

# Seminar Nasional Tahunan Teknik Mesin (SNTTM) VIII

*Universitas Diponegoro, Semarang 11-12 Agustus 2009*

## M4-004 STUDI FASE DAN STRUKTURMIKRO *THERMAL BARRIER COATING* ALUMINA PADA OKSIDASI SIKLIK

Hariyati P, Rizki Subagio, Lukman Noerochim, Sulistijono

Teknik Material dan Metalurgi

Fakultas Teknologi Industri – ITS

Kampus ITS Keputih Surabaya 60111, Indonesia

Phone/ Fax: +62-31-5997026, E-mamil: [hariyati@mat-eng.its.ac.id](mailto:hariyati@mat-eng.its.ac.id); [ssulistijono@mat-eng.its.ac.id](mailto:ssulistijono@mat-eng.its.ac.id)

### ABSTRACT

Alumina memiliki phase alpha atau gamma yang stabil pada temperatur tinggi, memiliki kekuatan dan kekerasan yang memadai namun keuletannya rendah. Keramik alumina( $Al_2O_3$ ) seringkali digunakan untuk melapisi logam yang bekerja pada temperatur tinggi karena mempunyai sifat yang stabil secara termodinamika, tahan korosi dan oksidasi. Aplikasi pelapisan logam dengan alumina sering dijumpai pada kepala piston, kepala maupun dinding silinder motor pembakaran dalam, pisau, gunting dan sebagainya.

Untuk mempelajari karakteristik  $Al_2O_3$  sebagai lapisan perintang panas pada temperatur tinggi, dilakukan pelapisan keramik  $Al_2O_3$  pada substrat Al-Si dengan metode flame spraying, kemudian dilakukan pengujian thermal cyclic dengan cara memanaskan spesimen hingga temperatur  $600^{\circ}C$  dan menurunkan temperatur pemanasan pada temperatur ruang sampai terjadi degradasi lapisan baik berupa retak maupun sampai pengelupasan. Kemudian dilakukan pengamatan visual untuk mengamati cacat makro yang terjadi, identifikasi fase dilakukan dengan pengujian difraksi sinar-x, perubahan massa dilakukan dengan kinetika diskontinyu, dan pengamatan struktur dilakukan dengan mikroskop metalurgi.

Dari hasil penelitian diperoleh adanya perubahan visual permukaan, deformasi plastik pada sisi tepi spesimen, teridentifikasi fase alumina alpha dan terjadi pula perubahan kekerasan keramik yang berarti yaitu dari 400 HV menjadi 700 HV.

*Kata kunci :  $Al_2O_3$ , Lapisan Perintang Panas, Flame Spraying, Thermal Cyclic*

### 1. Pendahuluan

Silinder adalah bagian dari ruang bakar mesin Diesel yang penting karena silinder merupakan tempat terjadinya pembakaran bahan bakar dengan udara dan juga alur gerak bolak-balik piston. Akibat gerakan tersebut akan terjadi gesekan antara silinder dan cincin piston yang menyebabkan keausan pada dinding silinder. Keausan tersebut mengakibatkan ukuran silinder menjadi besar sehingga penyekatan ruang bakar menjadi kurang bahkan menjadi bocor. Hal ini akan menyebabkan mesin Diesel tidak bertenaga atau tidak jalan sama sekali [4].

Untuk meningkatkan ketahanan piston terhadap temperatur tinggi, maka permukaan dari piston dilakukan proses *coating* dengan menggunakan *Thermal Barrier Coating* (TBC) [5]. Lapisan TBC terdiri dari lapisan dalam (*metallic bond coat*) dengan material Ni-Al. Kemudian lapisan luar (*top coat*) menggunakan material  $Al_2O_3$ . *Top coat* berfungsi sebagai *thermal insulator*, sedangkan *bond coat* berfungsi sebagai perekat untuk lapisan keramik luar [5].

