

STUDI DEKOMPOSISI TERMAL Al_2TiO_5 PADA FGM $\alpha-Al_2O_3/Al_2TiO_5-Y_2O_3$

Erni Junita Sinaga

Institut Teknologi Nasional Malang
Jl. Bendungan Sigura-gura no. 2 Malang 65145
erni_junita@yahoo.com

ABSTRAK.

Studi dekomposisi termal Al_2TiO_5 (AT) pada FGM $\alpha-Al_2O_3/Al_2TiO_5-Y_2O_3$ hasil sintesis dengan metode infiltrasi berulang. Telah dilakukan studi dekomposisi AT pada FGM $\alpha-Al_2O_3/Al_2TiO_5-Y_2O_3$ hasil sintesis infiltrasi berulang, terutama mengamati pengaruh penambahan Y_2O_3 (yttria) sebagai aditif. FGM dibuat dengan langkah berikut: (1) pencampuran serbuk $\alpha-Al_2O_3$ dan 2 wt% nanopartikel yttria hasil kopresipitasi, (2) serbuk campuran dipres secara uniaksial pada tekanan 37 MPa, (3) presinter serbuk yang dipres pada suhu $1000^\circ C$ selama 1 jam, (4) pencelupan pra keramik sebanyak 3kali, setiap pencelupan dikeringkan pada suhu $80^\circ C$, (5) selanjutnya disinter pada temperatur $1450^\circ C$ selama 3 jam. Untuk mengetahui kestabilan termal AT, sampel diuji dekomposisi dengan cara dianil selama 0, 5, 10, 15 dan 20 jam dan derajat dekomposisi ditentukan dengan menggunakan fraksi berat fasa hasil keluaran analisis Rietveld dari data XRD. Hasil analisis kuantitatif menunjukkan bahwa penambahan 2% nanopartikel yttria pada FGM $\alpha-Al_2O_3/Al_2TiO_5$ menghasilkan $Y_2Ti_2O_7$ (yttrium titanat) yang dapat mempengaruhi dekomposisi AT. Hasil ini menunjukkan bahwa dengan penambahan 2% Y_2O_3 pada FGM, secara kualitatif dapat mengurangi laju dekomposisi termal Al_2TiO_5 untuk jangka pendek (< 20 jam). Proses dekomposisi termal AT dapat direduksi yang dibuktikan dengan penurunan intensitas dan kandungan AT pada permukaan FGM yang tidak signifikan dibandingkan dengan FGM dengan 0% nanopartikel yttria.

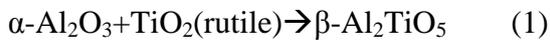
Kata kunci: FGM, dekomposisi, yttria, Al_2TiO_5 , yttrium titanat

PENDAHULUAN

Aluminium titanat (Al_2TiO_5 atau AT) atau tialit merupakan material keramik yang koefisien ekspansi termalnya rendah, mempunyai titik leleh tinggi, ketahanan kejutan termalnya tinggi, konduktivitas termal rendah dan tahan rusak (Low, 2008). Sifat-sifat itu menjadikan AT merupakan kandidat yang baik untuk aplikasi material temperatur tinggi sebagaimana dilaporkan oleh

Charlton dan Watts (1991). Aplikasi sebagai komponen isolasi termal pada bilik putaran mesin diesel menunjukkan bahwa komponen itu bertahan dalam menyelesaikan uji tanpa terjadi kerusakan. Aluminium titanat dapat dibuat dengan mereaksikan secara sintering melalui reaksi persamaan perbandingan molar dari alumina dan titania (rutile) diatas suhu $1280^\circ C$ (Kato

dkk., 1980), jika oksidasi dengan udara akan menghasilkan:



