

Perilaku Laju Keausan dan Kekerasan Komposit Epoksi yang Diperkuat dengan Serat Gelas dan Partikel Bambu

Sunardi^{1*}, Shafnur Hamdi¹, Iman Saefuloh¹, Agung Sudrajad¹, Shofiatul Ula¹, Moh. Fawaid²

¹Program Studi Teknik Mesin, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa

Jl. Jendral Sudirman KM 03, Cilegon 42435, Indonesia

²Program Studi Pendidikan Teknik Mesin, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa

Jl. Ciwaru Raya 25, Kota Serang 42117, Indonesia

*Penulis korespondensi; E-mail: sunardi@untirta.ac.id

ABSTRAK

Penggunaan material organik dalam komposit mengalami perkembangan yang sangat menarik. Kondisi ini tidak dapat dipisahkan dari semakin menguatnya isu lingkungan. Pembatasan penggunaan bahan-bahan yang dapat mencemari lingkungan harus dilakukan untuk menjaga itu keberlanjutan. Partikel yang dilepaskan dari komposit, sebagai debris keausan harus aman untuk kesehatan dan lingkungan. Kontribusi penelitian ini adalah eksplorasi material ramah lingkungan untuk aplikasi kampas rem di bidang otomotif. Penelitian ini menggunakan partikel bambu dan seng sebagai filler, serat kaca sebagai penguat komposit, dan epoksi sebagai matriks yang mengikat semua itu gabungan material. Pembuatan sampel dilakukan dengan menggunakan kompaksi dingin dengan tekanan yang berbeda-beda, yaitu 20, 30, dan 40 MPa. Proses selanjutnya adalah curing dengan memanaskan sampel di dalam oven listrik pada suhu 150 °C selama 1 jam. Hasil eksperimen menunjukkan bahwa kompaksi memiliki pengaruh signifikan terhadap performa komposit yang dihasilkan. Pada tekanan kompaksi 20 MPa menghasilkan densitas 1,58 g/cm³, kekerasan 15,30 BHN, dan laju keausan 6,16 x 10⁻⁶ g/mm².s. Pada tekanan kompaksi 30 MPa menghasilkan densitas 1,62 g/cm³, kekerasan 16,33 BHN, dan laju keausan 5,66 x 10⁻⁶ g/mm².s, sedangkan pada tekanan kompaksi 40 MPa memiliki densitas, kekerasan dan laju keausan masing-masing adalah 1,66 g/cm³, 17,67 BHN, dan 5,48 x 10⁻⁶ g/mm².s. Densitas, kekerasan, dan ketahanan aus material mengalami peningkatan seiring dengan tekanan kompaksi pada saat proses manufaktur.

Kata Kunci : bambu, serat bambu, isu lingkungan, laju keausan, kekerasan.

ABSTRACT

The use of organic materials in composites has seen exciting developments, which are closely tied to the growing environmental concerns. It is important to impose restrictions on the use of materials that can harm the environment in order to ensure sustainability. Additionally, the particles released from the composite as wear debris should be safe for both human health and the environment. This research aims to explore the use of environmentally friendly materials for brake pad applications in the automotive sector. The study involves the use of bamboo and zinc particles as fillers, glass fibers as composite reinforcements, and epoxy as a binding matrix for these materials. The sample was prepared using cold compaction with different pressures, namely 20, 30, and 40 MPa. The following process is curing by heating the sample in an electric oven at a temperature of 150 °C for 1 hour. The experimental results showed that compaction had a significant effect on the performance of the resulting composite. At a compaction pressure of 20 MPa, it produced a density of 1,58 g/cm³, hardness 15,30 BHN, and wear rate of 6,16 x 10⁻⁶ g/mm².s. At a compaction pressure of 30 MPa, the density is 1,62 g/cm³, the hardness 16,33 BHN, and wear rate is 5,66 x 10⁻⁶ g/mm².s, while at a compaction pressure of 40 MPa, the density, hardness, and wear rate are 1,66 g/cm³, 17,67 BHN, and 5,48 x 10⁻⁶ g/mm².s. The material's density, hardness, and wear rate increase along with the compaction pressure during manufacturing.

