

SIFAT DINAMIK MEKANIKAL VULKANISAT KARET ALAM-ORGANOCLAY

Dynamic Mechanical Properties of NR-Organoclay Vulcanizates

M. Irfan FATHURROHMAN^{1,2}, Bambang SOEGIJONO², Emil BUDIANTO², dan Koji YONEDA³

¹Pusat Penelitian Karet, Jl. Salak No. 1 Bogor 16151

²Ilmu Material – Universitas Indonesia

³Material Analysis Department - Nissan Arc, LTD

Email : irfan@bptkbgr.com

Diterima tanggal 7 Januari 2013 / Disetujui tanggal 24 April 2013

Abstract

Dynamic and swelling properties of natural rubber (NR) vulcanizates filled with organoclays with different d-spacings were studied. Dynamic properties were determined by using Dynamic Mechanical Thermal Analyzer (DMTA). The results showed that organoclay with higher d-spacing (15A) produced intercalation/exfoliation structure in NR matrix, so it increased dynamic mechanical and swelling properties. Storage modulus under Tg and upper Tg increased with increasing d-spacing of organoclay. Also, organoclay decreased $\tan \delta$ and tg of vulcanizates, especially organoclay 15A. Organoclay 15A in NR vulcanizates could decrease swelling value and the coefficient of diffusion, sorptivity and permeability it also improved crosslink density of NR/organoclay 15A and elasticity vulcanizate.

Keywords: Natural rubber, dynamic mechanical properties, , organoclay

Abstrak

Sifat dinamik dan *swelling* vulkanisat karet alam (NR) yang mengandung bahan pengisi *organoclay* dengan basal spasi yang berbeda telah dipelajari. Vulkanisat NR/*organoclay* dibuat dengan menggunakan metode pelelehan kompon di dalam gilingan terbuka. Sifat dinamik diukur dengan menggunakan *Dynamic Mechanical Thermal Analyzer* (DMTA). Hasil penelitian menunjukkan bahwa penambahan *organoclay* dengan basal spasi lebih besar (15A) menghasilkan struktur interkalasi/eksfoliasi di dalam matrik karet alam sehingga sifat dinamik mekanikal dan *swelling* menjadi lebih baik. *Storage*

modulus di bawah Tg dan di atas Tg meningkat dengan peningkatan basal spasi *organoclay*. Adanya *organoclay* juga menyebabkan penurunan $\tan \delta$ dan Tg vulkanisat, terutama *organoclay* 15A. *Organoclay* 15A di dalam vulkanisat karet alam dapat menurunkan nilai *swelling* dan koefisien difusi, sorptivitas serta permeabilitas. Derajat ikatan silang dari NR/*organoclay* 15A sedikit lebih besar dan memperbaiki sifat elastis vulkanisat.

Kata kunci: Karet alam, sifat dinamik mekanikal, *organoclay*

PENDAHULUAN

Karet alam (NR) merupakan bahan alam yang banyak digunakan untuk ban kendaraan bermotor, ban dalam, serta barang jadi teknik lainnya seperti bantalan mesin, *seal*, bantalan jembatan, bantalan gempa dan lain sebagainya. Barang jadi yang terbuat dari karet alam merupakan produk komposit yang terdiri atas dua fasa atau lebih. Penambahan bahan yang bersifat menguatkan ke dalam matriks karet alam akan menghasilkan komposit dengan sifat mekanik, dinamik, ketahanan panas, dan sifat pengembangan (*swelling*) yang lebih baik. Bahan penguat yang sering digunakan untuk pembuatan barang jadi karet adalah karbon hitam (*carbon black*). Akan tetapi, karbon hitam dibuat dari minyak bumi dan dapat menyebabkan polusi serta menghasilkan produk karet berwarna hitam. Oleh karena itu, sejak dua dekade terakhir, para peneliti sedang mengembangkan bahan penguat lain yang dapat menggantikan karbon hitam. Salah satu bahan penguat yang dapat digunakan adalah *organoclay*.

Sejak para peneliti dari grup Toyota berhasil membuat nanokomposit poliamid/*organoclay*, para peneliti memfokuskan untuk melakukan penelitian dengan menggunakan polimer yang berbeda, salah satunya karet alam. Sifat-sifat yang diamati oleh para peneliti sebagian besar adalah sifat mekanik seperti yang dilakukan oleh Arroyo *et al.* (2003), yang membuat nanokomposit NR/*organoclay* sebanyak 10 phr dengan sifat mekanik yang setara dengan 40 phr karbon hitam. Penambahan *organoclay* dengan *intercalant agent octadecylamine* memiliki sifat mekanik yang lebih baik dibandingkan dengan menggunakan *intercalant agent metyltallow bis-2-hydroxyethyl ammonium*. Peningkatan sifat mekanik dari nanokomposit NR/*organoclay* disebabkan adanya eksfoliasi silikat di dalam matrik karet sehingga terjadi peningkatan luas permukaan kontak antara bahan pengisi dan karet alam (Madhusoodanan *et al.*, 2006).

