

# Pengaruh Penambahan Ni terhadap Sifat Mekanik dan Katalitik Paduan TiAl

Muhammad Hardian Taufiqurrahman<sup>1,a)</sup>, Aep Patah<sup>1,b)</sup> dan Yessi Permana<sup>1,c)</sup>

<sup>1</sup>Laboratorium Kimia Anorganik Lantai 3, Kelompok Keilmuan Kimia Fisik dan Anorganik,  
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Bandung,  
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

a) [mhardiant60@gmail.com](mailto:mhardiant60@gmail.com) (corresponding author)

b) [aep@chem.itb.ac.id](mailto:aep@chem.itb.ac.id)

c) [yessi@chem.itb.ac.id](mailto:yessi@chem.itb.ac.id)

## Abstrak

Paduan TiAl memiliki beberapa potensi, di antaranya sebagai bahan baku alternatif komponen dalam mesin turbin dan katalis untuk reaksi sintesis senyawa organik. Namun paduan TiAl sebagai bahan baku komponen mesin turbin memiliki kekurangan berupa keuletan yang rendah pada temperatur ruang dan ketahanan mulur yang rendah pada temperatur tinggi. Pada penelitian ini dilakukan sintesis paduan TiAl yang ditambahkan Ni dengan metode pepaduan logam secara mekanik (*mechanical alloying*). Penambahan Ni pada paduan TiAl ini diharapkan dapat meningkatkan sifat mekanik seperti kekerasan. Sintesis paduan TiAl dilakukan dengan memvariasikan waktu penggerusan (5, 15, 30 dan 50 jam), temperatur sintering (500 °C, 700 °C dan 900 °C) dan waktu sintering (2, 4 dan 6 jam). Pada variasi tersebut diperoleh kondisi terbaik dengan waktu penggerusan 50 jam, temperatur sintering 900 °C dan waktu sintering 6 jam. Penambahan Ni (3, 6 dan 9%) dilakukan setelah mendapat kondisi terbaik (50 jam, 900 °C selama 6 jam) pada saat sintesis paduan TiAl. Tahap selanjutnya dilakukan karakterisasi PXRd dan SEM-EDS, uji kekerasan serta uji aktivitas katalitik. Berdasarkan hasil karakterisasi PXRd paduan TiAl dan TiAlNi sudah sesuai dengan referensi yaitu pada difraktogram muncul puncak tertinggi  $2\theta = 39^\circ$  dan  $2\theta = 43,86^\circ$  secara berturut-turut. Karakterisasi SEM-EDS menunjukkan bahwa paduan TiAl dan TiAlNi telah terbentuk. Pengujian kekerasan untuk paduan TiAl dengan penambahan Ni memperlihatkan peningkatan nilai kekerasan secara signifikan. Nilai kekerasan paduan TiAl meningkat dari 194 HV ke 440 HV untuk penambahan 9% Ni. Penambahan Ni pada paduan TiAl juga menyebabkan meningkatnya sifat katalitik. Hal ini terlihat pada reaksi asetalisasi benzaldehida dengan pelarut metanol pada temperatur ruang selama 1 jam. Benzaldehida yang terkonversi menjadi produk asetal adalah 36% dan 67% berturut-turut untuk katalis paduan TiAl dan TiAlNi.

*Kata-kata kunci:* paduan TiAl, paduan TiAlNi, *mechanical alloying*, sifat mekanik, sifat katalitik

## PENDAHULUAN

Paduan TiAl berpotensi sebagai bahan baku untuk aplikasi alat kinerja tinggi seperti komponen dalam mesin turbin pesawat, kendaraan luar angkasa dan mesin otomotif sebagai pengganti *superalloy* berbasis nikel[1,2]. Paduan TiAl ini digunakan karena memiliki kerapatan massa yang rendah ( $3,9 \text{ g/cm}^3$ ), kekuatan tinggi yang dapat dipertahankan pada temperatur sampai 700 °C, modulus elastisitas yang tinggi, creep yang baik sampai 900 °C, dan ketahanan terhadap reaksi oksidasi yang baik[3,4]. Namun, paduan TiAl ini memiliki keuletan dan kekerasan yang rendah pada temperatur ruang.. Penggunaan paduan TiAl ini diharapkan dapat mengurangi berat badan struktural sebesar 20-30% dari penggunaan baja[5]. Keuntungan dari pemanfaatan ini adalah memberikan penghematan bahan bakar dan pengurangan emisi gas CO<sub>2</sub>[6].

Penelitian terkini terkait sintesis paduan TiAl difokuskan pada produksi ultrafine grained dalam upaya untuk meningkatkan keuletan[7]. Penggunaan teknik pemaduan secara mekanik menghasilkan paduan dengan ukuran partikel homogen dalam waktu relatif singkat[8]. Penambahan unsur pada paduan TiAl seperti Ni, Cr, W dan Nb dilakukan untuk menghasilkan struktur yang lebih kuat seperti struktur dupleks ( $\gamma$

+  $\alpha_2$ )[9,10]. *Powder Metallurgy* melalui *Mechanical Alloying* (MA) merupakan metode yang sering dipilih untuk membuat bahan ultrafine grained karena komposisi yang dapat diatur, sehingga memungkinkan paduan TiAl yang dihasilkan bersifat homogen dan memiliki sifat mekanik yang meningkat[11]. Pada umumnya, prinsip pengujian kekerasan (sifat mekanik) dilakukan dengan cara menekan sampel dengan benda lain yang lebih keras, sehingga apabila sampel memiliki kekerasan yang tinggi memiliki cekungan yang dangkal. Metode uji kekerasan yang dilakukan pada penelitian ini adalah metode Vickers.

Selain mempelajari sifat mekanik paduan TiAl, pada penelitian ini dipelajari juga aktivitas katalitik pada suatu reaksi sintesis organik. Paduan TiAl ini mengandung logam Ti yang memiliki kerapatan elektron yang rendah (asam Lewis), sehingga dapat dimanfaatkan menjadi katalis asam. Reaksi asetalisasi dipilih pada penelitian ini untuk melihat aktivitas katalitik dari paduan TiAl dan TiAlNi. Reaksi ini pada umumnya dilakukan dengan cara mereaksikan senyawa-senyawa yang mengandung gugus karbonil dengan alkohol dan katalis asam. Oleh karena itu, penggunaan paduan TiAl sebagai katalis diharapkan dapat mengkonversi benzaldehida menjadi produk asetal. Penambahan logam Ni pada paduan TiAl diduga akan menurunkan aktivitas katalitiknya. Hal ini disebabkan oleh logam Ni yang memiliki kerapatan elektron yang tinggi (rich electron)[12].

