

## EFEK $^{57}\text{Fe}$ DAN $^{119}\text{Sn}$ MÖSSBAUER PADA SENYAWA $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$ ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd} - \text{Lu}$ )

Suharyana<sup>1</sup>, J.M. Cadogan<sup>2</sup> dan D.H. Ryan<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Junisan Fisika Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Universitas Sebelas Maret Jl. Ir. Sutami 36A, Surakarta 57126

<sup>2</sup>School of Physics, The University of New South Wales, Sydney 2052

### ABSTRAK

**EFEK  $^{57}\text{Fe}$  DAN  $^{119}\text{Sn}$  MÖSSBAUER PADA SENYAWA  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd} - \text{Lu}$ ).** Telah digunakan efek  $^{57}\text{Fe}$  dan  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer untuk mempelajari sifat - sifat magnetik senyawa  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd-Lu}$ ). Semua senyawa memiliki medan magnetik superhalus pada inti  $^{57}\text{Fe}$  sebesar  $\sim 19,5$  T pada suhu 295K dan kuadropol *splitting* positif. Hasil eksperimen  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer menunjukkan bahwa hanya 1/3 posisi Sn yang menstansfer momen magnetik dari Fe tetangga terdekat, sedangkan 2/3 posisi Sn memiliki tetangga terdekat atom - atom Fe yang arah momen magnetiknya antiparalel sehingga tidak menstansfer medan magnetik superhalus.

**Kata kunci:**  $^{57}\text{Fe}$  dan  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer,  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$ .

### ABSTRACT

**$^{57}\text{Fe}$  AND  $^{119}\text{Sn}$  MÖSSBAUER STUDY OF  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd} - \text{Lu}$ ) COMPOUNDS.** The use of  $^{57}\text{Fe}$  and  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer spectroscopy in the study of rare-earth iron tin  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd-Lu}$ ) compounds is presented. All compounds have virtually the same magnetic hyperfine field at the  $^{57}\text{Fe}$  nuclei, being  $-19.5\text{T}$  at 295K and the same positive quadrupole splitting. It has been found that only 1/3 of the Sn sites have all Fe neighbours parallel leading to a transferred hyperfine field whereas the rest of the Sn sites have their Fe neighbours antiparallel leading to a zero transferred hyperfine field

**Key words:**  $^{57}\text{Fe}$  and  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer,  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$ .

### PENDAHULUAN

Telah diketahui bahwa senyawa logam tanah jarang (R) - besi (Fe) dan tin (Sn) dengan rumus kimia  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  hanya akan terbentuk apabila  $\text{R} =$  logam tanah jarang berat .Y, Gd-Lu. Walaupun senyawa  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd-Er}$ ) memiliki struktur kristal yang sama, yaitu ortorombik, tetapi senyawa tersebut, bergantung kepada suhu *aniling*, akan mengkristal menjadi 5 jenis berbeda, yaitu jenis  $\text{YFe}_6\text{Sn}_6$  (grup ruang Immm) untuk  $\text{R}=\text{Y}$ , jenis  $\text{TbFe}_6\text{Sn}_6$  (Cmcm) untuk  $\text{R}=\text{Gd}, \text{Tb}$  dan  $\text{Dy}$ , jenis  $\text{DyFe}_6\text{Sn}_6$  (Cmcm) untuk  $\text{R}=\text{Dy}$ , jenis  $\text{HoFe}_6\text{Sn}_6$  (Immm) untuk  $\text{R}=\text{Y}$  dan  $\text{Ho}$  serta jenis  $\text{ErFe}_6\text{Sn}_6$  (Cmcm) untuk  $\text{R}=\text{Er}$ . Senyawa  $\text{TmFe}_6\text{Sn}_6$  dan  $\text{LuFe}_6\text{Sn}_6$  memiliki struktur kristal heksagonal bertipe  $\text{HfFe}_6\text{Ge}_6$  (P6/mmm) [1,2,3]. Hal ini sangat berbeda dengan senyawa keluarga  $\text{RFe}_6\text{Ge}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd-Lu}$ ) yang semuanya mengkristal dengan jenis heksagonal  $\text{HfFe}_6\text{Ge}_6$  [4]. Juga telah diketahui bahwa orientasi momen magnetik substitusi Fe untuk  $\text{RFe}_6\text{X}_6$  adalah antiferomagnetik dibawah suhu *Néel*  $T_N \sim 480$  K ( $\text{X} = \text{Ge}$ ) dan  $\sim 550$  K ( $\text{X}=\text{Sn}$ ), hampir sama untuk semua senyawa tidak bergantung pada jenis unsur logam tanah

