

## PELAPISAN YTTRIA STABILIZED ZIRCONIA DAN CALCIA STABILIZED ZIRCONIA PADA BAJA S45C DENGAN TEKNIK FLAME SPRAY COATING

**Budiana dan Suasmoro**

*Jurusan Fisika, FMIPA-ITS*

*Jl. Arief Rahman Hakim, Keputih Sukolilo, Surabaya 60111*

*email: suasm@its.ac.id*

*Diterima: 30 April 2013*

*Diperbaiki: 23 Agustus 2013*

*Disetujui: 19 September 2013*

### ABSTRAK

**PELAPISAN YTTRIA STABILIZED ZIRCONIA DAN CALCIA STABILIZED ZIRCONIA PADA BAJA S45C DENGAN TEKNIK FLAME SPRAY COATING.** Telah dilakukan penelitian pelapisan *Yttria Stabilized Zirconia* (YSZ) dan *Calcium Stabilized Zirconia* (CSZ) sebagai pelapis baja S45C dengan lapisan pengikat (*bond coat*) NiCrAlY menggunakan teknik *flame spray coating*. Penelitian ini diawali dengan persiapan bubuk YSZ ( $ZrO_2-Y_2O_3$ ) hasil kalsinasi  $ZrO_2$  dan 7 % mol  $Y_2O_3$ , sedangkan untuk CSZ ( $ZrO_2-CaO$ ) digunakan dari produk komersil. Karakterisasi dari lapisan yang terbentuk dilakukan dengan menggunakan *X-Ray Diffractometer* (XRD), *Scanning Electron Microscope* (SEM) dan *Electron Dispersive by X-Ray* (EDX). Dari penelitian yang dilakukan, NiCrAlY melapisi dengan baik di permukaan substrat S45C dan YSZ kurang dapat melapisi dibandingkan dengan CSZ.

**Kata kunci :** YSZ, CSZ, Flame spray coating

### ABSTRACT

**YTTRIA STABILIZED ZIRCONIA AND CALCIUM STABILIZED ZIRCONIA COATED ON S45C STEEL USING FLAME SPRAY COATING.** The study of *Yttria Stabilized Zirconia* (YSZ) and *Calcium Stabilized Zirconia* (CSZ) coated on S45C steel were carried out using NiCrAlY as bond coat through flame spray coating technique. YSZ ( $ZrO_2-Y_2O_3$ ) was prepared by calcination of  $ZrO_2$  and 7 % mol  $Y_2O_3$  while CSZ ( $ZrO_2-CaO$ ) was ready made from market. Sample characterization was carried out by X-ray Diffractometer (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM) and Energy Dispersive by X-ray (EDX). The result show that NiCrAlY well deposited on S45C and CSZ deposited better than YSZ.

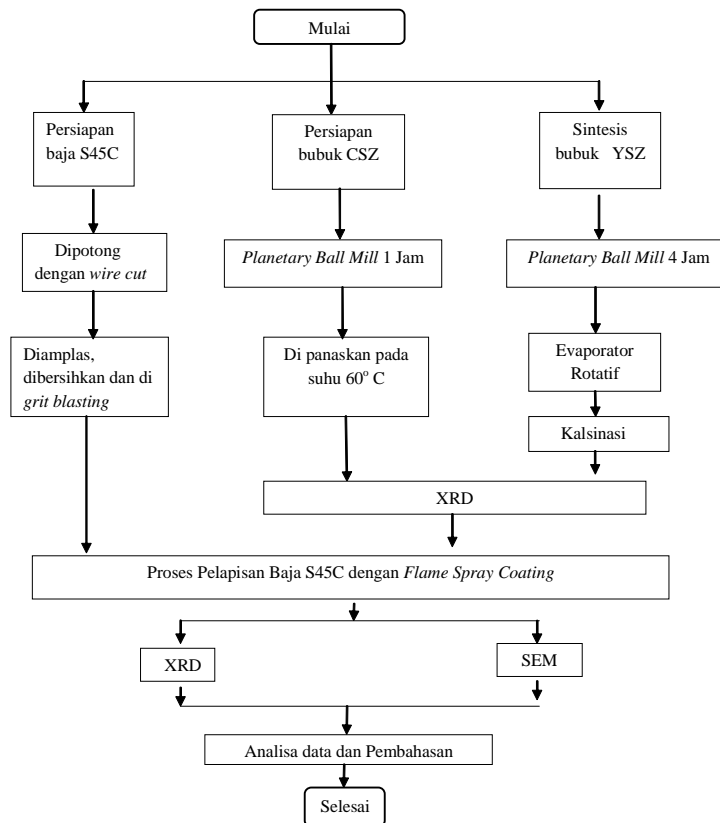
**Keywords :** YSZ, CSZ, Flame spray coating