Pada penelitian ini dilakukan peningkatan sifat mekanik dari paduan TiAl dengan melakukan penambahan logam Ni. Optimasi metode pemaduan logam secara mekanik (*mechanical alloying*) dan perlakuan panas dilakukan variasi waktu penggerusan, temperatur sintering dan waktu sintering untuk memperoleh paduan TiAl dengan sifat mekanik yang diinginkan. Pada kondisi optimum, dilakukan variasi penambahan logam Ni untuk mengetahui komposisi yang optimum dengan sifat mekanik yang diinginkan. Selanjutnya, paduan TiAl dan TiAlNi yang dihasilkan dilakukan uji aktivitas katalitik pada reaksi benzaldehida dengan metanol.

## METODOLOGI

### Alat dan Bahan

Alat yang digunakan pada penelitian antara lain *planetary ball mill*, *furnace turbular*, *schlenk*, *magnetic stirrer*, pemanas listrik, sentrifuga dan peralatan gelas kimia. Sedangkan, karakterisasi menggunakan XRD (Rigaku), SEM-EDS (Hitachi), kromatografi gas (Perkin-Elmer), NMR (Nanalysis 60 MHz) dan alat uji kekerasan Vickers (Zwick). Bahan yang digunakan pada penelitian ini antara lain serbuk Ti, serbuk Al, serbuk Ti, gas N<sub>2</sub>, gas Ar, benzaldehida, metanol, naftalena, dan toluena.

### Sintesis Paduan TiAl

Serbuk Ti dan serbuk Al dengan perbandingan 1:1 (% atom) dengan massa saat sintesis adalah 1,3 gram. Komposisi massa Ti dan Al adalah 0,832 gram dan 0,468 gram secara berturut-turut. Ti dan Al tersebut dimasukkan ke dalam vial yang sebelumnya dicuci dengan toluena. Kemudian, vial yang berisi campuran Ti dan Al dimasukkan bola besi dengan perbandingan massa sampel dengan bola 1:20. Vial diisi dengan gas N<sub>2</sub> selama 5 menit. Proses penggerusan dilakukan dengan variasi waktu 5, 15, 30, dan 50 jam pada temperatur kamar. Hasil yang diperoleh, dibuat pelet dengan cara kompaksi dengan gaya tekan sebesar 5 bar. Pelet yang telah dihasilkan disintering menggunakan *furnace turbular* dengan variasi temperatur pemanasan dan variasi waktu pemanasan di bawah aliran gas Ar. Paduan TiAl dikarakterisasi dengan PXRD dan SEM-EDS. Setelah itu, paduan TiAl dilakukan uji kekerasan Vickers, uji aktivitas katalitik. Kondisi sintesis yang digunakan ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Kondisi sintesis menggunakan planetary ball milling

Kecepatan vial	500 rpm
Material vial	Baja krom
Kapasitas vial (ml)	25
Ukuran bola (mm)	1 dan 5
Rasio berat serbuk dan bola	1:20
Material bola	Baja
Jumlah bola	5 berukuran 5 mm dan 8 berukuran 1 mm
Atmosfer	N <sub>2</sub>

### Sintesis Paduan TiAl dengan Penambahan Ni

Pada kondisi optimum dari sintesis paduan TiAl, sintesis dilakukan dengan variasi penambahan Ni untuk memperoleh jumlah penambahan Ni dengan sifat mekanik yang diinginkan. Pada sintesis ini, paduan TiAl ditambahkan Ni sebanyak 3, 6, 9% atom dengan cara sintesis yang sama dengan paduan TiAl. Hasil yang diperoleh dibandingkan sifat mekanik dan katalitiknya dengan paduan TiAl tanpa penambahan.

### Uji Kekerasan Vickers

Pelet yang dihasilkan dari sintesis paduan TiAl *dimounting* dengan resin dan katalis (pengeras) (3:2). Selanjutnya sampel tersebut *digrinding* menggunakan amplas dengan grid yang meningkat dari kasar hingga halus. Proses amplas dilakukan hingga sampel menjadi mengkilap. Sampel tersebut di uji dengan alat kekerasan Vickers menggunakan indenter berupa intan dengan beban 0,2 kg.f (kilogram *force*). Hasil indentasi dilihat di bawah mikroskop optik. Data yang diperoleh berupa panjang diagonal dari belah ketupat yang kemudian dikonversi menjadi nilai kekerasan menggunakan persamaan Vickers.

### Uji aktivitas katalitik

Schlenk diisi dengan 50 mg katalis dalam 3 ml metanol, kemudian ditambahkan 9,8 mmol benzaldehid dan 0,78 mmol naftalena sebagai internal standar. Campuran tersebut kemudian diaduk dengan kecepatan 500 rpm pada temperatur ruang selama 15 jam. Hasil reaksi dipisahkan dari katalis dengan cara sentrifugasi. Penentuan konversi reaksi dilakukan dengan cara mengambil sedikit sampel yang dianalisis dengan kromatografi gas dengan detektor *Flame Ionization Detector* (FID) dan kolom yang digunakan adalah ENX-5 menggunakan naftalena sebagai internal standar. Untuk memastikan produk sesuai dengan yang diharapkan, produk dianalisis menggunakan  $^1\text{H-NMR}$ .

## HASIL PERCOBAAN DAN PERBANDINGAN DENGAN DATA REFERENSI

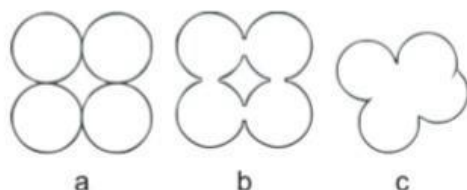
### Sintesis dan Karakterisasi Paduan TiAl

Paduan TiAl yang tersusun dari serbuk Ti dan serbuk Al telah berhasil disintesis dengan metode pemaduan secara mekanik (*mechanical alloying*). Metode ini digunakan karena relatif mudah dan sederhana pada kondisi logam dalam bilangan oksidasi nol. Selain itu, hal yang membuat relatif mudah juga yakni disintesis hanya melalui dua tahap proses penggerusan dan pemanasan. Namun, metode pemaduan secara mekanik (*mechanical alloying*) ini memiliki kekurangan yaitu mudah terkontaminasi oleh zat pengotor dari alat yang terbuat dari baja ataupun munculnya fasa teroksidasi karena kondisi logam dengan bilangan oksidasi yang digunakan. Logam Ti dan Al merupakan logam yang cukup mudah untuk teroksidasi[12].

