

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Metode Penelitian

Metode yang digunakan pada penelitian ini adalah metode eksperimen secara langsung. Pada penelitian ini dilakukan pembuatan keramik komposit pelet CSZ-Ni dengan menggunakan metode metalurgi serbuk (Pressing-Sintering).

3.2 Lokasi Penelitian

Penelitian ini dilaksanakan di Laboratorium Fisika Bahan, Pusat Teknologi Nuklir dan Bahan Radiometri-Badan Tenaga Nuklir Nasional (PTNBR-BATAN) yang berlokasi di Jalan Tamansari, No. 71, Bandung 40132.

3.3 Alat Dan Bahan

3.3.1 Peralatan yang Digunakan

- Alu
- Lumpang
- Cawan persolen
- Spatula
- Neraca digital METTLER AB 104
- Tungku Pembakar
- Oven Pengering
- Pipet
- Erlenmeyer
- Termometer
- Hot/plate
- pH meter
- penggerus
- Sintering

- Kaca arloji
- Gelas kimia
- Labu ukur
- Batang pengaduk
- Alat Kompres
- Kertas saring
- Botol semprot
- Corong
- Keramik alumina (sebagai wadah sampel)

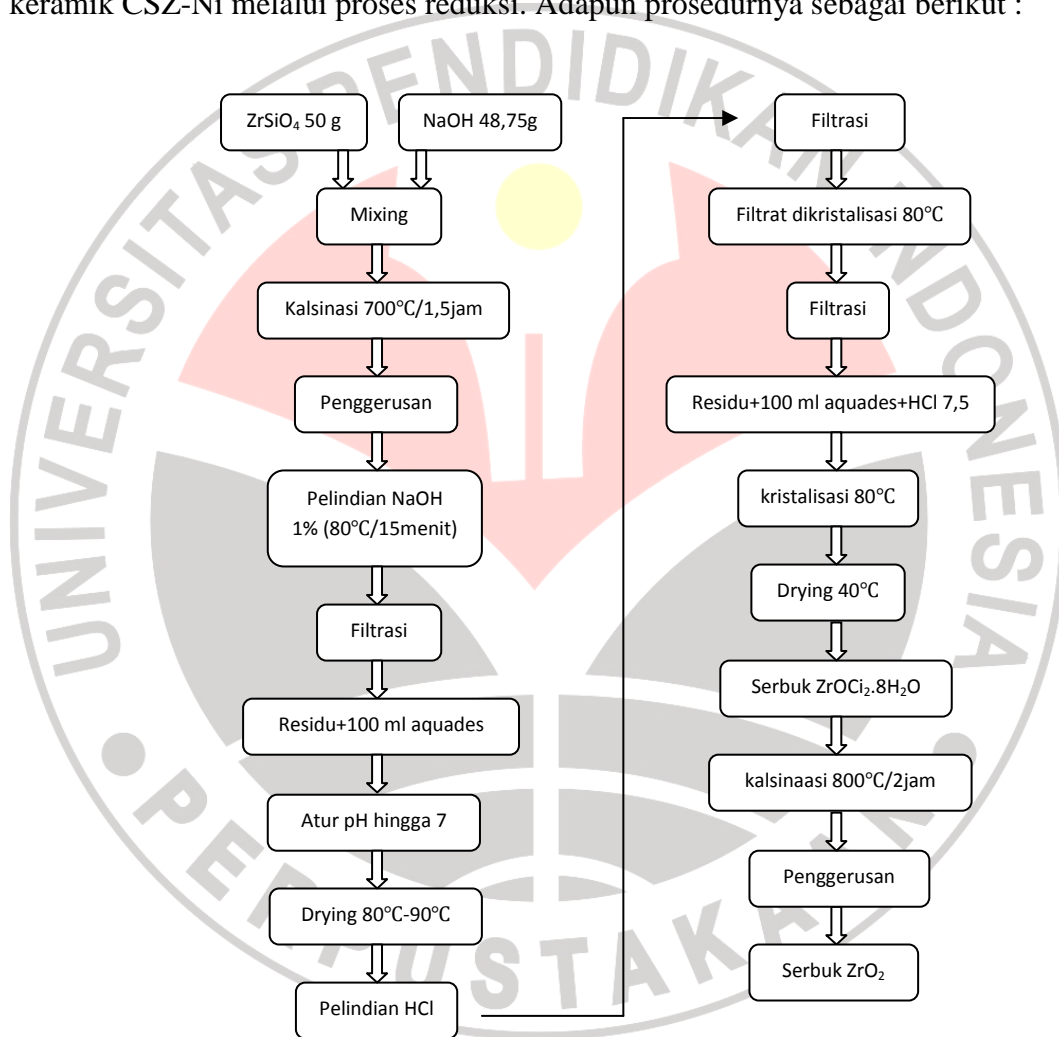
3.3.2 Bahan-Bahan yang Digunakan

- Zircon opacifier ($ZrSiO_4$)
- NaOH
- Aquadest
- Serbuk CaO
- Serbuk NiO
- HCL 5 M
- PVA 1 % (Poli Vinil Alkohol)
- Aseton
- Perak

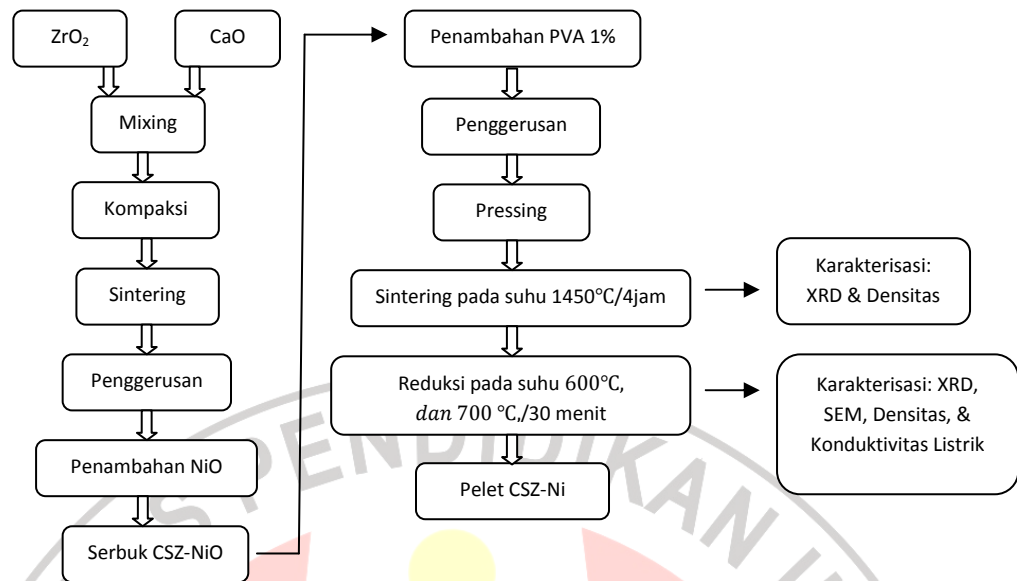
3.4 Prosedur Penelitian