Adanya *organoclay* di dalam matriks karet alam juga berpengaruh terhadap sifat dinamik nanokompositnya. Peningkatan eksfoliasi silikat di dalam matriks karet dapat menurunkan suhu transisi gelas, $\tan \delta$, dan meningkatkan *storage modulus* (Schon *et al.*, 2002). Peningkatan jumlah *organoclay* di dalam matrik karet alam dapat meningkatkan *storage modulus* (Ramorino *et al.*, 2007). *Organoclay* sebanyak 3 phr dapat meningkatkan *storage modulus* pada saat di bawah suhu transisi gelas (T_g). Di atas T_g , nanokomposit memiliki modulus yang sama dengan karet alam tanpa bahan pengisi *organoclay* (Li *et al.*, 2008).

Sifat lain yang dipengaruhi oleh adanya eksfoliasi silikat di dalam matriks karet adalah sifat pengembangan (*swelling*). Li *et al.* (2008) membuat nanokomposit karet alam/*organoclay* dengan jumlah yang sedikit, yaitu di bawah 5 phr. Dengan penambahan *organoclay* yang relatif kecil dapat meningkatkan sifat mekanik, menurunkan derajat pengembangan nanokomposit atau meningkatkan ketahanan terhadap minyak, meningkatkan sifat ketahanan terhadap panas, dan menurunkan sifat permeabilitas oksigen. Sifat pengembangan nanokomposit pencampuran karet alam dan karet stirena butadiena (SBR) dengan *organoclay*

menghasilkan nanokomposit dengan sifat mekanik yang lebih baik, dan meningkatkan sifat pengembangan, dan stabilitas termalnya (Shan *et al.*, 2011).

Penelitian mengenai pembuatan dan karakteristik sifat nanokomposit NR/*organoclay* masih terus berlanjut dengan mengamati pengaruh *organoclay* terhadap sifat-sifat nanokompositnya. Penelitian ini bertujuan untuk mengamati pengaruh *organoclay* dengan basal spasi yang berbeda terhadap sifat dinamik dan pengembangan (*swelling*) di dalam toluen.

BAHAN DAN METODE

Pada penelitian ini digunakan karet alam jenis SIR 3WF yang didapat dari kebun Jalupang, PTPN 8 dan bahan kimia kompon karet seperti ZnO, asam stearat, *N-cyclohexylbenzothiazole-2-sulfenamide* (CBS), dan belerang dengan grade komersial. Penelitian ini menggunakan dua tipe *organoclay* dengan basal spasi yang berbeda diperoleh dari *Southern Clay Products, Inc. Rocwood additives*. Jarak basal spasi yang digunakan adalah 2,42 nm dan 3,15 nm cloisite® 15A dan 20A. Kedua jenis *organoclay* ini menggunakan bahan organik modifikasi yang sama, yaitu *dimethyl dehydrogenated tallow quaternary ammonium*.

Pencampuran dan Vulkanisasi

Proses pencampuran dilakukan dengan menggunakan gilingan terbuka (*open mill*) dengan perbandingan kecepatan rol 1:1,4. Suhu gilingan dijaga pada suhu $60 \pm 5^\circ\text{C}$. Karet alam dimastikasi terlebih dahulu selama 2 menit, kemudian ditambahkan ZnO dan asam stearat. *Organoclay* dicampur kedalam kompon selama 10 menit. Terakhir ditambahkan bahan pencepat *N-cyclohexylbenzothiazole-2-sulfenamide* (CBS), dan belerang. Kompon karet disimpan pada suhu ruang selama minimal 16 jam. Formulasi kompon disajikan pada Tabel 1.

Waktu vulkanisasi ditentukan dengan menggunakan *Moving Die Rheometer* (MDR 2000) pada suhu 150°C sesuai ISO 6502. Kompon kemudian dicetak dengan

Tabel 1. Formula kompon karet dalam bsk (berat seratus karet)
 Table 1. Rubber compound formulae in phr (part hundred rubber)

Bahan Material	NR	NR/20A	NR/15A
SIR 3WF	100	100	100
Zink oksida	5	5	5
Asam stearat	2	2	2
Belerang	1,5	1,5	1,5
CBS ^a	2,5	2,5	2,5
Organoclay 15 A	-	-	6
Organoclay 20 A	-	6	-

ketebalan 2 mm menggunakan cetakan bertekanan dengan tekanan 9,8 kg/cm², pada suhu 150°C dengan waktu pematangan yang didapat dari hasil pengukuran rheometer.

Pengukuran Sifat Dinamik Mekanikal

Sifat dinamik mekanikal dari vulkanisat karet alam dan karet alam yang mengandung organoclay ditentukan dengan menggunakan *Dynamic Mechanical Thermal Analyzer* (DMTA V Rheometric Scientific.Inc). Bentuk dari contoh uji berupa lembaran dengan panjang 8 mm lebar 5 mm dan tebal 2 mm. Rentang suhu pengujian dilakukan dari -100°C sampai +100°C dengan laju pemanasan 5°C menit⁻¹; frekuensi 10 Hz dan regangan 0,02%. Proses pendinginan menggunakan nitrogen cair. Hasil pengujian berupa *loss tangent* (tan δ) yang merupakan perbandingan antara *loss modulus* (E'') terhadap *storage modulus* (E') dan suhu transisi gelas (Tg) yang didapat dari puncak *loss modulus*.

