



SINTESIS α - Al_2O_3 DARI SERBUK BOEHMITE MENGGUNAKAN TEKNIK *SPARK PLASMA SINTERING* (SPS): STUDI TRANSFORMASI FASA, MIKROSTRUKTUR, DENSITAS, DAN KEKERASAN

Diastati Puspita Ning Ayu^a, Bambang Hermanto^b, Arif Tjahjono^a, Toto Sudiro^{b,*}

^aProgram Studi Fisika, Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta
Jl. Ir. H. Juanda No. 95, Cempaka Putih, Indonesia 15412

^bPusat Penelitian Fisika, LIPI

Gedung 440-442, Kawasan Puspiptek Serpong, Indonesia 15310

*E-mail: toto011@lipi.go.id

Masuk Tanggal : 13-07-2020 , revisi tanggal: 28-07-2020, diterima untuk diterbitkan tanggal : 11-10-2020

Abstrak

Pada studi ini, telah disintesis *bulk* keramik alumina dari serbuk boehmite menggunakan teknik SPS (*spark plasma sintering*) pada temperatur 650, 750, 950, 1100, 1200, dan 1300 °C. Transformasi fasa dari boehmite menjadi keramik α - Al_2O_3 dipelajari menggunakan XRD (*x-ray diffraction*). Berdasarkan hasil analisis XRD juga dilakukan perhitungan nilai ukuran kristal, regangan kisi serta kerapatan dislokasi untuk masing-masing sampel keramik alumina tersebut. Mikrostruktur permukaan, densitas dan kekerasan *bulk* keramik dianalisis dengan menggunakan OM (*optical microscopy*), prinsip *Archimedes* dan uji keras mikro Vicker's. Hasil XRD menunjukkan bahwa struktur keramik alumina yang terbentuk dipengaruhi oleh temperatur *sintering*. Pada temperatur 650 °C, sebagian material dasar (boehmite) telah bertransformasi menjadi χ - Al_2O_3 , γ - Al_2O_3 , dan δ - Al_2O_3 . Dengan meningkatnya temperatur *sintering*, keramik alumina dengan struktur alpha (α) mulai terbentuk pada temperatur 1100 °C. Boehmite bertransformasi secara sempurna menjadi α -alumina pada temperatur 1300 °C. Hasil analisis juga menunjukkan bahwa nilai ukuran kristal keramik alumina berbanding terbalik dengan nilai regangan kisi dan kerapatan dislokasi. Proses *sintering* pada temperatur 1300 °C menghasilkan *bulk* keramik alumina yang lebih homogen dengan nilai kerapatan dan kekerasan yang paling optimum yaitu 3,38 gr/cm³ dan 1059,86 ± 2,72 VHN.

Kata Kunci: Boehmite, Al_2O_3 , *spark plasma sintering*, χ - Al_2O_3 , γ - Al_2O_3 , δ - Al_2O_3

Abstract

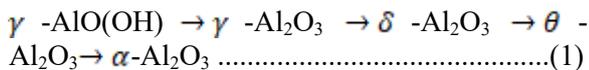
In this study, bulk alumina ceramics were synthesized from boehmite powder using SPS (spark plasma sintering) at elevated temperatures of 650, 750, 950, 1100, 1200, and 1300 °C. The transformation process of boehmite into α - Al_2O_3 ceramic was studied using XRD (x-ray diffraction). The crystalline size, lattice strain, and dislocation density of each ceramic aluminum sample were determined on the basis of the XRD analysis results. Meanwhile, the surface microstructure, density, and hardness of bulk ceramics were analyzed using the OM (optical microscopy), the Archimedes theory, and the Vicker's microhardness. The XRD results show that the sintering temperature is influenced by the structure of the aluminum ceramic formed. At 650 °C, some quantities of the starting material (boehmite) have been converted into χ - Al_2O_3 , γ - Al_2O_3 and δ - Al_2O_3 . With the rise in sintering temperature, the aluminum ceramic alpha structure was formed at 1100 °C. The boehmite was completely converted into α -alumina at 1300 °C. The study results also showed that the ceramic aluminum crystalline size was inversely proportional to the value of the lattice strain and dislocation density. The sintering method results in more homogeneous bulk alumina ceramics with an optimal density and hardness of 3.38 gr/cm³ and 1059.86 ± 2.72 HVN at 1300 °C.

Keywords: Boehmite, Al_2O_3 , *spark plasma sintering*, χ - Al_2O_3 , γ - Al_2O_3 , δ - Al_2O_3

1. PENDAHULUAN

Alumina (Al_2O_3) merupakan oksida keramik yang memiliki banyak kegunaan karena sifat mekaniknya yang beragam dan unik, yang memungkinkan bahan ini digunakan untuk berbagai aplikasi seperti katalis, refraktori, adsorben, mikroelektronik dan penggunaan implan ortopedi [1]–[3]. Pada dasarnya, karakteristik alumina yang unik tersebut dipengaruhi oleh struktur fasa alumina yang terbentuk, diantaranya adalah α , χ , η , δ , κ , θ , γ , ρ [4]. Fasa alpha (α - Al_2O_3) merupakan fasa yang paling stabil dan banyak digunakan untuk aplikasi keramik maju karena tahan temperatur tinggi, memiliki nilai kekerasan yang tinggi, konduktivitas panas dan stabilitas kimia yang baik [1],[3]. Namun, yang menjadi pokok permasalahan dalam pemanfaatan material tersebut untuk aplikasi yang luas dan jumlah yang besar adalah harga jualnya yang tinggi.

