

# Kekerasan Dari Lapisan $Ti_{1-x}Zr_x$ dan TiC pada Grafit yang Disiapkan dengan Metode PIRAC

Nur Muhaimin, Suasmoro

Jurusan Fisika, Fakultas MIPA, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

*e-mail:* suasm@physics.its.ac.id

**Abstrak**—Pelapisan grafit dengan serbuk titanium melalui metode PIRAC (*Powder Immersion Reaction Assisted Coating*) telah berhasil dilakukan dengan variasi temperatur 850°C, 900°C, dan 950°C selama 10 jam. Pelapisan grafit tanpa penambahan  $ZrO_2$  menghasilkan lapisan TiC. Sedangkan pelapisan grafit dengan penambahan  $ZrO_2$  menghasilkan lapisan paduan  $Ti_{1-x}Zr_x$ . Lapisan TiC yang dihasilkan dari penelitian ini memiliki kekerasan yang lebih besar dari lapisan paduan  $Ti_{1-x}Zr_x$  yang terbentuk dalam penelitian ini. Masing-masing lapisan memiliki kekerasan lebih tinggi dari grafit yang dilapisi. Grafit yang digunakan memiliki kekerasan 45 HV. Lapisan TiC yang terbentuk memiliki kekerasan rata-rata sebesar 2504 HV. Lapisan paduan  $Ti_{1-x}Zr_x$  yang terbentuk memiliki kekerasan rata-rata sebesar 282 HV.

**Kata Kunci**— Kekerasan, lapisan TiC, lapisan paduan  $Ti_{1-x}Zr_x$  metode PIRAC,  $ZrO_2$ .

## I. PENDAHULUAN

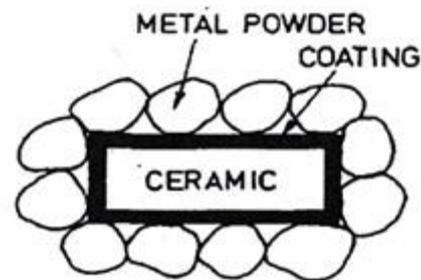
Pada dekade ini grafit banyak diaplikasikan pada bidang industri. Aplikasi grafit misalnya untuk pembuatan roket dan reaktor nuklir. Pada pembuatan roket, grafit diaplikasikan pada temperatur tinggi. Pada kenyataannya grafit teroksidasi pada temperatur di atas 400°C dalam lingkungan mengandung oksigen atau klorin [1]. Selain itu, grafit juga mudah tererosi (kekerasan grafit hanya 1-2 mho). Oleh karena itu dilakukan pelapisan untuk memperbaiki sifat grafit. Salah satu sifat yang perlu diperbaiki yaitu tingkat kekerasannya.

Peningkatan kekerasan grafit dapat dilakukan dengan cara melapisi permukaan grafit dengan material refraktori. Salah satu material refraktori yang dapat dilapiskan yaitu dari golongan karbida, misalnya TiC (titanium carbide). TiC sebagai material pelapis telah digunakan dalam industry karena sifat ketahanan korosi yang bagus, tahan aus, dan kekerasan yang tinggi. TiC memiliki titik leleh > 3000°C dan kekerasan 9 mho [2]. Selain TiC,  $ZrO_2$  juga memiliki tingkat kekerasan yang tinggi, sekitar 6,5-7,5 mho [3]. Diharapkan dengan penambahan  $ZrO_2$  juga dapat meningkatkan tingkat kekerasan grafit.



**Gambar 1.** TiC (*Titanium Carbide*) [4]

Berdasarkan literatur diperoleh bahwa proses pelapisan TiC dapat dilakukan dengan metode CVD (Chemical Vapor Deposition), PVD (Physical Vapor Deposition) seperti sputtering, evaporasi, dan metode PIRAC (*Powder Immersion Reaction Assisted Coating*) [5]. Kelemahan dari proses CVD dan PVD yaitu adhesi yang rendah antara substrat dan lapisan, yang sering menghasilkan delaminasi. Sedangkan metode PIRAC merupakan metode difusi yang dapat menghasilkan adhesi yang kuat antara lapisan dengan substrat.



