



P-ISSN 0126-3188

E-ISSN 2443-3926

# METALURGI

MAJALAH ILMU DAN TEKNOLOGI

---

VOLUME 35 Nomor 2, AGUSTUS 2020

AKREDITASI JURNAL ILMIAH NO.3/E/KPT/2019

---

Pengkayaan Unsur Yttrium dan Campuran Cerium  
pada Terak Timah Bangka : Analisis Termodinamika

Sintesis dan Karakterisasi Material *Nano-Perovskite*  
*Neodymium Iron Oxide* (NdFeO<sub>3</sub>)

Kontribusi Aditif Succinonitrile (SN) pada Performa  
Elektrolit Padat LiBoB untuk Baterai Li-Ion

Sintesis  $\alpha$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari Serbuk Boehmite Menggunakan Teknik  
*Spark Plasma Sintering* (SPS): Studi Transformasi Fasa,  
Mikrostruktur, Densitas, dan Kekerasan

Pengaruh *Annealing* terhadap Kekerasan dan Struktur Mikro  
Baja Tahan Karat AISI 410-3Mo-3Ni

Pusat Penelitian Metalurgi dan Material  
Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia



**Penanggung Jawab :**  
Kapuslit Metalurgi dan Material – LIPI

**Ketua Dewan Redaksi :**  
Dr. Ika Kartika, S.T, M.T, P2MM - LIPI

**Dewan Editor :**  
Prof. Dr. Ir. F. Firdiyono (P2MM – LIPI)  
Dr. Ir. Rudi Subagja (P2MM - LIPI)  
Prof. Dr. Ir. Akhmad Herman Yuwono,  
M.Phil. Eng (Teknik Metalurgi dan Material,  
Universitas Indonesia)  
Prof. Dr. mont. Mohammad Zaki Mubarak,  
S.T, M.T (Teknik Metalurgi, Institut  
Teknologi Bandung)  
Dr. I Nyoman Jujur, M.Eng (BPPT-Ristek  
BRIN)

**Mitra Bestari :**  
Dr. Anawati, M.Sc (Fakultas MIPA,  
Universitas Indonesia)  
Dr. Yuliati Herbani, M.Sc (Pusat Penelitian  
Fisika - LIPI)  
Dr. Asep Ridwan S. (Teknik Mesin, Institut  
Teknologi Bandung)  
Nofrijon Sofyan, Ph. D (Teknik Metalurgi dan  
Material, Universitas Indonesia, Universitas  
Indonesia)  
Dr. Deni Shidqi Khaerudini (Pusat Penelitian  
Fisika-LIPI)  
Prof. Dr. Timotius Pasang (Auckland  
University of Technology, New Zealand)  
Dr. Witha Berlian Kesuma Putri S.Si, M.Si  
(Pusat Penelitian Fisika – LIPI)

**Redaksi :**  
Lia Andriyah, M.Si  
Tri Arini, M.T  
Nadia Natasha, M.T

**Disain Grafis :**  
Arif Nurhakim, M.A

**Website :**  
Daniel Panghuhutan, M.Si  
Adi Noer Syahid, A.Md  
Galih Senopati, M.T

**Sekretariat dan Penerbit :**  
Pusat Penelitian Metalurgi dan Material –  
LIPI Ged. 470, Kawasan Puspiptek Serpong,  
Tangerang Selatan, 15314  
Telp: (021) 7560911

E-mail:  
ejurnal.material.metalurgi@gmail.com

Majalah ilmu dan teknologi terbit berkala setiap  
tahun, satu volume terdiri atas 3 nomor

# METALURGI

VOLUME 35 NOMOR 2, AGUSTUS 2020

P-ISSN 0126-3188  
E-ISSN 2443-3926

AKREDITASI : SK No. 3/E/KPT/2019

Pengantar Redaksi.....xiii

Abstrak.....xv

**Pengkayaan Unsur Yttrium dan Cerium pada  
Terak Timah Bangka: Analisis  
Termodinamika**

Sulaksana Permana dkk......45-52

**Sintesis dan Karakterisasi Material Nano-  
Perovskite Neodymium Iron Oxide  
(NdFeO<sub>3</sub>)**

Rina Dewi Mayasari, dkk......53-56

**Kontribusi Aditif Succinonitrile (Sn) pada  
Performa Elektrolit Padat LiBOB untuk  
Baterai Li-Ion**

Qolby Sabrina, dkk .....57-64

**Sintesis  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari Serbuk Boehmite  
Menggunakan Teknik Spark Plasma  
Sintering (SPS): Studi Transformasi Fasa,  
Mikrostruktur, Densitas dan Kekerasan**

Diastati Puspita Ning Ayu, dkk......65-74

**Pengaruh Annealing terhadap Kekerasan  
dan Struktur Mikro Baja Tahan Karat AISI  
410-3Mo-3Ni**

Vinda Puspasari, dkk......75-82

**Indeks**



## **PENGANTAR REDAKSI**

Puji syukur Majalah Metalurgi Volume 35 Nomor 2, Agustus 2020 kali ini dapat menampilkan 5 buah karya tulis ilmiah.

Tulisan pertama disampaikan oleh Sulaksana Permana dan kawan-kawan mengenai Pengkayaan Unsur Yttrium dan Cerium pada Terak Timah Bangka: Analisis Termodinamika. Tulisan kedua berjudul Sintesis dan Karakterisasi Material Nano-Perovskite Neodymium Iron Oxide ( $\text{NdFeO}_3$ ) yang ditulis oleh Rina Dewi Mayasari dan kawan-kawan. Tulisan selanjutnya oleh Qolby Sabrina dan kawan-kawan dengan judul Kontribusi Aditif Succinonitrile (Sn) pada Performa Elektrolit Padat LiBOB untuk Baterai Li-Ion. Untuk tulisan keempat ditulis oleh Diastati Puspita Ning Ayu dan kawan-kawan dengan judul Sintesis  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  dari Serbuk Boehmite menggunakan Teknik Spark Plasma Sintering (SPS): Studi Transformasi Fasa, Mikrostruktur, Densitas dan Kekerasan. Pada tulisan terakhir, Vinda Puspasari dan kawan-kawan menyampaikan tema Pengaruh Annealing terhadap Kekerasan dan Struktur Mikro Baja Tahan Karat AISI 410-3Mo-3Ni

Semoga penerbitan Majalah Metalurgi volume ini dapat bermanfaat bagi perkembangan dunia penelitian di Indonesia.

**REDAKSI**



Kata Kunci bersumber dari artikel. Lembar abstrak ini boleh diperbanyak tanpa izin dan biaya.

UDC (OXDCF) 620.18

Sulaksana Permana<sup>a</sup>, Debby Rachel<sup>a</sup>, Agus Budi Prasetyo<sup>a,b</sup>, Rafdi Abdul Majid<sup>c</sup>, Wahyu Kartika<sup>d</sup>, Iwan Susanto<sup>e</sup>, Johny Wahyuadi M.<sup>a</sup> (<sup>a</sup>Centre of Mineral Processing and Corrosion Research, Universitas Indonesia, <sup>b</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material - LIPI, <sup>c</sup>Departemen Teknik Kimia, Universitas Muslim Indonesia, <sup>d</sup>Departemen Teknik Lingkungan, Universitas Bhayangkara Jakarta Raya, <sup>e</sup>Departemen Teknik Mesin, Politeknik Negeri Jakarta)

Pengkayaan Unsur Yttrium dan Cerium pada Terak Timah Bangka: Analisis Termodinamika

Metalurgi, Vol. 35 No. 2 Agustus 2020

Pada penelitian ini, terak timah Bangka-2 (TTB-2) dilakukan serangkaian kondisi proses untuk mendapatkan hasil pengkayaan yttrium dan cerium yang optimal. Proses yang dilakukan adalah dengan melakukan pemanggangan TTB-2 pada suhu 900 °C, pelindian dengan NaOH, pelindian dengan HNO<sub>3</sub> dan terakhir pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan variasi konsentrasi. Analisis termodinamika dilakukan dengan software HSC 6.0 untuk mendapatkan Diagram Eh-pH sistem Ca-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-Na-H<sub>2</sub>O; Y-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-N-H<sub>2</sub>O; Y-N-H<sub>2</sub>O; Ce-P-H<sub>2</sub>O dan Y-P-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C dengan tujuan melihat unsur yang terlarut ke dalam larutan NaOH, HNO<sub>3</sub> dan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>. Hasil yang didapatkan adalah kadar optimal cerium 4,39 % setelah kondisi proses pelindian NaOH dan kadar yttrium mengalami peningkatan terus pada seluruh kondisi proses serta didapatkan kadar optimal 1,35 % setelah dilakukan pelindian dengan HNO<sub>3</sub> 2M dan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 1,5 M.

*Kata Kunci: Cerium, pelindian, terak timah Bangka, unsur tanah jarang, Yttrium*

*Enrichment of Yttrium and Cerium Elements in Bangka Tin Slag : Thermodynamic Analysis*

*In this analysis, the Bangka tin slag-2 (BTS-2) was carried out in a series of process conditions to obtain optimal yttrium and cerium enrichment results. The method is carried out by roasting BTS-2 at 900 °C, leaching with NaOH, leaching with HNO<sub>3</sub>, and finally leaching with H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> with different concentrations. The thermodynamic analysis was performed using HSC 6.0 software to obtain the Ca-Na-H<sub>2</sub>O Eh-pH diagram system; Ce-Na-H<sub>2</sub>O; Y-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-N-H<sub>2</sub>O; Y-N-H<sub>2</sub>O; Ce-P-H<sub>2</sub>O and Y-P-H<sub>2</sub>O at 25 °C to see the leached elements in NaOH, HNO<sub>3</sub>, and H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> solutions. The results obtained were that the optimal cerium content was 4.39 % after the NaOH leaching phase. The yttrium content continued to increase under all process conditions, and that the optimal cerium content was 1.35 % after leaching with HNO<sub>3</sub> 2 M and H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 1.5 M.*

*Keywords: Cerium, leaching, Bangka tin slag, rare earth element, Yttrium*

Kata Kunci bersumber dari artikel. Lembar abstrak ini boleh diperbanyak tanpa izin dan biaya.

UDC (OXDCF) 541.3

Rina Dewi Mayasari<sup>a</sup>, Hanif Yuliani<sup>a</sup>, Yelvia Deni<sup>a</sup>, Jarot Raharjo<sup>a</sup>, Suyanti<sup>b</sup>, Sudiby<sup>b</sup>, dan Muhammad Setiadji<sup>b</sup>  
(<sup>a</sup>Pusat Teknologi Material, Badan Pengkajian dan Penerapan Teknologi, <sup>b</sup>Pusat Sains dan Teknologi Akselerator, Badan Tenaga Nuklir Nasional)

Sintesis dan Karakterisasi Material Nano-Perovskite Neodymium Iron Oxide (NdFeO<sub>3</sub>)

Vol. 35 No. 2 Agustus 2020

Sintesis nano-perovskite oksida neodimium besi (NdFeO<sub>3</sub>) telah berhasil dilakukan dengan metode presipitasi menggunakan surfaktan EG (*ethylene glycol*) sebagai material pelapis. Senyawa NdFeO<sub>3</sub> dikarakterisasi analisis gugus fungsi kimia dengan FTIR (*fourier transform infrared spectroscopy*), analisis morfologi dengan SEM (*scanning electron microscopy*), analisis kristalinitas dan ukuran partikel dengan XRD (*x-ray diffraction*) dan TEM (*transmission electron microscopy*). Pengamatan SEM dan TEM menunjukkan bahwa hasil sintesis membentuk nanostruktur berbentuk bulat dengan ukuran diameter pada rentang 15 sampai 20 nm. Spektra XRD mengonfirmasi bahwa fasa NdFeO<sub>3</sub> membentuk struktur orthorombik dan perovskite.

*Kata Kunci: Nano-perovskite, NdFeO<sub>3</sub>, ethylene glycol, presipitasi*

*Synthesis and Characterization of Nano-Perovskite Neodymium Iron Oxide (NdFeO<sub>3</sub>)*

*Nano-perovskite synthesis of neodymium iron oxide (NdFeO<sub>3</sub>) was successfully performed using a precipitation method using the EG (ethylene glycol) surfactant as a coating material. The NdFeO<sub>3</sub> compound was characterized by functional group analysis using FTIR (four transforms infrared spectroscopy), morphology analysis using SEM (scanning electron microscopy), crystallinity and particle size analysis using XRD (x-ray diffraction) and TEM (transmission electron microscopy). SEM and TEM research shows that the synthesized substance formed a sphere-like nanostructure with a diameter varying from 15 to 20 nm. The XRD spectra indicated that the NdFeO<sub>3</sub> phase formed an orthorhombic and perovskite structure.*

*Keywords: Nano-perovskite, NdFeO<sub>3</sub>, ethylene glycol, precipitation*

UDC (OXDCF) 621.3

Titik Lestariningsiha<sup>a</sup>, Qolby Sabrina<sup>a</sup>, Christin Rina Ratri<sup>a</sup>, Latifa Hanum Lalasari<sup>b</sup> (<sup>a</sup>Pusat Penelitian Fisika – LIPI, <sup>b</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material – LIPI)

Kontribusi Aditif Succinonitrile (Sn) pada Performa Elektrolit Padat LiBOB untuk Baterai Li-Ion

Metalurgi, Vol. 35 No. 2 Agustus 2020

Pengembangan elektrolit polimer padat untuk substitusi elektrolit cair bertujuan untuk mengurangi kebocoran pada sistem baterai. Performa elektrolit polimer padat masih terus ditingkatkan agar memiliki konduktifitas ionik sebanding dengan performa elektrolit cair. Salah satu upaya peningkatan performa elektrolit polimer padat dengan menambahkan SN (*succinonitrile*). SN merupakan matriks serbaguna untuk menghantarkan Li-ion dalam elektrolit padat, tingginya polaritas SN diharapkan dapat membantu pemisahan ion litium yang berasal dari garam elektrolit LiBOB. Peningkatan mobilitas ion akan menghasilkan konduktifitas ion yang tinggi. Penambahan jumlah SN dalam pembuatan elektrolit padat dibuat bervariasi dengan metode *mixing slurry* dan *solution casting*. Hasil karakterisasi FE-SEM (*field emission-scanning electron microscopy*) dan XRD (*x-ray diffraction*) dengan penambahan SN 32% memperlihatkan adanya lubang pori dan mempunyai bentuk struktur amorf, hal ini akan memudahkan ion lithium untuk berpindah secara merata. Hasil pengujian TGA/DSC (*thermogravimetric analysis/differential scanning calorimetry*) menunjukkan elektrolit polimer padat akan mengalami kestabilan sampai pada temperatur 117 °C dengan kehilangan berat sebesar 25,1% dan nilai derajat kristalinitas adalah paling kecil. Penambahan SN 32% menunjukkan jendela tegangan stabilitas elektrokimia 2,2 volt ukup lebar dari hasil karakterisasi *linear sweep voltammetry*. Pengukuran konduktifitas ionik dilakukan menggunakan EIS (*electrochemical impedance spectroscopy*), hasilnya memperlihatkan nilai konduktifitas elektrolit polimer padat dengan penambahan SN 32% sebesar  $6,711 \times 10^{-8}$  S/cm, masih lebih kecil bila dibandingkan dengan kisaran nilai konduktifitas elektrolit cair. Optimasi jumlah penambahan SN pada elektrolit padat masih harus dilakukan untuk mencapai performa baterai yang lebih baik.

*Kata Kunci: Elektrolit polimer padat, Succinonitrile, LiBOB, baterai Li-ion*

*Contribution of Additives Succinonitrile (Sn) in Performance LiBOB Solid Electrolyte for Li Ion Battery*

*The goal of developing solid polymer electrolytes for liquid electrolyte replacement is to minimize leakage in the battery system. Solid polymer electrolyte performance is still being developed to have ion conductivity equivalent to liquid electrolyte performance. One attempt to boost the efficiency of solid polymer electrolytes by incorporating SN (succinonitrile). SN is a flexible matrix for transmitting lithium ions to solid polymer electrolytes; high polarity SN is expected to help extract lithium ions from LiBOB electrolyte salts. Increased ion mobility can result in high ion conductivity. The addition of SN solid polymer electrolytes was varied by combining slurry and solution casting methods. The FE-SEM (field emission-scanning electron microscopy) and XRD (x-ray diffraction) characterization of SN 32% addition showed pore holes and amorphous structure, making it easier for lithium ions to pass uniformly. TGA / DSC (thermogravimetric analysis / differential calorimetric scanning) test results show that solid polymer electrolytes undergo temperature stability of 117 °C with a weight loss of 25.1% and have the smallest degree of crystallinity. The addition of SN 32% showed that the 2.2-volt electrochemical stability windows were large enough to test linear sweep voltammetry. Ionic conductivity tests were performed using EIS (electrochemical impedance spectroscopy); the results showed the conductivity value of solid polymer electrolytes. The addition of SN 32% was  $6.711 \times 10^{-8}$  S/cm, still lower than the liquid electrolyte conductivity. Optimization of the amount of SN and solid electrolytes also needs to be done to increase battery efficiency.*

*Keywords: Solid Polymer Electrolyte, Succinonitrile, LiBOB, Li-ion Battery*



UDC (OXDCF) 541.3

Diastati Puspita Ning Ayu<sup>a</sup>, Bambang Hermanto<sup>b</sup>, Arif Tjahjono<sup>a</sup>, Toto Sudiro<sup>b</sup> (<sup>a</sup>Program Studi Fisika, Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta, <sup>b</sup>Pusat Penelitian Fisika-LIPI)

Sintesis  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari Serbuk Boehmite Menggunakan Teknik Spark Plasma Sintering (SPS): Studi Transformasi Fasa, Mikrostruktur, Densitas dan Kekerasan

Metalurgi, Vol. 35 No. 2 Agustus 2020

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  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Dengan meningkatnya temperatur sintering, keramik alumina dengan struktur alpha ( $\alpha$ ) mulai terbentuk pada temperatur 1100 °C. Boehmite bertransformasi secara sempurna menjadi  $\alpha$ -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/cm<sup>3</sup> dan 1059,86 ± 2,72 VHN.

**Kata Kunci:** Boehmite, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, spark plasma sintering,  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

*Synthesis of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> from Boehmite Powder Using a Spark Plasma Sintering (SPS) Technique: Study of Phase Transformation, Microstructure, Density, and Hardness*

*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  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. With the rise in sintering temperature, the aluminum ceramic alpha structure was formed at 1100 °C. The boehmite was completely converted into 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/cm<sup>3</sup> and 1059.86 ± 2.72 HVN at 1300 °C.*

**Keywords:** Boehmite, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, spark plasma sintering,  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

UDC (OXDCF) 620. 112

Vinda Puspasari<sup>a</sup>, Mukhlis Agung Prasetyo<sup>a</sup>, Januarius Velix Ta'an Hala<sup>b</sup>, Mochammad Syaiful Anwar<sup>a</sup>, Satrio Herbirowo<sup>a</sup>, Efendi Mabru<sup>a</sup> (<sup>a</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material-LIPI, <sup>b</sup>Sekolah Tinggi Teknik-PLN Jakarta)

Pengaruh Annealing terhadap Kekerasan dan Struktur Mikro Baja Tahan Karat AISI 410-3Mo-3Ni

Metalurgi, Vol. 35 No. 2 Agustus 2020

Baja tahan karat AISI 410 merupakan baja martensitik yang penggunaannya sangat terbatas jika dibandingkan dengan baja tahan karat austenitik dan feritik. Baja martensitik memiliki peranan penting untuk komponen tertentu dikarenakan kombinasi kekuatan, ketangguhan dan ketahanan korosi yang sangat baik. Namun, setelah proses tempa, baja martensitik cenderung mengalami penurunan sifat mekanik dan struktur mikro. Pada penelitian ini, sifat mekanik dan mikrostruktur dari material baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni hasil tempa setelah mendapat perlakuan panas *annealing* akan dipelajari. *Annealing* bertujuan untuk menurunkan kekerasan material dan meningkatkan kehalusan butir dari material. Perlakuan panas *annealing* dilakukan dengan variasi temperatur dan waktu *annealing*. Variasi temperatur *annealing* yaitu 700, 760, 800, 850, dan 900 °C. Variasi waktu *annealing* yaitu 3 jam dan 6 jam. Pengaruh waktu dan temperatur *annealing* akan dipelajari terhadap kekerasan yang dianalisis secara statistik dan struktur mikro material baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni. Kekerasan yang paling optimum adalah baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni dengan perlakuan panas *annealing* pada T = 760 °C selama 6 jam yaitu 35,9 HRC. Mikrostruktur yang dihasilkan oleh material AISI 410 yang telah mengalami perlakuan panas *annealing* secara umum yaitu fasa delta ferit, martensit, austenit, dan karbida yang dapat mempengaruhi sifat mekanik.