Pada studi sebelumnya, boehmite (γ - $\text{AlO}(\text{OH})$) telah dijadikan bahan baku alternatif untuk menghasilkan alumina dengan struktur fasa tertentu, melalui transformasi fasa sebagai berikut [5]:



Boehmite dapat bertransformasi menjadi fasa-fasa transisi alumina seperti gamma-alumina, delta-alumina, dan theta-alumina (γ -, δ -, θ -) dan bertransformasi lebih lanjut menjadi fasa alpha-alumina (α - Al_2O_3) yang stabil. Proses transformasi ini terjadi karena adanya pemberian panas. Boehmite akan mulai bertransformasi menjadi γ - Al_2O_3 pada kisaran temperatur 500-550 °C ditandai dengan proses penguapan air [2]. Transformasi γ - Al_2O_3 menjadi δ - Al_2O_3 terjadi pada kisaran temperatur di bawah 900 °C, sedangkan transformasi dari δ - Al_2O_3 menjadi θ - Al_2O_3 terjadi pada temperatur di bawah 1100 °C dan transformasi dari θ - Al_2O_3 menjadi α - Al_2O_3 terjadi pada temperatur di bawah 1200 °C [5].

Transformasi tersebut dapat terjadi karena proses nukleasi dan pertumbuhan butir pada sampel. Proses ini dapat dipengaruhi oleh beberapa parameter [6]–[8] seperti ukuran butir dan laju pemanasan yang sangat berpengaruh terhadap mikrostruktur dan kerapatan (densitas) sampel yang dihasilkan. Proses transformasi boehmite menjadi alumina dapat dilakukan menggunakan teknik kompaksi dan *sintering*, dimana sampel serbuk dapat diubah menjadi padatan/pelet setelah dikompaksi dan dipanaskan pada temperatur tertentu dan periode tertentu. Proses kompaksi dengan tekanan tinggi

dapat menghasilkan sampel dengan tingkat kerapatan yang lebih baik. Sedangkan proses *sintering* pada temperatur yang lebih tinggi dan waktu yang lebih lama dapat menghasilkan sampel dengan ukuran butir kristal yang semakin besar. Sehingga untuk mendapatkan sampel dengan karakteristik tertentu, pemilihan parameter proses menjadi penting. Secara umum tingkat kerapatan dan kekerasan suatu material dipengaruhi oleh ukuran partikel atau kristal material penyusunnya.

Teknik SPS (*spark plasma sintering*) merupakan teknologi maju yang dapat digunakan untuk menghasilkan padatan (*bulk*) dengan densitas tinggi dari serbuk penyusunnya [9], dimana pada saat proses *sintering* baik tekanan kompaksi, temperatur *sintering*, lama pemanasan dan *sintering atmosphere* (level vakum atau tekanan gas inert) dapat dikontrol secara signifikan. Selain itu, teknik SPS ini dilengkapi dengan sensor perubahan ketebalan sampel yang dapat dimonitor selama proses *sintering* berlangsung. Teknik SPS ini menjadi sangat efisien dan efektif, karena dengan mengatur laju pemanasan pada saat proses pemanasan sangat dimungkinkan untuk menghasilkan sinter material dalam waktu yang relatif singkat. Berbeda dengan teknik *hot pressing* yang pada proses *sintering*nya membutuhkan waktu yang lama. Selain perbedaan waktu, hasil *sintering* dari kedua teknik ini pun berbeda dimana untuk teknik SPS diperoleh sampel yang memiliki butir kristal yang halus sedangkan untuk teknik *hot pressing* diperoleh butir kristal yang kasar/lebih besar [10]. Sehingga teknik SPS ini sangat populer digunakan untuk mensintesis berbagai *bulk* material seperti logam, keramik, komposit, paduan intermetalik, cermet, dan material lainnya [11]. Khususnya berkenaan dengan keramik alumina, banyak penelitian yang telah dilakukan untuk mensinter atau mendensifikasi Al_2O_3 dengan teknik SPS, seperti untuk menghasilkan keramik alumina yang transparan [12]–[14] dan nano komposit alumina [9], [15]–[16]. Namun, untuk studi tentang pembuatan keramik α - Al_2O_3 dari bahan boehmite tunggal dengan menggunakan teknik SPS pada temperatur proses yang berbeda dan khususnya menginvestigasi proses transformasi fasa dari bahan tersebut serta mempelajari karakteristik *bulk* yang dihasilkan masih terbilang jarang.

Berdasarkan uraian di atas, pada penelitian ini dilakukan studi *sintering* boehmite menjadi fasa alumina yang stabil, α - Al_2O_3 , menggunakan teknik SPS pada temperatur yang berbeda untuk mempelajari pengaruh kenaikan temperatur

sintering terhadap struktur fasa yang terbentuk, besarnya nilai ukuran kristalit (*crystallite size*), regangan kisi (*lattice strain*), dan kerapatan dislokasi (*dislocation density*). Di samping itu pada studi ini juga dilakukan analisa mikrostruktur dan sifat mekanik sampel hasil *sintering* seperti pengukuran nilai densitas dan kekerasan.

2. PROSEDUR PERCOBAAN

2.1 Preparasi Powder dan Cetakan SPS

Serbuk (*powder*) boehmite yang digunakan sebagai bahan dasar untuk menghasilkan α -Al₂O₃ adalah produksi Taimei Chemical Co. Ltd, Japan dengan ukuran butir sebesar 0,1 μ m. Proses *sintering* dengan teknik SPS pada penelitian ini menggunakan cetakan (*die* dan *punches*) berbahan grafit berdiameter 20 mm. Untuk menghasilkan *bulk* atau pelet dengan estimasi ketebalan 5 mm dengan beban penekanan 80 MPa digunakan *powder* boehmite sebanyak 3,95 g. Selain itu, pada penelitian ini juga menggunakan *graphite paper* yang dimasukkan di antara serbuk dan cetakan berfungsi sebagai pelindung serbuk/sampel agar tidak terjadi kontak langsung dengan cetakan grafit (*graphite die*) atau untuk menghindari agar serbuk/sampel tidak menempel pada cetakan. Kemudian, serbuk dimasukkan ke dalam cetakan dan ditekan dengan *punches* dari sisi atas dan bawah. Sebelum proses *sintering* dilakukan, cetakan yang telah berisi serbuk, dilapisi dengan selimut grafit yang berguna sebagai pelindung radiasi dan guna meminimumkan kehilangan panas pada saat *sintering* pada temperatur tinggi.

