Efek Aditif 3Al₂O₃.2SiO₂ dan Suhu Sintering terhadap Karakteristik Keramik α-Al₂O₃

P. Sebayang,* Anggito. P. Tetuko, Deni S. Khaerudini, Muljadi, dan Masno Ginting Pusat Penelitian Fisika - LIPI, Kawasan PUSPIPTEK Serpong Tangerang

Intisari

Telah dilbuat keramik corundum (α -Al₂O₃) menggunakan serbuk Al₂O₃ dan masing-masing ditambah: 10, 15, 20 dan 25% (berat) 3Al₂O₃.2SiO₂, digiling 24 jam, lolos ayakan 200 mesh, dikeringkan 110°C, dicetak 50 Mpa, dan disintering pada suhu: 1300, 1400, 1500 dan 1600°C. Sebesar 20% aditif 3Al₂O₃.2SiO₂ dan suhu sintering 1600°C merupakan kondisi optimum, menghasilkan: densitas = 3,47 g/cm³, porositas = 0,64%, kekerasan (Hv) = 1454 kgf/mm², kuat patah = 313 MPa, dan koefisien ekspansi termal = 6,3 x 10⁻⁶ °C⁻¹. Corundum (α -Al₂O₃) merupakan fasa dominan, partikelnya bulat, grain size: 0,3-0,8 μ m dan minomya adalah mullite (Al₂O₃.2SiO₂), berbentuk jarum, dan grain size: 0,3-3,0 μ m.

KATA KUNCI: ?

I. PENDAHULUAN

Pembuatan keramik alumina (α -Al₂O₃) yang padat dan kuat memerlukan suhu sintering yang tinggi, yaitu sekitar 1800 - 1900°C [1]. Keramik α -Al₂O₃ tergolong keramik oksida, memiliki titik lebur sekitar 2050°C, bersifat isolator listrik, kuat, keras dan tahan suhu tinggi. Salah satu cara untuk menurunkan suhu sintering adalah dengan memperkecil ukuran butir hingga dalam orde nano size dan/atau penambahan aditif tertentu yang mempunyai titik lebur lebih rendah dari alumina [2]. Sifat fisis Al₂O₃ antara lain: densitas = 3,96 g/cm³, kekerasan = 1500 - 1800 kgf/mm², kuat tekan = 230 - 350 MPa dan koefisien ekspansi termal = (8 - 9) x 10⁻⁶ °C⁻¹.

Pemakaian keramik alumina cukup luas, bidang mekanik (bearing, cutting tolls, inner lining), bidang elektronik (isolator listrik, substrat elektronik), bidang medis sebagai bio material dan bahan refraktori suhu tinggi. Pemilihan bahan aditif mullite ($3Al_2O_3.2SiO_2$), karena mempunyai keunggulan dari segi kekuatan mekaniknya [3] dan juga lebih tahan terhadap kejut suhu (*thermal shock resistance*) atau berkaitan dengan nilai koefisien ekspansi termal yang rendah. Perpaduan antara alumina dan mullite pada material keramik α - Al_2O_3 adalah sangat tepat, apabila dilihat dari aplikasinya: *hot plate, roller kiln, crucible* dan *lining brick*. Komponen-komponen diatas merupakan kelengkapan tungku yang dibutuhkan pada industri keramik, gelas dan pengecoran logam.

Sebagai bahan pemikiran, bahwa komponen tersebut beredar di Indonesia ternyata masih diimport dari luar negeri. Tak kalah pentingnya juga adalah ketersediaan bahan baku alam di Indonesia cukup banyak, baik berupa mineral bauxit sebagai sumber Al_2O_3 dan pasir silika sebagai sumber SiO_2 . Oleh karena itu perlu dilakukan penelitian dan kajian yang berkaitan dengan alih teknologi dan penguasaan tentang pembuatan keramik alumina (α - Al_2O_3) dapat diterapkan khususnya di Indonesia.

