รายงานการวิจัยฉบับสมบูรณ์

เรื่อง

# การเตรียมพอลิเมอร์นำไฟฟ้าจากยางธรรมชาติที่ผสมท่อนาโนคาร์บอนร่วมกับฟิวเลเยอร์แกรฟีน

# Preparation of Conductive Polymer based on Natural Rubber filled Carbon Nanotube and Few-layer Graphene

Prince of Songkla University Pattani Campus

ผศ.ดร. สุบฮาน สาและ

นางสาวภัณฑิรา เก้าเอี้ยน

ได้รับทุนอุดหนุนการวิจัยจากกองทุนวิจัยวิทยาเขตปัตตานี

มหาวิทยาลัยสงขลานครินทร์ วิทยาเขตปัตตานี

ประจำปีงบประมาณ 2562 สัญญาเลขที่ SAT6203012S

# บทคัดย่อ


| | | | |
|---|---|---|---|
| รหัสโครงการวิจัย | SAT6203012S | | |
| ชื่อโครงการ | การเตรียมพอลิเมอร์นำไฟฟ้าจากยางธรรมชาติที่ผสมท่อนาโนคาร์บอนร่วมกับฟิวเลเยอร์แกรฟีน | | |
| ชื่อนักวิจัย | ดร.สุบฮาน | สาและ | หัวหน้าโครงการ |
| | นางสาวภัณฑิรา | เก้าเอี้ยน | นักศึกษา |
| E-mail | subhan.s@psu.ac.th | | |
| ระยะเวลาโครงการ | 2 ปี | | |

พอลิเมอร์นาโนคอมโพสิทนำไฟฟ้าได้รับความสนใจและมีการพัฒนาวัสดุชนิดนี้อย่างกว้างขวางเนื่องจากเป็นวัสดุที่มีความยืดหยุ่น เตรียมได้ง่าย น้ำหนักเบา วัสดุชนิดนี้สามารถนำไปประยุกต์ใช้งานด้านต่าง ๆ เช่น เซ็นซอร์ อุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ วัสดุป้องกันคลื่นแม่เหล็กไฟฟ้า เป็นต้น ในงานวิจัยนี้ได้ศึกษาอิทธิพลของชนิดยางธรรมชาติ (ยางธรรมชาติและยางธรรมชาติอิพอกไซด์) เวลาการผสม ปริมาณสารตัวเติมนำไฟฟ้าและการใช้ท่อนาโนคาร์บอน (MWCNT) ร่วมกับฟิวเลเยอร์แกรฟีน (FLG) เพื่อเตรียมยางธรรมชาตินาโนคอมโพสิทนำไฟฟ้าที่สามารถสร้างโครงข่ายนำไฟฟ้าที่ดีและใช้สารตัวเติมในปริมาณเล็กน้อย ชนิดของยางธรรมชาติและเวลาการผสมมีผลต่อสมบัติการวัลคาไนซ์ สมบัติเชิงกลและสมบัติทางไฟฟ้า โดยทอร์คสูงสุดและความแตกต่างระหว่างทอร์คสูงสุดและต่ำสุดสูงขึ้นเมื่อเพิ่มเวลาการผสมและใช้ยางธรรมชาติอิพอกไซด์ ซึ่งส่งผลให้นาโนคอมโพสิทที่ได้มีสมบัติเชิงกลที่ดีขึ้น อย่างไรก็ตามสมบัติทางไฟฟ้า เช่น ค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ค่าสูญเสียไดอิเล็กตริกและค่าการนำไฟฟ้าของนาโนคอมโพสิทมีแนวโน้มลดลงเมื่อเพิ่มเวลาการผสม โดยนาโนคอมโพสิทที่ใช้เวลาผสม FLG 20 นาทีและยางธรรมชาติอิพอกไซด์แสดงสมบัติเชิงกลและสมบัติทางไฟฟ้าที่ดี เมื่อทำการแปรปริมาณ FLG ในยาง NR และ ENR50 พบว่าทอร์คสูงสุดและความแตกต่างระหว่างทอร์คสูงสุดและต่ำสุดสูงขึ้นตามปริมาณของ FLG เวลาสก็อชลดลงเมื่อเพิ่มปริมาณ FLG ใน NR/FLG และ ENR50/FLG โดยความต้านทานต่อแรงดึงของยาง ENR50 ได้รับการปรับปรุงเมื่อใช้ FLG ในขณะที่ความต้านทานต่อแรงดึงของ NR/FLG กลับมีค่าลดลง แสดงให้เห็นว่าอนุภาค FLG สามารถเสริมแรงในยาง ENR50 ได้ดีกว่ายาง NR การศึกษาสมบัติพลวัติเชิงกลได้แสดงให้เห็นว่า ENR50/FLG นาโนคอมโพสิทมีโครงข่ายสารตัวเติมที่แข็งแรงและอันตรกิริยาระหว่างยางและสารตัวเติมที่ดี นอกจากนี้ยังพบว่าอนุภาค FLG สามารถกระจายตัวในยาง ENR ได้อย่างสม่ำเสมอและมีการรวมเป็นกลุ่มก้อนที่น้อยกว่ากรณียาง NR ซึ่งเป็นสาเหตุที่ทำให้สมบัติเชิงกล


