

### BAB III

#### METODOLOGI PENELITIAN

Pada bab ini mengungkapkan metode penelitian secara keseluruhan yang merupakan rangkaian proses penelitian yang telah dilakukan. Proses penelitian ini dibagi beberapa tahapan. Tahapan yang pertama adalah proses preparasi bahan dasar yang terdiri dari serbuk  $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $(\text{AlCl}_3)$  dan  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$ . Pada tahap pertama ini ketiga bahan tersebut dicampur dalam bentuk sol. Kemudian diuapkan (proses sol-gel) pada suhu  $150^\circ\text{C}$  sampai terbentuk xerogel. Setelah terbentuk xerogel kemudian dikalsinasi pada suhu  $600^\circ\text{C}$  selama 2 jam selanjutnya digerus sampai terbentuk serbuk  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$ . Tahapan selanjutnya adalah preparasi bahan aditif yang terdiri dari  $\text{ZrO}_2$  dan  $\text{CaO}$ .  $\text{ZrO}_2$  dicampur dengan  $\text{CaO}$  kemudian di press membentuk pelet dan disinter pada suhu  $1500^\circ\text{C}$  selama 2 jam. Pelet sinter kemudian di gerus sampai terbentuk serbuk  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$ . Serbuk  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  ditambahkan pada serbuk  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  sehingga terbentuk tiga komposisi seperti pada Tabel 3.1. Tahapan selanjutnya adalah kompaksi dengan tekanan  $60 \text{ Kg/cm}^2$ , menghasilkan pelet mentah dan diukur densitasnya kemudian disinter pada suhu  $1600^\circ\text{C}$  selama 2 jam dan diukur densitas akhirnya. Tahapan yang terakhir adalah karakterisasi yang meliputi difraksi sinar-X (XRD) dan *Scanning Electron Microscoupe* (SEM). Pengujian material yang meliputi pengukuran rapat massa ( $\rho$ ), uji kekerasan ( $H_v$ ) dan ketangguhan patah ( $K_{IC}$ ) dengan metode Vickers serta uji inertness (tidak bereaksi dengan air). Tahapan-tahapan ini diperlihatkan pada Gambar 3.1

### 3.1 Metode penelitian

Penelitian ini merupakan studi eksperimen, dengan tujuan untuk mendapatkan data pengaruh penambahan komposisi  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  terhadap struktur kristal, struktur mikro, rapat massa, kekerasan, ketangguhan patah dan sifat inert terhadap air.

### 3.2 Sampel penelitian

Sampel yang digunakan adalah  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  yang ditambahkan  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$ . Dengan komposisi penambahan  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  sebesar 0%, 7,5% dan 15% mol.

