



SINTESIS BAHAN UBAHAN GRADUAL ALUMINUM TITANAT/KORUNDUM DARI ALUMINA TRANSISI DENGAN PENAMBAHAN MgO

Achmad Sulhan Fauzi
Suminar Pratapa (suminar.pratapa@physics.its.ac.id)
Mohammad Herman Eko Santoso
Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

ABSTRACT

This article describes the results of research on the use of transition alumina for improving the performance of ceramics. Synthesis has been made of gradual changes materials (Functionally Graded Materials, FGM) aluminum titanate (AT) / corundum based on transition alumina powders with the addition of MgO as a stabilizer of AT as much as 2 wt.%. Samples without the addition of MgO was also made for comparison. Transition alumina with and without the addition of MgO were calcined at a temperature of 1100°C for 1 hour to become α -alumina. The powder mixture was compacted at a pressure of 49.3 MPa and then prasintered at a temperature of 1100°C for 1 hour, then repeatedly infiltrated with infiltrator $TiCl_3$ solution (20%) which prepared by dissolving the Ti metal powders into HCl. Furthermore, the material sintered at temperatures of 1500°C with a holding time for 3 hours. Physical character of materials showed an increase in density and decrease in porosity of the material due to the addition of MgO. Phase identification results obtained from the content of AT and corundum phases which gradual in depth, indicating that FGM has been formed. These results were supported by analysis of x-ray diffraction pattern showing the formation of a solid solution $Al_2(1-x) + Mg_xTi_1xO_5$ which marked by the shifting of the peak of AT phase in FGM samples with the addition of MgO.

Keywords: alumina transition, aluminum titanate, FGM, solid solution

ABSTRAK

Tulisan ini menjelaskan hasil penelitian tentang penggunaan alumina transisi untuk meningkatkan performa keramik. Telah dilakukan sintesis bahan ubahan gradual (Functionally Graded Material, FGM) aluminum titanat (AT)/korundum berbahan dasar serbuk alumina transisi dengan penambahan MgO sebagai penstabil AT sebanyak 2 wt.%. Sampel tanpa tambahan MgO juga dibuat sebagai pembandingan. Alumina transisi dengan dan tanpa penambahan MgO dikalsinasi pada temperatur 1100°C selama 1 jam sehingga menjadi α -alumina. Serbuk campuran dikompaksi pada tekanan 49,3 MPa lalu diprasinter pada temperatur 1100°C selama 1 jam, kemudian diinfiltrasi secara berulang dengan infiltran larutan $TiCl_3$ (20%) yang dibuat dengan cara melarutkan serbuk logam Ti ke dalam HCl. Selanjutnya bahan disinter pada temperatur 1500°C dengan holding time selama 3 jam. Karakterisasi fisik bahan memperlihatkan adanya kenaikan densitas dan penurunan porositas bahan akibat penambahan MgO. Dari hasil identifikasi fasa didapatkan kandungan fasa AT dan korundum yang gradual terhadap kedalaman, menunjukkan bahwa FGM telah terbentuk. Hasil ini didukung dengan analisis pada pola difraksi sinar-x yang

memperlihatkan terbentuknya larutan padat $Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{1+x}O_5$ yang ditandai terjadinya pergeseran puncak fasa AT pada sampel FGM dengan penambahan MgO.

Kata kunci: alumunium titanat, alumina transisi, FGM, larutan padat

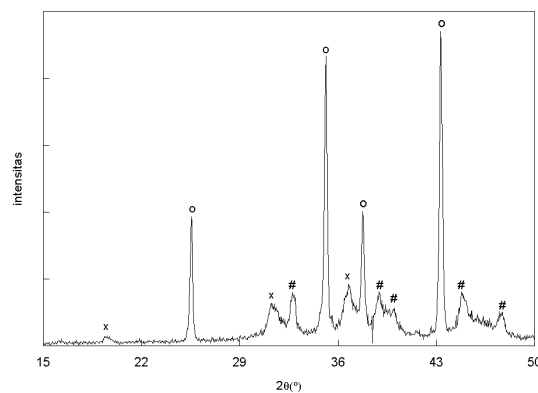
Aluminum titanat (AT) adalah keramik dengan beberapa keunggulan sifat, di antaranya kapasitas panas yang baik, konduktivitas panas yang rendah, tahan korosi, bisa sebagai isolator, semikonduktor, konduktor, superkonduktor, keras dan kuat. Namun bahan keramik juga mempunyai keterbatasan, di antaranya adalah rapuh dan mempunyai ketahanan kejutan termal dan mekanik yang rendah sehingga menyebabkan terjadi retakan pada permukaannya (Suasmoro, 2000).