Serbuk Ti dan Al dicampur menggunakan *planetary ball mill* dengan perbandingan prekursor dan bola yaitu 1:20. Perbandingan bola ini merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi hasil sintesis dengan metode ini. Bola yang digunakan memiliki dua ukuran yaitu 1 mm dan 5 mm. Bola berukuran 5 mm memiliki fungsi untuk mereduksi ukuran partikel dan bola berukuran 1 mm berfungsi untuk memadukan partikel yang sudah berukuran lebih kecil. Perbandingan serbuk dan bola akan mempengaruhi intensitas tumbukan bola dengan serbuk. Sehingga semakin besar perbandingannya maka semakin banyak serbuk yang mengalami tumbukan oleh bola. Namun, perbandingan ini juga harus disesuaikan dengan volume vial dan ukuran bola untuk digunakan supaya tidak terlalu penuh dan bola tetap saling bertumbukan. Sebelum dilakukan penggerusan, vial yang sudah diisi dengan serbuk Ti dan Al diisi dengan gas  $\text{N}_2$  untuk meminimalisir adanya Ti dan Al yang teroksidasi. Serbuk Ti dan Al direaksikan dengan variasi waktu penggerusan untuk melihat perbedaan ukuran partikel. Variasi waktu penggerusan yang dilakukan yaitu 5, 15, 30 dan 50 jam.

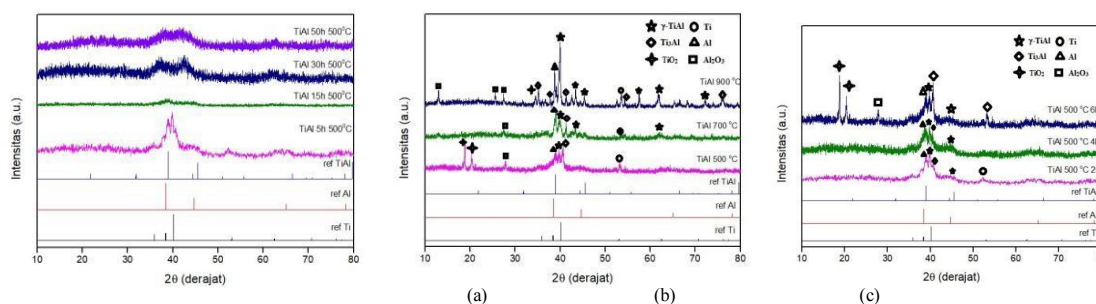
Paduan TiAl hasil variasi penggerusan selanjutnya dilakukan proses *alloying* lebih lanjut dengan memberikan perlakuan panas atau *sintering*. Sebelum dilakukan *sintering*, paduan TiAl dikompaksi dengan tekanan 5 bar. Tekanan yang digunakan disesuaikan dengan pengujian selanjutnya yang akan dilakukan. Oleh karena itu, pada penelitian ini menggunakan tekanan yang cukup besar 5 bar karena selanjutnya akan dilakukan uji kekerasan. Proses kompaksi ini dilakukan untuk mendekatkan jarak antar partikel Ti dan Al yang sudah digerus. Selain itu, kompaksi ini bertujuan untuk meningkatkan laju difusi Ti ke Al atau sebaliknya saat diberi perlakuan panas. Sehingga paduan TiAl yang diinginkan terbentuk dengan jumlah yang maksimal. Proses kompaksi ini akan menimbulkan energi *stress* yang tersimpan dalam struktur paduan TiAl menjadi bentuk struktur metasabil. Perlakuan panas ini berfungsi untuk memberikan energi pada atom Ti dan Al agar berdifusi satu sama lain, sehingga menghasilkan paduan TiAl yang diinginkan. Selain itu,

perlakuan panas ini akan meningkatkan kekerasan dan keuletan paduan TiAl dengan cara melepaskan energi stress yang tersimpan saat proses kompaksi dan penggerusan. Energi stress yang tersimpan dalam paduan TiAl ini akan menghasilkan struktur metastabil dari TiAl yang akan berubah setelah diberi perlakuan panas. Perlakuan panas atau sintering pada paduan TiAl akan mengalami perubahan bentuk partikel dengan waktu meningkat yang ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Skema proses sintering

(a) Partikel serbuk padat pada suhu kamar; (b) Partikel padat pada suhu yang lebih tinggi dan waktu yang lama, permukaan kontak semakin besar. Atom-atom berdifusi dari titik singgung hingga permukaan kontak; (c) Partikel padat pada suhu yang tinggi terjadi penggabungan butir (necking)



Gambar 2. PXRd paduan TiAl yang disintesis dengan (a) variasi waktu penggerusan setelah sintering pada temperatur 500 °C selama 2 jam (b) waktu penggerusan 5 jam dan disintering dengan variasi temperatur selama 2 jam (c) waktu penggerusan 5 jam dan disintering dengan variasi waktu sintering pada 500 °C

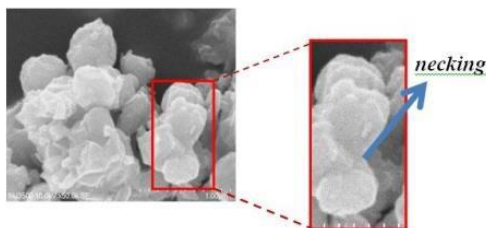
Gambar 2. (a) menunjukkan perlakuan panas atau sintering dengan temperatur 500 °C selama 2 jam meningkatkan kristalinitas dari paduan TiAl pada variasi waktu penggerusan. Pada waktu 50 jam dan 5 jam mulai muncul puncak pada  $2\theta$  sebesar  $38,72^\circ$  yang menandakan terbentuknya paduan TiAl dengan fasa  $\gamma$ -TiAl, namun pada 5 jam masih ada puncak dari prekursor yang cukup tinggi intensitasnya. Logam Ti memiliki struktur hcp dan logam Al memiliki struktur fcc. Perubahan fasa Ti dan Al menjadi  $\gamma$ -TiAl pernah dilaporkan oleh N.Forouzanmehr dkk.[7], bahwa struktur hcp dari Ti akan mengalami transisi menjadi struktur metastabil fcc TiAl yang selanjutnya akan menghasilkan fasa  $\gamma$ -TiAl. Pergeseran  $2\theta$  dari Ti ke sudut yang lebih besar setelah perlakuan panas, disebabkan Al yang terlarut dalam kisi Ti membentuk larutan padat TiAl<sup>8</sup>. Laporan tersebut mengidentifikasi bahwa metode pepaduan secara mekanik (mechanical alloying) dan perlakuan panas dapat menghasilkan struktur baru (fcc) yang terdiri dari atom Ti dan Al dengan perbedaan jari jari, sehingga menghasilkan interaksi logam yang menghadirkan bidang slip yang tidak homogen.