*Kata Kunci: Baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni, annealing, delta ferit, martensit, austenit, karbida*

*Effect of Annealing Treatment on Hardness and Microstructure of AISI 410-3Mo-3Ni Stainless Steel*

*AISI 410-3Mo-3Ni stainless steel is martensitic steel, which is limited in use compared to austenitic and ferritic stainless steel. Martensitic steel plays an important role in specific components due to the combination of hardness, strength, and excellent corrosion resistance. However, after the forging process, martensitic steel appears to decrease in mechanical properties and microstructure. In this study, the mechanical properties and microstructure of the AISI 410 forged after annealing heat treatment will be studied. Annealing helps to minimize material hardness and improve material refinement of grain. The annealing heat treatment is done by adjusting the annealing temperature and time. The temperature ranges are 700, 760, 800, 850, and 900 °C. The annealing time variation is 3 h and 6 h. The effect of the annealing time and temperature on the AISI 410 modified material's hardness and microstructure will be studied. The optimum hardness is 35.9 HRC in AISI 410 material with annealing treatment at 760 °C for 6 hours. The microstructure on that condition showed the delta ferrite, martensite, austenite, and carbide affected the material hardness after annealing.*

*Keywords: AISI 410 stainless steel, annealing, delta ferrite, martensite, austenite, carbide*





## PENKAYAAN UNSUR YTTRIUM DAN CERIUM PADA TERAK TIMAH BANGKA: ANALISIS TERMODINAMIKA

Sulaksana Permana<sup>a,\*</sup>, Debby Rachel<sup>a</sup>, Agus Budi Prasetyo<sup>a,b</sup>, Rafdi Abdul Majid<sup>c</sup>,  
Wahyu Kartika<sup>d</sup>, Iwan Susanto<sup>e</sup>, Johny Wahyuadi Soedarsono<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Centre of Mineral Processing and Corrosion Research, Departemen Teknik Metalurgi and Material  
Universitas Indonesia, Depok, Indonesia 16424

<sup>b</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material – LIPI

Gedung 470 Kawasan Puspiptek Serpong, Indonesia 15310

<sup>c</sup>Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik Industri, Universitas Muslim Indonesia, Makassar, Indonesia 90231

<sup>d</sup>Departemen Teknik Lingkungan, Fakultas Teknik, Universitas Bhayangkara Jakarta Raya,  
Kota Bekasi, Indonesia, 17121

<sup>e</sup>Departemen Teknik Mesin, Politeknik Negeri Jakarta, Indonesia 16425

\*E-mail: sulaksana@yahoo.com

Masuk tanggal : 20-07-2020, revisi tanggal : 28-07-2020, diterima untuk diterbitkan tanggal 29-07-2020

### Abstrak

Pada penelitian ini, terak timah Bangka-2 (TTB-2) dilakukan serangkaian kondisi proses untuk mendapatkan hasil pengkayaan yttrium dan cerium yang optimal. Proses yang dilakukan adalah dengan melakukan pemanggangan TTB-2 pada suhu 900 °C, pelindian dengan NaOH, pelindian dengan HNO<sub>3</sub> dan terakhir pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan variasi konsentrasi. Analisis termodinamika dilakukan dengan perangkat lunak HSC 6.0 untuk mendapatkan Diagram Eh-pH sistem Ca-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-Na-H<sub>2</sub>O; Y-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-N-H<sub>2</sub>O; Y-N-H<sub>2</sub>O; Ce-P-H<sub>2</sub>O dan Y-P-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C dengan tujuan melihat unsur yang terlarut ke dalam larutan NaOH, HNO<sub>3</sub> dan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>. Hasil yang didapatkan adalah kadar optimal cerium 4,39% setelah kondisi proses pelindian NaOH dan kadar yttrium mengalami peningkatan terus pada seluruh kondisi proses serta didapatkan kadar optimal 1,35% setelah dilakukan pelindian dengan HNO<sub>3</sub> 2M dan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 1,5 M.

**Kata Kunci:** Cerium, pelindian, terak timah Bangka, unsur tanah jarang, yttrium

### Abstract

*In this analysis, the Bangka tin slag-2 (BTS-2) was carried out in a series of process conditions to obtain optimal yttrium and cerium enrichment results. The method is carried out by roasting BTS-2 at 900 °C, leaching with NaOH, leaching with HNO<sub>3</sub>, and finally leaching with H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> with different concentrations. The thermodynamic analysis was performed using HSC 6.0 software to obtain the Ca-Na-H<sub>2</sub>O Eh-pH diagram system; Ce-Na-H<sub>2</sub>O; Y-Na-H<sub>2</sub>O; Ce-N-H<sub>2</sub>O; Y-N-H<sub>2</sub>O; Ce-P-H<sub>2</sub>O and Y-P-H<sub>2</sub>O at 25 °C to see the leached elements in NaOH, HNO<sub>3</sub>, and H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> solutions. The results obtained were that the optimal cerium content was 4.39 % after the NaOH leaching phase. The yttrium content continued to increase under all process conditions, and that the optimal cerium content was 1.35 % after leaching with HNO<sub>3</sub> 2 M and H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 1.5 M.*

**Keywords:** Cerium, leaching, Bangka tin slag, rare earth element, yttrium

## 1. PENDAHULUAN

Unsur logam tanah jarang (UTJ) banyak digunakan pada teknologi saat ini seperti pada bidang elektronika, manufaktur, medis, teknologi laser, kendaraan hibrid, turbin angin, baterai

nuklir dan baterai pengisi, katalis bahan bakar bio dan lainnya[1].

Karena begitu diperlukannya UTJ pada peralatan teknologi informasi (IT), hal inilah yang menyebabkan meningkat pesatnya permintaan UTJ seiring pertumbuhan yang tajam pada dunia IT tersebut[2]. Namun hal ini

berkebalikan yang dilakukan oleh Cina sebagai pemimpin pasar dunia UTJ, dimana negara tersebut telah memperketat pembatasan ekspor UTJ terkonsentrasi. Hal inilah yang menyebabkan banyak negara melakukan penelitian dan eksplorasi pada sumber daya material baru seperti tambang perkotaan dan UTJ dengan tingkat konsentrasi rendah.

Penelitian sumber UTJ dari hasil samping penambangan dan pemurnian timah di kepulauan Bangka Belitung telah dilakukan oleh Krzysztow Szamalek dan kawan kawan [3]. Penelitian tentang UTJ pada TTB-2 diawali dengan melakukan analisis termodinamika dengan software HSC 6.0 pada kasus peningkatan kadar UTJ pada TTB [4], evaluasi pemrosesan termal ekstraksi dan pemisahan UTJ pada proses daur ulang sampah peralatan listrik dan elektronik juga menggunakan simulasi termodinamika *software FactSage 7.2* untuk pelindian serbuk lampu fluoresen oleh asam sulfat [5].

Komposit mesopori berbasis perlit yang diperluas / *expanded perlite-based* (EPd-APTES @Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) dirancang dan disintesis sebagai adsorben baru untuk pengayaan ion tanah jarang dalam larutan air, parameter termodinamika menyatakan bahwa proses adsorpsi bersifat endotermik. Lebih penting lagi, studi adsorpsi-desorpsi menunjukkan bahwa komposit bahan nano EPd-APTES@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> memiliki stabilitas tinggi dan kemampuan daur ulang yang baik [6].

Fenomena inklusi non-logam sebagai akibat dari penambahan yttrium sebagai komponen paduan pada baja cair, urutan pengenalan komponen individu menentukan kandungan akhir mereka dalam baja, dan masalah ini dianalisis menggunakan program WYK\_Stal. Studi pengendapan fase Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dan Y<sub>2</sub>S<sub>3</sub> dan hubungan antara penambahan Y, Al, Ca, O, dan S pada baja cair dipelajari dengan menggunakan model termodinamika berdasarkan formalisme Wagner, jika yttrium dimasukkan setelah aluminium dan kalsium, yttrium digunakan untuk pengendapan sulfida, dan dengan cara ini pembentukan mangan sulfida berkurang [7].

Unsur racun potensial (Be, U, As, Cd, Pb, Sb, Bi) terdeteksi untuk lanskap tambang deposit timah-polimetalik Sherlovaya Gora. Perhitungan kesetimbangan termodinamika air kolam pembuangan *tailing* dilakukan melalui program kompleks "Selektor" berdasarkan algoritma minimisasi ΔG<sub>25 °C</sub> dan tekanan total 1 bar, ternyata air tambang jenuh terhadap banyak sulfat Ca, Mg, Sr, Zn, K, Cu, Ni, Cd, Be, Al, Ce dan Y, fluorida (Ln dan Y, Sc), dan Y fosfat[8].

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mendapatkan pengkayaan dengan kadar optimal

dari unsur cerium dan yttrium setelah TTB-2 dilakukan pemanggangan pada suhu 900 °C dan pencelupan ke dalam air, pelindian dengan NaOH, pelindian dengan HNO<sub>3</sub>, dan pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan variasi konsentrasi.

## 2. PROSEDUR PERCOBAAN

Penelitian ini dilakukan dengan beberapa kondisi proses, untuk memudahkan pembahasan dan mengefisienkan kalimat serta penyebutan pada grafik maka dilakukan penyingkatan penyebutan. Beberapa penyingkatan penyebutan ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Kondisi proses dan simbol

Simbol	Keterangan Kondisi Proses
I	Terak Awal
II	Pelindian dengan NaOH 8M
III	Pelindian dengan HNO <sub>3</sub> 2M
IV	Pelindian dengan HNO <sub>3</sub> 2M dilanjutkan dengan H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 0,5M
V	Pelindian dengan HNO <sub>3</sub> 2M dilanjutkan dengan H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 1M
VI	Pelindian dengan HNO <sub>3</sub> 2M dilanjutkan dengan H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 1,5M

### 2.1 Material dan Peralatan

Sampel terak timah Bangka-2 didapatkan dari salah satu pabrik peleburan timah di kepulauan Bangka dan Belitung. Beberapa larutan kimia yang digunakan pada penelitian ini adalah larutan aquadest, NaOH (teknis) 8M, larutan HNO<sub>3</sub> (p.a) 2M dan larutan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 0,5 M; 1 M; 1,5 M. Peralatan yang digunakan adalah *ball mill*, pengayak, *barnstead thermolyne furnace*, *magnetic stirrer thermo scientific CIMAREC*, *spinbar Bel-Art™ scienceware™*, gelas *beaker*, gelas ukur, labu takar, indikator pH dan *oven MEMMERT UN55 Universal*.

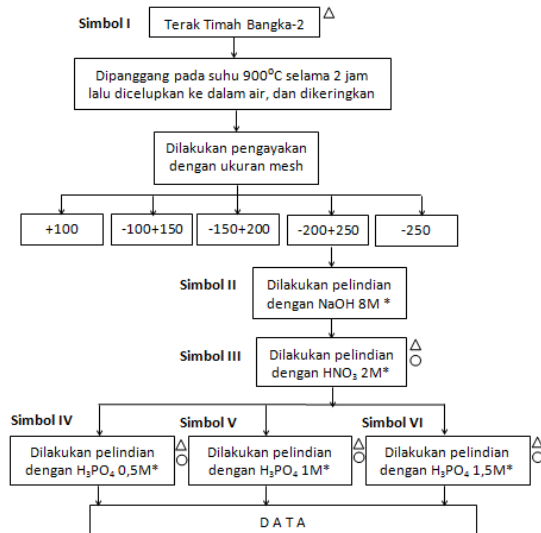
### 2.2 Prosedur

Pada tahap awal terak timah dilakukan proses pemanggangan pada suhu 900 °C selama 2 jam dilanjutkan pencelupan ke dalam air, dan setelah sampel terak timah Bangka-2 berada pada suhu kamar dan kering lalu dilakukan pengayakan. Sampel dengan ukuran butir -200+250 mesh dilakukan proses pelindian dengan NaOH dan selanjutnya dikeringkan, kemudian residu hasil pelindian basa selanjutnya dilakukan pelindian asam menggunakan pelarut HNO<sub>3</sub> dan selanjutnya dikeringkan serta dilanjutkan pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan variasi konsentrasi dan selanjutnya dikeringkan. Rute proses penelitian pengkayaan unsur yttrium dan cerium pada terak timah Bangka-2 diperlihatkan pada Gambar 1.

### 2.3 Karakterisasi dan Analisis

Seluruh sampel terak timah Bangka-2 dikarakterisasi komposisi kimianya dengan menggunakan XRF (*X-ray fluorescence*), konsentrasi besi (Fe) dan kalsium (Ca) terlarut

dalam filtrat dikarakterisasi dengan menggunakan AAS (*atomic absorption spectroscopy*). Software *HSC Chemistry 6.0* digunakan untuk melihat analisis termodinamika yaitu untuk mendapatkan nilai  $\Delta G$  dan Diagram Pourbaix, sedangkan tautan [www.chemidat.com](http://www.chemidat.com) digunakan untuk melakukan produk yang terjadi jika terdapat 2 reaktan dilakukan reaksi kimia.



Keterangan:

\* Sampel dilakukan pelindian selama 2 jam pada suhu kamar selanjutnya dikeringkan

△ Sampel padatan dikarakterisasi dengan XRF

○ Sampel filtrate dikarakterisasi dengan AAS

Gambar 1. Rute proses penelitian pengkayaan unsur yttrium dan cerium pada TTB-2

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Sampel terak timah Bangka-2 (TTB-2) dilakukan pemanggangan pada suhu 900 °C selama 2 jam yang dilanjutkan dengan pencelupan dalam air dengan maksud memperluas area pembasahan dengan tahapan merubah permukaan menjadi lebih porous karena kondisi patah dan retak akibat perlakuan panas, dengan merujuk pada penelitian sebelumnya [9]. Dengan memperluas area pembasahan, diharapkan kondisi proses pelindian akan lebih berhasil melarutkan oksida-oksida ikutan yang kurang berharga.

Pada proses pemanggangan dengan suhu 900 °C sudah tentu akan terjadi reaksi kimia jika kita melakukan tinjauan dengan Ellingham Diagram, namun pada penelitian ini kami belum melakukan pembahasannya, demikian juga halnya dengan hasil pemanggangan 900 °C yang dilakukan pencelupan ke dalam air, kami juga belum melakukan pembahasannya.

### 3.1 Pemanggangan dan Pelindian dengan NaOH

Hasil pengayakan pada ukuran butir -200+250 mesh memperlihatkan seluruh kadar oksida yang tinggi, sekalipun kadar Y tertinggi pada ukuran butir -100+150 mesh yaitu 1,06 % tetapi kadar Y pada ukuran butir -200+250 mesh 0,93 % terjadi perbedaan yang sedikit sehingga ditetapkan sampel TTB-2 diambil ukuran butir -200+250 mesh.

Pelindian dengan NaOH mengacu pada penelitian sebelumnya [10], dimana dijelaskan bahwa pelindian TTB-2 dengan pelarut NaOH akan melarutkan oksida-oksida  $Al_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$ , dan  $ZrO_2$ .

Tabel 2. Distribusi ukuran hasil pengayakan terak timah Bangka-2

Distribusi Ukuran (Mesh)	Kadar (%)								Total (%)
	Y	Ce	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Sn	Zr	CaO	
+100	0,64	0,65	2,57	0,96	1,29	2,24	1,09	0,86	9,44
-100+150	1,06	1,33	6,3	2,43	2,58	3,21	1,92	0,86	19,69
-150+200	0,88	1,27	4,68	1,82	2,01	2,63	1,52	0,03	14,84
-200+250	0,93	3,93	12,89	3,32	4,17	7,06	4,05	4,42	40,77
-250	0,89	1,01	4,75	1,78	1,97	2,93	1,55	4,42	14,88

Tabel 3. Data  $\Delta G$  reaksi oksida-oksida SiO<sub>2</sub>, CaO, TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dan ZrO<sub>2</sub> dengan NaOH

Reaksi	$\Delta G$ (kcal)
$SiO_2 + 2NaOH \rightarrow Na_2SiO_3 + H_2O$	-21,228
$CaO + 2NaOH \rightarrow Ca(OH)_2 + Na_2O$	21,047
$6TiO_2 + 2NaOH \rightarrow Na_2Ti_6O_{13} + H_2O$	-23,582
$Fe_2O_3 + 2NaOH \rightarrow 2NaFeO_2 + H_2O$	-4,262
$ZrO_2 + 2NaOH \rightarrow Na_2ZrO_3 + H_2O$	-5,954

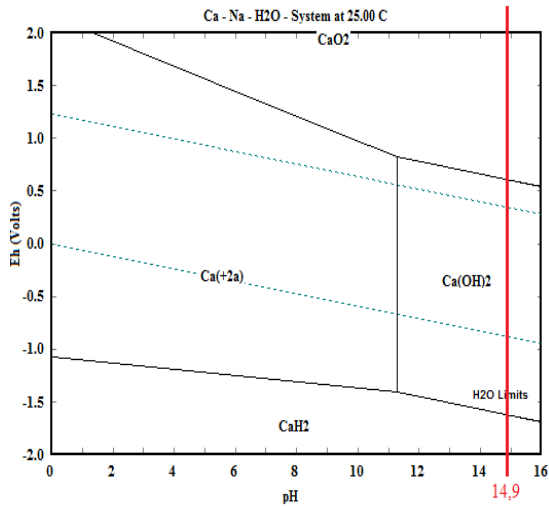
Dari Tabel 3 reaksi antara NaOH dengan SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan ZrO<sub>2</sub> keseluruhannya memperlihatkan nilai  $\Delta G$  negatif, hal ini menunjukkan bahwa reaksi berlangsung secara spontan. Nilai  $\Delta G$  reaksi yang bernilai positif terjadi hanya pada reaksi antara CaO dengan NaOH. Hal ini menunjukkan bahwa reaksi berlangsung tidak spontan. Oleh karena itu kadar CaO setelah pelindian dengan NaOH tidak berkurang tetapi justru bertambah oleh karena senyawa oksida SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dan ZrO<sub>2</sub> terlarut sebagian. Karakterisasi komposisi kimia filtrat dengan AAS (*atomic absorption spectroscopy*) pada kondisi proses II diperlihatkan pada Tabel 4 dimana hasil filtrat memperlihatkan kadar kalsium yang tidak terdeteksi.

Tabel 4. Hasil karakterisasi AAS pada filtrat

Kondisi Proses	Fe (ppm)	Ca (ppm)
II	31	tidak terdeteksi
IV	178,46	2.344,05
V	190,70	2.447,90
VI	267,69	2.659,00

Selain itu analisis mengapa kalsium diperkirakan tidak terlarut adalah dapat dilihat pada Diagram Pourbaix pada Gambar 2, dimana

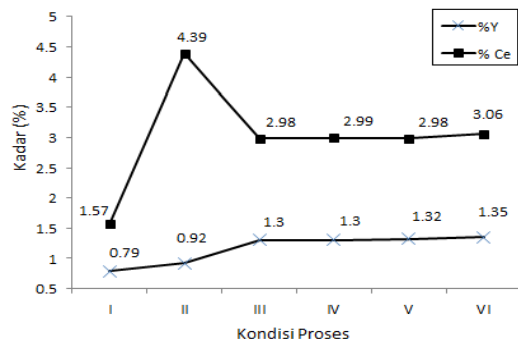
terlihat bahwa pada Diagram Pourbaix dengan sistem Ca-Na-H<sub>2</sub>O, Ca pada pH 14,9, akan stabil menjadi senyawa Ca(OH)<sub>2</sub>, CaH<sub>2</sub> atau CaO yang padat, sehingga tidak akan terlarut pada saat pelindian dengan NaOH 8 M. Pada Gambar 7 terlihat juga peningkatan kadar TiO<sub>2</sub> dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada kondisi proses II, sudah tentu hal ini berlawanan informasi dengan data pada Tabel 3 dimana nilai ΔG nya negatif yang harusnya terlarutkan, hal ini akan menjadi tantangan pada penelitian berikutnya.



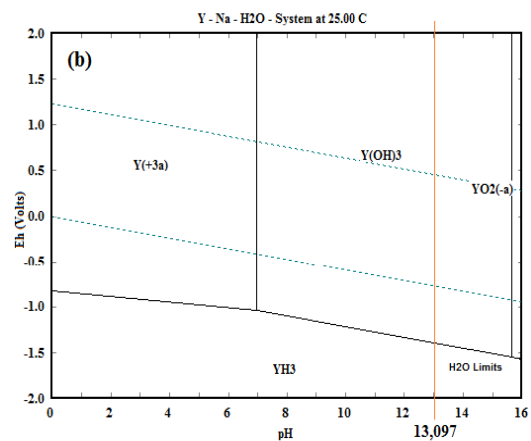
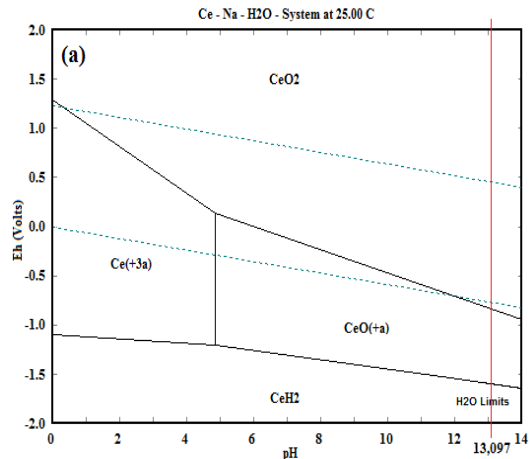
Gambar 2. Diagram Pourbaix sistem Ca-Na-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C

Kenaikan kadar cerium dari kondisi proses I ke kondisi proses II terlihat sangat signifikan yaitu dari kadar 1,57 % menjadi 4,39%, hal ini dapat dijelaskan sebagai berikut: jika kita melihat Tabel 3 data ΔG reaksi oksida-oksida SiO<sub>2</sub>, CaO, TiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan ZrO<sub>2</sub> dengan NaOH akan mendukung kenaikan kadar cerium. Namun ada hal utama yang menyebabkan kenaikan kadar cerium adalah pelarutan cerium ke dalam NaOH 8M (pH= 13,097) menyebabkan cerium membentuk senyawa oksida cerium yaitu CeO<sub>2</sub> atau senyawa CeH<sub>2</sub>, hal inilah yang membuat cerium tidak terlarutkan. Pembentukan senyawa CeO<sub>2</sub> atau CeH<sub>2</sub> dapat dijelaskan dengan Diagram Pourbaix sistem Ce-Na-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C yang ditunjukkan pada Gambar 4(a).