Struktur kristal AT adalah tipe pseudobrookite yang mempunyai struktur kristal orthorhombic, dengan grup ruang $c\text{mcm}$ dan parameter kisi: $a = 3,591 \text{ \AA}$, $b = 9,429 \text{ \AA}$ dan $c = 9,636 \text{ \AA}$ (Zaharescu dkk., 1998). Jika ditinjau dari ketidakstabilan termalnya maka pada rentang suhu $900\text{--}1280 \text{ }^\circ\text{C}$, mengakibatkan AT akan terdekomposisi kembali menjadi bentuk awal yaitu korundum dan TiO_2 rutile. Ketidakstabilan termal ini dapat dikontrol dengan penambahan Fe_2O_3 , MgO , SiO_2 , ZrO_2 , ZrSiO_4 and La_2O_3 (Wohlfromm dkk 1991, Buscaglia dkk, 1997; Jayasankar dkk, 2007). Pengintian mendominasi selama dekomposisi (Kameyama dan Yamaguchi, 1976). Ishitsuka dkk (1987) mengatakan substitusi Al oleh Si dan Mg efektif dalam mengontrol dekomposisi termal tetapi efek substitusi Ti oleh Zr kecil, Dekomposisi termal dari AT akan terjadi sempurna pada temperatur $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan penambahan 1 sampai 3% SiO_2 , 5% ZrO_2 , dan 5% MgO . Sedangkan penambahan mullite (Yano dkk, 1986) dan Fe_2O_3 (Battilana dkk, 1995) juga dapat mempertinggi kestabilan.

Bahan ubahan gradual (*Functionally-Graded Materials, FGMs*) merupakan material komposit padat yang komposisinya bervariasi dan strukturnya yang gradual menghasilkan perubahan pada sifat-sifat material (Niino dalam

Canillo, 1995). *FGM* berbasis AT telah dibuat sebelumnya dengan menggunakan metode infiltrasi berulang (Umaroh & Pratapa, 2009 dan Sinaga, EJ & Pratapa, 2010). Aditif yang digunakan pada penelitian itu adalah MgO dan yttria Y_2O_3 . Umaroh (2009) melaporkan bahwa MgO sebagai aditif AT pada *FGM* AT/A- MgO dapat mengurangi proses dekomposisi AT menjadi rutile dan korundum, karena pada penambahan 2% MgO terbentuk *solid solution* $\text{Al}_2(1-x)\text{Mg}_x\text{Ti}_{1+x}\text{O}_5$. Tulisan ini melaporkan hasil uji dekomposisi AT pada *FGM* AT/A dengan Y_2O_3 sebagai aditif.

Derajat dekomposisi ditentukan dengan menggunakan fraksi berat relatif fasa hasil keluaran analisis Rietveld dari data *XRD*.

METODOLOGI

Bahan dasar yang digunakan adalah serbuk korundum ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3 = \text{A}$) dan serbuk nanopartikel yttria (Y_2O_3) hasil kopresipitasi dan larutan TiCl_3 20% sebagai infiltran. Pembuatan sampel *FGM* A/AT- Y_2O_3 aditif yttria 0 dan 2 wt% Y_2O_3 yaitu pencampuran serbuk antara $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ dan 0 ; 2 wt% yttria nanopartikel hasil kopresipitasi, Selanjutnya serbuk campuran dipres secara uniaksial pada tekanan 37 MPa, kemudian di prasinter pada suhu 1000°C selama 1 jam. Selanjutnya di infiltrasi sebanyak 3 kali yang diselingi pengeringan pada suhu 80°C . Pencelupan pra keramik sebanyak 3 kali, setiap pencelupan dikeringkan pada suhu 80°C , selanjutnya disinter pada temperatur

