

SUBSTITUSI Mn DAN Ti PADA STRUKTUR FASA MAGNETIK BARIUM *HEXAFERRITE* MELALUI TEKNIK PEMADUAN MEKANIK (*MECHANICAL ALLOYING*)

Priyono K dan Azwar Manaf

Program Studi Ilmu Material, PPS-FMIPA UI
Jl. Salemba Raya No. 4, Jakarta 10430

ABSTRAK

SUBSTITUSI Mn DAN Ti PADA STRUKTUR FASA MAGNETIK BARIUM *HEXAFERRITE* MELALUI TEKNIK PEMADUAN MEKANIK (*MECHANICAL ALLOYING*). Material dengan komposisi $BaFe_{12-x-y}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x, y = 0$ hingga 2,5) telah berhasil dibuat melalui proses *Mechanical Alloying*. Sintesis material diawali dengan pembentukan fasa $Fe_{2-x-y}Mn_xTi_yO_3$ oleh komponen pembentuk fasa Fe_2O_3 , $MnCO_3$ dan TiO_2 melalui pemaduan mekanik yang berlangsung delapan jam dan diikuti pemanasan pada suhu 1300 °C. Fasa hasil sintesis ini dipadu bersama $BaCO_3$ menjadi komponen barium *hexaferrite* yang terbentuk setelah menjalani proses pemaduan selama 4 jam pada 1250 °C. Hasil identifikasi puncak pola difraksi menunjukkan secara baik terbentuknya fasa $BaFe_{12}O_{19}$, tetapi mengalami perubahan parameter kisi pada kisaran $a = 5,8487 \text{ \AA}$ hingga $5,9108 \text{ \AA}$, sedangkan konstanta kisi c pada kisaran $22,8146 \text{ \AA}$ hingga $23,2093 \text{ \AA}$ yang disebabkan oleh substitusi secara parsial ion Fe oleh ion Mn dan ion Ti. Substitusi parsial ini juga mengakibatkan berubahnya sifat magnet keras menjadi lunak yang ditunjukkan dengan penurunan koersivitasnya secara signifikan.

Kata kunci : *Mechanical alloying*, Koersivitas, Magnet Ferit

ABSTRACT

Mn AND Ti SUBSTITUTION IN BARIUM *HEXAFERRITE* MAGNETIC PHASE BY *MECHANICAL ALLOYING*. Material of $BaFe_{12-x-y}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x, y = 0$ to 2.5) compositions have been successfully synthesized by a mechanical alloying process employing $Fe_{2-x-y}Mn_xTi_yO_3$ and $BaCO_3$ components. $Fe_{2-x-y}Mn_xTi_yO_3$ was first synthesized using Fe_2O_3 , $MnCO_3$ and TiO_2 by mechanical milling for 8 hours followed by heating the materials at suhue of 1300 °C. Materials of Barium hexaferite phase were obtained after furnace heating the mechanically milled between $Fe_{2-x-y}Mn_xTi_yO_3$ and $BaCO_3$ powders at 1250 °C for 4 hrs. The phase formation was confirmed by XRD in which identification of diffraction peaks showing pattern that belong to $BaO_6(Fe_2O_3)$ phase but with a change in lattice constants from $a = 5.8487 \text{ \AA}$ to $a = 23.2093 \text{ \AA}$ and $c = 22.8146 \text{ \AA}$ to $c = 23.2093 \text{ \AA}$ due to partial substitution of Fe by Mn and Ti ions. This partial substitution also promoted the change in magnetic behaviour of materials from hard magnets to soft magnets indicated by a significant decreases in coercivity.