Kondisi proses *sintering* pada temperatur 500 °C selama 2 jam mengasilkan paduan TiAl yang kurang optimum, dengan itu dilakukan variasi temperatur *sintering* dan waktu *sintering*. Variasi ini dilakukan untuk mendapatkan kondisi optimum pada proses penggerusan dan *sintering* untuk menghasilkan paduan TiAl dengan kristalinitas tinggi yang menandakan fasa  $\gamma$ -TiAl dan sifat mekanik yang diharapkan. Untuk menentukan kondisi sintesis yang optimum dilakukan variasi temperatur terlebih dahulu. Variasi temperatur *sintering* yang dilakukan adalah 500 °C, 700 °C dan 900 °C. Pemilihan temperatur tersebut didasari oleh titik leleh dari Ti dan Al serta diagram fasa dari paduan TiAl. Hasil variasi temperatur *sintering* dan waktu *sintering* dikarakterisasi dengan PXRd. Gambar 2. (b) menunjukkan pola XRD dari paduan TiAl setelah sintering pada temperatur yang berbeda. Dalam pola XRD dari paduan TiAl yang dipanaskan sampai 500 °C, fasa amorf masih dapat dideteksi dan muncul puncak dari fasa oksida titanium. Setelah pemanasan hingga 700 °C, pola XRD menunjukkan puncak XRD yang meningkat kristalinitasnya dan fasa dari oksida titanium tidak muncul lagi. Pada temperatur kisaran 500 °C dan 700 °C, fasa amorf mengkristal ke fasa hcp metastabil dan juga mulai transformasi fasa hcp ke  $\gamma$ -TiAl. Peningkatan lebih lanjut pada temperatur hingga 900 °C, puncak dari  $\gamma$ -TiAl dan beberapa puncak fasa-fasa lain muncul dalam pola XRD. Temperatur sintering ini juga akan meningkatkan kristalinitas yang menandakan kristal dari paduan TiAl tersusun lebih banyak. Hal

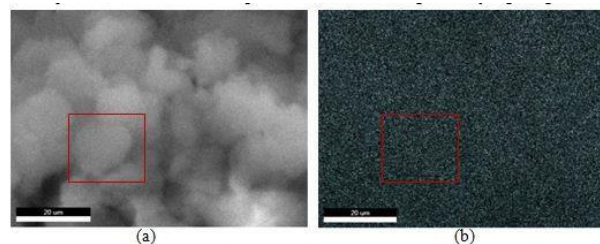
ini dikarenakan energi yang diberikan lebih besar sehingga penataan kristal lebih cepat. Selain itu, energi

stress dari proses kompaksi dan penggerusan yang tersimpan oleh paduan TiAl juga dilepaskan lebih cepat. Namun pada temperatur yang cukup tinggi ini menghasilkan fasa-fasa lain yang terlihat pada gambar yaitu  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$  dan  $Ti_3Al$ . Alumina ( $Al_2O_3$ ) dapat terbentuk karena prekursor yang tidak murni dan akan mudah teroksidasi.

Variasi waktu *sintering* yang dilakukan adalah 2, 4 dan 6 jam. Pemilihan waktu *sintering* ini didasari dengan semakin lama waktu pemanasan, maka energi yang diberikan pada paduan TiAl semakin lama, sehingga akan menata kristal paduan TiAl lebih lama. Hasil variasi waktu *sintering*, semakin lama waktu *sintering* maka akan meningkatkan kristalinitas dari paduan TiAl. Namun semakin lama pemanasan ini akan menghasilkan fasa-fasa lain seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2. (c) yaitu  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$  dan  $Ti_3Al$ . Berdasarkan difraktogram XRD dari variasi temperatur *sintering* dan waktu *sintering* dapat disimpulkan bahwa paduan TiAl berhasil disintesis dengan kondisi paling optimum yaitu waktu penggerusan 50 jam, temperatur *sintering* 900 °C dan waktu *sintering* selama 6 jam. Pada kondisi sintesis paduan TiAl optimum, dilakukan karakterisasi SEM-EDS untuk meyakinkan bahwa paduan TiAl sudah berhasil terbentuk. Karakterisasi ini dilakukan untuk melihat morfologi dan komposisi atom-atom yang ada pada paduan TiAl.



Gambar 3. Citra SEM paduan TiAl



Gambar 4. EDS mapping paduan TiAl  
(a) sebelum mapping (b) setelah mapping

Gambar 3. merupakan hasil uji SEM dari paduan TiAl yang memperlihatkan bahwa terdapat 2 butiran yang sedang memadu atau sedang mengalami proses necking. Proses necking ini mengindikasikan bahwa terdapat partikel yang sedang mengalami pepaduan yang ditunjukkan pada Gambar 5. Proses necking ini terjadi pada saat dilakukan sintering. Berdasarkan gambar tersebut dapat disimpulkan bahwa TiAl sudah terbentuk, walaupun masih ada paduan TiAl yang berada dalam proses alloying. Citra SEM menunjukkan bahwa bentuk dari paduan TiAl ini adalah granular yang teraglomerasi. Selain terlihat dari citra SEM juga dibuktikan dengan EDS *mapping* pada Gambar 4. yang menunjukkan persebaran atom Ti dan Al pada permukaan hasil SEM, terlihat persebaran dari Ti (biru) dan Al (hijau) secara berturut turut. Gambar tersebut memperlihatkan tidak adanya perbedaan persebaran, sehingga dapat disimpulkan atom Ti dan Al sudah menjadi paduan dan tersebar merata atau homogen. Terlihat dari gambar (a) dan (b) jika dibandingkan satu butiran mengandung beberapa atom Ti dan atom Al. EDS juga menampilkan komposisi atom Ti dan Al yang terkandung dalam permukaan hasil *scanning* yang ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Komposisi Ti dan Al pada permukaan paduan TiAl

Unsur	% massa	% atom
Ti	35,89	49,85
Al	64,11	50,15

Komposisi Ti dan Al yang diperoleh dari spektrum sesuai dengan komposisi saat awal sintesis yaitu 50 : 50 (% atom). Komposisi tersebut diperoleh dari spektrum EDS yang diperoleh dari pengujian dengan EDS *mapping*.

- Uji Kekerasan Vickers Paduan TiAl

Sifat mekanik paduan TiAl yang difokuskan pada penelitian ini adalah kekerasan. Kekerasan merupakan kemampuan material untuk menahan goresan atau lekukan oleh benda yang lebih keras. Kekerasan suatu material dapat diukur dengan beberapa metode seperti Vickers, Brinell, Knoop dan Rockwell. Metode-metode uji tersebut memiliki prinsip pengujian yang sama yaitu menekan atau indentasi sampel dengan benda lain yang lebih keras. Parameter yang membedakan metode-metode tersebut adalah bahan baku dan geometri dari benda yang digunakan untuk menguji sampel. Pada penelitian ini uji yang digunakan adalah uji kekerasan Vickers.

Sampel yang diuji sifat mekaniknya adalah paduan TiAl yang sudah di sintering, hal ini dikarenakan sampel yang tidak disintering bentuk peletnya akan mudah rapuh sehingga tidak dapat diukur. Hasil sintesis paduan TiAl pada variasi penggerusan, variasi temperatur sintering dan variasi waktu sintering dilakukan uji kekerasan untuk mengetahui kondisi optimum yang memiliki sifat mekanik (kekerasan) yang diharapkan. Nilai kekerasan dari prekursor sebelum dicampurkan dan nilai kekerasan baja yang biasa digunakan dalam aplikasi ini dapat dilihat pada Table 3.