### PENDAHULUAN

Baja merupakan bahan yang banyak digunakan untuk keperluan konstruksi disebabkan kekuatan dan sifat fisis yang baik. Secara khusus, baja S45C mengandung unsur karbon (0,42-0,46 % berat), silikon (0,15-0,45 % berat), Mn (0,69-0,90 % berat), P (0,030 % berat) dan S (0,035 % berat) [1]. Baja S45C mempunyai kerapatan 700-8030 kg/m<sup>3</sup>, modulus Young 190-210 GPa, *tensile strength* 569 MPa, *yield strength* 490 MPa, *Brinell hardness* 60-220 dan titik leleh 1520°C. Karena ketahanannya terhadap panas, baja ini sering dipakai untuk konstruksi, diantaranya untuk konstruksi nosel.

Untuk meningkatkan *performance* dan mengurangi degradasi maka baja ini sering dilapisi dengan bahan oksida.

Untuk aplikasi baja S45C yang digunakan pada lingkungan dengan suhu sangat tinggi mendekati *melting point* diperlukan sistem isolasi panas pada baja tersebut. Diantara sistem yang bisa digunakan sebagai isolator panas adalah menggunakan oksida keramik [2]. Diantara bahan oksida keramik yang mempunyai ketahanan panas yang baik dan isolator panas yang baik adalah zirkonia. Zirkonia



Gambar 1. Diagram alir percobaan

memiliki konduktivitas termal 2,17 W/mK dan mempunyai struktur *fluorite* dengan 3 sistem fasa. Tiga sistem fasa tersebut adalah kubik, tetragonal dan monoklinik. Kubik zirkonia merupakan fasa suhu tinggi dan hanya stabil pada suhu di atas 2370 °C dengan *melting point* 2680 °C. Di bawah 2370 °C fasanya adalah tetragonal dan di bawah 1100 °C adalah monoklinik. Untuk mengurangi efek *polymorphisme* sering  $ZrO_2$  distabilisasi oleh Y dan Ca [3-6]. Pelapisan ke permukaan baja S45C dengan bahan keramik tidak mudah dilakukan maka agar bisa melekat diperlukan adanya lapisan pengikat (*bond coat*) yaitu NiCrAlY [7].

Terdapat beberapa cara (metode) pelapisan keramik ke permukaan baja, diantaranya *plasma spray* [8,9] dan HVOF [10]. *Flame spray* biasa digunakan untuk melapisi metal dengan metal [11]. Suhu *flame spray* 3000 °C sedangkan titik leleh CSZ dan YSZ di bawah suhu tersebut. Diharapkan pada suhu *flame spray*, CSZ dan YSZ dapat leleh dan menempel pada permukaan yang akan di *coating*.

Dalam penelitian ini akan dikaji YSZ ( $ZrO_2$ - $Y_2O_3$ ) dan CSZ ( $ZrO_2$ -CaO) sebagai bahan pelapis baja S45C dengan menggunakan teknik pelapisan *flame spray coating*. Teknik *flame spray coating* digunakan karena memiliki biaya yang relatif rendah bila dibandingkan dengan teknik *coating* yang lain.

## METODE PERCOBAAN

Sebagai bahan pelapis, YSZ dipersiapkan dengan *doping*  $Y_2O_3$  (Yttrium Oxide 99,999 % RED Puratrem 93-3925) ke dalam  $ZrO_2$  (Zirkonium Oxide Purum Sigma-Aldrich GMBH-D30926) melalui proses *mixing* dan kalsinasi. CSZ diperoleh dari *supplier* (Henan Winna Industrial-China) dimana  $ZrO_2$  sudah terstabilisasi sebagian oleh  $Ca^{2+}$ . Sebagai lapisan pengikat digunakan NiCrAlY (Amdry 962 Sulzer Metco). Dalam persiapan YSZ, pencampuran  $Y_2O_3$  dan  $ZrO_2$  dilaksanakan dengan *planetary ball mill Pulverisette 5* selama 4 jam dengan kecepatan 150 rpm. Proses *milling* dilaksanakan dengan perbandingan massa bola, bubuk, dan volume cairan adalah 169,9182 g: 100 g: 150 mL. Secara lengkap langkah-langkah percobaan digambarkan dalam diagram alir, seperti pada Gambar 1.