Alumina dipilih sebagai material top coat pada sistem TBC (*Thermal Barrier Coating*) untuk aplikasi pelapis komponen mesin diesel (Piston dll) karena karakteristik dari alumina yang memiliki ketahanan pada temperatur tinggi. Alumina memiliki temperatur *melting* tinggi ( $2050^{\circ}\text{C}$ ), meskipun alumina merupakan material tahan panas, material ini lebih peka terhadap kejutan termal karena memiliki koefisien muai panas linear (*coeficient thermal expansion*) yang relatif tinggi ( $\text{CTE} = 3,5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ). Dimana CTE (*Coeficient Thermal Expansion*) merupakan koefisien dari pertambahan temperatur terhadap regangan yang terjadi pada material, CTE berpengaruh dalam menentukan *internal stress* yang terjadi pada TBC [6].

## 2. Metodologi Penelitian

Adapun rancangan dan prosedur percobaan dapat dijelaskan sebagai berikut:

Bahan yang digunakan, yaitu :

1. Base metal Al-Si
2. Serbuk  $\text{Al}_2\text{O}_3$

Adapun data-data *properties* dari serbuk keramik  $\text{Al}_2\text{O}_3$  antara lain;  $M = 101,94 \text{ g/mol}$ ; Specific Surface Area =  $120-190 \text{ m}^2/\text{g}$ ; Stamping Density =  $950-1100 \text{ g/l}$ .

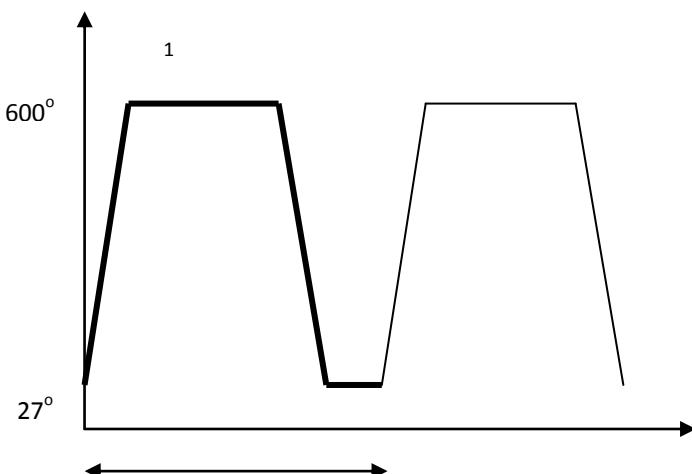
3. Serbuk Ni-Al

Peralatan dan pengujian

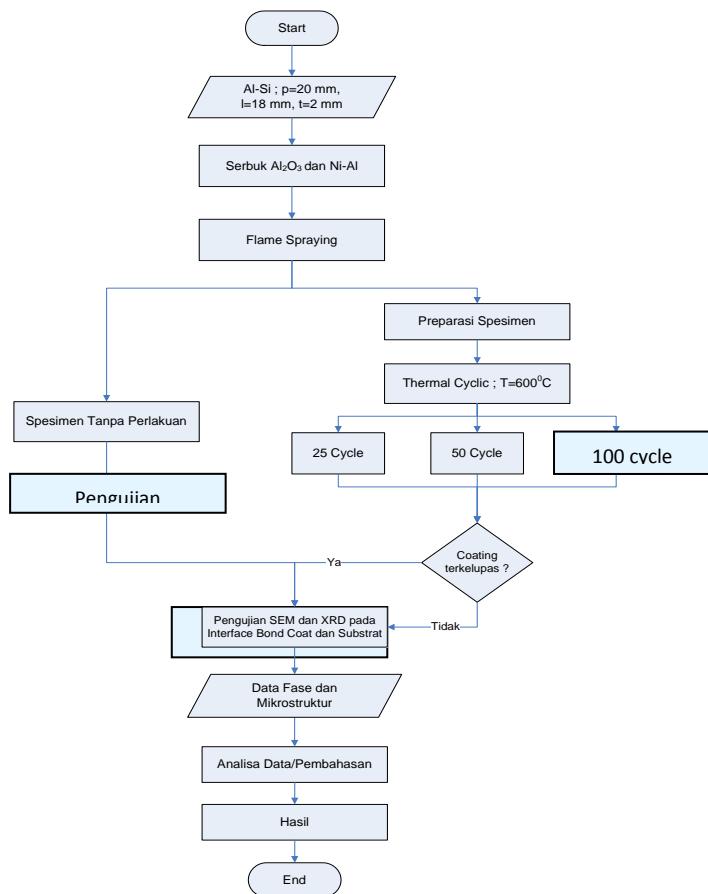
1. Furnace
2. Cawan keramik
3. Micrometer 0,01mm
4. Neraca analitik 0,1 mg
5. Flame spray, untuk melapiskan pelapis pada substrat.
6. Difraksi sinar-x untuk identifikasi fase.
7. SEM untuk mengamati mikrostruktur.