Tabel 3. Nilai kekerasan Vickers dari prekursor dan baja

No.	Paduan logam	Nilai Kekerasan (HV)
1	Ti	99
2	Al	17
3	Ni	65
4	Baja	652

Data tersebut dapat memperlihatkan bahwa perbandingan nilai kekerasan dari prekursor terhadap paduan TiAl menghasilkan kekerasan yang lebih rendah. Hal ini mungkin terjadi karena kondisi pengukuran yang dilakukan pada prekursor berbeda dengan paduan TiAl yang disintesis.

Tabel 4. Nilai kekerasan Vickers paduan TiAl dengan variasi waktu penggerusan pada temperatur sintering 500 °C selama 2 jam

No.	Paduan logam	Waktu penggerusan (jam)	Nilai Kekerasan (HV)
1	TiAl	5	63 ± 1
2	TiAl	15	65 ± 1
3	TiAl	30	121 ± 4
4	TiAl	50	126 ± 2

Tabel 4. menunjukkan nilai kekerasan dari paduan TiAl dengan variasi waktu penggerusan. Data tersebut menunjukkan bahwa semakin lama waktu penggerusan maka paduan TiAl yang dihasilkan lebih baik karena memiliki nilai kekerasan yang paling tinggi. Nilai kekerasan yang tinggi ini menunjukkan bahwa struktur yang dihasilkan yaitu fcc memiliki bidang slip yang banyak dan akan mengalami deformasi plastis yang lebih lama[15]. Deformasi plastis yang lama menandakan bahwa benda tersebut memiliki kekerasan dan keuletan yang tinggi pada suhu ruang. Nilai kekerasan paduan TiAl pada waktu penggerusan 50 jam ini adalah  $125,5 \pm 2,1$  HV. Konversi nilai kekerasan HV menjadi satuan Pascal adalah mengalikan nilai kekerasan HV dengan  $3,2 \times 10^6$ .

Tabel 5. Nilai kekerasan Vickers paduan TiAl 5 jam dengan variasi temperatur sintering selama 2 jam

No.	Paduan logam	Temperatur sintering (°C)	Nilai Kekerasan (HV)
1	TiAl	500	164 ± 17
2	TiAl	700	226 ± 9
3	TiAl	900	381 ± 0

Tabel 5. dan Tabel 6. menunjukkan pengaruh temperatur dan waktu *sintering* yang lebih besar menghasilkan nilai kekerasan yang paling tinggi. Nilai kekerasan yang diperoleh dari temperatur *sintering* tertinggi 900 °C adalah 381 HV dan dengan waktu *sintering* tertinggi 6 jam adalah  $163,6 \pm 16,5$  HV. Pengaruh temperatur dan waktu pemanasan ini membentuk paduan TiAl semakin baik karena energi yang digunakan lebih besar dan durasi yang digunakan lebih lama untuk membentuk fasa  $\gamma$ -TiAl, sehingga nilai kekerasan dari paduan TiAl semakin tinggi. Namun, terdapat fasa lain dari TiAl yang diduga dapat meningkatkan nilai kekerasan paduan TiAl.

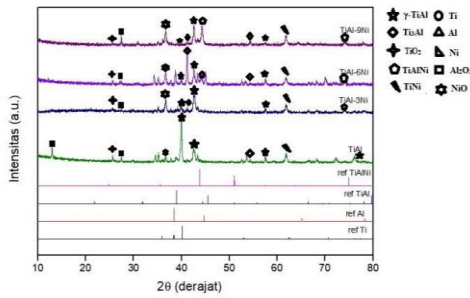
Tabel 6. Nilai kekerasan Vickers paduan TiAl 5 jam dengan variasi waktu sintering pada temperatur 500 °C

No.	Paduan logam	Waktu sintering (jam)	Nilai Kekerasan (HV)
1	TiAl	2	63 ± 1
2	TiAl	4	117 ± 2
3	TiAl	6	164 ± 17

Nilai kekerasan yang diperoleh dari data diatas bukan murni dari paduan TiAl saja melainkan gabungan dari semua fasa-fasa yang mungkin terbentuk pada paduan TiAl walaupun hanya sedikit. Sehingga hasil sintesis paduan TiAl dengan metode *mechanical alloying* memiliki kekurangan dalam kemurniannya[16]. Berdasarkan data kekerasan dan hasil karakterisasi yang dilakukan dapat disimpulkan bahwa kondisi optimum untuk memperoleh paduan TiAl dengan kristalinitas tinggi dan nilai kekerasan yang tinggi adalah waktu penggerusan 50 jam, temperatur *sintering* 900 °C, dan waktu *sintering* selama 6 jam.

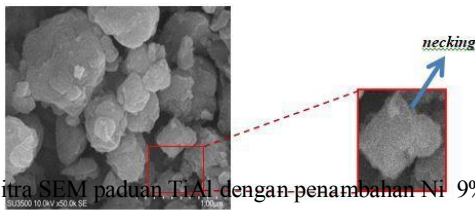
### Sintesis dan Karakterisasi Paduan TiAl dengan Penambahan Ni

Pada kondisi optimum yang diperoleh dari sintesis paduan TiAl pada tahap sebelumnya, dilakukan sintesis TiAl dengan variasi penambahan logam Ni yang disingkat menjadi TiAl-xNi. Variasi penambahan Ni yang dilakukan adalah 3, 6, 9% atom. Pemilihan variasi ini didasarkan pada aturan penambahan logam lain yaitu kurang dari 10 % atom[12]. Selanjutnya Ni tersebut ditambahkan pada paduan TiAl yang disintesis. Hasil sintesis dengan variasi penambahan Ni ini dikarakterisasi dengan PXRD untuk melihat paduan TiAl sudah terbentuk atau belum.

