	3132.4±34.6	1.7±0.3
1.0 % bt GNP	17.4±1.7	1043.1±45.6	32.1±3.2	3098.6±19.9	1.5±0.2

JADUAL 2. Data diperoleh daripada termogram TGA/DTG bagi adunan PLA/LNR/PANI dan PLA/LNR/PANI/GNP

Sampel	$T_{\text{onset}}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	$T_{50}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	$T_{\text{akhir}}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	Berat akhir (%)
PLA/LNR/PANI	300.0	351.7	450.0	1.6
0.2 % bt. GNP	322.0	357.5	532.5	3.8
0.4 % bt. GNP	328.3	369.2	544.2	3.7
0.6 % bt. GNP	322.5	358.0	474.2	4.4
0.8 % bt. GNP	325.0	352.0	450.8	4.3
1.0 % bt. GNP	327.5	357.5	456.7	4.9

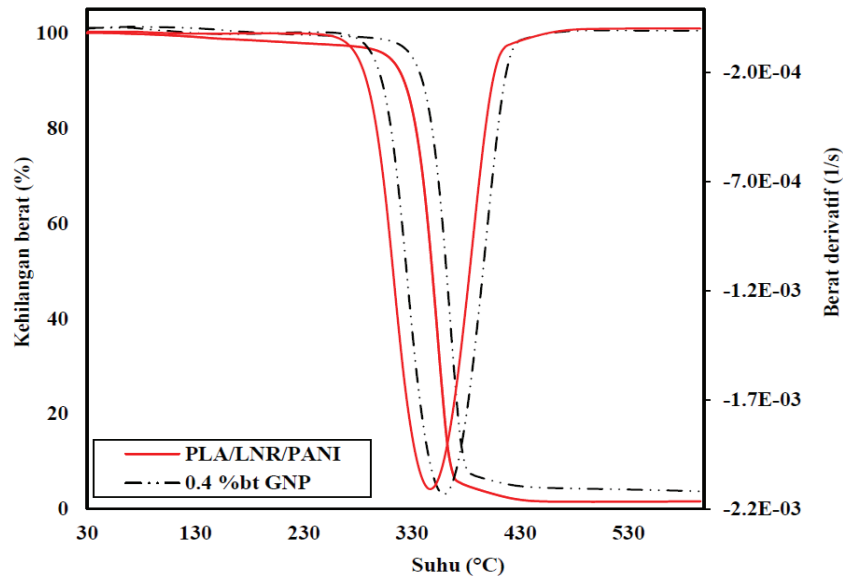


RAJAH 1. Mikrograf SEM bagi nanokomposit PLA/LNR/PANI pada (a) 0.4 % bt. GNP dan (b) 1.0 % bt. GNP

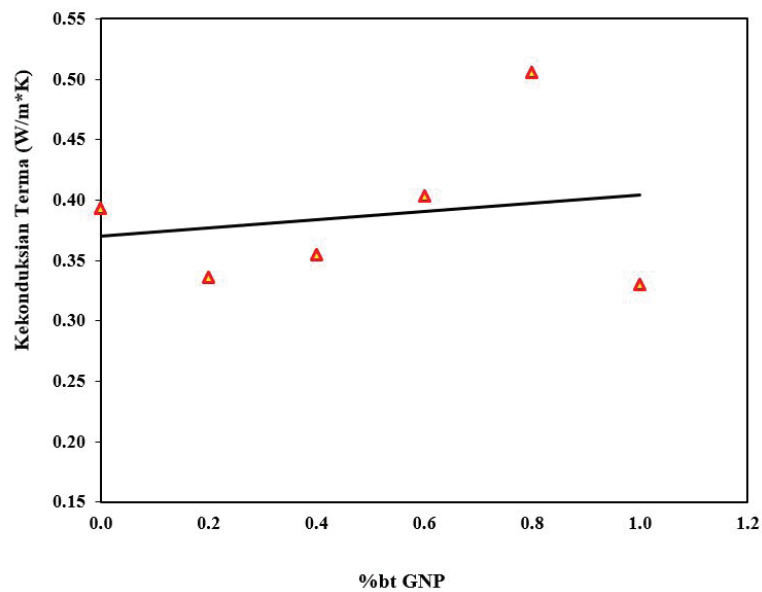


RAJAH 2. Termogram pemanasan DSC bagi PLA/LNR/PANI dan PLA/LNR/PANI/GNP dengan penambahan kandungan GNP yang berbeza