Proses thermal cycle

Pemanasan spesimen dilakukan pada temperatur  $600^{\circ}\text{C}$ , menggunakan cycle mengikuti standart pengujian di high corrosion temperatur. Adapun 1 cycle di dalam penelitian ini sama dengan 1 jam. Lamanya pemanasan dilakukan sampai terjadinya pengelupasan atau spalling pada spesimen, hal ini menandakan spesimen mengalami retak yang berarti kegagalan pada sistem TBC. Pengecekan dilakukan tiap cycle, dengan cara menimbang spesimen dengan neraca analitik. Kemudian dilakukan uji SEM dan XRD untuk mendapatkan fasa dan mikrostrukturnya.



<sup>1 cycle</sup> Gambar 2.1 Proses perlakuan panas pada pengujian thermal cycle

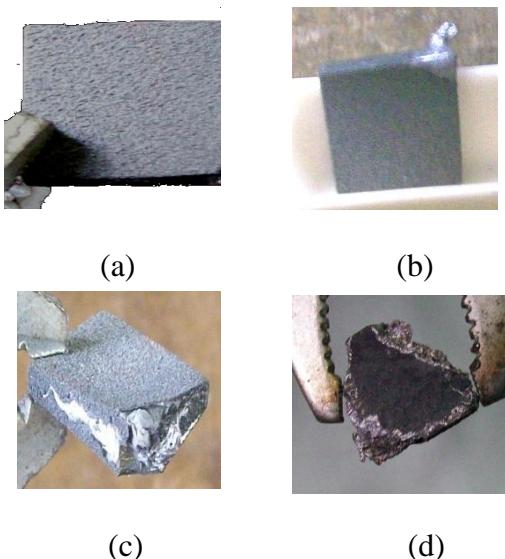


Gambar 2.2 Diagram Alir Penelitian

### 3. Hasil dan Pembahasan

#### 3.1 Hasil Pengamatan visual dan Pengukuran perubahan massa

Gambar 3.1a merupakan kondisi awal spesimen hasil pelapisan dengan proses flame spraying (sampel *as-received*). Spesimen ini nantinya digunakan sebagai pembanding untuk spesimen yang telah mengalami thermal cycle. Warna spesimen adalah abu-abu gelap. Permukaan spesimen kasar, kondisi ini diakibatkan sebelum dilakukan pelapisan dengan proses flame spraying dilakukan sand blasting. Gambar 3.1b merupakan spesimen setelah 25 cycle termal, ditunjukkan bahwa pada bagian yang tidak terlapis dalam hal ini adalah substrat Al-Si mulai meleleh. Adanya pelelehan Al-Si ini dapat dikarenakan temperatur pengujian pada 600°C dimana temperatur tersebut merupakan temperatur melting Al-Si [2].



Gambar 3.1 Kondisi spesimen, a. Tanpa perlakuan, b. 25 cycle, c. 50 cycle dan d. 100 cycle

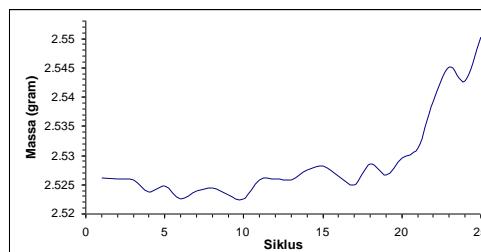
Gambar 3.1c menunjukkan adanya penjalaran retakan, yang dimulai dari bagian yang tidak terlapisi yaitu pada ujung bagian atas kemudian terus merambat ke samping spesimen. Semakin lama, retakan yang terjadi semakin panjang dan semakin melebar. Adanya perambatan retakan ini dapat terjadi akibat pengumpulan tegangan karena perbedaan koefisien ekspansi thermal antara bond coat dan top coat yang berakibat pada perbedaan muai volume antara keduanya, sehingga berkumpullah kedua tegangan di daerah batas antara bond coat dan top coat dan akhirnya menimbulkan retakan.

