

TINJAUAN MIKROSTRUKTUR, STRUKTUR KRISTAL, DAN KRISTALIT PERTUMBUHAN FASA Mg_2Al_3 HASIL *MECHANICAL* *ALLOYING*

Hadi Suwarno⁽¹⁾ dan Wisnu Ari Adi⁽²⁾

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN
2. Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir – BATAN
Kawasan Puspipstek Serpong, Tangerang

ABSTRAK

TINJAUAN MIKROSTRUKTUR DAN STRUKTUR KRISTALIT PERTUMBUHAN FASA Mg_2Al_3 HASIL *MECHANICAL ALLOYING*. Telah dilakukan sintesis dan tinjauan mikrostruktur dan struktur kristal paduan Mg_2Al_3 melalui proses *mechanical alloying*. Paduan Mg_2Al_3 dibuat melalui proses dimiling dengan variasi waktu dimiling berturut-turut 10, 20, dan 30 jam. Hasil perhitungan fraksi massa komposisi fasa sebelum dimiling adalah 43,3 % fasa Mg dan 56,7 % fasa Al dengan ukuran kristalit berturut-turut adalah 55 nm dan 41 nm. Setelah dimiling 10 jam, fraksi masa Mg dan Al berkurang berturut-turut menjadi 6,37 % dan 21,81 % dengan ukuran kristalit mengecil berturut-turut menjadi 4 nm dan 13 nm dan tumbuh fasa baru Mg_2Al_3 dengan fraksi massa sebanyak 71,82 % berukuran kristalit 3 nm. Dari hasil pengamatan foto SEM terlihat bahwa serbuk mulai mengecil dan sebagian diduga telah mengalami penyatuan. Setelah dimiling 20 jam, fraksi masa Mg dan Al berkurang lagi berturut-turut menjadi < 1% dan 8,89 % dengan ukuran kristalit semakin mengecil berturut-turut menjadi 3 nm dan 6 nm, sedangkan fraksi massa Mg_2Al_3 meningkat menjadi 90,73 % dengan ukuran kristalit semakin bertambah menjadi 10 nm. Dari foto SEM menunjukkan bahwa serbuk mulai lebih menyatu dan sudah tidak tampak lagi serbuk-serbuk Mg dan Al, tetapi belum seluruhnya terdifusi membentuk fasa baru. Setelah dimiling 30 jam, komposisi fraksi masa masing-masing Mg, Al, dan Mg_2Al_3 berturut-turut menjadi 0,48 %; 3,32 %; dan 96,19 % dengan ukuran kristalit berturut-turut sebesar 2 nm, 5 nm, dan 12 nm. Dari foto SEM, pada tahap ini hampir keseluruhan telah terbentuk fasa Mg_2Al_3 . Disimpulkan bahwa telah dipahami proses pembentukan fasa Mg_2Al_3 dari hasil *mechanical alloying* ditinjau dari mikrostruktur, struktur kristal dan kristalit.

Kata kunci : *mechanical alloying*, mikrostruktur, struktur kristal, kristalit.

ABSTRACT

MICROSTRUCTURE, CRYSTAL STRUCTURE, AND GRAIN SIZE OBSERVATIONS ON THE Mg_2Al_3 GROWTH BY MECHANICAL ALLOYING. *Microstructure, crystal structure, and grain size observations on the growth of Mg_2Al_3 phase by mechanical alloying have been performed. The Mg_2Al_3 compound is prepared by milling process at various milling time of 10, 20, and 30 h. Calculation result of the compound before milling show that the mass fraction and the grain size of*

the Mg and Al are 43.3 wt% and 56.7 wt% and 55 nm and 41 nm, respectively. For milling time of 10 h, the mass fraction of Mg and Al decrease into 6.37 wt% and 21.81 wt%, the grain size reduce into 4 nm and 13 nm, while that of the new phase Mg_2Al_3 is 71.82 wt% with the grain size of 3 nm. For milling time of 20 h, the mass fraction of Mg and Al decrease significantly into < 1 wt% and 8.89 wt%, the grain size reduce into 1 nm and 6 nm, while that of the Mg_2Al_3 is 90.73 wt% with the grain size of 10 nm. SEM photograph shows that the powders start to agglomerate, though not all particles Mg and Al diffuse each other to form new phase Mg_2Al_3 . For milling time of 30 h, the mass fraction of Mg, Al, and Mg_2Al_3 are 0.48 wt%, 3.32 wt%, and 96.19 wt% with the grain sizes of 2 nm, 5 nm, and 12 nm, respectively. SEM photograph shows that all powders are from the new phase Mg_2Al_3 . It is concluded that the growth of Mg_2Al_3 phase form the Mg and Al powders can be observed from the microstructure, structure crystal and the grain size.

