

BAB III

METODE

3.1. Waktu dan Lokasi Penelitian

Penelitian ini terdiri dari tahap sintesis, karakterisasi, dan pengujian kinerja. Untuk tahap preparasi, sintesis, karakterisasi, dan uji kinerja dilaksanakan di Pusat Riset Material Maju Badan Riset dan Inovasi Nasional (PRMM BRIN) KST B.J. Habibie. Karakterisasi lainnya dilakukan di Laboratorium Fisika Maju BRIN KST B.J. Habibie dan Laboratorium Kimia BRIN Bandung KST Samaun Samadikun. Waktu penelitian dimulai dari bulan Februari 2024 sampai dengan Desember 2024.

3.2. Alat dan Bahan

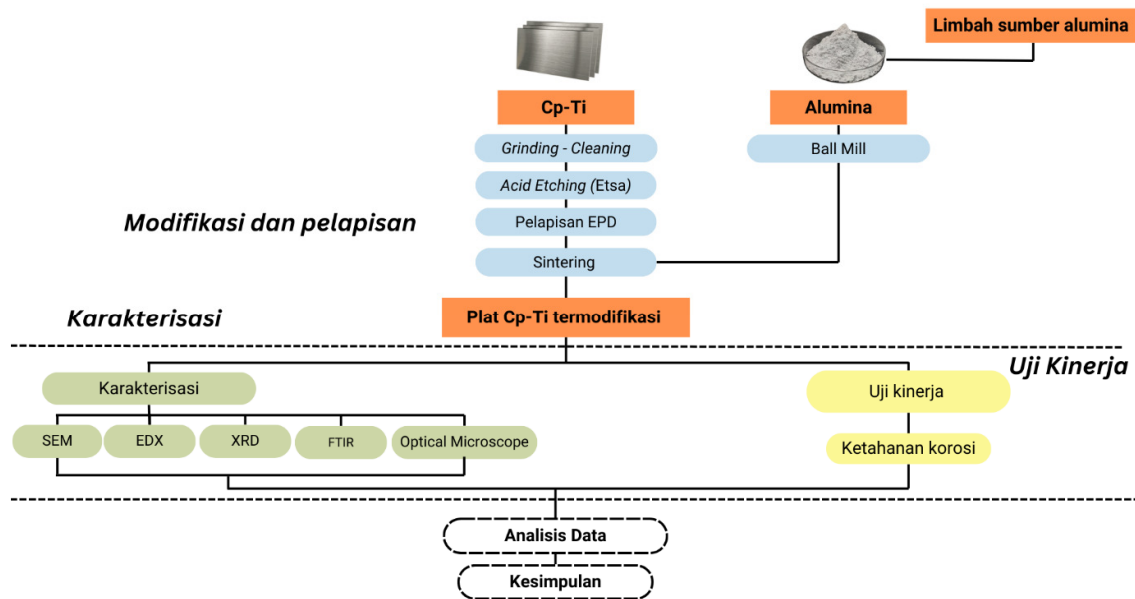
Alat-alat yang digunakan pada tahap sintesis berupa gelas kimia, gelas ukur, batang pengaduk, spatula, pengaduk magnetik, botol semprot, kaca arloji, pipet tetes, neraca analitik, desikator, sonikator, *hot plate*, *counter electrode* berupa grafit. Alat untuk mendukung proses preparasi dan pelapisan substrat ialah *grinding polisher* dan power supply. Instrumentasi seperti Spektrometer Inframerah (*FTIR*) – *Thermo Scientific Nicolet iS-10*, *X-Ray Diffraction* (XRD) Smartlab Rigaku (*Cu-Source*), *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX), *3D Optical Microscope* Mikroskop digital VHX-5000, *Particle Size Analyzer* Partica LA-950V2, Brunauer-Emmett-Teller (BET) Autosorb iQ (Quantachrome Instruments, Amerika Serikat), Zeta Potential Analyzer Zetasizer Nano ZS (Malvern Instruments, Inggris). Potensiostat jenis Parstat 4000A digunakan untuk alat pengujian korosi menggunakan