Pada Gambar 3.1d ditunjukkan adanya pengelupasan yang semakin bertambah besar sehingga menyebabkan substrat tidak terlindungi lagi oleh coating pada bagian samping spesimen. Thermal cycle selama 100 kali menyebabkan pada bagian yang tidak terlindungi tersebut menyebabkan sebagian substrat pecah dan kemudian rontok. Adanya bagian spesimen yang pecah dan rontok menyebabkan bentuk spesimen tidak lagi sama seperti semula, namun masih ada bagian spesimen yang masih terlindungi oleh coating. Bagian yang masih terlindungi tersebut adalah bagian atas dan bagian bawah spesimen, hal ini menunjukkan bahwa lapisan coating masih cukup kuat melekat pada spesimen.

Selama proses thermal cycle, dilakukan penimbangan dengan menggunakan neraca analitik dan hasilnya kemudian dicatat. Dari hasil penimbangan dan pencatatan kemudian diplot ke dalam grafik dan hasilnya adalah Gambar 3.2 yaitu grafik perubahan massa tiap siklus. Dari grafik tersebut dapat dilihat bahwa ada tren kenaikan massa setelah cycle 20. Hal ini terjadi akibat adanya pertumbuhan oksida dan pemuaian dari spesimen karena terdapat oksigen yang masuk ke dalam spesimen.

# Seminar Nasional Tahunan Teknik Mesin (SNTTM) VIII

*Universitas Diponegoro, Semarang 11-12 Agustus 2009*

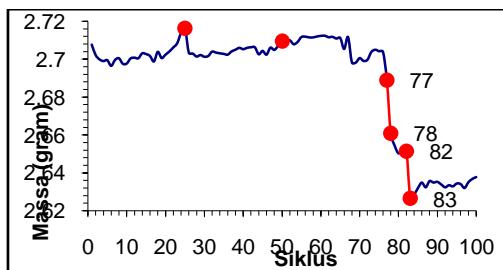


Gambar 3.2 Perubahan Massa hingga Siklus ke-25



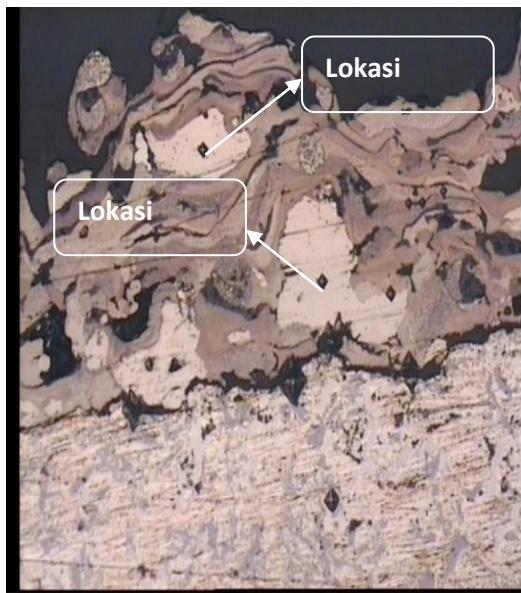
Gambar 3.3 Perubahan Massa hingga Siklus ke-50

Pada 50 cycle juga dilakukan penimbangan dan kemudian dicatat hasilnya pada tiap-tiap cycle. Dari hasil tersebut kemudian diplot ke dalam grafik dan akhirnya terbentuk grafik seperti pada Gambar 3.3. Dari grafik tersebut dapat dilihat terjadi tren penurunan massa setelah cycle 25. Tren penurunan massa ini terjadi akibat adanya substrat yang mencair kemudian rontok sehingga menyebabkan massa spesimen semakin berkurang karena pada temperatur diatas  $580^{\circ}\text{C}$  paduan Al-Si sudah mencair sebagian. Selain itu, adanya retakan yang semakin merambat menyebabkan adanya lapisan yang rontok sehingga massa spesimen semakin lama semakin berkurang. Hal ini ditunjukkan pada Gambar 3.4, ditunjukkan perubahan massa yang semakin kecil hingga tersisa 2,63 gram, perubahan massa ini disebabkan adanya pengelupasan pada sampel uji yang tidak terlindungi coating keramik akibat perlakuan termal .