### 3.3 Waktu dan tempat penelitian

Waktu penelitian : 5 Februari – 30 Juni 2009

Hari : Senin – Jumat

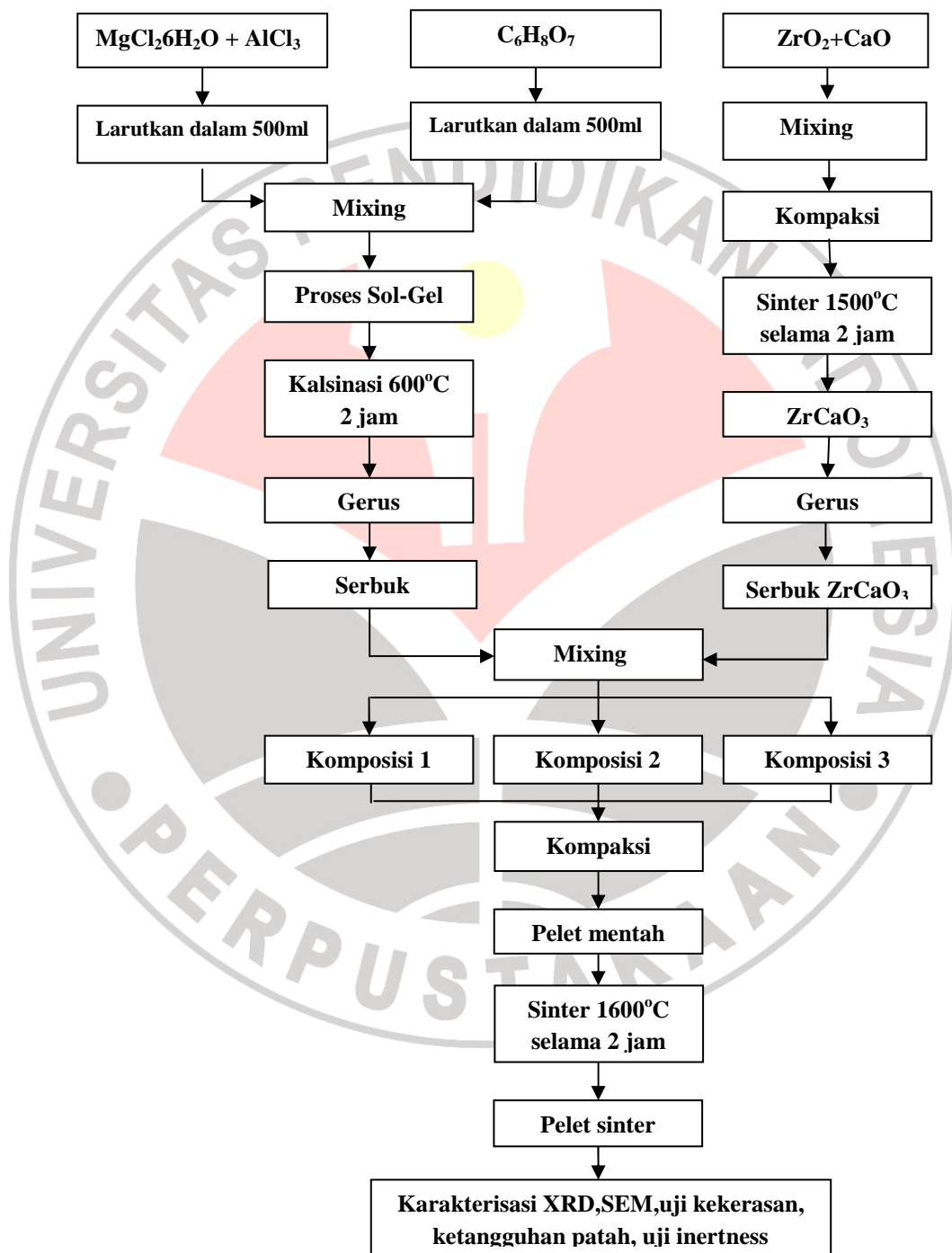
Jam : 09.00 – 16.00

Tempat penelitian : PTNBR - BATAN

Jl. Tamansari No 71 Bandung 401

### 3.4 Diagram alir penelitian

Diagram alir penelitian pembuatan keramik matriks inert  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  yang ditambahkan  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  ditunjukkan pada Gambar 3.1



Gambar 3.1 Diagram alir penelitian.

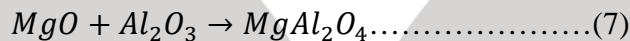
### 3.5 Penjelasan diagram alir

#### 3.5.1 Pembuatan keramik MgO-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> dengan penambahan (Zr,Ca)O<sub>2</sub>

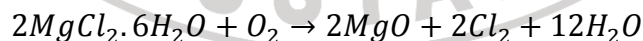
##### a) Preparasi bahan dasar

Tahap pertama pada penelitian ini adalah preparasi bahan. Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah oksida logam yaitu magnesium klorida heksahidrat (MgCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O), Aluminium klorida (AlCl<sub>3</sub>) dan asam sitrat (C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>). Komposisi bahan campuran MgCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O - AlCl<sub>3</sub> dan C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub> dinyatakan dalam satuan % mol dan % berat. Karena MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> terbentuk dari MgO dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> maka komposisi campuran dihitung dari % mol dan % berat MgO dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan perbandingan mol 67 % mol MgO dan 33,33 % mol Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sehingga massa MgCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O, AlCl<sub>3</sub> dan C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub> bisa diperoleh dengan menggunakan perhitungan sebagai berikut:

- a. Persamaan reaksi antara MgO dan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