Bahan yang digunakan adalah kaleng merk “Pocari sweat” H_2SO_4 , HCl , NaOH , Plat Cp-Ti , kertas abrasif (#120-#2500), etanol, dimethylformamide (DMF), larutan *acid etching* atau etsa berupa HF dan HNO_3 , aquades, *deionized water* (DI), larutan *simulated body fluid* (SBF) yang terdiri dari NaCl , NaHCO_3 , KCl , $\text{K}_2\text{HPO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, HCl , CaCl_2 , Na_2SO_4 , dan Tris (tris-hydroxymethyl-aminomethane).

3.3. Tahap Penelitian

Tahap Penelitian ditunjukkan pada gambar 3.1

METODE

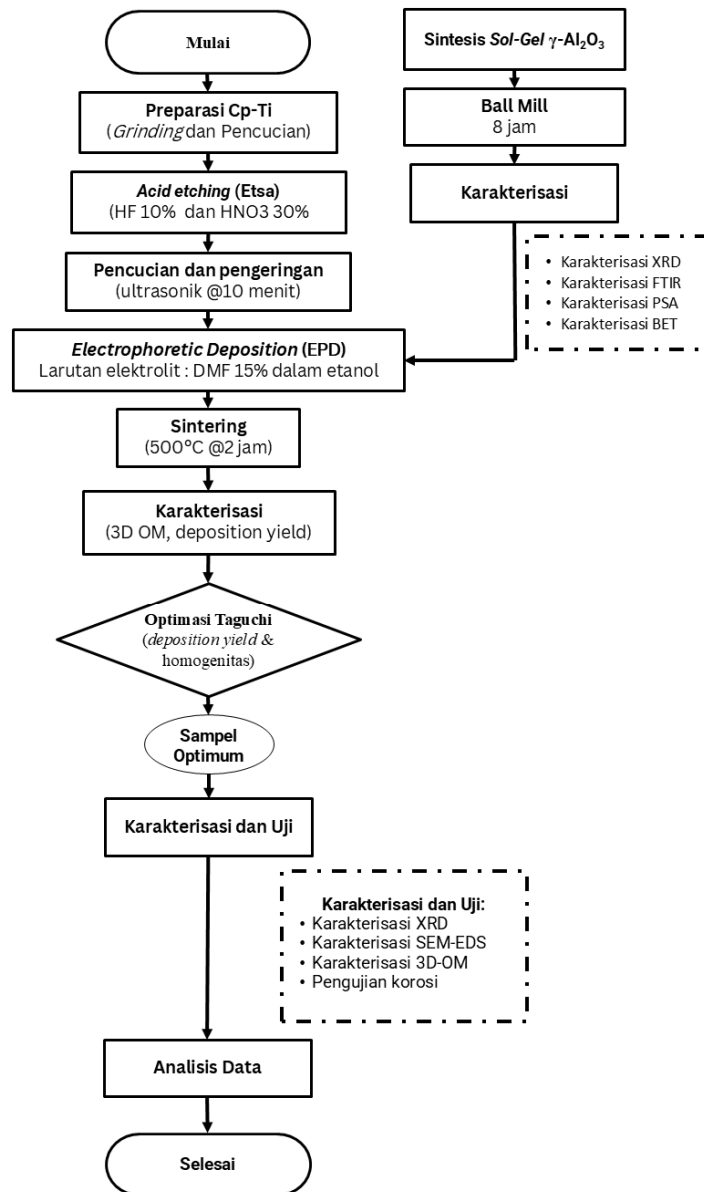


Gambar 3. 1. Tahap Penelitian

3.4. Prosedur Penelitian

Prosedur penelitian ditunjukkan pada Gambar 3.2

METODE



Gambar 3. 2. Prosedur penelitian

3.4.1. Sintesis Gamma Alumina

Alumina disintesis dengan metode sol-gel dengan menggunakan bahan dari limbah kaleng merk “Pocari Sweat”. Limbah kaleng minuman dipotong menjadi ukuran kecil yaitu 1x1 cm untuk memudahkan penghilangan cat yang menempel pada permukaan kaleng dan mempermudah proses pelarutan kaleng pada langkah berikutnya. Proses penghilangan lapisan cat pada kaleng dilakukan dengan memasukkan potongan-potongan kaleng ke dalam larutan