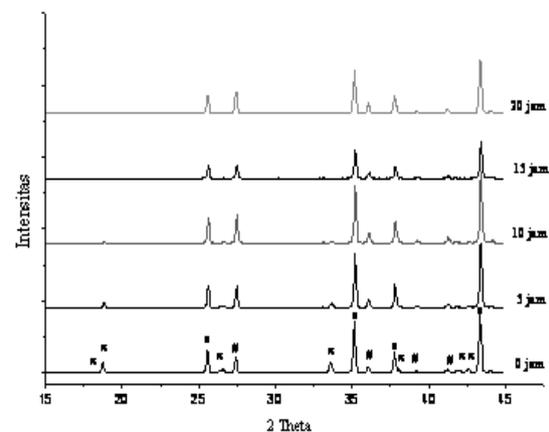
1450°C selama 3 jam agar terjadi reaksi antara prekursor dengan matriknya (reaksi untuk membentuk AT) dan pemadatan komposit. Untuk mengetahui kestabilan termal AT, sampel diuji dekomposisi dengan cara dianil selama 0, 5, 10, 15 dan 20 jam. Derajat dekomposisi ditentukan dengan menggunakan fraksi berat fasa hasil keluaran analisis Rietveld dari data XRD dengan menggunakan difraktometer Philips X'Pert MPD, dari permukaan masing-masing sampel dikumpulkan.

HASIL DAN PEMBAHASAN

1 Hasil Pengukuran Difraksi Sinar-X

Pola difraksi sinar-x *FGM A/AT-Y₂O₃* dengan komposisi berat 0% Y_2O_3 disajikan pada gambar 1. Dekomposisi AT pada *FGM* dikarakterisasi dengan menggunakan difraksi sinar-x guna menentukan pembentukan AT dan rutile. *FGM* 0% Y_2O_3 menunjukkan pada waktu anil 5 jam AT pada permukaan sudah mulai terdekomposisi, ini dibuktikan dengan munculnya fasa rutile yang jumlahnya meningkat sampai waktu anil 20 jam, kemudian AT terdekomposisi dengan tajam sampai pada waktu anil 10 jam sekitar 79%, bahkan waktu anil 15 dan 20 jam kandungan AT tidak ditemukan lagi. Ini menunjukkan fasa AT terdekomposisi sempurna menjadi fasa pembentuknya yaitu korundum dan rutile. Fenomena ini mengindikasikan *FGM* tanpa aditif menunjukkan kandungan AT sudah mulai terdekomposisi pada waktu anil 5 jam dan derajat dekomposisi termal yang terjadi tinggi. Studi seperti

penelitian yang pernah dilakukan Nagano dkk (1999), AT tanpa aditif yang dianil pada 1100°C, dan ternyata AT sudah terdekomposisi sebesar 75% dalam waktu anil 8 jam, tetapi dengan penambahan $ZrSiO_4$ dalam perbandingan mol (80:20) pada waktu anil 8 jam, AT belum terdekomposisi.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-x pada permukaan *FGM A/AT-0% Y₂O₃*, suhu anil 1000 °C.

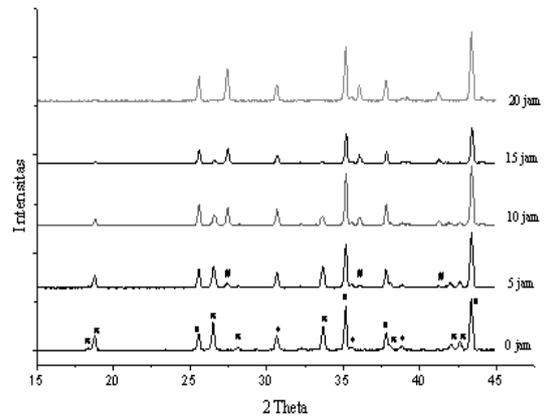
Ket: x = AT, o = korundum, # = rutile.

Gambar 2 menunjukkan hasil dekomposisi termal *FGM A/AT- Y₂O₃* dengan 2% Y_2O_3 terhadap variasi waktu anil. Pada waktu anil 5 jam, AT sudah mulai terdekomposisi menjadi korundum dan rutile ditandai dengan munculnya fasa rutile (sudut $2\theta = 27,4^\circ$) yang intensitasnya meningkat dengan tajam sampai pada waktu anil 10 jam, selanjutnya meningkat secara perlahan sampai waktu anil 20 jam.