Uji Swelling Dalam Toluene

Pengujian *swelling* dilakukan sesuai dengan metode uji ISO 1817. Contoh uji dengan lebar 10 mm, panjang 20 mm dan ketebalan 2 mm dipotong dari vulkanisat karet alam dan karet alam dengan bahan pengisi organoclay. Contoh direndam dalam toluene pada suhu ruang. Pada interval

waktu tertentu, contoh uji diambil kemudian toluene yang terdapat pada permukaan contoh diseka dengan menggunakan kertas tisu selanjutnya ditimbang.

Laju difusi dihitung dengan menggunakan penyelesaian hukum Fick's kedua sebagai berikut:

$$D = \pi \left(\frac{h\theta}{4Q_\infty} \right)^2 \dots\dots\dots (1)$$

Dimana:

- h = ketebalan
- θ = slope bagian linier dari kurva t vs t^{1/2}
- Q_∞ = absorpsi pada saat kesetimbangan

Qt dihitung dengan persamaan sebagai berikut (Obasi *et al.*, 2009)

$$Q_t = \frac{\text{Massa toluene yang terserap/Berat molekul toluene}}{\text{Massa awal}} \times 100 \dots (2)$$

Penyerapan pelarut ke dalam vulkanisat karet juga bergantung dari kemampuan pelarut untuk menyerap masuk ke dalam vulkanisat karet atau biasa disebut *sorptivity*. Koefisien sorptivitas dihitung dengan persamaan berikut (Obasi *et al.*, 2009):

$$S = \frac{M_\infty}{M_0} \dots\dots\dots (3)$$

Dimana:

- M_∞ = massa pelarut yang terserap pada saat kesetimbangan
- M₀ = massa contoh awal

Permeabilitas bergantung dari difusi dan *sorptivity*, koefisien *permeation* dihitung dengan menggunakan persamaan berikut (Obasi *et al.*, 2009) :

$$P = D \times S \dots\dots\dots(4)$$

Uji Derajat Ikatan Silang

Derajat ikatan silang dari vulkanisat nanokomposit ditentukan dengan menggunakan metode keseimbangan *swelling*. Contoh uji dengan lebar 10 mm, panjang 20 mm dan ketebalan 2 mm dipotong dari vulkanisat nanokomposit. Contoh direndam dalam toluen pada suhu ruang di ruang gelap selama 48 jam. Setelah itu, toluen yang terdapat pada permukaan contoh diseka dengan menggunakan kertas tisu dan kemudian di timbang. Contoh uji kemudian dipanaskan di dalam oven pada suhu 60°C selama 24 jam untuk menghilangkan toluene yang terserap. Contoh vulkanisat yang kering di timbang.

Derajat ikatan silang (n) dihitung dengan menggunakan persamaan Flory-Rehner sebagai berikut (Arroyo *et al.*, 2003):

$$-(\ln(1 - V_{rf}) + V_{rf} + \chi V_{rf}^2) = V_0 n \left[V_{rf}^{1/3} - \frac{V_{rf}}{2} \right] \dots(5)$$

Dimana :

- V_0 : volume molar toluen (106,2),
- χ : parameter interaksi Flory-Huggins (0,393)
- V_{rf} : fraksi volume karet di dalam pelarut (contoh uji vulkanisat karet mengandung bahan pengisi yang mengalami pengembangan).

V_{rf} dihitung dengan menggunakan persamaan Ellis dan Welding sebagai berikut (Bhattacharya *et al.*, 2008):

$$V_{rf} = \frac{(D - \phi W) \rho_r^{-1}}{(D - \phi W) \rho_r^{-1} + A_0 \rho_s^{-1}} \dots\dots(6)$$

Dimana :

- D = berat contoh yang telah dikeringkan
- ϕ = fraksi berat bahan pengisi
- W = berat contoh awal
- ρ_r = densitas polimer
- ρ_s = densitas pelarut
- Ao = banyaknya pelarut yang terserap.