Keywords: *bamboo, glass fiber, environment issue, wear rate, hardness.*

PENDAHULUAN

Parameter manufaktur komposit secara signifikan mempengaruhi sifat mekanik, termal, dan tribologi. Parameter ini meliputi tekanan kompaksi, waktu penahanan, suhu cetakan, dan curing. Shinde dkk [1] mempelajari kombinasi parameter yang paling optimal dari dua material dengan menggunakan metode *multi-criteria decision-making* (MCDM). Dari studi ini diketahui bahwa waktu penahanan pada proses pematangan memberikan kontribusi sebesar 19,34% terhadap kekuatan tarik biokomposit [2]. Tekanan kompaksi merupakan salah satu parameter yang sangat berpengaruh terhadap sifat komposit. Putra dkk [3] melakukan penelitian tentang pengaruh tekanan kompaksi terhadap sifat mekanis pada komposit papan partikel. Kepadatan, kekerasan, dan ketangguhan impak papan partikel mengalami peningkatan seiring dengan bertambahnya tekanan kompaksi yang diterima oleh komposit, akan tetapi kekuatan lentur dan pengembangan tebal mengalami penurunan. Oladokun dkk [4] juga menunjukkan bahwa peningkatan tekanan kompaksi dapat meningkatkan densitas, kekerasan, kekuatan tekan, dan modulus komposit. Porositas komposit berkurang seiring semakin tingginya tekanan kompaksi. Semakin tingginya densitas komposit ini yang meningkatkan sifat mekanik komposit. Densitas sangat berkaitan dengan kekerasan, kekuatan tekan, dan modulus komposit.

Tekanan kompaksi juga dapat mengurangi laju keausan komposit yang diperkuat dengan palm slag. Densitas, kekerasan, dan kekuatan tekan komposit kanvas rem meningkat seiring dengan meningkatnya beban kompaksi [5]. Banyak dan lain-lain. Viel dkk [6] menunjukkan bahwa peningkatan tekanan kompaksi akan meningkatkan nilai densitas, konduktivitas termal, dan moisture buffer value. Pemakaian serat bambu merupakan upaya pengembangan material komposit yang ramah lingkungan. Secara teknis, serat bambu dapat meningkatkan kekerasan, ketahanan aus, dan umur pakai material [7]. Arah serat bambu memiliki pengaruh terhadap sifat tribologi komposit. Arah serat bambu 0-90° dapat sedikit meningkatkan ketahanan aus komposit. Jenis keausan yang terjadi adalah keausan abrasif dan keausan lelah pada suhu ruangan [8]. Pemakaian material organik yang ramah lingkungan merupakan upaya mewujudkan lingkungan hijau yang berkelanjutan. Penelitian ini mempelajari perilaku komposit kanvas rem yang diperkuat serat kaca dan partikel bambu pada berbagai tekanan kompaksi yang berbeda-beda terhadap porositas, densitas, kekerasan, dan laju keausan.

METODE

Penelitian ini memanfaatkan material-material organik yang ramah lingkungan untuk digunakan sebagai material komposit kanvas rem. Karakteristik yang diamati dalam studi ini adalah densitas, kekerasan, dan laju keausan komposit.

Bahan

Material yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari 4 jenis material, yaitu 40% resin epoksi, 30% serat kaca, 28% partikel bambu, dan 2% serbuk seng. Partikel bambu diperoleh dari bambu betung (*Dendrocalamus Asper*) dengan ukuran mesh 60 sebagai filler organik. Serat gelas dengan panjang 5 mm digunakan sebagai penguat komposit. Sedangkan partikel seng memiliki ukuran 45 mikron. Partikel bambu dan serat gelas ditunjukkan oleh Gambar 1.



Gambar 1. Partikel Bambu dan Serat Gelas

Perlakuan Awal Partikel Bambu

Partikel bambu direndam di dalam larutan 5% NaOH selama 2 jam. Setelah itu, bambu partikel dibilas dengan air distilasi hingga pH normal. Partikel bambu dikeringkan di bawah sinar matahari selama beberapa hari. Langkah terakhir adalah meneringkan partikel bambu di dalam oven listrik dan dipanaskan pada suhu 105 °C selama 1 jam. Partikel bambu yang sudah kering kemudian disimpan di dalam kantong plastik *ziplock* agar terhindar dari kontaminasi udara luar.