Intensitas korundum juga meningkat terhadap waktu anil. Sedangkan AT menurun terhadap waktu anil, sementara intensitas yttrium titanat ($Y_2Ti_2O_7$) cenderung konstan.

Terlihat bahwa dengan penambahan 2% Y_2O_3 pada *FGM* maka dekomposisi AT dapat direduksi untuk anil jangka pendek (< 20 jam). Sementara untuk anil di atas 20 jam tidak dapat mereduksi dekomposisi termal AT, karena AT akan terdekomposisi sempurna menjadi korundum dan rutil. Dari hasil ini dapat dikatakan bahwa Y_2O_3 adalah aditif yang kurang efektif untuk menstabilkan AT. Fenomena ini diindikasikan karena besarnya jari-jari ion Y^{3+} (0,88Å) tidak dapat mensubstitusi Ti^{4+} (0,68Å) yang lebih kecil atau Al^{3+} (0,51Å).

Pratapa dkk (1997), menggunakan zirkonia sebagai penstabil *FGM* AT/AZ yang dianil pada suhu 1050 °C dengan waktu anil 0, 2, 4 dan 6 jam. Hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa adanya zirkonia dalam *FGM* dapat mereduksi dekomposisi termal AT, tetapi hanya waktu anil yang pendek (<6 jam). Ishitsuka dkk (1987) mengatakan bahwa zirkonia merupakan penstabil yang kurang baik untuk AT. Sementara Wohlfromm dkk (1991), zirkonia merupakan penstabil yang tidak efektif untuk AT karena ketidakmampuan Zr^{4+} yang relatif besar (jari-jari ion = 0,79Å) untuk mensubstitusi Ti^{4+} (0,68Å) atau Al^{3+} (0,51Å).



Gambar 2. Pola difraksi sinar-x pada permukaan *FGM* A/AT-2% Y_2O_3 , suhu anil 1000 °C.

Ket: x = AT, o = korundum, * = yttrium titanat, # = rutil.

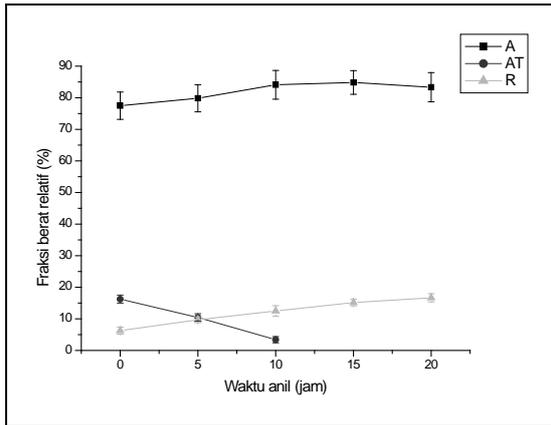
Gambar 1 dan 2 menunjukkan bahwa tingkat dekomposisi *FGM* 2% Y_2O_3 lebih rendah dibanding *FGM* 0% Y_2O_3 . Ini berarti yttrium titanat mempengaruhi dekomposisi AT. Hasil ini menunjukkan bahwa dengan penambahan 2% Y_2O_3 pada *FGM*, secara kualitatif dapat mengurangi laju dekomposisi termal AT untuk jangka pendek (< 20 jam).

2 Fraksi Berat Relatif Fasa

Tingkat dekomposisi termal yang terjadi pada *FGM* A/AT dengan 0 dan 2% Y_2O_3 dapat diketahui dari nilai persentase fraksi berat relatif komposisi fasa yang terkandung dalam *FGM* tersebut.