Penjelasan kenaikan kadar yttrium pada kondisi proses II dapat dilihat pada Gambar 4(b) dimana pelarutan yttrium dengan NaOH 8M (pH= 13,097) menghasilkan senyawa YH<sub>3</sub> dan Y(OH)<sub>3</sub> yang artinya yttrium tidak terlarutkan.



Gambar 3. Hasil karakterisasi XRF kadar yttrium dan cerium pada seluruh kondisi proses dalam TTB-2



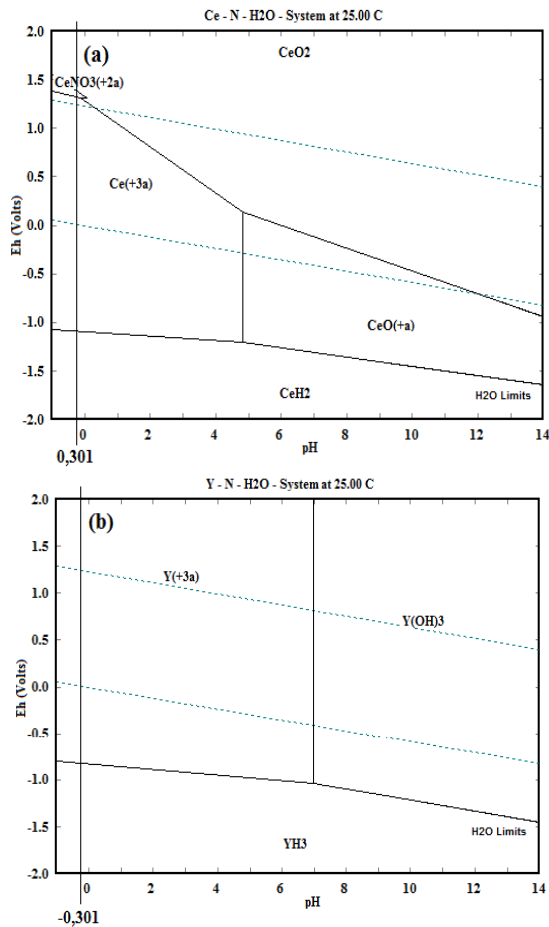
Gambar 4. Diagram Pourbaix sistem; (a) Ce-Na-H<sub>2</sub>O, (b) Y-Na-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C

### 3.2 Pelarutan dalam Larutan HNO<sub>3</sub>

Pada Gambar 3 terlihat kadar cerium dan yttrium pada residu hasil pelindian TTB-2 ke dalam larutan HNO<sub>3</sub> (kondisi proses III). Kadar unsur cerium mengalami penurunan drastis dari 4,39% menjadi 2,98 %. Sedangkan unsur yttrium mengalami kenaikan dari 0,92% menjadi 1,3%.

Penjelasan penurunan kadar cerium dan kenaikan kadar yttrium akan dijelaskan pada Gambar 5 dengan menggunakan analisis termodinamika menggunakan Diagram Pourbaix.

Gambar 5(a) memperlihatkan Diagram Pourbaix sistem Ce-N-H<sub>2</sub>O, pada pH=-0,301 cerium terlarut dalam bentuk Ce<sup>3+</sup> dan CeNO<sub>3</sub><sup>+2</sup>. Jadi cerium mengalami penurunan karena terlarutkan sehingga kadar cerium di dalam TTB-2 mengalami penurunan.



Gambar 5. Diagram Pourbaix sistem; (a) Ce-N-H<sub>2</sub>O, (b) Y-N-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C

Jika kita perhatikan pada Gambar 3, pada kondisi proses III kadar yttrium mengalami kenaikan, Diagram Pourbaix pada Gambar 5(b) dapat membantu untuk menjelaskan kenaikan kadar yttrium tersebut. Pada gambar tersebut yttrium berbentuk YH<sub>3</sub> dan Y<sup>3+</sup> artinya kemungkinan saja yttrium terlarutkan dalam bentuk ion Y<sup>3+</sup> atau tidak terlarutkan dalam bentuk senyawa YH<sub>3</sub>.

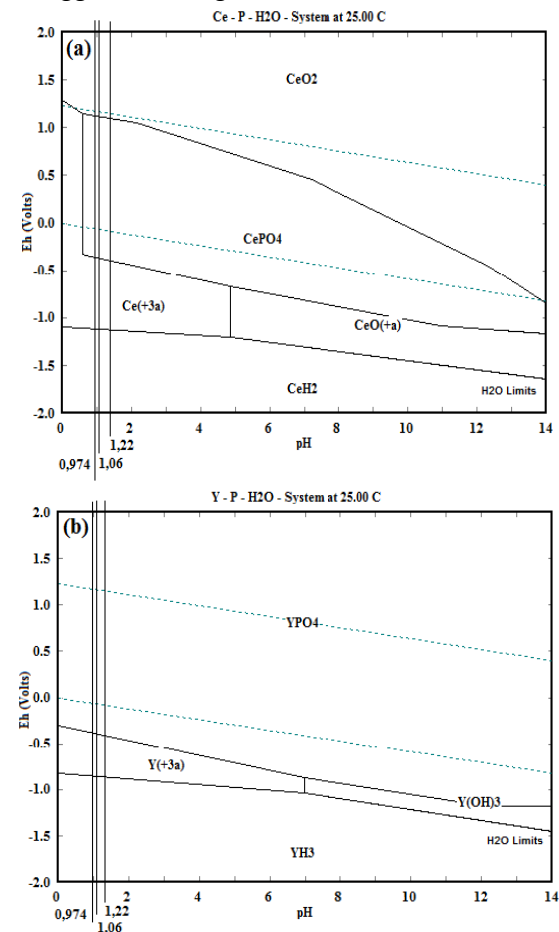
Jika yttrium terlarutkan maka keterlarutannya harus dibandingkan dengan keterlarutan oksida CaO. Jika ternyata kadar yttrium meningkat, kemungkinan terbesar adalah keterlarutan yttrium jauh lebih kecil dari keterlarutan oksida CaO. Indikasi keterlarutan oksida CaO yang besar dapat dilihat pada Gambar 7 dan 8. Jika kita bandingkan antara Gambar 3, 7 dan 8 kita bisa melihat kenaikan kadar cerium dari kondisi proses II ke kondisi proses III adalah 41,3 %

([1,3-0,92]/[0,92]x100%) sedangkan penurunan kadar CaO adalah 43,26 % ([4,53-2,57]/[4,53]x100%).

### 3.3 Pelarutan dalam Larutan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>

Pada Gambar 3 kadar cerium dan yttrium hasil pelindian TTB-2 ke dalam larutan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (kondisi proses IV, V dan VI). Kadar unsur cerium mengalami kenaikan bertahap dari 2,99% dan terakhir 3,06%. Sedangkan unsur yttrium mengalami kenaikan dari 1,3% dan terakhir 1,35 %.

Penjelasan kenaikan kadar cerium dan yttrium akan dijelaskan di bawah dengan menggunakan analisis termodinamika menggunakan Diagram Pourbaix.



Gambar 6. Diagram Pourbaix sistem (a) Ce-P-H<sub>2</sub>O, (b) Y-P-H<sub>2</sub>O pada suhu 25 °C

Karena H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> merupakan asam lemah maka menentukan konsentrasi H<sup>+</sup>-nya harus menggunakan K<sub>a</sub> dengan nilai 7,5 x 10<sup>-3</sup>. Dengan data tersebut didapat pH H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> pada 0,5M, 1M dan 1,5M adalah 1,22; 1,06 dan 0,974.

Untuk unsur cerium, dari ketiga pH tersebut dan kita korelasikan dengan diagram Pourbaix seperti pada Gambar 6(a), disana terlihat pelindian cerium dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> pada ketiga pH

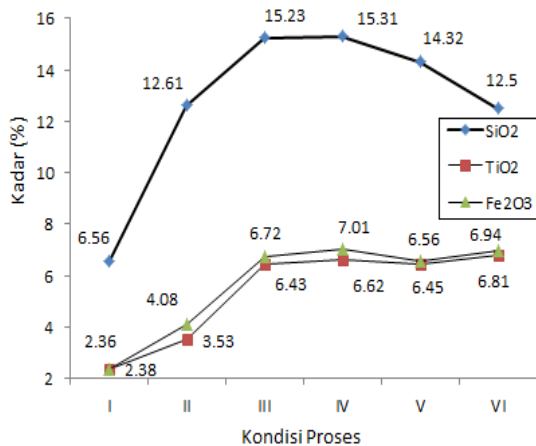


lebih dominan menghasilkan senyawa  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{CePO}_4$  dan  $\text{CeH}_2$ . Sehingga dari senyawa tersebut memperlihatkan bahwa unsur cerium kurang terlarutkan pada kondisi proses IV, V dan VI.

Hal lain yang mendukung kenaikan kadar cerium adalah terlarutkannya  $\text{SiO}_2$  pada kondisi proses IV, V dan VI, informasi tentang hal ini dapat dilihat pada Gambar 7.

Boussaa, dkk., [11] melakukan pelindian pasir silika dengan  $\text{HNO}_3$  selama 2,5 jam, dan hasilnya memperlihatkan penurunan kandungan Al dan Fe yang sangat signifikan. Besar persentasi Fe yang dihilangkan mencapai 90,5 % dan untuk Al sebesar 87,3%. Kemudian untuk agen pelindi  $\text{H}_3\text{PO}_4$  lebih banyak melarutkan Fe dan Al dibanding  $\text{HNO}_3$ , yaitu secara berturut-turut sebesar 97,62 % dan 91,15 %. Terak peleburan timah mengandung Si, Fe, dan Al yang berikatan dengan Ca, maka pada saat pelindian dalam larutan asam nitrat akan mengalami pelarutan Ca, Al, dan Fe, yang mengakibatkan keruntuhan struktur ikatan, dan melepaskan partikel-partikel halus  $\text{SiO}_2$  sebagai larutan koloid [12].

Hal ini juga serupa dengan penjelasan yang termuat pada artikel yang ditulis oleh C.Subramanian dan A.K Suri [13], bahwa pelindian asam akan melarutkan Al, Fe, dan Ca, dengan persen terlarut paling tinggi pada senyawa Al, diikuti Ca dan Fe.



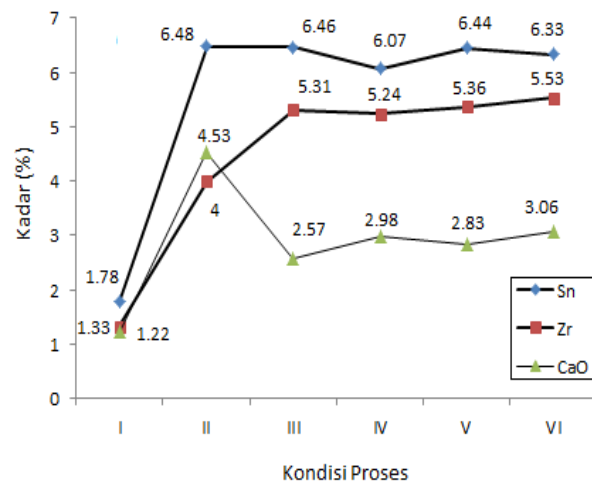
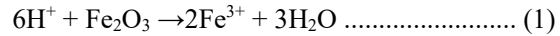
Gambar 7. Hasil karakterisasi XRF kadar  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$  dan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  pada seluruh kondisi proses TTB-2

Seperti pada unsur cerium, kenaikan unsur yttrium salah satunya didukung oleh terlarutkannya  $\text{SiO}_2$  pada kondisi proses IV, V dan VI, sebagaimana dapat dilihat pada Gambar 7.

Pelindian yttrium dengan  $\text{H}_3\text{PO}_4$  pada ketiga variasi pH lebih dominan menghasilkan senyawa  $\text{YPO}_4$  dan  $\text{YH}_3$ . Dengan adanya senyawa  $\text{YPO}_4$  dan  $\text{YH}_3$  tersebut memperlihatkan bahwa unsur

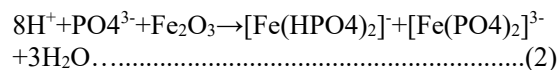
yttrium kurang terlarutkan pada kondisi proses IV, V dan VI.

Penelitian lain yang menggunakan pelindian dengan  $\text{H}_3\text{PO}_4$  dan  $\text{HNO}_3$  dilaporkan oleh Zhang, dkk., [14], dimana pelarutan besi yang terus meningkat seiring naiknya konsentrasi  $\text{H}_3\text{PO}_4$  yang dicampur ke dalam  $\text{HNO}_3$  2M. Hal ini dijelaskan bahwa dengan adanya ion  $\text{H}^+$  yang disediakan oleh asam kuat  $\text{HNO}_3$ , akan bereaksi dengan senyawa besi yang mengakibatkan besi akan terlarut ke dalam filtrat pelindian. Reaksinya adalah sebagai berikut:



Gambar 8. Hasil karakterisasi XRF kadar Sn, Zr dan CaO pada seluruh kondisi proses TTB-2

Ditambah juga dengan adanya disosiasi  $\text{H}_3\text{PO}_4$  yang menyediakan ion  $\text{H}^+$  ( $\text{pK}_a = 2,12$ ), yang akan bereaksi juga dengan senyawa oksida, selain itu ion  $\text{PO}_4^{3-}$  yang hadir karena disosiasi  $\text{H}_3\text{PO}_4$ , dan memiliki kemampuan membentuk ion kompleks dengan besi, dan membuat besi akan terus terlarut ke dalam filtrat. Reaksinya adalah sebagai berikut [14]:



Ion-ion hidrogen ini akan teradsorpsi ke permukaan oleh karena adanya aktivasi permukaan. Ion hidrogen akan teradsorpsi ke permukaan padatan, dan membuat adanya pusat permukaan yang aktif, dimana pada kondisi tersebut akan menjadi letak pelarutan senyawa besi. Semakin banyaknya permukaan yang aktif, maka laju pelindian akan semakin besar [14].

#### 4. KESIMPULAN

Dari hasil penelitian di atas didapatkan informasi kadar optimum dari unsur cerium dan yttrium setelah TTB-2 dilakukan pemanggangan 900 °C, pelindian dengan NaOH, pelindian dengan HNO<sub>3</sub>, dan pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan variasi konsentrasi.

Pengkayaan kadar cerium optimum didapatkan setelah terak timah yang telah mengalami pemanggangan pada suhu 900 °C dan ukuran butirnya +200-250 mesh dilakukan pelindian dengan NaOH 8M. Kadar cerium yang didapatkan pada kondisi proses tersebut 4,59%.

Kadar yttrium meningkat pada seluruh kondisi proses, dan nilai kadar optimum didapat setelah kondisi proses pelindian dengan HNO<sub>3</sub> 2M yang dilanjutkan dengan kondisi proses pelindian dengan H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 1,5 M. Kadar yttrium yang didapatkan pada kondisi proses tersebut 1,35%.

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Terimakasih kepada *Centre of Mineral Processing and Corrosion Research* Departemen Teknik Metalurgi and Material Universitas Indonesia yang telah memfasilitasi penelitian ini dan PT Timah Tbk. yang telah memberi sampel terak timah.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] V. Balaram, "Rare earth elements: A review of applications, occurrence, exploration, analysis, recycling, and environmental impact," *Geosci. Front.*, vol. 10, no. 4, pp. 1285–1303, 2019.
- [2] N. Clavier, R. Podor, dan N. Dacheux, "Crystal chemistry of the monazite structure," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 31, no. 6, pp. 941–976, 2011.
- [3] G. Konopka, K. Zglinicki, dan B. M. Maliszewska, "New potential source of rare earth elements," *Gospod. SUROWCAMI Miner.*, vol. 29, no. 4, pp. 59–76, 2013.
- [4] S. Permana, A. Rustandi, dan R. A. Majid, "Thermodynamic analysis with software : A case study of upgrading rare earth elements content in Bangka tin slag," *Far East J. Electron. Commun.*, vol. 17, no. 5, pp. 1211–1220, 2017.
- [5] A. B. Botelho Junior, D. C. R. Espinosa, dan J. A. S. Tenório, "The use of computational thermodynamic for yttrium recovery from rare earth elements-bearing residue," *J. Rare Earths*, 2020. Doi.org/10.1016/j.jre.2020.02.019.
- [6] J. Liu, L. Zeng, S. Liao, X. Liao, J. Liu, J.

- Mao, Y. Chen, T. Qiu dan S. Ren, "Highly efficient enrichment and adsorption of rare earth ions (yttrium(III)) by recyclable magnetic nitrogen functionalized mesoporous expanded perlite," *Chinese Chem. Lett.*, 2020. Doi.org/10.1016/j.ccl.2020.08.017.
- [7] S. Gerasin, D. Kalisz, dan J. Iwanciw, "Thermodynamic and kinetic simulation of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Y<sub>2</sub>S<sub>3</sub> nonmetallic phase formation in liquid steel," *J. Min. Metall. Sect. B Metall.*, vol. 56, no. 1, pp. 11–25, 2020.
- [8] O. Eremin, O. Rusal, M. Solodukhina, E. Epova, dan G. Yurgenson, "Thermodynamic equilibria of tailings dump pond water of Sherlovaya Gora tin-polymetallic deposit (Transbaikalia)," in *E3S Web of Conferences*, vol. 98, no. 1014, pp. 1–6, 2019.
- [9] S. Permana, S. F. Vincia, A. Amilia, A. Maksum, K. S. Widana, dan J. W. Soedarsono, "Enrichment on Bangka tin slag's tantalum and niobium oxide contents through non-fluoride process," *Eastern-European J. Enterp. Technol.*, vol. 5, no. 12–95, pp. 56–64, 2018.
- [10] A. M. K. S. W. K. Trinopiawan, J. W. Soedarsono, S. Permana, J. K. Hutauruk, R. Adhynputra, dan A. Rustandi, "Upgrading tantalum and niobium oxides content in Bangka tin slag with double leaching Upgrading tantalum and niobium oxides content in Bangka tin slag with double leaching," in *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, pp. 1–9, 2018.
- [11] S. A. Boussaa, A. Kheloufi, N. Boutarek Zaourar, dan S. Bouachma, "Iron and aluminium removal from Algerian silica sand by acid leaching," *Acta Phys. Pol. A*, vol. 132, no. 3, pp. 1082–1086, 2017.
- [12] I. Gaballah, E. Allain, M.C. M. Joly, dan K. Malau, "A possible method for the characterization of amorphous slags recovery of refractory metal oxides from tin slags," *Metall. Trans.*, vol. 23, pp. 249–259, 1992.
- [13] C. Subramanian dan A. K. Suri, "Recovery of niobium and tantalum from low grade tin slag - A hydrometallurgical approach," *Environ. Waste Manag.*, vol. 831, no. 7, pp. 100–107, 1998.
- [14] F. K. Crundwell, "The dissolution and leaching of minerals: Mechanisms, myths and misunderstandings," *Hydrometallurgy*, vol. 139, pp. 132–148, 2013.





## SINTESIS DAN KARAKTERISASI MATERIAL NANO-PEROVSKITE NEODYMIUM IRON OXIDE (NdFeO<sub>3</sub>)

Rina Dewi Mayasari<sup>a</sup>, Hanif Yuliani<sup>a,\*</sup>, Yelvia Deni<sup>a</sup>, Jarot Raharjo<sup>a</sup>, Suyanti<sup>b</sup>, Sudibyo<sup>b</sup>,  
Muhammad Setiadji<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Pusat Teknologi Material, Badan Pengkajian dan Penerapan Teknologi  
Gedung 224, Kawasan Puspiptek, Indonesia 15310

<sup>b</sup>Pusat Sains dan Teknologi Akselerator, Badan Tenaga Nuklir Nasional  
Jl. Babarsari, Yogyakarta, Indonesia 55281

\*E-mail: hanif.yuliani@bppt.go.id

Masuk tanggal : 14-11-2019, revisi tanggal : 06-01-2020, diterima untuk diterbitkan tanggal 24-09-2020

### Abstrak

Sintesis nano-perovskite oksida neodimium besi (NdFeO<sub>3</sub>) telah berhasil dilakukan dengan metode presipitasi menggunakan surfaktan EG (*ethylene glycol*) sebagai material pelapis. Senyawa NdFeO<sub>3</sub> dikarakterisasi analisis gugus fungsi kimia dengan FTIR (*fourier transform infrared spectroscopy*), analisis morfologi dengan SEM (*scanning electron microscopy*), analisis kristalinitas dan ukuran partikel dengan XRD (*X-ray diffraction*) dan TEM (*transmission electron microscopy*). Pengamatan SEM dan TEM menunjukkan bahwa hasil sintesis membentuk nanostruktur berbentuk bulat dengan ukuran diameter pada rentang 15 sampai 20 nm. Spektra XRD mengonfirmasi bahwa fasa NdFeO<sub>3</sub> membentuk struktur orthorombik dan perovskite.