Material baru dengan desain komposisi gradual, biasa disebut *FGM (Functionally-Graded Material)*, telah banyak dibuat. Salah satunya adalah *FGM AT/korundum* yang disintesis dengan metode infiltrasi berulang (Pratapa & Low, 1998; Weddakarti, 2010; Pratapa dkk, 2011) dengan bahan dasar korundum yang relatif mahal sebagai matriksnya.

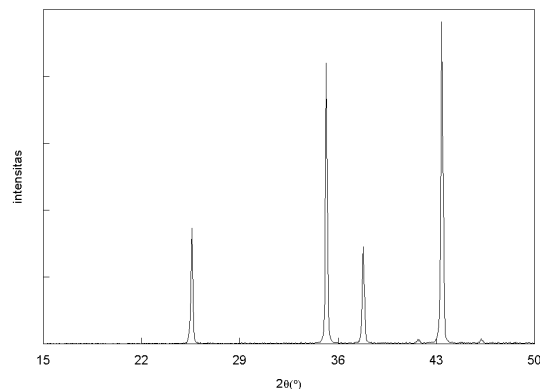
Tulisan ini mengangkat hasil riset penggunaan alumina transisi yang relatif lebih ekonomis sebagai bahan dasar matriks *FGMs AT/korundum* (Sari, 2010). Untuk meningkatkan performa termomekanik, seperti pada penelitian sebelumnya (Umaroh 2009; Weddakarti, 2010; Pratapa dkk., 2011), ditambahkan MgO sebanyak 2% sebagai penstabil AT karena dapat terdekomposisi menjadi korundum dan rutil pada temperatur 800–1280°C (Huang, Senos & Baptista, 1996).

METODE

Alumina transisi terdiri atas fasa-fasa α -alumina (PDF 42-1468), β -alumina (PDF 10-0414) dan κ -alumina (PDF 08-0013) seperti ditunjukkan pola difraksi bahan tersebut pada Gambar 1, kemudian setelah dikalsinasi pada temperatur 1100°C selama 1 jam menjadi korundum (10-0173) seperti diperlihatkan pada Gambar 2.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-x ($\lambda_{Cu K\alpha} = 1,5418\text{\AA}$) alumina transisi.
(o= α -alumina; x= β -alumina; #= κ -alumina)



Gambar 2. Pola difraksi sinar-x ($\lambda_{Cu K\alpha} = 1,5418\text{\AA}$) α -alumina (korundum) hasil kalsinasi alumina transisi pada temperatur 1100°C selama 1 jam

Sintesis *FGM* dengan penambahan MgO diawali dengan pencampuran serbuk Alumina transisi tersebut dengan serbuk MgO (2 wt.%), pencampuran dilakukan dengan penggerusan kemudian ditambahkan aquabidestilata dan larutan NH_4OH dengan perbandingan NH_4OH 10% dari aquabidestilata. Aquabidestilata ditambahkan langsung saat penggerusan, baru kemudian larutan NH_4OH ditambahkan dengan ditetaskan sambil terus digerus sampai tercampur merata, kemudian dilakukan pemanasan pada temperatur 1100°C untuk menghasilkan korundum (Sari, 2010).

Proses selanjutnya sampel dikompaksi dengan tekanan sekitar 49 MPa sehingga terbentuk pelet berbentuk silinder dengan diameter sekitar 13 mm dan tebal 3 mm. Selanjutnya sampel diprasinter pada temperatur 1100°C selama 1 jam agar lebih kuat dan tidak rapuh saat diinfiltrasi.