2.2 Proses Sintering

Serbuk yang telah dipreparasi ke dalam cetakan dimasukkan ke dalam *chamber* SPS (*spark plasma sintering*) tipe Dr. Sinter 625. Sebelum proses *sintering* dimulai *chamber* SPS divakumkan hingga tekanan di bawah 5 Pa dan *powder* ditekan dengan beban sebesar 80 Mpa. Tekanan kompresi ini diset konstan selama proses *sintering*. Serbuk boehmite kemudian disinter pada temperatur yang berbeda, yaitu 650, 750, 950, 1100, 1200, dan 1300 °C dengan laju pemanasan sebesar 100 °C/min untuk kenaikan temperatur 650 - 950 °C tanpa waktu penahanan, dan untuk temperatur *sintering* 1100 - 1300 °C dengan waktu penahanan selama 5 menit, laju pemanasan disetting sebesar 100 °C/min hingga 100 °C di bawah temperatur yang ditargetkan (1100, 1200 dan 1300 °C) dan 50 °C/min untuk kenaikan temperatur dari 1000 - 1100 °C, 1100 - 1200 °C, dan 1200 - 1300 °C. Selama proses

sintering, beberapa parameter operasional seperti waktu, temperatur dan ketebalan sampel (*stroke*) direkam ke dalam komputer untuk mengamati proses laku sinter (*sintering behavior*) pada masing-masing temperatur dengan total waktu proses untuk masing-masing sampel yang disinter pada temperatur 650; 750; 950; 1100; 1200; dan 1300 °C adalah 4,6; 5,6; 7,6; 15,1; 16,1; dan 17,1 menit.

Setelah proses *sintering* selesai sampel didinginkan di dalam *chamber* hingga mencapai temperatur ruang. Sampel kemudian dikeluarkan dari cetakan dan dipoles dengan menggunakan kertas ampelas nomor 320, 800, 1500, 3000, dan 5000 untuk menghilangkan *graphite paper* yang menempel pada permukaan cetakan dan meratakan serta menghaluskan permukaan sampel. Setelah proses poles (*polishing*) tidak dilakukan pengetsaan. Sampel yang telah dipoles kemudian langsung dilakukan serangkaian pengujian diantaranya adalah XRD (*x-ray diffraction*), OM (*optical microscopy*), densitas dan kekerasan pada sampel.

2.3 Karakterisasi Sampel

Identifikasi atau transformasi fasa masing-masing sampel dianalisis dengan XRD (*x-ray diffraction*) Rigaku tipe SmartLab dengan menggunakan CuK- α sebagai sumber sinar-x dengan rentang pengukuran pada sudut 10° sampai 90°. Berdasarkan data hasil pengukuran puncak difraksi yang didapat, kemudian dilakukan analisis lebih lanjut untuk menghitung besarnya nilai ukuran kristalit, regangan kisi [17] dan kerapatan dislokasi [18] dengan menggunakan formula berikut ini:

$$D = \frac{0,9 \lambda}{B \cos \theta} \quad \dots \dots \dots (2)$$

$$\epsilon = \frac{B}{4 \tan \theta} \quad \dots \dots \dots (3)$$

$$\rho = \frac{\sqrt{12} \epsilon}{D} \quad \dots \dots \dots (4)$$

Keterangan:

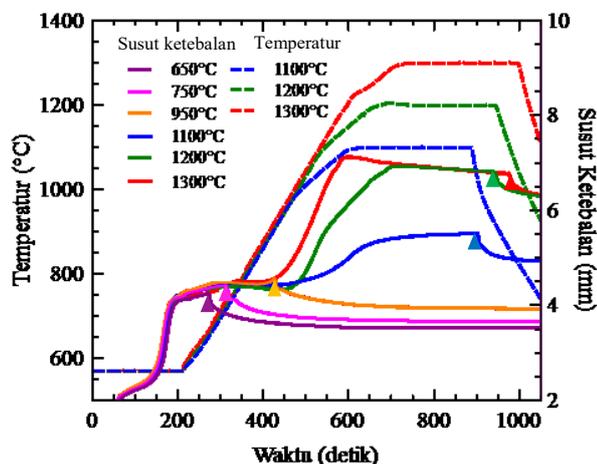
- D: Ukuran kristalit (nm)
- λ : Panjang gelombang (Å)
- B: FWHM (deg)
- θ : Sudut (deg)
- ϵ : Regangan kisi (%)
- ρ : Kerapatan dislokasi (line/nm²)
- d: *d-spacing* (Å)

Morfologi permukaan sampel dianalisis dengan menggunakan *optical microscope* KEYENCE tipe VHX-6000, analisis *bulk density* menggunakan metode Archimedes dan analisis kekerasan menggunakan uji keras mikro *Vicker's* tipe LECO LM100 dengan menggunakan beban sebesar 500 gf dengan waktu tahan selama 13 detik.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Kurva Laku Sintering (*Sintering Behavior*)

Selama berlangsungnya proses *sintering*, serbuk di dalam *graphite die* akan mengalami densifikasi atau pematatan, sehingga ketebalan sampel akan mengalami perubahan. Gambar 1 merupakan kurva laku sinter yang menunjukkan perubahan ketebalan sampel sebagai fungsi waktu dan temperatur.