Key Words : mechanical alloying, micro structure, crystal structure, crystallit

PENDAHULUAN

Krisis energi dari bahan bakar fosil mendorong pesat para peneliti untuk mengembangkan energi alternatif, khususnya hidrogen. Hidrogen disamping terdapat melimpah di alam, ringan, ramah lingkungan dan mudah diperbaharui. Namun hidrogen memiliki kelemahan yaitu sangat reaktif dan mudah terbakar. Salah satu cara yang lebih aman untuk menyimpan hidrogen ini adalah dengan memasukkannya ke dalam sebuah logam, yang lazim disebut *metal hydride* [1-5].

Salah satu paduan *metal hydride* berbasis magnesium yang sedang dikembangkan dewasa ini adalah sistem Mg-Al. Andreasen [6] dan kawan-kawan telah berhasil membuat paduan Mg-Al menggunakan *arc melting* dengan fasa yang terbentuk adalah Mg_2Al_3 dan $Mg_{17}Al_{12}$. Namun teknik *arc melting* dalam suasana argon ini sangat sulit dilakukan karena magnesium dan aluminium mudah bereaksi dengan oksigen yang ada di dalam argon, sehingga akan terbentuk MgO dan Al_2O_3 yang akan mengganggu proses hidriding. Kendala berikutnya dalam sintesis paduan Mg-Al ini adalah sifat serbuk Mg yang memiliki tekanan uap yang tinggi hingga 500 Pa yang akan menyebabkan partikel Mg akan berubah menjadi uap yang berakibat paduan stoikiometri yang diinginkan tidak tercapai. Oleh karena itu diperlukan teknik lain untuk membuat paduan ini yaitu metode *mechanical*

alloying dan cara ini diharapkan menjadi solusi yang paling sederhana untuk membuat paduan Mg-Al.

Pada penelitian ini telah berhasil dilakukan pembuatan paduan sistem Mg_2Al_3 melalui proses *mechanical alloying*. Prosesnya yaitu memadukan serbuk magnesium dan aluminium dengan teknik *dimiling*. Untuk melihat pertumbuhan paduan ini, ada 3 tahapan proses *dimiling* yang dilakukan yaitu *dimiling* selama 10 jam, 20 jam, dan 30 jam. Pemilihan tahapan ini mengacu pada penelitian sebelumnya [7]. Namun hal yang sangat menarik untuk dipahami pada penelitian ini adalah proses pembentukan paduan ini.

Akibat proses *dimiling* serbuk Mg dan Al akan saling bertumbukan dengan bola-bola baja yang akan menyebabkan serbuk mengalami deformasi. Deformasi elastis dan plastik yang dialami serbuk Mg dan Al menyebabkan serbuk mengalami proses *strain* dan sebagai konsekuensinya partikel serbuk akan hancur menjadi partikel nano. Partikel nano akan mengalami proses *cold welding* dan *fracture* secara berulang-ulang yang akan menyebabkan terjadi penyatuan dan pelepasan antar partikel nano melalui proses difusi yang akan membentuk paduan baru.

Tujuan penelitian ini adalah untuk mengetahui dan pengaruh waktu *dimiling*

terhadap pertumbuhan fasa Mg₂Al₃ ditinjau dari perubahan mikrostruktur dan struktur kristal. Paduan Mg-Al merupakan bagian dari promosi metoda simpan hidrogen yang dihasilkan dari reaktor nuklir.

TATA KERJA

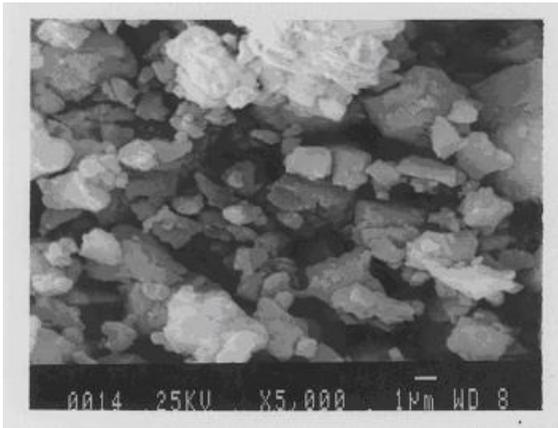
Alat yang digunakan untuk proses *mechanical alloying* adalah *High Energy Dimiling* (HEM) Spex 8000 yang terdapat di laboratorium Bidang Karakterisasi dan Analisis Nuklir (BKAN), Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN), Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) dengan spesifikasi *normal speed* 4500 rpm, *run time* 90 menit, *off time* 30 menit, dan *on-off cycle* 1 kali. Paduan Mg₂Al₃ dibuat sebanyak 15 gram yang terdiri dari campuran antara magnesium (Mg) dan Aluminium (Al) dengan perbandingan stokiometri unsur Mg : Al = 2 : 3. Magnesium dan aluminium diperoleh dari Merck dengan tingkat kemurnian > 99,8% dan > 99,0 %. Pada penelitian ini sampel Mg-Al di-dimiling dengan variasi waktu dimiling masing-masing 10, 20, dan 30 jam pada temperatur ruang.