Key words : Mechanical alloying, Coersivity, Magnetic ferrite

PENDAHULUAN

Barium *hexaferrite* dengan rumus struktur $BaO_6Fe_2O_3$ telah diketahui sebagai senyawa magnetik memiliki fasa yang tepat untuk aplikasi magnet permanent. Sampai saat ini magnet permanent barium *hexaferrite* masih dipergunakan secara luas di berbagai produk industri. *Loop* histerisis magnet permanent jenis ini memiliki koersivitas yang relatif tidak besar sehingga senyawa tersebut juga berpeluang yang cukup baik untuk aplikasi media penyimpanan data (*magnetic recording*) dan *magneto optic materials* [1]. Disamping itu material berbasis barium *hexaferrite* juga dipromosikan sebagai material magnet untuk aplikasi

pada frekuensi Ultra tinggi (*UHF*) dengan mensubstitusi ion Fe^{+3} dalam strukturnya dengan berbagai ion lain seperti Zn^{+2} , Ni^{+2} , Co^{+2} , Ti^{+4} dan Mn^{+2} [2].

Penelitian tentang barium *hexaferrite* telah yang mensubstitusi ion Fe oleh ion Mn dan Ti mulai diteliti pada 1957 [3], karena efek Mn dan Ti kurang menguntungkan terhadap sifat sifat magnet permanent terutama energi produk maksimumnya, maka penelitian tentang hal tersebut terhenti. Pada tahun 2002, dilanjutkan penelitian tentang magnet tersebut untuk studi pada *microwave*[4]. Dari hasil studi diperoleh fasa $BaFe_{8,8}(Mn_1Ti)_{1,6}O_{19}$ memiliki absorpsi *microwave*

pada daerah frekuensi 8 GHz hingga 12 GHz. Penelitian juga dilakukan dengan sintesis pada $Ba(MnTi)_xFe_{12-2x}O_{19}$ ($x = 0,0-2,0$) dengan teknik sol gel [5].

Pada makalah ini disampaikan hasil studi substitusi ion Fe dalam struktur $BaO.6Fe_2O_3$ oleh ion Mn dan Ti mencakup perubahan parameter kisi kristal dan sifat kemagnetan berdasarkan evaluasi *loop* histeresis sampel padatnya

METODE PERCOBAAN

Preparasi material diawali dengan sintesis komposisi $Fe_{2-(x+y)}Mn_xTi_yO_3$ dengan mencampurkan komponen-komponen material berupa serbuk Fe_2O_3 , $MnCO_3$ dan TiO_2 kemurnian tinggi (> 99,9 %) sesuai dengan fraksi berat yang diperlukan oleh komposisi yang diinginkan. Serbuk material tersebut selanjutnya menjalani proses pencampuran dalam suatu *mixer* Retsch-MM200 yang berputar dengan kecepatan 1200 rpm selama 8 jam. Hasilnya adalah suatu serbuk yang homogen. Serbuk homogen kemudian menjalani proses *mechanical alloying* melalui alat *high energy vibration ball mill* selama 20 jam yang dilakukan di Universitas Diponegoro dan Universitas Indonesia.

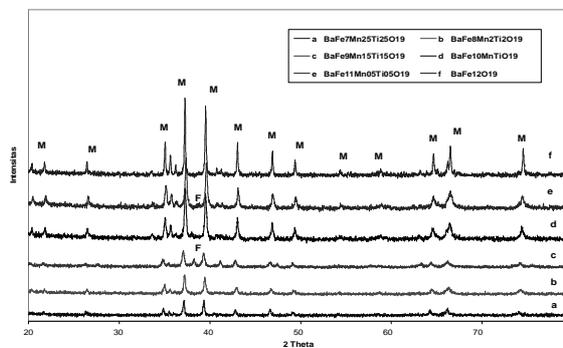
Selanjutnya serbuk cuplikan ultra halus dibuat pellet dan menjalani proses *sintering* pada suhu 1300 °C selama 4 jam untuk membentuk fasa $Fe_{2-(x+y)}Mn_xTi_yO_3$. Hasil pembentukan fasa dicampur dengan $BaCO_3$ melalui proses *mechanical alloying* dan dicetak dengan tekanan 12 ton serta dipanaskan 1250 °C selama 4 jam sehingga dihasilkan sampel padatan dengan densitas tinggi. Material magnetik yang terbentuk *dimiling* kembali dan dikompaksi serta *disintering* pada 1250 °C selama 4 jam untuk mendapatkan material magnet dengan ukuran 17 mm. Untuk mengidentifikasi fasa-fasa yang terdapat di dalam sampel digunakan *XRD* pada rentang sudut 2θ dari 20° hingga 80°. Sifat magnetik material hasil substitusi diuji dengan *permeagraph* pada medan 1,2 T.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Studi substitusi ion Ti dan Mn pada struktur Fe_2O_3 secara bersamaan telah dipelajari secara sistematis dan telah dipublikasikan terdahulu [6]. Telah ditemukan bahwa bila fraksi berat Ti hampir sama dengan fraksi Mn diperoleh pola difraksi yang sesuai dan mirip dengan pola difraksi Fe_2O_3 yang disebut sebagai pola Fe_2O_3 termodifikasi disebabkan nilai parameter kisi yang berbeda berlaku sampai dengan fraksi berat total atom substitusi mencapai 21,86 wt%. Sedangkan bila fraksi atom $Ti > Mn$ diperoleh pola difraksi campuran mengikuti pola $FeTiO_3$ dan Fe_2O_3 .