Gambar 3.4 Perubahan Massa pada Siklus ke-100

## 3.2 Hasil Pengujian Hardness

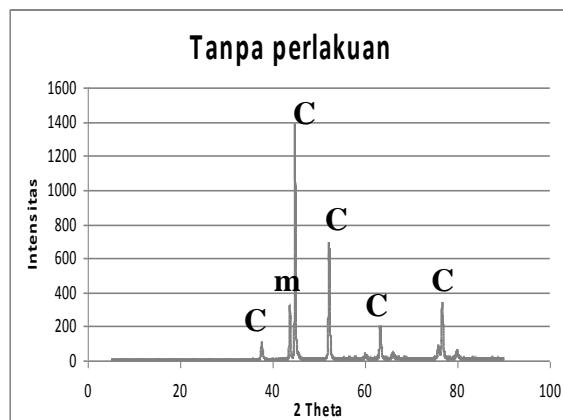


Gambar 3.5 Titik –titik pengujian micro hardness

Untuk mengetahui berapa kekerasan dari spesimen, maka dilakukan pengujian micro hardness. Pengujian yang dilakukan adalah dengan menggunakan micro vickers. Pengujian hardness dilakukan pada spesimen tanpa perlakuan. Dilakukan dua kali pengujian pada titik yang berbeda. Untuk titik yang pertama didapatkan hasil sebesar 337 HV, sedangkan untuk titik yang kedua didapatkan hasil sebesar 700 HV. Setelah diketahui nilai kekerasannya kemudian nilai tersebut dikonversi ke tensile strength sesuai dengan Hardness Conversion Tabel dalam situs Corrosion Source didapatkan hasil untuk titik yang pertama sebesar 159 dan untuk titik yang kedua adalah 341.

## 3.3 Hasil Pengujian Difraksi Sinar-x

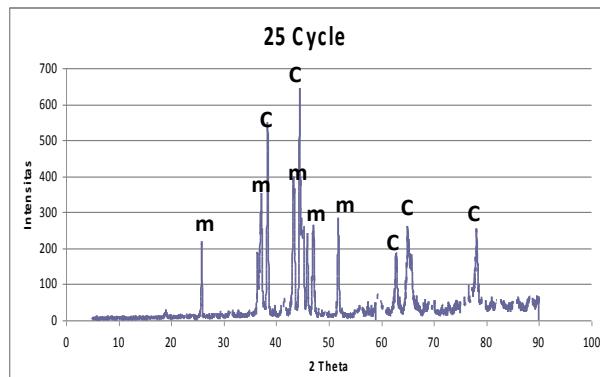
Gambar 3.6 menunjukkan hasil pengujian difraksi sinar-x terhadap spesimen *as-received*. Hasil identifikasi fasa menunjukkan setelah proses flame spraying terdapat fasa  $\gamma$   $\text{Al}_2\text{O}_3$  pada posisi  $2\theta$  sebesar  $44.897^\circ$  yang merupakan puncak tertinggi pertama. Selain fasa cubic, juga terdapat fasa monoclinic pada posisi  $2\theta$  sebesar  $43.278^\circ$ . Perbandingan intensitas fasa cubic dengan fasa monoclinic dapat dihitung sehingga didapatkan perbandingan fasa monoclinic sebanyak 23,21%.



# Seminar Nasional Tahunan Teknik Mesin (SNTTM) VIII

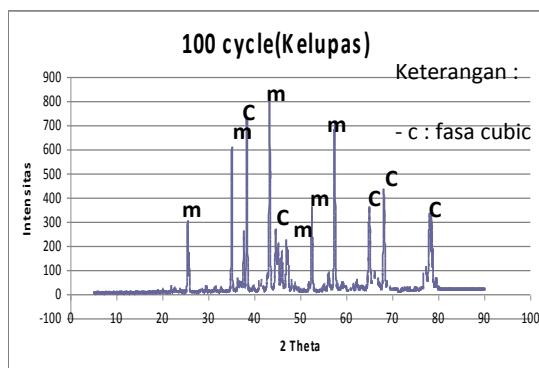
*Universitas Diponegoro, Semarang 11-12 Agustus 2009*