Pengamatan mikrostruktur menggunakan alat *scanning electron microscope* (SEM) Philip tipe 550, sedangkan kualitas dan kuantitas fasa-fasa yang ada di dalam sampel diukur menggunakan alat *x-ray diffractometer* (XRD) Philip tipe PW1710. Pengukuran pola difraksi sampel dilakukan dengan berkas sinar-x dari *tube anode* Cu dengan panjang gelombang, $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, *mode: continuous-scan*, *step size* :

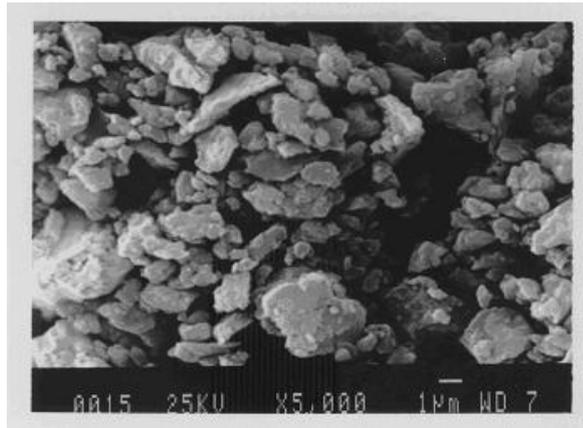
0,02°, dan *time per step* : 0,5 detik. Profil difraktometer sinar-x dianalisis menggunakan perangkat lunak program RIETAN (*Rietveld Analysis*) 1994^[8].

HASIL DAN PEMBAHASAN

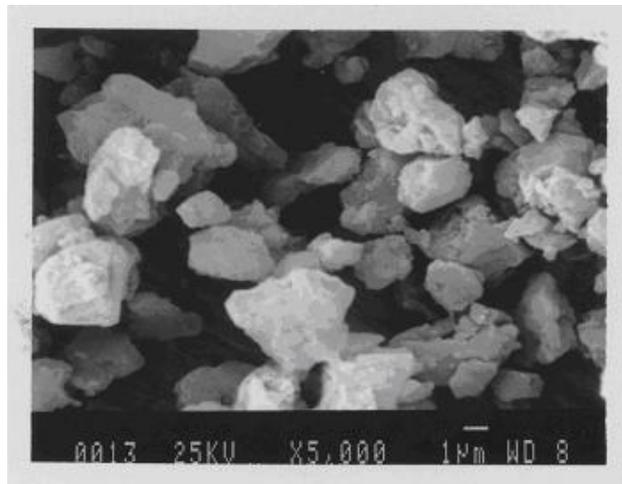
Analisa mikrostruktur dari hasil foto SEM baik setelah *dimiling* 10 jam, 20 jam, dan 30 jam ditunjukkan pada Gambar 1. Hasil Gambar foto SEM tersebut menunjukkan bahwa setelah sampel *dimiling* 10 jam, partikel memiliki bentuk yang relatif sama dengan distribusi ukuran partikel yang kecil hampir merata di seluruh permukaan sampel walaupun masih ada beberapa ukuran partikel yang cukup besar. Hal ini menunjukkan bahwa proses penghancuran partikel Mg dan Al telah terjadi. Dan setelah *dimiling* 20 jam, tampak bahwa sebagian partikel-partikel kecil tersebut menyatu membentuk partikel yang lebih besar, sehingga jumlah partikel yang besar menjadi bertambah walaupun masih terdapat partikel-partikel kecil. Kemudian setelah dimiling selama 30 jam, jumlah partikel yang berukuran besar bertambah banyak dan hampir merata di seluruh permukaan sampel. Hal yang sangat menarik untuk dikaji dari hasil foto SEM ini adalah dengan bertambahnya waktu dimiling, idealnya bahwa ukuran partikel tersebut akan menjadi lebih kecil, tetapi yang terjadi adalah sebaliknya, yaitu ukuran partikel menjadi lebih besar. Hal ini diduga pada sampel telah terjadi pembentukan fasa baru, yaitu hasil reaksi antara perpaduan partikel Mg dan Al. Namun, hasil ini perlu adanya konfirmasi lebih lanjut dengan karakterisasi yang lain.