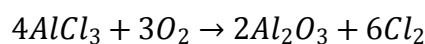


Massa MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> yang dibutuhkan 20 gram sehingga mol MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> sebesar 0,14055 mol. Karena persamaan reaksi diatas memiliki nilai koefisien yang sama sehingga memiliki perbandingan mol yang sama yaitu 0,14055 mol.



$$\text{Mol } MgCl_2 \cdot 6H_2O = \frac{2}{2} \times \text{mol } MgO = 0,14055 \text{ mol.}$$

Sehingga massa  $MgCl_2 \cdot 6H_2O$  yang digunakan 28,5611 gram.



$$\text{Mol } AlCl_3 = \frac{4}{2} \times \text{mol } Al_2O_3 = 0,281 \text{ mol}$$

Pada penelitian ini mol  $AlCl_3$  yang digunakan 0,14055 mol sehingga massa  $AlCl_3$  sebanyak 18,7407 gram.

b. Perhitungan massa asam sitrat

$$\text{massa Asam sitrat} = \frac{1000ml}{500ml} \times 0,1 M \times Mr \text{ asam sitrat}$$

Sehingga massa Asam sitrat sebanyak  $0,2 \times 192,12 = 9,606$  gram.

**b) Proses sol-gel**

Pada proses preparasi bahan, masing-masing senyawa telah dibentuk larutan dan telah dicampurkan sehingga membentuk sol. Proses sol-gel merupakan proses sintesis nano partikel untuk membuat bahan yang biasanya metal oksida dari sol untuk menghasilkan jaringan terpadu (gel).

Pada proses ini sol ( $MgCl_2 \cdot 6H_2O + AlCl_3$  dan  $C_6H_8O_7$ ) diuapkan dengan suhu  $150^\circ C$  pada *Heater*. Setelah diuapkan selama  $\pm 27$  jam barulah sol berubah menjadi gel dengan warna putih seperti ditunjukkan pada Gambar 3.2.



**Gambar 3.2 Gel pada proses sol-gel.**

Gel yang telah terbentuk kemudian dikeringkan dengan suhu yang sama. Proses pengeringan ini berfungsi untuk menghilangkan fase cair dari gel sehingga membentuk bahan keropos (*xerogel*) yang berwarna putih kekuningan yang ditunjukkan oleh Gambar 3.3.



**Gambar 3.3 Xerogel hasil proses sol-gel.**

**c) Proses kalsinasi**

Setelah terbentuk *xerogel* sebagai hasil proses sol-gel. Tahapan selanjutnya adalah proses kalsinasi seperti ditunjukkan pada Gambar 3.4. Proses ini merupakan proses perlakuan panas dengan suhu  $600^{\circ}\text{C}$  selama dua jam. Proses ini bertujuan untuk menguapkan karbon yang masih ada pada xerogel untuk menghasilkan serbuk oksida ( $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$ ) seperti ditunjukkan pada Gambar 3.5.



**Gambar 3.4 Tungku untuk proses kalsinasi.**



**Gambar 3.5 Serbuk hasil kalsinasi.**

**d) Penggerusan**

Padatan  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  hasil kalsinasi selanjutnya digerus dengan menggunakan alat gerus manual yaitu mortal agate dan selanjutnya menggunakan mesin penggerus listrik selama 20 menit ( $2 \times 10$  menit) untuk mendapatkan serbuk yang lebih halus.



**Gambar 3.6 Mortal Agate untuk menggerus serbuk secara manual.**

**e) Preparasi bahan aditif**

Bahan aditif atau pendoping yang digunakan yaitu Zirkonium oksida ( $ZrO_2$ ) dan Kalsium oksida ( $CaO$ ).  $CaO$  digunakan untuk menstabilkan zirkonia sehingga berstruktur kubik pada suhu rendah. Perbandingan komposisi antara  $ZrO_2$  dan  $CaO$  adalah 85% mol dan 15% mol.

$$\begin{aligned} \% \text{ berat } ZrO_2 &= \frac{85\% \times MrZrO_2}{85\% \times MrZrO_2 + 15\% \times MrCaO} \times 100\% \\ &= \frac{0.85 \times 123.22}{0.85 \times 123.22 + 0.15 \times 56.08} \times 100\% \\ &= 92.5\% \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \% \text{ berat } CaO &= 100\% - \% \text{ berat } ZrO_2 \\ &= 100\% - 92.5\% \\ &= 7.5\% \end{aligned}$$



Massa bahan aditif ( $ZrO_2 + CaO$ ) yang ingin dihasilkan adalah 15 gram. Sehingga massa  $ZrO_2$  yang digunakan adalah 13,875 gram dan massa CaO yaitu 1,125 gram.