RAJAH 3. Termogram TGA bagi adunan PLA/LNR/PANI dan PLA/LNR/PANI/GNP



RAJAH 4. Kesan penambahan GNP dengan kandungan yang berbeza terhadap kekonduksian terma pada suhu 30 °C

#### KESIMPULAN

Secara kesimpulannya, penghasilan nanokomposit PLA/LNR/PANI berpengisi GNP telah berjaya dihasilkan. Berdasarkan kepada keputusan dan data yang dikumpulkan, penambahan GNP telah meningkatkan keseluruhan sifat

mekanik dan terma bahan nanokomposit pada kandungan GNP yang rendah, tidak melebihi 1.0 % bt. Berdasarkan keputusan ujian regangan dan hentaman, optimum kandungan GNP dicapai pada 0.4 % bt. dengan kekuatan regangan sebanyak 24.2 MP a, modulus regangan sebanyak

1187.4 MPa dan kekuatan hentaman sebanyak 2.1 kJ/m<sup>2</sup>. Pada 0.4 % bt., TGA dan DSC menunjukkan kestabilan terma yang paling baik. Namun, keputusan ujian lenturan menunjukkan peningkatan yang paling besar pada 0.6 % bt., iaitu setinggi 46.2 MPa bagi kekuatan lenturan dan 3409.9 MPa bagi modulus lenturan. Analisis kekonduksian terma pula menunjukkan peningkatan sifat kekonduksian dengan penambahan GNP yang bersifat elektrik dan tersebar homogen dalam matriks polimer dan peningkatan itu berlaku sehingga 0.8 % bt. GNP. Pada kandungan GNP yang tinggi iaitu 1.0 % bt., didapati kekonduksian terma menurun secara mendadak. Lebih banyak kesan penambahan GNP dapat dikaji pada masa akan datang seperti sifat elektrik dan mikro-gelombang.

#### PENGHARGAAN

Penghargaan ditujukan kepada geran penyelidikan DIP-2018-031 dan FRGS/1/2018/STG07/UKM/01/2 Universiti Kebangsaan Malaysia (UKM) dan CRIM UKM yang telah banyak membantu dan melancarkan penyelidikan ini.