HASIL DAN PEMBAHASAN

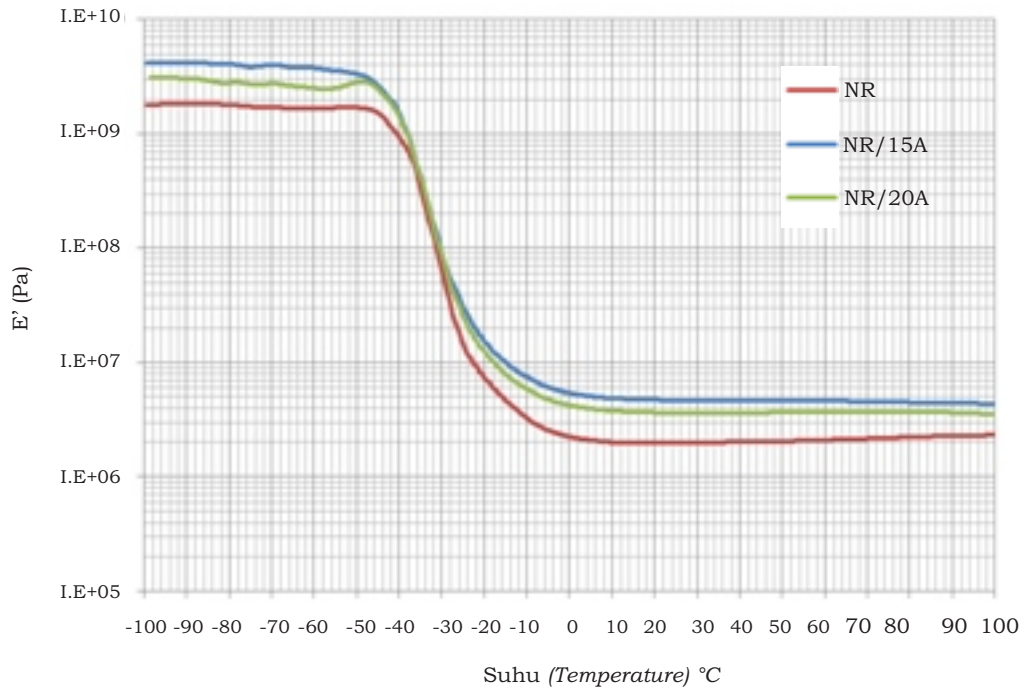
Sifat Dinamik Mekanik Vulkanisat NR dan NR/*Organoclay*

Contoh uji vulkanisat NR dan NR yang mengandung *organoclay* sebanyak 6 phr diuji dengan menggunakan DMTA. Hasil *storage modulus* dari vulkanisat NR dan NR/*organoclay* pada berbagai suhu disajikan pada Gambar 1. Pada gambar tersebut terlihat bahwa adanya *organoclay* di dalam vulkanisat karet dapat meningkatkan *storage modulus* di bawah suhu transisi gelas (Tg) dan di atas suhu transisi gelas (Tg). Peningkatan *storage modulus* (E') vulkanisat NR/*organoclay* disebabkan pengaruh penguatan dari *organoclay* di dalam matriks karet alam. Pengaruh penguatan akan semakin meningkat bila terjadi interkalasi/eksfoliasi silikat yang cukup besar di dalam matriks karet alam sehingga mengakibatkan adanya interaksi (*interfacial action*) yang kuat antara karet dengan bahan pengisi (Das *et al.*, 2011).

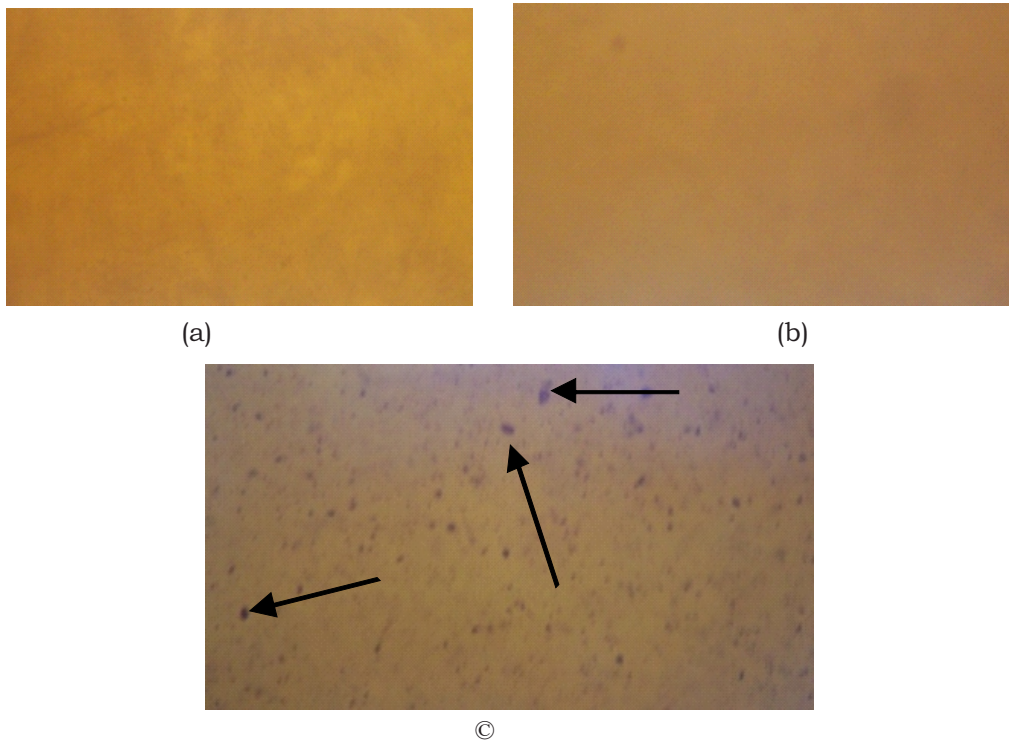
Adanya perbedaan basal spasi dari kedua *organoclay* menghasilkan dispersi yang berbeda, sehingga *storage modulus* dari NR/*organoclay* cloisite ® 15A lebih besar bila dibandingkan dengan NR/*organoclay* cloisite ® 20A (Gambar 2). Dispersi dari *organoclay* cloisite ® 20 A masih terdapat aglomerasi di dalam matriks karet alam (Gambar 2). Aglomerasi terjadi karena tidak semua lapisan silikat mengalami delaminasi (pemisahan lapisan) atau dengan kata lain hanya sebagian silikat yang mengalami interkalasi/eksfoliasi.