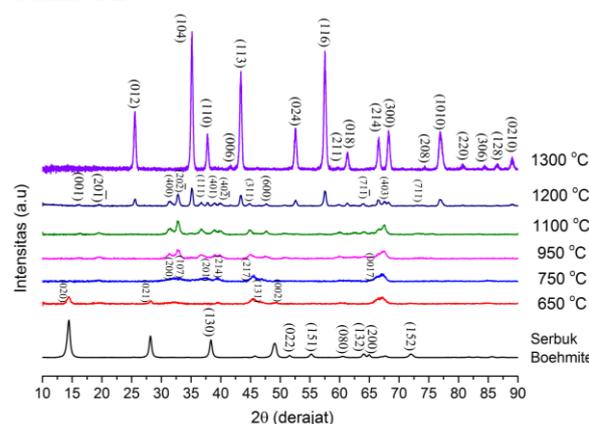
Gambar 1. Kurva laku sinter boehmite pada temperatur 650-1300 °C dengan menggunakan teknik *spark plasma sintering*

Berdasarkan Gambar 1, kurva dengan garis putus-putus berwarna merah, hijau, dan biru masing-masing menunjukkan profil temperatur *sintering* untuk temperatur 1300, 1200, dan 1100 °C dengan laju pemanasan disetting 100 °C/min dari temperatur 650 hingga 100 °C sebelum temperatur yang ditargetkan (1100, 1200, dan 1300 °C), dan untuk mencegah *over heating* pada temperatur tinggi, pada temperatur 1000 – 1100 °C, 1100 – 1200 °C, dan 1200 – 1300 °C laju pemanasan diturunkan menjadi 50 °C/min. Sedangkan untuk proses *sintering* di bawah temperatur 1100 °C yaitu 650, 750 dan 950 °C, laju pemanasan diatur pada 100 °C/min. Kurva ungu tua, ungu muda, oranye, biru, hijau, dan merah masing-masing menunjukkan perubahan ketebalan sampel pada temperatur sinter 650, 750, 950, 1100, 1200, dan 1300 °C. Ikon segitiga pada masing-masing kurva tersebut menunjukkan titik dimana proses *sintering* dihentikan. Setelah

proses *sintering* selesai kurva tersebut cenderung melandai dan/atau konstan. Berdasarkan hasil pada gambar di atas dapat dilihat bahwa pada temperatur rendah, perubahan ketebalan sampel relatif kecil. Namun dengan meningkatnya temperatur sinter perubahan *shrinkage* (ketebalan) menjadi besar yang menandakan bahwa sampel memiliki kepadatan yang tinggi [19]–[21]. Hal ini dikarenakan semakin tinggi perubahan ketebalan sampel, maka didapatkan sampel akhir atau hasil *sintering* yang lebih tipis (volume yang lebih kecil). Karena jumlah massa awal serbuk yang disinter adalah sama, maka sampel dengan volume yang lebih kecil memiliki densitas yang lebih tinggi. Perubahan ketebalan sampel ini nampak cukup signifikan terjadi pada temperatur 950 °C hingga 1300 °C, dengan perubahan ketebalan terbesar terjadi pada temperatur 1300 °C. Fenomena ini terjadi juga dimungkinkan oleh adanya transformasi fasa yang menyebabkan *volume shrinkage* atau susut ketebalan. Dimana transformasi fasa alumina berdampak pada spesimen menjadi sangat padat dengan *volume shrinkage* atau susut ketebalan maksimum bisa mencapai 70% [22].

3.2 Hasil Analisis XRD

Pola difraksi sinar-x untuk serbuk boehmite yang disinter pada temperatur 650, 750, 950, 1100, 1200 dan 1300 °C ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Pola difraksi sinar-X serbuk boehmite dan sampel yang disinter pada temperatur 650, 750, 950, 1100, 1200, dan 1300 °C

Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa bahan baku boehmite yang digunakan memiliki struktur kristal orthorhombik. Setelah proses *sintering* pada temperatur 650 °C, puncak difraksi boehmite cenderung menurun dan hanya terdeteksi cukup jelas pada sudut 15°, 28° dan 49°. Sebagian boehmite telah bertransformasi menjadi χ -Al₂O₃, γ -Al₂O₃, dan δ -Al₂O₃ dengan struktur kristal χ - adalah kubik, γ - dan δ - adalah tetragonal. Perbedaan struktur tetragonal pada γ -

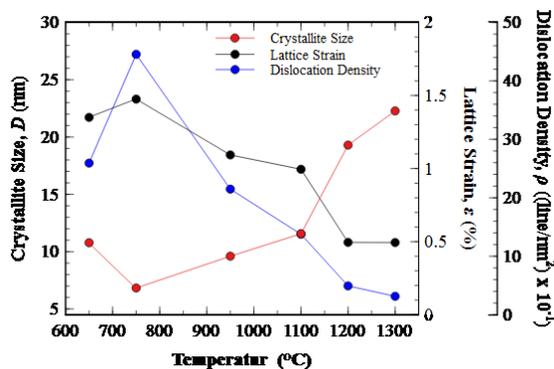
dan δ - terletak pada *cell parameter* dari keduanya [23].

Pada temperatur 750 °C, puncak difraksi boehmite sudah tidak terdeteksi. Sedangkan fasa-fasa transisi alumina yang terbentuk pada temperatur ini hampir sama seperti pada temperatur 650 °C. Namun, terdeteksi puncak difraksi lain yaitu θ -Al₂O₃ pada sudut 67,3° yang disebabkan oleh transformasi lebih lanjut dari χ -Al₂O₃, γ -Al₂O₃, dan δ -Al₂O₃.

Dengan meningkatnya temperatur, pada 950 °C struktur kristal yang dominan terbentuk adalah θ -Al₂O₃. Pada temperatur 1100 °C, struktur kristal yang terbentuk hampir sama dengan temperatur 950 °C. Tetapi pada temperatur 1100 °C teridentifikasi struktur kristal baru yaitu α -Al₂O₃ [5] pada sudut 35,2° dengan puncak difraksi yang relatif rendah. Pada temperatur yang lebih tinggi 1200 °C, struktur kristal yang mendominasi adalah rhombohedral α -Al₂O₃ dengan beberapa puncak difraksi θ -Al₂O₃. Sedangkan pada temperatur 1300 °C, boehmite dan fasa transisi alumina telah bertransformasi secara sempurna menjadi α -Al₂O₃. Secara lengkap masing-masing indeks dari setiap struktur kristal alumina dapat dilihat pada Tabel 1.

