

## EFEK HIGH ENERGY MILLING TERHADAP KOERSIVITAS MAGNET INTRINSIK BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Ridwan<sup>1</sup>, Akmal Johan<sup>2</sup>, Mujamilah<sup>1</sup> dan Wisnu Ari Adi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Puslitbang Iptek Bahan (P3IB) - BATAN  
Kawasan Puspipstek, Serpong 15314, Tangerang

<sup>2</sup>Jurusan Fisika, FMIPA - UNSRI

Jl. Raya Palembang, Prabumulih Km 32 Inderalaya, Palembang 30662

### ABSTRAK

**EFEK HIGH ENERGY MILLING TERHADAP KOERSIVITAS MAGNET INTRINSIK BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.** Studi mengenai sifat magnet serbuk bahan BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> akibat proses penghalusan menggunakan *high-energy milling* yang diikuti oleh perlakuan *annealing* pada suhu 400 °C, 600 °C, 800 °C, 1000 °C dan 1100 °C telah dilakukan. Penurunan sifat magnet bahan setelah di *milling* selama 30 jam disebabkan telah terjadi deformasi kristal bahan. Proses *annealing* terhadap serbuk hasil *milling* di bawah suhu 800 °C selama 3 jam belum dapat mengembalikan sistem fasa sepenuhnya. Setelah suhu *anneal* ditingkatkan hingga 1000 °C, fasa BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tumbuh kembali dengan koersivitas intrinsik meningkat hingga  $H_{ci} = 4,4$  kOe, dibandingkan dengan koersivitas serbuk magnet sebelum proses *milling*  $H_{ci}$  yang hanya 1,7 kOe. Peningkatan koersivitas intrinsik ini sangat terkait dengan ukuran partikel yang jauh lebih halus dibandingkan dengan yang tidak di *milling*. *Annealing* pada suhu 1100°C, menunjukkan terjadi penurunan kembali koersivitas intrinsik  $H_{ci} = 3,7$  kOe, ini diperkirakan akibat adanya pertumbuhan kristalit.

**Kata kunci :** Barium heksaferit, *high energy milling*, koersivitas magnet

### ABSTRACT

**HIGH ENERGY MILLING EFFECT ON INTRINSIC MAGNETIC COERSIVITY OF BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.** The magnetic properties of BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fine powder milled by high-energy milling followed through annealing on 400°C, 600°C, 800°C, 1000°C and 1100°C have been studied. The decreasing of magnetic properties for 30 hours milled samples is due to the deformation of crystalline materials. Annealing process of milled powders under 800°C for 3 hours could not recover the phase system completely. After *annealing* temperature was increased to 1000°C the BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> has been growth with the intrinsic coersivity increased to the  $H_{ci} = 4.4$  kOe, comparing to the powder magnet before milling that the  $H_{ci}$  only 1.7 kOe. These coersivity enhancement was closed related to the particle sizes which are very finer compare to the particles sizes of unmilling powder. At annealing temperature 1100°C, show that intrinsic coersivity decreased again to the  $H_{ci} = 3.7$  kOe, it may due to the crystal growth.

**Key words :** Barium hexaferrite, high energy milling, magnetic coersivity

### PENDAHULUAN

Barium heksaferit, BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sudah sejak lama dikenal dan diaplikasikan sebagai magnet permanen. Untuk penggunaan dalam media penyimpanan data dengan kapasitas tinggi (*high density*), bahan magnet yang digunakan haruslah mempunyai koersivitas yang tinggi. Bahan heksaferit BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> merupakan salah satu bahan magnet yang memenuhi kriteria tersebut. Selain itu bahan sudah berbentuk oksida maka dalam penggunaannya tidak diperlukan adanya tambahan lapisan pelindung bahan sehingga jarak antara *head* dan media penyimpan data dapat berkurang sehingga sangat baik digunakan untuk suatu bahan penyimpan data kapasitas tinggi [1].