METODE

asam sulfat (H_2SO_4) yang dicampur dengan aquades dengan perbandingan volume 1:1. Asam sulfat memiliki kemampuan melarutkan senyawa organik dalam cat yang dapat mengakibatkan dekomposisi dan kerusakan struktur cat. Setelah proses pelarutan cat, potongan-potongan kaleng disaring dan dicuci menggunakan aquades yang dilanjutkan proses pengeringan di suhu ruang.

Setelah proses pengeringan, potongan-potongan kaleng ditimbang sebanyak 10 gram kemudian dilarutkan proses pelarutan dengan larutan NaOH 3M sebanyak 200 ml pada suhu $70\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 2 jam. Setelah itu, larutan disaring untuk memisahkan pengotor. Filtrat yang diperoleh kemudian ditambahkan larutan HCl 5M sedikit demi sedikit sampai pH 9 untuk pembentukan sol. Setelah itu, dilanjutkan tahap pembentukan gel melalui proses *aging* pada suhu $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 24 jam di dalam oven. Setelah proses *aging* selesai, tahap selanjutnya adalah tahap pencucian gel dengan aquades untuk menghilangkan pengotor yang masih ada selama proses sintesis. Pencucian dilakukan sampai pH gel mencapai 6 dan dilanjutkan proses pengeringan menggunakan oven pada suhu $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 24 jam. Hasil dari proses pengeringan ini berupa padatan, yang kemudian dihaluskan dan disaring menggunakan saringan 300 mesh sebelum menjalani tahap kalsinasi. Tahap kalsinasi dilakukan pada suhu 600°C - 800°C selama 2 jam di dalam furnis dengan laju pemanasan $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$.

3.4.2. Reduksi Ukuran Partikel

Serbuk alumina digiling menggunakan ball mill planetary model untuk mereduksi ukuran partikel. Serbuk alumina digiling bersamaan dengan bola berjumlah 29, terdiri dari 8 bola berukuran besar (diameter 3 cm) dan 21 bola berukuran kecil (diameter 1 cm). Serbuk alumina diproses menggunakan alat ball mill selama 4 jam dengan waktu istirahat selama 1 jam dengan interval 2 jam. Alumina yang telah diproses ball mill kemudian dipisahkan dari bola dan disaring menggunakan saringan berukuran 300 mesh.

3.4.3. Preparasi Sampel EPD

Pada proses pelapisan EPD terdapat dua proses. Tahap pertama melibatkan persiapan suspensi stabil dari partikel yang akan dideposisikan. Selain itu substrat dan suspensi juga perlu dipreparasi sebelumnya untuk memastikan substrat dan suspensi siap digunakan dalam proses EPD. Pada tahap kedua, partikel atau molekul yang bermuatan akan bergerak di bawah pengaruh medan listrik yang diberikan (Saleem et al., 2020).

METODE

3.4.3.1. Preparasi Substrat

Plat Cp-Ti dipotong hingga berukuran 10 mm x 20 mm. Setelah itu plat dihaluskan dengan alat digrinding dengan kertas abrasif SiC pada grit 120 sampai dengan 2500. Grinding merupakan teknik pemesinan abrasif yang melibatkan penghilangan material dengan butiran abrasif (Ronoh et al., 2022). Sebelum digunakan sebagai substrat pada proses EPD, plat Cp-Ti ducuci dengan etanol dan air secara berurutan masing-masing selama 10 menit di dalam ultrasonikator. Substrat kemudian dikeringkan pada suhu ruang.