Pada Gambar 1 diperlihatkan pola difraksi senyawa $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$. Secara umum, ke lima senyawa substitusi ($x = y > 0$) memiliki pola difraksi yang sama dengan pola difraksi senyawa $BaO.6Fe_2O_3$

menunjukkan bahwa pemaduan antara komponen $BaCO_3$ dan komponen Fe_2O_3 termodifikasi dapat terjadi dengan baik. Meskipun demikian untuk cuplikan dengan $x = y = 0,5, 1,0$ dan $1,5$ terdapat tambahan puncak difraksi (diberi huruf F) diidentifikasi berasal dari fasa Fe_2O_3 termodifikasi [7].



Gambar 1. Pola difraksi fasa $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x = y = 0, 0,5, 1,0, 1,5, 2,0$ dan $2,5$), M adalah puncak-puncak difraksi fasa $BaFe_{12}O_{19}$ dan F fasa Fe_2O_3

Masih hadirnya fasa Fe_2O_3 meskipun dalam fraksi yang minor diduga berasal dari komposisi material yang tidak stoikiometri bisa terjadi selama proses preparasi sampel barium *hexaferrite*, terutama pada tahapan penghalusan kembali material Fe_2O_3 termodifikasi. Kajian lebih dalam terhadap fasa senyawa substitusi dititikberatkan pada perubahan parameter kisi kristal menggunakan metode *Cohen* [8] yang hasilnya dirangkum dalam Tabel 1.

Pada Tabel 1 dari sampel berbagai komposisi hasil substitusi menunjukkan bahwa terjadi penurunan nilai konstanta kisi kristal fasa utama dengan meningkatnya fraksi ion substitusi (Ti dan Mn) terutama pada sampel dengan $x = y = 2,0$ dan $2,5$. Penurunan konstanta kisi a dan kisi c memperkecil volume sel satuan fasa utama sebesar 2 % hingga 3 %.

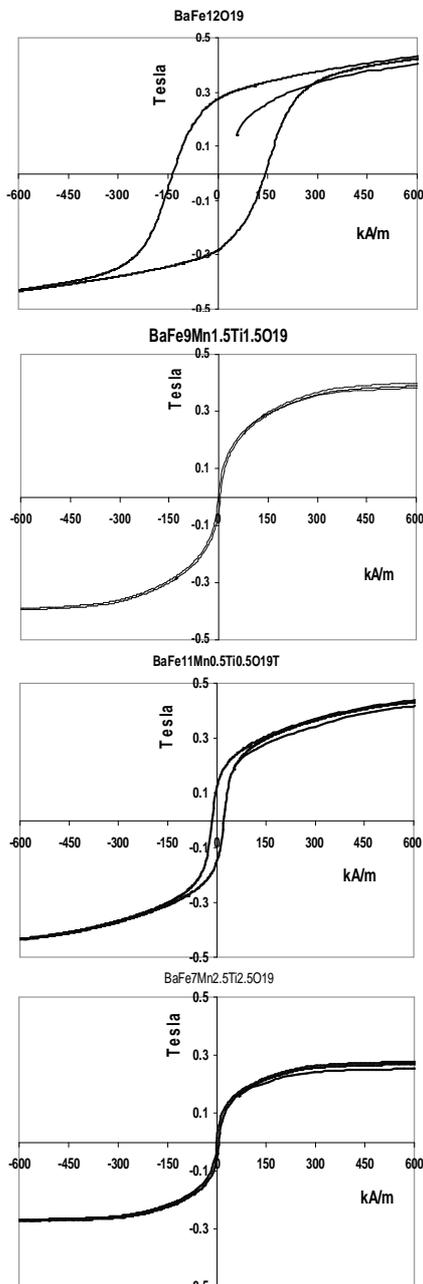
Tabel 1. Parameter kisi bahan $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x = 0; 0,5, 1,0, 1,5, 2,0$ dan $2,5$)