jarangnya. Sedangkan substitusi logam tanah jarang memiliki suhu transisi magnetik yang sangat jauh berbeda,  $\sim 30-2$  K [3,5]. Hal-hal tersebut diatas merupakan beberapa alasan mengapa senyawa  $\text{RFe}_6\text{X}_6$  ( $\text{X}=\text{Ge}$  dan  $\text{Sn}$ ) telah menarik perhatian untuk diteliti lebih lanjut sifat-sifat kemagnetannya.

Di dalam artikel ini disajikan hasil eksperimen efek  $^{57}\text{Fe}$  dan  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer pada senyawa  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd-Lu}$ ) sebagai salah satu upaya memahami sifat - sifat magnetik senyawa tersebut.

### METODA PERCOBAAN

Sampel  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  dibuat dengan cara melebur unsur-unsur yang memiliki kadar kemurnian tinggi ( $>99.5\%$ ) menggunakan teknik las lucutan argon. Sebagai kompensasi hilangnya unsur logam tanah jarang selama berlangsungnya proses peleburan, telah ditambahkan 5% massa logam tanah jarang sebelum dilakukan peleburan. Alloy yang terbentuk kemudian dimasukkan ke dalam

tabung vakum kaca *quartz* dan *dianil* pada suhu 1073 K selama 10 hari dan *diqueching* ke dalam air di akhir *aniling*. Alloy tersebut kemudian dibuat serbuk menggunakan *mortar* dan *pestle*.

Karakterisasi struktur kristal dilakukan menggunakan metoda difraksi serbuk sinar-X dengan radiasi Cu-K $\alpha$  pada difraktometer *Siemens D500*, Pola difraksi dianalisis menggunakan metoda *Rietveld* dengan *software Fullprof* [6]. Analisis termogravimetri (TGA) dilakukan pada suhu 300 - 700 K dengan *Perkin-Elmer TGA-7* di dalam medan magnet lemah untuk melihat senyawa  $RFe_6Sn_6$  atau fase pengotor, kalau ada, bersifat fero atau feromagnet. Spektrum  $^{57}Fe$  dan  $^{119}Sn$  *Mössbauer* diperoleh pada suhu ruangan menggunakan mode akselerasi konstan menggunakan spektrometer biasa.

## HASIL PENGAMATAN DAN PEMBAHASAN

Analisis pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa semua sampel  $RFe_6Sn_6$  hampir berfasa tunggal dan hanya terdapat ~2% fase pengotor  $RSn_3$ . Hasil TGA menunjukkan bahwa semua sampel pada suhu 300 - 700 K tidak bersifat fero atau feromagnetik, sehingga dapat disimpulkan bahwa sampel bersifat para atau antiferomagnetik.

Spektrum  $^{57}Fe$  *Mössbauer* yang diperoleh pada suhu ruangan, lihat Gambar 1, memperlihatkan bahwa subkisi Fe bersifat magnetik, sebuah *sextet* dan tidak terlihat adanya fase paramagnetik atau  $\alpha$  Fe. Sehingga dapat disimpulkan bahwa pada suhu ruangan konfigurasi momen magnetik subkisi Fe pada senyawa  $RFe_6Sn_6$  bersifat antiferomagnetik dan tidak mengandung fase pengotor fero atau feromagnetik.

