

Perilaku Oksidasi $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada Temperatur 440–480° C di Udara

Fatimatul Munawaroh

Program Studi Teknik Industri, Universitas Trunojoyo Madura
Kampus Unijoyo, Jalan Raya Telang PO BOX 2 Kamal Bangkalan
E-mail: fatim_physics@yahoo.co.id

Abstrak

Telah dilakukan analisis perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ dan kristalinitasnya pada temperatur 440–480° C di udara. Paduan ini dibuat dengan metode “melt spinning” dari unsur Zr, Cu, Ni and Al dengan tingkat kemurnian yang tinggi (> 99,9%). Paduan ini berbentuk pita dengan tebal sekitar 20–40 μ m dan lebar 1,5–2,5 mm. Kinetika oksidasi paduan dianalisis menggunakan thermogravimetric analyzer (TGA) pada temperatur 440° C, 460° C dan 480° C selama 2 jam di udara. Sedangkan analisis produk oksida yang terbentuk menggunakan X-ray Diffraction (XRD) setelah sampel dipanaskan selama 1 jam. Berdasar data kinetika oksidasi, laju oksidasi paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ mengikuti hukum parabolik dan meningkat dengan penambahan temperatur. Produk oksida yang terbentuk selama oksidasi isothermal terdiri dari ZrO_2 (tetragonal) sebagai fasa dominan, CuO sebagai fasa minor. Paduan nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ lebih tahan terhadap oksidasi dibandingkan paduan amorfnya.

Kata kunci: gelas metalik, zirkonium, $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$, oksidasi, kinetika, isothermal.

Abstract

Oxidation behavior of $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ metallic glass and its crystalline was investigated at the range temperature 440–480° C in air. This alloys was prepared by arc melting Zr, Cu, Ni and Al with high purity element (> 99.9%). From these alloys amorphous ribbons about 20–40 μ m thick and 1.5–2.5 mm wide were fabricated using melt spinning. Analysis on oxidation kinetics using thermogravimetric analyzer (TGA) at 440° C, 460° C and 480° C for 2 hour in air. Whereas analysis of oxidation product using X-ray diffraction (XRD). Based on the oxidation kinetics data, oxidation rate of $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ alloy followed parabolic law and increasing with temperature. The scales formed during the isothermal oxidation consisting mainly of ZrO_2 (t) and CuO as a minor amount. The nanocrystalline $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ alloy showed better oxidation resistance than its amorphous alloy.

Keywords: metallic glass, zirconium, $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$, oxidation, kinetic, isothermal.

Pendahuluan

Pada beberapa sepuluh tahun terakhir ini, banyak usaha-usaha yang dicurahkan oleh ilmuwan untuk mengembangkan dan meneliti paduan gelas metalik berbasis Zirkonium karena sifat-sifat mekanik yang unggul, seperti kekuatan yang tinggi dan batas elastisitas yang besar, sifat-sifat fisika dan kimia, seperti ketahanan korosi dan pakai, yang sungguh berbeda dari bahan-bahan kristalin yang lain [1,2]. Secara umum ketika padatan tidak mempunyai susunan atomik yang sistematis, yaitu keadaan amorf, kekuatan dan ketahanan korosinya meningkat [1]. Gelas metalik atau gelas logam mempunyai banyak aplikasi di bidang industri meliputi industri pelapisan untuk meningkatkan ketahanan pakai dan korosi, casing telepon genggam, pisau bedah, alat-alat olahraga seperti pemukul golf dan raket, dan intan permata [3,4]. Tetapi

pada suhu tinggi sifat-sifat unggul dari gelas metalik berbasis Zirkonium akan mengalami degradasi, salah satunya adalah oksidasi. Ketahanan oksidasi paduan gelas metalik berbasis Zirkonium telah banyak diteliti diantaranya: oksidasi gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ di udara pada temperatur antara 330° C dan 370° C [5], oksidasi suhu rendah paduan amorf dan nanokristalin Zr-Cu-Ni-Al pada 360° C [6], perilaku oksidasi paduan amorf Zr-Cu-Al-Ni di udara pada temperatur 325–425° C [7], perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53}Ni_{23.5}Al_{23.5}$ di udara pada 400–600° C [8], dengan produk oksida yang terbentuk terdiri dari ZrO_2 (tetragonal) sebagai fase utama, dan oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ di udara antara 250–400° C [9]. Dari beberapa studi yang dilakukan, penelitian perilaku oksidasi paduan gelas metalik multikomponen berbasis Zirkonium di atas temperatur

kristalisasi masih jarang dilakukan. Sehingga, tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui perilaku oksidasi paduan gelas metalik Zr_{53.1}Cu₂₃Ni₁₈Al_{5.9}, Zr₆₅Cu_{17.5}Ni₁₀Al_{7.5} dan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} pada temperatur antara 440–480° C.