**Gambar 2.** Skema dari lapisan non oksida keramik oleh reaksi serbuk metal, sampel keramik dibenamkan ke dalam serbuk metal [6]

Proses vakum untuk pelapisan pada temperatur tinggi merupakan proses yang kompleks, sehingga untuk mempermudah proses pelapisan digunakan atmosfer gas. Berdasarkan penelitian sebelumnya dilaporkan bahwa proses pelapisan TiC dapat optimal dalam atmosfer gas argon. Yodium dilibatkan sebagai katalis karena dari penelitian sebelumnya penelitian tanpa penambahan yodium dalam serbuk titanium tidak dapat menghasilkan lapisan TiC.

Berdasarkan penjelasan di atas, penelitian ini dilakukan dengan metode PIRAC dalam waktu tahan 10 jam, variasi temperatur, dan variasi perlakuan pelapisan permukaan grafit sebelum direaksikan dalam proses perlakuan panas. Selanjutnya dapat dianalisis pengaruh beberapa variasi ini terhadap tingkat kekerasan lapisan.

## II. METODE PENELITIAN

### A. Tahap pembuatan sampel

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu grafit, kanji, serbuk  $ZrO_2$ , titanium metalik powder > 98% dan iodine 'sublimated for analysis' yang disuplai dari Merck serta ZO-paint. Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu tabung reaktor yang terbuat dari stainless steel high chrome S45, 'gloves box' yaitu tempat untuk menyiapkan sampel berupa kotak plastik dan pompa vakum, proses heat treatment dalam tube-furnace dengan atmosfer argon 99,999%, ultrasonic cleaner Branson 1200, mortar, spatula, dan penjepit,

heater untuk tempat mengolah lem kanji. Untuk karakterisasi XRD digunakan Bragg-Brentano Pan Analytical X'pert X-Ray, untuk karakterisasi permukaan sampel menggunakan SEM EVO MA 10 Carl Zeiss Microscopy, untuk uji kekerasan Vickers menggunakan perangkat Micro Kekerasan Vickers Mitutoyo HM 211.

Pada tahap ini, grafit dipotong berbentuk balok sebanyak 2 buah dengan dimensi masing-masing  $1 \times 1 \times 0,5 \text{ cm}^3$  dan densitas  $2,09\text{-}2,23 \text{ g/cm}^3$ . Balok grafit diberi nama A dan B. Serbuk titanium ditimbang dengan massa  $3,17 \text{ gram}$  kemudian ditambahkan yodium sebanyak  $4\%$  dari massa titanium. Selanjutnya kanji ditimbang dengan massa  $0,5 \text{ gram}$ . Kanji dicampurkan ke dalam aquades sebanyak  $20 \text{ ml}$  lalu dipanaskan dalam heater selama  $15 \text{ menit}$  agar menjadi lem kanji.  $\text{ZrO}_2$  ditimbang sebanyak  $1 \text{ gram}$  dan ditambahkan ke dalam  $10 \text{ ml}$  lem kanji kemudian diaduk hingga merata.

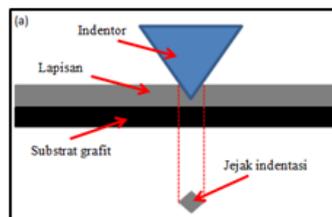
Serbuk titanium dan yodium yang telah ditimbang tadi dihaluskan hingga tercampur merata. Selanjutnya campuran ini diletakkan dan ditutup dalam aluminium foil. Tabung reactor dan sampel grafit dibersihkan dengan ultrasonic cleaner selama  $15 \text{ menit}$ . Kemudian tabung reactor dan sampel grafit dikeluarkan dan dikeringkan di lemari pengering selama  $5 \text{ menit}$ . Selanjutnya campuran lem kanji dan  $\text{ZrO}_2$  dilapiskan secara merata ke permukaan balok grafit B. Untuk permukaan balok grafit A tanpa dilapisi. Setelah persiapan selesai, dimasukkan kedua balok grafit, campuran serbuk titanium dan yodium,  $2 \text{ tabung reactor}$ , ZO-paint, penjepit, dan spatula ke dalam gloves box.

