

## EVOLUSI SIFAT *MAGNETORESISTANCE* PADA CUPLIKAN KOMPOSIT Fe-C (*GRAPHITE*) HASIL SINTESIS DENGAN METODE *MECHANICAL ALLOYING*

Setyo Purwanto, Wisnu A. A., Ari Handayani dan Mashadi

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

### ABSTRAK

**EVOLUSI SIFAT *MAGNETORESISTANCE* PADA CUPLIKAN KOMPOSIT Fe-C (*GRAPHITE*) HASIL SINTESIS DENGAN METODE *MECHANICAL ALLOYING*.** Metode *Mechanical Alloying* dengan menggunakan *Milling* Energi Tinggi atau *High Energy Milling* telah dimanfaatkan untuk mensintesis cuplikan komposit Fe-C(*graphite*) dengan komposisi Fe 20 % berat dan C(*graphite*) 80 % berat. Perbandingan berat bola dan cuplikan adalah 1,5 : 1, dengan berat cuplikan 20 gram. Waktu *milling* dilakukan bervariasi dari 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18 jam. Pada setiap tahapan waktu *milling*, cuplikan diambil sebanyak 5 gram. Kemudian pada cuplikan di setiap tahapan dilakukan pengukuran fasa yang terbentuk dengan difraksi sinar-X, morfologi dari serbuk dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan sifat *magnetoresistance* dari pelet dengan metode *four point probe*. Diketahui bahwa efek waktu *milling* menyebabkan rusaknya struktur *graphene* pada *graphite* dengan ditandai menurunnya puncak [002] namun tidak dijumpai fasa pengotor selain Fe dan C (*graphite*) serta mengecilnya ukuran butiran dan partikel diperlihatkan oleh citra *SEM* yang diperoleh. Sifat *magnetoresistance* bahan diketahui mengalami evolusi dari negatif *magnetoresistance* sebesar -4 % untuk cuplikan 4,5 jam menjadi positif 0,2% pada cuplikan pasca *milling* 18 jam. Dugaan sementara evolusi *magnetoresistance* ini disebabkan oleh masuknya partikel Fe ke dalam matriks *graphite* akibat proses *milling*.

**Kata kunci :** Evolusi *magnetoresistance*, Komposit magnet Fe-C, *Mechanical alloying*, *High Energy Milling*

### ABSTRACT

**EVOLUTION OF *MAGNETORESISTANCE* ON COMPOSITE Fe-C SYNTHESIZED BY *MECHANICAL ALLOYING* METHOD.** We prepared Fe-C composite by mechanical alloying method with the composition Fe 20 wt% and C(*graphite*) 80wt%. The ratio between ball and sample is 1.5 : 1, the weight of sample was 20 gram. The variation milling time is 4.5 hours, 9 hours, 13.5 hours and 18 hours. For each step milling time around 5 gram sample was taken. Then, the samples were measured by X-ray diffraction and Scanning Electron Microscope (*SEM*) to investigate phase and morphology of the composite. The four point probe (FPP) was performed to study the evolution of *magnetoresistance*(MR) properties of the samples. It was found that MR change from negative to positive *magnetoresistance* due to the milling time from -4% going to +0.2% past 18 hours milled. It is suggest that the evolution related to the microstructure of *graphite* (C) matrix.

**Key words :** *Magnetoresistance* evolution, Composite magnetic Fe-C, *Mechanical alloying*, *High Energy Milling*

### PENDAHULUAN

Investigasi sifat transpor elektron pada bahan carbon dan kompositnya menjadi studi yang menarik karena berkaitan langsung dengan ketidaksempurnaan struktur kristal dan struktur elektroniknya. *Defect* atau kerusakan pada bahan berbasis karbon akan mempengaruhi sifat elektronik dan magnetik sekaligus. Beberapa studi seperti yang dilakukan Romanenko et.al menunjukkan adanya evolusi sifat *magnetoresistance* pada partikel nano karbon akibat proses *grafitization*

*nanodiamond* dari *Negative Magnetoresistance (NMR)* sampai medan H=3 Tesla namun berubah menjadi *Positive Magnetoresistance (PMR)* pada medan H>3Tesla [1].