Salah satu cara untuk mendapatkan bahan heksaferit dengan koersivitas magnet yang tinggi adalah dengan memperhalus ukuran partikel sehingga mendekati ukuran partikel *domain* tunggal (*single domain*) sekitar  $\approx 1 \mu\text{m}$  [2]. Berbagai teknik telah dilakukan untuk mendapatkan partikel halus BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dalam ukuran skala nanometer ini; misalnya metode kopresipitasi kimia [3], metode kristalisasi glass [4], metode *sonochemistry* [5], *sol-gel* [6], metode *high energy milling* [7-8]. Semua metode yang telah disebutkan, kecuali metode *high energy milling* disebut dengan pendekatan *bottom-up* sedangkan yang terakhir disebut dengan *top-down* [9].

Proses *top-down* menggunakan *high energy milling* untuk mendapatkan partikel dalam ukuran nanometer  $BaO.6Fe_2O_3$  sangat praktis karena tidak membutuhkan atmosfer gas mulia tertentu seperti halnya untuk bahan-bahan yang mengandung unsur tanah jarang yang mudah teroksidasi. Selain itu hampir semua paduan yang terbuat dari metal maupun keramik dapat dihaluskan dengan metode *high energy milling* ini [10-11].

Masalah utama yang sering dihadapi dalam proses *milling* ini adalah terjadinya kerusakan struktur kristal (*crystallographic damage*), serta adanya unsur pengotor yang berasal dari wadah yang digunakan pada waktu proses *milling*. Namun demikian uji coba yang telah dilakukan terhadap beberapa cuplikan yang dihaluskan dengan *high energy milling*, menunjukkan bahwa kontaminasi dari *vial* ataupun bola-bola yang digunakan sangat kecil. Identifikasi menggunakan difraksi sinar-x terhadap beberapa hasil *milling* tidak menunjukkan adanya fasa asing yang muncul [11], sehingga dapat diabaikan.

Dalam makalah ini akan dibahas efek *milling* terhadap sistem kristal  $BaO.6Fe_2O_3$  menggunakan *high energy milling* serta pengaruhnya terhadap sifat kemagnetan bahan. Titik berat pembahasan meliputi pengaruh suhu *annealing* terhadap sistem fasa partikel halus barium heksaferit hasil proses *milling* dan sifat magnetiknya.

## METODE PERCOBAAN

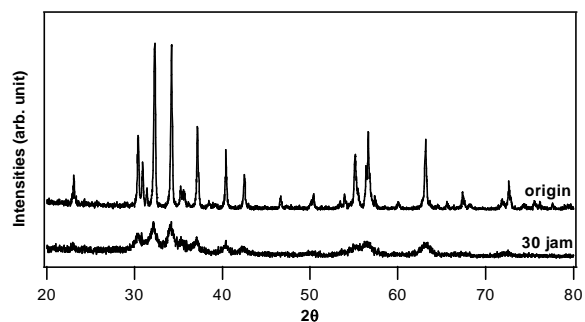
Serbuk barium heksaferit,  $BaO.6Fe_2O_3$  yang digunakan dalam penelitian ini diperoleh dari P.T. *Sumimagne*, Cilegon-Banten. Berat serbuk di timbang seberat 10 gram dimasukkan ke dalam *vial* beserta bola-bola dengan jejari sekitar 1 cm yang terbuat dari bahan *stainless steel*. Peralatan *high energy milling* yang digunakan adalah *SPEX CertiPrep 8000M Mixer/ Mill* yang terdapat di Bidang Bahan Maju (BBM) - Puslitbang Iptek Bahan (P3IB), Batan. Proses *milling* dilakukan selama 30 jam dalam atmosfer udara dan setiap 1,5 jam (90 menit) proses dihentikan guna pendinginan motor penggerak dan bersamaan dengan itu serbuk di aduk kembali untuk menghindari pematatan disisi mati (*dead edge*) bagian dalam *vial*. Serbuk hasil proses *milling* di bagi dalam beberapa bagian dan di tempatkan dalam suatu alumina *boot* yang selanjutnya dipanaskan dengan suhu 400 °C, 600 °C, 800 °C, 1000 °C, dan 1100 °C selama 3 jam dalam atmosfer udara.