#### RUJUKAN

- Abdul Rahman, N., Easteal, A.J. & Travas-Sejdic, J. 2012. Electrospun nanofibres of PLA/PANI and PLA/P (ANI-co-m-ABA): Thermal studies. *Materials Science Forum* 700: 137-140.
- Ahmad, S.H., Yahya, S.Y. & Rasid, R. 2011. Reinforced thermoplastic natural rubber (TPNR) composites with different types of carbon nanotubes (MWNTS). *Carbon Nanotubes-Synthesis, Characterization, Applications*. London: IntechOpen.
- Arrieta, M.P., Castro-López, M.d.M., Rayón, E., Barral-Losada, L.F., López-Vilariño, J.M., López, J. & González-Rodríguez, M.V. 2014. Plasticized Poly(lactic acid)-Poly(hydroxybutyrate) (PLA-PHB) blends incorporated with catechin intended for active food-packaging applications. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 62(41): 10170-10180.
- Bhadra, S., Khastgir, D., Singha, N.K. & Lee, J.H. 2009. Progress in preparation, processing and applications of polyaniline. *Progress in Polymer Science* 34(8): 783-810.
- Bi, T. & Qiu, Z. 2020. Synthesis, thermal and mechanical properties of fully biobased poly(butylene-co-propylene 2,5-furandicarboxylate) copolyesters with low contents of propylene 2,5-furandicarboxylate units. *Polymer* 186: 122053.
- Chen, R.S. & Ahmad, S. 2017. Mechanical performance and flame retardancy of rice husk/organoclay-reinforced blend of recycled plastics. *Materials Chemistry and Physics* 198: 57-65.
- Chen, R.S., Ab Ghani, M.H., Ahmad, S., Salleh, M.N. & Mou'ad, A.T. 2015. Rice husk flour biocomposites based on recycled high-density polyethylene/polyethylene terephthalate blend: Effect of high filler loading on physical, mechanical and thermal properties. *Journal of Composite Materials* 49(10): 1241-1253.
- Galpaya, D., Wang, M., Liu, M., Motta, N., Waclawik, E.R. & Yan, C. 2012. Recent advances in fabrication and characterization of graphene-polymer nanocomposites. *Graphene* 1(2): 30-49.
- Gaska, K., Kádár, R., Rybak, A., Siwek, A. & Gubanski, S. 2017. Gas barrier, thermal, mechanical and rheological properties of highly aligned graphene-ldpe nanocomposites. *Polymers* 9(7): 294.
- Han, Z. & Fina, A. 2011. Thermal conductivity of carbon nanotubes and their polymer nanocomposites: A review. *Progress in Polymer Science* 36(7): 914-944.
- Hu, K., Kulkarni, D.D., Choi, I. & Tsukruk, V.V. 2014. Graphene-polymer nanocomposites for structural and functional applications. *Progress in Polymer Science* 39(11): 1934-1972.
- Huxtable, S.T., Cahill, D.G., Shenogin, S., Xue, L., Ozisik, R., Barone, P., Usrey, M., Strano, M.S., Siddons, G., Shim, M. & Keblinski, P. 2003. Interfacial heat flow in carbon nanotube suspensions. *Nature Materials* 2: 731-734.
- Jiang, X. & Drzal, L.T. 2010. Multifunctional high density polyethylene nanocomposites produced by incorporation of exfoliated graphite nanoplatelets 1: Morphology and mechanical properties. *Polymer Composites* 31(6): 1091-1098.
- Kadiman, N., Romli, J., Muhamad, N., Bakar, A. & Foudzi, F. 2018. Pengoptimuman parameter sonikasi dan pengacauan magnetik bagi mendapatkan penyerakan sebatu komposit kuprum-grafin berdasarkan sifat morfologi. *Sains Malaysiana* 47(5): 1039-1043.
- Kim, H.S., Bae, H.S., Yu, J. & Kim, S.Y. 2016. Thermal conductivity of polymer composites with the geometrical characteristics of graphene nanoplatelets. *Scientific Reports* 6: 26825.
- Kim, H., Abdala, A.A. & Macosko, C.W. 2010. Graphene/polymer nanocomposites. *Macromolecules* 43(16): 6515-6530.
- King, J.A., Via, M.D., Morrison, F.A., Wiese, K.R., Beach, E.A., Cieslinski, M.J. & Bogucki, G.R. 2012. Characterization of exfoliated graphite nanoplatelets/polycarbonate composites: Electrical and thermal conductivity, and tensile, flexural, and rheological properties. *Journal of Composite Materials* 46(9): 1029-1039.
- Margolin, A.L. 2018. Effects of graphene on thermal oxidation of isotactic polypropylene. *Polymer Degradation and Stability* 156: 59-65.
- Milani, M.A., González, D., Quijada, R., Basso, N.R.S., Cerrada, M.L., Azambuja, D.S. & Galland, G.B. 2013. Polypropylene/graphene nanosheet nanocomposites by *in situ* polymerization: Synthesis, characterization and fundamental properties. *Composites Science and Technology* 84: 1-7.
- Miltner, H.E., Assche, G.V., Pozsgay, A., Pukánszky, B. & Mele, B.V. 2006. Restricted chain segment mobility in poly(amide) 6/clay nanocomposites evidenced by quasi-isothermal crystallization. *Polymer* 47(3): 826-835.
- Murariu, M., Bonnaud, L., Yoann, P., Fontaine, G., Bourbigot, S. & Dubois, P. 2010. New trends in polylactide (PLA)-based materials: "green" PLA - Calcium sulfate (nano)composites tailored with flame retardant properties. *Polymer Degradation and Stability* 95(3): 374-381.
- Papageorgiou, D.G., Kinloch, I.A. & Young, R.J. 2015. Graphene/elastomer nanocomposites. *Carbon* 95: 460-484.