Selanjutnya dilakukan infiltrasi berulang menggunakan larutan TiCl_3 (20%) sebanyak 5 kali. Sebelum proses infiltrasi, ditentukan nilai porositas dan densitasnya menggunakan metode *Archimedes*. Sampel yang telah diinfiltrasi disinter pada temperatur 1500°C selama 3 jam.

Uji fisik dilakukan setelah sinter untuk melihat perubahan massa, densitas, porositas serta penyusutan volum sampel, kemudian dilanjutkan dengan uji XRD pada permukaan sampai kedalaman 0,4 mm untuk mengetahui fasa-fasa yang terkandung dan kegradualan sampel. Analisis kuantitatif menggunakan *High Score Plus* dilakukan untuk mencari komposisi masing-masing fasa dalam sampel dan metode Rietveld digunakan untuk menentukan volum sel satuan masing-masing fasa. Semua perlakuan tersebut juga dilakukan pada sampel AT (*FGM* tanpa penambahan MgO), sehingga diketahui bagaimana pengaruh penambahan MgO pada *FGM* AT.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil karakterisasi fisik menunjukkan densitas dan porositas sampel *FGMs* AT dengan 0 wt.% MgO yang relatif lebih besar dari pada sampel *FGMAT* dengan 2 wt.% MgO setelah disinter pada temperatur 1500°C, yaitu 13,8% dan 3,51 gr/cm³ untuk sampel AT, 10,5% dan 3,49 gr/cm³ untuk sampel ATM, seperti diperlihatkan pada Tabel 1. Pada penelitian yang lain (Fauzi, 2012), terjadi penurunan porositas dan kenaikan densitas bahan *FGM* akibat kenaikan temperatur sinter dari 1450°C ke 1550°C. Kalita dan Somani (2010) juga melaporkan kenaikan temperatur sinter menyebabkan penurunan porositas.

Tabel 1. Perubahan Densitas dan Porositas Sampel FGM AT dan ATM

Sampel	P _o (%)	D _o (gr/cm ³)	P _i (%)	D _i (gr/cm ³)
AT	60,0	3,37	13,8	3,51
ATM	58,6	3,31	10,5	3,49

Keterangan:

P_o : Porositas sebelum sinter

D_o : Densitas sebelum sinter

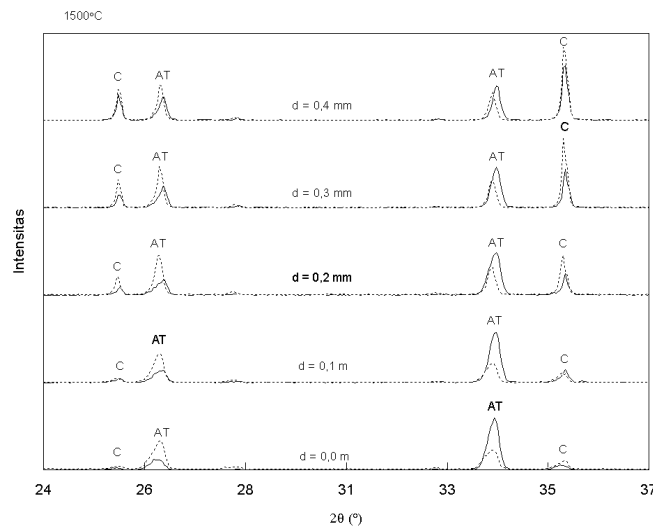
P_i : Porositas setelah sinter

D_i : Densitas setelah sinter

AT : FGMs AT tanpa MgO

ATM : FGMs AT dengan aditif 2 wt.% MgO

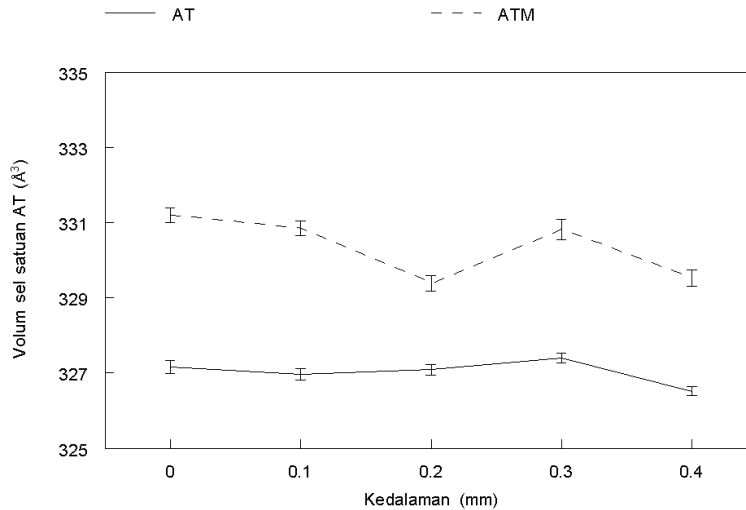
Setelah disinter, di dalam sampel AT terdapat fasa AT (PDF 41-0258) dan terdapat fasa korundum (PDF 46-1212). Untuk sampel ATM terdapat fasa AT (PDF 09-0252) dan fasa korundum (PDF 11-0661). Kegradualan komposisi korundum dan AT terhadap kedalaman dapat dilihat dari pola-pola difraksi sinar-x pada kedalaman 0,0–0,4 mm untuk sampel AT dan ATM seperti disajikan pada Gambar 3.



Gambar 3. Pola-pola difraksi sinar-x menunjukkan pergeseran puncak dan kegradualan fasa AT (garis penuh: AT; garis putus-putus: ATM) setelah disinter pada temperatur 1500°C selama 3 jam

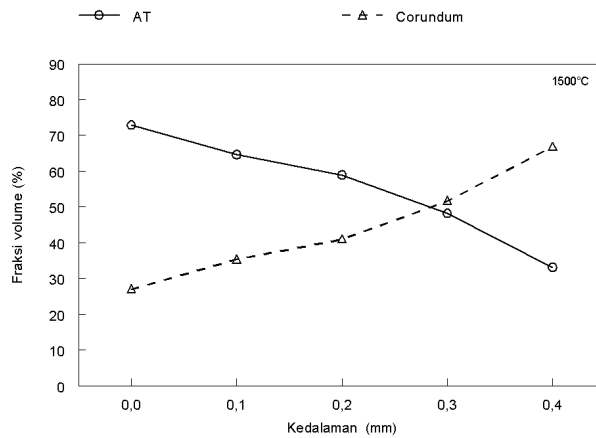
Bila diamati lebih seksama, pada Gambar 3 tampak puncak AT sampel AT (pola garis putus-putus) berada pada sekitar sudut $2\theta = 18,8^\circ$; $26,5^\circ$ dan $33,6^\circ$ bergeser sedikit ke kiri menjadi di sekitar sudut $2\theta = 18,6^\circ$; $26,4^\circ$ dan $33,5^\circ$ pada sampel ATM (pola garis penuh). Pergeseran puncak intensitas fasa AT ini juga diikuti perubahan lebarnya yang mengindikasikan terbentuknya larutan padat $\text{Al}_{2(1-x)}\text{Mg}_x\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$. Pergeseran puncak ini juga dilaporkan oleh Abdullah (2011) dan Pratapa dkk. (2011), tidak terbentuknya fasa spinel (MgAl_2O_4), rutil (TiO_2) dan periklas (MgO) merupakan indikasi reaksi yang sempurna dari prekursor yang terinfiltrasi dengan korundum sebagai matriksnya

karena substitusi sebagian ion Al^{3+} dan Ti^{4+} dengan ion Mg^{2+} akibat penambahan aditif MgO karena jari-jari ion Mg^{2+} (0,66 Å) dan Ti^{4+} (0,68 Å) lebih besar daripada Al^{3+} (0,55 Å) sehingga terbentuk larutan padat. Bukti lain terbentuknya larutan padat ini adalah terjadinya ekspansi volum AT pada sampel ATM akibat penambahan MgO karena ukuran ion Mg^{2+} yang relatif lebih besar dari Al^{3+} , seperti ditunjukkan oleh Gambar 4.