(a) Foto SEM dari sampel setelah dimiling 10 jam



(b) Foto SEM dari sampel setelah dimiling 20 jam



(c) Foto SEM dari sampel setelah dimiling 30 jam

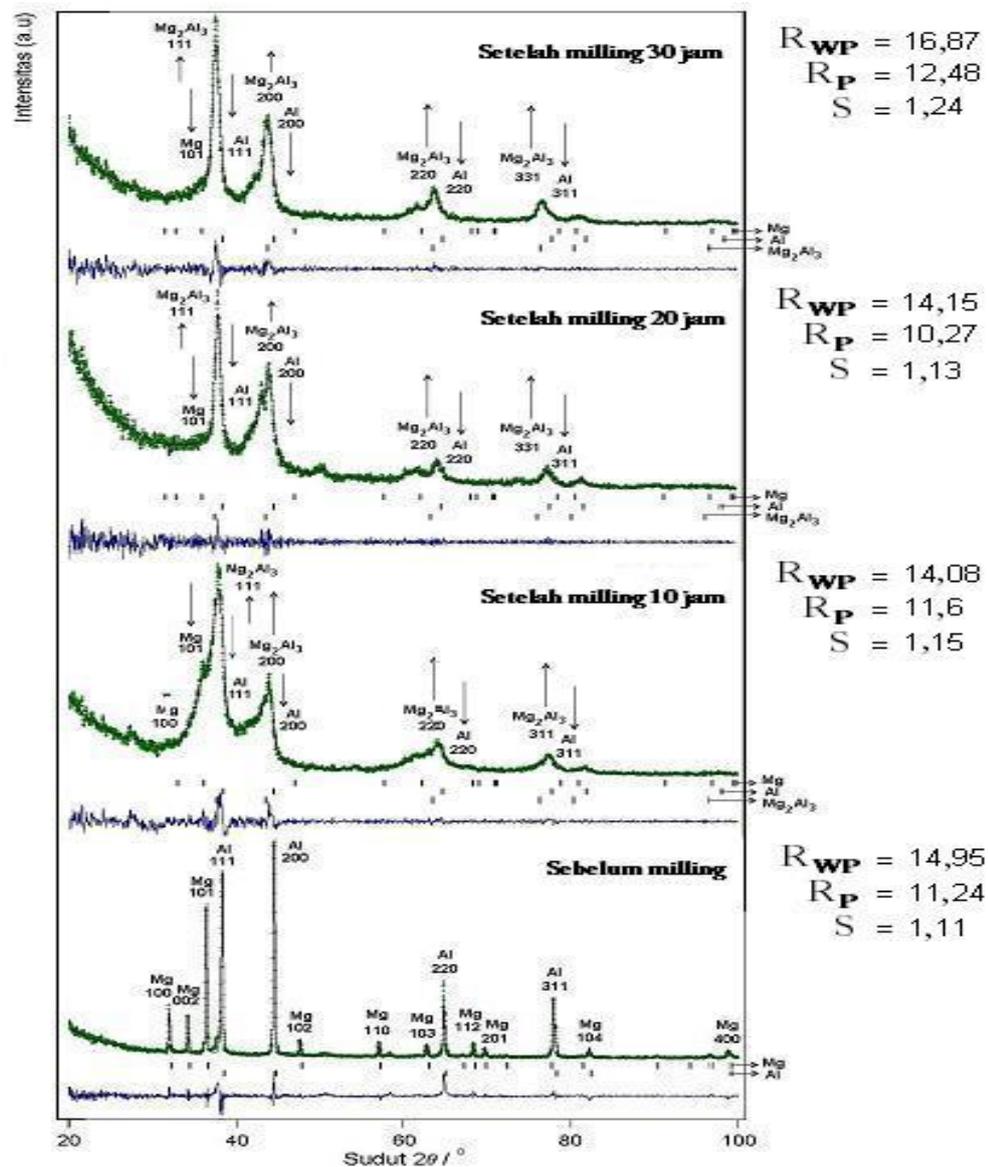
Gambar 1. Foto SEM sampel setelah dimiling 10 jam, 20 jam dan 30 jam