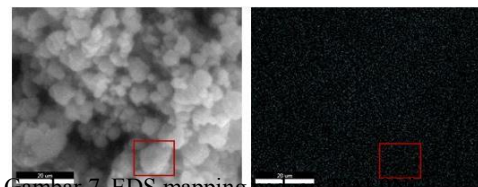


Gambar 5. PXRd paduan TiAl 50 jam yang disintesis dengan variasi penambahan Ni setelah sintesis pada temperatur 900 °C selama 6 jam

Gambar 5. menunjukkan dengan variasi penambahan menghasilkan puncak khas dari gabungan TiAlNi pada  $2\theta$  sebesar  $43,86^\circ$ . Semakin besar penambahan Ni maka intensitas dari puncak khas tersebut semakin tinggi. Hasil ini menandakan bahwa semakin besar penambahan Ni maka semakin banyak fasa TiAlNi yang terbentuk. Selain itu paduan yang dihasilkan memiliki fasa-fasa lain dengan intensitas yang berbeda-beda pada variasi penambahan Ni. Fasa-fasa yang dihasilkan adalah  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$ , NiO, NiAl, TiAl, TiNi dan TiAlNi. Fasa yang dihasilkan ini muncul pada setiap penambahan didasari pada pembentukan fasa pada temperatur tertentu ataupun terbentuk fasa gabungan dari Ti dan Al, Ni dan Al ataupun Ti dan Ni. Selain itu juga terbentuk fasa teroksidasinya karena logam yang digunakan dalam keadaan bilangan oksidasi nol. Penambahan Ni ini mengikuti mekanisme penguatan logam dengan *solid solution strengthening*. Mekanisme ini melalui 2 kemungkinan yaitu interstisi dan substitusi. Kemungkinan proses penambahan Ni mengikuti interstisi karena pada struktur TiAl (fcc) terdapat lubang oktahedral dan tetrahedral yang dapat diisi [15]. Pengisian ini akan menyebabkan kerapatan atom dalam kisi akan meningkat yang menyebabkan sifat mekanik yang berubah. Paduan ini akan lebih kuat karena adanya atom yang menyisip ini akan memaksakan regangan kisi pada *host* atom disekitarnya. Atom Ni dan Ti memiliki ukuran yang tidak terlalu jauh. Syarat terjadinya mekanisme substitusi adalah ukuran *host* dengan atom tamu memiliki ukuran yang sama. Penambahan Ni akan mengikuti mekanisme substitusi karena ukuran atom Ni dan Ti yang tidak terlalu jauh. Sehingga hal ini dapat membatasi gerakan dislokasi antar kisi. Ukuran atom yang menyisip ini akan mempengaruhi proses penguatan logam. Selanjutnya untuk memastikan penambahan Ni pada paduan TiAl ini berhasil, dilakukan karakterisasi SEM-EDS. Salah satu paduan TiAl yang sudah ditambahkan Ni dikarakterisasi dengan SEM-EDS.



Gambar 6. Citra SEM paduan TiAl dengan penambahan Ni 9% atom



Gambar 7. EDS mapping paduan TiAl-9Ni (a) sebelum mapping (b) setelah mapping

Gambar 6. memperlihatkan bahwa terdapat 3 butiran yang sedang memadu atau sedang mengalami proses *necking*. Proses yang terjadi sama seperti saat dilakukan sintesis paduan TiAl. Hal ini menandakan bahwa terdapat butiran yang sedang mengalami proses alloying. Sehingga dapat disimpulkan bahwa TiAl yang ditambahkan Ni sudah terbentuk. Selain itu juga dibuktikan dengan EDS *mapping* yang dilakukan pada permukaan paduan TiAl-9Ni. Gambar 7. menunjukkan persebaran atom Ti, Al dan Ni pada permukaan hasil SEM sudah merata atau homogen. Terlihat jelas bahwa satu butiran mengandung beberapa atom Ti (biru), atom Al (hijau) dan atom Ni (jingga). Sehingga dapat disimpulkan TiAl yang ditambahkan Ni sudah terbentuk. EDS juga menampilkan komposisi atom Ti, Al dan Ni yang terkandung dalam permukaan hasil *scanning* ditunjukkan pada Tabel 7.

Tabel 7. Komposisi Ti, Al dan Ni pada permukaan paduan TiAl-9Ni

Unsur	% massa	% atom
Ti	33,05	46,90
Al	64,15	51,28
Ni	2,80	1,82

Komposisi Ti, Al, dan Ni yang dihasilkan tidak sesuai dengan perbandingan saat melakukan sintesis yaitu pada tabel memiliki perbandingan Ti : Al : Ni = 50 : 48 : 2 (% atom) yang seharusnya memiliki perbandingan Ti : Al : Ni = 50 : 41 : 9 (% atom) sesuai dengan saat awal sintesis. Ketidaksiharian komposisi ini disebabkan sampel yang terkena sinar-X hanya pada permukaan saja, sedangkan partikel lainnya yang ada didalam tidak teranalisis, sehingga Ni yang teranalisis hanya 1,82 % atom. Oleh karena itu, seharusnya dilakukan TEM (*Transmission Electron Microscopy*) untuk mengetahui persebaran atomnya hingga dalam sampel. Komposisi unsur Ti, Al, dan Ni ini diperoleh dari spektrum EDS.

- Uji Kekerasan Vickers Paduan TiAlNi

Pengujian sifat mekanik dilakukan pada paduan TiAl yang disintesis dengan variasi penambahan Ni. Variasi ini dilakukan untuk melihat pengaruh penambahan Ni yang akan meningkatkan nilai kekerasannya sesuai dengan bahan baku material pada aplikasi turbin pesawat sebelumnya yaitu baja[17]. Dengan itu ditentukan % atom penambahan Ni untuk aplikasi turbin pesawat.

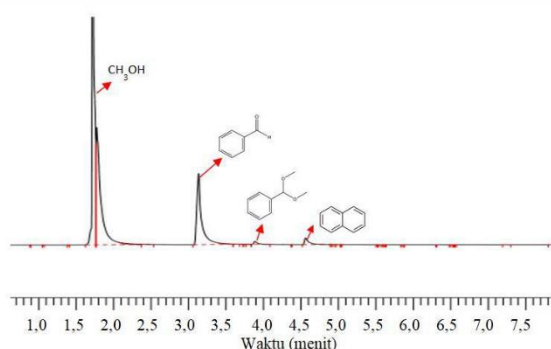
Tabel 8. Nilai kekerasan Vickers paduan TiAl 50 jam dengan variasi penambahan Ni setelah sintering 900 °C selama 6 jam

No.	Paduan logam	Penambahan Ni (% atom)	Nilai Kekerasan (HV)
1	TiAl-3Ni	3	129 ± 3
2	TiAl-6Ni	6	191 ± 0
3	TiAl-9Ni	9	440 ± 0

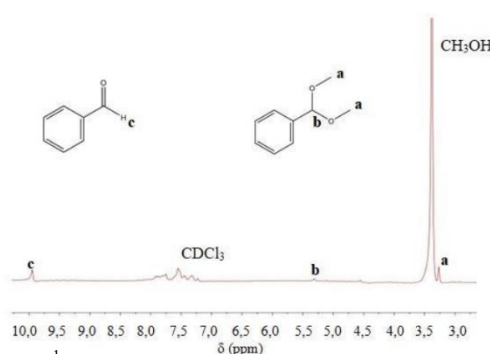
Tabel 8. menunjukkan bahwa nilai kekerasan semakin meningkat dengan meningkatnya Ni yang ditambahkan pada paduan TiAl. Hal ini terjadi karena proses Ni mengalami proses penyisipan pada struktur TiAl yang menyebabkan kerapatan atom dalam satu kisi meningkat, selain itu juga mengurangi gerak dislokasi yang menandakan material tersebut menjadi lebih keras dan ulet. Semakin banyak logam Ni yang menyisip maka semakin banyak atom yang menghalangi pergerakan dislokasi dan ikatan logam yang ada pada paduan TiAl yang ditambahkan Ni akan semakin kuat. Hasil yang paling besar diperoleh pada penambahan 9% dengan nilai kekerasan sebesar 440 HV. Berdasarkan data tersebut dapat disimpulkan pengaruh penambahan Ni akan meningkatkan sifat mekanik paduan TiAl dengan penamabahan 9% dengan nilai kekerasan yang sesuai dengan harapan.