Proses Pembuatan Sampel

Pencampuran material penyusun komposit dilakukan dengan menggunakan mesin mixer selama 10 menit dan kemudian dibiarkan selama 15 menit sebelum proses kompaksi. Material komposit kemudian dimasukkan ke dalam cetakan dan diberikan tekanan sebesar 20 MPa, 30 MPa, dan 40 MPa dengan waktu tahan masing-masing selama 1 jam. Proses pembuatan sampel ditunjukkan oleh Gambar 2.



Gambar 2. Proses Kompaksi Komposit

Setelah proses kompaksi, sampel dikeluarkan dari cetakan dan diberikan perlakuan panas di dalam oven listrik berupa curing pada suhu 150 °C selama 1 jam. Curing adalah proses kimiawi melalui panas dengan tujuan mengubah resin dalam komposit menjadi keras dan stabil. Selama proses curing, resin akan mengalami reaksi kimia dengan membentuk ikatan silang rantai polimer. Ikatan silang ini menghasilkan kekuatan dan kekakuan komposit. Sampel hasil proses curing ditunjukkan oleh Gambar 3.



Gambar 3. Sampel Komposit Setelah Proses Curing

Karakterisasi Material Komposit

Densitas. Densitas komposit adalah massa rata-rata per satuan volume. Penentuan densitas komposit merujuk pada studi yang dilakukan oleh Viel dkk [6] dengan seperti yang ditunjukkan oleh Persamaan 1.

$$\rho = \frac{m}{V} \quad (1)$$

Di mana, ρ adalah densitas komposit [g/cm^3], m adalah massa komposit [gram], dan V adalah volume komposit [cm^3].

Porositas. Porositas adalah fraksi volume rongga atau pori-pori komposit. Besarnya porositas komposit ditentukan dengan Persamaan 2 [9].

$$Porositas = \frac{\rho_{th} - \rho_{exp}}{\rho_{th}} \quad (2)$$

Di mana, ρ_{th} adalah densitas teoritis [g/cm^3] dan ρ_{exp} adalah densitas hasil pengujian komposit [g/cm^3].

Kekerasan. Kekerasan permukaan komposit dilakukan dengan menggunakan metode kekerasan Brinell dengan indentaor bola baja berdiameter 2,5 mm dan beban 15,63 kg. Pengukuran kekerasan dilakukan dengan 5 kali replikasi.

Laju keausan. Pengujian laju keausan dilakukan menurut standar ASTM G-99 dengan metode *pin-on-disc*. Ukuran sampel berbentuk silinder, berdiameter 40 mm dengan panjang 15 mm. Kecepatan putaran cakram 100 rpm dan beban 200 gram. Besarnya laju keausan dinyatakan dengan Persamaan 3.

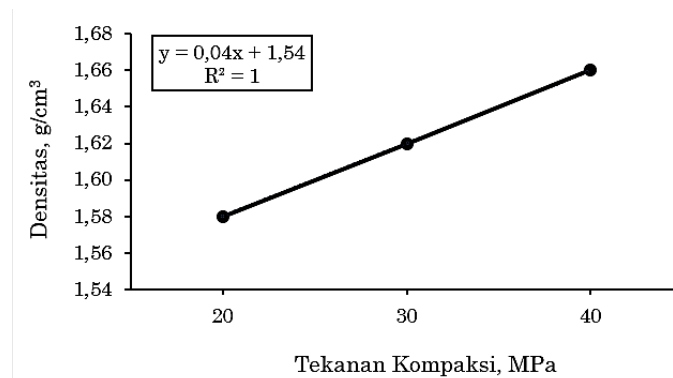
$$M = \frac{M_a - M_b}{A \cdot t} \quad (3)$$

Di mana, M adalah laju keausan [$g/mm^2 \cdot s$], M_a adalah berat awal komposit [gram], M_b adalah berat akhir komposit, A adalah luas penampang gesekan [mm^2], dan t adalah waktu pengujian [detik].