3.4.1 Diagram Alir Pembuatan Keramik CSZ-Ni

Dalam proses pembuatan keramik ini dilakukan beberapa tahapan yaitu pembuatan serbuk ZrO_2 , dan pencampuran ZrO_2 , CaO dengan NiO membentuk keramik CSZ-Ni melalui proses reduksi. Adapun prosedurnya sebagai berikut :



Gambar 3.1 Diagram Alir Proses Pembuatan ZrO_2



Gambar 3.2 Diagram Alir Proses Pembuatan keramik CSZ-Ni

3.4.2 Penjelasan Diagram Alur Pembuatan Keramik CSZ-Ni

3.4.2.1 Proses Pembuatan Serbuk ZrO₂

1. Pencampuran

Timbang pasir zirkon ZrSiO₄ sebanyak yang diinginkan (massa ZrSiO₄ = 50 gram) dan campur dengan NaOH dengan perhitungan berat sebagai berikut :

$$\text{Massa NaOH} = \text{massa zirkon} \times \text{kadar ZrSiO}_4 \times \text{kadar NaOH} \times 1,3$$

$$= 50 \text{ gram} \times \frac{60\%}{100\%} \times \frac{100\%}{80\%} \times 1,3$$

$$= 48,75 \text{ gram}$$

2. Penggerusan

Setelah mencampur kedua bahan tersebut, lakukan penggerusan sampai kedua bahan tersebut tercampur dan benar-benar halus. Tujuan dilakukan

penggerusan dan pencampuran ini yaitu agar bahan menjadi lebih homogen dan mempunyai ukuran partikel yang sama. Sehingga diperoleh suatu bahan yang mempunyai porositas yang rendah serta mempunyai densitas yang tinggi.