Plat Cp-Ti kemudian di-*etch* menggunakan larutan HF dan HNO₃ (Wysocki et al., 2016). Plat direndam dengan larutan HF 10% (v/v) dengan cara merendamnya selama 5 menit (Zahran et al., 2016). Proses *etch* asam dihentikan melalui pencucian dengan akuades, dilanjutkan perendaman di dalam larutan HNO₃ 25% (v/v) selama 3 menit. Proses *etch* ini bertujuan untuk memodifikasi permukaan Ti agar mencapai topografi *micro roughness* pada permukaan permukaan plat (Medvedev et al., 2016). Selanjutnya, plat Cp-Ti disonikasi di dalam etanol dan akuades, masing-masing 10 menit, kemudian dibiarkan kering pada suhu ruang. Substrat Cp-Ti pun siap digunakan untuk proses pelapisan

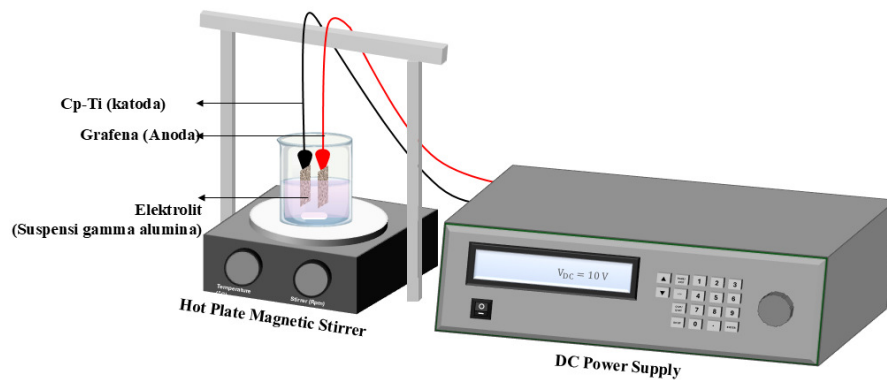
3.4.3.2. Preparasi Suspensi

Suspensi alumina disiapkan dengan mendispersikan alumina ke dalam campuran etanol:DMF (9:1) kemudian dilakukan sonikasi dan pengadukan masing-masing selama 30 menit (Jassim et al., 2016). Untuk variasi parameter pH, suspensi ditambahkan HCl 1M untuk mendapatkan pH asam dan NaOH 1M untuk mendapatkan pH basa. Penambahan HCl dan NaOH dilakukan dengan menambahkan tetes demi tetes hingga mendapatkan pH yang diinginkan. Kemudian suspensi diaduk kembali hingga pH stabil. pH suspensi diukur pH meter

3.4.4. Pelapisan Alumina dengan Metode EPD

Plat Cp-Ti yang telah diberikan pre-treatment dimasukkan ke dalam suspensi alumina dan diposisikan sebagai anoda. Di sisi lain, menggunakan grafit sebagai *counter electrode*. Jarak antara kedua elektroda diatur sebesar 2 cm untuk menjaga kestabilan proses deposisi. Sebagai sumber listrik, digunakan catu daya DC. Proses EPD dilakukan dengan variasi parameter yakni pH, konsentrasi dan voltase dan dilakukan selama 10 menit. Plat Ti yang telah terlapisi alumina kemudian diangkat secara perlahan dan dibiarkan kering. Setelah kering, sampel disinter dengan tube furnace selama 1 jam pada suhu 500 °C dengan dialiri gas argon. Proses EPD ditunjukkan pada gambar 3.3.