3.3 Analisis Ukuran Kristalit, Regangan Kisi dan Kerapatan Dislokasi

Berdasarkan hasil analisis XRD seperti ditunjukkan pada Gambar 2, dilakukan analisis lebih lanjut perhitungan besarnya nilai ukuran kristalit, regangan kisi dan kerapatan dislokasi menggunakan persamaan (2), (3), dan (4) dengan hasil ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Kurva ukuran kristalit, regangan kisi dan kerapatan dislokasi sampel terhadap temperatur *sintering*

Berdasarkan hasil analisis diketahui bahwa nilai ukuran kristalit, regangan kisi dan kerapatan dislokasi boehmite sebelum proses *sintering* masing-masing adalah 15,14 nm; 1,03 % dan 7,37 (line/nm²) $\times 10^{-1}$. Dari Gambar 3 di atas dapat dilihat bahwa telah terjadi penurunan nilai ukuran

kristalit pada temperatur *sintering* 650 °C yaitu 10,78 nm ke 750 °C menjadi 6,82 nm. Kemudian, semakin tinggi kenaikan temperatur *sintering* maka nilai ukuran kristalit juga semakin besar yaitu 22,27 nm pada temperatur 1300 °C. Terjadinya penurunan ukuran kristalit boehmite setelah *sintering* pada temperatur 650 dan 750 °C terjadi karena adanya proses transformasi fasa akibat dari perlakuan panas yang menyebabkan terjadinya nukleasi struktur kristal baru dari fasa transisi alumina dengan ukuran yang relatif kecil, kemudian ukuran kristalit tersebut semakin besar dengan meningkatnya temperatur *sintering* yang disebabkan oleh pertumbuhan ukuran kristalit alumina tersebut [24].

Tabel 1. Indeks miller dari transisi alumina

Temperatur °C	Struktur Kristal	Indeks Miller
1300	Rhombohedral	(012), (104), (110), (006), (113), (024), (116), (211), (018), (214), (300), (208), (1010), (220), (306), (128), (0210)
	Monoklinik	(001), (20 $\bar{1}$), (400), (20 $\bar{2}$), (111), (401), (40 $\bar{2}$), (311), (600), (71 $\bar{1}$), (403), (711)
1200	Rhombohedral	(012), (104), (110), (006), (113), (024), (116), (211), (018), (214), (300), (1010)
	Monoklinik	(001), (20 $\bar{1}$), (400), (20 $\bar{2}$), (111), (401), (40 $\bar{2}$), (311), (600), (71 $\bar{1}$), (403), (711)
1100	Rhombohedral	(104)
	Monoklinik	(001), (20 $\bar{1}$), (400), (20 $\bar{2}$), (111), (401), (40 $\bar{2}$), (311), (600), (71 $\bar{1}$), (403), (711)
950	Monoklinik	(001), (20 $\bar{1}$), (400), (20 $\bar{2}$), (111), (401), (40 $\bar{2}$), (311), (600), (71 $\bar{1}$), (403)
	Kubik	(403)
750	Kubik	(200)
	Tetragonal (γ -Al ₂ O ₃)	(107)
650	Tetragonal (δ -Al ₂ O ₃)	(201), (214), (217), (0017)
	Kubik	(200)
650	Tetragonal (Gamma alumina)	(107)
	Tetragonal (Delta alumina)	(201), (214), (217), (0017)
	Orthorhombik	(020), (021), (131), (002)
	Serbuk Boehmite	Orthorhombik (020), (021), (130), (131), (002), (022), (151), (080), (132), (200), (152)

Sementara itu, nilai regangan kisi dan kerapatan dislokasi berbanding terbalik dengan ukuran kristalit, dimana meningkatnya regangan kisi disebabkan oleh dislokasi, tegangan mikro, batas butir, regangan koheren (*coherency strains*) dan kecilnya ukuran kristalit [18], seperti ditunjukkan pada Gambar 3 di atas dimana semakin tinggi temperatur *sintering* maka regangan kisi dan kerapatan dislokasi semakin rendah dengan nilai masing-masing tersebut pada temperatur 650 °C adalah 3,5% dan $25,93 \text{ line/nm}^2 \times 10^{-1}$, sedangkan pada temperatur *sintering* 1300 °C masing-masing bernilai 0,49 % dan $3,14 \text{ line/nm}^2 \times 10^{-1}$. Hasil di atas menunjukkan bahwa apabila boehmite disinter pada temperatur yang lebih tinggi maka hasil sinter akan memiliki ukuran kristalit yang lebih besar [25] sehingga menghasilkan regangan dan dislokasi antar setiap batas butir menjadi kecil atau sedikit, begitu pun sebaliknya.

3.4 Observasi Mikrostruktur dengan Menggunakan Mikroskop Optik

Gambar 4 menunjukkan morfologi permukaan sampel disinter pada temperatur 650, 750, 1200 dan 1300 °C yang diobservasi menggunakan OM (*optical microscopy*).

Gambar 4(a) dan 4(b) menunjukkan bahwa sampel memiliki permukaan yang belum homogen, ditandai dengan adanya daerah atau area berwarna putih pada setiap permukaan sampelnya. Hal ini menunjukkan bahwa setiap sampel hasil sinter dimungkinkan memiliki tingkat kepadatan dan kekerasan yang belum merata, sehingga pada saat dilakukan preparasi mikrofafi dengan *polishing*, sampel menjadi rapuh dan lebih cepat aus ketika dipoles.