Gambar 3.3 Proses Penggerusan

3. Kalsinasi

Pasir zirkon dan NaOH yang telah digerus, kemudian dikalsinasi pada suhu 700 °C selama 1,5 jam. Proses kalsinasi ini merupakan proses pemberian panas pada bahan yang telah digerus dan masih berupa serbuk. Kalsinasi biasanya dilakukan sebelum bahan dikompaksi, sedangkan sintering dilakukan setelah bahan dikompaksi. Kalsinasi bertujuan untuk menghilangkan senyawa-senyawa organik yang mungkin ada pada campuran, disamping itu juga untuk menghilangkan senyawa-senyawa lain yang tidak diperlukan pada saat proses sintering.



Gambar 3.4 Sampel yang telah dikalsinasi pada suhu 700 °C

4. Pelindian dengan NaOH

Sampel yang telah dikalsinasi kemudian digerus kembali sampai halus dan ditimbang. Selanjutnya lakukan pelindian dengan NaOH 1% yang dibuat dengan perbandingan 1 gram sampel : 5 ml NaOH 1 %.

$$\text{Massa NaOH} = \text{volume aquades yang diperlukan} \times 1 \%$$

Artinya massa NaOH yang telah ditimbang dicampurkan dengan aquades sebanyak yang diperlukan. Untuk mencampurkannya dengan sampel yang telah digerus sebaiknya kita mengukur banyaknya larutan NaOH yang akan dicampurkan, perhitungannya sebagai berikut :

$$\text{Massa lar. NaOH} = \text{massa sampel (setelah kalsinasi)} \times 5$$

Setelah dihitung banyaknya larutan NaOH kemudian dicampurkan dengan sampel yang telah digerus tadi dan panaskan campuran tadi pada suhu 80°C selama 15 menit. Kemudian filtrasi campuran dengan kertas saring, ambil

residunya dan filtrat dibuang. Residu yang diambil akan dilindihkan dengan NaOH kembali (sebanyak larutan NaOH yang awal), lakukan proses ini sebanyak 3x pengulangan. Setelah melakukan pelindihan dengan NaOH, ambil residu hasil proses terakhir dan campurkan dengan 100 ml aquades. Atur pH campuran hingga pH-7 dengan menggunakan pH-meter, tetapi kalau pH nya belum mencapai 7 juga bisa ditambahkan dengan HCl 10 M.



Gambar 3.5 Proses pelindihan sampel dengan NaOH

5. **Drying**

Setelah diukur pH nya, drying sampel pada suhu 80°C - 90°C sampai semua kandungan airnya menguap.

6. **Pelindihan dengan HCl**

Sampel yang telah dikeringkan kemudian dilindi dengan menggunakan HCl 3-5 M dengan perbandingan 1 mol ZrO_2 : 5 mol HCl.

$$\text{Massa } ZrO_2 = \text{massa pasir zirkon} \times \text{kadar } ZrSiO_4 \times \frac{Mr \ ZrO_2}{Mr \ ZrSiO_4}$$

$$\text{Mol ZrO}_2 = \frac{\text{massa ZrO}_2}{\text{Mr ZrSiO}_4}$$

$$\text{Mol HCl} = 5 \times \text{mol ZrO}_2$$

$$\text{Volume HCl} = \frac{\text{mol HCl}}{\text{Molar HCl yang digunakan}} \times 1000$$

Volume HCl yang telah diukur, dipanaskan terlebih dahulu (hingga hangat). Barulah dicampur dengan sampel yang telah dikeringkan dan dilindih selama 1 jam. Sampel yang telah dilindih kemudian difiltrasi dengan mengambil filtratnya dan residunya dibuang. Hasil yang diperoleh berupa ZrOCl_2 . Hasil residu ini akan dikristalisasi pada suhu 80°C selama residu itu mencapai volume yang telah ditentukan. Perhitungan volume yang ditentukan sebagai berikut :

$$\text{volume yang harus tersisa} = \text{massa ZrO}_2 \times \frac{1000}{180}$$