**Kata Kunci:** Nano-perovskite, NdFeO<sub>3</sub>, *ethylene glycol*, presipitasi

### Abstract

*Nano-perovskite synthesis of neodimium iron oxide (NdFeO<sub>3</sub>) was successfully performed using a precipitation method using the EG (ethylene glycol) surfactant as a coating material. The NdFeO<sub>3</sub> compound was characterized by functional group analysis using FTIR (four transforms infrared spectroscopy), morphology analysis using SEM (scanning electron microscopy), crystallinity and particle size analysis using XRD (x-ray diffraction) and TEM (transmission electron microscopy). SEM and TEM research shows that the synthesized substance formed a sphere-like nanostructure with a diameter varying from 15 to 20 nm. The XRD spectra indicated that the NdFeO<sub>3</sub> phase formed an orthorhombic and perovskite structure.*

**Keywords:** Nano-perovskite, NdFeO<sub>3</sub>, *ethylene glycol*, precipitation

## 1. PENDAHULUAN

Beberapa tahun terakhir nanomaterial logam oksida telah menjadi penelitian yang menarik bagi para peneliti karena material tersebut memiliki sifat-sifat yang unik, seperti sensitif terhadap gas, superkonduktif suhu tinggi, kemampuan mengubah resistansi internal terhadap keberadaan medan magnet (*colossal magneto-resistance*), dan memiliki banyak sifat ferit (*multiferrocity*) [1]. Dalam ruang lingkup tertentu, material ortoforit dari bahan baku logam tanah jarang (LTJ) AFeO<sub>3</sub> (A = LTJ) dengan sifat struktur perovskite semakin banyak

dikembangkan karena sifat listrik dan magnetiknya yang sangat baik dan sensitif terhadap penurunan ukuran partikel hingga level nanometer [2]. Material ortoforit AFeO<sub>3</sub> dapat dimanfaatkan pada aplikasi sensor gas, *fuel cell*, divais spintronik, divais magneto optik, dan lain-lain [3].

Pada aplikasi sensor gas, perovskite oksida merupakan salah satu material yang memiliki sensitivitas tinggi, sangat selektif terhadap gas analit, stabilitas termal yang baik, dan kontrol struktur yang stabil [4]. Senyawa *nano-perovskite oxides* ABO (A: La, Nd, Sm dan Gd; B: Fe, Co

dan Ni; dan O: oksigen) memiliki aktivitas katalitik dan sensitivitas tinggi terhadap senyawa karbon monoksida (CO), hidrogen sulfida (H<sub>2</sub>S), karbon dioksida (CO<sub>2</sub>) serta senyawa hidrokarbon (HCs) seperti metana, etana, dan propana [5].

Sintesis nano-perovskite dapat dilakukan dengan berbagai metode antara lain reaksi *solid-state* [6], *gas phase reaction* untuk *thin film* (sputtering, evaporasi, *laser ablation*, dan lain-lain) [7], metoda perlakuan panas (*thermal treatment method*) [8], presipitasi dan *sol-gel* (*wet chemical method*) [9][10]. Motlagh, dkk., [5] telah melakukan proses sintesis kimia NdFeO<sub>3</sub> dengan metode presipitasi dan telah berhasil membuat nanokristal NdFeO<sub>3</sub> dengan ukuran 69 nm.

Pada riset ini dilakukan pengembangan sintesis senyawa NdFeO<sub>3</sub> dengan menggunakan metode presipitasi dan *ethylene glycol* sebagai surfaktan untuk memperoleh ukuran yang lebih kecil. Material NdFeO<sub>3</sub> dengan kristalinitas dan kemurnian tinggi serta ukuran dalam skala nanometer diharapkan dapat diterapkan dalam berbagai aplikasi, khususnya sensor gas.

## 2. PROSEDUR PERCOBAAN

### 2.1 Bahan Baku

Material yang digunakan untuk proses sintesis senyawa perovskite adalah FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O, Nd(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O, *ethylene glycol* (EG); NaOH, dan *double distilled water* (dd-H<sub>2</sub>O). Seluruh reagen yang digunakan merupakan reagen kimia dengan standar kualitas pro-analisis (*analytical grade*) tanpa pemurnian lebih lanjut.

### 2.2 Sintesis Nano-NdFeO<sub>3</sub>

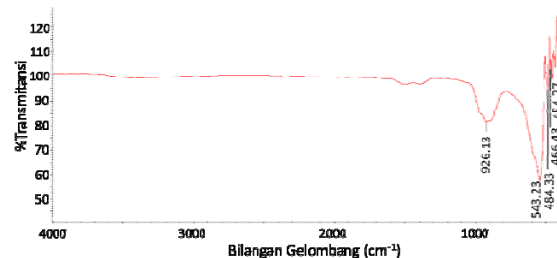
Proses sintesis nanokristal NdFeO<sub>3</sub> dilakukan dengan metode presipitasi dengan tahapan berikut: pertama dilakukan pembuatan larutan FeCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O 0,1 M dan larutan Nd(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O 0,1 M. Kedua larutan tersebut kemudian dicampur dan ditambahkan EG (*ethylene glycol*) yang berfungsi sebagai surfaktan dan pelapis material (*coating material*). Tahapan sintesis dilanjutkan dengan penambahan 1,5 M NaOH tetes demi tetes secara perlahan, dan pH larutan dimonitor selama penambahan larutan NaOH. Reaktan diaduk dengan menggunakan *magnetic stirrer* pada kecepatan konstan hingga diperoleh pH 7-8. Suhu larutan dinaikkan menjadi 80 °C dan diaduk selama 1 jam. Produk didinginkan sampai suhu kamar.

Untuk memisahkan produk dari persenyawaan sodium dan klorida, presipitat dicuci dua kali dengan dd-H<sub>2</sub>O. Setelah itu, presipitat dicuci dengan etanol untuk memisahkan produk dari

kelebihan surfaktan (*excess surfactant*). Isolasi produk dalam *supernatant* dilakukan dengan sentrifugasi selama 15 menit dengan kecepatan 3000 rpm. Produk dikeringkan pada suhu 100 °C selama 2 jam dan diperoleh produk NdFeO<sub>3</sub> dengan kandungan air hingga 10%, yang kemudian dihilangkan dengan proses pemanasan pada suhu 800 °C selama 4 jam.

### 2.3 Karakterisasi Nano-NdFeO<sub>3</sub>

Karakterisasi sampel NdFeO<sub>3</sub> dilakukan untuk memperoleh sifat-sifat material nano-perovskite NdFeO<sub>3</sub> secara kualitatif dan kuantitatif. Ikatan kimia dan struktur kimia dianalisa dengan FTIR (*fourier transform infrared spectroscopy*) Thermo Scientific Nicolet iS50. Morfologi berupa bentuk dan ukuran butir nanomaterial diamati dengan SEM (*scanning electron microscopy*) JEOL JSM-6390A dan TEM (*transmission electron microscopy*) FEI Tecnai G2 20S-Twin. Struktur kristal yang terbentuk pada sampel dikarakterisasi dengan XRD (*x-ray diffraction*) Rigaku D8 Advance. Proses keseluruhan karakterisasi dilakukan pada suhu ruang. Pengujian FTIR, SEM, dan XRD menggunakan sampel serbuk NdFeO<sub>3</sub> tanpa melalui preparasi lanjutan sedangkan sampel uji TEM dilakukan pelarutan sampel dengan menggunakan dispersan.



Gambar 1. Spektrum FTIR dari senyawa NdFeO<sub>3</sub>

## 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

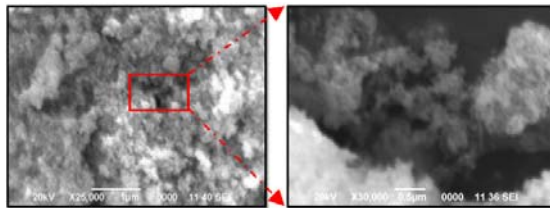
### 3.1 Analisa Ikatan Kimia NdFeO<sub>3</sub>

Gambar 1 menunjukkan spektrum FTIR (*fourier transform infrared spectroscopy*) dari senyawa NdFeO<sub>3</sub> dengan puncak-puncak serapan terdeteksi pada bilangan gelombang (cm<sup>-1</sup>) 926,13; 543,23; 484,33; 466,43 dan 454,27. Data serapan ini mengacu pada vibrasi yang dihasilkan senyawa perovskite yaitu serapan (*absorptive bands*) dari vibrasi Fe–O (*stretching vibration*) pada panjang gelombang ~545 cm<sup>-1</sup>, serapan (*absorptive bands*) dari vibrasi O–Fe–O (*bending vibration*) pada panjang gelombang ~434 cm<sup>-1</sup>, dan serapan (*absorptive bands*) dari vibrasi O–Nd–O (*bending vibration*) pada panjang gelombang ~910 cm<sup>-1</sup>. Hasil analisis FTIR ini

mengonfirmasi keberhasilan proses sintesis yang menghasilkan senyawa perovskite NdFeO<sub>3</sub>.

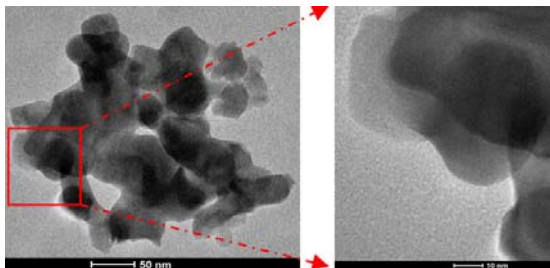
### 3.2 Analisis Morfologi NdFeO<sub>3</sub>

Morfologi senyawa NdFeO<sub>3</sub> diamati dengan SEM (*scanning electron microscopy*) dan ditampilkan pada Gambar 2. Hasil pengamatan menunjukkan bahwa senyawa membentuk aglomerasi homogen berupa gumpalan NdFeO<sub>3</sub>. Homogenitas material terlihat dari warna hasil SEM yang sama di semua permukaan, sementara perbedaan warna memperlihatkan ketinggian permukaan. Akan tetapi, pada perbesaran skala 500 nm terlihat butiran-butiran partikel halus berukuran nanometer. Morfologi yang sama juga diperoleh Mothlagh, dkk., [5], [11] dimana butiran-butiran halus NdFeO<sub>3</sub> dengan bentuk *sphere-like* teraglomerasi.



Gambar 2. Hasil pengamatan SEM dari permukaan NdFeO<sub>3</sub>

Gambar 3 merupakan hasil pengamatan morfologi sampel dengan TEM (*transmission electron microscopy*). Partikel NdFeO<sub>3</sub> terlihat memiliki bentuk berupa butiran-butiran bulat yang tidak teratur (*sphere-like nanostructure*) dan teraglomerasi. Ukuran partikelnya diperoleh pada rentang 15-20 nm. Hasil pengamatan dengan TEM yang sebanding juga diperoleh Hao, dkk., [12], dengan proses sintesis menggunakan surfaktan, yaitu butiran-butiran NdFeO<sub>3</sub> yang teraglomerasi tetapi memiliki ukuran yang lebih besar 35~45 nm.

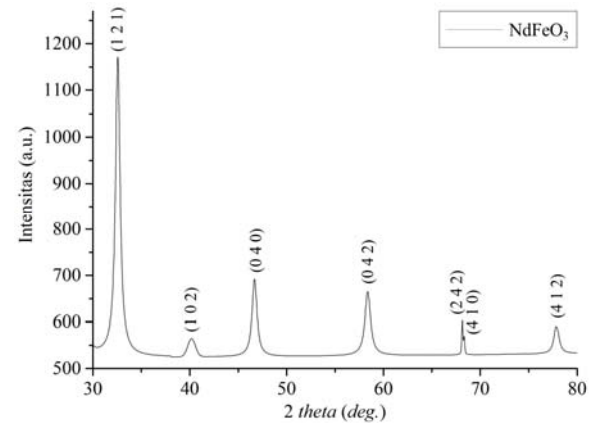


Gambar 3. Hasil analisa TEM butiran senyawa NdFeO<sub>3</sub>

### 3.3 Analisis Struktur Kristal NdFeO<sub>3</sub>

Kristalinitas NdFeO<sub>3</sub> dianalisa dengan alat XRD (*x-ray diffraction*) dan hasilnya dapat dilihat pada Gambar 4. Hasil analisa pola difraksi sinar-x dengan menggunakan *software HighScore Plus* menunjukkan bahwa senyawa mengandung fasa utama FeNdO<sub>3</sub> (No. Ref. 96-

200-3125) yang mensyaratkan *three strongest lines* pada nilai  $d_1 = (2,75 \pm 0,01) \text{ \AA}$ ,  $d_2 = (1,95 \pm 0,02) \text{ \AA}$ , dan  $d_3 = (1,58 \pm 0,02) \text{ \AA}$ . Senyawa NdFeO<sub>3</sub> memiliki struktur kristal orthorombik ( $a \neq b \neq c$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ ) dengan  $M_r = 248,09 \text{ \AA}^3$  dan grup ruang *Pbnm* (62). Hasil identifikasi fasa terangkum pada Tabel 1.



Gambar 4. Pola difraksi sinar-x senyawa NdFeO<sub>3</sub>

Tabel 1. Analisa data XRD senyawa NdFeO<sub>3</sub>

2θ (°)	d(Å)	Ukuran Kristalit (nm)	Bidang Fasa
32,53	2,75	11,74	(121)
40,16	2,24	13,13	(102)
46,76	1,95	12,45	(040)
58,46	1,58	11,16	(042)
68,14	1,37	34,69	(242)
68,33	1,37	34,89	(410)
77,88	1,23	15,82	(412)

Struktur kristal orthorombik dari fasa FeNdO<sub>3</sub> yang terbentuk juga memiliki kecenderungan menuju struktur *perovskite* fasa LaGaO<sub>3</sub> (CPDS No. 3561), sehingga dapat dikatakan fasa FeNdO<sub>3</sub> berstruktur *perovskite-like*. Bidang fasa FeNdO<sub>3</sub> terindikasi susunannya menyerupai *perovskite* LaGaO<sub>3</sub> yaitu (121), (102), (040), (042), (242), (410), dan (412). Hasil analisa XRD ini sesuai dengan penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Nakhaei dan Khoshnoud [3]. NdFeO<sub>3</sub> memiliki pola difraksi dengan struktur *perovskite orthorombic* dengan ruang grup *Pbnm*.

## 4. KESIMPULAN

Sintesis nanomaterial *perovskite neodymium iron oxide* (NdFeO<sub>3</sub>) telah berhasil dilakukan dengan metode presipitasi dengan surfaktan *ethylene glycol*. Berdasarkan hasil karakterisasi material, senyawa NdFeO<sub>3</sub> telah membentuk struktur *perovskite-like nanostructure* dengan struktur kristal orthorombik dan ukuran butir pada rentang 15-20 nm. Teknologi proses riset ini

perlu dioptimasi untuk mendapatkan nano-perovskite  $\text{NdFeO}_3$  dengan bentuk dan ukuran butir yang homogen.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih kepada Kemenristekdikti atas hibah riset Insentif SINAS Konsorsium 2019 dan DIPABPPT 2019 yang telah memberikan pendanaan pada riset ini.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] J. Shanker, G. Narsinga Rao, K. Venkataramana, dan D. Suresh Babu, "Investigation of structural and electrical properties of  $\text{NdFeO}_3$  perovskite nanocrystalline," *Phys. Lett. Sect. A Gen. At. Solid State Phys.*, vol. 382, no. 40, pp. 2974–2977, 2018. Doi: 10.1016/j.physleta.2018.07.002.
- [2] T. A. Nguyen, M. V. Berezhnaya, T. L. Phamd, V. O. Mittova, M. Q. Vo, L. T. T. Nguyend, H. T. Do, I. Y. Mittova, dan E. L. Viryutina, "Synthesis and magnetic characteristics of neodymium ferrite powders with perovskite structure," *Russ. J. Appl. Chem.*, vol. 92, no. 4, pp. 498–504, 2019. Doi: 10.1134/S1070427219040050.
- [3] M. Nakhaei dan D. Sanavi Khoshnoud, "Influence of particle size and lattice distortion on magnetic and dielectric properties of  $\text{NdFeO}_3$  orthoferrite," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 553, pp. 53–58, 2019. Doi: 10.1016/j.physb.2018.10.032.
- [4] Y. Chen, D. Wang, H. Kin, H. Zhang, Z. Zhang, G. Zhou, C. Gao dan J. Hu, " $\text{CO}_2$  sensing properties and mechanism of  $\text{PrFeO}_3$  and  $\text{NdFeO}_3$  thick film sensor," *J. Rare Earths*, vol. 37, no. 1, pp. 80–87, 2019. Doi: 10.1016/j.jre.2018.06.007.
- [5] M. K. Motlagh, M. Noroozifar, M. Yousefi, dan S. Jahani, "Chemical Synthesis and Characterization of Perovskite  $\text{NdFeO}_3$  Nanocrystals via a Co-Precipitation Method," *Int. J. Nanosci. Nanotechnol.*, vol. 9, no. 1, pp. 7–14, 2013.
- [6] E. H. Sujiono, M. Y. Dahlan, R. A. Imran, A. C. M. Said, dan S. Samnur, "The effects of calcination temperatures on crystal structures and morphologies of  $\text{Nd}_{1.2}\text{FeO}_3$  synthesized by solid-state reaction," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 367, no. 1, 2018. Doi: 10.1088/1757-899X/367/1/012042.
- [7] A. F. Nada, G. Ahmed, dan E. A. H. Ekram, *Perovskite nanomaterials-synthesis, characterisation, properties, and applications*, vol. 3. 2016.
- [8] Z. Anajafi, M. Naseri, S. Marini, C. Espro, D. Iannazzo, S. G. Leonardi dan G. Neri, " $\text{NdFeO}_3$  as a new electrocatalytic material for the electrochemical monitoring of dopamine," *Anal. Bioanal. Chem.*, vol. 411, no. 29, pp. 7681–7688, 2019. Doi: 10.1007/s00216-019-01975-z.
- [9] M. Yousefi, S. S. Zeid, dan M. Khorasani-Motlagh, "Synthesis and characterization of nano-structured perovskite type neodymium orthoferrite  $\text{NdFeO}_3$ ," *Curr. Chem. Lett.*, vol. 6, no. 1, pp. 23–30, 2017. Doi: 10.5267/j.ccl.2016.10.002.
- [10] J. Shanker, M. B. Suresh, dan D. S. Babu, "Synthesis, characterization and electrical properties of  $\text{NdXO}_3$  ( $X=\text{Cr}, \text{Fe}$ ) nanoparticles," *Mater. Today Proc.*, vol. 3, no. 6, pp. 2091–2100, 2016. Doi: 10.1016/j.matpr.2016.04.113.
- [11] T. G. Ho, T. D. Ha, Q. N. Pham, H. T. Giang, T. A. T. Do, dan N. T. Nguyen, "Nanosized perovskite oxide  $\text{NdFeO}_3$  as material for a carbon-monoxide catalytic gas sensor," *Adv. Nat. Sci. Nanosci. Nanotechnol.*, vol. 2, no. 1, 2011. Doi: 10.1088/2043-6262/2/1/015012.
- [12] Y. J. Hao, B. Li, R. H. Liu, dan F. T. Li, "Synthesis of  $\text{NdFeO}_3$  perovskites in a reverse microemulsion and its visible light photocatalytic activity," *Adv. Mater. Res.*, vol. 282–283, no. 3, pp. 593–596, 2011. Doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.282-283.593.



## KONTRIBUSI ADITIF SUCCINONITRILE (SN) PADA PERFORMA ELEKTROLIT PADAT LiBOB UNTUK BATERAI LI-ION

Titik Lestariningsih<sup>a,\*</sup>, Qolby Sabrina<sup>a</sup>, Christin Rina Ratri<sup>a</sup>, Latifa Hanum Lalasari<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Pusat Penelitian Fisika - LIPI

Gedung 44-442, Kawasan Puspiptek Serpong, Indonesia 15310

<sup>b</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material - LIPI

Gedung 470, Kawasan Puspiptek Serpong, Indonesia 15310

\*E-mail: lestariningsih25.tl@gmail.com

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

### Abstrak

Pengembangan elektrolit polimer padat untuk substitusi elektrolit cair bertujuan untuk mengurangi kebocoran pada sistem baterai. Performa elektrolit polimer padat masih terus ditingkatkan agar memiliki konduktifitas ionik sebanding dengan performa elektrolit cair. Salah satu upaya peningkatan performa elektrolit polimer padat dengan menambahkan SN (*succinonitrile*). SN merupakan matriks serbaguna untuk menghantarkan Li-ion dalam elektrolit padat, tingginya polaritas SN diharapkan dapat membantu pemisahan ion lithium yang berasal dari garam elektrolit LiBOB. Peningkatan mobilitas ion akan menghasilkan konduktifitas ion yang tinggi. Penambahan jumlah SN dalam pembuatan elektrolit padat dibuat bervariasi dengan metode *mixing slurry* dan *solution casting*. Hasil karakterisasi FE-SEM (*field emission-scanning electron microscopy*) dan XRD (*x-ray diffraction*) dengan penambahan SN 32% memperlihatkan adanya lubang pori dan mempunyai bentuk struktur amorf, hal ini akan memudahkan ion lithium untuk berpindah secara merata. Hasil pengujian TGA/DSC (*thermogravimetric analysis/differential scanning calorimetry*) menunjukkan elektrolit polimer padat akan mengalami kestabilan sampai pada temperatur 117 °C dengan kehilangan berat sebesar 25,1% dan nilai derajat kristalinitas adalah paling kecil. Penambahan SN 32% menunjukkan jendela tegangan stabilitas elektrokimia 2,2 volt cukup lebar dari hasil karakterisasi linier sweep voltammetry. Pengukuran konduktifitas ionik dilakukan menggunakan EIS (*electrochemical impedance spectroscopy*), hasilnya memperlihatkan nilai konduktifitas elektrolit polimer padat dengan penambahan SN 32% sebesar  $6,711 \times 10^{-8}$  S/cm, masih lebih kecil bila dibandingkan dengan kisaran nilai konduktifitas elektrolit cair. Optimasi jumlah penambahan SN pada elektrolit padat masih harus dilakukan untuk mencapai performa baterai yang lebih baik.