HASIL DAN PEMBAHASAN

Densitas Komposit

Gambar 4 menunjukkan bahwa tekanan kompaksi sangat berpengaruh terhadap densitas komposit. Semakin tinggi tekanan kompaksi pada saat pembuatan komposit maka densitasnya mengalami peningkatan. Hasil studi ini linier dengan laporan yang ditulis oleh Dixit dan Srivastava [10] dan Xiao dkk [11].



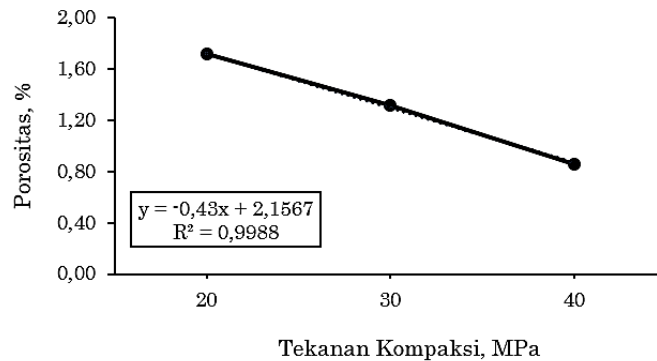
Gambar 4. Korelasi Tekanan Kompaksi dan Densitas Komposit

Porositas Komposit

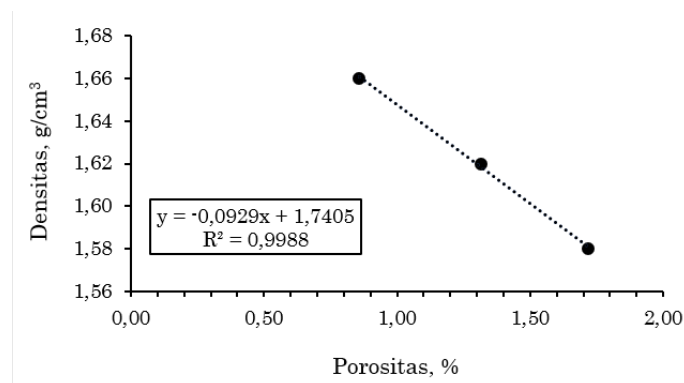
Porositas sangat menentukan sifat mekanis komposit. Selama pembuatan komposit, tekanan kompaksi akan diteruskan ke setiap material penyusun komposit dan mengisi ruang-ruang kosong dalam cetakan. Gambar 5 menunjukkan bahwa semakin tinggi tekanan kompaksi maka porositas yang terbentuk semakin rendah. Hasil eksperimen ini bersesuaian dengan studi yang dilakukan oleh peneliti-peneliti sebelumnya [12-14].

Tekanan kompaksi pada komposit menghasilkan ikatan mekanis dan membentuk *green body*. Setelah proses *curing*, terbentuk *crosslink* pada matriks epoksi sehingga menghasilkan kekerasan, kekuatan, dan kekakuan pada komposit. Porositas dan densitas memiliki korelasi yang sangat kuat, seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 6 dengan nilai regresi $R = 0,9988$. Menurut Schober

dkk [15], nilai korelasi tersebut sangat tinggi dan menunjukkan korelasi yang sangat kuat. Gambar 6 menunjukkan bahwa semakin tinggi porositas komposit maka densitasnya mengalami penurunan.



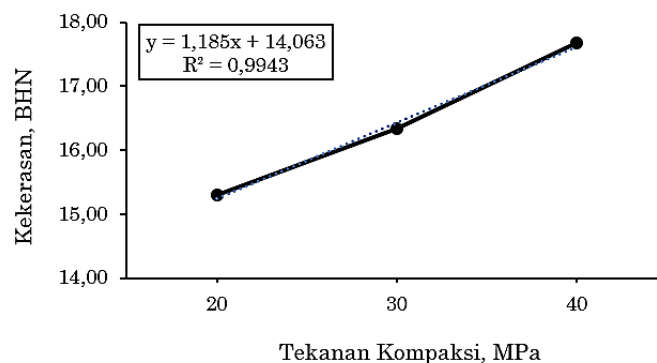
Gambar 5. Korelasi Tekanan Kompaksi dan Porositas Komposit