Gambar 3.6 Hasil pengujian difraksi sinar-x spesimen tanpa perlakuan. C: cubic, m : monoklinik



Gambar 3.7 Grafik hasil pengujian difraksi sinar-x spesimen setelah 25 cycle. C: cubic, m: monoklinik

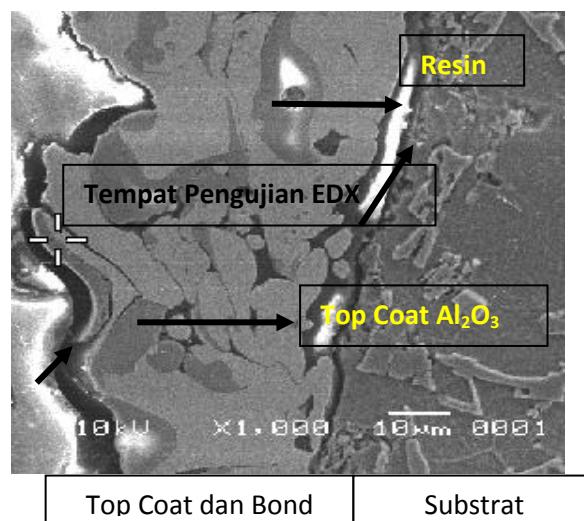
Hasil pengujian difraksi sinar-x terhadap spesimen yang telah mengalami 25 thermal cycle ditunjukkan pada Gambar 3.7. Puncak tertinggi pada posisi  $2\theta = 44.421^\circ$ . merupakan fasa  $\gamma$   $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Terdapat peningkatan intensitas monoclinic pada spesimen setelah 25 cycle apabila dibandingkan dengan tanpa perlakuan sebesar 61,53%. Pada spesimen yang telah mengalami 50 kali thermal cycle dilakukan pengujian difraksi sinar-x, hasil pengukuran ditunjukkan pada Gambar 3.8. Puncak tertinggi dari grafik tersebut terdapat pada  $2\theta$  sebesar  $44.445^\circ$  dan teridentifikasi fasa  $\gamma$   $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Selain fasa cubic, juga terdapat fasa monoclinic dengan perbandingan sebesar 49,36 %. Hasil pengujian terhadap sampel hasil termal cycle 50 kali ditunjukkan pada Gambar 3.8. Hasil pengujian menunjukkan bahwa terjadi pergeseran posisi pada  $2\theta$  sebesar  $43.278^\circ$  dan teridentifikasi fasa  $\alpha$  -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dengan struktur kristal *monoclinic*. Sehingga terdapat dua fasa yang terbentuk pada spesimen kelupas yaitu fasa  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  (c) dan  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ (m). Intensitas fasa  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ (c) apabila dibandingkan dengan fasa  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ (m) mengalami penurunan sebesar 90,625%.



Gambar 3.8 Hasil pengujian difraksi sinar-x pada spesimen setelah 100 kali termal cycle

# Seminar Nasional Tahunan Teknik Mesin (SNTTM) VIII

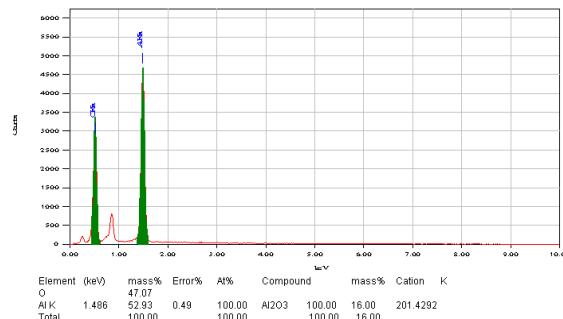
Universitas Diponegoro, Semarang 11-12 Agustus 2009



Gambar 3.9 Hasil pengamatan SEM untuk tampang lintang specimen *as-received*. Pengamatan struktur mikro menunjukkan tampilan top coat dan substrat.