**Kata Kunci:** Elektrolit polimer padat, *succinonitrile*, LiBOB, baterai Li-ion

### Abstract

The goal of developing solid polymer electrolytes for liquid electrolyte replacement is to minimize leakage in the battery system. Solid polymer electrolyte performance is still being developed to have ion conductivity equivalent to liquid electrolyte performance. One attempt to boost the efficiency of solid polymer electrolytes by incorporating SN (*succinonitrile*). SN is a flexible matrix for transmitting lithium ions to solid polymer electrolytes; high polarity SN is expected to help extract lithium ions from LiBOB electrolyte salts. Increased ion mobility can result in high ion conductivity. The addition of SN solid polymer electrolytes was varied by combining slurry and solution casting methods. The FE-SEM (*field emission-scanning electron microscopy*) and XRD (*x-ray diffraction*) characterization of SN 32% addition showed pore holes and amorphous structure, making it easier for lithium ions to pass uniformly. TGA / DSC (*thermogravimetric analysis / differential calorimetric scanning*) test results show that solid polymer electrolytes undergo temperature stability of 117 °C with a weight loss of 25.1% and have the smallest degree of crystallinity. The addition of SN 32% showed that the 2.2-volt electrochemical stability windows were large enough to test linear sweep voltammetry. Ionic conductivity tests were performed using EIS (*electrochemical impedance spectroscopy*); the results showed the conductivity value of solid polymer electrolytes. The addition of SN 32% was  $6.711 \times 10^{-8}$  S/cm, still lower than the liquid electrolyte conductivity. Optimization of the amount of SN and solid electrolytes also needs to be done to increase battery efficiency.

**Keywords:** *Solid Polymer Electrolyte, Succinonitrile, LiBOB, Li-ion Battery*



## 1. PENDAHULUAN

Dua dekade terakhir menjadi saksi perkembangan teknologi yang pesat. Banyak gawai baru dihasilkan, dan kesibukan manusia menjadikan gawai portabel semakin dibutuhkan. Baterai sekunder yang dapat diisi ulang sangat menarik untuk diteliti dan dikembangkan karena densitas energinya tinggi dan siklus hidupnya panjang. Pada perkembangannya di awal tahun 1990-an, baterai sekunder menggunakan material NiMH dan NiCD untuk elektroda. Material ini memiliki *memory effect* yang menjadikan kapasitasnya lekas menurun [1]. Sekitar tahun 1990, Sony Corporation memperkenalkan baterai ion litium yang terbukti lebih stabil dan kapasitasnya lebih baik [2].

Baterai ion litium memiliki tiga komponen utama: elektroda (positif dan negatif), elektrolit, dan separator. Elektrolit bertugas sebagai penghantar ion litium antar elektroda, sedangkan separator berfungsi sebagai isolator untuk mencegah arus pendek. Baterai komersial yang dijual di pasaran menggunakan elektrolit cair berupa garam litium heksafluoropospat ( $\text{LiPF}_6$ ) yang dilarutkan dalam pelarut organik EC (etilen karbonat), EMC (etil metil karbonat), dan DMC (dimetil karbonat). Dalam pelarut ini,  $\text{LiPF}_6$  mudah terdegradasi menjadi  $\text{PF}_6^-$  dan bersifat merusak terhadap material elektroda terutama pada operasi di suhu tinggi [3]. Selain itu, pelarut-pelarut organik tersebut bersifat beracun dan dapat mencemari lingkungan jika baterai dibuang [4].

Elektrolit polimer padat kemudian dikembangkan sebagai solusi [5]-[6]. Bertindak sebagai separator sekaligus elektrolit, ia dapat menghantarkan ion litium sekaligus mengisolasi elektron sehingga tidak terjadi arus pendek. Kelemahannya adalah konduktivitas ionik yang relatif rendah jika dibandingkan dengan elektrolit cair di baterai ion litium konvensional. Kelemahan ini diperbaiki salah satunya dengan penambahan zat aditif ke dalam matriks polimer [7]-[9]. Zat aditif ini diharapkan dapat mengurangi kristalinitas sistem kompleks polimer sehingga mempermudah gerakan ion litium antar elektroda, dan dengan demikian dapat meningkatkan konduktivitas ioniknya.

Penelitian ini menggunakan *succinonitrile* (SN) sebagai zat aditif karena SN dapat menurunkan impedansi anoda dan memiliki stabilitas termal yang baik untuk berbagai material elektroda [10]-[11]. Kristalinitas membrane polimer padat berkurang pada penambahan SN hingga konsentrasi tertentu [12]-[13].

## 2. PROSEDUR PERCOBAAN

### 2.1 Bahan

Bahan yang digunakan dalam pembuatan EPP (elektrolit polimer padat) adalah PVdF-HFP (*poly(vinylidene fluoride-hexafluoropropylene)*) sebagai polimer, lithium bis(oxalato) borat (LiBOB) sebagai garam dan SN (*succinonitrile*) sebagai aditif. Semua bahan merupakan produk dari Sigma Aldrich. *N,N*-dimethylacetamide (DMAC) dari produk Merck digunakan sebagai pelarut karena mudah melarutkan semua bahan yang digunakan dalam eksperimen ini dengan baik.

Tabel 1. Komposisi sampel EPP (elektrolit polimer padat)

No	Kode Sampel EPP	Komposisi EPP		
		PVdF-HFP (% berat)	SN (% berat)	LiBOB (% berat)
1	(a)	80	0	20
3	(b)	48	32	20
4	(c)	40	40	20

### 2.2 Proses pembuatan EPP (elektrolit polimer padat)

EPP (elektrolit polimer padat) dibuat dengan metode *solution casting*. Tahap pertama dalam pembuatan EPP adalah membuat *slurry* (larutan kental) dengan melarutkan garam elektrolit LiBOB dan additive SN (*succinonitrile*) ke dalam pelarut DMAC melalui proses *mixing* hingga larut dengan variasi komposisi seperti pada Tabel 1. Proses *mixing* dilakukan diatas *hot plate* dengan bantuan *magnetic stirrer* pada temperatur 60-80 °C dengan kecepatan 240 rpm. Tahap berikutnya, larutan campuran tersebut ditambahkan PVdF-HFP sebagai matriks polimer dengan proses yang sama hingga terbentuk *slurry*. *Slurry* yang dihasilkan kemudian dicor pada substrat kaca, kemudian dibiarkan hingga mengering pada kondisi temperatur kamar.

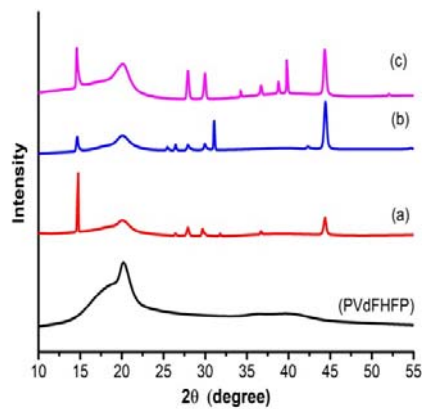
### 2.3 Karakterisasi EPP (elektrolit polimer padat)

Karakterisasi sampel EPP (elektrolit polimer padat) pada penelitian ini adalah pengujian konduktivitas menggunakan EIS (*electrochemical impedance spectroscopy*) dengan LCR meter HIOKI 3532150 *chemical impedance meter*. Struktur dan fasa EPP dikarakterisasi menggunakan XRD (*x-ray diffractometer*) Rigaku Smart Lab, dengan target  $\text{Cu K}\lambda$  ( $\lambda=1,5406\text{\AA}$ ) dengan rentang sudut  $2\theta = 0-55^\circ$ . Morfologi EPP diamati menggunakan FE-SEM (*field emission scanning electron microscopy*) dari JEOL model Jib4610f dengan

akselerasi voltase 10kV dan menggunakan perbesaran 500x. Kestabilan panas diamati dengan menggunakan TGA/DSC Linseis dengan laju pemanasan  $10\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$  pada temperatur 0 - 500  $^{\circ}\text{C}$ . Untuk mengetahui lebar jendela tegangan yang dimiliki, sampel tersebut diamati dengan LSV (*linear sweep voltammetry*) menggunakan alat WBCS3000 *automatic battery cyler*.

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

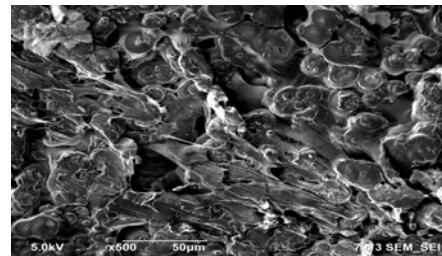
Pola difraksi sinar-x untuk EPP (elektrolit polimer padat) yang tersusun dari polimer PVdF-HFP/LiBOB dengan variasi penambahan SN (*succinonitrile*) diperlihatkan pada Gambar 1. Dari gambar terlihat pola difraksi PVdF-HFP murni memiliki puncak-puncak pada sudut  $2\theta$  sebesar 20,08 dan 38,02 pola difraksi seperti ini pada umumnya dimiliki oleh bahan yang berstruktur semikristalin yaitu campuran bagian kristal dan amorf [14]. Di dalam EPP, penurunan intensitas puncak difraksi sinar-x mengindikasikan terjadinya peningkatan sifat amorf [15].



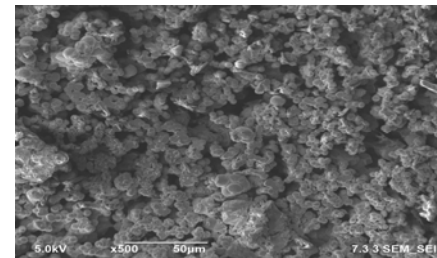
Gambar 1. Spektrum EPP hasil XRD yang mengandung PVdF-HFP/LiBOB dengan variasi penambahan aditif SN: (a) 0%, (b) 32% dan (c) 40% dan polimer PVdF HFP murni

Pada Gambar 1(a) terlihat bahwa penambahan garam LiBOB akan menyebabkan terjadi puncak-puncak difraksi pada sudut  $2\theta = 14,72; 20,14; 26,50; 28,39; 29,57; 31,69; 36,88$  dan  $44,36$  hal ini menunjukkan telah terjadi kompleksasi antara LiBOB dengan polimer PVdF-HFP. Penambahan SN sebesar 32% (sampel EPP (b)) menyebabkan terjadi perubahan intensitas puncak difraksi pada sudut  $2\theta = 14,72$  terjadi penurunan dan sebaliknya pada sudut  $2\theta = 44,36$  terjadi peningkatan seperti terlihat pada Gambar 1(b). Hal ini dapat dikatakan bahwa pada sampel EPP (b) telah terbentuk senyawa kompleks antara polimer PVdF HFP dengan garam litium serta aditif SN (*succinonitrile*),

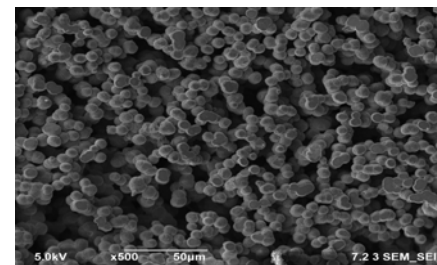
fenomena tersebut juga mengindikasikan telah terjadi peningkatan sifat amorf. Sedangkan pada penambahan SN sebesar 40% (sampel EPP (c)) akan terjadi peningkatan intensitas pada beberapa puncak difraksi serta munculnya puncak-puncak difraksi baru seperti terlihat pada gambar 1(c). Hal ini mengindikasikan bahwa peningkatan penambahan konsentrasi SN sebesar 40% akan menurunkan sifat amorf, sehingga dapat dikatakan bahwa sampel EPP (c) mempunyai sifat amorf yang lebih rendah dari pada sampel dengan penambahan SN sebesar 32% atau sampel EPP (b).



(b)



(b)



(b)

Gambar 2. FE-SEM sistem polimer PVdF-HFP/LiBOB dengan variasi penambahan aditif SN : (a) 0%, (b) 32% dan (c) 40%

Analisis FE-SEM bertujuan untuk mengetahui morfologi dari sampel EPP yang tersusun dari PVdF-HFP/LiBOB dan aditif SN sehingga dapat menunjukkan homogenitas suatu sistem polimer elektrolit padat. Pori yang terdapat pada sampel EPP berfungsi untuk transportasi pembawa muatan dalam elektrolit. Semakin berpori maka semakin baik distribusi ionnya. Struktur EPP pada Gambar 2(b)

menunjukkan bahwa pori tidak terlalu dalam atau tidak terlalu gelap, dan jumlah pori lebih banyak bila dibandingkan dengan sampel EPP pada Gambar 2(a). Pori yang terlihat seperti daerah gelap menunjukkan bahwa pori tersebut tidak terlalu dalam sehingga masih dapat difungsikan sebagai separator dan masih dapat terjadi peristiwa distribusi ion.

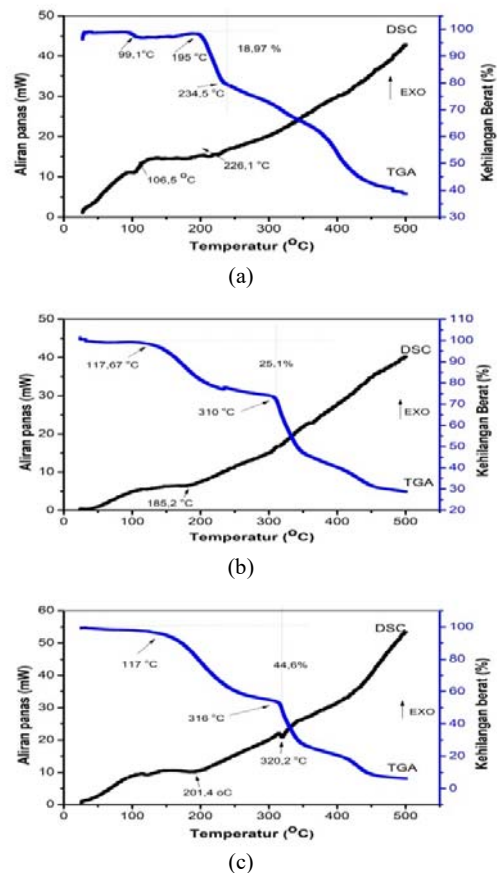
Adanya aditif SN dapat mempengaruhi bentuk morfologi EPP. Penambahan SN menyebabkan permukaan EPP menjadi berongga, dan membuat EPP menjadi terbuka sehingga membentuk pori. Keberadaan gugus polar nitril yang terdapat dalam SN akan memudahkan peleburan garam dalam campuran dan penetrasi SN antara rantai polimer, hal ini akan meningkatkan tersedianya volume untuk migrasi ion [16]. Penambahan aditif SN yang semakin banyak akan berpengaruh terhadap kerapatan pori, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2(c). Pada gambar yang berbentuk *spherical* tersebut pori terlihat terlalu dalam sehingga dapat menyebabkan EPP tidak dapat berfungsi dengan baik sebagai separator.

Morfologi seperti pada Gambar 2(c) ini mempunyai kemiripan dengan polimer elektrolit PVdF-HFP/SN dan garam BMPTFSI yang telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya, serta dengan bertambahnya jumlah SN yang ditambahkan menyebabkan ukuran pori membesar [13].

EPP yang tersusun dari polimer PVdF-HFP/LiBOB/SN mempunyai kestabilan panas hingga temperatur 195 °C, namun pada temperatur 99 °C terjadi penurunan berat sebesar 2,67%. Hal ini ditunjukkan dengan terjadinya perubahan kecil *base line* aliran panas pada kurva TGA-DSC (Gambar 3(a)). Pada sampel EPP (b) dan (c) masing-masing dengan penambahan SN sebesar 32% dan 40% mempunyai kestabilan panas hingga temperatur sekitar 117 °C. Pada Gambar 3 terlihat bahwa semua sampel EPP mengalami dekomposisi secara bertahap. Pada sampel EPP (a) terjadi penurunan berat dari temperatur 99-234 °C sebesar 12,23%, pada sampel (b) secara perlahan terjadi penurunan berat pada temperatur 117 °C hingga 310 °C sebesar 25,1%. Peningkatan penambahan SN akan meningkatkan jumlah penurunan berat hingga 44,6% seperti terlihat pada Gambar 3(c).

Menurut Saiki dan Kumar [17], polimer PVdF-HFP mempunyai titik leleh ( $T_m$ ) pada temperatur sekitar 144,8 °C. Penambahan garam LiBOB terhadap polimer PVdF HFP akan meningkatkan titik leleh ( $T_m$ ) hingga temperatur 172,1 °C [18]. Hal ini menunjukkan telah terjadi interaksi garam elektrolit di dalam sistem polimer. Adanya garam elektrolit pada

sistem polimer PVdF-HFP/LiBOB/SN menyebabkan puncak titik leleh PVdF-HFP maupun SN tidak nampak. Tidak nampaknya puncak leleh SN dan terbentuknya puncak titik leleh baru atau puncak fasa transisi mengindikasikan bahwa fasa transisi SN telah terjadi perubahan fasa dari *monoclinic* (beraturan) menjadi fasa amorf (tidak beraturan). Temperatur leleh ( $T_m$ ) SN adalah 49 °C [19], sehingga dengan penambahan aditif SN akan meningkatkan kelarutan garam LiBOB dengan harapan dapat meningkatkan konsentrasi LiBOB.



Gambar 3. Kurva TGA-DSC EPP yang mengandung polimer PVdF-HFP/LiBOB/SN dengan variasi penambahan aditif succinonitrile : (a) 0%, (b) 32% dan (c) 40%

Tabel 2. Titik leleh, entalpi leleh ( $\Delta H_m$ ) dan persentase relatif kristalinitas sistem PVDF-HFP/LiBOB/SN

Sampel EPP	$T_m$ (°C)	$\Delta H_m$ (J g <sup>-1</sup> )	$X_c$ (%)
(a)	226,1	-15,34	14,65
(b)	185,1	6,46	6,17
(c)	201,4	-10,475	10,01

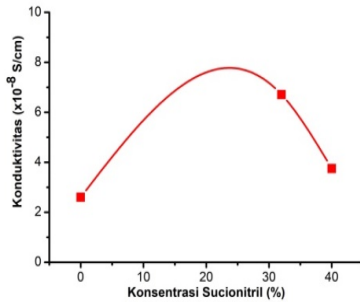
Tabel 2 menunjukkan titik leleh panas peleburan ( $\Delta H_m$ ) dan prosentase relatif kristal sistem PVDF-HFP/LiBOB/SN. Prosentase relatif kristal ( $X_c$ ) sampel EPP dari sistem polimer

PVDF-HFP/LiBOB/SN dapat dihitung dengan menggunakan persamaan (1).

$$X_c = \frac{\Delta H_m^{komplek}}{\Delta H_m} \times 100\% \dots\dots\dots(1)$$

Dimana  $\Delta H_m$  adalah panas peleburan standar untuk 100% kristal PVdF sebesar 104,7 J/g [18] dan  $\Delta H_m^{komplek}$  adalah panas peleburan sampel EPP. Tabel 2 memperlihatkan bahwa sampel (b) yang mengandung 32% SN mempunyai nilai persentase relatif kristal ( $X_c$ ) paling kecil.

Untuk mengetahui sifat elektrokimia telah dilakukan pengujian konduktivitas dan LSV (*linear sweep voltammetry*) pada EPP yang tersusun dari PVdF-HFP/LiBOB/SN dengan perbedaan jumlah konsentrasi SN.

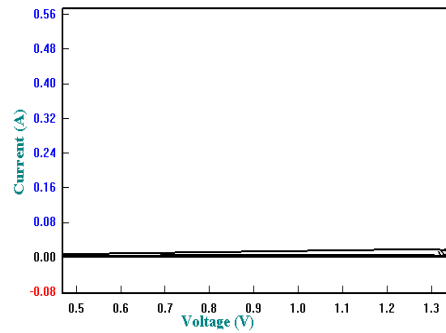


Gambar 4. Konduktivitas EPP yang mengandung PVdF-HFP/LiBOB/SN dengan variasi penambahan aditif succinonitrile : (a) 0 %, (b) 32 % dan (c) 40 %

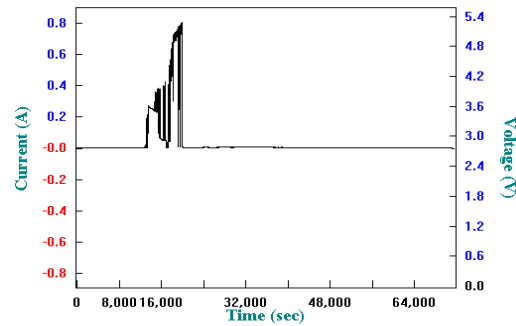
Pengujian konduktivitas dengan kondisi pengukuran pada temperatur ruang diperlihatkan seperti pada Gambar 4. Gambar 4 menunjukkan bahwa penambahan SN sebesar 32% berat sebagai sampel (b) mempunyai konduktivitas ion tertinggi dibandingkan dengan kedua EPP lainnya yaitu sebesar  $6,711 \times 10^{-8}$  S/cm. Menurut Li Zhen Fan [12], konduktivitas polimer yang mengandung 40% [PVdF-HFP/LiTFSI] - 60% SN adalah lebih tinggi dari  $1 \times 10^{-3}$  S/cm pada temperatur diatas 0 °C dan dengan penambahan 35% SN konduktivitas sebesar ini dapat dicapai pada temperatur 30 °C. Sedangkan penelitian yang telah dilakukan oleh X.L.Wu [20] polimer elektrolit PEO/LiBOB dengan penambahan SN hingga 25% berat menunjukkan konduktivitas bisa mencapai orde  $\sim 10^{-5}$  S/cm pada temperatur kamar dan tanpa penambahan SN, konduktivitas hanya mencapai orde  $10^{-7}$  S/cm.