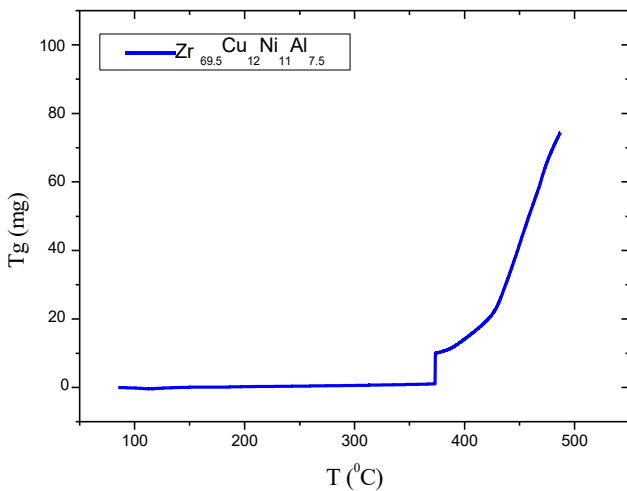
Metode Penelitian

Paduan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} diperoleh dengan melelehkan unsur-unsur Zr, Cu, Ni and Al dengan kemurnian tinggi yaitu > 99,9%. Dari lelehan tersebut paduan amorf berbentuk pita dengan tebal antara 20–40 µm dan lebar 1,5–2,5 mm dibuat dengan menggunakan *melt spinning* (lelehan berputar). Sampel dipotong dengan panjang 8 cm dan dipoles menggunakan kertas SiC grid 2000 mesh, kemudian dibersihkan dengan alkohol 70% serta dikeringkan di udara bebas. Selanjutnya ketiga paduan dioksidasi isothermal pada temperatur 440, 460 dan 480° C di udara selama 2 jam menggunakan analisis termogravimetri (TGA), dan produk oksidasi yang terbentuk di uji dengan difraksi sinar-X (XRD).

Hasil dan Pembahasan

Oksidasi Non-isothermal

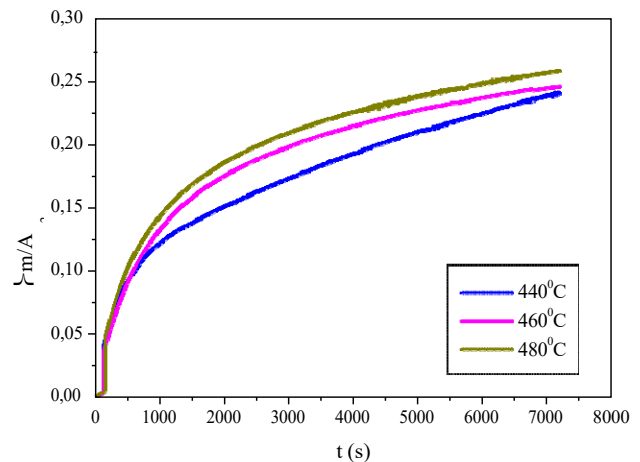
Gambar 1 menunjukkan kurva antara perubahan massa paduan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} terhadap temperatur yang diberikan. Dari kurva tersebut dapat ditentukan temperatur saat paduan mulai teroksidasi. Berdasar Gambar 1 tampak bahwa paduan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} mulai akan teroksidasi pada 425° C.



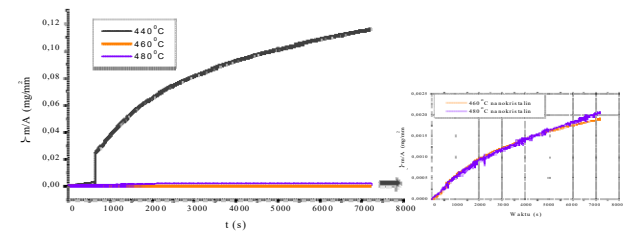
Gambar 1. Kurva Tg versus temperatur paduan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5}