Penambahan *organoclay* ke dalam karet alam sedikit menurunkan tan δ seperti yang disajikan pada Gambar 3. Puncak tan δ terlihat pada rentang suhu -50 - 20C, yang merupakan daerah transisi. NR/*organoclay* cloisite ® 15A memiliki tan δ yang lebih kecil dibandingkan dengan NR/*organoclay* cloisite ® 20A. Penurunan puncak tan atau peningkatan sifat elastisitas disebabkan oleh adanya peningkatan derajat interkalasi/eksfoliasi lapisan silikat di dalam matriks karet alam (Schon *et al.*, 2002).

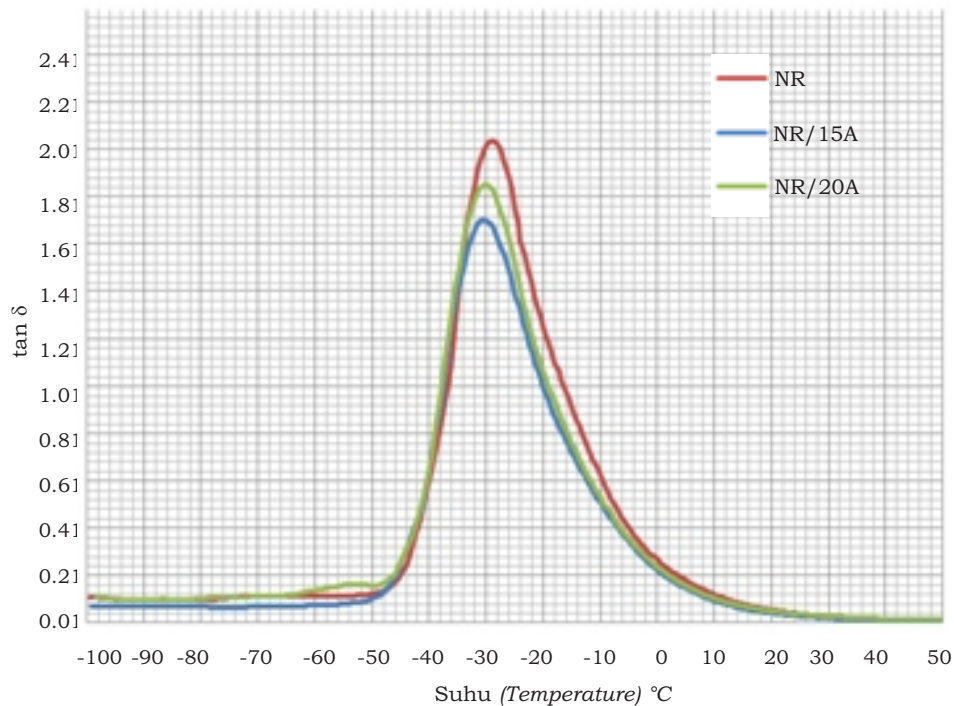
Sifat dinamik mekanikal vulkanisat karet alam-organoclay



Gambar 1. Storage modulus (E') vulkanisat NR dan NR/organoclay pada berbagai suhu
Figure 1. Storage modulus (E') of NR and NR/organoclay vulcanizates at various temperatures



Gambar 2. Foto vulkanisat NR (a), NR/15A (b), dan NR/20A (c)
Figure 2. Images of NR (a), NR/15A (b), and NR/20A (c) vulcanizates



Gambar 3. $\tan \delta$ vulkanisat NR dan NR/*organoclay* pada berbagai suhu
 Figure 3. $\tan \delta$ of NR and NR/*organoclay* vulcanizates at various temperatures