Pada tulisan ini dibahas tata cara pembuatan keramik α -Al₂O₃ dengan variasi penambahan aditif mullite (Al₂O₃.2SiO₂) dan suhu sintering. Serbuk mullite (Al₂O₃.2SiO₂) dibuat dengan perbandingan 2 mole silika (SiO₂) dan 3 mole alumina (Al₂O₃), digiling selama 24 jam dan dibakar/kalsinasi pada suhu 1300°C dan ditahan pada suhu tersebut selama 2 jam [4]. Komposisi mullite (Al₂O₃.2SiO₂) yang ditambahkan pada pembuatan keramik alumina (Al₂O₃) adalah 10, 15, 20 dan 25% (berat) $3Al_2O_3.2SiO_2$, variasi suhu: 1300, 1400, 1500 dan 1600°C, merupakan lanjutan penelitian sebelumnya [5]. Karakteristik yang diamati: densitas, porositas, kekerasan (Hv), kuat patah, koefisien ekspansi termal dan analisa struktur mikro dengan menggunakan XRD dan SEM.

II. DASAR TEORI

Senyawa alumina bersifat polimorf dan struktur α -Al₂O₃ atau sering disebut dengan corundum [6], mempunyai struktur kristal Tumpukan Padat Heksagonal (*Hexagonal Clsed Packed* = *HCP*), bentuk struktur yang paling stabil pada suhu tinggi. Bilangan koordinasi dari struktur corundum (α -Al₂O₃) adalah 6 maka tiap ion Al⁺³ dikelilingi 6 ion O²⁻ dan tiap ion O²⁻ dikelilingi oleh 4 ion Al⁺³ untuk mencapai muatan netral. Struktur γ -Al₂O₃ dengan formula spinel adalah Al₈O₁₂ dan bila dibandingkan struktur dasarnya A₃B₆O₁₂ atau A₂B₂O₄, dimana A dan B adalah kation valensi dua dan tiga, maka kekurangan satu kation dan hal ini merupakan bentuk cacat struktur (vacancy defect) pada kristal tersebut [6]. Struktur γ -Al₂O₃ merupakan senyawa alumina yang terbentuk melalui penguraian gelatin Al(OH)₃ dan bohmit AlOOH dengan reaksi seperti ditunjukkan Gambar 1 [7].

Transformasi fasa γ ke α pada suhu di atas 1000°C menghasilkan struktur mikro dengan derajat hubungan porositas yang tinggi. Perubahan bentuknya termasuk *irreversible* dan bentuk a polimorfnya stabil dengan titik lebur 2050°C.

^{*}E-MAIL: angg005@lipi.go.id



Gambar 1: Reaksi penguraian gelatin Al(OH)3 dan bohmit AlOOH



Gambar 2: Diagram fasa sistem biner

Mullite $(3Al_2O_3.2SiO_2)$ tidak dijumpai dalam alam, merupakan material sintetis sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 2, diagram fasa sistem biner Al₂O₃.-SiO₂ [7]. Mullite memiliki titik lebur 1840°C dan terbentuk pada komposisi sekitar 60 - 63% mole Al₂O₃ dan sekitar 37 - 40% SiO₂. Keunggulan mullite [8] pada saat digunakan tahan sampai mendekati titik leburnya, mempunyai sifat fisis yang khas adalah densitas = 3,96 g/cm³ dan koefisien ekspansi termal = (4,5 - 5,6) x 10⁻⁶ °C⁻¹.