### Uji Aktivitas Katalitik

Selain mempelajari sifat mekanik paduan TiAl, pada penelitian ini dilakukan pengujian aktivitas katalitik dari paduan TiAl dan melihat pengaruh penambahan Ni pada aktivitas katalitik paduan TiAl. Studi katalitik pada penelitian ini dilakukan pada reaksi asetalisasi benzaldehida dengan metanol. Uji Aktivitas Katalitik Paduan TiAl. Uji aktivitas katalitik paduan TiAl dilakukan terhadap reaksi asetalisasi benzaldehida dengan metanol pada kondisi ruang. Pemilihan paduan TiAl ini menjadi katalis dalam reaksi asetalisasi didasari pada prinsip reaksi asetalisasi yang memerlukan situs aktif dengan karakter asam Lewis[19,20]. Sifat ini dipenuhi oleh logam transisi awal seperti logam titanium (Ti) dan logam aluminium (Al) pada valensi tinggi. Difraktogram dari Al menunjukkan bahwa logam Al ada dalam kondisi oksida. Sisi yang kekurangan elektron pada logam Ti akan menarik kerapatan elektron yang ada pada C=O. Penurunan konsentrasi benzaldehida dapat diamati dengan melihat rasio luas area puncak benzaldehida terhadap internal standar.



Gambar 8. Kromatogram hasil reaksi asetalisasi dengan paduan TiAl



Gambar 9. <sup>1</sup>H-NMR reaksi asetalisasi benzaldehida dengan metanol dengan paduan TiAl (60 MHz, CDCl<sub>3</sub>)

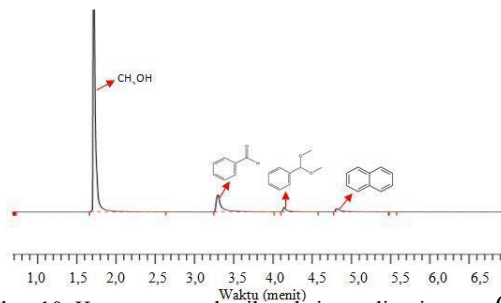
Katalis paduan TiAl yang digunakan pada reaksi asetalisasi dengan kondisi reaksi 1 jam dalam suhu

ruang menghasilkan puncak pada waktu retensi 3,9 menit yang ditunjukkan pada Gambar 8. Namun,

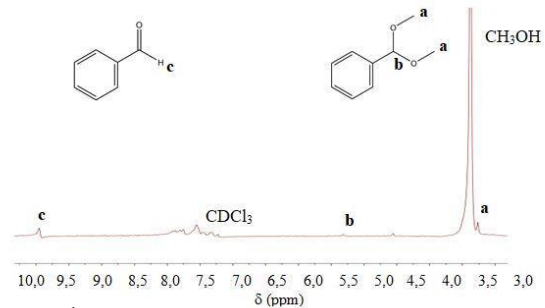
asetalisasi benzaldehida tanpa katalis sudah menghasilkan puncak baru pada waktu retensi tersebut. Hal ini dapat terjadi karena metanol dapat mengalami *self-protonization* sehingga melepaskan  $H^+$  yang bisa mengaktifasi benzaldehida. Data kromatogram hasil reaksi tersebut diolah untuk menghasilkan nilai konversi benzaldehida menjadi produk asetal. Konversi ini dihitung dengan cara membuat kurva standar terlebih dahulu. Kemudian, perbandingan luas area benzaldehida dan naftalena disubstitusi pada persamaan garis yang diperoleh. Hasil perhitungan yang diperoleh merupakan sisa benzaldehida. Paduan TiAl ini diprediksi dapat dimanfaatkan sebagai katalis asetalisasi karena adanya keberadaan alumina ( $Al^{3+}$ ) yang bersifat asam. Hasil reaksinya menunjukkan produk asetal dengan konversi sebesar 36%. Untuk mengkonfirmasi bahwa produk asetal dari reaksi asetalisasi ini terbentuk dilakukan pula analisis dengan  $^1H$ -NMR. Gambar 9. menunjukkan hasil analisis dengan  $^1H$ -NMR terlihat teramati produk yang diindikasikan oleh puncak singlet pada pergeseran 3,32 ppm yang merupakan 2 gugus metil yang diikat oleh atom O dalam produk asetal, serta puncak singlet pada geseran kimia 5,38 merupakan atom H yang diikat oleh atom C antara fenil dan 2 atom O pada gugus asetal. Spektrum tersebut menandakan bahwa reaksi ini hanya menghasilkan satu produk asetal karena tidak teramati produk lain seperti hemiasetal yang mungkin disebabkan oleh kesetimbangan reaksi yang lebih dominan membentuk asetal.

- Uji Aktivitas Katalitik Paduan TiAlNi

Uji aktivitas katalitik paduan TiAl-9Ni juga dilakukan untuk mengetahui pengaruh penambahan Ni terhadap aktivitas katalitik paduan TiAl. Hubungan antara sifat mekanik dari paduan TiAl dengan aktivitas katalitik dilihat dari strukturnya.



Gambar 10. Kromatogram hasil reaksi asetalisasi dengan paduan TiAl-9Ni



Gambar 11.  $^1H$ -NMR reaksi asetalisasi benzaldehida dengan metanol dengan paduan TiAl-9Ni (60 MHz,  $CDCl_3$ )

Gambar 10. menunjukkan bahwa dengan penambahan Ni menghasilkan puncak baru pada waktu retensi menit ke-4,2. Hal ini menandakan dengan penambahan Ni pada paduan TiAl reaksi asetalisasi menghasilkan produk asetal. Konversi dengan paduan TiAl-9Ni ini memiliki nilai sebesar 67%. Pada saat paduan ini ditambahkan logam Ni, diprediksikan terjadi penurunan aktivitas katalitik. Namun data eksperimen menunjukkan peningkatan aktivitas asetalisasi. Saat ini pengujian pengaruh asetalisasi oleh Ni(0) sedang dilakukan dan membandingkan aktivitas katalitik dengan prekursoranya. Untuk memastikan bahwa produk reaksi telah terbentuk di konfirmasi juga dengan karakterisasi menggunakan  $^1H$ -NMR. Gambar 11. menunjukkan dalam spektrum  $^1H$ -NMR terdapat puncak dari produk yang ditunjukkan oleh puncak singlet dari gugus metil oksida pada pergeseran 3,32 ppm serta puncak singlet pada geseran kimia 5,38 merupakan atom H yang diikat oleh atom C antara fenil dan 2 atom O pada gugus asetal. Sisa benzaldehida yang belum terkonversi, teramati pada puncak singlet dari atom H pada gugus aldehida yang muncul pada pergeseran 10 ppm.