Karakterisasi lain yang menunjang hasil pengamatan foto SEM tersebut adalah analisis fasa dari pola difraksi sinar-x masing-masing sampel. Hasil analisis fasa dari pengukuran pola difraksi sinar-x masing-masing sampel ditunjukkan pada Gambar 2. Hasil analisis dengan menggunakan program Rietveld menunjukkan bahwa baik sampel setelah dimiling 10 jam, 20 jam dan 30 jam, mengandung 3 fasa, yaitu fasa Mg, fasa Al, dan fasa Mg_2Al_3 . Pada Gambar 2, hasil *refinement* dengan menggunakan analisis Rietveld ini menghasilkan kualitas *fitting* yang baik, dimana faktor *R* yang merupakan *criteria*

of fit dan *S* adalah *goodness of fit* bernilai cukup kecil. Berdasarkan hasil *refinement* dari profil difraksi sinar-x seperti yang terlihat pada Gambar 2 menunjukkan bahwa sebelum dimiling campuran tidak mengandung impuritas dan hanya terdiri dari fasa Mg dan Al. Kemudian selama dimiling, terjadi proses *mechanical alloying*, yaitu serbuk-serbuk Mg dan Al secara periodik terjebak diantara bola-bola yang saling bertumbukan dan terdeformasi secara plastis. Bola-bola yang saling bertumbukan tersebut menyebabkan perpatahan, kemudian terjadi penyatuan dingin (*cold welding*) dari serbuk-serbuk

secara elementer. Ketika waktu dimiling bertambah, fraksi volume unsur-unsur dari bahan dasar menurun, sedangkan fraksi volume paduan meningkat. Pada Gambar 2 terlihat bahwa puncak-puncak tertinggi yang dimiliki fasa Mg pada bidang (101) dan Al pada bidang (200) tampak berkurang seiring dengan meningkatnya waktu dimiling. Setelah dimiling 30 jam, fasa Mg dan Al hampir hilang,

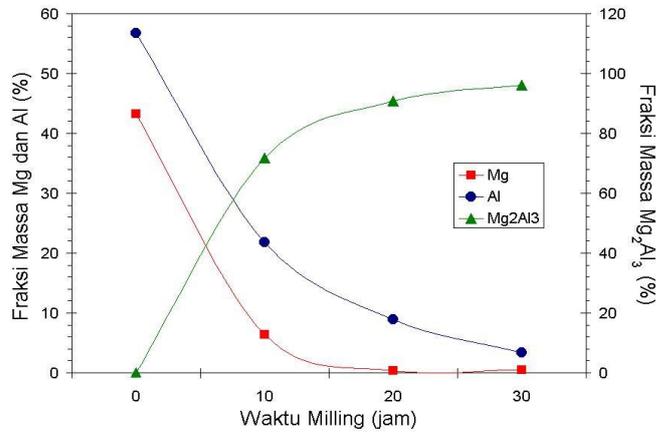
sedangkan setelah dimiling 10 jam, fasa Mg_2Al_3 sudah mulai terbentuk dengan puncak yang tertinggi pada bidang (111), dimana setelah dimiling 20 jam dan 30 jam, fasa Mg_2Al_3 semakin tajam. Hal ini berarti bahwa telah terbentuk fasa baru dari proses *mechanical alloying* tersebut dari fasa awal Mg dan Al bereaksi membentuk fasa Mg_2Al_3 .



Gambar 2. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-x sebelum dan setelah dimiling selama 10, 20, dan 30 jam

Hasil perhitungan dengan menggunakan analisis Rietveld menunjukkan bahwa fraksi fasa Mg_2Al_3 meningkat seiring

bertambahnya waktu dimiling seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3.

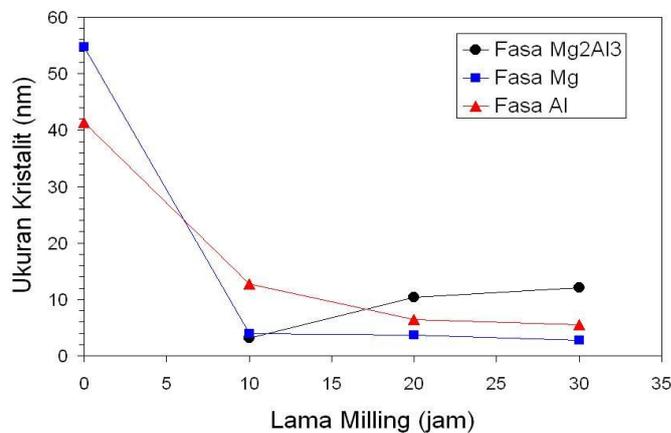


Gambar 3. Pertumbuhan fraksi massa fasa Mg_2Al_3 dengan meningkatnya waktu *dimiling*