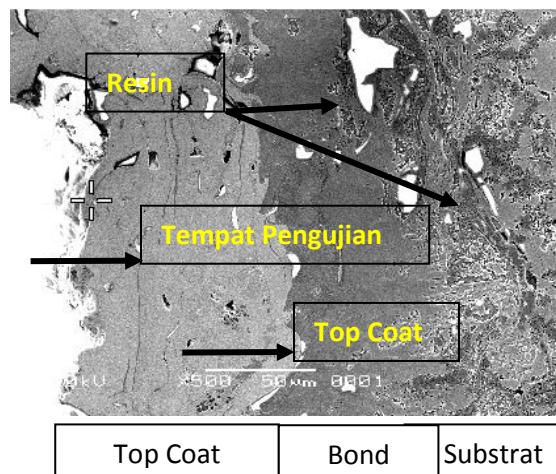
Pembesaran 1000x

Gambar 3.9 merupakan hasil pengamatan dengan SEM terdiri dari lapisan top coat dan substrat. Hasil pengujian menunjukkan struktur mikro antara top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bercampur dengan bond coat Ni-Al. Sehingga tidak terbentuk layer yang jelas antara top coat dan bond coat. Hal ini terjadi akibat proses flame spraying, proses ini melibatkan temperatur tinggi sehingga proses pelapisan menyebabkan tercampurnya lapisan top coat dan bond coat. Bagian yang berwarna putih merupakan resin yang digunakan ketika preparasi spesimen. Adanya resin yang masuk ke dalam spesimen menunjukkan bahwa pada top coat terjadi porositi.



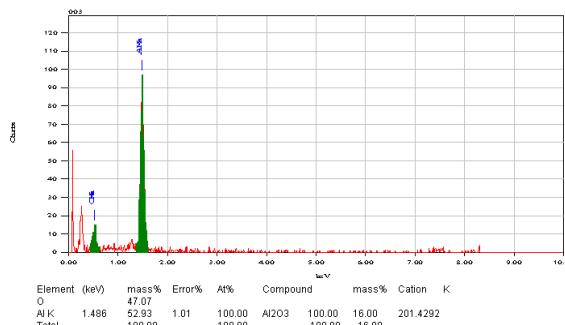
Gambar 3.10 Hasil pengujian SEM/EDX pada spesimen *as-received*.

Hasil pengujian SEM/EDX pada spesimen tanpa perlakuan nantinya akan dijadikan acuan awal untuk spesimen yang mengalami thermal cycle. Dari hasil EDX, komposisi kimia pada top coat sebelum mengalami perlakuan adalah Al sebanyak 52.93% dan O sebesar 47.07%. Hasil pengujian EDX membuktikan dominasi fasa alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) pada *as-received* top coat.



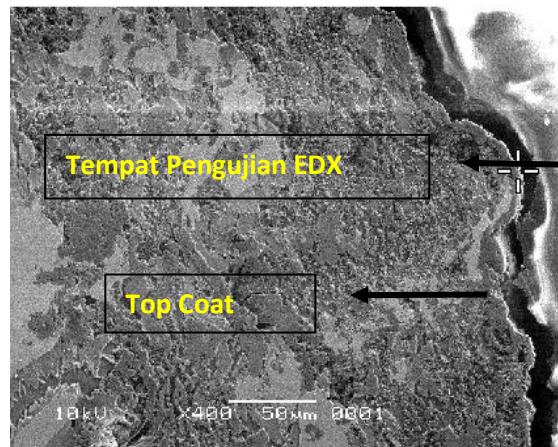
Gambar 3.11 Struktur mikro Top Coat pada Perbesaran 500x

Pada Gambar 3.11 menunjukkan struktur mikro  $\text{Al}_2\text{O}_3$  berwarna abu-abu terang. Dari gambar tersebut juga dapat diukur ketebalan top coat sebesar 66  $\mu\text{m}$ . Belum terlihat adanya initial crack yang terjadi pada top coat.