Gambar 6. Korelasi Antara Porositas dan Densitas Komposit

Kekerasan Permukaan Komposit

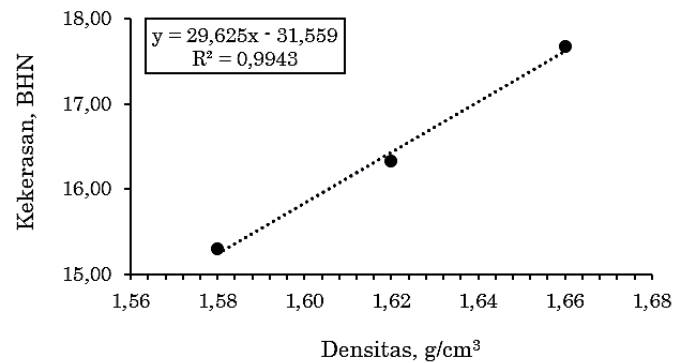
Gambar 7 menunjukkan bahwa kekerasan permukaan komposit mengalami peningkatan seiring semakin tingginya tekanan kompaksi pada sampel. Tekanan kompaksi sangat berpengaruh terhadap kekerasan permukaan komposit. Kekerasan kampas rem yang dikembangkan memiliki kekerasan yang kompetitif jika dibandingkan dengan kampas rem komersial. Hasil pengujian kekerasan komposit kampas rem komersial sebesar 11,90 HB.



Gambar 7. Korelasi Antara Tekanan Kompaksi dan Kekerasan Permukaan Komposit

Kekerasan komposit kampas rem yang dikembangkan berada di antara 15,30 dan 17,67 HB. Peningkatan kekerasan permukaan komposit sebesar 6,73 % dan 15,49 % pada tekanan kompaksi 30 dan 40 MPa. Peningkatan kekerasan komposit ini disebabkan oleh semakin padatnya komposit karena semakin tingginya tekanan kompaksi. Gambar 8 menunjukkan korelasi antara densitas

dan kekerasan komposit, di mana semakin tinggi densitas komposit maka kekerasan komposit semakin tinggi. Korelasi antara densitas dan kekerasan komposit dinyatakan dengan nilai regresi $R = 0,9943$. Hasil penelitian ini linier dengan yang dilakukan oleh Xiao dkk [11] yang menyatakan bahwa peningkatan tekanan kompaksi dapat meningkatkan kekerasan permukaan komposit. Fenomena ini sedikit berbeda dengan studi yang dilakukan oleh Dixit dan Srivastava [10], yang menyatakan bahwa kekerasan tembaga dengan proses metalurgi serbuk mengalami peningkatan ketika tekanan kompaksi mencapai 700 MPa. Akan tetapi, studi lain menunjukkan bahwa terjadi penurunan kekerasan ketika tekanan kompaksi 730 MPa.



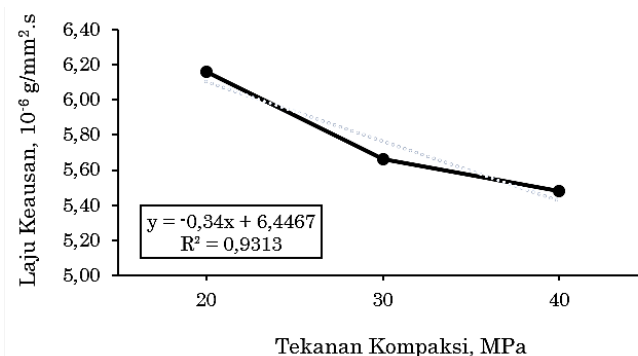
Gambar 8. Korelasi Antara Densitas dan Kekerasan Permukaan Komposit