Pada Gambar 3 tampak bahwa hasil perhitungan fraksi massa komposisi fasa sebelum *dimiling* terdiri dari fasa Mg 43,3 % dan fasa Al 56,7 %. Setelah dimiling 10 jam, fraksi massa fasa Mg dan Al mulai berkurang berturut-turut menjadi 6,37 % dan 21,81 %, sedangkan tumbuh fasa baru Mg_2Al_3 dengan fraksi massa sebanyak 71,82 %. Apabila dikonfirmasi dengan hasil pengamatan foto SEM pada Gambar 1, tampak bahwa ada kesesuaian hasil, yaitu serbuk mulai mengecil dan sebagian diduga telah mengalami penyatuan. Setelah dimiling 20 jam, fraksi massa Mg dan Al berkurang lagi berturut-turut menjadi < 1% dan 8,89%, sedangkan fasa Mg_2Al_3 meningkat menjadi 90,73%. Dari foto

SEM menunjukkan bahwa serbuk mulai menyatu dan sudah tidak tampak lagi serbuk Mg dan Al, namun belum seluruhnya terdifusi membentuk fasa baru. Akhirnya, setelah dimiling 30 jam, komposisi fraksi massa masing-masing fasa Mg, Al dan Mg_2Al_3 berturut-turut menjadi 0,48%; 3,32%; dan 96,19%. Dari foto SEM, pada tahap ini hampir keseluruhan serbuk telah membentuk fasa baru.

Hasil pengamatan SEM, analisis fasa XRD dan perhitungan ukuran kristalit fasa yang terbentuk dengan menggunakan formula Scherrer untuk masing-masing sampel sebelum dan setelah dimiling hasilnya ditunjukkan pada Gambar 4.

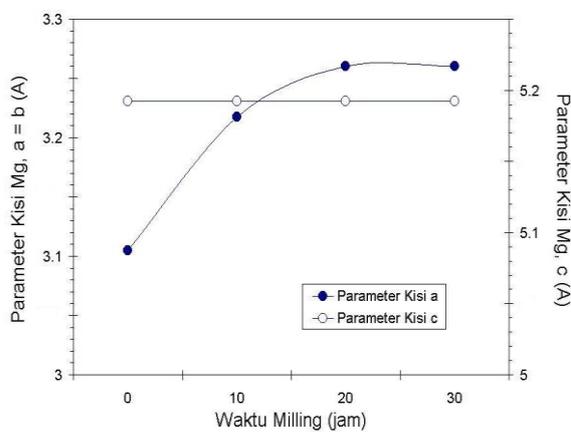


Gambar 4. Ukuran kristalit sampel sebelum dan setelah dimiling 10, 20, dan 30 jam

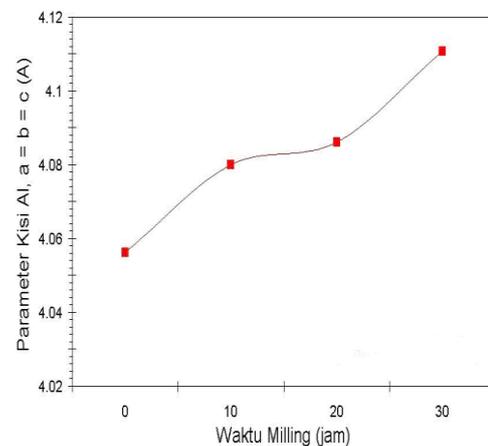
Sebelum dimiling ukuran kristalit Mg sebesar 55 nm dan Al 41 nm. Setelah dimiling selama 10 jam, ukuran kristalit Mg dan Al berubah berturut-turut menjadi 4 nm dan 13 nm, serta muncul kristal baru Mg_2Al_3 dengan ukuran kristalit sebesar 3 nm. Pada tahap ini terjadi proses pengecilan ukuran kristal akibat efek dimiling. Dengan ukuran kristal baik Mg maupun Al yang sangat kecil ini memberikan peluang besar keduanya untuk bereaksi membentuk kristal baru, yaitu kristal Mg_2Al_3 . Pada dimiling berikutnya, setelah 20 jam hingga 30 jam, ukuran kristalit dari Mg dan Al semakin mengecil ditandai dengan profil puncak XRD

tampak semakin amorf. Hal ini berarti bahwa baik kristal Mg dan Al telah rusak atau hancur. Sedangkan ukuran kristalit Mg_2Al_3 semakin membesar yang ditandai dengan semakin menajamkan profil puncak pada fasa ini. Hal ini berarti kristal Mg_2Al_3 semakin tumbuh dengan baik.