Identifikasi fasa bahan heksaferit baik sebelum maupun setelah proses *milling* serta sesudah mengalami *annealing* diukur menggunakan peralatan difraktometer sinar-x, (XRD) dengan target *Cu-K $\alpha$*  yang terdapat di BBM-P3IB, Batan. Sedangkan strukturmikro serbuk  $BaO.6Fe_2O_3$  sebelum dan sesudah *miling*, serta setelah melalui proses *annealing* pada suhu 1000 °C selama 3 jam, telah diukur menggunakan *Scanning Electron*

*Microscope (SEM)* yang terdapat di Departemen Metalurgi, Universitas Indonesia. Untuk mengamati perubahan sifat kemagnetan bahan baik akibat proses *milling* maupun setelah melalui proses perlakuan panas diukur menggunakan *Vibrating Sample Magnetometer (VSM)* yang terdapat di BBM-P3IB, Batan, dengan rentang medan magnet luar  $\pm 1$  Tesla pada suhu ruang, penambahan kecepatan dan pengurangan medan magnet luar diatur sebesar 0,25 Tesla per-menit.

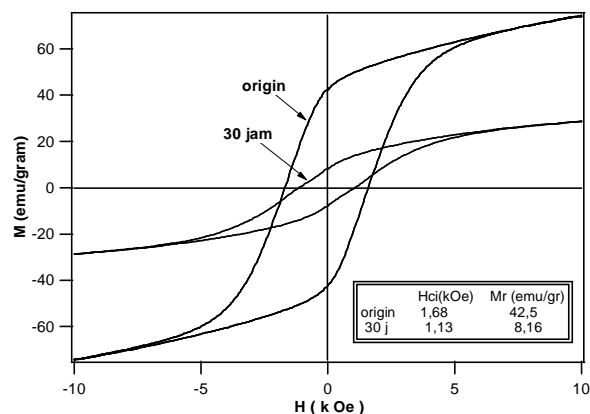
## HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraksi sinar-x dari serbuk  $BaO.6Fe_2O_3$  sebelum dan setelah proses *milling* selama 30 jam dapat dilihat pada Gambar 1. Hasil identifikasi menunjukkan bahwa sebelum proses *milling* serbuk berfasa tunggal dengan struktur *hexagonal magnetoplumbite (M-type)* dengan *space group P 63/mmc* [12]. Seperti yang terlihat pada Gambar 1,  $BaO.6Fe_2O_3$  telah mengalami deformasi kristal, yang ditunjukkan oleh menurunnya puncak difraksi sedangkan pelebaran puncak difraksi dapat dikaitkan dengan semakin halusnya ukuran partikel setelah mengalami proses *milling* selama 30 jam.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-X  $BaO.6Fe_2O_3$  sebelum dan sesudah mengalami proses *milling* selama 30 jam.

Proses deformasi fasa yang dialami oleh  $BaO.6Fe_2O_3$  tentunya akan sangat berpengaruh pada sifat kemagnetan bahan. Pada Gambar 2, dapat dilihat kurva histeresis bahan sebelum dan sesudah

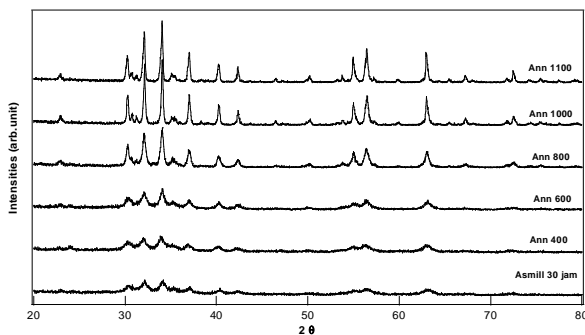


Gambar 2. Kurva histeresis  $BaO.6Fe_2O_3$  sebelum dan sesudah melalui proses *milling* 30 jam.

proses *milling* 30 jam diukur menggunakan VSM pada suhu ruang.