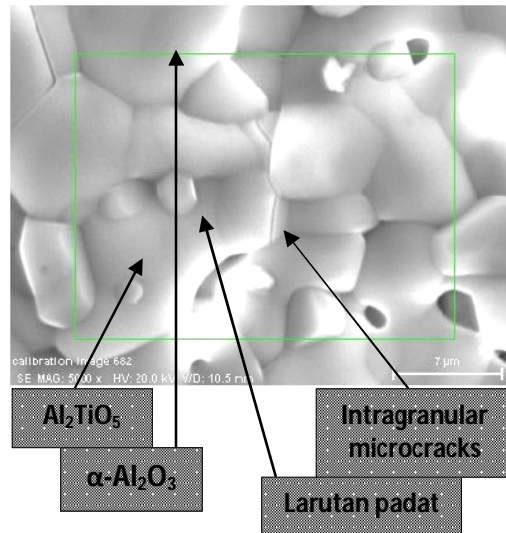
Gambar 4. Volum sel satuan AT dan ATM yang ditentukan dengan metode Rietveld pada permukaan sampai kedalaman 0,4 mm. (garis penuh: AT; garis putus-putus: ATM).

Pada Gambar 3 tampak kandungan fasa AT mendominasi di permukaan sampel dengan komposisi yang gradual terhadap kedalaman. Puncak korundum (C) semakin tinggi dan puncak AT menurun terhadap kedalaman. Hasil analisis kuantitatif komposisi fasa seperti ditunjukkan dalam grafik fraksi volum relatif AT dan korundum pada Gambar 5, di permukaan terdapat fasa AT sebesar 71,8% yang turun menjadi 31,3% pada kedalaman 0,4 mm, sebaliknya untuk fasa korundum dipermukaan terdapat 28,2% naik menjadi 68,7% pada kedalaman 0,4 mm dengan nilai gradien penurunan AT sebesar 9,92. Pada penelitian yang lain (Fauzi, 2012), penurunan fasa AT terhadap kedalaman pada sampel ATM menjadi semakin landai seiring kenaikan temperatur sinter, yaitu dengan nilai gradien 11,5 pada temperatur sinter 1450°C menjadi 8,2 pada temperatur sinter 1550°C. Demikian juga untuk sampel AT, terjadi penurunan fasa AT terhadap kedalaman dengan nilai gradien 13,4 pada temperatur sinter 1450°C menjadi 9,3 pada temperatur sinter 1550°C (Santoso, 2011). Dari hasil tersebut dapat diduga kenaikan temperatur sinter menyebabkan distribusi fasa AT relatif lebih teratur terhadap kedalaman. Menurut Buscaglia dkk. (1994), kenaikan temperatur sinter, menyebabkan aditif MgO semakin larut dalam AT membentuk larutan padat. Selain itu juga akibat substitusi ion-ion Mg^{2+} terhadap sebagian ion-ion Al^{3+} dan Ti^{4+} semakin bertambah sehingga terjadi pengurangan porositas karena pertumbuhan butir.

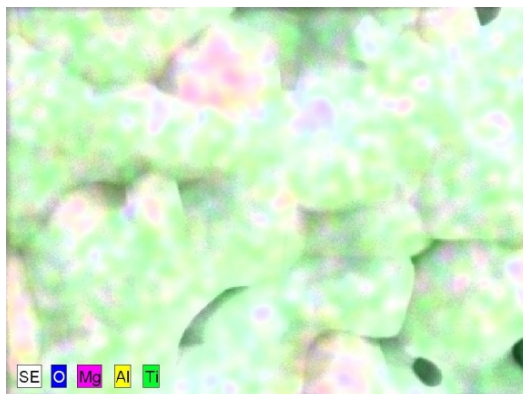


Gambar 5. Fraksi volum relatif AT dan korundum sampel *FGMs* ATM dengan temperatur sinter 1500°C pada kedalaman 0,0-0,4 mm