- Paul, M.A., Alexandre, M., Degée, P., Henrist, C., Rulmont, A. & Dubois, P. 2003. New nanocomposite materials based on plasticized poly(l-lactide) and organo-modified montmorillonites: Thermal and morphological study. *Polymer* 44(2): 443-450.
- Peng, S., Zhu, P., Wu, Y., Mhaisalkar, S.G. & Ramakrishna, S. 2012. Electrospun conductive polyaniline-poly(lactic acid) composite nanofibers as counter electrodes for rigid and flexible dye-sensitized solar cells. *RSC Advances* 2(2): 652-657.
- Pinto, A.M., Cabral, J., Tanaka, D.A.P., Mendes, A.M. & Magalhães, F.D. 2013a. Effect of incorporation of graphene oxide and graphene nanoplatelets on mechanical and gas permeability properties of poly(lactic acid) films. *Polymer International* 62(1): 33-40.
- Pinto, A.M., Moreira, S., Goncalves, I.C., Gama, F.M., Mendes, A.M. & Magalhaes, F.D. 2013b. Biocompatibility of poly(lactic acid) with incorporated graphene-based materials. *Colloids Surf B Biointerfaces* 104: 229-238.
- Rosli, N.A., Ahmad, I., Anuar, F.H. & Abdullah, I. 2016. Mechanical and thermal properties of natural rubber-modified poly(lactic acid) compatibilized with telechelic liquid natural rubber. *Polymer Testing* 54: 196-202.
- Saharudin, M., Atif, R. & Inam, F. 2017. Effect of short-term water exposure on the mechanical properties of halloysite nanotube-multi layer graphene reinforced polyester nanocomposites. *Polymers* 9(1): 27.
- Shahdan, D., Ahmad, S.H. & Flaifel, M.H. 2013. Effect of ultrasonic treatment on tensile properties of PLA/LNR/NiZn ferrite nanocomposite. *AIP Conference Proceedings* 1571(1): 75-82.
- Shah, A.M., Kadir, M.R.A. & Razak, S.I.A. 2017. Novel PLA-based conductive polymer composites for biomedical applications. *JOM* 69(12): 2838-2843.
- Simmons, H., Tiwary, P., Colwell, J. & Kontopoulou, M. 2019. Improvements in the crystallinity and mechanical properties of PLA by nucleation and annealing. *Polymer Degradation and Stability* 166: 248-257.
- Soundararajah, Q.Y., Karunaratne, B.S.B. & Rajapakse, R.M.G. 2009. Montmorillonite polyaniline nanocomposites: Preparation, characterization and investigation of mechanical properties. *Materials Chemistry and Physics* 113(2-3): 850-855.
- Tarawneh, M.A., Ahmad, S.H.J., Zarina, K.A.K., Hassan, I.N., Jiun, Y.L., Flaifel, M.H. & Shamsul Bahri, A.R. 2013. Properties enhancement of TPNR-MWNTs-OMMT hybrid nanocomposites by using ultrasonic treatment. *Sains Malaysiana* 42(4): 503-507.
- Teng, C.C., Ma, C.C.M., Lu, C.H., Yang, S.Y., Lee, S.H., Hsiao, M.C., Yen, M.Y., Chiou, K.C. & Lee, T.M. 2011. Thermal conductivity and structure of non-covalent functionalized graphene/epoxy composites. *Carbon* 49(15): 5107-5116.
- Vadukumpully, S., Paul, J., Mahanta, N. & Valiyaveetil, S. 2011. Flexible conductive graphene/poly(vinyl chloride) composite thin films with high mechanical strength and thermal stability. *Carbon* 49(1): 198-205.
- Wang, Q., Wang, Y., Meng, Q., Wang, T., Guo, W., Wu, G. & You, L. 2017. Preparation of high antistatic HDPE/polyaniline encapsulated graphene nanoplatelet composites by solution blending. *RSC Advances* 7(5): 2796-2803.
- Xie, X.L., Mai, Y.W. & Zhou, X.P. 2005. Dispersion and alignment of carbon nanotubes in polymer matrix: A review. *Materials Science and Engineering: R: Reports* 49(4): 89-112.
- Yadav, S.K. & Cho, J.W. 2013. Functionalized graphene nanoplatelets for enhanced mechanical and thermal properties of polyurethane nanocomposites. *Applied Surface Science* 266: 360-367.

Dalila Shahdan, Ruey Shan Chen\* & Sahrim Ahmad  
 Department of Applied Physics  
 Faculty of Science and Technology  
 Universiti Kebangsaan Malaysia  
 43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
 Malaysia

Ruey Shan Chen\* & Sahrim Ahmad  
 Materials Science Programme  
 Faculty of Science and Technology  
 Universiti Kebangsaan Malaysia  
 43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan  
 Malaysia

\*Pengarang untuk surat-menyurat; email: chen@ukm.edu.my

Diserahkan: 15 Januari 2020  
 Diterima: 15 April 2020