Laju Keausan Permukaan Komposit

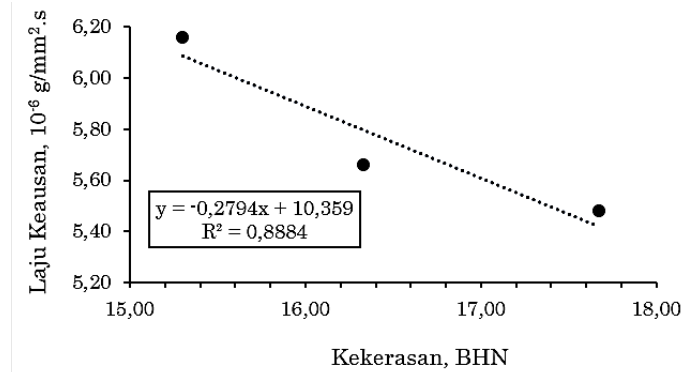
Laju keausan kampas rem adalah $6,16 \times 10^{-6}$, $5,66 \times 10^{-6}$, dan $5,48 \times 10^{-6}$ g/mm².s pada tekanan kompaksi masing-masing 20 MPa, 30 MPa, dan 40 MPa. Gambar 9 menunjukkan bahwa semakin tinggi tekanan kompaksi maka semakin rendah laju keausan komposit kampas remnya. Fenomena ini diperkuat oleh studi yang dilakukan oleh Ruzaidi dkk [5], yang menyatakan bahwa laju keausan menurun seiring dengan peningkatan beban kompaksi. Laju keausan komposit kampas rem yang dikembangkan memiliki nilai yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan kampas rem komersial. Laju keausan kampas rem komersial adalah $3,41 \times 10^{-6}$ gram/mm².s.

Fawaid dkk [16] menggunakan serat bambu sebagai penguat pada komposit kampas rem organik. Studi yang dilakukan menunjukkan bahwa nilai laju keausan berada di antara 3,59-4,86 g/mm².s. Penguat serat bambu mampu meningkatkan ketahanan aus komposit, meskipun kekerasan permukaan mengalami penurunan.

Pemakaian abu terbang batubara dapat menurunkan laju keausan komposit sangat signifikan. Dalam studinya, Sunardi dkk [17] menunjukkan bahwa laju keausan berada di antara $2,83 \times 10^{-7}$ dan $3,15 \times 10^{-7}$ g/mm².s. Gambar 10 menunjukkan bahwa kekerasan permukaan komposit berpengaruh terhadap nilai ketahanan ausnya. Nilai regresi dari kedua variabel ini adalah $R = 0,8884$. Kedua variabel ini memiliki korelasi yang kuat [15]. Akan tetapi, penelitian yang dilakukan oleh Alajmi dan Shalwan [18] menunjukkan fenomena yang berbeda, di mana kekerasan dan laju keausan komposit tidak memiliki korelasi atau dapat diabaikan, karena nilai $R = 0,0003$.



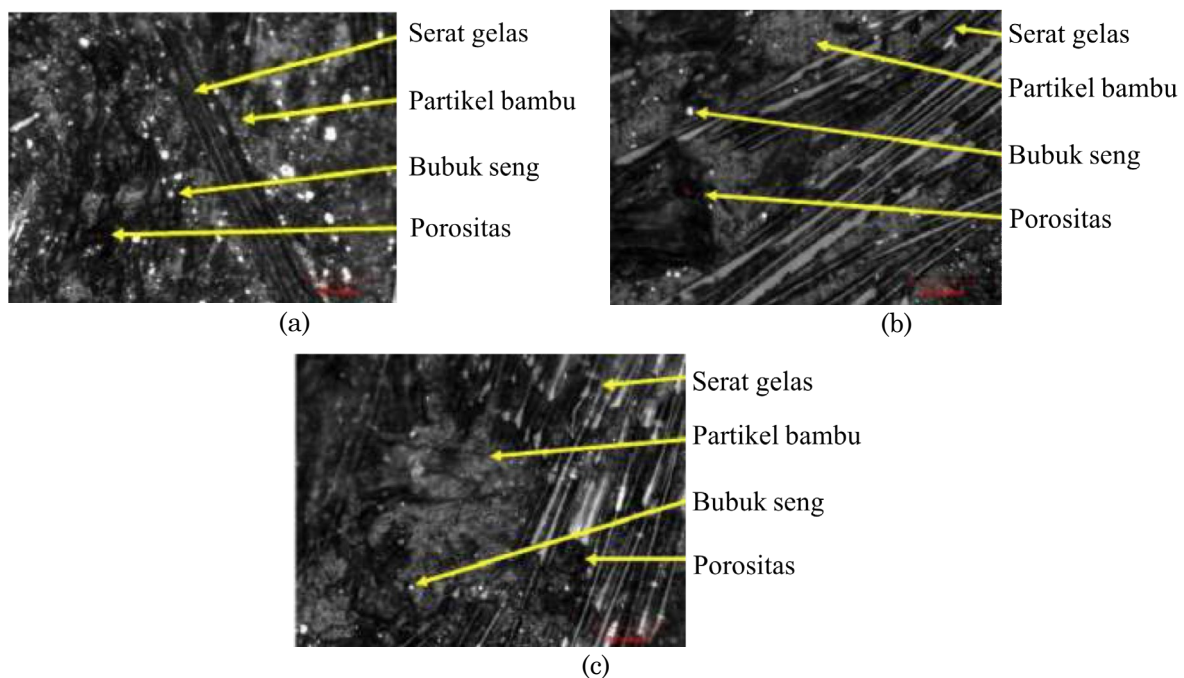
Gambar 9. Korelasi Antara Tekanan Kompaksi dan Laju Keausan