Keberadaan gugus polar nitril pada SN akan mempermudah terjadi peleburan garam dalam campuran dan sebagai penetrasi antara rantai polimer sehingga akan meningkatkan tersedianya volume untuk migrasi ion [5].

Berdasarkan hasil analisa XRD menunjukkan bahwa sampel EPP (b) mempunyai struktur yang lebih amorf dibandingkan dengan ke dua EPP lainnya. Namun penambahan aditif SN yang semakin banyak hingga 40 %berat dapat mengakibatkan terjadi penggumpalan dan kerapatan pori sehingga dapat menyebabkan EPP tidak berfungsi dengan baik sebagai separator. Hal ini menyebabkan konduktivitas ion menurun karena migrasi ion terhambat.



(a)



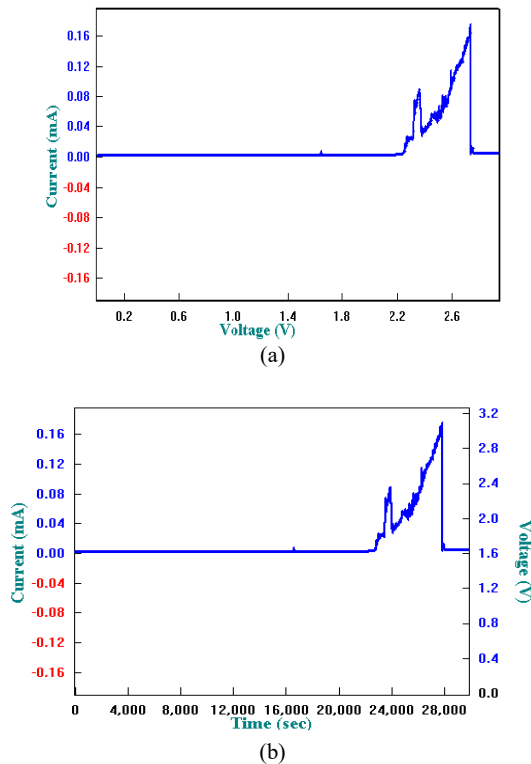
(b)

Gambar 5. Grafik LSV EPP yang mengandung PVdF-HFP/LiBOB/ tanpa SN, (a) *current vs voltage* dan (b) *current vs time*

Hasil pengujian LSV memberikan informasi mengenai perubahan arus dari variasi tegangan yang diberikan dengan menggunakan elektrolit polimer PVDF-HFP, LiBOB dan SN. Grafik LSV menampilkan performa elektrokimia pada saat proses pengisian (*charging*) dan pemakaian (*discharging*).

Gambar 5 menunjukkan performa sel baterai dengan polimer PVDF-HFP/LiBOB tanpa penambahan SN. Berdasarkan Gambar 5 terlihat bahwa sampel EPP mengalami kestabilan selama  $\pm 12.000$  detik ketika tegangan yang diberikan berada pada range 0 - 1,265 volt. Namun ketika diberikan tegangan sebesar 1,35 volt akan terjadi perubahan arus menjadi 0,2 A setelah 13000 detik. Ketidakstabilan tersebut menunjukkan kemampuan sel baterai dalam menerima

tegangan yang diberikan. Selain itu, ketidakstabilan dapat disebabkan karena masih terdapatnya pengotor-pengotor pada saat pembuatan elektrolit polimer padat.

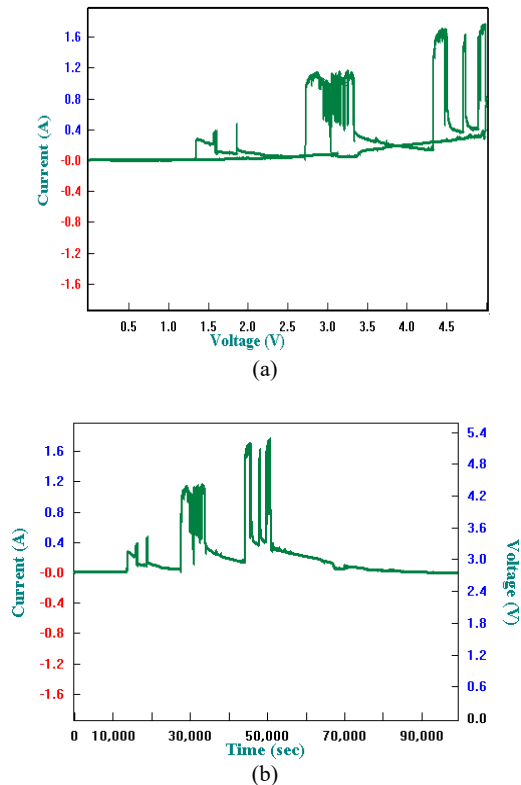


Gambar 6. Grafik EPP yang mengandung PVdF-HFP/LiBOB/SN dengan penambahan aditif SN; 32%, dimana (a) *current vs voltage*, dan (b) *current vs time*

Dari Gambar 6 terlihat bahwa kestabilan terjadi selama 23.000 detik dan reaksi elektrokimia terjadi lebih lambat dibandingkan dengan membran yang tidak ditambahkan SN. Grafik mengalami ketidakstabilan ketika sel diberikan tegangan sebesar 2,2 volt. Arus listrik mengalami peningkatan menjadi sekitar 0,02 A.

Hasil analisis menunjukkan bahwa performa sel baterai yang menggunakan elektrolit EPP dengan penambahan SN 32% berat atau disebut sebagai sampel EPP (b) lebih baik dibandingkan dengan sel yang menggunakan EPP tanpa penambahan SN. Hal ini dapat disebabkan oleh luas tegangan kerja dari elektroda tersebut. Secara teoritis, semakin luas tegangan kerja elektroda maka semakin besar kapasitas baterai, sehingga lebih banyak bahan aktif yang dapat menampung ion lithium dan elektron sehingga mampu menghasilkan energi listrik lebih besar [17],[21]. Peningkatan penambahan SN hingga 40% berat seperti pada sampel EPP (c) dapat mengakibatkan adanya penggumpalan dan menutup pori. Ketika reaksi elektrokimia berlangsung, efisiensi EPP sebagai separator menurun. Fungsi utama dari separator adalah

untuk memastikan terjadinya aliran ion dan mencegah terjadinya hubungan arus pendek di dalam sel baterai [22].



Gambar 7. Grafik LSF EPP yang mengandung PVdF-HFP/LiBOB/SN dengan penambahan aditif SN; 40 %, dimana (a) *current vs voltage*, dan (b) *current vs time*

#### 4. KESIMPULAN

Telah dilakukan penelitian tentang upaya peningkatan performa EPP (elektrolit polimer padat) dengan menambahkan aditif SN (*succinonitrile*) pada sistem PVdF HFP/LiBOB dengan metode *solution casting*.

Berdasarkan hasil analisa XRD (x-ray diffraction) dan FE-SEM (*field emission scanning electron microscopy*) menunjukkan bahwa EPP yang mengandung 32 % SN mempunyai sifat amorf yang lebih besar dibandingkan dengan EPP lain serta memperlihatkan adanya lubang pori yang memudahkan ion lithium untuk berpindah secara merata.

Penambahan SN akan menyebabkan kestabilan hingga temperatur 117 °C, namun penambahan yang berlebih hingga 40% SN akan menyebabkan kehilangan berat sampai 44,6%. Sedangkan penambahan 32% SN terjadi kehilangan berat hanya 25,1%, serta menunjukkan nilai derajat kristalinitas terkecil.

Hasil analisis sifat elektrokimia menunjukkan bahwa EPP yang mengandung 32%

SN mempunyai nilai konduktivitas terbesar yaitu  $6,711 \times 10^{-8}$  S/cm dan mempunyai jendela tegangan (tegangan kerja) stabilitas elektrokimia yang lebih lebar yaitu 2,2 V dibandingkan dengan kedua EPP lainnya.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih disampaikan kepada Pusat Penelitian Fisika LIPI dan Kementrian Riset dan Teknologi dan Pendidikan Tinggi melalui program kegiatan Insinas 2019 “Ekstraksi Litium sebagai Bahan Baku Baterai Litium” atas fasilitas dan dukungan hingga terlaksananya penelitian ini. Kontributor utama dalam penulisan makalah ilmiah ini adalah Titik Lestariningsih.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] R. Gonçalves, D. Miranda, A. M. Almaeda, dan M. M. Silva., “Solid polymer electrolytes based on lithium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide/poly(vinylidene fluoride-co-hexafluoropropylene) for safer rechargeable lithium-ion batteries,” *Sustain. Mater. Technol.*, vol. 21, 2019.
- [2] M. X. Y. M. Lizhen Long, dan S. Wang, “Polymer electrolytes for lithium polymer batteries,” *J. Mater. Chem. A*, vol. 4, no. 26, pp. 10038–10039, 2016.
- [3] N. P. W. Pieczonka, L. Yang, M. P. Balogh, B. R. Powel, K. Chemelewski, A. Manthiram, dan S. A. Krachovskiy, “Impact of lithium bis(oxalate)borate electrolyte additive on the performance of high-voltage spinel/graphite Li-ion batteries,” *J. Phys. Chem. C*, vol. 117, no. 44, pp. 22603–22612, 2013.
- [4] K. Xu, S. Zhang dan T. R. Jow, “LiBOB as additive in LiPF<sub>6</sub>-based lithium ion electrolytes,” *Electrochem. Solid-State Lett.*, vol. 8, no. 7, pp. 1–5, 2005.
- [5] D. E. Fenton, J. M. Parker, dan P. V. Wright, “Complexes of alkali metal ions with poly(ethylene oxide),” *Polymer (Guildf.)*, vol. 14, no. 11, p. 589, 1973.
- [6] P. V. Wright, “Electrical conductivity in ionic complexes of poly(ethylene oxide),” *Br. Polym. J.*, vol. 7, no. 5, pp. 319–327, 1975.
- [7] G. Hirankumar dan N. Mehta, “Effect of incorporation of different plasticizers on structural and ion transport properties of PVA-LiClO<sub>4</sub> based electrolytes,” *Heliyon*, vol. 4, no. 12, 2018.
- [8] G.-Y. Kim, R. Petibon, dan J. R. Dahn, “Effects of succinonitrile (SN) as an electrolyte additive on the impedance of LiCoO<sub>2</sub>/graphite pouch cells during cycling,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 161, no. 4, pp. A506–A512, 2014.
- [9] M. R. Johan, O. H. Shy, S. Ibrahim, S. M. Mohd Yassin, dan T. Y. Hui, “Effects of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanofiller and EC plasticizer on the ionic conductivity enhancement of solid PEO-LiCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub> solid polymer electrolyte,” *Solid State Ionics*, vol. 196, no. 1, pp. 41–47, 2011.
- [10] A. Abouimrane dan I. J. Davidson, “Solid electrolyte based on succinonitrile and LiBOB,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 154, no. 11, p. A1031, 2007.
- [11] R. C. R. Chen, F. Liu, Y. Chen, Y. Ye, Y. Huang, dan F. Wu, L. Li., “An investigation of functionalized electrolyte using succinonitrile additive for high voltage lithium-ion batteries,” *J. Power Sources*, vol. 306, pp. 70–77, 2016.
- [12] L. Z. Fan, Y. S. Hu, A. J. Bhattacharyya, dan J. Maier, “Succinonitrile as a versatile additive for polymer electrolytes,” *Adv. Funct. Mater.*, vol. 17, no. 15, pp. 2800–2807, 2007.
- [13] M. Suleman, Y. Kumar, dan S. A. Hashmi, “Structural and electrochemical properties of succinonitrile-based gel polymer electrolytes: Role of ionic liquid addition,” *J. Phys. Chem. B*, vol. 117, no. 24, pp. 7436–7443, 2013.
- [14] S. K. Tripathi, A. Gupta, dan M. Kumari, “Studies on electrical conductivity and dielectric behaviour of PVdF-HFP-PMMA-NaI polymer blend electrolyte,” *Bull. Mater. Sci.*, vol. 35, no. 6, pp. 969–975, 2012.
- [15] N. K. Jyothi, K. K. Venkataratnam, P. N. Murty, dan K. V. Kumar, “Preparation and characterization of PAN-KI complexed gel polymer electrolytes for solid-state battery applications,” *Bull. Mater. Sci.*, vol. 39, no. 4, pp. 1047–1055, 2016.
- [16] P. J. Alarco, Y. Abu-Lebdeh, A. Abouimrane, dan M. Armand, “The plastic-crystalline phase of succinonitrile as a universal matrix for solid-state ionic conductors,” *Nat. Mater.*, vol. 3, no. 7, pp. 476–481, 2004.
- [17] P. Lv, Y. Li, Y. Wu, G. Liu, H. Liu, S. Li, C. Tang, J. Mei, dan Y. Li, “Robust succinonitrile-based gel polymer electrolyte for lithium-ion batteries withstanding mechanical folding and high temperature,” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 10, no. 30, pp. 25384–25392, 2018.
- [18] S. Ibrahim and N. S. Mohamed, “Thermal and Electrical Properties of PVDF-HFP-

- LiCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub> Nanocomposite Solid Polymer Electrolytes,” *Adv. Mater. Res.*, vol. 129–131, pp. 526–530, 2010.
- [19] T. Lestariningsih, Q. Sabrina, C. R. Ratri, and I. Nuroniah, “Structure, thermal and electrical properties of PVDF-HFP/LiBOB solid polymer electrolyte,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1191, no. 1, 2019.
- [20] H. Zeng, X. Jia, F. Tsaia, Q. Zhanga, T. Jianga, R. K.Y. Li, H. Shic, S. Luan and D. Shi, “Enhanced cycling performance for all-solid-state lithium ion battery with LiFePO<sub>4</sub> composite cathode encapsulated by poly (ethylene glycol) (PEG) based polymer electrolyte,” *Solid State Ionics*, vol. 320, no. February, pp. 92–99, 2018.
- [21] A. Satriady, W. Alamsyah, A. H. I. Saad, and S. Hidayat, “Pengaruh Luas Elektroda Terhadap Karakteristik Baterai LiFePO<sub>4</sub>,” *J. Mater. dan Energi Indonesia*, vol. 06, no. 02, pp. 43–48, 2016.
- [22] A. Moretti, G. Giuli, F. Nobili, A. Trapananti, G. Aquilanti, R. Tossici, and R. Marassia, “Structural and Electrochemical Characterization of Vanadium-Doped LiFePO<sub>4</sub> Cathodes for Lithium-Ion Batteries,” *J. Electrochem. Soc.*, vol. 160, no. 6, pp. A940–A949, 2013.



## SINTESIS $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ DARI SERBUK BOEHMITE MENGGUNAKAN TEKNIK SPARK PLASMA SINTERING (SPS): STUDI TRANSFORMASI FASA, MIKROSTRUKTUR, DENSITAS, DAN KEKERASAN

Diastati Puspita Ning Ayu<sup>a</sup>, Bambang Hermanto<sup>b</sup>, Arif Tjahjono<sup>a</sup>, Toto Sudiro<sup>b,\*</sup>

<sup>a</sup>Program Studi Fisika, Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta  
Jl. Ir. H. Juanda No. 95, Cempaka Putih, Indonesia 15412

<sup>b</sup>Pusat 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  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  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  $\chi$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , dan  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Dengan meningkatnya temperatur *sintering*, keramik alumina dengan struktur alpha ( $\alpha$ ) mulai terbentuk pada temperatur 1100 °C. Boehmite bertransformasi secara sempurna menjadi  $\alpha$ -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/cm<sup>3</sup> dan 1059,86  $\pm$  2,72 VHN.

**Kata Kunci:** Boehmite,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , *spark plasma sintering*,  $\chi$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$

### 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  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  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  $\chi$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . With the rise in sintering temperature, the aluminum ceramic alpha structure was formed at 1100 °C. The boehmite was completely converted into  $\alpha$ -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/cm<sup>3</sup> and 1059.86  $\pm$  2.72 HVN at 1300 °C.*

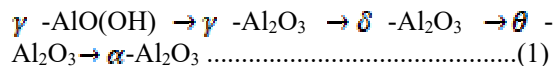
**Keywords:** Boehmite,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , *spark plasma sintering*,  $\chi$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$



## 1. PENDAHULUAN

Alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 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  $\alpha$ ,  $\chi$ ,  $\eta$ ,  $\delta$ ,  $\kappa$ ,  $\theta$ ,  $\nu$ ,  $\rho$  [4]. Fasa alpha ( $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 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 ( $\gamma$ - $\text{AlO}(\text{OH})$ ) 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 ( $\gamma$ -,  $\delta$ -,  $\theta$ -) dan bertransformasi lebih lanjut menjadi fasa alpha-alumina ( $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) yang stabil. Proses transformasi ini terjadi karena adanya pemberian panas. Boehmite akan mulai bertransformasi menjadi  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  pada kisaran temperatur 500-550 °C ditandai dengan proses penguapan air [2]. Transformasi  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  menjadi  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  terjadi pada kisaran temperatur di bawah 900 °C, sedangkan transformasi dari  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  menjadi  $\theta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  terjadi pada temperatur di bawah 1100 °C dan transformasi dari  $\theta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  menjadi  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  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  $\text{Al}_2\text{O}_3$  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  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  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,  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 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  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> adalah produksi Taimei Chemical Co. Ltd, Japan dengan ukuran butir sebesar 0,1  $\mu$ 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- $\alpha$  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:

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

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

$$\rho = \left[ \frac{\sqrt{12} \varepsilon}{D d} \right] \dots\dots\dots(4)$$

Keterangan:

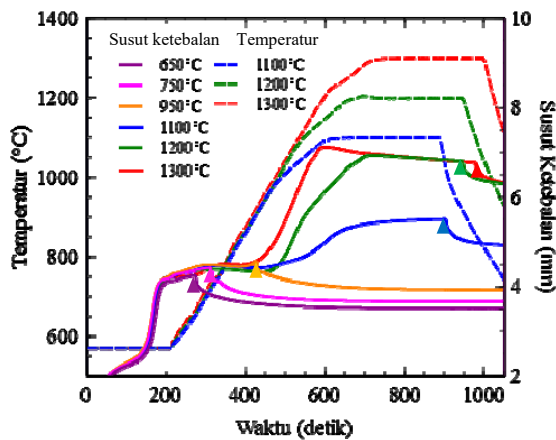
- D: Ukuran kristalit (nm)
- $\lambda$ : Panjang gelombang (Å)
- B: FWHM (deg)
- $\theta$ : Sudut (deg)
- $\varepsilon$ : Regangan kisi (%)
- $\rho$ : Kerapatan dislokasi (line/nm<sup>2</sup>)
- d: *d-spacing* (Å)

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 pemadatan, sehingga ketebalan sampel akan mengalami perubahan. Gambar 1 merupakan kurva laku sinter yang menunjukkan perubahan ketebalan sampel sebagai fungsi waktu dan temperatur.



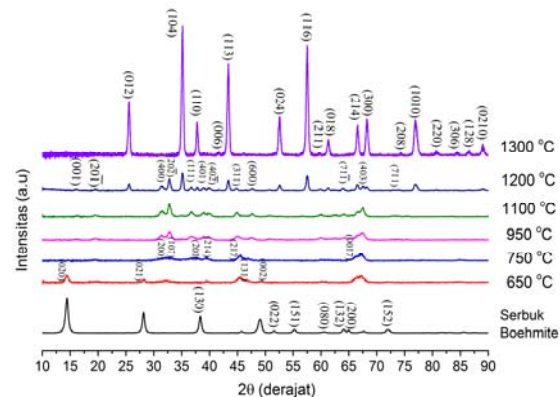
Gambar 1. Kurva laku sinter boehmite pada temperatur 650-1300 °C dengan menggunakan teknik *spark plasma sintering*

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  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan struktur kristal  $\chi$ - adalah kubik,  $\gamma$ - dan  $\delta$ - adalah tetragonal. Perbedaan struktur tetragonal pada  $\gamma$ -

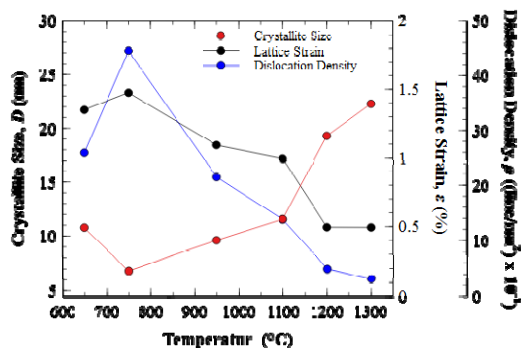
dan  $\delta$ - terletak pada *cell parameter* dari keduanya [23].