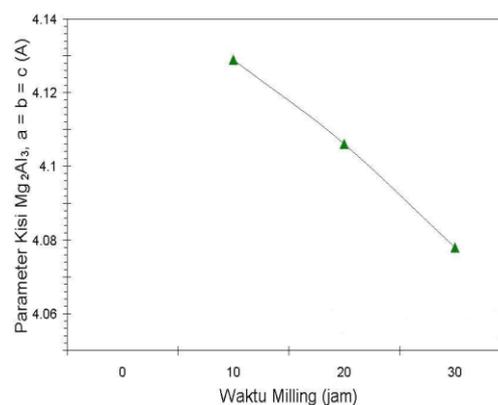
Pertumbuhan kristal Mg_2Al_3 ini juga didukung dari hasil perhitungan parameter kisi, kerapatan atomik dan volume unit sel masing-masing tahapan dimiling. Gambar 5 memperlihatkan hubungan perubahan parameter kisi kristal Mg, Al, dan Mg_2Al_3 terhadap lamanya waktu dimiling.



(a) Parameter kisi kristal Mg



(b) Parameter kisi kristal Al

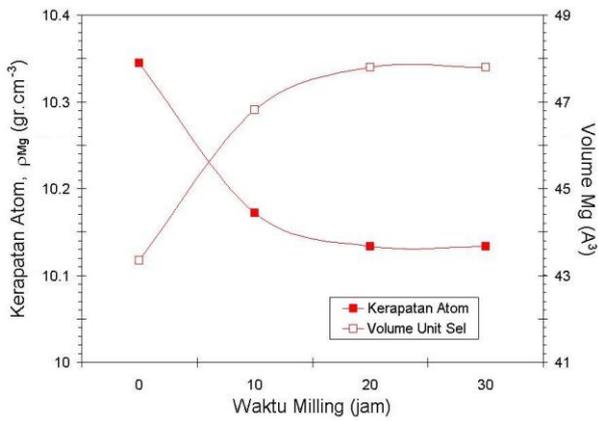
(c) Parameter kisi kristal Mg_2Al_3

Gambar 5. Perubahan parameter kisi akibat efek dimiling

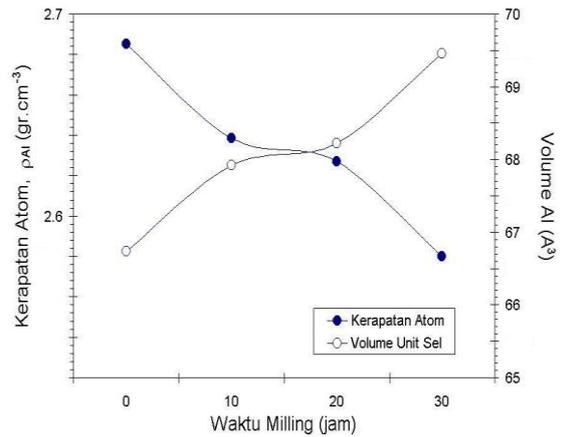
Kristal Mg adalah heksagonal, sedangkan kristal Al dan Mg_2Al_3 adalah kubik. Pada Gambar 5 terlihat parameter kisi pada sumbu a dan b pada kristal Mg membesar dan parameter kisi kristal Al juga membesar, sedangkan parameter kisi kristal Mg_2Al_3 semakin mengecil. Hal ini diduga kuat pada

kristal Mg dan Al terjadi kerusakan kristal sedangkan kristal Mg_2Al_3 telah terbentuk dengan baik.

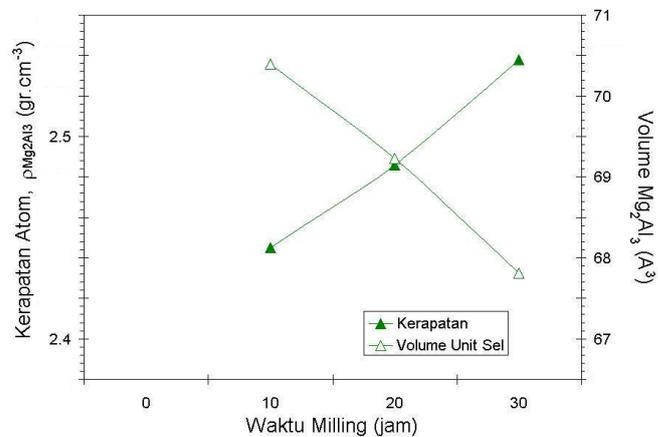
Asumsi ini diperkuat dengan hasil perhitungan volum unit sel dan kerapatan atomik masing-masing kristal yang diperlihatkan pada Gambar 6.