**f) Mixing (pencampuran)**

$ZrO_2$  dan CaO yang telah diketahui massa masing – masing yang harus digunakan kemudian di campur pada mesin gerus *Karl korb scientific technical supplies D-6074* selama  $2 \times 10$  menit seperti pada Gambar 3.7. Tujuan dari pencampuran ini adalah untuk mendapatkan campuran yang homogen sehingga dapat menghindari terjadinya segregasi.



**Gambar 3.7** Mesin gerus *Karl Kolb scientific technical supplies D-6074*.

**g) Kompaksi**

Setelah  $ZrO_2$  dan CaO dicampur sesuai dengan komposisi yang diinginkan, langkah selanjutnya dipadatkan dengan dengan mesin press. Tujuan dari proses ini adalah untuk membentuk pelet  $ZrO_2$ -CaO dari bentuk serbuk menjadi bentuk bulk padatan.



**Gambar 3.8 Pelet mentah ZrO<sub>2</sub>-CaO.**

#### **h) Sintering**

Setelah terbentuk pelet ZrO<sub>2</sub>-CaO proses selanjutnya adalah sintering.

Sintering merupakan proses perlakuan panas dengan suhu  $\pm 2/3$  dari titik leleh bahan dasarnya. Pada proses ini suhu yang digunakan 1500°C selama 2 jam. Proses ini dilakukan dengan tiga tahap, tahap pertama adalah proses pemanasan dengan laju pemanasan 10°C/ menit hingga mencapai suhu target 1500°C. Tahap kedua adalah tahap penahanan suhu target selama dua jam dan tahap ketiga adalah tahap pendinginan dengan laju pendinginan 10°C/menit sampai mendekati suhu ruang. Tujuan dari proses sintering ini adalah untuk memperoleh ZrO<sub>2</sub> berstruktur kubik pada suhu rendah.

#### **i) Penggerusan**

Pelet (Zr,Ca)O<sub>2</sub> yang telah disinter kemudian digerus. Proses penggerusan ini sama dengan proses penggerusan padatan MgO-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> pada preparasi bahan dasar yaitu digerus dengan menggunakan alat gerus manual yaitu *mortal agate* dan selanjutnya menggunakan mesin penggerus

listrik selama 20 menit ( $2 \times 10$  menit) untuk mendapatkan serbuk yang lebih halus.

#### j) **Mixing (pencampuran)**

Pada proses ini serbuk  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  dan serbuk  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  dicampur dengan komposisi tertentu. Ada tiga komposisi pada penelitian ini yaitu  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  tanpa aditif  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$ ,  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  dengan aditif  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  7,5% mol,  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  dengan aditif  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$  15% mol seperti ditunjukkan pada Tabel 3.1. Proses pencampuran ini dilakukan dengan mesin *Karl Kolb Scientific technical Supplies D-6074* selama 20 menit ( $2 \times 10$  menit). Tujuan dari pencampuran ini adalah untuk mendapatkan campuran yang homogen sehingga dapat menghindari terjadinya segregasi.

**Tabel 3.1** Komposisi campuran keramik  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$  dan aditif  $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$ .

Persen mol		Persen berat		dalam 2,5 gram	
$\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$	$(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$	$\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$	$(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$	$\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$	$(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$
85%	15%	87,6926	12,3073	2,1923	0,3076
92,50%	7,50%	93,9422	6,0577	2,3485	0,1514
100%	0%	100	0	2,5	0

#### k) **Kompaksi**

Setelah masing-masing serbuk bercampur sesuai dengan komposisi yang diinginkan tahapan selanjutnya adalah penimbangan. Pada tahap ini tiap-tiap komposisi ditimbang masing-masing 0,5 gram dan 1 gram. Kemudian dibungkus dengan menggunakan kertas timbang. Tahap selanjutnya adalah kompaksi. Tujuan dari tahap ini untuk membentuk

padatan  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4\text{-(Zr,Ca)O}_2$  dari serbuk menjadi bentuk *bulk* padatan. Metode yang digunakan adalah metode *Dry pressing* dengan dua piston (*double uniaxial*). Serbuk yang telah ditimbang dimasukkan kedalam cetakan yang berdiameter 8 mm dengan beban penekanan yang diberikan sebesar  $60 \text{ Kg/cm}^2$  kemudian ditahan selama 20 detik. Hasil dari proses kompaksi ini adalah pelet mentah.