Dari Gambar 1 dapat dilihat bahwa walaupun senyawa  $RFe_6Sn_6$  mengkristal dengan jenis yang berlainan, tetapi semua  $RFe_6Sn_6$  memiliki spektra yang sama, yaitu sebuah *sextet*. Perlu disebutkan di sini bahwa di dalam unit sel struktur  $RFe_6Sn_6$  terdapat lebih dari satu buah posisi Fe. Sebagai contoh, unit sel yang memiliki struktur jenis  $TbFe_6Si_6$  memiliki 3 buah posisi Fe yang berbeda. Sedangkan struktur jenis  $HfFe_6Ge_6$  hanya memiliki sebuah posisi Fe.

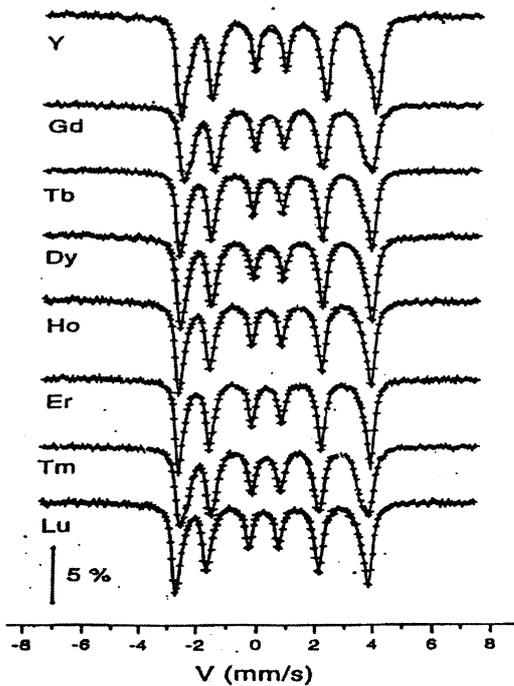
Pada umumnya, spektra  $^{57}Fe$  *Mössbauer* difitting dengan memperhatikan populasi tiap-tiap posisi Fe dan logam tanah jarang di dalam unit sel. Dengan kata lain banyaknya subspektra ditentukan oleh banyaknya posisi Fe di dalam unit sel, sedangkan intensitas dan tiap - tiap subspektra dipengaruhi oleh populasi atom Fe di dalam posisi tersebut dan populasi tetangga terdekat atom tanah jarang. Namun demikian, metoda *fitting* seperti ini tidak dapat diterapkan untuk spektra  $^{57}Fe$  *Mössbauer*  $RFe_6Sn_6$  karena hanya terdiri atas satu *sextet* saja.

Telah diterima secara umum bahwa volume sel *Wigner-Seitz* berkorelasi dengan medan magnet superhalus Fe. Telah menghitung volume sel *Wigner-Seitz* untuk semua posisi Fe pada semua jenis struktur kristal