(a) Volume unit sel dan kerapatan atomik kristal Mg



(b) Volume unit sel dan kerapatan atomik kristal Al



(c) Volume unit sel dan kerapatan atomik kristal Mg_2Al_3

Gambar 6. Perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik akibat efek *dimiling*

Pada Gambar 6 ditunjukkan bahwa makin lama waktu dimiling baik kristal Mg maupun Al, volume unit sel keduanya semakin meningkat sedangkan kerapatan atomiknya

semakin kecil. Namun sebaliknya untuk kristal Mg_2Al_3 , volume unit selnya semakin mengecil dan kerapatan atomiknya semakin membesar. Hal ini juga memberikan arti bahwa baik kristal

Mg maupun Al semakin rusak, sementara kristal Mg_2Al_3 semakin baik.

SIMPULAN

Pembentukan fasa Mg_2Al_3 dengan menggunakan teknik *mechanical alloying* telah berhasil dilakukan. Hasil perhitungan fraksi massa komposisi fasa sebelum dimiling adalah 43,3 % fasa Mg dan 56,7% fasa Al dengan ukuran kristalit berturut-turut adalah 55 nm dan 41 nm. Setelah dimiling 10 jam, fraksi massa fasa Mg dan Al mulai berkurang dengan ukuran kristalit mengecil, sedangkan tumbuh fasa baru Mg_2Al_3 dengan fraksi massa sebanyak 71,82 % dengan ukuran kristalit 3 nm. Menurut hasil pengamatan foto SEM menunjukkan bahwa serbuk mulai mengecil dan sebagian diduga telah mengalami penyatuan. Setelah dimiling 20 jam, fraksi massa fasa Mg dan Al berkurang lagi dengan ukuran kristalit semakin mengecil, sedangkan fraksi massa fasa Mg_2Al_3 meningkat dengan ukuran kristalit semakin bertambah besar. Dari foto SEM menunjukkan bahwa serbuk mulai lebih menyatu dan sudah tidak tampak lagi serbuk-serbuk Mg dan Al, namun belum seluruhnya terdifusi membentuk fasa baru. Akhirnya, setelah dimiling 30 jam, komposisi fraksi massa masing-masing fasa Mg dan Al semakin hilang, sedangkan Mg_2Al_3 semakin dominan dengan ukuran kristalit semakin membesar. Dari foto SEM, pada tahap ini hampir keseluruhan telah terbentuk fasa Mg_2Al_3 .

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terimakasih kami sampaikan kepada Bapak Menteri Kementerian Riset dan

Teknologi yang telah menyediakan dana penelitian ini melalui Program Insentif 2008, kepada Bapak Kepala Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir, kepada Bapak Kepala Bidang Karakterisasi dan Analisis Nuklir dan semua pihak yang telah membantu menyediakan fasilitas untuk penyelesaian penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. ZALUSKA, A., ZALUSKI, L., STROM-OLSEN, J.O., *J., "Alloys Com".*, 228 (1999) 217.
2. LIANG, G., HUOT, J., BOILY, S., NESTE, A.V., SCHULTZ, R., *J., "Alloys Com".*, 348 (2003) 319.
3. ARNASON, B., SIGFUSSON, T.I., *Int. , "Hydrogen Energy"*, 25 (2000) 389.
4. BUCHENER, H., POVEL, R., *Int. J., "Hydrogen Energy"*, 7 (1982) 259.
5. DORNHEIM, M., KLASSEN, T., BORMANN, R., *"Hydrogen Storage Materials"*, Institute for Materials Research, GKSS Research Center, Geesthacht, Germany.
6. ANDREASEN, A., SORENSEN, M.B., BURKARL, R., MOLLER, B., MOLENBROEK, A.M., PEDERSEN, A.S., ANDREASEN, J.W., NIELSEN, M.M., JENSEN, T.R., *J" Alloys Comp"*, 404-406(2005)323.
7. SUWARNO, H, WISNU A. A., ANDON I, *"International Conference Solid State Ionic Proceeding"*, PTBIN, Serpong, 2007. IZUMI, F., Rietan Manual, 1994 (privatecommunication).