III. METODOLOGI PENELITIAN

Preparasi serbuk sangat menentukan sifat produk keramik yang dihasilkan, termasuk kemurnian bahan baku yang digunakan, homogenitas campuran dan kehalusan serbuk. Ada beberapa cara preparasi serbuk: konvensional, kimia basah/larutan dan dalam fasa gas; pada percobaan ini dipilih cara konvensional [4], yaitu berupa campuran padat-padat (*solid-solid mixing*) dengan menggunakan ball mill. Waktu penggilingan berpengaruh terhadap tingkat homogenitas dan kehalusan serbuk [9]. Preparasi serbuk mullite (Al₂O₃.2SiO₂) dengan perbandingan 2 mole silika (SiO₂) dan 3 mole alumina (Al₂O₃) diperlihatkan pada diagram alir Gambar 3.

Pembuatan keramik α -alumina dengan penambahan aditif mullite (10, 15, 20 dan 25% berat) dilakukan dengan tahapan sebagai berikut: campur/giling serbuk alumina dan mullite dengan ball mill, dikeringkan dalam oven, cetak tekan (*die pressing*) dan disinter pada suhu: 1300, 1400, 1500 dan 1600°C. Diagram alir pembuatan keramik α -Al₂O₃ dengan aditif mullite (Al₂O₃.2SiO₂) diperlihatkan pada Gambar 4. Karakterisasi benda uji yang dilakukan antara lain [10]: densitas, porositas, kekerasan (Hv), kuat patah, dan koefisien ekspansi termal. Sedangkan struktur mikro di analisa dengan menggunakan XRD dan SEM. Pengukuran densitas dan porositas mengacu pada ASTM C. 373-72, kekerasan (Hv) diukur dengan Micro Hardness Tester (ASTM D-785), kuat patah dengan cara *triple point bending* mengacu pada ASTM C.170-90, dan koefisien ekspansi termal mengacu pada ASTM D.696-91. Untuk mengetahui fasa dan struktur keramik yang terbentuk diamati dengan XRD dengan cara membandingkan nilai jarak antar bidang, d dengan nilai d standar yang diperoleh dari *Joint Committee on Powder Diffraction Standart* (JCPDS) atau dengan Hanawalt File. Sedangkan bentuk dan ukuran partikel size dari keramik α -Al₂O₃ dilakukan dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM).

IV. HASIL DAN DISKUSI

Hasil pengukuran porositas dan densitas masing-masing diperlihatkan pada Gambar 5 dan Gambar 6. Dari Gambar 5 dan Gambar 6, terlihat bahwa semakin tinggi suhu sintering dan semakin banyak jumlah aditif mullite yang ditambahkan menyebabkan jumlah pori semakin kecil, atau keramik α -Al₂O₃ yang dihasilkan cenderung bertambah padat.

Fenomena ini menunjukkan bahwa energi berupa panas mengaktifkan proses difusi antara butiran sehingga terjadi pertumbuhan butir dan eliminasi pori yang ada diantara butir, akibatnya terjadi proses densifikasi yang diikuti dengan penyusutan volum tetapi tidak diikuti perubahan massa. Pada penambahan 20, 25% aditif mullite dan suhu sintering 1500, 1600°C, diperoleh nilai porositas dan densitas cenderung mengecil dan mendekati konstan. Pembuatan keramik α -Al₂O₃ tanpa aditif dengan suhu 1650°C diperoleh nilai densitas 3,25 g/cm³ dan porositas 13,38% [11], teoritis densitas alumina sekitar 3,9 g/cm³ dan porositas mendekati nol. Sedangkan hasil percobaan untuk penambahan 20, 25% aditif mullite dan suhu sintering 1500, 1600°C, diperoleh nilai porositas sekitar 0,64 -1,53% dan densitas sebesar 3,34-3,47 g/cm³. Hasil pengukuran kekerasan, Hv dan kuat patah masing-masing terhadap % penambahan aditif mullite dan suhu sintering ditunjukkan pada Gambar 7 dan Gambar 8.