**Gambar 3.9 Mesin press yang digunakan untuk kompaksi.**

Pelet mentah hasil kompaksi kemudian ditimbang massa dan tingginya untuk diukur kerapatannya.

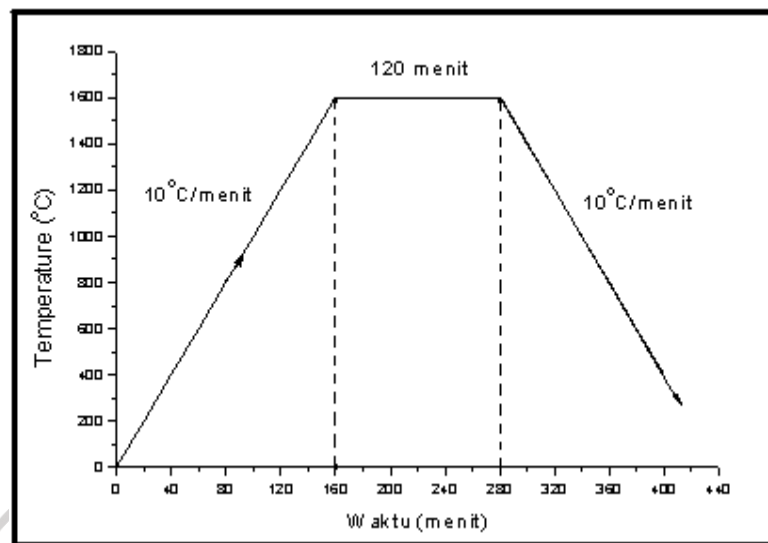


**Gambar 3.10 Pelet mentah hasil kompaksi.**

#### 1) Proses sinter

Setelah pelet mentah diketahui rapat massanya, proses selanjutnya adalah sintering. Sebelum pelet mentah disinter terlebih dahulu pelet diurutkan dan ditempatkan diatas keramik alumina yang telah dilapisi serbuk alumina. Pengurutan pelet bertujuan untuk mencegah tertukarnya pelet satu dengan pelet yang lain yang telah diketahui rapat massanya dan komposisinya. Sedangkan serbuk alumina bertujuan untuk mencegah terjadinya reaksi antara pelet dengan keramik.

Proses sinter merupakan salah satu proses yang sangat penting dalam pembuatan keramik. Pada proses ini terjadi beberapa mekanisme atomik yang sangat berpengaruh terhadap pemadatan (*densifikasi*) (Barsoum, 1997). Proses penyinteran ini dilakukan pada suhu  $1600^{\circ}\text{C}$  dengan penahanan selama dua jam. Proses ini dibagi menjadi tiga tahap. Tahap pertama yaitu proses pemanasan dengan laju pemanasan  $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  sampai suhu  $1600^{\circ}\text{C}$ . Tahap kedua yaitu tahap penahanan suhu  $1600^{\circ}\text{C}$  selama dua jam dan tahap ketiga yaitu proses pendinginan dengan laju pendinginan  $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  sampai mendekati suhu ruang.



**Gambar 3.11** Grafik sintering keramik  $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4\text{-(Zr,Ca)O}_2$  suhu  $1600^\circ\text{C}$  dengan waktu penahanan selama 2 jam.

### 3.5.2 Karakterisasi dan pengujian keramik $\text{MgO-MgAl}_2\text{O}_4$ dengan penambahan $(\text{Zr,Ca})\text{O}_2$

#### a) Pengukuran rapat massa pelet

Pengukuran rapat massa pelet dilakukan dengan menimbang massa pelet dan mengukur dimensi pelet yaitu tinggi dan diameternya dengan menggunakan mikrometerskrup. Ada dua pengukuran rapat massa pelet yaitu pengukuran rapat massa pelet sebelum disinter dan pengukuran rapat massa pelet setelah disinter. Pada pengukuran rapat massa pelet sebelum disinter hanya menimbang massa dan mengukur tinggi pelet sedangkan diameter pelet tidak diukur hal ini untuk mencegah terjadinya deformasi dan diameter pelet dihitung berdasarkan diameter cetakan. Sedangkan pada pengukuran rapat massa pelet setelah disinter tidak hanya menimbang massa dan mengukur tingginya tapi diameter pelet juga diukur.