Gambar 4c menunjukkan bahwa sampel hasil *sintering* pada temperatur 1200 °C memiliki tingkat kepadatan yang lebih tinggi dibandingkan dengan boehmite yang disinter pada temperatur 650 dan 750 °C (Gambar 4a dan 4b). Daerah putih seperti ditunjukkan pada sampel sebelumnya hampir tidak ditemukan pada boehmite yang disinter pada temperatur 1200 °C. Namun terlihat adanya daerah lain berbentuk kebulatan berwarna gelap kehitaman. Daerah tersebut merupakan morfologi permukaan yang berbentuk suatu cekungan yang terbentuk akibat tidak meratanya proses preparasi sampel untuk analisis morfologi. Keramik hasil *sintering* memiliki permukaan awal yang tidak rata (*rough*). Karena permukaan alumina keramik yang padat dan keras, pada saat dilakukan preparasi morfologi, ada permukaan sampel keramik yang sudah teramplas atau terpoles dengan sempurna,

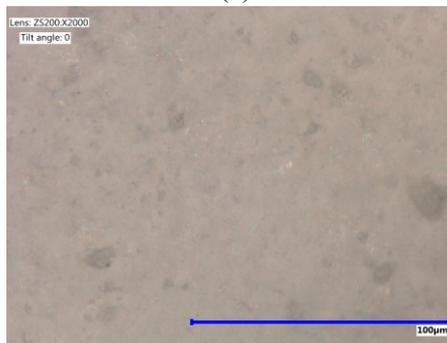
namun ada juga bagian yang belum terpolish. Bagian yang belum terpoles inilah diyakini merupakan bagian berbentuk kebulatan dan berwarna gelap.



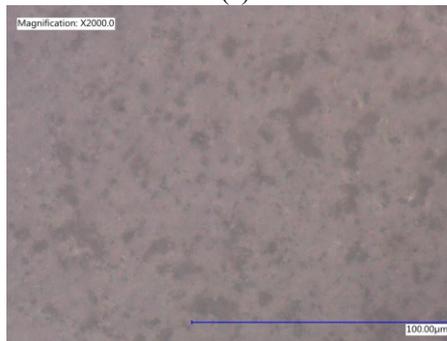
(a)



(b)



(c)



(d)

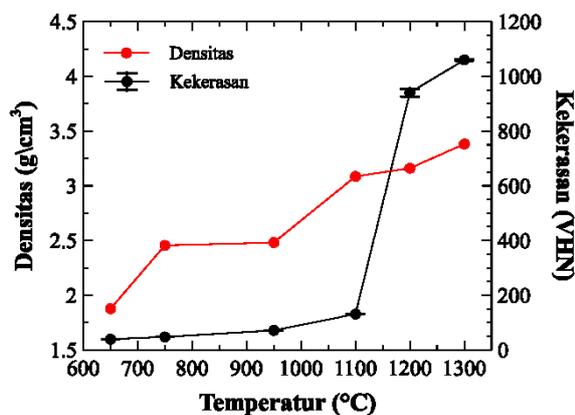
Gambar 4. Hasil karakterisasi dengan OM boehmite yang disinter pada temperatur (°C); a) 650, (b) 750, (c) 1200, dan (d) 1300

Morfologi permukaan yang hampir sama ditemukan pada permukaan keramik alumina

hasil *sintering* pada temperatur 1300 °C. Namun, seperti dapat dilihat pada Gambar 4(d), permukaan sampel memiliki morfologi berwarna gelap kehitaman yang lebih banyak daripada permukaan sampel pada Gambar 4(c). Proses *polishing* sampel keramik alumina hasil sinter pada temperatur 1300 °C memiliki tingkat kesulitan yang lebih tinggi. Sehingga kerasnya permukaan sampel ini menyebabkan permukaan yang tidak terpoles dengan lebih sempurna menjadi lebih banyak menghasilkan morfologi permukaan berwarna gelap kehitaman yang lebih banyak pula dibandingkan sampel keramik hasil sinter pada temperatur 1200 °C.

3.5 Densitas dan Kekerasan

Gambar 5 menunjukkan nilai densitas dan kekerasan sampel boehmite hasil *sintering* pada temperatur 650, 750, 950, 1100, 1200 dan 1300 °C.



Gambar 5. Nilai densitas dan kekerasan sampel yang disinter pada temperatur 650, 750, 950, 1100, 1200, dan 1300 °C

Berdasarkan hasil yang ditunjukkan pada Gambar 5, diperoleh nilai densitas sampel keramik hasil *sintering* meningkat dengan meningkatnya temperatur [19], [21], [25] dengan nilai tertinggi yaitu 3,38 gr/cm³ pada temperatur 1300 °C. Pada temperatur 650 °C diperoleh nilai densitas terendah yaitu 1,87 gr/cm³. Sedangkan nilai densitas sampel keramik hasil sinter pada temperatur 750, 950, 1100, dan 1200 °C berturut-turut adalah 2,45; 2,48; 3,08; dan 3,16 gr/cm³.

Seperti halnya nilai densitas, kekerasan sampel keramik hasil *sintering* juga meningkat dengan meningkatnya temperatur *sintering* [26]-[27] dengan nilai kekerasan tertinggi pada temperatur sinter 1300 °C adalah 1059,86 ± 2,72 HV. Sampel boehmite yang disinter pada temperatur 650 °C menghasilkan nilai kekerasan terendah yaitu sebesar 38,96 ± 0,46 HV.

Sedangkan nilai kekerasan sampel keramik hasil *sintering* pada temperatur 750, 950, 1100, dan 1200 °C berturut-turut bernilai 47,35 ± 0,49;

71,35 ± 0,92; 130,95 ± 1,11; dan 940,34 ± 14,18) VHN. Terjadi kenaikan nilai kekerasan yang sangat signifikan dari temperatur 1100 - 1200 °C disebabkan karena pada temperatur 1200 °C sebagian material boehmite sudah membentuk α -Al₂O₃ yang stabil, sehingga nilai kekerasannya meningkat secara signifikan.