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  $\theta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada sudut 67,3° yang disebabkan oleh transformasi lebih lanjut dari  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Dengan meningkatnya temperatur, pada 950 °C struktur kristal yang dominan terbentuk adalah  $\theta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Pada temperatur 1100 °C, struktur kristal yang terbentuk hampir sama dengan temperatur 950 °C. Tetapi pada temperatur 1100 °C teridentifikasi struktur kristal baru yaitu  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [5] pada sudut 35,2° dengan puncak difraksi yang relatif rendah. Pada temperatur yang lebih tinggi 1200 °C, struktur kristal yang mendominasi adalah rhombohedral  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan beberapa puncak difraksi  $\theta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Sedangkan pada temperatur 1300 °C, boehmite dan fasa transisi alumina telah bertransformasi secara sempurna menjadi  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. 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/nm<sup>2</sup>)×10<sup>-1</sup>. 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)
	Monoklinik	(403)
750	Kubik	(200)
	Tetragonal ( $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	(107)
650	Tetragonal ( $\delta$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	(201), (214), (217), (0017)
	Kubik	(200)
650	Tetragonal (Gamma alumina)	(107)
	Tetragonal (Delta alumina)	(201), (214), (217), (0017)
650	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 mikrofografi 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,

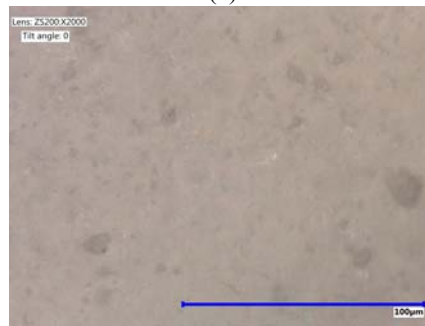
namun ada juga bagian yang belum terpolish. Bagian yang belum terpoles inilah diyakini merupakan bagian berbentuk kebulatan dan berwarna gelap.



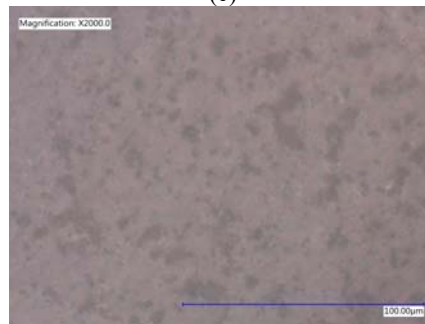
(a)



(b)



(c)



(d)

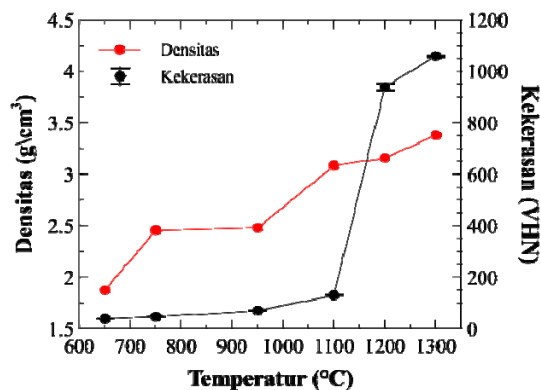
Gambar 4. Hasil karakterisasi dengan OM boehmite yang disinter pada temperatur (°C); a) 650, (b) 750, (c) 1200, dan (d) 1300

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/cm<sup>3</sup> pada temperatur 1300 °C. Pada temperatur 650 °C diperoleh nilai densitas terendah yaitu 1,87 gr/cm<sup>3</sup>. 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/cm<sup>3</sup>.

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  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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  $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dan  $\delta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Keramik alumina dengan struktur alpha ( $\alpha$ ) mulai terbentuk pada temperatur 1100 °C. Namun pada temperatur ini, masih terbentuk fasa transisi alumina yang lain seperti  $\theta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Pada temperatur *sintering* yang lebih tinggi yaitu 1300 °C, fasa-fasa transisi tersebut telah bertransformasi seluruhnya menjadi  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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/cm<sup>3</sup> 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  $\alpha$ -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  $\gamma$ -alumina to  $\alpha$ -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  $\alpha$ -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](http://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<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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. Rahimpour, dan A. R. Firouzbakht, “Production of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–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<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–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<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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](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<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 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.





## PENGARUH ANNEALING TERHADAP KEKERASAN DAN STRUKTUR MIKRO BAJA TAHAN KARAT AISI 410-3Mo-3Ni

Vinda Puspasari<sup>\*a</sup>, Mukhlis Agung Prasetyo<sup>a</sup>, Januarius Velix Ta'an Hala<sup>b</sup>, Mochammad Syaiful Anwar<sup>a</sup>, Satrio Herbirowo<sup>a</sup>, Efendi Mabruuri<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material-LIPI

Gedung 470, Kawasan Puspiptek Serpong, Indonesia 15310

<sup>b</sup>Sekolah Tinggi Teknik-PLN

Jl. Lkr. Luar Barat, RT.1/ RW.1, Duri Kosambi, DKI Jakarta

\*E-mail: vindapuspa13@gmail.com

Masuk Tanggal :07-07-2020, revisi tanggal:21-09-2020, diterima untuk diterbitkan tanggal : 21-10-2020

### Abstrak

Baja tahan karat AISI 410 merupakan baja martensitik yang penggunaannya sangat terbatas jika dibandingkan dengan baja tahan karat austenitik dan feritik. Baja martensitik memiliki peranan penting untuk komponen tertentu dikarenakan kombinasi kekuatan, ketangguhan dan ketahanan korosi yang sangat baik. Namun, setelah proses tempa, baja martensitik cenderung mengalami penurunan sifat mekanik dan struktur mikro. Pada penelitian ini, sifat mekanik dan mikrostruktur dari material baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni hasil tempa setelah mendapat perlakuan panas *annealing* akan dipelajari. *Annealing* bertujuan untuk menurunkan kekerasan material dan meningkatkan kehalusan butir dari material. Perlakuan panas *annealing* dilakukan dengan variasi temperatur dan waktu *annealing*. Variasi temperatur *annealing* yaitu 700, 760, 800, 850, dan 900 °C. Variasi waktu *annealing* yaitu 3 jam dan 6 jam. Pengaruh waktu dan temperatur *annealing* akan dipelajari terhadap kekerasan yang dianalisis secara statistik dan struktur mikro material baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni. Kekerasan yang paling optimum adalah baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni dengan perlakuan panas *annealing* pada  $T = 760$  °C selama 6 jam yaitu 35,9 HRC. Mikrostruktur yang dihasilkan oleh material AISI 410 yang telah mengalami perlakuan panas *annealing* secara umum yaitu fasa delta ferit, martensit, austenit, dan karbida yang dapat mempengaruhi sifat mekanik.

**Kata Kunci:** Baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni, *annealing*, delta ferit, martensit, austenit, karbida

### Abstract

*AISI 410-3Mo-3Ni stainless steel is martensitic steel, which is limited in use compared to austenitic and ferritic stainless steel. Martensitic steel plays an important role in specific components due to the combination of hardness, strength, and excellent corrosion resistance. However, after the forging process, martensitic steel appears to decrease in mechanical properties and microstructure. In this study, the mechanical properties and microstructure of the AISI 410 forged after annealing heat treatment will be studied. Annealing helps to minimize material hardness and improve material refinement of grain. The annealing heat treatment is done by adjusting the annealing temperature and time. The temperature ranges are 700, 760, 800, 850, and 900 °C. The annealing time variation is 3 hours and 6 hours. The effect of the annealing time and temperature on the AISI 410 modified material's hardness and microstructure will be studied. The optimum hardness is 35.9 HRC in AISI 410 material with annealing treatment at 760 °C for 6 hours. The microstructure on that condition showed the delta ferrite, martensite, austenite, and carbide affected the material hardness after annealing.*

**Keywords:** AISI 410 stainless steel, *annealing*, delta ferrite, martensite, austenite, carbide.

# 1. PENDAHULUAN

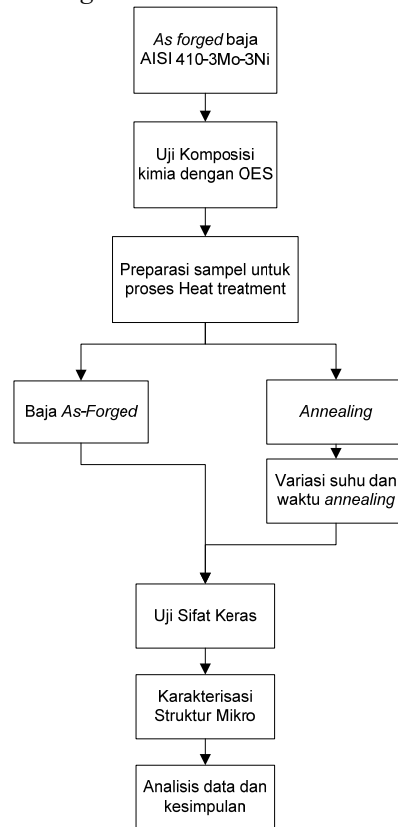
Baja austenik dan baja feritik merupakan contoh baja yang aplikasinya sangat luas dalam industri dan kehidupan sehari-hari dibanding baja martensitik [1]. Baja martensitik dengan kandungan unsur Cr 12-17% massa dan kadar karbon 0,15-1% massa memiliki aplikasi kompetitif dalam industri dikarenakan memiliki kombinasi kekuatan, ketangguhan dan ketahanan korosi yang baik [2]. Baja martensitik dengan kadar karbon yang tinggi sangat rentan mengalami retak saat dilakukan pengelasan maupun proses pembentukan lainnya [3]. BTK (baja tahan karat) martensitik AISI 410 banyak digunakan untuk komponen *blade* pada aplikasi sistem turbin uap [4].

Kegagalan yang umum terjadi pada komponen ini dikarenakan retakan yang terjadi akibat interaksi antara tegangan yang tinggi dan lingkungan korosif pada sistem turbin [5]. Oleh karena itu, modifikasi unsur kimia dan perubahan struktur mikro baja melalui perlakuan panas diharapkan dapat meminimalisir kegagalan material BTK AISI 410 pada aplikasi *turbine blade* [6]. Modifikasi unsur kimia pada baja martensitik AISI 410 menjadi AISI 410-3Mo-3Ni dilakukan dengan penambahan unsur Ni dan Mo yang bertujuan untuk meningkatkan keuletan material, meningkatkan kekuatan tarik, meningkatkan ketahanan korosi *pitting* dibandingkan dengan material BTK AISI 410 pada umumnya [7].

Perlakuan panas yang biasa dilakukan pada baja martensitik yaitu *austenizing*, *annealing*, *tempering*, dan *quenching* [8]. Proses manufaktur pada material AISI 410 untuk komponen sudu turbin (*turbine blade*) umumnya melibatkan proses tempa yang dapat menurunkan sifat mekanik dan struktur mikronya sehingga mudah mengalami aus pada aplikasi sudu turbin. Oleh karena itu, pentingnya memilih proses perlakuan panas untuk mendapatkan sifat mekanik yang optimal [9].

*Annealing* merupakan perlakuan panas yang cocok untuk menurunkan kekerasan material dan membuat butir bebas dari tegangan sisa pada baja martensitik AISI 410-3Mo-3Ni sehingga dapat meminimalisir kemungkinan aus saat proses penggunaan komponen sudu turbin [10]. *Annealing* dilakukan dengan memanaskan material pada temperatur tertentu kemudian didinginkan di dalam tungku [11]. Selain itu hal penting dalam proses *annealing* adalah parameter *annealing* yang bergantung pada komposisi kimia [12]. Ketika komposisi kimia telah berubah, proses *annealing* harus disesuaikan dengan perubahan komposisi kimia [13].

Penelitian ini bertujuan untuk mencari optimasi sifat mekanik melalui perolehan nilai kekerasan dan morfologi struktur pada BTK AISI 410-3Ni-3Mo dengan perlakuan panas *annealing*.



Gambar 1. Diagram alir proses *annealing* pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni

# 2. PROSEDUR PERCOBAAN

Penelitian ini menggunakan BTK (baja tahan karat) AISI 410-3Ni-3Mo hasil proses tempa. BTK AISI 410 terlebih dahulu dikarakterisasi unsur kimianya menggunakan OES (*optical emission spectroscopy*). Setelah itu, dilakukan pemotongan BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan ukuran 2 cm x 2 cm untuk kemudian dilakukan perlakuan panas *annealing* dengan variasi temperatur dan waktu yang digunakan (Gambar 1).

Tabel 1. Variasi temperatur dan waktu *annealing* pada BTK AISI 410-3Ni-3Mo

Nama Sampel	Variasi T dan waktu <i>annealing</i>
A700 3	700°C – 3 jam
A700 6	700°C – 6 jam
A760 3	760°C – 3 jam
A760 6	760°C – 6 jam
A800 3	800°C – 3 jam
A800 6	800°C – 6 jam

Variasi temperatur dan waktu annealing BTK AISI 410-3Ni-3Mo yang digunakan dalam penelitian ini dapat dilihat pada Tabel 1.

BTK AISI 410-3Ni-3Mo hasil tempa (*as-forged*) juga dilakukan karakterisasi sebagai material pembanding. BTK AISI 410-3Mo-3Ni hasil proses *annealing* kemudian diuji keras dengan menggunakan metode *Rockwell* tipe C pada 5 titik, lalu dilakukan analisis secara kuantitatif menggunakan metode ANOVA untuk mengetahui pengaruh variabel yang sangat signifikan terhadap sifat mekanik. Uji normalitas dilakukan terhadap data primer nilai kekerasan sebanyak 5 titik pengujian pada tiap sampel menggunakan metode Kolmogorov-Smirnov dan metode Shapiro-Walk [14]-[15].

Pengujian kekerasan bertujuan untuk mengetahui pengaruh perlakuan panas *annealing* terhadap kekerasan yang dihasilkan. Pengamatan struktur mikro dilakukan pada material BTK AISI 410-3Mo-3Ni hasil *annealing* dengan menggunakan mikroskop optik. Spesimen diampelas dengan kertas ampelas grid 600, 800, 1000 dan 1200, kemudian dipoles dengan pasta alumina 5µm hingga 0,1µm sampai permukaan mengkilap. BTK AISI 410-3Mo-3Ni kemudian dietsa dengan menggunakan etsa *Kalling reagent* (5 gr CuCl<sub>2</sub>, 100 mL HCl, dan 100 mL etanol).

Pengukuran butir dilakukan menggunakan *software ImageJ* dengan metode *line intercept*. Pengukuran butir dilakukan pada struktur mikro matriks BTK AISI 410-3Mo-3Ni yang diambil menggunakan mikroskop optik. Perhitungan dilakukan sebanyak 3 kali perhitungan dan diambil nilai rata-rata. Rumus yang digunakan untuk pengukuran ukuran butir yaitu [16]:

$$\text{Ukuran butir rata-rata} = \frac{\text{panjang garis}}{\text{jumlah butir}}$$

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 3.1 Pengujian Komposisi Kimia

Tabel 2 menunjukkan komposisi kimia BTK (baja tahan karat) AISI 410-3Ni-3Mo hasil uji OES (*optical emission spectroscopy*).

Tabel 2. Komposisi unsur BTK AISI 410-3Mo-3Ni hasil tempa

Unsur	%Massa	Unsur	%Massa
C	0,03	Cr	12,8
S	0,012	Mo	0,002
P	0,0162	Ni	0,155
Si	0,68	Fe	Balance
Mn	0,34		

BTK ini memiliki kadar karbon yang rendah yaitu 0,03% serta paduan yang tinggi karena mengandung lebih dari 10% unsur paduan yang meliputi unsur paduan utama yaitu Cr, Mn, dan

Ni. Adanya unsur Cr sebesar 12,8% dan Ni sebesar 0,155% dapat meningkatkan ketahanan korosi BTK AISI 410-3Mo-3Ni.

#### 3.2 Hasil Uji Keras

Pengujian kekerasan dilakukan untuk mengetahui pengaruh *annealing* terhadap kekerasan baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni.

Tabel 3. Uji normalitas hasil uji keras pada setiap variabel dengan metode Kolmogorov-Smirnov

Kolmogorov-Smirnov				
	Perlakuan	Statistik	df	Sig.
Kekerasan	A700 3	0,214	5	0,200*
	A700 6	0,227	5	0,200*
	A760 3	0,179	5	0,200*
	A760 6	0,221	5	0,200*
	A800 3	0,136	5	0,200*
	A800 6	0,238	5	0,200*

Note: \*. This is a lower bound of the true significance  
a. Lilliefors Significance Correction

Tabel 3 menunjukkan hasil uji normalitas pada nilai kekerasan pada setiap variabel dengan 5 titik pengujian menggunakan metode Kolmogorov-Smirnov [14]-[15].

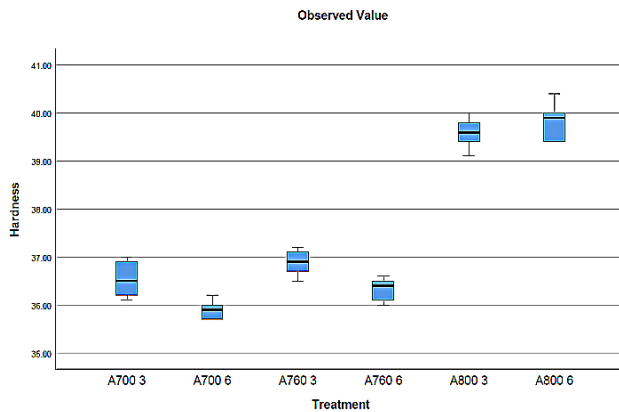
Tabel 4. Uji normalitas hasil uji keras pada setiap variabel dengan metode Shapiro-Wilk

Shapiro-Wilk				
	Perlakuan	Statistik	df	Sig.
Kekerasan	A700 3	0,903	5	0,424
	A700 6	0,910	5	0,468
	A760 3	0,962	5	0,823
	A760 6	0,915	5	0,501
	A800 3	0,989	5	0,976
	A800 6	0,900	5	0,410

Note: \*. This is a lower bound of the true significance  
b. Lilliefors Significance Correction

Tabel 4 menunjukkan hasil uji normalitas pada nilai kekerasan pada setiap variabel dengan 5 titik pengujian menggunakan metode Shapiro-Wilk. Data uji normalitas dari data primer nilai kekerasan menggunakan metode Kolmogorov-Smirnov dan Shapiro-Wilk [14]-[15] menunjukkan bahwa nilai signifikansi keseluruhan lebih besar dari 0,05 sigma maka

dapat dikatakan data hasil uji kekerasan terdistribusi normal.



Gambar 2. Grafik kekerasan permukaan BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan variasi temperatur dan waktu *annealing*

Gambar 2 menunjukkan nilai kekerasan tertinggi dicapai oleh BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan kode A800 6 yaitu sebesar 40,4 HRC. Semakin rendah temperatur *annealing*, material semakin ulet yang terlihat dari grafik kekerasan yang semakin menurun. Kekerasan paling rendah didapatkan pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan kode A700 6 yaitu sebesar 35,9 HRC. Kekerasan ini sudah optimal jika dibanding kekerasan BTK AISI 410-3Mo-3Ni *as-forged* yang memiliki nilai 51,56 HRC. *Annealing* dilakukan untuk mendapatkan nilai kekerasan material yang optimal sesuai standar baja konstruksi karena dengan kekerasan yang menurun, maka sifat keuletan akan meningkat seiring dengan transformasi strukturnya [17].

Sebelum melakukan analisis *one-way* ANOVA, susunan hipotesa untuk model ini yaitu:

- Hipotesa awal (H0) = ditetapkan faktor berpengaruh signifikan terhadap kekerasan
- Hipotesis alternatif (H1) = ditetapkan penolakan terhadap H0
- H0 ditolak jika  $P > \alpha$  atau apabila nilai F melebihi nilai  $F_{\alpha, df-num, df-den}$

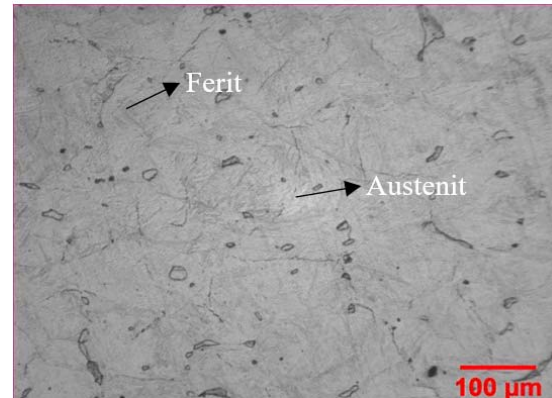
Tabel 4. Analisis kuantitatif *one-way* ANOVA dari hasil uji kekerasan pada setiap variabel

Kekerasan	Jumlah	df	Rata-rata	F	Sig.
Antar grup	74,835	5	14,967	135,857	0,00001
Dalam grup	2,644	24	0,110		
Total	77,479	29			

Dari hasil analisis data kekerasan menggunakan *one-way* ANOVA dapat dilihat bahwa nilai  $Sig < \alpha$  (0,05) yang berarti membuktikan hipotesis awal (H0) dapat diterima. Dengan demikian variabel perlakuan panas mencakup temperatur dan waktu *annealing* berpengaruh secara signifikan terhadap kekerasan BTK AISI 410-3Mo-3Ni.