Karakterisasi kristalin dilakukan dengan XRD Philips X'Pert Multi Purpose Diffractometer dengan panjang gelombang 1,541 Å. Analisis fasa dilakukan menggunakan *software Match!2*. Persentase dari masing-masing fasa ditentukan dengan *software High Score Plus*. Sedangkan morfologi strukturmikro hasil lapisan dikarakterisasi dengan SEM EVO MA 10 dan EDX EVO MA 10.

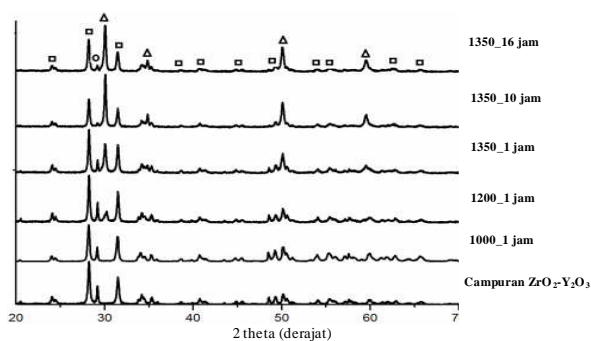
## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Sintesis dan Karakterisasi Bubuk Pelapis

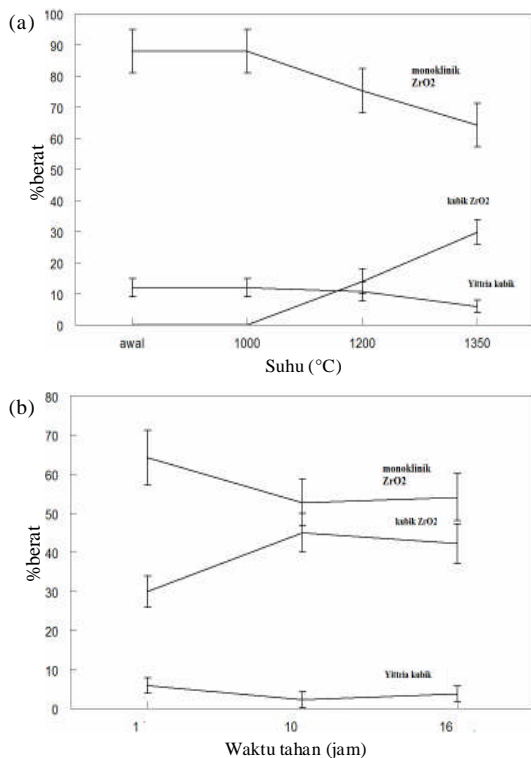
#### Bubuk YSZ

Bubuk YSZ dengan 87,8 %berat  $ZrO_2$  dan 12,815 %berat  $Y_2O_3$  atau setara dengan 7 %mol  $Y_2O_3$  dan 93 %mol  $ZrO_2$  dikalsinasi pada suhu 1000 °C, 1200 °C, 1350 °C selama 1 jam sedangkan untuk suhu 1350 °C dikalsinasi 1 jam, 10 jam dan 16 jam. Pola difraksi XRD dari bubuk campuran dan hasil kalsinasi ditunjukkan pada Gambar 2.

Identifikasi fasa dengan menggunakan *software Match!2* dari bubuk kalsinasi mendapatkan fasa kubik YSZ,  $ZrO_2$  monoklinik dan  $Y_2O_3$  kubik. Dari hasil perhitungan dengan menggunakan *software High Score Plus* persentase masing-masing fasa ditunjukkan pada Gambar 3(a) dan Gambar 3(b).