Selain itu penelitian lain tentang hasil sintesis dan karakterisasi bahan komposit Fe<sub>x</sub>-C<sub>1-x</sub> yang memiliki sifat *Positive Magnetoresistance (PMR)* [2]. Metode pembuatan yang dipergunakan adalah dengan memvariasi bahan Fe dan C yang berukuran mikrometer dan dimasukkan dalam *graphite mould* kemudian

dipanaskan pada suhu 770 K selama 1 jam dibawah tekanan hidrostatik 20 Mpa. Lalu tekanan dinaikkan sampai 40 Mpa seraya suhu dinaikkan menjadi 1273 K. Keadaan ini dibiarkan selama 3 jam untuk mendapatkan cuplikan pelet komposit Fe-C yang sudah tersintering. Kemurniaan dari masing-masing bahan adalah lebih dari 99,99 %. Hasil pengukuran sifat nisbah/rasio magnetoresistance menunjukkan harga optimum pada komposisi Fe<sub>0,2</sub>C<sub>0,8</sub> persen berat, yaitu sekitar 53,8 % pada medan magnet H=5Tesla sedangkan untuk komposisi Fe<sub>0,5</sub>C<sub>0,5</sub> nilai nisbah magnetoresistance adalah 40% pada medan magnet H=5Tesla atau sekitar 10 % pada medan magnet H=1 Tesla.

Mekanisme terjadinya fenomena *Positive Magnetoresistance* belum dapat dijelaskan kecuali bahwa besaran rasio MR berbanding lurus dengan medan yang diberikan, yaitu  $M_r \propto B^n$  dengan n adalah konsentrasi berat Fe. Berbeda dengan metode Xue et.al, pada penelitian ini dilakukan sintesis nanokomposit Fe-C dengan teknik *High Energy Milling (HEM)* dengan variasi waktu *milling* untuk mengetahui pengaruh proses *milling* dan penghalusan matriks *graphite* terhadap sifat magnetoresistance. Adapun ruang lingkup studi ini adalah proses sintesis nanokomposit, karakterisasi fasa dengan difraksi sinar-X, morfologi nanopartikel dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan studi sifat magnetoresistance dengan metode *four point probe*.

## METODE PERCOBAAN

### Bahan

Fe 99,9% ukuran 10 mikron, C(graphite) 99,5% ukuran 50 mikron.

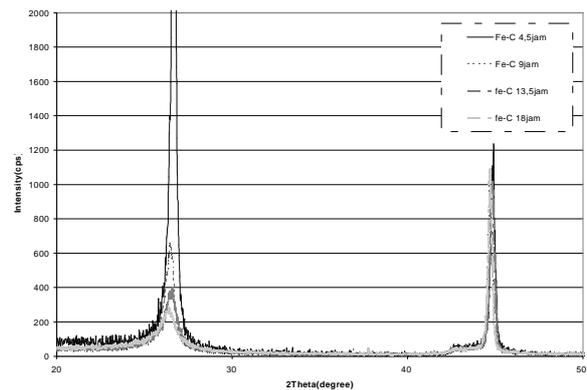
### Cara Kerja

Bahan Fe dan C ditimbang dalam prosen berat, dengan komposisi Fe(20)-C(80) . Total berat cuplikan sekitar 20 gram, kemudian dilakukan *milling* dengan perbandingan berat bola/berat cuplikan sekitar 1 : 8. *Vial* dan bola yang digunakan terbuat dari bahan stainless steel. Waktu *milling* divariasikan antara 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18 jam dan pencuplikan dilakukan dengan mengambil sekitar 4 gram hingga 5 gram dari *vial* untuk setiap waktu *milling* tersebut di atas. Setelah *dimilling* cuplikan diperiksa dengan difraksi sinar-X dan *SEM/EDX*. Selanjutnya dibuat pelet pada tekanan sekitar 5000 Psi, kemudian dilakukan karakterisasi sifat magnetoresistance dengan *four point probe* dengan probe *Jandel* berdiameter 100 mikron.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Difraksi Sinar-X

Dari Gambar 1, terlihat bahwa efek *milling* mengakibatkan rusaknya struktur lapisan/*graphene* dari