**b) Difraksi sinar-X**

Difraksi sinar x merupakan karakterisasi yang digunakan untuk mengetahui struktur kristal dan parameter kisinya. Pengujian XRD pada sampel dilakukan di PTNBR BATAN Bandung. Alat yang digunakan menggunakan prinsip difraktometer dengan menggunakan radiasi Cu dengan panjang gelombang  $\lambda = 1.5405$  nm.

**c) Scanning Electron Microscope (SEM)**

Untuk mengetahui struktur mikro yang berkaitan dengan gambaran permukaan atau tekstur dari suatu benda, ukuran dan bentuk partikel penyusun maka dilakukanlah uji struktur mikro dengan menggunakan alat Scanning Electron Microscope (SEM). Permukaan morfologi merupakan permukaan pelet bagian luar. Uji SEM dilakukan di Institut Teknologi Bandung (ITB).

**d) Uji kekerasan dengan metode Vickers**

Pengujian kekerasan dengan metode Vickers bertujuan menentukan kekerasan suatu material dalam bentuk daya tahan material terhadap intan berbentuk piramida dengan sudut puncak 136 Derajat yang ditekankan pada permukaan material uji tersebut. Untuk memudahkan pada saat pengujian ini maka sampel perlu diampelas dan dipoles agar permukaannya menjadi mengkilat dan rata. Sebelum diampelas, sampel dimasukkan kedalam cetakan plastik kemudian dimasukkan resin kedalamnya yang telah ditambahkan katalis dengan tujuan untuk mempermudah pemegangan selama proses pengampelasan dan pemolesan. Untuk membedakan antara sampel yang

satu dengan sampel yang lain maka sebelum resin kering dimasukkan kertas yang telah diberi tanda tertentu.

Proses pengampelasan dilakukan dengan mesin *Knuth Rotors*. Kertas amplas yang digunakan adalah silicon carbide (SiC) dengan tingkat kekasaran (280, 400, 600, 800, 1000, 1200, 1500 mesh). Proses pemolesan dengan menggunakan mesin *Knuth Rotors* yang telah diberi kain beludru dan serbuk alumina.



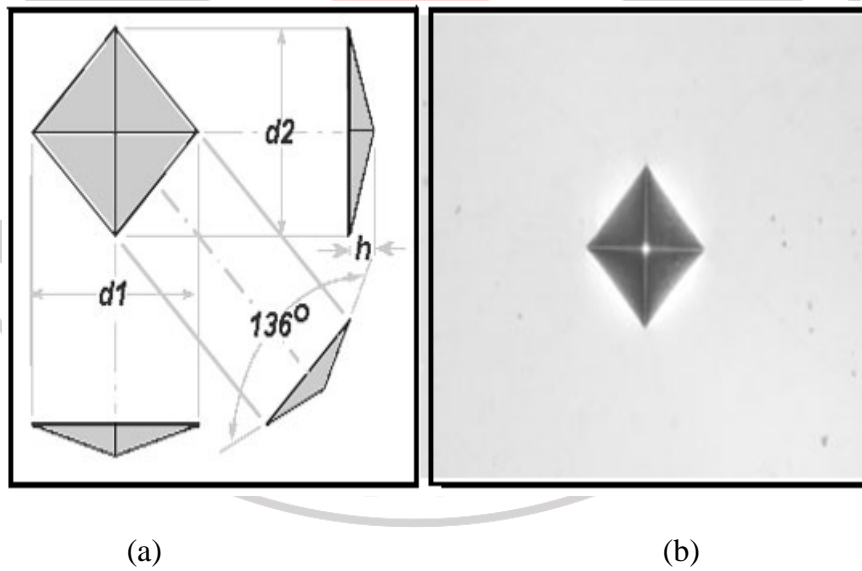
**Gambar 3.12** Mesin poles *Knuth Rotors*.