Satu lubang di glove box dihubungkan ke tabung gas argon dan satu lubang lainnya dihubungkan ke pompa vakum. Selanjutnya udara dalam gloves box dipompa keluar dengan pompa vakum, diulangi  $5 \text{ kali}$ . Kemudian dialirkan gas argon ke dalam glove box untuk membuat atmosfer argon dalam glove box, diulangi sebanyak  $5 \text{ kali}$  untuk meminimalisir adanya oksigen dalam gloves box. Sebelum gas dialirkan ke dalam gloves box, dipastikan terlebih dahulu gloves box tidak mengalami kebocoran. Lalu dimasukkan campuran serbuk titanium dan yodium ke dalam salah satu tabung reactor hingga kira-kira memenuhi  $1/3$  tinggi tabung reaktor. Kemudian balok grafit A dimasukkan dan dilanjutkan dengan campuran serbuk titanium dan yodium hingga tabung reactor terisi penuh. Kemudian tabung reactor ditutup rapat dan disegel (sealed) dengan ZO-paint pada penutupnya sehingga menghindari adanya kontak dengan oksigen. Selama tahap persiapan ini, tetap dialirkan gas argon ke dalam gloves box untuk mempertahankan atmosfer argon.

Setelah persiapan dalam gloves box, kemudian dilakukan proses perlakuan panas. Perlakuan panas dilakukan dengan suhu  $950^\circ\text{C}$  dalam atmosfer gas argon seperti dalam gloves box. Untuk lebih meyakinkan bahwa tube-furnace bebas dari oksigen, sebelum proses perlakuan panas dimulai, gas argon dialirkan terlebih dahulu ke dalam tube-furnace selama  $15 \text{ menit}$ . Perlakuan panas ini dilakukan dalam waktu tahan selama  $10 \text{ jam}$ . Adapun variasi suhu yang dilakukan yaitu  $850^\circ\text{C}$ ,  $900^\circ\text{C}$ ,  $950^\circ\text{C}$ .

## B. Karakterisasi sampel

Karakterisasi kekerasan pada lapisan dengan metode kekerasan *Vicker's* seperti pada Gambar 3 berikut.



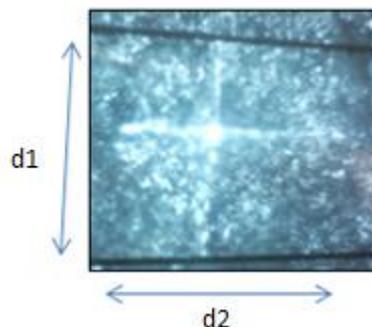
**Gambar 3.** Ilustrasi indentasi (a) pada lapisan

## III. HASIL DAN DISKUSI

Setelah tahap sintesis selesai diproses, kemudian dilakukan pengujian kekerasan menggunakan metode kekerasan *Vicker's*. Pada mulanya, digunakan variasi beban uji indentasi sebesar  $0,5 \text{ kgf}$  pada substrat grafit. Dari pengujian ini diperoleh nilai kekerasan grafit sebesar  $45 \text{ HV}$ . Nilai kekerasan substrat yang digunakan dalam penelitian ini sesuai dengan nilai kekerasan grafit yang berada pada rentang  $27 \text{ HV}$  sampai  $61 \text{ HV}$ .