Gambar 3.6 Proses filtrasi setelah pelindian HCl

7. Kalsinasi

Sampel yang telah kristalisasi sampai volume yang ditentukan kemudian dikeluarkan dan didiamkan sampai mengeras. Selanjutnya filtrasi sampel tersebut dan ambil residunya (filtrat dibuang). Residu ini akan dicampur dengan 100 ml

aquades dan 7 ml HCl 7,5 M. Setelah sampel tercampur, sampel tersebut didiamkan semalaman hingga menggele. Sampel yang telah menggele dikristalisasi pada suhu 80 °C hingga mencapai setengah volume dari volume awal. Angkat sampel yang telah dikristalisasi dan dinginkan sampai mengeras. Sampel yang telah mengeras dan masih tersisa filtratnya bisa difiltrasi lagi sampai mendapatkan residunya, tetapi kalau sampel yang telah mengeras sudah tidak ada filtratnya maka sampel tersebut bisa langsung didrying semalaman pada suhu 40°C hingga menghasilkan $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$. Kemudian sampel tersebut dikalsinasi lagi pada suhu 800°C selama 2 jam hingga mendapatkan sampel ZrO_2 . Setelah sampel dikalsinasi, sampel tersebut digerus hingga halus.

3.4.2.2 Proses Pembuatan Keramik CSZ-Ni

1. Pressing/Kompaksi

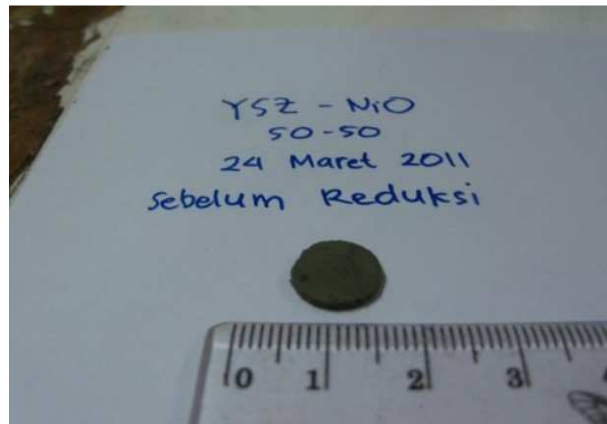
Dalam pembuatan keramik ini dilakukan tahap pencampuran sampel antara ZrO_2 dengan CaO untuk menghasilkan sampel zirkonia yang distabilkan dengan calsia (CSZ). Setelah CSZ terbentuk, lakukan pencampuran sampel lagi dengan NiO dengan perbandingan konsentrasi 50% : 50% hingga menjadi serbuk keramik CSZ-NiO. Massa serbuk keramik CSZ-NiO yang digunakan adalah 2,0427 gram. Serbuk keramik CSZ-Ni akan dicampurkan dengan serbuk PVA 1% dari massa CSZ-NiO, setelah itu digerus hingga merata.

Setelah semua bahan tercampur dengan komposisi yang diharapkan. Kemudian timbang dan bagi campuran tadi menjadi dua bagian dengan komposisi masing-masing yang sama yaitu 0,6809 gram. Masing-masing campuran tadi

dibungkus dengan kertas timbangan dan lakukan pengepresan atau kompaksi. Kompaksi ini bertujuan agar diperoleh suatu hasil yang mempunyai densitas yang tinggi dan membentuk serbuk CSZ-NiO menjadi bentuk padatan. Serbuk campuran tadi dimasukkan kedalam cetakan pengepresan yang berdiameter 10 mm dengan diberi beban penekanan yang sama untuk setiap sampel. Hasil yang terbentuk dari pengepresan serbuk tadi berupa pelet mentah.