Oksidasi Isothermal

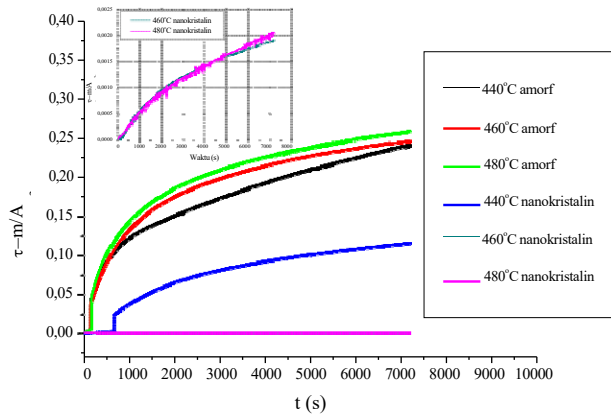
Gambar 2 menunjukkan perubahan berat sebagai fungsi waktu paduan gelas metalik Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} pada temperatur 440, 460 dan 480° C selama 2 jam di udara. Kinetika oksidasi paduan gelas metalik Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} pada masing-masing temperatur mengikuti fungsi parabolik. Berdasar Gambar 2 pertambahan massa paduan Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} meningkat dengan peningkatan temperatur. Karena dengan meningkatnya temperatur, energi termal yang diterima paduan juga bertambah dan energi ini digunakan oleh paduan untuk bereaksi dengan atmosfer (oksigen) membentuk oksida. Kinetika oksidasi paduan nanokristalin Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} selama 2 jam dengan variasi temperatur disajikan pada Gambar 3. Dari Gambar 3 terlihat bahwa kinetika oksidasi paduan dengan temperatur yang bervariasi mengikuti fungsi parabolik. Dengan meningkatnya temperatur yang diberikan pada paduan nanokristalin Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5}, pertambahan massanya semakin berkurang atau laju oksidasinya semakin menurun.



Gambar 2. Kinetika oksidasi paduan gelas metalik Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} pada 440, 460, dan 480° C selama 2 jam di udara



Gambar 3. Kinetika oksidasi paduan nanokristalin Zr_{69.5}Cu₁₂Ni₁₁Al_{7.5} pada 440, 460, dan 480° C selama 2 jam di udara

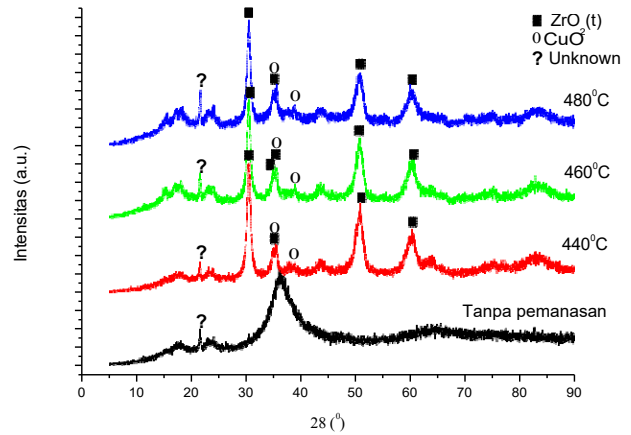


Gambar 4. Kinetika oksidasi paduan gelas metalik dan nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ selama 2 jam pada $440^{\circ}C$, $460^{\circ}C$ dan $480^{\circ}C$

Dari kurva kinetika oksidasi, didapatkan nilai laju konstanta oksidasi k_p dari paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ setelah 2 jam dioksidasi di udara seperti disajikan dalam Tabel 1.

Perbandingan kinetika oksidasi antara paduan gelas metalik dan nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ ditunjukkan pada Gambar 4. Dari gambar terlihat bahwa paduan nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ lebih tahan terhadap oksidasi dibandingkan paduan amorfnya. Dan yang paling tahan terhadap oksidasi adalah pada temperatur $460^{\circ}C$. Menurut Koester, ketahanan oksidasi tidak hanya bergantung pada komposisi paduan tetapi juga mikrostruktur paduan [6].