Gambar 3 menunjukkan fraksi berat fasa-fasa pada *FGM* A/AT- Y_2O_3 dengan komposisi berat 0% yttria. Gambar tersebut menyatakan kandungan fasa AT menurun dengan drastis mulai waktu anil 5 sampai 10 jam. Fraksi berat relatif fasa

AT masing-masing besarnya mulai waktu anil 0, 5, 10 jam, yaitu: 16,2(13); 10,0(12); dan 2,9(9)% dan pada waktu anil 15 dan 20 jam fasa AT sudah habis terdekomposisi.



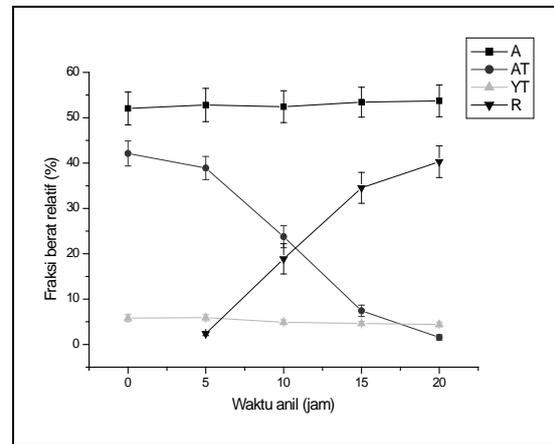
Gambar 3. Fraksi berat relatif fasa-fasa pada FGM A/AT-0% Y₂O₃ terhadap waktu anil.

Simbol: A= korundum, AT = aluminium titanat, dan R = rutile.

Hal ini disebabkan kandungan fasa AT di permukaan kecil pada waktu anil 0 jam dan terdapat residu rutile yang tak bereaksi dengan korundum sebagai matriks. Pada penelitian ini tidak dilakukan pengulangan sinter untuk meningkatkan kandungan AT (Skala dkk., 2009).

Kandungan rutile pada waktu anil 5 jam sebesar 6,8(1)%, kemudian dilanjutkan masing-masing pada waktu anil 10 sampai 20 jam kandungannya sebesar 12,5(17) hingga 16,7(12)%. Kandungan korundum juga mengikuti kecenderungan yang sama, yaitu terhadap waktu anil, mulai dari 83,2(46) sebelum anil menjadi

87,2(39)% pada anil 20 jam. Fenomena ini seperti studi yang telah dilakukan oleh Arenas, dkk. (2003), AT tanpa aditif terdekomposisi sempurna pada suhu 1100°C selama 100 jam. Penstabil (FeTiO₃+Fe₂O₃) memperlambat dekomposisi AT selama 100 jam pada suhu 1100°C, stabilisasi maksimum tercapai dengan penambahan 10% (FeTiO₃+Fe₂O₃) karena terbentuk isostuktur Fe₂TiO₅.



Gambar 4 Fraksi berat relatif fasa-fasa pada FGM A/AT-2% Y₂O₃ terhadap waktu anil

Simbol: A = korundum, AT = aluminium titanat, YT = yttrium titanat dan R = rutile.

Pada Gambar 4 terlihat bahwa fraksi berat fasa AT pada permukaan FGM A/AT-Y₂O₃ menurun secara perlahan mulai waktu anil 5-20 jam. Sebelum perlakuan anil (0 jam) kandungan AT sebesar 42,1(28) tetapi kandungan AT pada waktu anil 5 sampai 15 jam menurun masing-masing sebesar 38,9(26); 23,8(24) dan 7,4(13), kemudian

pada waktu anil 20 jam ternyata kandungannya masih tersisa 1,6(6). Adapun untuk besar kandungan rutile mengalami kenaikan dengan perlahan dari waktu anil 5 jam sebesar 2,4(4), lalu masing-masing pada waktu anil 10 sampai 15 jam sebesar 18,9(33) dan 34,5(46) dan pada waktu anil 20 jam kandungan rutile hanya sebesar 40,3(58). Untuk kandungan korundum juga meningkat dari waktu anil 5 jam sampai pada waktu anil 20 jam, sementara kandungan yttrium titanat cenderung konstan. Fenomena tersebut mengindikasikan bahwa penambahan 2% yttria membentuk fasa baru yaitu yttrium titanat ($Y_2Ti_2O_7$) yang dapat mengurangi laju dekomposisi AT menjadi rutile dan korundum.