2. Sintering

Sebelum disintering, pelet mentah tersebut diletakkan pada keramik alumina dan diurutkan agar tidak tertukar antara pelet yang satu dengan yang lain, karena pada masing-masing pelet memiliki rapat massa yang berbeda-beda. Sampel yang diletakkan pada keramik akan disinter pada suhu 1450°C selama 4 jam. Proses sintering ini merupakan salah satu proses yang sangat penting dalam pembuatan keramik. Sintering adalah proses pengubahan serbuk padat menjadi keramik yang padat dan kuat melalui proses pemanasan (Barsoum, 1996) atau proses perlakuan panas dimana partikel diikat bersama membentuk struktur yang koheren oleh mekanisme transpor massa yang terjadi dalam level atomik. Dalam sintering beberapa proses terjadi pada saat yang bersamaan yaitu pertumbuhan butir, penyusutan bahan, penghilangan pori-pori, dan penyatuan batas-batas butir (Van, 1995). Teknik sintering digunakan untuk meningkatkan kerapatan keramik sesuai dengan mikrostruktur dan komposisi fasa yang diinginkan. Faktor-faktor yang dapat mempengaruhi proses sintering diantaranya bahan aktif, suhu sinter, waktu sinter, tekanan, dan atmosfer sinter (Barsoum, 1996). Setelah disintering, timbang dan ukur masing-masing rapat massa sampel.



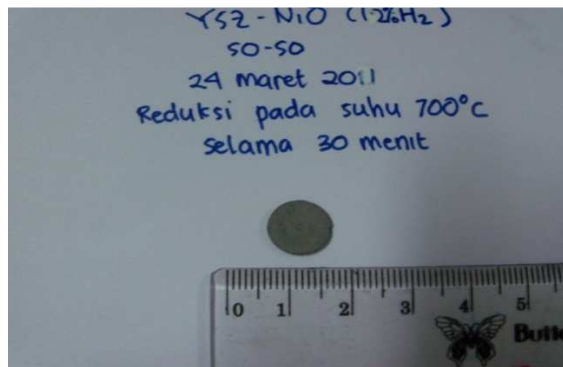
Gambar 3.7 Sampel yang telah disintering

3. Reduksi

Setelah disintering, untuk menghilangkan oksidasi pada keramik CSZ-NiO, masing-masing sampel akan direduksi pada suhu 600°C , dan 700°C selama 30 menit dengan menggunakan campuran 12 % gas hidrogen dan 88% argon sehingga membentuk keramik CSZ-Ni. Reduksi ini dilakukan pada suhu yang berbeda-beda karena agar mendapatkan suhu yang optimal pada sampel keramik. Sampel yang direduksi, kemudian timbang dan ukur kembali rapat massa masing-masing sampel.



Gambar 3.8 Sampel yang telah direduksi pada suhu 600°C



Gambar 3.9 Sampel yang telah direduksi pada suhu 700°C

3.4.3 Karakterisasi Keramik CSZ-Ni

1. Densitas (Rapat Massa)

Untuk menghitung densitas pelet sebelum dan setelah reduksi, terlebih dahulu menghitung berat pelet, tebal pelet, dan diameter pelet dengan menggunakan mikrometer sekrup. Perhitungan densitas dapat dilakukan melalui persamaan di bawah ini :

$$\rho = \frac{m}{v} \quad (3.1)$$

Dimana : ρ = densitas pelet (g/cm^3)

m = massa pelet (g)

v = volume (cm^3)

Apabila densitas setelah mengalami penyinteran memiliki densitas yang tinggi dibandingkan dengan densitas setelah mengalami reduksi maka dalam keramik ini menunjukkan terdapat banyak rongga atau kekosongan, begitupun sebaliknya.

2. Porositas

Porositas dapat ditentukan dengan melakukan uji sampel terlebih dahulu dengan menggunakan alat SEM (*Scanning Electron Microscope*). SEM merupakan mikroskop elektron yang memiliki pembesaran yang lebih tinggi dibandingkan dengan mikroskop optik, tetapi untuk pembesaran dibawah 500x, gambar yang dihasilkan memiliki kualitas yang kurang baik dibandingkan dengan mikroskop optik, sehingga keduanya dapat saling melengkapi. Teknik SEM ini selain bertujuan untuk mengetahui porositas, dapat juga untuk mengetahui ukuran butir keramik. Pengujian SEM ini dilakukan di Laboratorium Geologi-Pusat Penelitian dan Pengembangan Geologi Kelautan (P3GL) Bandung.