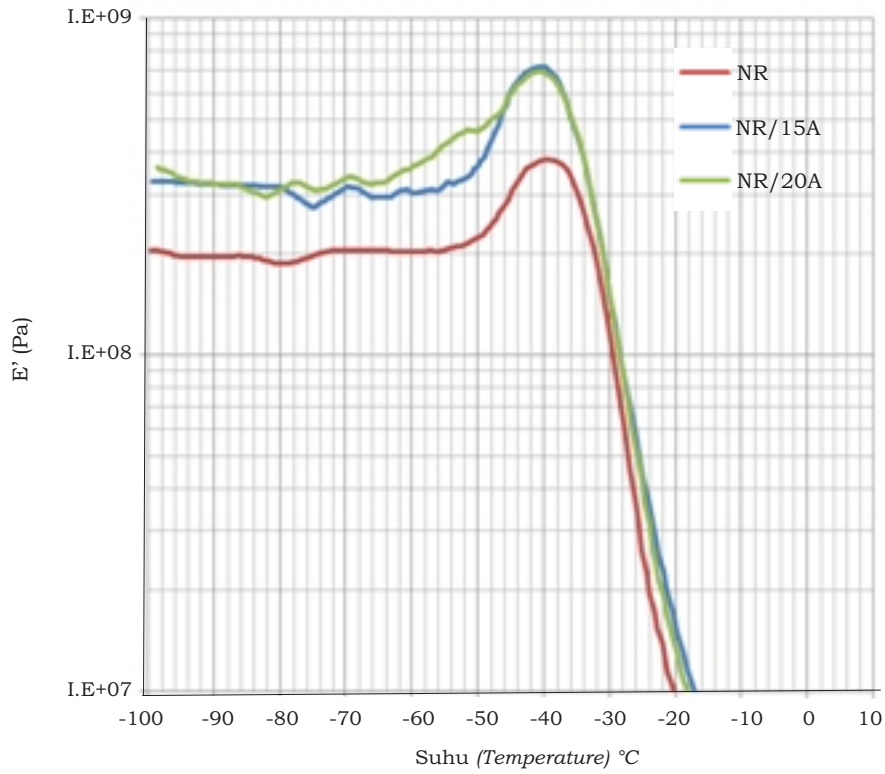
Penentuan suhu transisi gelas (T_g) dengan menggunakan DMTA dapat dilakukan dengan tiga cara, yaitu menggunakan simpangan dari perubahan *storage modulus* (E'), puncak maksimum *loss modulus* (E'') dan puncak maksimum $\tan \delta$ (Herzog *et al.*, 2005). Pada penelitian ini, penentuan T_g ditentukan dengan puncak maksimum *loss modulus* (E''). Gambar 4 memperlihatkan bahwa penambahan *organoclay* sedikit menggeser suhu transisi gelas menjadi lebih rendah, yaitu dari -39°C menjadi -40°C . Suhu transisi gelas vulkanisat NR/*organoclay* cloisite® 15A dan NR/*organoclay* cloisite® 20A dengan menggunakan *loss modulus* bernilai sama. Hal ini dikarenakan pada saat lapisan silikat terinterkalasi/ tereksfoliasi di dalam matriks karet, sejumlah garam ammonium yang terdapat pada permukaan silikat berperan sebagai *plasticizer* (Schon *et al.*, 2002).

Sifat Swelling Vulkanisat NR dan NR/*Organoclay*

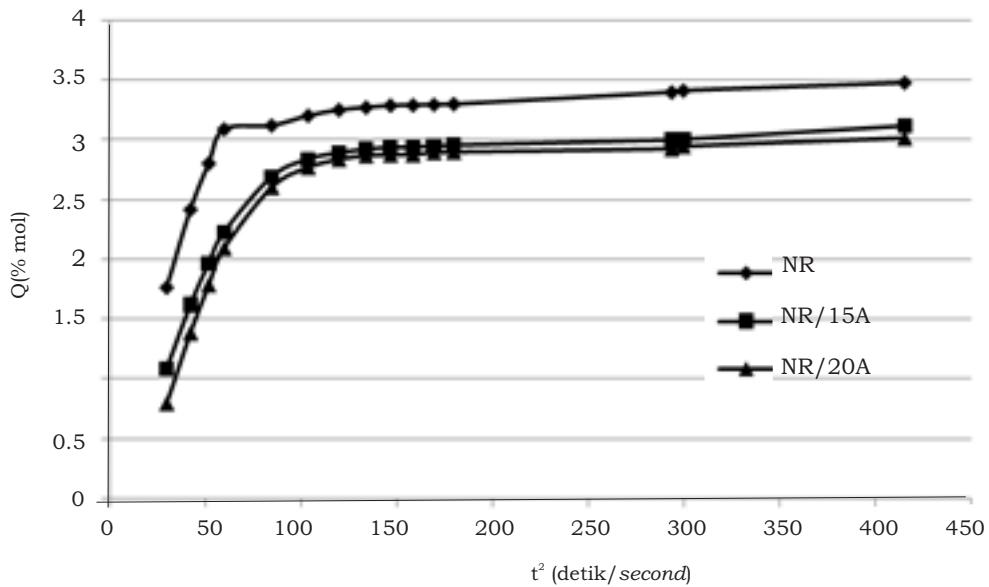
Kurva *swelling* vulkanisat karet alam dan karet alam/*organoclay* di dalam toluen pada suhu ruang diperlihatkan pada Gambar 5. Pada gambar tersebut

memperlihatkan bahwa adanya *organoclay* di dalam vulkanisat karet alam dapat menurunkan penyerapan pelarut ke dalam matriks karet alam. Vulkanisat karet alam yang mengandung *organoclay* dengan basal spasi lebih besar (15A) lebih menurunkan penyerapan pelarut. Penurunan laju penyerapan pelarut diakibatkan karena adanya lapisan *clay* yang bersifat *impermeable* sehingga dapat meningkatkan panjang rata-rata garis difusi di dalam matriks karet alam (Yahaya *et al.*, 2010). Penurunan laju penyerapan pelarut ini membuktikan bahwa *organoclay* 15A terdispersi lebih baik di dalam matriks karet alam.