Hasil ini berbeda dengan *FGM* dengan 0% yttria yang menunjukkan adanya peningkatan kandungan rutile dan penurunan kandungan AT yang signifikan seiring waktu anil bahkan AT sudah habis terdekomposisi sempurna pada waktu anil 15 dan 20 jam. Penelitian ini seperti yang telah dilaporkan oleh Umaroh (2009), yang menyatakan bahwa penambahan 2% MgO dapat mengurangi laju dekomposisi AT menjadi korundum dan rutile karena pada penambahan 2% MgO terbentuk solid solution $Al_2(1-x)Mg_xTi_{1+x}O_5$ yang mempunyai efek menguntungkan dalam upaya menstabilkan dekomposisi termal AT ini dibuktikan dengan penurunan intensitas dan kandungan AT pada permukaan *FGM* tidak signifikan dibandingkan dengan *FGM* dengan 0% MgO. Penelitian lain tentang sintesis AT dengan penstabil mullite melaporkan

bahwa penambahan 15% mullite pada AT juga dapat mengurangi derajat dekomposisi secara drastis. AT yang mengandung Si dan Mg lebih stabil dalam mengontrol dekomposisi termal ketika dipanaskan antara 150-1100°C (Yano dkk., 1986).

Selanjutnya untuk mengetahui laju dekomposisi AT pada permukaan *FGM* A/AT- Y_2O_3 dilakukan pemodelan linier seperti yang ditunjukkan pada tabel 1. Gradien *FGM* 2% Y_2O_3 lebih besar dibandingkan *FGM* 0% Y_2O_3 masing-masing sebesar 2,25 dan 1,29. Berdasarkan nilai gradien tersebut maka diketahui bahwa laju dekomposisi *FGM* 0% Y_2O_3 lebih tinggi daripada *FGM* 2% Y_2O_3 . Fenomena ini menunjukkan bahwa 2% Y_2O_3 adalah aditif yang dapat mereduksi laju dekomposisi AT permukaan *FGM* A/AT- Y_2O_3 Y_2O_3 , namun efeknya hanya untuk waktu anil jangka pendek (<20 jam).

Tabel 1. Pemodelan linier laju dekomposisi AT terhadap waktu anil pada permukaan *FGM* A/AT- Y_2O_3

Komposisi berat Y_2O_3 (%)	0	2
Gradien	-1,29	-2,25
Perpotongan	16,46	45,29
Korelasi R	0,99	0,96

KESIMPULAN

Penambahan 2% Y_2O_3 pada *FGM* A/AT- Y_2O_3 terbentuk fasa yttrium titanat

yang dapat mereduksi laju dekomposisi AT pada FGM A/AT-Y₂O₃, namun efeknya hanya untuk waktu anil jangka pendek (< 20 jam).