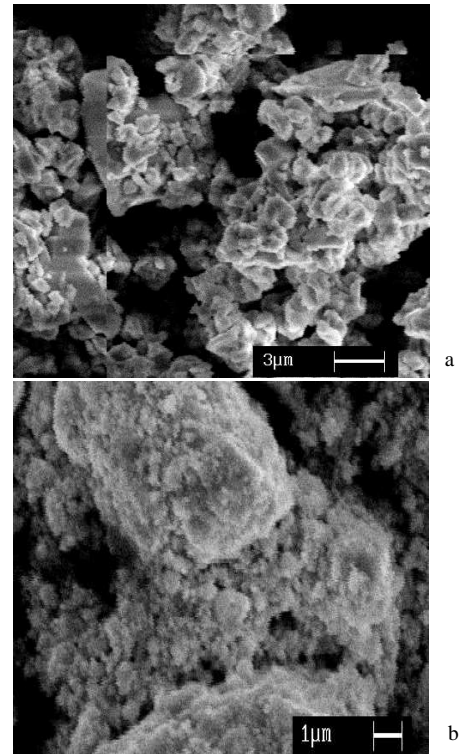
Berdasarkan data hasil pengukuran terlihat bahwa baik koersivitas intrinsik ( $H_{ci}$ ) maupun remanen magnet ( $M_r$ ) menurun secara drastis setelah *milling*. Penurunan sifat fisis bahan akibat adanya cacat kristal setelah mengalami proses *milling* adalah problema utama yang dihadapi dalam sintesis bahan menggunakan metode *top down*. Salah satu cara yang ditempuh untuk memperbaiki struktur kristal serta menghilangkan internal *stress* akibat perlakuan mekanik pada sistem logam maupun keramik yang telah banyak diketahui adalah dengan perlakuan panas. Namun perlakuan panas selain memperbaiki struktur kristal bahan juga dapat mendorong terjadinya pertumbuhan kristalit. Ukuran kristalit yang besar melebihi ukuran *single domain* pada bahan heksaferit seperti telah diketahui dapat menyebabkan penurunan koersivitas magnet [13].

Dampak proses peningkatan suhu *annealing* terhadap sistem fasa BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> setelah mengalami proses *milling* selama 30 jam dapat dilihat dari perubahan pola difraksi sinar-x seperti ditunjukkan dalam Gambar 3. Proses *annealing* dilakukan pada suhu 400 °C, 600 °C, 800 °C, 1000 °C dan 1100 °C selama 3 jam di dalam atmosfer udara. *Annealing* dibawah suhu 800 °C selama 3 jam ternyata belum menunjukkan perubahan yang *significant* terhadap sistem fasa bahan. Hal ini ditunjukkan puncak-puncak difraksi yang masih relatif rendah. Namun demikian *annealing* pada suhu 800 °C atau lebih tinggi terlihat sistem fasa tumbuh dengan baik. Puncak-puncak difraksi terlihat semakin tinggi dan lebih sempit. Sesuai dengan hasil sebelumnya [14], pada suhu *annealing* sekitar 800 °C, fasa barium heksaferit mulai terbentuk dari *precursor*nya. Sistem fasa barium heksaferit sepenuhnya terbentuk kembali setelah serbuk halus hasil proses *milling* dipanaskan pada suhu 1000 °C dan 1100 °C.



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> setelah dimilling dan setelah melalui proses *annealing* pada suhu 400 °C, 600 °C, 800 °C, 1000 °C dan 1100 °C selama 3 jam

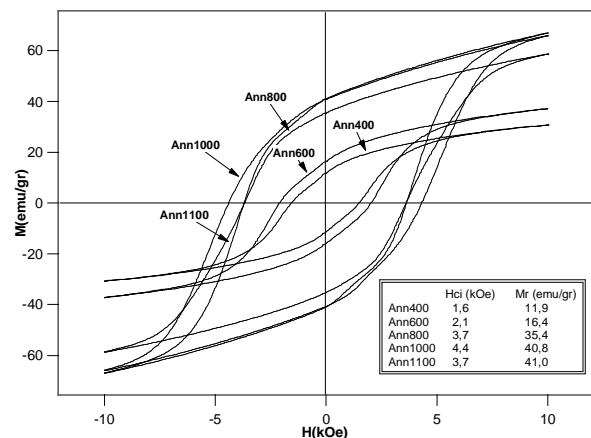
Untuk menunjukkan perubahan struktur mikro serbuk BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sebelum proses *milling* dan setelah *milling* yang diikuti dengan *annealing* pada suhu 1000 °C selama 3 jam dapat dilihat dari citra hasil



Gambar 4. Citra SEM serbuk BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, a) sebelum proses *milling*, b) setelah proses *milling* 30 jam dan diikuti dengan *annealing* pada suhu 1000 °C selama 3 jam.

pengamatan SEM pada Gambar 4. Pada Gambar 4b, terlihat bahwa partikel BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hasil proses *milling* dan diikuti dengan *annealing* pada suhu 1000 °C selama 3 jam sangat halus dan cenderung teraglomerasi.