Dari hasil pengukuran kekerasan, Hv dan kuat patah menunjukkan adanya korelasi berbanding lurus dengan penambahan aditif mullite dan suhu sintering. Berarti semakin banyak aditif mullite dan semakin tinggi suhu sintering maka material keramik α -Al₂O₃ cenderung bertambah kuat dan keras. Sampel keramik α -Al₂O₃ dengan suhu sintering 1600°C dan penambahan aditif sebesar 20% dan 25% mullite



Gambar 3: Diagram alir preparasi serbuk mullite (Al₂O₃.2SiO₂)



Gambar 4: Diagram alir pembuatan keramik α -Al₂O₃ dengan aditif mullite (Al₂O₃.2SiO₂)



Gambar 5: Hubungan Porositas terhadap % aditif mullite



Gambar 6: Hubungan Densitas terhadap % aditif mullite

menghasilkan nilai kekerasan, Hv dan kuat patah yang paling tinggi dan mendekati konstan. Nilai kekerasan, Hv pada suhu sintering 1600°C dan penambahan aditif sebesar 20% dan 25% mullite adalah berkisar 1400 - 1450 kgf/mm² dan kuat patah sekitar 313 MPa. Nilai kekerasan, Hv untuk keramik α -Al₂O₃ menurut teoritis adalah sekitar 1500-1800 kgf/mm² dan kuat patah sekitar 350 MPa. Berdasarkan hasil pengukuran densitas, porositas, kekerasan dan kuat patah, diperoleh kondisi optimum adalah pada suhu sintering 1600°C dan pe-



Gambar 7: Hubungan kekerasan, Hv terhadap % aditif mullite



Gambar 8: Hubungan Kuat patah terhadap % aditif mullite

nambahan aditif sebesar 20% dan 25% mullite. Untuk selanjutnya pengukuran koefisien ekspansi termal dan analisa struktur mikro yang diamati hanya terbatas pada sampel tersebut dan sampel kontrol (tanpa aditif) yang disinter pada suhu 1600°C.

Hasil pengukuran koefisien ekspansi termal dari sampel tanpa aditif, aditif 20%, 25% mullite dan menurut literatur un-



Gambar 9: Pola difraksi sinar X dari serbuk mullite, dikalsinasi 1300°C



Gambar 10: Pola difraksi sinar X dari alumina tanpa aditif, disinter $1600^{\circ}C$

tuk keramik alumina murni (α -Al₂O₃) serta keramik mullite (Al₂O₃.2SiO₂) diperlihatkan pada Tabel 1. Jadi jelas terlihat peran penambahan aditif mullite dapat menurunkan nilai koefisien ekspansi termal, akibatnya keramik α -Al₂O₃ dengan penambahan aditif sekitar 20 % mullite dan suhu sintering 1600°C dapat dikatakan merupakan kondisi optimum. Semakin rendah nilai koefisien ekspansi termal dari dari suatu bahan maka benda tersebut semakin tahan terhadap kejutan suhu (*thermal shock resistance*), artinya semakin baik untuk aplikasi pada suhu tinggi. Dengan demikian fungsi penambahan mullite sebesar 20% dan suhu sintering 1600°C mempunyai peran tersediri bila dibanding keramik α -Al₂O₃ yang membutuhkan suhu sintering sekitar 1800-1900°C tanpa mempengaruhi sifat fisis lainnya.

TABEL I: Nilai koefisien ekspansi termal: sampel tanpa aditif, aditif 20%, 25% mullite dan keramik α -Al₂O₃ serta keramik mullite (Al₂O₃.2SiO₂) menurut literatur.