METODE



Gambar 3. 3. Skema proses EPD gamma alumina

3.4.5. Desain Eksperimen Metode Taguchi

Percobaan Taguchi dikonstruksi untuk optimasi parameter EPD menggunakan perangkat lunak Minitab17. Dalam penelitian ini, rangkaian percobaan Taguchi digunakan untuk mengoptimalkan parameter proses EPD dengan memanfaatkan perangkat lunak Minitab 17. Metode DoE Taguchi menggunakan rangkaian ortogonal tipe L9, yang memungkinkan pengujian kombinasi parameter secara efisien. Faktor parameter yang digunakan ialah pH suspensi, konsentrasi dan tegangan yang diberikan selama EPD. Masing masing memiliki tiga level seperti yang diilustrasikan pada Tabel 3. 1.

Tabel 3. 1. Parameter deposisi alumina dengan metode EPD

pH	Konsentrasi (g/L)	Voltase (V)
2	1	10
9	3	20
12	5	30

Berdasarkan desain eksperimen Taguchi, total 9 percobaan dibuat seperti yang ditunjukkan pada Tabel 3.2. Parameter (pH, konsentrasi dan tegangan) divariasikan sesuai dengan Tingkat yang dipilih dan pengaruh nya terhadap hasil deposisi yakni massa terdeposisi dan homogenitas lapisan. Setiap eksperimen dilakukan pengulangan tiga kali, dengan demikian 27 percobaan dilakukan.

METODE

Tabel 3. 2. Rangkaian Taguchi *Design of Experiment* (DoE)

Sampel	Parameter		
	pH	Konsentrasi (g/L)	Tegangan (V)
A2-1	2	1	10
A2-3	2	3	20
A3-5	2	5	30
A9-1	9	1	20
A9-3	9	3	30
A9-5	9	5	10
A12-1	12	1	30
A12-3	12	3	10
A12-5	12	5	20

Massa terdeposisi dihitung dengan menghitung selisih berat. Substrat ditimbang sebelum dan sesudah pelapisan menggunakan neraca analitik (akurat hingga 0,0001 g). Sementara itu, homogenitas lapisan dianalisis dengan menggunakan mikroskop alat 3D Optical Microscope (3D OM) pada perbesaran 20x untuk memperoleh citra permukaan lapisan. Citra yang dihasilkan kemudian diolah dan dianalisis menggunakan perangkat lunak ImageJ. Perangkat lunak ini digunakan untuk menghitung persentase area lapisan yang menutupi permukaan substrat, sehingga dapat diketahui tingkat sebaran dan homogenitas lapisan yang terbentuk pada substrat.

Setelah mengulangi setiap percobaan sebanyak tiga kali, nilai rata-rata hasil deposisi, standar deviasi, dan rasio signal to noise (S/N) untuk hasil deposisi dihitung dengan menggunakan persamaan 3.1 dan persamaan 3.2

$$\text{massa terdeposisi} = \Delta \text{massa} / A \quad (3.1)$$

Di mana Δmassa = massa setelah pelapisan – massa sebelum pelapisan, dan A = area lapisan.

Hasil pelapisan yang diinginkan adalah hasil deposisi yang lebih tinggi dengan nilai standar deviasi yang lebih rendah. Rasio S/N untuk hasil deposisi dihitung dengan menggunakan persamaan 2

METODE

$$\frac{S}{N} \text{ ratio massa terdeposisi} = -10 \log \left[\frac{1}{n} \sum 1/y^2 \right] \quad (3.2)$$

Di mana y = massa terdeposisi dan n = nomor observasi .

3.4.6. Karakterisasi

Karakterisasi yang dilakukan pada penelitian ini terbagi menjadi dua yakni karakterisasi serbuk alumina hasil sintesis dan karakterisasi hasil parameter EPD. Karakterisasi serbuk alumina meliputi Analisa fasa serbuk alumina dengan difraksi sinar X (XRD), Analisa gugus fungsi (FTIR) distribusi ukuran partikel, dan luas permukaan (BET). Karakterisasi parameter EPD meliputi karakterisasi suspensi seperti zeta potensian, dan mobilitas. Selain itu morfologi, topografi kekasaran pelapisan juga dianalisis.