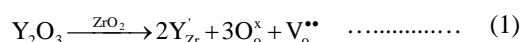
Gambar 2. Pola difraksi campuran  $Y_2O_3$ - $ZrO_2$  dan kalsinasi YSZ. ( $ZrO_2$  kubik  $\blacktriangle$ ,  $ZrO_2$  monoklinik  $\blacksquare$ ,  $Y_2O_3$  kubik  $\bullet$ )



Gambar 3. (a) Grafik %berat fungsi suhu kalsinasi selama 1 jam dan (b) kalsinasi pada T =1350 °C fungsi waktu.

Dari Gambar 3(a) diperoleh informasi bahwa campuran  $ZrO_2$  dan  $Y_2O_3$  mempunyai fasa  $ZrO_2$  monoklinik dan  $Y_2O_3$  kubik dengan persentase masing-masing  $ZrO_2$  87,8 %berat dan  $Y_2O_3$  12,815 %berat atau setara dengan  $ZrO_2$  93% mol dan  $Y_2O_3$  7 %mol. Kalsinasi 1000 °C selama 1 jam belum menunjukkan terjadinya reaksi masih seperti keadaan awal.

Kalsinasi pada suhu 1200 °C selama 1 jam, baru mengakibatkan perubahan persentase berat untuk  $ZrO_2$  kubik,  $ZrO_2$  monoklinik dan  $Y_2O_3$  kubik. Makin tinggi suhu, persentase berat YSZ semakin tinggi. Hal ini terjadi karena  $Y^{3+}$  mensubstitusi  $Zr^{4+}$  dengan persamaan reaksi yang ditunjukkan pada Persamaan (1).



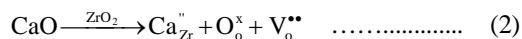
Proses kalsinasi pada 1300 °C dengan waktu yang lebih lama seperti pada Gambar 3(b) menunjukkan adanya reaksi dengan hasil YSZ yang lebih besar, akan tetapi terjadi kejenuhan reaksi ditunjukkan oleh persentase berat YSZ untuk  $t > 10$  jam. Adanya sisa  $Y_2O_3$  yang masih belum bereaksi dapatlah diduga bahwa pencampuran dengan *planetary milling* belum homogen dan belum mencapai *ultimate mixing*.

#### Bubuk CSZ

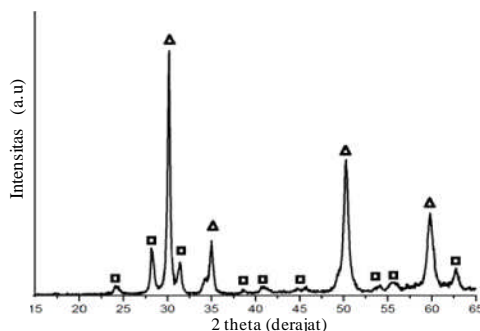
Bubuk CSZ yang diperoleh dari produk komersil dikarakterisasi dengan XRD seperti pada Gambar 4.

Analisis dengan *software Match!2* menghasilkan dua fasa yang teridentifikasi sebagai  $ZrO_2$  kubik dan  $ZrO_2$  monoklinik. Persentase masing-masing fasa dihitung dengan *software High Score Plus*. Hasilnya  $ZrO_2$  monoklinik 35,7 5 %berat dan  $ZrO_2$  kubik 64 %berat.

Fasa kubik  $ZrO_2$  adalah fasa zirkonia yang didoping  $Ca^{2+}$  membentuk cacat dengan persamaan reaksi *defect* sebagaimana ditunjukkan pada Persamaan (2)



Sedangkan fasa monoklinik adalah polimorf  $ZrO_2$  pada suhu kamar.



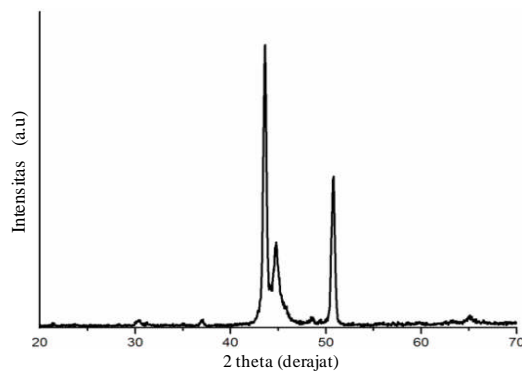
Gambar 4. Pola difraksi CSZ

Tabel 1. Komposisi penyusun NiCrAlY

No	Penyusun	Komposisi (%berat)
1	Ni	67
2	Cr	22
3	Al	10
4	Y	1

### Bubuk NiCrAlY

Berdasarkan data *sheet* yang diperoleh dari Sulzer Metco (US) komposisi dari NiCrAlY seperti Tabel 1. Untuk keperluan analisis keberhasilan pelapisan diperlukan data XRD dari NiCrAlY seperti terlihat pada Gambar 5.