Setelah sampel mengalami pengujian SEM atau analisis SEM, selanjutnya dilakukan pemrograman OPTIMAS. Tujuan menggunakan program ini yaitu untuk mempermudah pengerjaan perhitungan. OPTIMAS adalah program yang dapat memberikan informasi berupa data secara akurat untuk setiap keramik CSZ-Ni yang mengalami reduksi pada suhu yang telah ditentukan. Langkah kerja program ini adalah memasukkan input gambar hasil SEM dan menandai bagian yang akan dihitung sesuai dengan permintaan, maka akan muncul hasil berupa data.

Apabila jumlah persentasi porositas yang ditunjukkan pada program OPTIMAS memiliki interval antara 20-40% maka keramik ini cocok diaplikasikan sebagai syarat anode SOFC. Sedangkan apabila persentasi porositasnya diluar dari interval yang ditunjukkan maka keramik ini belum memenuhi syarat sebagai anode SOFC.

3. Struktur Kristal

Struktur kristal dapat ditentukan dengan menggunakan hasil pola difraksi sinar-X. Difraksi sinar-X merupakan suatu teknik yang sangat penting dalam proses karakterisasi material untuk memperoleh informasi atomik dari material-material yang berstruktur kristal atau amorf. Teknik difraksi sinar-X bertujuan untuk menentukan struktur kristal dan parameter kisi. Pengujian XRD ini dilakukan di Institut Teknologi Bandung (ITB).

Analisis difraksi sinar-X ini menggunakan panjang gelombang sebesar 1,54056 angstrom. Hasil pengujian XRD dilakukan untuk mengetahui perubahan pola XRD akibat variasi suhu reduksi. Besaran yang diperlukan untuk mengetahui struktur kristal adalah sudut pendifraksi (2θ). Dari sudut pendifraksi ini akan diperoleh nilai A yang sering muncul, dimana nilai ini akan dijadikan sebagai nilai HKLnnya. Selanjutnya dapat ditentukan pula nilai parameter kisi dari nilai A yang sering muncul seperti yang ditunjukkan pada persamaan berikut:

$$\sin^2\theta = \left(\frac{\lambda^2}{4a^2}\right)(h^2 + k^2 + l^2) \quad (3.2)$$

$$(\sin^2\theta)/A = (h^2 + k^2 + l^2)$$

Dimana :

$$A = \frac{\lambda^2}{4a^2} (\lambda = 1,54) \quad (3.3)$$

Sehingga, nilai parameter kisi (a):

$$a = \sqrt{\frac{\lambda^2}{4A}} \quad (3.4)$$

Setelah diperoleh nilai parameter kisi, selanjutnya hasil dari perhitungan ini akan disesuaikan dengan data yang terdapat pada JCPDS-*International Centre for Diffraction Data* (Joint Committee of Powder Diffraction Standard) untuk fase CSZ, NiO, dan Ni. Apabila data yang diperoleh dari hasil perhitungan sesuai dengan data JCPDS maka keramik ini memiliki struktur kubik.

4. **Konduktivitas Listrik**

Untuk menentukan konduktivitas listrik, terlebih dahulu menentukan resistansinya. Resistansi dapat dicari dengan pemberian kontak pada keramik dengan dilapisi perak pada permukaan atas sebagai katoda dan permukaan bawah pelet sebagai anoda (jangan sampai terkena permukaan atas atau bawah) agar dihasilkan aliran listrik. Keramik yang telah dilapisi perak terlebih dahulu dipanaskan pada suhu 500°C selama ± 5 menit. Pemberian kontak ini dimaksudkan sebagai jalur penghubung untuk rangkaian listrik. Resistansi diukur dengan menggunakan alat LCR meter.

Dengan diperolehnya nilai resistansi maka konduktivitas listrik dapat dihitung dengan menggunakan persamaan sebagai berikut:

$$\sigma = \frac{1}{\rho} \quad (3.5)$$

Semakin besar resistivitas listrik maka semakin kecil konduktivitas listriknya.

Dimana :

$$\rho = \frac{R.A}{L} \quad (3.6)$$

Keterangan : ρ = Resistivitas ($\Omega.cm$)

R = Resistansi atau hambatan (Ω)

A = Luas Kontak (cm^2)

L = Tebal Sampel (cm)

σ = Konduktivitas Listrik ($\Omega.cm$)⁻¹

Berdasarkan literatur, konduktivitas listrik yang memenuhi syarat sebagai anode harus memiliki interval antara 10^{-1} - 10^3 ($\Omega. cm$)⁻¹.