Nilai koefisien difusi, sorptivitas dan permeabilitas disajikan pada Tabel 2. Pada tabel tersebut terlihat bahwa adanya *organoclay* di dalam vulkanisat karet alam dapat menurunkan koefisien difusi, sorptivitas dan permeabilitas. Penurunan ini mungkin disebabkan karena matriks interkalasi masuk ke dalam, sehingga menghambat interaksi antara pelarut dengan matriks karet alam dan juga adanya interaksi yang kuat antara bahan pengisi dengan matriks karet alam terutama untuk vulkanisat NR dengan bahan pengisi *organoclay* 15A.



Gambar 4. Loss modulus (E'') vulkanisat NR dan NR/*organoclay* pada berbagai suhu
Figure 4. Loss modulus (E'') of NR and NR/*organoclay* vulcanizates at various temperatures



Gambar 5. Swelling vulkanisat NR dan NR/*organoclay*
Figure 5. Swelling of NR and NR/*organoclay* vulcanizates

Tabel 2. Koefisien difusi, sorptivitas dan permeabilitas vulkanisat NR dan NR/*organoclay*
 Table 2. Coefficient of diffusion, sorptivity and permeability of NR and NR/*organoclay vulcanizates*

Contoh Sample	Koefisien difusi, Diffusion coefficient D x 10 ⁷ (cm ² dt ⁻¹)	Koefisien sorptivitas Sorptivity coefficient S	Koefisien permeabilitas Permeability coefficient P x 10 ⁶ (cm ² dt ⁻¹)
NR	10,70	3,20	3,42
20A6	7,50	2,87	2,15
15A6	6,95	2,78	1,93

Derajat Ikatan Silang dan Parameter Termodinamika Vulkanisat NR dan NR/*Organoclay*

Tabel 3 memperlihatkan derajat ikatan silang dan parameter termodinamika vulkanisat NR dan NR/*organoclay*. Derajat ikatan silang vulkanisat yang mengandung *organoclay* dengan basal spasi lebih besar yaitu 15A lebih besar bila dibandingkan dengan vulkanisat NR. Hal ini membuktikan bahwa *organoclay* 15A mengalami interkalasi/eksfoliasi di dalam matriks karet alam, tetapi derajat ikatan silang *organoclay* 20A sama dengan derajat ikatan silang NR. Hal ini dimungkinkan karena adanya aglomerasi dari *organoclay* di dalam matriks karet menyebabkan bahan pengisi yang ditambahkan menjadi tidak berpengaruh signifikan terhadap derajat ikatan silang.

Pendekatan termodinamika digunakan untuk mempelajari interaksi antara karet dengan bahan pengisi di dalam vulkanisat karet alam. Karet yang telah mengalami ikatan silang tidak bisa terlarut di dalam toluen tapi dapat mengalami *swelling*. *Swelling* ini bergantung dari rapat ikatan silang karet dan pelarut yang digunakan. Karet yang memiliki rapat ikatan silang tinggi akan menghasilkan *swelling*

yang rendah, sebaliknya jika karet memiliki rapat ikatan silang rendah maka *swelling* di dalam pelarut menjadi tinggi. Ekspansi dari karet di dalam pelarut akan berpengaruh signifikan terhadap entropi (S) dan elastik energi Gibbs bebas (G). Elastik energi Gibbs bebas dari vulkanisat NR/*organoclay* dapat ditentukan dengan menggunakan persamaan Flory-Huggins dan sesuai dengan teori elastisitas karet, DS dapat ditentukan dari $G = -TS$, dengan asumsi tidak ada perubahan energi dalam dari jaringan karet pada saat mengalami peregangan (Lopez-Manchado *et al.*, 2003).

$$\Delta G = RT(\ln(1 - V_{rf}) + V_{rf} + \chi V_{rf}^2) \dots \dots (7)$$

Pada Tabel 3 terlihat bahwa terjadi kenaikan G pada vulkanisat NR/*organoclay* 15A. G berhubungan dengan sifat elastisitas bahan (Lopez-Manchado *et al.*, 2003) sehingga NR/*organoclay* 15A memiliki sifat elastisitas lebih baik dibanding vulkanisat NR dan NR/*organoclay* 20A. Molekul karet dapat masuk ke dalam galeri *organoclay* menghasilkan struktur eksfoliasi. Hal ini terjadi terutama pada *organoclay* 15A. Struktur eksfoliasi *organoclay* di dalam matriks NR menghasilkan vulkanisat dengan elastisitas yang lebih baik.