Pola difraksi paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ sebelum dan sesudah pemanasan selama 1 jam dengan variasi temperatur terlihat pada Gambar 5. Produk oksida yang terbentuk setelah pemanasan yaitu ZrO_2 (t) dan CuO. Dari Gambar 4 terlihat bahwa fasa dominan yang terbentuk untuk masing-masing pemanasan adalah fasa ZrO_2 . Hal ini karena zirkonium mempunyai afinitas kimia yang tinggi dengan oksigen, sehingga zirkonium mudah bereaksi dengan oksigen membentuk oksida. Dan secara serentak oksigen masuk ke kisi kristal zirkonium dan membentuk oksida pada temperatur yang tinggi. Berdasarkan literatur [7], zirkonia (ZrO_2) merupakan fasa yang hanya stabil pada sistem Zr-O,



Gambar 5. Pola difraksi sinar-X paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ sebelum dan sesudah pemanasan selama 1 jam dengan variasi temperatur

dan terdapat tiga jenis perubahan, yaitu monoklinik- ZrO_2 terbentuk di bawah temperatur $1000-1200^{\circ}C$, tetragonal ZrO_2 stabil pada suhu yang lebih tinggi dan kubik- ZrO_2 stabil di atas $1500^{\circ}C$. Namun, transformasi yang tepat berdasarkan temperatur juga dipengaruhi oleh impuritas yang terdapat pada paduan.

Terbentuknya CuO sebagai fasa minor terkait dengan persentase unsur Cu yang sedikit pada paduan. Selain itu pembentukan CuO sebagai fasa minor karena Cu mempunyai aktivitas yang lebih rendah daripada Zr dalam paduan gelas metalik. Dan selama oksidasi, Cu berdifusi secara dominan keluar, sedangkan oksigen ke dalam [9].

Simpulan

Perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperatur $440-480^{\circ}C$ di udara telah dikarakterisasi. Kinetika oksidasi paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ mengikuti hukum parabolik dan laju oksidasi meningkat dengan peningkatan temperatur. Produk oksida yang terbentuk selama oksidasi isothermal terdiri dari ZrO_2 (t) sebagai fasa dominan dan CuO sebagai fasa minor. Paduan nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ lebih tahan terhadap oksidasi dibandingkan paduan amorfnya.

Tabel 1. Nilai konstanta laju oksidasi paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$

Paduan	K_p (g / m s)		
	$440^{\circ}C$	$460^{\circ}C$	$480^{\circ}C$
$Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$	$0,982 (\pm 0,002) \times 10^{-5}$	$1,550 (\pm 0,003) \times 10^{-5}$	$1,680 (\pm 0,004) \times 10^{-5}$
Nanokristalin $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$	$2,895 (\pm 0,005) \times 10^{-6}$	$0,589 (\pm 0,001) \times 10^{-9}$	$0,452 (\pm 0,001) \times 10^{-9}$

Daftar Pustaka

- [1] Inoue, A. "Metallic Glass" opens a new field in materials science, *Japan Nanonet Bulletin*, 2004.
- [2] Kim, C.W., Jeong, H.G., Lee, D.B. "Oxidation of $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ Bulk Metallic Glass", *Materials Letters*, vol.62, hal. 584–586, 2008.
- [3] Reuter, B., Contentdig.com, *What Is Bulk Metallic Glass?* <http://contentdig.com/profile/brianreuter-666.html>, 2008.
- [4] Telford, M. "The Case for Bulk Metallic Glass", *Materials Today*, hal. 36–43, 2004.
- [5] Triwikantoro, Toma, D., Meuris, M., Köster, U. "Oxidation of Zr-based Metallic Glasses in Air", *Journal of non-Crystalline Solids*, Vol. 252, Hal. 719–723, 1999.
- [6] Köster, U., Zander, D., Triwikantoro, Rüdiger, A., Jastrow, L., "Environmental Properties of Zr-Based Metallic Glasses and Nanocrystalline Alloys", *Scripta materialia*, Vol. 44, hal. 1649–1654, 2001.
- [7] Kai, W., Hsieh, H.H., Nieh, T.G., Kawamura, Y. "Oxidation Behavior of a Zr–Cu–Al–Ni Amorphous Alloy in Air at 300–425° C", *Intermetallics*, Vol. 10, hal. 1265–1270, 2002.
- [8] Kai, W., Hsieh, H.H., Chen, Y.R., Wang, Y.F., Dong, C., "Oxidation Behavior of An $Zr_{53}Ni_{23.5}Al_{23.5}$ Bulk Metallic Glass at 400–600° C", *Intermetallics*, vol.15, hal.1459-1465, 2007.
- [9] Kim, C.W., Jeong, H.G., Lee, D.B. "Oxidation of $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ Bulk Metallic Glass", *Materials Letters*, Vol.62, hal. 584–586, 2008.