Setelah permukaan sampel mengkilat dan rata maka baru dilakukan uji kekerasan vickers. Pengujian kekerasan ini dengan menggunakan mesin Zwick 3212 di PTNBR BATAN dengan jumlah pengujian sebanyak 10 titik dengan beban 1 Kg dan lama pembebanan 10 detik. Hasilnya dilihat dengan menggunakan *microscope* untuk mengetahui panjang diagonal bujur sangkar untuk menentukan nilai kekerasan vickers.





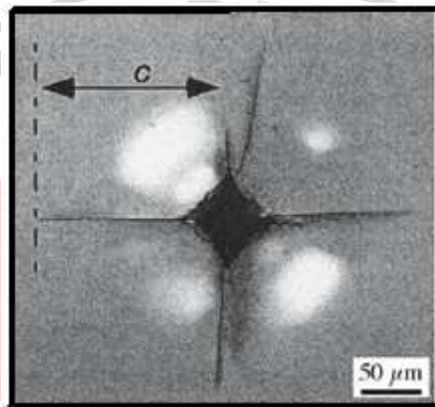
Gambar 3.13 Mesin Zwick 3212 untuk uji Vickers.



Gambar 3.14 Uji kekerasan Vickers a. Skema uji vickers b. Hasil indentasi vickers.

e) **Uji ketangguhan patah (*Fracture toughness*)**

Selain digunakan untuk menentukan nilai kekerasan sampel, metode indentasi vickers juga bisa digunakan untuk mengukur ketangguhan patah. Retakan yang ditimbulkan oleh indenter yang jatuh pada bahan dapat digunakan untuk mengukur ketangguhan patahnya ( $K_{IC}$ ).



**Gambar 3.15 Retak hasil uji indentasi (Carter dan Norton,2007).**

f) **Uji Inertness (ketidakreaktifan dengan air)**

Salah satu karakteristik yang penting dari matriks inert adalah ketahanan terhadap air (*inertness*). Tujuan dilakukannya pengujian ini adalah untuk mengetahui ketahanan keramik terhadap air . pengujian ini dilakukan pada suhu  $100^{\circ}\text{C}$  selama 4 jam.

### 3.6 Alat dan bahan penelitian

Pada penelitian ini bahan yang digunakan yaitu:

a) Magnesium Klorida heksa hidrat ( $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )	
Pro Analis 99,9%	28,56 gram
b) Aluminium Klorida ( $\text{AlCl}_3$ )	
c) Pro Analis 99,9%	18,74 gram
d) Asam Sitrat ( $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$ )	9,606 gram
e) Zirkonia tetragonal ( $\text{ZrO}_2$ ) Aldrich 99,9%	13,875 gram
f) Kalsium Oksida ( $\text{CaO}$ ) Aldrich 99,9%	1,125gram
g) Aquades	secukupnya
h) Etanol	secukupnya
i) Resin	secukupnya
j) Pengeras ( <i>hardener</i> )	secukupnya

Dan alat-alat yang digunakan pada penelitian ini yaitu:

a) Gelas kimia 1000 ml	2 buah
b) Heater dengan stirrel magnet (rot basic) temperature max 300°C, Mot 10	1 buah
c) Neraca digital (Metler Taledo AB 104) max 101 gr, min 10 mg, e 1 mg dan d 0,1 mg.	1 buah
d) Kertas saring	secukupnya
e) Cawan	1 buah
f) Alat penggerus mortal agate	1 buah
g) Alat penggerus <i>Karl Kolb Scientific T.S D-6074</i>	

- |    |   |        |
|----|---|--------|
|    |   |        |
|    |   |        |
| h) | Alat kompaksi <i>Pressure yamamoto kiki seizo k.k</i> | 1 buah |
|    | tekanan max 200 Kg/cm <sup>2</sup>                    | 1 buah |
| i) | Micrometer scrup skala ketelitian 0,01 mm             | 1 buah |
| j) | Tungku sinter   | 1 buah |
| k) | Alat uji Vickers <i>Zwick 3212</i>                    | 1 buah |
| l) | Mesin poles <i>Knut rottor</i>                        | 1 buah |