3.6 Hubungan Ukuran Kristalit dengan Sifat Mekanik: Densitas dan Kekerasan

Secara umum tinggi rendahnya densitas dan kekerasan sampel dipengaruhi oleh nukleasi yaitu terbentuknya partikel-partikel baru/difusi atom-atom yang membentuk unit kristal selama proses *sintering* [25]. Unit kristal ini akan memiliki ukuran tertentu bergantung dari temperatur dan lama waktu *sintering*. Sehingga besar kecilnya ukuran kristal akan mempengaruhi densitas dan kekerasan keramik yang dihasilkan.

Hasil seperti yang telah diuraikan di atas menunjukkan bahwa nilai ukuran kristalit memiliki pola (*trend*) yang meningkat sama seperti kurva densitas dan kekerasan. Dimana setiap kenaikan temperatur *sintering*, ukuran kristalit, densitas dan juga kekerasan semakin meningkat. Hal ini dipengaruhi proses perlakuan panas pada saat *sintering* dimana semakin tinggi temperatur yang diberikan berdampak pada pembentukan dan kestabilan fasa alpha alumina, serta partikel-partikel sampel tersebut akan menyatu sehingga membentuk unit kristal baru yang ukurannya lebih besar dari unit kristal sebelumnya yang mempengaruhi nilai densitas dan kekerasan sampel keramik hasil *sintering*. Secara umum, semakin kecil ukuran kristal, maka densitas dan kekerasan semakin tinggi. Hal ini sering dikaitkan dengan persamaan atau formula matematis *Hall-Petch* (H-P) yang menyatakan bahwa nilai kekerasan berbanding terbalik dengan nilai ukuran kristal [28]. Namun, untuk material keramik nanocrystal terkadang menunjukkan fenomena yang berkebalikan yang dikenal dengan *Hall-Petch breakdown*. Sehingga, dimungkinkan dalam kasus material keramik, kekerasan akan meningkat seiring dengan meningkatnya ukuran kristal. Fenomena ini juga ditemukan pada penelitian Heonjune Ryou, dkk., [29] yang mengungkapkan bahwa nilai kekerasan tertinggi terjadi pada ukuran butir 18,4 nm dan kekerasan menurun pada ukuran butir sekitar 5 nm.

4. KESIMPULAN

Keramik α -Al₂O₃ telah berhasil disintesis dari bahan boehmite menggunakan teknik SPS (*spark plasma sintering*) pada temperatur

1300 °C. Hasil analisis menunjukkan bahwa struktur alumina yang terbentuk sangat dipengaruhi oleh temperatur *sintering*. Pada temperatur 650 °C, sebagian boehmite telah bertransformasi menjadi χ -Al₂O₃, γ -Al₂O₃ dan δ -Al₂O₃. Keramik alumina dengan struktur alpha (α) mulai terbentuk pada temperatur 1100 °C. Namun pada temperatur ini, masih terbentuk fasa transisi alumina yang lain seperti θ -Al₂O₃. Pada temperatur *sintering* yang lebih tinggi yaitu 1300 °C, fasa-fasa transisi tersebut telah bertransformasi seluruhnya menjadi α -Al₂O₃ dengan nilai ukuran kristalit (*crystallite size*) hasil *sintering* berbanding terbalik dengan nilai regangan kisi (*lattice strain*) dan kerapatan dislokasinya (*dislocation density*). Sedangkan sebagai fungsi temperatur, nilai ukuran kristalit keramik hasil *sintering* cenderung meningkat dengan meningkatnya temperatur *sintering*. Proses *sintering* pada temperatur 1300 °C menghasilkan *bulk* keramik alumina yang lebih homogen dengan nilai kerapatan dan kekerasan yang paling optimum yaitu 3.38 gr/cm³ dan 1059,86 ± 2,72 HV. Berdasarkan hasil yang telah didapat, perlu adanya studi lebih lanjut untuk menentukan persen kuantitatif masing-masing fasa yang terbentuk untuk setiap temperatur *sintering*.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didanai oleh Program DIPA PPF-LIPI 2019. Peralatan proses dan karakterisasi untuk menunjang pelaksanaan penelitian ini disediakan oleh P2 Fisika-LIPI. Kontributor utama dalam karya tulis ilmiah ini adalah Toto Sudiro.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] N. V. Martínez, Á. J. R. Baltazar, N. A. M. Castillo, dan S. Y. R. López, "Synthesis of α -alumina nano-onions by thermal decomposition of aluminum formate," *J. Nanomater.*, vol. 2018, pp. 9061378, 2018.
- [2] S. Lamouri, H. Mohamed, N. Bouaouadja, dan H. Belhouchet "Control of the γ -alumina to α -alumina phase transformation for an optimized alumina densification," *Boletín la Soc. Española Cerámica y Vidr.*, vol. 56, no. 2, pp. 47–54, 2017.
- [3] M. Yoshida, Y. Kato, Y. Oumi, O. Sakurada, M. Tanaka, M. Wada dan S. Kitaoka, "Homogeneous nucleation of corundum nanocrystallites by rapid heating of aluminum formate hydroxide-based precursor powder," *Sci. Rep.*, vol. 9, 2019.
- [4] T. Shirai, H. Watanabe, M. Fuji, dan M. Takahashi, "Structural properties and surface characteristics on aluminum oxide powders," *Ceram. Res. Lab*, vol. 9, pp. 23–31, 2009.
- [5] M. Glazoff and T. Lister, "Transition of Spent Nuclear Fuel to Dry Storage. Milestone 1: Task 1.2 Modeling Activities Concerning Aluminum Spent Nuclear Fuel Cladding Integrity", Report number: INL/EXT-18-51694, Affiliation: Idaho National Laboratory, 2018.
- [6] B. Gan, I. Madsen, dan J. Hockridge, "In situ x-ray diffraction of the transformation of gibbsite to α -alumina through calcination: effect of particle size and heating rate," *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 42, pp. 697–705, 2009.
- [7] V. Nečina dan W. Pabst, "Influence of the heating rate on grain size of alumina ceramics prepared via spark plasma sintering (SPS)," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 40, 2020.
- [8] M. Lombardi, P. Palmero dan L. Montanaro, "Effect of heating rate on phase and microstructural evolution during pressureless sintering of a nanostructured transition alumina," *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, vol. 6, pp. 420–430, 2009.
- [9] N. Saheb, U. Hayat, dan Hassan, "Recent advances and future prospects in spark plasma sintered alumina hybrid nanocomposites," *Nanomaterials*, vol. 9, pp. 1607, 2019.
- [10] "Spark plasma sintering Fuji-SPS." Available: www.fuji-sps.sakura.ne.jp/e_index.shtml (accessed Jan. 14, 2020).
- [11] M. Tokita, "Spark plasma sintering (SPS) method, systems, and applications," in *Handbook of Advanced Ceramics*, vol. 11, pp. 1149–1177, 2013.
- [12] X. Jin, L. Gao, dan J. Sun, "Highly transparent alumina spark plasma sintered from common-grade commercial powder: the effect of powder treatment," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 93, no. 5, pp. 1232–1236, 2010.
- [13] B.N. Kim, K. Hiraga, K. Morita, dan H. Yoshida, "Spark plasma sintering of transparent alumina," *Scr. Mater.*, vol. 57, no. 7, pp. 607–610, 2007.
- [14] D. Jiang, D. M. Hulbert, U. A. Tamburini, T. Ng, D. Land, dan A. K. Mukherjee,