Selanjutnya dilakukan pengujian pada lapisan sampel A untuk variasi temperatur  $950^\circ\text{C}$  dengan beban uji sebesar  $0,5 \text{ kgf}$ . Dari pengujian ini diperoleh nilai kekerasan lapisan sebesar  $2504 \text{ HV}$ . Nilai kekerasan ini mengindikasikan bahwa lapisan yang terbentuk merupakan lapisan TiC sesuai dengan hasil penelitian oleh López dan kawan-kawan pada tahun 2007. Nilai kekerasan ini membuktikan bahwa lapisan TiC yang terbentuk memiliki nilai kekerasan yang jauh lebih besar dari nilai kekerasan pada grafit, yaitu sekitar  $56 \text{ kali lipat}$ . Kedalaman indentasi sebesar  $2,8031 \text{ }\mu\text{m}$  sedangkan ketebalan lapisan rata-rata sebesar  $297,3 \text{ }\mu\text{m}$ . Kedalaman indentasi ini mengkonfirmasi bahwa nilai kekerasan yang dihasilkan murni hasil dari pengujian pada lapisan TiC yang terbentuk pada sampel A. Adapun nilai kekerasan yang meningkat ini disebabkan karena TiC merupakan bahan keramik yang memiliki ikatan ionik sebagai penyusunnya.

Gambar 4 menggambarkan contoh kondisi sampel setelah dikenai uji kekerasan *Vicker's*.



**Gambar 4.** Bekas indentasi hasil uji kekerasan *Vicker's* pada sampel A dengan beban uji  $0,5 \text{ kgf}$

Berdasarkan Gambar 4 diperoleh data untuk nilai diagonal 1, diagonal 2, dan nilai kekerasan dari sampel A. Data tersebut digunakan untuk menentukan nilai kedalaman indentasi ( $\delta$ ) dan kedalaman indentasi ternormalisasi ( $\beta$ ). Sampel A memiliki tebal rata-rata lapisan TiC  $t = 12,83 \text{ }\mu\text{m}$ , diperoleh nilai diagonal 1,  $d1 = 56,2 \text{ }\mu\text{m}$ , diagonal 2,  $d2 = 66,84 \text{ }\mu\text{m}$ , dan nilai kekerasan

HV = 244,9 HV. Untuk lebih memperjelas proses perhitungan, maka diberikan contoh perhitungan sebagai berikut:

$$d = \frac{(d1 + d2)}{2}$$

$$d = \frac{(56,2 \mu\text{m} + 66,84 \mu\text{m})}{2}$$

$$d = 61,52 \mu\text{m}$$

$$d = 61,52 \times 10^{-3} \text{ mm}$$

Dari data diagonal rata-rata  $d$  diperoleh nilai  $\delta$  dan  $\beta$  sebagai berikut.

|   |  |
|---|--|
| $\delta = \frac{d}{7}$ $\delta = \frac{61,52 \mu\text{m}}{7}$ $\delta = 8,79 \mu\text{m}$ | $\beta = \frac{\delta}{t}$ $\beta = \frac{8,79 \mu\text{m}}{12,83 \mu\text{m}}$ $\beta = 0.69$ |
|---|--|

Perhitungan nilai kekerasan yang dihasilkan dari uji kekerasan *Vicker's* dapat diperoleh dengan menggunakan persamaan berikut:

$$Hv = \frac{2F \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)}{d^2}$$

$$Hv = \frac{2(0,5) \sin\left(\frac{136}{2}\right) \text{ kgf}}{(61,52 \times 10^{-3})^2 \text{ mm}^2}$$

$$Hv = 244,981 \frac{\text{kgf}}{\text{mm}^2}$$

$$Hv = 244,98 \text{ HV}$$

Pengujian terakhir dilakukan pada sampel B dengan variasi temperatur 900°C. Pengujian dilakukan dengan menggunakan beban uji sebesar 0,2 kgf. Dari pengujian ini dihasilkan kedalaman indentasi sebesar 5,89  $\mu\text{m}$ . Sedangkan ketebalan rata-rata lapisan  $\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x$  yang terbentuk pada Sampel B sebesar 91  $\mu\text{m}$  mengindikasikan bahwa indentasi hanya mengenai bagian lapisan saja.