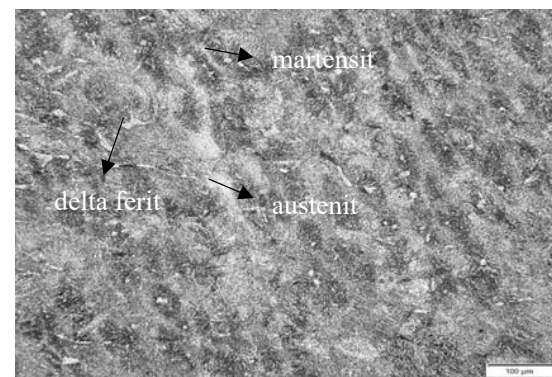
### 3.3 Analisis Struktur Mikro

Struktur mikro yang dihasilkan setelah proses *annealing* dapat mempengaruhi sifat mekanik BTK AISI 410-3Ni-3Mo.



Gambar 3. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni hasil tempa (*as-forged*). Etsa *Kalling reagent*

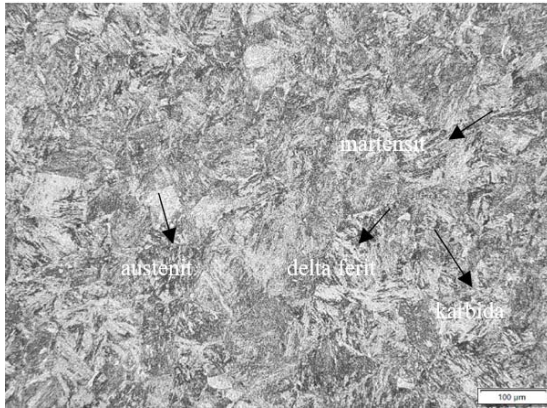
Gambar 3 menunjukkan struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni hasil tempa tanpa perlakuan *annealing* dengan fasa yang terbentuk adalah fasa ferit dan fasa austenit.



Gambar 4. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada  $T=700$  °C selama 3 jam. Etsa *Kalling reagent*

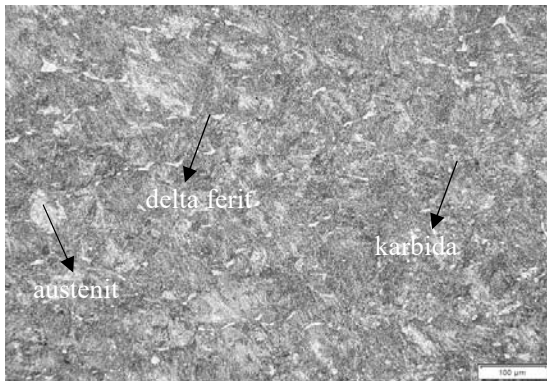
Secara umum fasa BTK AISI 410-3Mo-3Ni yaitu delta ferit, austenit, martensit, dan karbida [18]. Gambar 4 menunjukkan fasa delta ferit yang berbentuk seperti pulau kecil berwarna putih yang tersebar merata hampir di seluruh area dengan luas area rata-rata yaitu  $161 \mu m^2$ . Fasa karbida ditunjukkan oleh titik berwarna hitam, dan fasa *fine martensite* yang terlihat seperti jarum berwarna hitam. Karbida  $Cr_{23}C_6$  terjadi

karena proses *solution-annealed* pada temperatur 500-900 °C [19].



Gambar 5. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada T=700 °C selama 6 jam. Etsa *Kalling reagent*

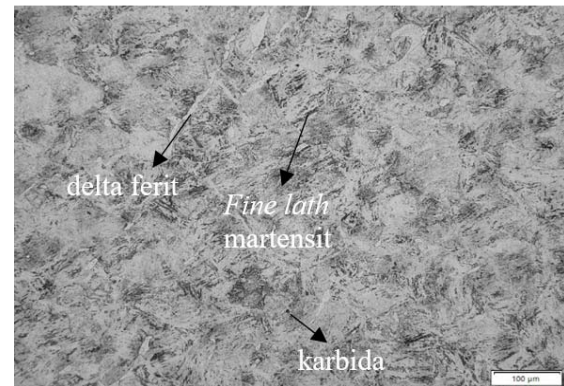
Gambar 5 menunjukkan butir matriks memiliki ukuran yang lebih besar dibanding Gambar 4 yaitu 42 µm (dapat dilihat pada Gambar 10). Fasa austenit terlihat lebih jelas dibanding Gambar 4. Fasa martensit terlihat lebih jelas berbentuk *lath* berwarna hitam. Adanya fasa delta ferit yang memiliki butir besar dengan luas area rata-rata yaitu 236,6 µm<sup>2</sup> mengakibatkan BTK AISI 410-3Mo-3Ni menurun kekerasannya [6].



Gambar 6. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada T=760°C selama 3 jam. Etsa *Kalling reagent*

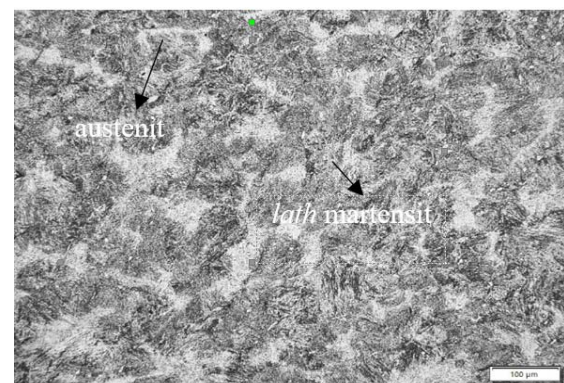
Gambar 6 menunjukkan fasa delta ferit yang terlihat lebih jelas namun lebih kecil dibandingkan fasa yang terbentuk pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni setelah *annealing* pada T = 700 °C, luas area rata-rata fasa delta ferit yaitu 138,7 µm<sup>2</sup> yang tersebar merata hampir di seluruh area. Fasa delta ferit dapat dilihat seperti pulau kecil yang berwarna terang membentuk struktur *spheroidal*. Fasa delta ferit memiliki sifat memicu nukleasi dan penggabungan *microvoid* dan dapat menimbulkan *fracture* pada material yang terekspos temperatur tinggi [20]. Oleh

karena itu, fasa delta ferit sangat dibatasi jumlahnya agar sifat mekanik dari material dapat dikontrol dengan baik [21].



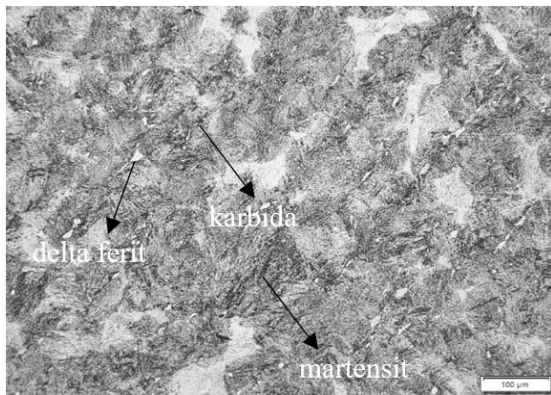
Gambar 7. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada 760 °C selama 6 jam. Etsa *Kalling reagent*

Martensit terlihat lebih jelas pada Gambar 7 berbentuk *fine lath martensite* serta fasa delta ferit yang terlihat berbentuk struktur *platelet* dan jumlahnya lebih sedikit dibanding Gambar 6. Hal ini dikarenakan berubahnya struktur *spheroidal* dari delta ferit menjadi struktur *platelet* dan jumlahnya semakin berkurang karena fasa ini menghilang dan larut seiring dengan waktu *holding annealing* yang meningkat [22]. Selain itu, peningkatan waktu *annealing* juga meningkatkan ukuran butir yang ditunjukkan pada Gambar 10. BTK AISI 410-3Mo-3Ni yang diproses *annealing* pada temperatur 760 °C selama 6 jam memiliki butir yang lebih besar dibanding BTK AISI 410-3Mo-3Ni yang diproses *annealing* pada temperatur 760 °C selama 3 jam.



Gambar 8. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada 800 °C selama 3 jam. Etsa *Kalling reagent*

Gambar 8 menunjukkan fasa delta ferit, *lath martensit*, dan *fine martensit* serta karbida. Terlihat fasa delta ferit semakin berkurang dan fasa *lath martensit* semakin bertambah. Hal ini juga ditunjukkan dengan peningkatan kekerasan.

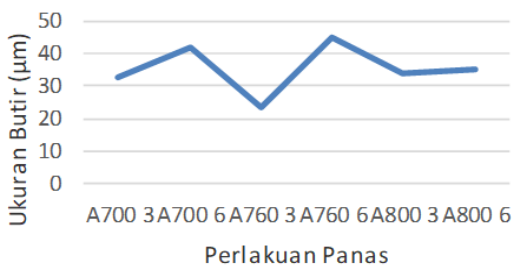


Gambar 9. Struktur mikro BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan mikroskop optik setelah *annealing* pada 800 °C selama 6 jam. Etsa *Kalling reagent*

Gambar 9 menunjukkan fasa delta ferit yang terlihat sangat sedikit dikarenakan pembentukan fasa karbida sangat dominan dan fasa delta ferit juga terlarut seiring peningkatan temperatur *annealing* [22]. Fasa karbida terbentuk pada temperatur 500-950 °C dan laju pembentukan fasa karbida semakin cepat seiring penambahan temperatur [23]. Karbida akan larut pada temperatur di atas 1100 °C. Karbida membuat kekerasan BTK AISI 410-3Mo-3Ni meningkat. Hal ini yang menyebabkan kekerasan BTK AISI 410-3Mo-3Ni pada temperatur dan waktu *annealing* ini paling tinggi di antara baja dengan perlakuan panas *annealing* lainnya.

### 3.4 Analisa Pengaruh Temperatur dan Waktu *Annealing* terhadap Ukuran Butir Matriks

Gambar 10 menunjukkan pengaruh perlakuan panas *annealing* terhadap ukuran butir yang dihasilkan pada material BTK AISI 410-3Mo-3Ni.



Gambar 10. Pengaruh perlakuan panas *annealing* terhadap ukuran butir pada material BTK AISI 410-3Mo-3Ni

Ukuran butir pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan kode perlakuan A7006 memiliki nilai yang lebih besar dibanding material dengan kode perlakuan A7003. Hal ini membuat nilai kekerasannya lebih rendah dari baja AISI 410-3Mo-3Ni kode perlakuan A700 3 dikarenakan

adanya fasa delta ferit yang berukuran lebih besar (dapat dilihat pada Gambar 5) sehingga menurunkan nilai kekerasan.

Dapat dilihat bahwa ukuran butir yang paling besar senilai 44,6 μm adalah BTK AISI 410 dengan kode perlakuan A760 6 menggunakan perlakuan panas *annealing* pada temperatur 760 °C selama 6 jam. Kekerasan material ini yaitu sebesar 36,32 HRC. Kekerasan yang tinggi dipengaruhi oleh banyaknya fasa *fine lath* martensit dan minimnya fasa delta ferit pada material ini. Ukuran butir yang paling kecil yaitu BTK AISI 410 dengan kode perlakuan A760 3 yaitu sebesar 23,44 μm yang memiliki kekerasan sebesar 36,88 HRC. Hal ini menunjukkan semakin kecil ukuran butir maka nilai kekerasan semakin besar dengan perlakuan panas pada temperatur yang sama namun waktu *annealing* berbeda.

BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan variasi waktu *annealing* selama 6 jam cenderung memiliki ukuran butir yang lebih besar dibanding waktu *annealing* selama 3 jam. Hal ini dikarenakan *annealing* berfungsi untuk membuat butir menjadi lebih besar dan bebas dari tegangan sisa sehingga membuat nilai kekerasannya lebih rendah.

## 4. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian pengaruh temperatur dan waktu *annealing* terhadap sifat mekanik dan struktur mikro BTK (baja tahan karat) AISI 410-3Mo-3Ni diperoleh hasil bahwa nilai kekerasan tertinggi terjadi pada BTK AISI-410-3Mo-3Ni yang memperoleh perlakuan panas *annealing* 800 °C selama 6 jam (A800 6) sebesar 40,4 HRC. Kekerasan paling rendah didapatkan pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan perlakuan *annealing* 700 °C selama 6 jam (A700 6) yaitu sebesar 35,9 HRC. Hasil analisis statistik pada data uji kekerasan menunjukkan nilai kekerasan terdistribusi normal dan analisa one-way ANOVA menunjukkan hipotesis awal (H0) dapat diterima sehingga variasi temperatur dan waktu *annealing* berpengaruh signifikan. Struktur mikro yang terbentuk pada BTK AISI 410-3Mo-3Ni dengan nilai kekerasan tertinggi adalah sedikit fasa delta ferit, dengan dominasi fasa martensit *lath*, *fine* martensit serta karbida.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Pusat Penelitian Metalurgi dan Material-LIPI yang telah mendanai penelitian ini melalui DIPA tahun 2019. Penulis juga mengucapkan terima kasih kepada semua pihak yang telah bekerja sama dari tim peneliti maupun teknisi Baja Unggul

Nasional Berbasis Literat. Kontributor utama dalam makalah ilmiah ini adalah Vinda Puspasari.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] R. Dwisaputro, M. S. Anwar, Rusnaldy, dan E. Mabururi, "Pengaruh perlakuan panas baja tahan karat martensitik AISI 410 terhadap struktur mikro dan ketahanan korosi," *Maj. Metal.*, vol. 33, no. 1, pp. 19–26, 2018. Doi: 10.14203/metalurgi.v33i1.332.
- [2] J. C. Ezechidelu, S. O. Enibe, D. O. Obikwelu, P. S. Nnamchi, dan C. S. Obayi, "Effect of heat treatment on the microstructure and mechanical properties of a welded AISI 410 martensitic stainless steel," *Int. Adv. Res. J. Sci. Eng. Technol.*, vol. 3, no. 4, pp. 6–12, 2016. Doi: 10.17148/IARJSET.2016.3402.
- [3] H. M. Mohammad dan F. S. Ahmed, "Effects of heat treatment and surface finish on the crevice corrosion resistance of martensitic stainless steel," *Basrah J. Eng. Sci.*, vol. 17, no. 2, pp. 9–17, 2017.
- [4] L. Cramer, M. Steinbacher, H. W. Zoch, I. Bösing, dan J. Thöming, "Influence of heat treatment on the microstructure and corrosion resistance of martensitic stainless steel," *AIP Adv.*, vol. 9, p. 065317, 2019. Doi: 10.1063/1.5094615.
- [5] M. A. Prasetyo, V. Puspasari, M. S. Anwar, A. Nikitasari, and E. Mabururi, "Mechanical properties of modified cast martensitic stainless steel CA6NM with addition of molybdenum and nitrogen," in *AIP Conference Proceeding*, 2020, no. 060001. doi: 10.1063/5.0004773.
- [6] E. Mabururi, M. S. Anwar, S. Prifiharni, T. B. Romijarso, dan B. Adjiantoro, "Pengaruh Mo dan Ni terhadap struktur mikro dan kekerasan baja tahan karat martensitik 13 Cr," *Maj. Metal.*, vol. 30, no. 3, pp. 133–140, 2015. Doi : 10.14203/metalurgi.v30i3.73.
- [7] A. Nikitasari, M. A. Prasetyo, R. Riastuti, dan E. Mabururi, "Pitting corrosion resistance of CA6NM as geothermal turbine blade material in simulated artificial geothermal brine," in *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 514, 2019. Doi: 10.1088/1757-899X/541/1/012016.
- [8] G. Chakraborty, C. R. Das, K. S. Albert, A. K. Bhaduri, dan V. T. Paul, "Study on tempering behaviour of AISI 410 stainless steel," *Mater. Charact.*, 2014. Doi: 10.1016/j.matchar.2014.12.015.
- [9] M. C. Tsai, C. S. Chiou, J. S. Du, dan J. R. Yang, "Phase transformation in AISI 410 stainless steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 332, pp. 1–10, 2002. Doi: 10.1016/S0921-5093(01)01710-5.
- [10] I. Calliari, M. Zanescio, M. Dabala, K. Brunelli, dan E. Ramous, "Investigation of microstructure and properties of a Ni – Mo martensitic stainless steel," *Mater. Des.*, vol. 29, pp. 246–250, 2008. Doi: 10.1016/j.matdes.2006.11.020.
- [11] P. Rosemann, N. Kauss, C. Mu, dan T. Halle, "Influence of solution annealing temperature and cooling medium on microstructure, hardness and corrosion resistance of martensitic stainless steel X46Cr13," *Mater. Corros.*, vol. 66, no. 10, pp. 1068–1076, 2015. Doi: 10.1002/maco.201408081.
- [12] E. Mabururi, Z. A Syahlan, S. Prifiharni, dan M. S. Anwar, "Influence of austenitizing heat treatment on the properties of the tempered type 410-1Mo stainless steel," in *IOP Conference Series: Materias Science and Engineering*, pp. 1–8, 2017. Doi: 10.1088/1757-899X/202/1/012085.
- [13] A. S. Apriani, M. S. Anwar, Rusnaldy, dan E. Mabururi, "Peningkatan ketahanan aus pada baja tahan karat martensitik 13Cr AISI 410 setelah proses austenisasi dan tempering," *Maj. Metal.*, vol. V, no. 3, pp. 115–122, 2017.
- [14] L. Monostori, V. D. Majstorovic, S. J. Hu, dan D. Djurdjanovic, *Lecturer Notes in Mechanical Engineering*. 2019.
- [15] A. Królicka, K. Radwański, A. Ambroziak, dan A. Żak, "Analysis of grain growth and morphology of bainite in medium-carbon spring steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 768, no. July, 2019. Doi: 10.1016/j.msea.2019.138446.
- [16] ASTM E112-12, "Standard Test Methods for Determining Average Grain Size," in *ASTM International*, 2012.
- [17] M. Y. Hasbi, D. P. Malau, dan B. Adjiantoro, "Pengaruh variasi reduksi terhadap kekerasan dan struktur mikro baja laterit melalui pengerolan panas," in *Seminar Nasional Sains dan Teknologi*, pp. 1–8, 2016.
- [18] M. Šebek, P. Horňák, S. Longauer, P. Zimovčák, dan P. Záhumenský, "Influence of annealing process on microstructure and mechanical properties of C-Mn dual phase steel," *Kov. Mater.*

- vol. 53, pp. 341–348, 2015. Doi: 10.4149/km.2015.5.341.
- [19] G. F. V. Voort, G. M. Lucas, dan Buehler, “Metallography and microstructures of stainless steels and maraging steels,” in *ASM Handbook, Volume 9: Metallography and Microstructure*, pp. 683–685, 2004.
- [20] M. Mirzaee, A. Momeni, N. Aieni, dan H. Keshmiri, “Effect of quenching and tempering on microstructure and mechanical properties of 410 and 410 Ni martensitic stainless steels,” *J. Mater. Res.*, vol. 32, no. 3, pp. 687–696, 2017. Doi: 10.1557/jmr.2016.485.
- [21] L. Fu, Z. Li, H. Wang, dan A. Shan, “Luders-like deformation induced by delta-ferrite-assisted martensitic transformation in a dual-phase high-manganese steel,” *Scr. Mater.*, vol. 67, no. 3, pp. 297–300, 2012. Doi: 10.1016/j.scriptamat.2012.05.010.
- [22] P. Wang, S. P. Lu, N. M. Xiao, D. Z. Li, dan Y. Y. Li, “Effect of delta ferrite on impact properties of low carbon 13Cr – 4Ni martensitic stainless steel,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 527, no. 13–14, pp. 3210–3216, 2010. Doi: 10.1016/j.msea.2010.01.085.
- [23] A. F. Padilha, R. Lesley, dan P. R. Rios, “Stainless steel heat treatment,” in *Materials Sciences and Technology*, no. January, Taylor and Francis Group, pp. 706–707, 2007.



## INDEKS PENULIS

### A

Agung Nugroho, 45  
Arif Tjahjono, 65

### B

Bambang Hermanto, 65

### C

Christin Rina Ratri, 57

### D

Debby Rachel, 45  
Diastati Puspita Ning Ayu, 65

### E

Efendi Mabruri, 75

### H

Hanif Yuliani, 53

### I

Iwan Susanto, 45

### J

Januarius Velix Ta'an Hala, 75  
Jarot Raharjo, 53  
Johny Wahyuadi Soedarsono, 45

### L

Latifa Hanum Lalasari, 57

### M

Mochammad Syaiful Anwar, 75  
Muchlis Agung Prasetyo, 75  
Muhammad Setiadji, 53

### Q

Qolby Sabrina, 57

### R

Rafdi Abdul Majid, 45  
Rina Dewi Mayasari, 53

### S

Satrio Herbirowo, 75  
Sudiby, 53  
Sulaksana Permana, 45  
Suyanti, 53

### T

Titik Lestariningsih, 57  
Toto Sudiro, 65

### V

Vinda Puspasari, 75

### W

Wahyu Kartika, 45

### Y

Yelvia Deni, 53

## INDEKS KATA

### A

*Annealing*, 75  
Austenit, 75

### B

Baja tahan karat AISI 410-3Mo-3Ni, 75  
Baterai Li-ion, 57  
Boehmite, 65

### C

Cerium, 45  
 $\chi$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 65

### D

$\delta$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 65  
Delta ferit, 75

### E

*Ethylene glycol*, 53  
Elektrolit polimer padat, 57

### G

$\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 65

### L

LiBOB, 57

### K

Karbida, 75

### M

Martensit, 75

### N

Nano-perovskite, 53  
NdFeO<sub>3</sub>, 53

### P

Pelindian, 45  
Presipitasi, 53

### S

*Succinonitrile*, 58  
Spark plasma sintering, 65

### T

Terak timah Bangka, 45

### U

Unsur tanah jarang, 45

### Y

Yttrium, 45