Gambar 1. Profil pola difraksi sinar-X dari cuplikan komposit Fe-C variasi waktu *milling* 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18 jam

*graphite* yang diwakili oleh puncak 002 grafit pada sudut 2 theta = 26,38 derajat yang menurun sangat drastis setelah mendapat perlakuan *milling*. Dari intensitas awal sekitar 2800 cps menjadi hanya sekitar 660 cps, 400 cps dan 256 cps masing-masing untuk waktu *milling* 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18jam. Pelebaran dari lebar puncak setengah maksimum (fwhm) dari puncak (002)grafit juga terlihat dengan jelas. Hal ini menunjukkan terjadinya penghalusan ukuran kristalit pada bidang tersebut. Hasil analisis puncak 002 grafit dan 110 Fe seperti disajikan pada Tabel 1, memperlihatkan terjadinya penghalusan ukuran kristalit grafit dari 20 nm menjadi 10,7 nm, 8,9 nm dan 6,3 nm berturut-turut untuk cuplikan pasca *milling* 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18 jam.

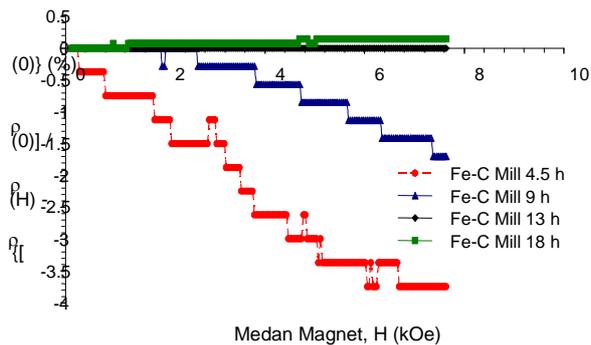
Tabel 1. Ukuran Kristalit Unsur *Graphite* dan Fe pada cuplikan Komposit Fe-C

Lama Waktu Milling	Graphite(C) (nm)	Besi(Fe) (nm)
4,5jam	20,0	29,0
9 jam	10,7	30,8
13,5jam	8,9	31,9
18 jam	6,3	34,2

Secara umum pada profil pola difraksi sinar X tidak dijumpai adanya fasa antara dan pengotor akibat proses *milling* , selain fasa Fe dan grafit yang membentuk komposit Fe-C seperti akan dilaporkan pada makalah yang lain [3].

### Magnetoresistance dan Kurva Magnetisasi M-H

Secara intrinsik bahan grafit Karbon diketahui memiliki nisbah magnetoresistance bernilai negatif [4]. Akibat proses *Mechanical Alloying* dengan *High Energy Milling* terlihat adanya proses evolusi sifat magnetoresistance tadi seperti diperlihatkan pada Gambar 2. Pada cuplikan pasca *milling* 4,5 jam nilai nisbah MR sekitar -4 % yang



Gambar 2. Kurva Magnetoresistance (MR) dari komposit Fe-C variasi waktu milling

diukur pada medan luar  $H=0,8$  Tesla, kemudian berubah menjadi  $-2\%$  untuk cuplikan 9 jam, mulai menjadi positif  $0,1\%$  untuk cuplikan pasca milling 13,5jam dan terakhir menjadi  $+0,2\%$  untuk cuplikan hasil milling 18jam.

Hasil pengukuran ini menunjukkan fenomena yang agak berbeda dengan gejala *positiv magnetoresistance (PMR)* pada Fe-C yang ditumbuhkan dengan cara pemanasan dibawah tekanan[2]. Pada cuplikan dengan metode tersebut sejak awal menunjukkan gejala *PMR*. Sedangkan pada cuplikan dengan teknik *milling* ini evolusi fenomena *MR* adalah dari *negative MR (NMR)* menuju *PMR* seiring dengan bertambahnya waktu proses *milling* yang berkorelasi dengan penghalusan ukuran kristalit grafit seperti ditampilkan pada Tabel 1 dan rusaknya sistem struktur lapisan *graphene* pada *graphite (C)*.