Proses pembentukan kembali sistem fasa BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> melalui proses perlakuan panas ini, tentunya akan berdampak pada sifat kemagnetan bahan. Pada Gambar 5, dapat dilihat perubahan sifat magnetik bahan terkait dengan perubahan suhu *annealing*.



Gambar 5. Kurva histeresis BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hasil *milling* 30 jam dan di *annealing* pada suhu 400 °C, 600 °C, 800 °C, 1000 °C dan 1100 °C selama 3 jam.

Berdasarkan kurva histeresis magnet BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hasil *milling* dan di *annealing* kembali, tampak mempunyai korelasi yang erat dengan sistem struktur

kristal seperti ditunjukkan oleh pola difraksi sinar-x pada Gambar 3. Terlihat bahwa sifat magnetik bahan ( $H_{ci}$  maupun  $Mr$ ) masih cukup rendah di bawah suhu *annealing* 800 °C, ini menunjukkan bahwa fasa BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> belum terbentuk sepenuhnya. Suhu optimum untuk mendapatkan bahan magnet BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan koersivitas intrinsik dan remanensi yang tinggi adalah pada 1000 °C. Pemanasan pada suhu yang lebih tinggi 1100 °C cenderung menurunkan kembali nilai koersivitas intrinsik bahan. Penurunan nilai koersivitas intrinsik magnet untuk serbuk yang di *annealing* pada suhu 1100 °C adalah akibat pertumbuhan sistem kristalit bahan [16].

Bahan barium heksaferit dengan koersivitas dan remanensi yang tinggi sangat berpotensi untuk digunakan sebagai *bonded magnet* maupun media penyimpan data. Untuk mendapatkan magnet dengan *energy product maximum* ( $BH$ )<sub>max</sub> dibutuhkan magnet dengan remanensi dan kerapatan yang tinggi, oleh sebab itu proses *annealing* serbuk halus heksaferit secara konvensional sangat sulit untuk memperoleh bahan dengan koersivitas yang tinggi ( $H_{ci}$  = 6 kOe sampai dengan 7 kOe) [2]. Karena proses *annealing* pada suhu tinggi selalu cenderung memperbesar ukuran butiran kristalit. Oleh sebab itu salah satu cara untuk mendapatkan anisotropik heksaferit dapat ditempuh melalui proses kompaksi panas (*hot pressing*) [17].

## KESIMPULAN

Effek *high energy milling* terhadap serbuk BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> selain dapat memperhalus butiran namun juga dapat menyebabkan deformasi struktur kristal yang menyebabkan penurunan sifat magnet bahan. Proses rekristalisasi dapat dilakukan melalui proses pemanasan. Suhu *annealing* 1000 °C dalam selang waktu pemanasan 3 jam memberikan peningkatan nilai koersivitas magnet intrinsik,  $H_{ci}$  = 4,4 kOe hampir 300% lebih tinggi dibandingkan dengan  $H_{ci}$  = 1,68 kOe sebelum proses *milling*. Peningkatan nilai koersivitas magnet intrinsik ini terkait dengan ukuran kristalit BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang semakin halus setelah proses *milling*. Nilai remanensi magnet ( $Mr$ ) yang tidak jauh berbeda sebelum dan sesudah melalui proses *milling* yang diikuti *annealing* menunjukkan bahwa unsur pengotor di dalam serbuk hasil *milling* tidak cukup *significant* dan ini didukung oleh data difraksi sinar-x yang hanya berasal dari sistem fasa BaO.6Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