Prince of Songkla University Pattani Campus

ของ ENR50/FLG ดีกว่า NR/FLG สำหรับสมบัติทางไฟฟ้าพบว่าค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ค่าสูญเสียไดอิเล็กตริกและค่าการนำไฟฟ้าสูงขึ้นตามปริมาณ FLG แต่การศึกษาครั้งนี้ยังพบ Percolation threshold ในช่วง 0 ถึง 50 phr การใช้ MWCNT ร่วมกับ FLG พบว่าสารตัวเติมทั้งสองสามารถปรับปรุงความต้านทานต่อแรงดึงและมอดูลัสของนาโนคอมโพสิท โดยมอดูลัสสะสมสูงขึ้นอย่างมากเมื่อนาโนคอมโพสิทเมื่อเพิ่มสัดส่วน MWCNT ในสารตัวเติมเนื่องจาก MWCNT มี aspect ratio ที่สูงและสามารถเกิดอันตรกิริยากับยางได้ดี นอกจากนี้ยังพบว่านาโนคอมโพสิทที่ใช้ MWCNT ร่วมกับ FLG มีสมบัติทางไฟฟ้าที่ดีกว่าการใช้ MWCNT และ FLG เดี่ยว ๆ โดยนาโนคอมโพสิทที่ใช้ MWCNT/FLG ในอัตราส่วน 75/25 โดยน้ำหนักมี Percolation threshold ($p_c$=0.83 phr) ที่น้อยกว่า ENR50/MWCNT นาโนคอมโพสิท ($p_c$=2.21 phr) ซึ่งเป็นผลมาจากการสร้างโครงข่ายนำไฟฟ้าระหว่างอนุภาค MWCNT และ FLG ในนาโนคอมโพสิท โดย Percolation threshold ที่ได้จากการทดลองนี้เป็นปริมาณสารตัวเติมที่น้อยเมื่อเทียบกับพอลิเมอร์คอมโพสิทำไฟฟ้าอื่น ๆ ที่ได้รายงานก่อนหน้านี้

**คำสำคัญ**: พอลิเมอร์คอมโพสิทนำไฟฟ้า; ยางธรรมชาติ; สารตัวเติมนำไฟฟ้า; การเสริมแรง; ฟิวเลเยอร์แกรฟีน; นาโนคาร์บอน

Prince of Songkla University Pattani Campus

# Abstract


| | | | |
|---|---|---|---|
| Project code | SAT6203012S | | |
| Project title | Preparation of Conductive Polymer based on Natural Rubber filled Carbon Nanotube and Few-layer Graphene | | |
| Researchers | Dr. Subhan | Salaeh | Principal investigator |
| | Ms. Puntira | Kaoaian | Student |
| E-mail | subhan.s@psu.ac.th | | |
| Project period | 2 ปี | | |



Conductive polymer composites (CPCs) have been interested and widely developed due to flexibility, processability, lightweight. These materials can be applied for various application such as strain sensor, electronic devices and EMI shielding etc. In this work, the effect of type of natural rubbers (i.e., natural rubber (NR) and epoxidized natural rubber (ENR50)), mixing time, conductive filler concentration and hybrid fillers between few-layer graphene (FLG) and multi-walled carbon nanotube (MWCNT) were studied to prepare conductive natural rubber nanocomposites with strong conductive network and low filler concentration. Cure characteristic, mechanical properties and electrical properties strongly depended on type of natural rubbers and mixing time. That is, the maximum torque ($M_H$) and torque difference ($M_H - M_L$) was increased with mixing time and presence of epoxide group in natural rubber, resulting in improved mechanical properties of the nanocomposites. However, electrical properties such as dielectric permittivity, dielectric loss and conductivity were reduced with mixing time. Nanocomposites prepared from mixing FLG for 20 minute and ENR50 exhibited good mechanical and electrical properties. When various FLG concentrations were incorporated into NR and ENR50, it was found that the maximum torque and torque difference were increased with FLG content in both nanocomposites. In addition, the scorch times of NR/FLG and ENR50/FLG were reduced with increasing FLG content. The tensile strength was significantly improved for ENR50/FLG whereas deterioration of mechanical properties was observed for NR/FLG50. This indicates that FLG particles can act as reinforcing



Prince of Songkla University Pattani Campus

filler in ENR50. The non-linear viscoelastic properties revealed that the ENR50/FLG nanocomposites exhibits strong filler network structure and filler-rubber interactions. Meanwhile, uniform dispersion of FLG in ENR50 matrix and slight agglomeration were observed for ENR50/FLG, confirming the improvement of mechanical properties of the ENR50/FLG nanocomposite. For electrical properties, the permittivity, dielectric loss and conductivity gradually increased with FLG content. However, in range of 0 to 50 phr, electrical percolation threshold cannot be observed in this study. Incorporation of MWCNT and FLG into ENR50 resulted in increased tensile strength and modulus of nanocomposites. Due to high aspect ratio and strong MWCNT-ENR50 interactions, the significant increment in the storage modulus was observed for the nanocomposites with higher MWCNT ratio. Moreover, ENR50 filled with MWCNT and FLG showed higher electrical properties than using only MWCNT and FLG. The electrical percolation threshold was reduced from 2.21 phr for 100% MWCNT (i.e., 4C0F) to 0.83 phr for 75/25 wt% of MWCNT/FLG (i.e., 3C1F). The reduction in percolation threshold was originated from interconnectivity between MWCNT and FLG. The percolation threshold of 3C1F nanocomposite was lower than percolation threshold reported in previous works.

**Keywords**: Conductive polymer composites; Natural rubber; Conductive fillers; Reinforcement; Graphene; Nanotube

Prince of Songkla University Pattani Campus