Jika asumsi ini benar, maka penelitian ini setidaknya dapat menjelaskan gejala *PMR* terjadi pada sistem komposit Fe-C. Fenomena *positive magnetoresistance (PMR)* juga dilaporkan pada cuplikan film tipis Fe3C/Si yang ditumbuhkan dengan metode *Pulsed Laser Deposition (PLD)* [5]. Pada penelitian tersebut diketahui cuplikan memiliki sifat positive

*magnetoresistance* yang ditimbulkan oleh mobilitas elektron pada lapisan Si dan akibat gaya *Lorentz* pada elektron sehingga terjadi pembalikan nilai nisbah *magnetoresistance* menjadi positif. Harga nisbah *magnetoresistance (MR)* pada suhu 350 K adalah  $45\%$  dan  $17\%$  untuk arus tegak lurus medan dan sejajar medan.

### Morfologi Cuplikan dengan SEM/EDX

Gambar 3, memperlihatkan morfologi cuplikan serbuk variasi waktu *milling*. Jelas terlihat bahwa ukuran serbuk Fe-C mengecil sampai orde sub-mikron begitu waktu *milling* bertambah lama.

### KESIMPULAN

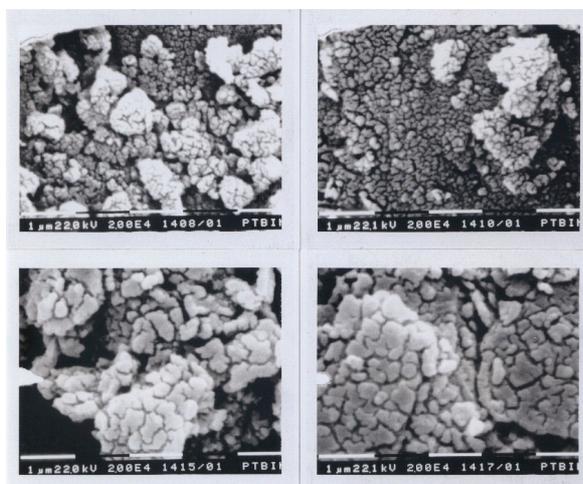
1. Sintesa bahan nanokomposit Fe-C(grafit) telah dapat dilakukan dengan menggunakan High Energy Milling SPEX 8000M
2. Pada cuplikan dengan komposisi  $Fe_{0,2}C_{0,8}$  dilakukan proses *milling* selama 4,5 jam, 9 jam, 13,5 jam dan 18 jam dan terjadi proses *defect* pada struktur *graphene* dari grafit secara signifikan ditandai denganmenurun drastisnya puncak C 002 pada pola difraksi sinar-X.
3. Evolusi sifat *magnetoresistance* terjadi akibat proses *milling* dengan nilai nisbah *magnetoresistance (MR)*  $-4\%$ ,  $-1,5\%$ ,  $0,05$  dan  $0,2\%$  setelah proses *milling* 18jam.
4. Jika diasumsikan proses *magnetoresistance* yang terjadi adalah *electron tunneling* antar Fe granular dengan matriks grafit sebagai *potensial barrier*, maka penghalusan butiran grafit menjadi sub mikron bertanggung jawab evolusi ini terjadi.

### UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis utama (SP) mengucapkan terimakasih kepada Kepala PTBIN-BATAN (Dr. Ridwan) atas terselenggaranya penelitian ini dengan menggunakan dana DIPA tahun 2006.

### DAFTARACUAN

- [1]. ROMANENKO et.all., *Phys. Of Solid State*, **44** (3) (2002)487-489
- [2]. XUE et.all., *J. of Magn. And Magn. Mater*, 270 (2004)397-402
- [3]. ENKIR S. et.all., Analisis Rietveld pada cuplikan Komposit Fe-C pasca Milling, *private comm*
- [4]. BERGMANN et.all., *Phys. Rep.*, 107 (1984) 1
- [5]. J. TANG, J. DAI, K. WANG, W. ZHOU. N. RUZYKI and U. DIEBOLD, *J. of Appl. Phys.*, **91** (10) (2002)8411



Gambar 3. Morfologi cuplikan serbuk pasca milling 4,5 jam (kanan bawah), 9 jam (kiri bawah), 13,5 jam (kanan atas) dan 18 jam (kiri atas). Skala garis putih sebanding dengan 1 mikrometer.