Gambar 3.12 Hasil pengujian SEM/EDX pada spesimen 50 cycle

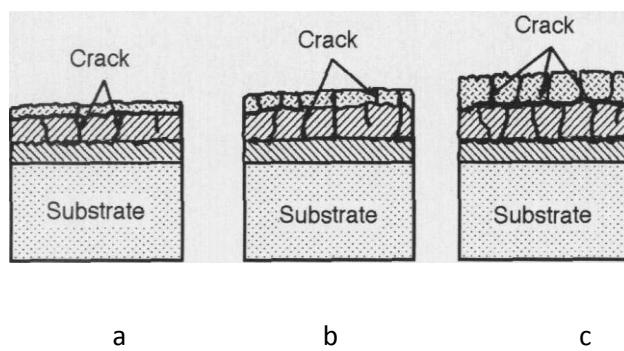
Untuk komposisi kimia top coat  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tidak mengalami perubahan, sama seperti komposisi kimia spesimen-spesimen sebelumnya seperti pada Gambar 3.10 yang menunjukkan hasil pengujian SEM/EDX. Komposisi kimia dari spesimen 50 cycle adalah Al sebanyak 52,93% dan O sebesar 47,07%.



Gambar 3.13 Struktur mikro Top Coat pada Perbesaran 400x

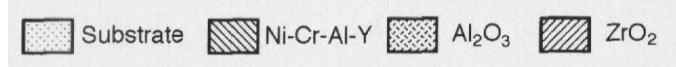
Warna struktur mikro top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada spesimen kelupas mengalami perubahan. Apabila dibandingkan dengan spesimen sebelumnya, warna top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menjadi lebih gelap. Hal ini dapat terjadi akibat proses thermal cyclic yang terlalu lama sehingga warna Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> berubah. Perubahan warna tersebut juga dikarenakan oleh adanya perubahan fasa yang terjadi pada top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang awalnya adalah  $\gamma$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menjadi  $\alpha'$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Layer top coat, bond coat dan substrat juga tidak tampak terlihat jelas seperti pada spesimen 50 cycle. Hal ini dapat terjadi akibat adanya difusi dari bond coat ke top coat. Selain itu juga belum terlihat adanya initial crack yang terlihat pada top coat dan spesimen. Tidak adanya initial crack disebabkan oleh lapisan top coat yang tipis pada spesimen. Untuk komposisi kimia top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tidak mengalami perubahan, sama seperti komposisi kimia spesimen spesimen sebelumnya yang menunjukkan hasil pengujian SEM/EDX dengan komposisi kimia Al dan O. Hal ini sesuai dengan Ma dkk,(1999), yang mengatakan bahwa lapisan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang tipis lebih mudah untuk menghilangkan tegangan sisa ketika pendinginan sehingga crack sulit terbentuk.



# Seminar Nasional Tahunan Teknik Mesin (SNTTM) VIII

*Universitas Diponegoro, Semarang 11-12 Agustus 2009*



Gambar 3.14 Skema pola retakan pada sistem TBC top coat Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, bond coat ZrO<sub>2</sub> dan Ni-Cr-Al-Y yang menunjukkan semakin sedikitnya crack yang terjadi pada lapisan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang tipis (a ), apabila dibandingkan dengan b dan c..

## 4. Kesimpulan

1. Fase yang terbentuk pada lapisan keramik Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari proses pelapisan dengan flame spraying sebelum dilakukan pengujian *thermal cyclic* adalah  $\gamma$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( c ).
2. Terjadi perubahan fasa  $\gamma$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( c ) setelah 100 cycle menjadi  $\alpha'$  - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>( m )

## Daftar Pustaka

- [1] Chen, J. H. et al., Sept 1997. "Degradation of the platinum aluminide coating on CMSX4 at 1100 C". **Surface & Coatings Technology** 92:1997, 69-77.
- [2] Cornell, R. dan Bhadeshia, H. K. D. H., 1999. Aluminium-Silicon Casting Alloys,
- [3] Elsing, R., O. Knotek, and U. Balting. 1990. "Calculation of Residual Thermal Stress in Plasma-Sprayed Coatings". **Surface and Coating Technology**. 43-44, 416-425.
- [4] Eskner, Mats, 2004. "Mechanical Behaviour of Gas Turbine Coatings". Department of Materials Science and Engineering, Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden.
- [5] Evans, A.G. et al., April 2001. "**Mechanisms controlling the durability of thermal barrier coatings**". Prog. Material Science 46:2001, 505-553.
- [6] Lipkin, et.al. 1997. "Stress Development in Alumina Scales Formed upon Oxidation of (111) NiAl Single Crystal, **Corrosion Science**. 39(2), 231-242.