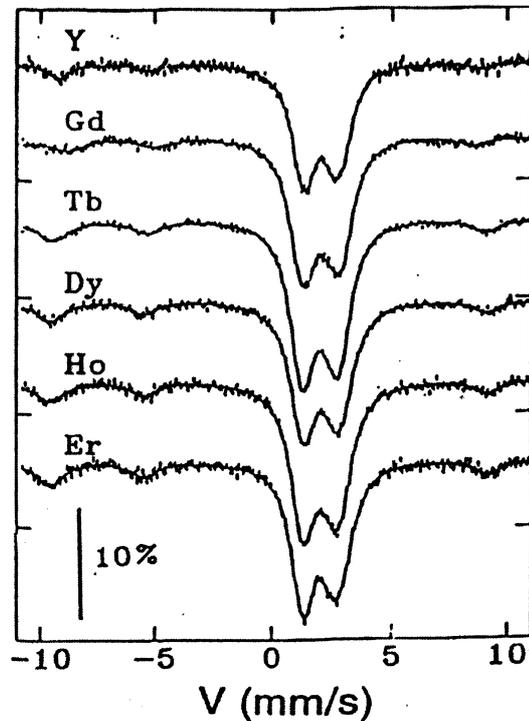
yang diadopsi oleh  $RFe_6Sn_6$  menggunakan program BLOKJE [6]. Hasil perhitungan menunjukkan bahwa semua posisi Fe, tidak bergantung pada jenis kristal, memiliki volume yang hampir sama, ~11,2 Å<sup>3</sup>. Disamping itu tiap-tiap atom Fe juga mempunyai jumlah tetangga terdekat atom tanah jarang yang sama [3]. Ini menunjukkan bahwa masing - masing Fe di dalam unit sel kristal jenis  $RFe_6Sn_6$  memiliki lingkungan magnetik yang relatif sama, akibatnya spektrum  $^{57}Fe$  *Mössbauer*  $RFe_6Sn_6$  hanya berupa *sextet* tunggal. Sebenarnya spektrum  $^{57}Fe$  *Mössbauer*  $RFe_6Sn_6$  pada Gambar 1 dapat kami *fitting* menggunakan satu buah *sextet*, tetapi agar diperoleh hasil *fitting* yang baik, kami menggunakan dua buah subspektra. Nilai rata-rata medan magnetik superhalus (B), Kuadropol *splitting* (QS) dan pergeseran isomer (IS) relatif terhadap Fe, kami tampilkan di Tabel 1. Dapat dilihat bahwa nilai semua besaran tersebut hampir sama, tidak bergantung pada jenis logam tanah jarang. Hal ini menunjukkan bahwa secara magnetik, semua atom Fe memiliki lingkungan yang relatif sama. Disamping itu, hasil ini juga mengindikasikan bahwa interaksi antara subkisi logam tanah jarang dengan subkisi Fe sangat lemah. Semua senyawa  $RFe_6Sn_6$  memiliki kuadropol yang bernilai positif, menunjukkan semua Fe memiliki arah momen magnetik yang sama.

Hasil eksperimen efek  $^{119}Sn$  *Mössbauer* pada  $RFe_6Sn_6$  (R=Y, Gd-Er) diperlihatkan pada Gambar 3. Terlihat dengan jelas bahwa semua senyawa memiliki spektrum yang hampir sama, terlihat adanya bagian magnetik dan nonmagnetik, tidak bergantung pada jenis unsur logam tanah jarang bersifat magnetik atau tidak. Perlu diingat bahwa Sn adalah atom nonmagnetik. Dengan demikian medan magnetik superhalus seperti terlihat di Gambar 3 pasti berasal dari atom Fe, dan bukan dari atom logam tanah jarang. Hasil *fitting* mengindikasikan bahwa ~35% posisi Sn di dalam unit sel mentransfer medan superhalus sebesar 24,6 T sedangkan sisanya, ~65% Sn tidak mentransfer medan superhalus.

Untuk menjelaskan fenomena di atas, akan ditinjau struktur magnetik  $YFe_6Sn_6$ , karena di dalam senyawa ini hanya atom Fe saja yang memiliki momen magnetik. Hasil perhitungan unit sel *Wigner-Seitz* sel menunjukkan bahwa semua posisi atom Sn di dalam unit sel memiliki 6 atom Fe tetangga terdekat. Hasil studi difraksi neutron pada  $YFe_6Sn_6$  [8] menunjukkan bahwa terdapat Sn pada posisi 4g dan 4h, total sebanyak 5 buah posisi, yang memiliki 3 tetangga terdekat Fe dengan momen mengarah sepanjang [100] dan 3 tetangga terdekat Fe dengan momen mengarah antiparalel sepanjang [-100], sehingga menghasilkan netto transfer momen magnetik sebesar nol. Sn pada posisi 4e dan 8h semuanya memiliki tetangga terdekat Fe yang semua momennya paralel. Momen magnetik inilah yang ditransferkan ke Sn, sebagaimana terlihat pada spektrum  $^{119}Sn$  *Mössbauer*. Jumlah atom Sn di posisi 4e dan 8h adalah 1/3 dari jumlah total atom Sn di dalam unit sel  $YFe_6Sn_6$ , sesuai dengan hasil eksperimen  $^{119}Sn$  *Mössbauer*.