## KESIMPULAN

Paduan TiAl berhasil disintesis dengan dilakukan karakterisasi PXRD dan SEM-EDS. Kondisi optimum sintesis paduan TiAl adalah pada waktu penggerusan 50 jam, temperatur *sintering* 900 °C selama 6 jam. Paduan TiAl yang disintesis menghasilkan fasa sebagai berikut  $TiO_2$ ,  $Al_2O_3$ ,  $Ti_3Al$  dan  $\gamma$ -TiAl. Sedangkan paduan TiAl dengan penambahan Ni menghasilkan fasa sebagai berikut  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$ , NiO, NiAl, TiAl, TiNi dan TiAlNi. Penambahan Ni sebesar 9% atom pada paduan TiAl meningkatkan sifat mekaniknya dengan nilai kekerasan menjadi 440 HV. Nilai kekerasan yang diperoleh sesuai dengan yang diharapkan. Pada studi aktivitas katalitiknya penambahan Ni ini meningkatkan nilai konversinya dari 36% menjadi 67%. Namun, paduan TiAl ini kurang berpotensi menjadi katalisis pada reaksi asetalisasi benzaldehida dengan metanol karena memiliki konversi yang kurang baik dalam waktu 1 jam dibandingkan dengan penelitian sebelumnya.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih banyak kepada semua pihak yang telah mendoakan, membantu dan mendukung sehingga penelitian ini dapat terlaksana. Khususnya kepada Pak Dr. Ir. Aditianto Ramelan dan Pak Jai dari program studi Teknik Material yang telah memberika fasilitas alat uji kekerasan Vickers.

## REFERENSI

1. Suryanarayana C. Mechanical alloying and milling suryanaraya. *Mater Sci.* 2001;46:1-184.
2. Zhang DL. Processing of advanced materials using high-energy mechanical milling. *Prog Mater Sci.* 2004;49(3-4):537-560. doi:10.1016/S0079-6425(03)00034-3
3. Cardoso KR, Rodrigues CAD, Botta F WJ. Processing of aluminium alloys containing titanium addition by mechanical alloying. *Mater Sci Eng A.* 2004;375-377(1-2 SPEC. ISS.):1201-1205. doi:10.1016/j.msea.2003.10.001
4. Kawabata T, Tamura T, Izumi O. Effect of Ti/Al ratio and Cr, Nb, and Hf additions on material factors and mechanical properties in TiAl. *Metall Trans A.* 1993;24(1):141-150. doi:10.1007/BF02669611
5. Miwa Y, Sawai T, Fukai K, Hoelzer DT, Hishinuma A. Microstructures in Ti-Al intermetallic compounds irradiated at 673 K in HFIR. *J Nucl Mater.* 2000;283-287(PART I):273-277. doi:10.1016/S0022-3115(00)00357-3
6. Yamaguchi M, Inui H, Ito K. High-Temperature Structural Intermetallics. 2000;48.
7. Forouzanmehr N, Karimzadeh F, Enayati MH. Study on solid-state reactions of nanocrystalline TiAl synthesized by mechanical alloying. *J Alloys Compd.* 2009;471(1-2):93-97. doi:10.1016/j.jallcom.2008.03.121
8. Biamino S, Penna A, Ackelid U, et al. Electron beam melting of Ti-48Al-2Cr-2Nb alloy. Microstructure and mechanical properties investigation. *Intermetallics.* 2011;19(6):776-781. doi:10.1016/j.intermet.2010.11.017
9. Szewczak E, Paszula J, Leonov A V., Matyja H. Explosive consolidation of mechanically alloyed Ti-Al alloys. *Mater Sci Eng A.* 1997;226-228:115-118. doi:10.1016/s0921-5093(97)80030-5
10. Gerasimov KB, Pavlov S V. Metastable Ti-Al phases obtained by mechanical alloying. *J Alloys Compd.* 1996;242:136-142.
11. Lu L, Lai M, Froes F. The mechanical alloying of titanium aluminides. *Jom.* 2002;(February):62-64.
12. Housecroft CE, Sharpe AG. *Catherine e. Housecroft and Alan g. Sharpe.*; 2001.
13. Ho KÅ, Wang G, Min JÅ, Yang J, Li X. Microstructure and mechanical properties of a Ti Å 22Al Å 25Nb alloy fabricated from elemental powders by mechanical alloying and spark plasma sintering. *J Alloys Compd.* 2017;704:425-433. doi:10.1016/j.jallcom.2017.01.354
14. Rahayu D, Sari M. Analisis Struktur Mikro dan Perubahan Fasa  $\gamma$ -TiAl sebagai Material Paduan Tahan Temperatur Tinggi.pdf. 2013;2(1):73-77.
15. Tobergte DR, Curtis S. *Crystals and Crystal Structures.* Vol 53.; 2013. doi:10.1017/CBO9781107415324.004
16. Enayati MH, Karimzadeh F, Anvari SZ. Synthesis of nanocrystalline NiAl by mechanical alloying. *J Mater Process Technol.* 2008;200(1-3):312-315. doi:10.1016/j.jmatprotec.2007.09.023
17. Zhang J, Su X, Strom E, Zhong Z, Li C. Effects of minor addition of Ni on hot-deformation behavior of gamma TiAl alloy. *Mater Sci Eng A.* 2002;329-331:499-503. doi:10.1016/S0921-5093(01)01627-6
18. Dhakshinamoorthy A, Alvaro M, Garcia H. Metal organic frameworks as solid acid catalysts for acetalization of aldehydes with methanol. *Adv Synth Catal.* 2010;352(17):3022-3030. doi:10.1002/adsc.201000537
19. Arrozi USF, Wijaya HW, Patah A, Permana Y. Efficient acetalization of benzaldehydes using UiO-66 and UiO-67: Substrates accessibility or Lewis acidity of zirconium. *Appl Catal A Gen.* 2015;506:77-84. doi:10.1016/j.apcata.2015.08.028
20. Lu F, Jiang B, Wang J, et al. Promotional effect of Ti doping on the ketonization of acetic acid over a CeO<sub>2</sub> catalyst. *RSC Adv.* 2017;7(36):22017-22026. doi:10.1039/C7RA00521K