Sampel $x = y$	Komposisi Senyawa	a (Å)	c (Å)	Volume Sel (Å ³)
0.0	$BaFe_{12}O_{19}$	5,8862	23,2093	696,4060
0.5	$BaFe_{11}Mn_{0.5}Ti_{0.5}O_{19}$	5,9042	23,2408	701,6227
1.0	$BaFe_{10}Mn_{1.0}Ti_{1.0}O_{19}$	5,9108	23,2809	704,4055
1.5	$BaFe_9Mn_{1.5}Ti_{1.5}O_{19}$	5,9049	23,2046	700,6960
2.0	$BaFe_8Mn_{2.0}Ti_{2.0}O_{19}$	5,8487	23,0040	681,4790
2.5	$BaFe_7Mn_{2.5}Ti_{2.5}O_{19}$	5,8487	22,8146	675,8681

Penurunan parameter kisi kristal ini dapat terjadi karena adanya perbedaan ukuran atom antara atom Fe dengan atom Ti dan Mn. Penurunan volume sel satuan fasa utama material tentu memberi efek lanjut terhadap nilai momen magnet total per satuan volume atau magnetisasi jenuh dari fasa utama. Masalah ini sedang dalam kajian lanjut dan akan dipublikasikan.

Loop histeresis sampel magnet $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x=0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5$) ditunjukkan dalam Gambar 2 dan Tabel 2 merangkum beberapa nilai

sifat magnetik yang diturunkan dari loop histeresis. Dari Tabel 2 terlihat bahwa magnetisasi jenuh mengalami penurunan secara sistematis dengan bertambahnya fraksi atom Mn dan Ti. Demikian juga dengan nilai remanen dan koersivitas, kedua-duanya menurun secara sistematis dengan meningkatnya fraksi atom Mn dan Ti.



Gambar 2. Karakteristik Loop Histeresis material magnet $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x=0, 0,5, 1,5$ dan $2,5$).

Menurut Mones pada struktur $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$, ion Fe^{3+} diganti oleh ion Mn^{2+} dan ion Ti^{4+} . Ion Mn^{2+} menempati posisi *spin down* dari ion $Fe^{3+}(3d^5)$ pada kisi tetrahedral ($4f^1$), sedangkan ion Ti^{4+} memposisikan diri pada posisi Fe^{3+} kisi oktahedralnya.

Hal ini akan mengakibatkan ion Mn^{2+} pada sisi tetrahedral tidak mengubah momen magnet total. Tidak demikian halnya dengan penggantian oleh ion Ti^{4+} pada posisi oktahedral ion Fe^{3+} yang mengakibatkan perubahan terhadap momen magnet totalnya. Oleh karena substitusi ion Fe oleh ion Ti dan Mn telah menyebabkan penurunan volume sel satuannya, maka mengacu kepada hasil penelitian Mones dapat ditunjukkan bahwa laju penurunan momen magnet total fasa utama karena substitusi oleh ion Ti adalah lebih besar dibanding laju penurunan volume sel satuannya sehingga magnetisasi total fasa utama menjadi lebih rendah.