## DAFTARACUAN

- [1]. MITSUNORI MATSUMOTO, AKIMITSU MORISAKO, SHIGETO TAKEI, *Journal of Alloys and Compounds* **326** (2001) 215-220
- [2]. KOJIMA, H., in *Ferromagnetic Materials*, Ed. Et. P. Wohlfarth **3** (1982) 305

- [3]. JANASI, S. R., EMURA, M., LANDGRAF, F. J. G., RODRIGUES, D., *J. Magn. Magn. Mater.* **238** (2002) 168-172
- [4]. ODA, K., YOSHIO, T., O-OKA, K., KANAMARU, F., *J. Mater. Sci. Lett.* **3** (1984) 1007
- [5]. SHAFI, K. V. P., GEDANKE, A., *NanoStructured Materials*, **12**, (1999) 29-34
- [6]. ESTEVEZ RAMS, E., MARTINEZ GARCIA, R., REGUERA, E., MONTIEL SANCHEZ, H., and MADEIRA, H. Y., *J. Phys. D : Appl. Phys.* **33** (2000) 2708-2715
- [7]. ZHIQIANG JIN, WEI TANG, JIANRONG ZHANG, HAO LIN, YOUWEI DU, *J. Magn. Magn. Mater.* **182** (1998) 231-237
- [8]. MENDOZA-SUAREZ, G., MATUTES-AQUINO, J. A., ESCALANTE-GARCIA, J. I., MANCHA MOLINAR, H., RIOS JARA, D., JOHAL, K. K., *J. Magn. Magn. Mater.* **223** (2001) 55-62
- [9]. GUOZHONG CAO, *Nanostructures & Nanomaterials, synthesis, Properties & Application*, Imperial College Press, 57 Shelton Street, Covent Garden, London, 2004
- [10]. MATTEAZZI, P., BASSET, D., MIANI, F., and LECAER, G., *Mechanosynthesis of Nanophase Materials*, Nano Structured Materials, Pergamon Press Ltd., **2** (1997) 217 – 229
- [11]. RIDWAN, GRACE TJ. SULUNGBUDI dan MUJAMILAH, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, **6**, (2005) 6 – 10
- [12]. JCPDS-International Center for Diffraction Data, PCPDF# 43-0002
- [13]. CULLITY, B. D., *Introduction to Magnetism Materials*, Addison Wesley Publishing Company, (1972)
- [14]. TAE SIK CHO, JUNG HO JE, DO YOUNG NOH, *Applied Physics Letter.*, **76** (2000)
- [15]. DING, J., MAURICE, D., MIAO, W. F., McCORMICK, P. G., STREET, R., *J. Magn. Magn. Mater.* **150** (1995) 417-420
- [16]. ORON, M., and RAMON, P., *IEEE Trans. Magn.* **11** (1975) 1452.

## TANYA JAWAB

Wita, Departemen Fisika - FMIPA UI

### Pertanyaan

1. Apa yang membuat koersivitas meningkat dengan waktu *milling* yang lebih lama bila serbuk di *annealing* lebih dulu.
2. Berapa besar butir yang dihasilkan

### Jawaban

1. Lebih lama *milling* menyebabkan partikel/kristalit magnet bahan menjadi lebih halus sehingga pemanasan kembali terhadap serbuk setelah *milling* dapat mengembalikan sistem fasa bahan ke bentuk semula (sebelum *milling*) namun dengan

ukuran kristalit yang lebih halus (dalam skala nanometer). Efek nanometer inilah yang menyebabkan koersivitas meningkat dibandingkan dengan koersivitas sebelum proses *milling*.

2. Ukuran butir yang diperoleh lebih kecil dari 100 nanometer.

Budhy Kurniawan, UI

**Pertanyaan**

1. Apakah proses rekristalisasi sebagai akibat pemanasan menuju pada fase baru atau kembali ke fasa sebelum dipanaskan, apakah keistimewaannya.

**Jawaban**

1. Efek pemanasan tidak terbentuk fasa baru, keistimewaannya adalah dengan proses *milling* dan dilanjutkan proses kristalisasi meningkatkan koersivitas hampir dua kali lebih besar dari koersivitas magnet sebelum *milling*.