Pemetaan unsur-unsur menggunakan SEM-EDX menunjukkan bahwa dalam sampel terdapat Al, Ti, O dan Mg pada permukaan *FGMs* AT dengan penambahan 2 wt.% MgO seperti terlihat pada Gambar 6 dan 7. Terbentuknya larutan padat $Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{1+x}O_5$ dapat dikenali dari munculnya unsur-unsur Al, Ti, Mg dan O, sedang daerah yang mengandung Al dan O saja merupakan butir korundum. Hasil tersebut sesuai dengan beberapa penelitian sebelumnya, Umaroh (2009), Weddakarti (2010), Abdullah (2011) dan Pratapa dkk. (2011) yang melaporkan bahwa penambahan 2 wt.% MgO pada *FGMs* ATM menyebabkan terbentuknya larutan padat akibat bereaksinya MgO dengan korundum dan rutil.



Gambar 6. Mikrostruktur hasil pengamatan SEM



Gambar 7. Hasil pemetaan unsur-unsur menggunakan EDX pada permukaan ATM

KESIMPULAN

Alumina transisi dapat disintesis menjadi FGMAT setelah disinter 1500°C. Terbentuknya larutan padat $Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{1+x}O_5$ terdeteksi pada sampel dengan penambahan 2 wt.% MgO ditandai terjadinya pergeseran puncak fasa AT dan meningkatnya volum sel satuan AT dan didukung oleh hasil pengamatan mikrostruktur dan pemetaan unsur-unsur menggunakan SEM-EDX.

REFERENSI

- Abdullah, D.D.P. (2011). *Studi ekspansi termal keramik padat $Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{1+x}O_5$* . Tesis master yang tidak dipublikasikan. Surabaya: Jurusan Fisika-FMIPA, ITS.
- Buscaglia, V., Nanni, P., Battilana, G., Aliprandi, G., & Carry, C. (1994). Reaction sintering of aluminium titanate: I-Effect of MgO addition. *Journal of the European Ceramic Society*, 13, 411-417.
- Fauzi, A.S., (2012), *Sintesis dan karakterisasi termomekanik FGMs berbasis aluminum titanat berbahan dasar alumina transisi*. Tesis master yang tidak dipublikasikan. Jurusan Fisika-FMIPA, Surabaya.
- Huang, Y.X., Senos, A.M.R., & Baptista, J.L. (1996). Effect of excess SiO_2 in the reaction sintering of aluminium titanate-25 vol% mullite composite. *Ceramics International*, 24, 223-228.
- Kalita, S. J., & Somani, V. (2010). $Al_2TiO_5-Al_2O_3-TiO_2$ nanocomposite: Structure, mechanical property and bioactivity studies. *Materials Research Bulletin*, Vol. 45, 1803-1811.
- Pratapa, S., Low, & I.M. (1998). Infiltration-Processed, functionally graded aluminum titanate/zirconia-alumina composite part II mechanical properties. *Journal of Material Science*, 33, 3047-3053.
- Pratapa, S., Fauzi, A.S, & Santoso, M.H.E. (2011). Microstructural and decomposition rate studies of periclase-added aluminium titanate-corundum functionally-graded materials. *Material Letters*, 11, 72.
- Sari, T.K. (2010). *Karakterisasi kegradualan komposisi FGMs korundum-rutile-aluminium titanat berbahan dasar alumina transisi*. Tugas Akhir. Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Suasmo. (2000). *Fisika keramik*. Surabaya: Jurusan Fisika FMIPA ITS.

- Umaroh, K. (2009). *Sintesis FGM α -Al₂O₃/Al₂TiO₅-Distabilisasi-MgO dengan metode Infiltrasi Berulang*. Tesis master yang tidak dipublikasikan. Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Weddakarti, E. (2010). *Karakterisasi mikrostruktur dan kekerasan FGMs α -Al₂O₃/Al₂TiO₅-distabilisasi-MgO hasil infiltrasi berulang*. Tesis master yang tidak dipublikasikan. Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Wohlfromm, H, Thierry E, Pilar P, Jose S.M, & Gareth T. (1991). Microstructural characterization of aluminum titanate based composite materials. *Journal of the European ceramic society*, 7, 385-396.