Kondisi sampel	Koefisien ekspansi terma $\alpha(10^{-6} \circ C^{-1})$
Tanna aditif, suhu sintering 1600°C	8.6
20% aditif mullite, suhu sintering 1600° C	6,3
25% aditif mullite, suhu sintering 1600°C	6,1
Keramik alumina murni (menurut literatur)	8 - 9
Keramik mullite (menurut literatur)	4,5 - 5,6

Hasil analisa difraksi sinar X dari serbuk mullite yang



Gambar 11: Pola difraksi sinar X keramik alumina, aditif 20% mullite yang disinter pada suhu 1600°C



Gambar 12: Pola difraksi sinar X keramik alumina, aditif25% mullite yang disinter pada suhu $1600^\circ \rm C$

dibuat dengan perbandingan 2 mole silika (SiO₂) dan 3 mole alumina (Al₂O₃) dan dibakar (dikalsinasi) pada suhu 1300°C, diperlihatkan pada Gambar 9. Ternyata dengan suhu 1300°C fasa mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) sudah terbentuk, yang selanjutnya sebuk tersebut dijadikan sebagai aditif dalam pembuatan keramik alumina. Pada Gambar 10, hasil pola difraksi sinar X dari sampel alumina tanpa menggunakan aditif yang disinter pada suhu 1600°C, seluruh fasa yang muncul adalah corundum (α -Al₂O₃). Corundum (α -Al₂O₃) merupakan fasa yang stabil atau stuktur kristalnya tidak berubah terhadap perubahan suhu dan titik leburnya cukup tinggi, yaitu sekitar 2050°C. Apabila dilihat dari sifat mekanik yang dihasilkan pada pembuatan keramik α -Al₂O₃ tanpa aditif yang disinter 1600°C masih jauh dari yang diharapkan atau belum tercapainya kondisi optimal.

Pada Gambar 11 dan Gambar 12, masing-masing menunjukkan pola difraksi sinar X dari keramik α -Al₂O₃ dengan aditif 20% dan 25% mullite yang disinter pada suhu 1600°C. Dari kedua pola difraksi, seperti pada Gambar 11 dan Gambar 12 terlihat bahwa proses pembentukan sudah hampir sempurna dengan aditif 20% mullite dan suhu sintering 1600°C. Atau tidak ada perubahan yang signifikan dengan penambahan aditif mullite sebesar 25% dengan kodisi suhu 1600°C. Terdapat dua fasa yang terbentuk, masing-masing corundum (α -Al₂O₃) sebagai fasa mayor dan mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) sebagai fasa minor. Fasa mullite akan mengisi ronggarongga kosong diantara butir alumina dan sekaligus membentuk ikatan yang kuat diantara butiran alumina.

Hasil pengamatan dengan SEM untuk sampel alumina



(c)

Gambar 13: Foto SEM dari keramik alumina: (a). Tanpa aditif yang disinter 1600°C, (b). Dengan aditif 20% mullite yang disinter 1600°C, (c). Dengan aditif 25% mullite yang disinter 1600° C,(masing-masing perbesarannya 20.000 x).

tanpa aditif yang disinter 1600°C, dengan aditif 20% dan 25% mullite masing-masing disinter pada suhu 1600°C, diperlihatkan pada gambar 12, A, B dan C. Ternyata sampel alumina tanpa aditif dengan suhu sinter 1600°C masih berongga/berpori dan sebagian sudah terjadi aglomerat/cluster, bentuk butiran bulat tidak beraturan dan berukuran sekitar 0,3 - 0,8 μ m.

Dengan struktur mikro seperti tersebut menunjukkan bahwa proses sintering belum sempurna, artinya suhu sintering yang diterapkan kurang tinggi. Akibatnya sifat mekanik yang dihasilkan masih belum optimal dan benda uji yang diperoleh umumnya cenderung rapuh. Sedangkan untuk penambahan aditif sebesar 20% dan 25% mullite yang disinter pada suhu 1600°C menunjukkan pola yang mirip.

Butir seperti jarum (needle) adalah merupakan bentuk butiran mullite berukuran sekitar $0,3 - 3,0 \mu m$, berbeda dengan butiran alumina yang berbentuk bulat. Umumnya butiran mullite dan corundum saling mengikat satu sama lain dan rongga atau pori hampir tidak terlihat, karena porositas keramik alumina tersebut mendekati nol, atau tepatnya sekitar 0,64%. Hal ini menunjukkan bahwa sampel dengan penambahan aditif mullite sebesar 20% dan suhu sintering 1600° C merupakan yang terbaik dari semua komposisi yang dibuat.