DAFTAR PUSTAKA

1. Arenas, Irene Barrios de dan Oswaldo, Gil. (2003), "Synthesis and properties of in situ Al₂TiO₅/Al₂O₃ composite", *Journal of Materials Processing Technology*, vol.143–144, p. 838–842.
2. Battilana, G., Buscaglia, V., Nanni P. dan Aliprandi, G., (1995). Effect of MgO and Fe₂O₃ on Thermal Stability of Al₂TiO₅. *In High Performance Materials an Engine Technology* (ed. Vincenzini, P.), p. 147-154.
3. Bayer, G., (1971). Thermal Expansion Characteristics and Stability of Pseudobrookite-type Compounds, Me₃O₅. *J.Less-Common Metal*, 24: p. 129-138.
4. Buscaglia, V., Nanni P., Battilana, G., liprandi, G. and Carry, C., (1994). Reaction Sintering of Aluminium Titanate: II- Effect of Different lumina Powders. *Journal of the European Ceramic Society*, 13: p. 419-426.
5. Buscaglia, V., Caracciolo, F., and Leoni, M., (1997). Synthesis, sintering and expansion of 10.8Mg0.6Ti1.6O₅: a low-thermal-expansion material resistant to thermal decomposition. *Journal of Materials Science*, 32: p. 6525- 6531.
6. Buessem, W.R., Thielke, N.R. and arakauskas, R.V., (1952). Thermal Expansion Hysteresis of Aluminium Titanate. *Ceramic Age* 60, p. 38.
7. Charlton, S. J. and Watts, M. J., (1991). An Investigation of thermal Insulator of IDI Diesel Engines Swirl Chambers. *Proc. Instn. Mech. Eng.*, 205: p. 263-269.
8. Ishitsuka, M., Sato, T., Endo, T. and Shimada, M., (1987). Syntesis and Thermal Stability of Aluminium Titanate Solid Solutions. *J. Am. Ceramic Soc*, 2: p. 69-71.
9. Jayasankar, M., Ananthakumar, S., Mukundan, P. and Warriar, K.G.K., (2007). Low temperature synthesis of aluminium titanate by an aqueous sol-gel route. *Materials Letters*, 61: p. 790-793.
10. Kameyama, T. dan Yamaguci, T. (1976), *Yogyo kyoaishi* 84, 589. (Dikutib dari Paper oleh Thomas dan Stevens (1989).
11. Kim, J.Ik. dan Gauckler, Ludwig J., (2008). Excellent thermal shock resistant materials with low thermal expansion coefficients. *Journal of Ceramic Processing Research*, 9: p. 240-245.
12. Kato, E., Daimon, K. and Takahashi, J., (1980). Decomposition Temperatur of Al₂TiO₅. *Journal of the American Ceramic Society*, 63: p. 355-356.
13. Koizumi, M., and Niino, M., (1995). Overview of FGM. *MRS Bulletin*, 1: p. 19-21.
14. Low, I.M. dan Oo, Z. (2008), "Reformation of phase composition in decomposed aluminium titanate", *Materials Chemistry and physics*, vol 111, hal 9-12.

15. Nagano, M., Nagashima, S., Maeda, H., Kato, C. (1999), "Sintering behavior of Al₂TiO₅ base ceramics and their thermal properties", *Ceramics International*, vol 25, hal 681-687.
16. Ohya, Y., Nakagawa, Z. and Hamano, K., (1987). Grain boundary Microcracking due to Thermal Expansion Anisotropy in Aluminium Titanate. *J. Am. Ceram. Soc.* , 70(8): p. 184- 186.
17. Pratapa, S., (1997). Syntesis and character of a functionally-graded aluminium titanate/zirconia alumina composite. Thesis, Curtin University of technology, Australia.
18. Sinaga, E.J., Pratapa, S., (2010). Sintesis dan Kekerasan FGM A/AT aditif Y₂O₃ dengan Metode Infiltrasi Berulang. Tesis, Jurusan Fisika FMIPA ITS Surabaya.
19. Skala, R.D., Li, D. and Low, I.M., (2009). Diffraction, structure and phase stability studies on aluminium titanate. *Journal of the European Ceramic Society*, 29: p. 67–75.
20. Umaroh, K., Pratapa, S., (2009). Sintesis FGM dengan Metode infiltrasi Berulang. Tesis, Jurusan Fisika FMIPA ITS Surabaya.
21. Wohlfromm, H., Epicier, T., Moya, J.S., Pena, P. and Thomas, G., (1991). Microstructural Characterization of Aluminium Titanatebased Composite Materials. *Journal of the European Ceramic Society*, 7: p. 385-396.
22. Zaharaescu, M., Crisan, M., Preda, M., Fruth, V. and Preda, V., (2003). Al₂TiO₅-Based ceramic obtained by hydrothermal process. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 5: p. 1411-1416.