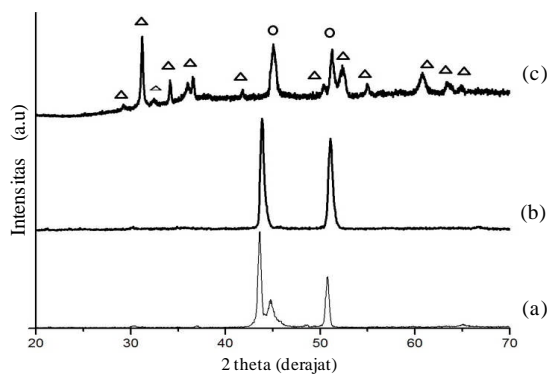


Gambar 5. Pola XRD NiCrAlY

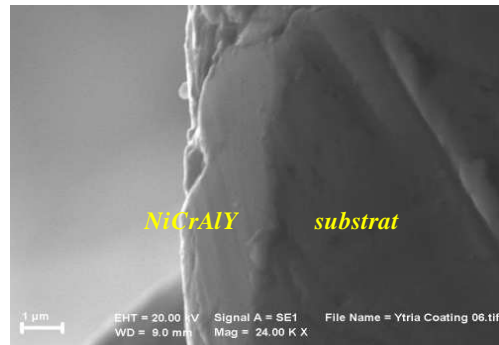
### Pelapisan

Tujuan dilapiskannya NiCrAlY adalah sebagai lapisan pengikat antara lapisan YSZ dan CSZ dengan substrat (baja S45C). Tanpa lapisan pengikat, lapisan YSZ dan CSZ tidak dapat menempel dengan substrat. Pola difraksi dari substrat yang telah dilapisi oleh lapisan pengikat yang ditampilkan pada Gambar 6(a) menunjukkan pola difraksi yang sama dengan bubuk NiCrAlY.

Ini menunjukkan NiCrAlY telah menempel pada substrat dengan tidak merubah komposisi dan strukturnya. Pelapisan *bond coat* NiCrAlY pada



Gambar 6. Pola difraksi dari hasil pelapisan (a) Lapisan pengikat (*bond coat*) NiCrAlY, (b) Lapisan YSZ di atas substrat dan lapisan pengikat, (c) Lapisan CSZ di atas substrat dan lapisan pengikat. (Keterangan: CSZ =  $\Delta$  NiCrAlY =  $\circ$ )

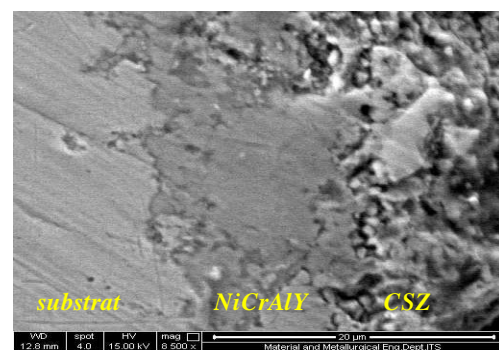


Gambar 7. Foto SEM lapisan pengikat di atas substrat.