Gambar 10. Korelasi Antara Kekerasan dan Laju Keausan Komposit

Morfologi Permukaan Komposit

Pengamatan morfologi material komposit diamati dengan mikroskop optik merk Olympus BX41 dengan sistem optis UIS2/UIS (*universal infinity system*). Pembesaran yang digunakan dalam penelitian ini adalah 200x. Material komposit terdiri dari serbuk bambu, serbuk Zn, serat gelas, dan resin epoksi. Morfologi permukaan material komposit dapat ditunjukkan pada Gambar 11. Komposit yang memperoleh tekanan kompaksi 40 MPa seperti ditunjukkan oleh Gambar 12(c) menunjukkan densitas komposit yang lebih baik dengan komposisi yang kompak.



Gambar 11. Morfologi permukaan komposit pada tekanan: (a) 20 MPa, (b) 30 MPa, dan (c) 40 MPa

KESIMPULAN

Parameter proses pembuaan sampel komposit kampas rem memiliki pengaruh yang signifikan terhadap sifat mekanis dan sifat tribologinya. Komposit dengan menggunakan partikel bambu memiliki nilai yang kompetitif jika dibandingkan dengan kampas rem komersial. Penelitian ini menunjukkan bahwa tekanan kompaksi berpengaruh terhadap performa material. Semakin tinggi tekanan kompaksi pada proses manufaktur, maka semakin tinggi densitas, kekerasan, dan ketahanan aus komposit kampas rem. Selain itu didaatkan hasil pula bahwa sifat mekanis dan sifat tribologi terbaik adalah komposit dengan tekanan kompaksi 40 MPa dengan nilai densitas, kekerasan, dan laju keausan masing-masing adalah $1,66 \text{ g/cm}^3$, 17,67 BHN, dan $5,48 \times 10^{-6} \text{ g/mm}^2.\text{s}$.