3.4.6.1. Analisa fasa kristalin serbuk alumina (Difraksi sinar X)

Karakterisasi fasa kristalin dilakukan menggunakan difraktometer sinar-X Bruker D8 Advance (Billerica, MA, Amerika Serikat). Difraktometer ini beroperasi dalam mode refleksi dengan sumber radiasi Cu-K α . Difraksi dilakukan dengan menggunakan monokromator sinar terdifraksi untuk memastikan keakuratan dan kualitas data. Pengukuran dilakukan dalam mode pemindaian langkah (step scan) dengan ukuran langkah sebesar 0,05° pada rentang sudut 2 θ antara 20° hingga 80°. Rentang ini dipilih untuk mengidentifikasi pola difraksi kristal serta fasa yang terbentuk. Data difraksi sinar-X kemudian dianalisis untuk menentukan fasa kristalin. Analisa hasil karakterisasi dibantu menggunakan perangkat lunak analisis data XRD yakni HighScore Plus dengan mengacu pada basis data standar seperti JCPDS (Joint Committee on Powder Diffraction Standards) dan ICDD (International Center for Diffraction Data)

3.4.6.2. Analisa gugus fungsi alumina (FTIR)

Spektroskopi inframerah transformasi Fourier (FT-IR, Spectrum RX I, PerkinElmer, Waltham, Massachusetts, New England, AS) digunakan untuk mempelajari gugus fungsi dan ikatan kimia serbuk alumina hasil sintesis pada rentang panjang gelombang 400-4000 cm⁻¹

3.4.6.3. Distribusi Ukuran Partikel

Distribusi ukuran partikel dianalisis menggunakan alat analisis hamburan laser Partica LA-950V2 (Horiba, Jepang) Pengukuran dilakukan pada serbuk alumina sebelum dan sesudah proses ball mill untuk mengevaluasi pengaruh proses penggilingan terhadap ukuran partikel. Prosedur pengukuran dimulai dengan menambahkan serbuk alumina ke dalam etanol:DMF

METODE

(9:1) sebagai media suspensi. Sampel kemudian diperlakukan dengan ultrasonikasi selama 30 menit menggunakan alat ultrasonik untuk mendispersi partikel dan memastikan tidak ada aglomerasi, sehingga distribusi ukuran partikel dapat diukur dengan lebih akurat. Proses ultrasonikasi ini membantu memecah partikel-partikel yang saling menggumpal (aglomerat) menjadi partikel individu.

Hasil distribusi ukuran partikel ditampilkan dalam bentuk kurva distribusi dengan sumbu X sebagai ukuran partikel (mikrometer) dan sumbu Y sebagai persentase volume partikel pada setiap ukuran. Parameter yang dianalisis meliputi ukuran rata-rata partikel (d_{50}) dan distribusi ukuran partikel secara keseluruhan. Data ini digunakan untuk memastikan bahwa proses ball mill telah berhasil mengurangi ukuran partikel sesuai dengan spesifikasi yang diinginkan.

3.4.6.4. Luas permukaan alumina

Metode Brunauer-Emmett-Teller (BET) dilakukan untuk menentukan luas permukaan spesifik, volume pori, dan distribusi ukuran pori. Analisis dilakukan dengan menggunakan alat Autosorb iQ (Quantachrome Instruments, Amerika Serikat), yang bekerja berdasarkan prinsip adsorpsi dan desorpsi gas nitrogen pada suhu rendah. Sebelum pengukuran, serbuk alumina dipreparasi melalui proses degassing pada suhu 300°C selama 1 jam untuk menghilangkan kelembapan atau gas yang teradsorpsi secara fisik pada permukaan partikel. Proses ini bertujuan untuk memastikan hanya molekul gas nitrogen yang berinteraksi dengan permukaan partikel selama analisis, sehingga menghasilkan data yang akurat. Selama karakterisasi, gas nitrogen dialirkan secara bertahap dengan tekanan parsial yang meningkat, dan jumlah gas yang teradsorpsi dicatat.