Hasil pada Tabel 2 juga memperlihatkan bahwa dengan bertambahnya fraksi ion substitusi menurunkan koersifitas magnet. Penurunan nilai koersifitas ini diperkirakan berasal dari perubahan medan anisotropi kristal karena pengaruh substitusi ion Fe. Dalam hal ini penurunan konstanta anisotropi jauh lebih besar dibandingkan dengan penurunan nilai magnetisasi totalnya. Perubahan konstanta anisotropi inilah yang memberikan peluang kepada barium *hexaferrite* termodifikasi menjadi material magnetik yang dapat digunakan untuk aplikasi penyerapan energi gelombang frekuensi tinggi.

Tabel 2. Parameter magnetik pada $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ ($x=0, 0,5, 1,5$ dan $2,5$).

Sampel $x = y$	Komposisi Senyawa	Saturasi Magnetik Tesla	Remanent (M.) Tesla	Koersifitas magnetic (kA/m)
0,0	$BaFe_{12}O_{19}$	0,48	0,27	142
0,5	$BaFe_{11}Mn_{0,5}Ti_{0,5}O_{19}$	0,45	0,12	19
1,0	$BaFe_{10}Mn_{1,0}Ti_{1,0}O_{19}$	0,44	0,10	6
1,5	$BaFe_9Mn_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$	0,39	0,07	5
2,0	$BaFe_8Mn_{2,0}Ti_{2,0}O_{19}$	0,35	0,03	3
2,5	$BaFe_7Mn_{2,5}Ti_{2,5}O_{19}$	0,26	0,01	3

KESIMPULAN

Dari hasil-hasil penelitian yang telah didiskusikan diatas dapat diambil kesimpulan bahwa $BaFe_{12-(x+y)}Mn_xTi_yO_{19}$ dapat disintesis melalui pemaduan mekanik teknik *mechanical alloying* dari komponen Fe_2O_3 termodifikasi oleh ion Mn dan ion Ti dan komponen $BaCO_3$ setelah reaksi padat pada suhu 1250 °C.

Substitusi ion Fe^{3+} pada struktur $BaO.6Fe_2O_3$ oleh ion Mn dan Ti menyebabkan terjadinya penurunan nilai konstanta kisi kristal dan volume sel satuan karena adanya perbedaan ukuran atom antara atom Fe dengan atom Ti dan Mn. Efek lanjut dari substitusi adalah penurunan nilai magnetisasi total fasa utama dan koersivitas magnet.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih dan penghargaan diberikan setinggi tingginya kepada Direktorat Jendral pendidikan tinggi yang telah membiayai penelitian ini melewati

program Hibah Pascasarjana Tahun anggaran 2006/2007. Penulis juga mengucapkan terima kasih kepada Departemen Fisika Universitas Indonesia atas segala fasilitas penelitian preparasi serta karakterisasi yang disediakan.

DAFTAR ACUAN

- [1]. M. IMAMURA, Y. ITO, M FUJIKI, T. HASEGAWA and H. KUBOTA, *IEEE Trans Magn. MAG.-22*, **5** (1986) 1185
- [2]. Q.Q.F, H.W. BAO, D.M. FANG, J.Z. WANG, X G. LI, *J. Magn. Magn. Mat.*, **278** (2004) 122-126
- [3]. A.H. MONES, E. BANK, *Journal of Phys Chem. Solid*, **2** (1957) 312
- [4]. M.R. MESHARAM, B. SHINHA, N.K. AGRAWAL, P.S. MISRA, Antennas and Propagation Society Internationals, *Symposium, IEEE*, **2** (2002) 790
- [5]. Y.S. HONG, C.M. HO, H.Y.HSU, C.T.LIU, *J. Magn. Magn. Mat.*, **279** (2004) 401-410
- [6]. PRIYONO, A. MANAF, Kontribusi ion Mn dan Ti Dalam Pembentukan Fasa $Ba(MnTi)_x Fe_{12-2x} O_{19}$: Tinjauan pada Struktur dan Metallografi, *Proc. SP MIPA 2006*
- [7]. PRIYONO, A. MANAF, Substitusi Mn dan Ti Pada Struktur Fasa Fe_2O_3 Melalui Teknik *Mechanical Alloying*, *Proc. Ketingan Physics Forum 4th*, 25-30
- [8]. B.D. CULLITY, *Elements of X-Ray Diffraction*, Addison-Wesley Publishing Company, (1978) 363-367