Tabel 3. Derajat ikatan silang dan karakteristik termodinamika vulkanisat NR dan NR/*organoclay*

Tabel 3. Crosslink density and thermodynamic characteristics of NR and NR/*organoclay vulcanizates*

Contoh Sample	Derajat ikatan silang Crosslink density (n)	Energi Gibbs bebas Gibbs Free Energy ΔG (J/mol)	Entropi Entropy ΔS (J/mol)
NR	1,71 x 10 ⁻⁴	-22,08	7,41 x 10 ⁻²
20	1,71 x 10 ⁻⁴	-22,05	7,40 x 10 ⁻²
15	1,75 x 10 ⁻⁴	-22,70	7,62 x 10 ⁻²

KESIMPULAN DAN SARAN

Organoclay dengan basal spasi lebih besar (15A) dimungkinkan menghasilkan struktur interkalasi/eksfoliasi di dalam matrik karet alam sehingga sifat dinamik dan *swelling* menjadi lebih baik. *Storage modulus* di bawah T_g dan di atas T_g meningkat dengan peningkatan basal spasi *organoclay*. Adanya *organoclay* juga menyebabkan penurunan $\tan \delta$ dan T_g vulkanisat, terutama *organoclay* dengan basal spasi lebih besar (15A). *Organoclay* di dalam vulkanisat karet alam dapat menurunkan sifat *swelling* dan menurunkan koefisien difusi, sorptivitas serta permeabilitas terutama untuk *organoclay* 15A. Derajat ikatan silang dari NR/ *organoclay* 15A sedikit lebih besar dan menghasilkan sifat elastis yang lebih baik dibuktikan dengan kenaikan ΔG . Pada penelitian selanjutnya disarankan untuk mengkaji pengaruh penambahan *organoclay* yang dapat menghasilkan struktur interkalasi atau eksfoliasi di dalam matriks karet alam.

DAFTAR PUSTAKA

- Arroyo, M., M.A. Lopez-Manchado, and B. Herrero. 2003. Organomontmorillonite as substitute of carbon black in natural rubber compounds. *Polymer* 44, 2447–2453.
- Bhattacharya, M and A. K. Bhowmick. 2008. Polymer-filler interaction in nanocomposites: new interface area function to investigate swelling behavior and Young's modulus. *Polymer* 40, 4808–4818.
- Das. A, D.Y. Wang, K.W. Stockelhuber, R. Jurk, J. Fritzsche, M. Kluppel and G. Heinrich. 2011. Rubber-clay nano composites: some recent results. *Advanced Polymer Science* 239, 85–166.
- Herzog. B, D.J. Gardner, R.J. Anido and B. Goodell. 2005. Glass-transition temperature based on dynamic mechanical thermal analysis techniques as an indicator of the adhesive performance of vinyl ester resin. *J. Applied Polymer Science* 97, 2221–2229.
- Li, P., L. Wang, G. Song, L. Yin, F. Qi and L. Sun. 2008. Characterization of high-performance exfoliated natural rubber/organoclay nanocomposites. *J. Applied Polymer Science* 109, 3831–3838.
- Lopez-Manchado. M.A, B. Herrero and M. Arroyo. 2003. Preparation and characterization of organoclay nanocomposites based on natural rubber. *Polymer International* 52, 1070–1077.
- Madhusoodanan, K.N and S. Varghese. 2006. Technological and processing properties of natural rubber layered silicate-nanocomposites by melt intercalation process. *Journal of Applied Polymer Science* 102, 2537–2543.
- Obasi, H.C., O. Ogbobe and I.O. Igwe. 2009. Diffusion characteristics of toluene into natural rubber/linear low density polyethylene blends. *Int. J. Polymer Science*, 1–6.
- Ramorino, G., F. Bignotti, L. Conzatti and T. Ricco. 2007. Dynamic and viscoelastic behavior of natural rubber/layered silicate nanocomposites obtained by melt blending. *Polymer Engineering and Science*, 1650–1657.
- Schon, F., R. Thomann and W. Grovski. 2002. Shear controlled morphology of rubber/organoclay nanocomposites and dynamic mechanical analysis. *Macromol. Symp.* 189, 105–110.
- Shan, C., L. Wang, P. Li, G. Song and Z. Gao. 2011. Preparation, characterization, and application of NR/SBR/organoclay nanocomposites in the tire industry. *J. Applied Polymer Science* 119, 1185–1194.
- Yahaya. L.E, K.O. Adebowale, A.R.R. Menon, S. Rugmini, B.I. Olu-Owulabi and Chameswary. 2010. Journal Natural rubber/organoclay nanocomposites: effect filler dosage on the physicomechanical properties of vulcanizates. *African Journal of Pure and Applied Chemistry* 4(9), 198–205.