Data adsorpsi ini digunakan untuk membangun isoterm adsorpsi-desorpsi, yang dianalisis menggunakan model BET untuk menghitung luas permukaan spesifik serbuk. Selain itu, distribusi ukuran pori dianalisis menggunakan metode Barrett-Joyner-Halenda (BJH) berdasarkan data desorpsi. Karakterisasi ini bertujuan untuk mengevaluasi sifat-sifat serbuk alumina, terutama luas permukaan dan struktur pori, yang berperan penting dalam proses deposisi dan kinerja lapisan hasil deposisi. Informasi ini membantu memahami bagaimana sifat serbuk alumina dapat memengaruhi kualitas dan homogenitas lapisan pada substrat.

METODE

3.4.6.5. Zeta potential, mobilitas dan konduktifitas suspensi

Karakterisasi zeta potensial suspensi alumina dilakukan untuk menentukan stabilitas elektrokinetik partikel dalam campuran pelarut etanol dan dimetilformamida (DMF). Analisis ini dilakukan menggunakan alat Zeta Potential Analyzer Zetasizer Nano ZS (Malvern Instruments, Inggris), yang bekerja berdasarkan prinsip Dynamic Light Scattering (DLS).

Suspensi alumina disiapkan dengan mencampurkan serbuk alumina ke dalam campuran pelarut etanol dan DMF dengan pH yang divariasikan. Suspensi kemudian dihomogenisasi menggunakan alat ultrasonikasi selama 30 menit untuk memastikan partikel terdispersi secara merata tanpa adanya aglomerasi. Sampel suspensi yang telah homogen dimasukkan ke dalam kuvet khusus untuk analisis zeta potensial, yang dilakukan pada suhu ruang (25°C). Alat Zetasizer mengukur pergerakan partikel bermuatan di bawah pengaruh medan listrik untuk menentukan nilai zeta potensial, yang mencerminkan tingkat stabilitas suspensi.

Selain itu, konduktivitas larutan dihitung untuk menentukan kemampuan larutan menghantarkan listrik, yang berkorelasi dengan kehadiran ion dalam suspensi. Mobilitas partikel di bawah medan listrik dianalisis untuk memahami pergerakan partikel bermuatan, yang memengaruhi proses deposisi elektroforesis (EPD). Hasil pengukuran mencakup nilai zeta potensial, konduktivitas, dan mobilitas elektrokinetik partikel. Nilai zeta potensial memberikan informasi tentang stabilitas suspensi, sedangkan nilai konduktivitas dan mobilitas partikel digunakan untuk mengoptimalkan parameter proses EPD, seperti tegangan dan waktu deposisi. Kombinasi data ini memastikan bahwa suspensi memiliki stabilitas yang cukup untuk menghasilkan lapisan yang homogen dan berkualitas tinggi pada substrat.

3.4.6.6. Morfologi lapisan

Morfologi lapisan dianalisa menggunakan *digital 3D microscope* VHX 6000. Mikroskop ini dilengkapi dengan perangkat lunak canggih yang memungkinkan pengukuran dan analisis parameter topografi. Pengukuran dilakukan dengan menghasilkan citra 3D dari permukaan lapisan. Fitur citra 3D ini memungkinkan pengamatan mendetail terhadap topografi lapisan, baik dalam skala garis (line roughness) maupun area permukaan (surface area roughness) termasuk kekasaran rata rata aritmatik (S_a), kekasaran kuadrat rata-rata (S_q), dan kekasaran maksimum (S_z). Proses ini memberikan informasi yang penting terkait distribusi kekasaran pada lapisan, yang sangat relevan untuk mengevaluasi kualitas permukaan lapisan hasil deposisi.