Gambar 1. Spektrum  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  pada suhu kamar.



Gambar 2. Spektrum  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  pada suhu kamar. Garis vertikal menunjukkan 10% serapan

Tabel 1. Hasil fitting rata-rata konstanta  $^{119}\text{Fe}$  Mössbauer  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  pada suhu 295K: (a) medan magnet superhalus (B), (b) kuadropol splitting (QS) dan (c) pergeseran isomer (IS) relatif terhadap  $\alpha$  Fe

No	Senyawa	$B_{\text{hf}}(\text{T})$	IS(mm/s)	QS(mm/s)
1.	$\text{YFe}_6\text{Sn}_6$	19,6(2)	0,482(5)	0,321(5)
2.	$\text{GdFe}_6\text{Sn}_6$	19,4	0,463	0,327
3.	$\text{TbFe}_6\text{Sn}_6$	19,8	0,478	0,312
4.	$\text{DyFe}_6\text{Sn}_6$	19,8	0,488	0,331
5.	$\text{HoFe}_6\text{Sn}_6$	19,5	0,459	0,335
6.	$\text{ErFe}_6\text{Sn}_6$	19,9	0,466	0,320
7.	$\text{TmFe}_6\text{Sn}_6$	19,3	0,475	0,325
8.	$\text{LuFe}_6\text{Sn}_6$	19,7	0,481	0,325

## KESIMPULAN

Senyawa  $\text{RFe}_6\text{Sn}_6$  bersifat antiferomagnetik. Semua atom Fe, tidak bergantung pada jenis struktur kristalnya, memiliki lingkungan magnetik yang sangat mirip dan mempunyai konfigurasi momen magnetik yang sama. Hasil eksperimen  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer juga mengindikasikan bahwa interaksi antara subkisi logam tanah jarang dengan subkisi Fe sangat lemah, konsekuensinya suhu transisi untuk subkisi logam tanah jarang dan Fe akan berbeda.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Makalah ini merupakan bagian dan disertasi penulis yang belum sempat dipublikasikan. Pada

kesempatan ini kami mengucapkan terimakasih kepada Prof. J. M. Cadogan dan Prof. D. H. Ryan yang telah bertindak sebagai supervisor penulis.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. CHAFIK EL LDRISSI, B., VENTURINI, G., AND MALAMAN, B., *Mater. Res. Bull.* **26**,(1991)1331.
- [2]. RAO, X. L. AND COCY, J. M. D., *J. Appl. Phys.* **81**, (1997)5181.
- [3]. SUHARYANA, *Descitasi PhD, School of Physics, The University of New South Wales*, 2000.
- [4]. VENTURINI, G., WELTER, R. AND MALAMAN, B., *J. Alloys. Compd.* **185**, (1992)99.
- [5]. RYAN, D. H. AND CADOGAN, J.M., *J. Appl. Phys.* **79**, (1996)6004.
- [6]. RODRIGUEZ-CARVAJAL, J., *Physica* **B192**, (1993)55
- [7]. GELATO, L., *J. Appl. Crystallogr.* **14**, (1992)151.
- [8]. CADOGAN, J. M., SUHARYANA, RYAN. D. H., MOZE, O., KOCKELMANN, W., *J. Appl. Phys.* **87**, (2000)6046.