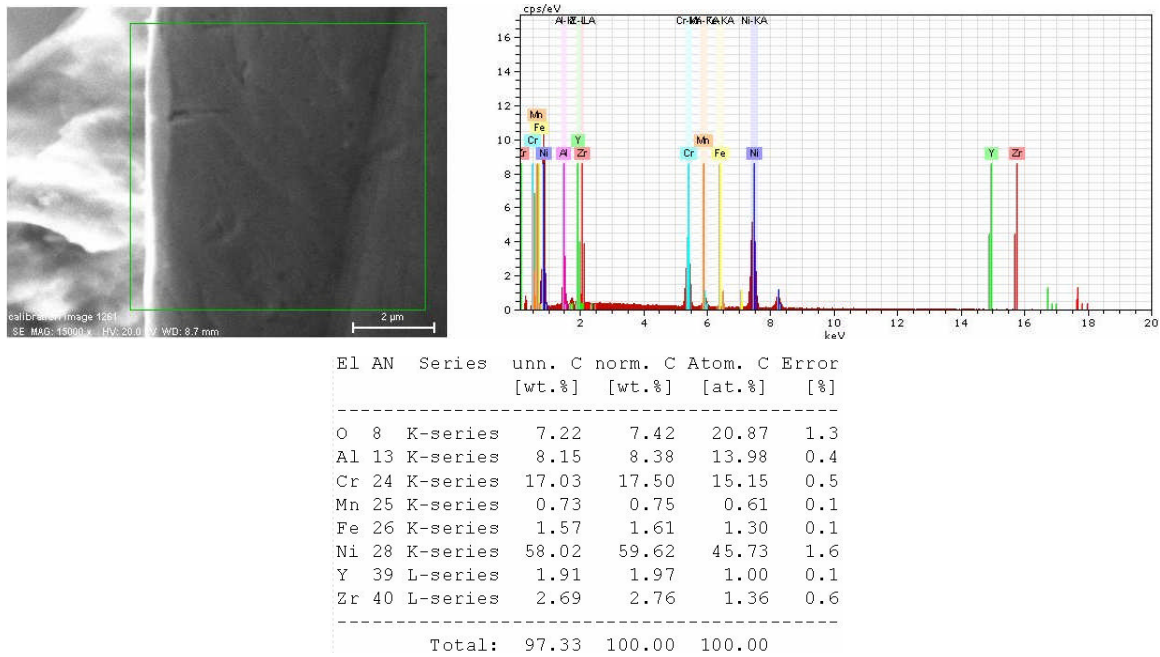
permukaan baja S45C ditunjukkan oleh foto SEM seperti pada Gambar 7.

Tiga hal yang dapat dicatat, penempelan lapisan pengikat di substrat dapatlah diuraikan sebagai berikut. Pertama, ukuran bubuk NiCrAlY berada pada *range* yang disyaratkan *flame spray coating*. Kedua, untuk meleburkan NiCrAlY diperlukan suhu  $>1050^\circ\text{C}$ . Dengan peralatan *flame spray* yang memiliki rentang suhu  $3000^\circ\text{C}$  hingga  $3350^\circ\text{C}$ , dan suhu lebur bubuk NiCrAlY berada di bawah rentang suhu *flame spray*, maka bubuk ini dapat melebur dan menempel pada permukaan baja S45C. Ketiga, terdapat perbedaan suhu antara *flame spray* dengan permukaan baja S45C yang memungkinkan terjadinya peristiwa difusi NiCrAlY pada permukaan baja S45C. Ion-ion NiCrAlY akan menyisip pada besi karena atom-atom NiCrAlY memiliki jari-jari lebih kecil dibandingkan jari-jari ion besi. Untuk ion  $\text{Ni}^{2+}$  memiliki jari-jari ionik 55 pm,  $\text{Cr}^{4+}$  memiliki jari-jari ionik 41 pm,  $\text{Al}^{3+}$  memiliki jari-jari ionik 39 pm dan  $\text{Fe}^{2+}$  memiliki jari-jari ionik 63 pm.

Pada Gambar 6(c) terlihat difraktogram CSZ teramati bersama dengan lapisan pengikat. Ini menunjukkan lapisan CSZ terbentuk. Observasi SEM dari lapisan CSZ menunjukkan masih terbentuk banyak porositas (Gambar 8). Hasil ini dapat dianalisis sebagai berikut. Dari data diketahui bahwa titik lebur dari bubuk CSZ adalah  $2565^\circ\text{C}$ , titik lebur ini masih berada di bawah suhu *flame* ( $3000^\circ\text{C}$  hingga  $3350^\circ\text{C}$ ). Suhu *flame* ini memungkinkan bubuk CSZ meleleh. Akan tetapi, peleburan belum sempurna sehingga banyak porositas. Ketidaksempurnaan CSZ melebur karena suhu *flame* dan



Gambar 8. Foto SEM lapisan CSZ pada substrat dengan lapisan pengikat NiCrAlY.