- “Optically transparent polycrystalline Al_2O_3 produced by spark plasma sintering,” *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 91, no. 1, pp. 151–154, 2008.
- [15] M. Razavi, A. R. Farajipour, M. Zakeri, M. R. Rahimipour, dan A. R. Firouzbakht, “Production of Al_2O_3 –SiC nanocomposites by spark plasma sintering,” *Boletín la Soc. Española Cerámica y Vidr.*, vol. 56, no. 4, pp. 186–194, 2017.
- [16] R. Kumar, A. K. Chaubey, S. Bathula, B. B. Jha, dan A. Dhar, “Synthesis and characterization of Al_2O_3 –TiC nanocomposite by spark plasma sintering,” *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, vol. 54, pp. 304–308, 2016.
- [17] T. Sudiro, A. I. J. Hia, Ciswandi, dan D. Aryanto “High temperature cyclic oxidation resistance of 50Cr-50Al coatings mechanically alloyed on low carbon steel,” *J. Alloys Compd.*, vol. 732, pp. 655–665, 2018.
- [18] K. Venkateswarlu, M. Sandhyarani, T. A. Nellaippan, dan N. Rameshbabu, “Estimation of crystallite size, lattice strain and dislocation density of nanocrystalline carbonate substituted hydroxyapatite by x-ray peak variance analysis,” *Procedia Mater. Sci.*, vol. 5, pp. 212–221, 2014.
- [19] W. N. W. Jusoh, K. A. Matori, M. H. M. Zaid, dan N. Zainuddin, “Effect of sintering temperature on physical and structural properties of alumino-silicate-fluoride glass ceramics fabricated from clam shell and soda lime silicate glass,” *Results Phys.*, vol. 12, pp. 1909–1914, 2019.
- [20] S. Kwon dan G. L. Messing, “Constrained densification in boehmite–alumina mixtures for the fabrication of porous alumina ceramics,” *J. Mater. Sci.*, vol. 33, no. 4, pp. 913–921, 1998.
- [21] Y. L. He, L. Y. Liu, K. Hu, Z. Lu, dan J. Liang, “Influence of sintering temperature on microstructure and mechanical properties of Al_2O_3 ceramic via 3D stereolithography,” *Acta Metallurgica Sinica (English Letters)*, vol. 33, no. 2. pp. 204–214, 2020.
- [22] R. Riedel dan I. W. Chen, “Volume 3: synthesis and processing,” in *Ceramics Science and Technology*, Eds. 2011, pp. 554, 2011.
- [23] “Chapter 2: Structure of alumina phases.” Available: https://shodhganga.inflibnet.ac.in/bitstream/10603/176524/7/07_chapter_2.pdf (accessed Jun. 15, 2020).
- [24] E. Yalamaç, A. Trapani, dan S. Akkurt, “Sintering and microstructural investigation of gamma–alpha alumina powders,” *Eng. Sci. Technol. an Int. J.*, vol. 17, no. 1, pp. 2–7, 2014.
- [25] L. K. Singh, A. Badauria, S. Jana dan T. Laha, “Effect of sintering temperature and heating rate on crystallite size, densification behaviour and mechanical properties of Al-MWCNT nanocomposite consolidated via spark plasma sintering,” *Acta Metallurgica Sinica (English Letters)*, vol. 31, no. 10. pp. 1019–1030, 2018.
- [26] H. T. Kim, D. W. Choi, J. S. Kim, Y. S. Kwon, H. S. Kwon, dan E. R. Baek, “Plasma sintering behavior of binderless WC powders,” *J. Korean Powder Metall. Inst.*, vol. 10, no. 3, pp. 56–62, 2003.
- [27] S. T. Alweendo, O. T. Johnson, B. M. Shongwe, F. P. Kavishe, dan J. O. Borode, “Microstructural and mechanical properties of alumina (Al_2O_3) matrix composites reinforced with SiC from rice husk by spark plasma sintering,” *Mater. Res.*, vol. 23, no. 1, pp. 1–9, 2020.
- [28] R. W. Armstrong, “Grain size dependent alumina fracture mechanics stress intensity,” *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, vol. 19, no. 4, pp. 251–255, 2001.
- [29] H. Ryou, J. W. Drazin, K. J. Wahl, S. B. Qadri, E. P. Gorzkowski, B. N. Feigelson, dan J. A. Wollmershauser “Below the hall–petch limit in nanocrystalline ceramics,” *ACS Nano*, vol. 12, no. 4, pp. 3083–3094, 2018.