PENGAKUAN

Penelitian ini melibatkan banyak pihak. Pada kesempatan ini penulis mengucapkan terimakasih kepada Laboratorium Material Teknik Metalurgi, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] D. Shinde, H. Oktem, K. Kalita, S. Chakraborty, X.Z. Gao, "Optimization of process parameters for friction materials using multi-criteria decision making: A comparative analysis", *Processes*, vol. 9, no. 1570, pp. 1-17, 2021, doi: 10.3390/pr9091570
- [2] D.P. Andriani, D.H. Sulistyorini, O. Novareza, F.P. Purwandani, T. Yuniarto, "Parameters optimization of bio composite manufacturing using experimental design", *IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science*, vol. 391, pp. 1- 10, 2019, doi: 10.1088/1755-1315/391/1/012010
- [3] R.K. Putra, S. Sunardi, M. Fawaid, R. Lusiani, I. Saefuloh, A. Sudrajad, "Study of particle boards characteristic based on sengon wood particle and oil palm empty fruit bunches", *Trends in Mechanical Engineering Research (TiMER)*, vol. 01, no. 01, pp. 21-26, 2023.
- [4] T.O. Oladokun, J.T. Stephen, A. Adebayo, G.J. Adeyemi, "Effect of moulding pressure on brake lining produced from industrial waste material: Sawdust", *European Journal of Engineering Research and Science*, vol. 4, no. 6, pp. 62-68, 2019, doi:10.24018/ejers.2019.4.6.1368
- [5] C.M. Ruzaidi, H. Kamarudin, J.B. Shamsul, M.M.A. Abdullah, Rafiza, "Mechanical properties and wear behavior of brake pads produced from palm slag", *Advanced Materials Research*, vols. 341-342, pp. 26-30, 2012, doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.341-342.26
- [6] M. Viel, F. Collet, C. Lanos, "Effect of compaction on multiphysical properties of hemp-black liquor composites", *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 9, no. 2, pp. 2487-2494, 2020, doi:10.1016/j.jmrt.2019.12.079
- [7] Y. Sukrawan, S. Hamdani, S.A. Mardani, "Effect of bamboo weight fractional on mechanical properties in non-asbestos composite of motorcycle brake pad", *Materials Physics and Mechanics*, vol. 42, pp. 367-372, 2019, doi: 10.18720/MPM.4232019_12
- [8] B.A. Oliver, Q. Dong, M. Ramezani, M.A. Selles, S. Sanchez-Caballero, "Tribological performance of bamboo fabric reinforced epoxy composites", *Macromolecular Material and Engineering*, vol. 308, pp. 1-11, 2023, doi: 10.1002/mame.202300077
- [9] P.P. Ikubanni, M. Oki, A.A. Adeleke, A. A. Adediran, O.O. Agboola, O. Babayeju, N. Egbo, I.M. B. Omiogbemi, "Tribological and physical properties of hybrid reinforced aluminium matrix composites", *Materials Today: Proceedings*, vol. 46, pp. 5909-5913, 2021.
- [10] M. Dixit & R.K. Srivastava, "Effect of compaction pressure on microstructure, density and hardness of copper prepared by powder metallurgy route", *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, vol. 377, pp. 1-9, 2018, doi:10.1088/1757-899X/377/1/012209
- [11] L. Xiao, Y.H. Sun, L. Yu, "The effect of compaction parameters and dielectric composition on properties of soft magnetic composites", *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 303, pp. 1-6, 2011, doi: 10.1088/1742-6596/303/1/012086
- [12] G. Manohar, K.M. Pandey, S.R. Maity, "Effect of compaction pressure on mechanical properties of AA7075/ B4C/Graphite hybrid composite fabricated by powder metallurgy techniques", *Materials Today: Proceedings*, vol. 38, pp. 2157-2161, 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2020.05.194
- [13] M.N. Akanbi, O. Ogbobe, C.S. Nwobodo P.I. Anyanwu, "Effect of compaction pressures on apparent porosity and water absorption properties of clay/polymethylmethacrylate composite", *International Research Journal in Engineering, Science and Technology*, vol. 12, no. 1, pp. 1-7, 2015.
- [14] S.F. Gharaibeh, W.M. Obeidat, N. Al-Zoubi, "Effect of post-compaction heating on characteristics of microcrystalline cellulose compacts", *e-Polymer*, vol. 22, pp. 536-543, 2022, doi: 10.1515/epoly-2022-0049
- [15] P. Schober, C. Boer, L.A. Schwarte, "Correlation coefficients: Appropriate use and interpretation", *Anesthesia & Analgesia*, vol. 126, no. 5, pp. 1763-1768, 2018, doi: 10.1213/ANE.0000000000002864

- [16] M. Fawaid, S. Sunardi, S. Hamdi, "Pengaruh variasi tekanan kompaksi terhadap karakteristik komposit bahan alternatif kampas rem berpenguat serat bambu", *Prosiding Seminar Nasional Industrial Services (SNIS III)*, Cilegon, 2013.
- [17] S. Sunardi, M. Fawaid, F.R.N. Muhammad, "Variasi campuran fly ash batubara untuk material komposit", *Flywheel: Jurnal Teknik Mesin Untirta*, vol. 1, no. 1, pp. 90-102, 2015.
- [18] M. Alajmi & A. Shalwan, "Correlation between mechanical properties with specific wear rate and the coefficient of friction of graphite/epoxy composites", *Materials*, vol. 8, no. 7, pp. 4162-4175, 2015, doi:10.3390/ma8074162