V. SIMPULAN

Penambahan aditif mullite sebesar 20% cukup signifikan memberikan pengaruh terhadap kualitas keramik alumina (α -Al₂O₃) dan mampu menurunkan suhu sintering sekitar 300°C dari suhu sintering alumina murni. Kondisi optimum pada pembuatan keramik alumina (α -Al₂O₃) dengan 20% mullite dan suhu sintering 1600°C menghasilkan karakteristik: densitas = 3,47 g/cm³, porositas = 0,64%, kuat patah = 313 MPa, kekerasan, Hv = 1454 kgf/mm², dan koefisien ekspansi termal = 6,3 x 10⁻⁶ °C⁻¹. Struktur mikro yang terbentuk adalah corundum (α -Al₂O₃) sebagai fasa mayor dan mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) sebagai fasa minor. Bentuk dan ukuran corundum (α -Al₂O₃) adalah bulat, sekitar 0,3 - 0,8 μ m dan mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) berbentuk jarum (needle) dengan ukuran sekitar 0,3 - 3,0 μ m.

- Kostorz Gernot, High-Tech Ceramic, Hal. 110-118, Academic Press, Zurich, (1988).
- [2] Montanaro, Sintering of Industrial Mullite, Journal of The European Ceramic Society, Nr. 17, p. 1715-1723, (1997).
- [3] Yet Ming Chiang, Dubas Birnie, W. D. Kingery, *Physical Ceramic Principles for Ceramic Science and Engineering*, John and Sons Inc., Canada, (1977).
- [4] Perdamean Sebayang, dkk., Pengaruh Penambahan Al₂O₃ terhadap Proses Sintering dan Sifat Fisis Keramik Porselin untuk Komponen Isolator Listrk, *Proseding Seminar Nasional Material dan Lingkungan Dalam Pembangunan Industri*, Bandung 19 Oktober 1998, halaman: 10.1 - 10.10, ISBN 979-8580-19-2, (1998).
- [5] Perdamean Sebayang, Budiarto, Sintesa Keramik Alumina-Zirkonia sebagai Bahan Refraktori Suhu Tinggi, *Prosiding Pertemuan Ilmiah Sains Materi II*, hal.: 339-343, Serpong 29-30 Oktober 1997, ISSN 1410-2897, (1997)
- [6] Worral W. E., Clay and Ceramics Raw Material, Elsevier Scientific Publishing Company, Vol. 4, 7. 3-7, London, (1986).
- [7] Clifton G. Bergeron, Subhash H. Risbud, *Introduction to Phase Equilibria in Ceramics*, The American Ceramic Sosiety, Inc., Columbus Ohio, (2000).
- [8] Perdamean Sebayang, dkk., Penelitian Pengembangan Keramik Mullite (3Al₂O₃.2SiO₂) dan Cordierite (2MgO.2Al₂O₃.5SiO₂) sebagai material refraktori, *Prosiding Seminar Fisika Jakarta*, Museum Migas-TMII, 9 Oktober 1995,(1995)

- [9] James S. Read, Introduction to The Principles of Ceramic Processing, John Willey & Sons, Inc., Singapore, (1988).
- [10] Perdamean Sebayang, dkk., Pengaruh Aditif MgO terhadap Sifat Fisis Al₂O₃ untuk Substrat Elekronik, Jurnal Fisika, Himpunan Fisika Indonesia, Volume 2, No. 4, Desember 1999, hala-

man 48 - 53, ISSN 0854 -3046, (1999)

[11] Nikolic L. J., J. K. Baiely, M. M. Ristic, *Sintering of Alumina Derived from Alumina Gel*, Material Monograph Science, No. 4, p. 168-171, Elsevier, New York, (1999).