Dari pengujian diperoleh nilai kekerasan lapisan sebesar 282 HV. Sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Ho dan kawan-kawan pada tahun 2008 yang menghasilkan nilai kekerasan paduan Ti-Zr sebesar 266 HV (Ti-10Zr) sampai 350 HV (Ti-40Zr). Lapisan  $\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x$  yang terbentuk dalam penelitian ini memiliki nilai kekerasan 6,63 kali lipat dibanding substrat grafit. Hasil metode refinement Rietveld mengkonfirmasi bahwa penambahan Zr menyebabkan distorsi dalam sel

satuan. Ini dikarenakan perbedaan jari-jari atomik Zr (1,616 Å) dan Ti (1,475 Å), dimana ketika atom Zr masuk sebagai unsur substitusi dalam kisi kristal Ti, dapat menyebabkan peningkatan parameter kisi. Adanya unsur substitusi sepanjang distorsi kisi kristal dapat menyebabkan masalah pada perpindahan atom sehingga mempengaruhi sifat mekanik bahan, termasuk nilai kekerasan bahan.

#### IV. KESIMPULAN

Penambahan  $\text{ZrO}_2$  pada pelapisan grafit dengan serbuk titanium melalui metode PIRAC menghasilkan lapisan paduan  $\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x$ , sedangkan tanpa penambahan  $\text{ZrO}_2$  menghasilkan lapisan TiC. Lapisan TiC yang dihasilkan dari penelitian ini memiliki kekerasan yang lebih besar dari lapisan paduan  $\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x$  yang terbentuk dalam penelitian ini. Masing-masing lapisan memiliki kekerasan lebih tinggi dari grafit yang digunakan. Grafit yang digunakan memiliki kekerasan 45 HV. Lapisan TiC yang terbentuk memiliki kekerasan rata-rata sebesar 2504 HV. Lapisan  $\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x$  yang terbentuk memiliki kekerasan rata-rata sebesar 282 HV.

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Tuhan Yang Maha Esa, kedua orang tua, Bapak Prof. Dr. Suasmoro, DEA selaku dosen pembimbing sekaligus penyandang dana dan riset, seluruh elemen pengajar dan staf jurusan Fisika, serta teman-teman Penulis yang telah memberikan dukungan dan motivasi kepada Penulis dalam melakukan penelitian ini.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] Becker, P., Glenk, F., Kormann, M., Popovska, N., Etzold, B.J.M., 2010. *Chlorination of titanium carbide for the processing of nanoporous carbon: A kinetic study*. Chem. Eng. J. 159, 236–241. doi:10.1016/j.cej.2010.02.011.
- [2] Pierson, H.O., 1996. *Handbook of Refractory Carbides & Nitrides: Properties, Characteristics, Processing and Apps*. William Andrew.
- [3] Chiang, Y.-M., Birnie, D.P., Kingery, W.D., 1996. *Physical Ceramics: Principles for Ceramic Science and Engineering*. Wiley.
- [4] [https://en.wikipedia.org/wiki/Titanium\\_carbide](https://en.wikipedia.org/wiki/Titanium_carbide).
- [5] Yin, X., Gotman, I., Klinger, L., Gutmanas, E.Y., 2005. *Formation of titanium carbide on graphite via powder immersion reaction assisted coating*. Mater. Sci. Eng. A 396, 107–114. doi:10.1016/j.msea.2005.01.011.
- [6] Gutmanas, E.Y., Gotman, I., Kaysser, W., 1992. *Coating of non-oxide ceramics by interaction with metal powders*. Mater. Sci. Eng. A 157, 233–241. doi:10.1016/0921-5093(92)90030-5