Gambar 9. EDS lapisan YSZ pada substrat

titik lebur CSZ itu kecil ~ 500 °C. Mengingat lama waktu terbang bubuk CSZ sangat singkat ~ 30 ms, kecepatan di dalam *flame* 80-100 m/s dengan jarak tempuh 30 cm dan konduktivitas termal CSZ 1,4 W/ m K maka bubuk CSZ ini belum sempurna melebur.

Untuk pelapisan YSZ (Gambar 6 (b)) menunjukkan pola difraksi yang sedikit berubah dari pola difraksi lapisan pengikat sedangkan pola difraksi YSZ tidak terlihat. Ini menandakan bahwa YSZ sangat sedikit yang menempel pada permukaan pengikat. Konfirmasi adanya penempelan YSZ diperoleh dari analisa EDX (Gambar 9) yang menunjukkan bahwa Y dan Zr teridentifikasi dengan kuantitas yang sangat sedikit. Sangat sedikitnya Y dan Zr dapat terjadi dikarenakan titik lebur YSZ adalah 2700 °C. Sebagaimana analisis di depan maka pada suhu ~300 °C menghasilkan jumlah lelehan yang lebih sedikit lagi dibandingkan dengan CSZ. Selama terbang bagian yang meleleh dari YSZ masih sangat sedikit sehingga sulit menempel pada permukaan lapisan pengikat.

## KESIMPULAN

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dengan metode *flame spray coating*, diperoleh bahwa bubuk pelapisan pengikat NiCrAlY dapat melapis pada permukaan baja S45C dan dapat mengikat lapisan CSZ. Untuk bahan pelapis YSZ sangat sedikit sekali yang dapat melapis disebabkan karena titik lebur dari YSZ 2700 °C dekat dengan suhu *flame* sehingga belum melebur.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada kementerian RISTEK yang membiayai penelitian ini melalui Konsorsium Riset Nosel LAPAN.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. G. AGGEN, F.W. AKSTENS. *Properties and Selection : Irons, Steels, and High-Performance Alloys*. ASM Handbook Vol. 1, 10<sup>th</sup> Edition, ASM International, (1990)
- [2]. C. B. CARTER, M. G. NORTON, *Ceramic Material Science and Engineering*, Springer (2007)
- [3]. P. G. KLEMENS, M. GELL. *Materials Science and Engineering*, **A245** (1998) 143-149
- [4]. A. H. HEUER and M. RÜHLE, *Phase Transformations in ZrO<sub>2</sub>-Containing Ceramics: I, The Instability of c-ZrO<sub>2</sub> and the Resulting Diffusion-Controlled Reactions*; pp. 1-13 in *Advances in Ceramics*, Vol. 12, *Science and Technology of Zirconia II*. Edited by N. CLAUSSEN, M. RÜHLE, AND A. H. HEUER. American Ceramic Society, Columbus, OH, (1984)
- [5]. H. A. ABBAS, F. F. HAMAD, A. K. MOHAMAD, Z. M. HANAFI, M. KILO, *Diffusion Fundamental* **8** (2008) 7.1-7.8
- [6]. G. WITZ, V. SHKLOVER, W. STEURER, S. BACHEGOWDA and HANS-PETER BOSSMANN, *Journal of the American Ceramic Society*, **90** (2007) 2935-2940

- [7]. M. GORAL, P. SOSNOWY, *Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*, **55** (2012) 912-917
- [8]. Y. SEUNG SONGA, I. GYU LEE, *Materials Science and Engineering A*, **332** (2002) 129-133
- [9]. S. B MISHRA, S. PRAKASH, K. CHANDRA, Characterization of Plasma Sprayed NiCrAlY, Ni-20 Cr and Ni<sub>3</sub>Al Coatings on ANi-Based Superalloy Inconel 718, *Proceeding of the International Symposium of Research Student on Materials Science and Engineering Held at Met. and Mat. Engg.*, Indian Institute of Technology Madras, Chennai Dec. 20-22, (2004) 1-8
- [10]. L. YONG NI, Z. LONG WU, C. GEN ZHOU, *Progress in Natural Science : Materials International*, **21** (2011) 173-179
- [11]. S. SHARMA, *Journal of the Institution of Engineering (India) : Series D*, **93** (2012) 7-12