METODE

Pengukuran dilakukan dengan menghasilkan citra 3D dari permukaan lapisan. Fitur citra 3D ini memungkinkan pengamatan mendetail terhadap topografi lapisan, baik dalam skala garis (line roughness) maupun area permukaan (surface area roughness). Proses ini memberikan informasi yang penting terkait distribusi kekasaran pada lapisan, yang sangat relevan untuk mengevaluasi kualitas permukaan lapisan hasil deposisi.

3.4.7. Uji Korosi

Uji korosi dilakukan menggunakan metode Potentiodynamic Polarization (PDP) untuk mengevaluasi perilaku korosi pada Cp-Ti yang tidak dilapisi (uncoated) dan dilapisi alumina. Pengujian dilakukan dalam larutan Simulated Body Fluid (SBF) yang disiapkan. Prosedur ini menggunakan *workstation* elektrokimia dengan sistem tiga elektroda, yaitu elektroda referensi Ag/AgCl, elektroda counter berupa pelat platinum berbentuk jaring, dan sampel uji sebagai elektroda kerja (*working electrode*). Sebelum eksperimen PDP dilakukan, sampel direndam dalam larutan SBF selama setidaknya 30 menit untuk memastikan stabilisasi *Open Circuit Potential* (OCP). Eksperimen PDP dilaksanakan dengan laju pindai (*scan rate*) sebesar 10 mV/s dalam rentang potensial -1 hingga $+1$ V terhadap OCP. Analisis data dilakukan menggunakan perangkat lunak VersaStudio melalui pendekatan Tafel untuk menentukan parameter korosi, seperti densitas arus korosi (I_{corr}) dan potensial korosi (E_{corr}).

3.4.7.1. Pembuatan Larutan Simulated Body Fluid (SBF)

Sebanyak 700 mL deionized water (DI water) dipanaskan dalam beaker plastik hingga mencapai suhu $36,5 \pm 1,5$ °C sambil diaduk secara konstan menggunakan pengaduk magnetik. Beaker ditutup dengan plastic wrap untuk mencegah kontaminasi selama proses berlangsung. Selanjutnya, reagen ditambahkan satu per satu secara berurutan, dimulai dari NaCl, NaHCO₃, KCl, K₂HPO₄·3H₂O, MgCl₂·6H₂O, HCl, CaCl₂, dan Na₂SO₄. Setiap reagen harus larut sempurna sebelum reagen berikutnya ditambahkan, dan pelarutan dilakukan pada suhu konstan $36,5 \pm 1,5$ °C dengan pengadukan terus-menerus. Setelah reagen utama larut, DI water ditambahkan hingga volume larutan mencapai 900 mL. pH larutan awal diukur dan dipastikan berada pada $2,0 \pm 1,0$. Tris (tris-hydroxymethyl-aminomethane) kemudian ditambahkan secara bertahap sambil memantau perubahan pH larutan.

Setiap penambahan Tris dilakukan sedikit demi sedikit, dengan memastikan larutan homogen dan pH stabil sebelum melanjutkan penambahan. Penambahan Tris dilanjutkan hingga pH larutan mencapai $7,30 \pm 0,05$. Jika pH melampaui $7,45 \pm 0,01$, larutan HCl 1M

METODE

ditambahkan secara bertetes untuk menurunkan pH hingga $7,42 \pm 0,01$, dengan hati-hati agar pH tidak turun di bawah 7,40. Penyesuaian pH ini diulangi hingga seluruh Tris larut sempurna dan pH larutan stabil di angka $7,40 \pm 0,01$.

Larutan yang telah selesai disiapkan kemudian dipindahkan ke dalam labu ukur 1000 mL. Beaker yang digunakan untuk pelarutan dibilas dengan DI water, dan bilasan dimasukkan ke dalam labu ukur hingga tanda batas tercapai. Larutan SBF yang telah selesai disiapkan digunakan untuk pengujian korosi pada sampel.