

SINTESIS DAN KARAKTERISASI BARIUM M-HEKSAFERIT DENGAN DOPING ION Mn DAN TEMPERATUR SINTERING

Silviana Simbolon¹⁾, Anggito P Tetuko²⁾, Perdamean Sebayang²⁾, Kerista Sebayang¹⁾, Herli Ginting¹⁾
silvia4809@yahoo.co.id

¹⁾Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Sumatera Utara
Jalan Bioteknologi No.1 Kampus USU, Medan, 20155

²⁾Pusat Penelitian Fisika, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia (LIPI)
Kompleks Puspiptek Serpong, Tangerang Selatan, 15314

ABSTRAK

Telah dilakukan pembuatan magnet permanen Barium M-Heksaferit yang didoping ion Mn dengan variasi $x = 0,1-1,5$ (%mol) menggunakan metoda *mechanical alloying*. Proses preparasi bahan dasar Barium Karbonat (BaCO_3), Hematit (Fe_2O_3) dan Mangan Oksida (MnO) dicampur dengan cara *wet milling (ball mill)* dengan media aquades selama 20 jam. Selanjutnya dikeringkan pada temperatur 100°C selama 24 jam, dikalsinasi pada temperatur 1000°C selama 2 jam, dan dianalisa dengan XRD. Dari hasil analisa XRD menunjukkan bahwa telah terbentuk struktur kristal Barium M-Heksaferit ($\text{BaFe}_{12-x}\text{Mn}_x\text{O}_{19}$) dengan parameter kisi $a = b = 5,865 \text{ \AA}$, $c = 23,099 \text{ \AA}$ dan $V = 794,25 \text{ \AA}^3$. Serbuk yang telah dikalsinasi kemudian digerus dan diayak hingga lolos ukuran partikel 400 mesh, dicampur bahan perekat Celuna WE-518 sebanyak 3%wt dan dicetak dengan tekanan $1,3 \text{ tonf/cm}^2$ sehingga membentuk pellet dengan diameter 20 dan tebal 10 mm. Sampel yang telah dicetak kemudian disinter menggunakan tungku listrik *Thermolyne* dengan *heating rate* $3^\circ\text{C}/\text{menit}$ dan variasi temperatur sintering 1100°C , 1150°C , dan 1200°C , masing – masing pada suhu tersebut ditahan selama 2 jam. Karakterisasi yang dilakukan meliputi sifat fisis yaitu densitas dan porositas dengan metode Archimedes, penyusutan dengan menggunakan dilatometer, morfologi dan analisa mikrostruktur dengan menggunakan SEM/EDX dan XRD. Dari hasil pengukuran densitas dan porositas magnet $\text{BaFe}_{12-x}\text{Mn}_x\text{O}_{19}$ menunjukkan bahwa nilai densitas cenderung menurun dan porositas meningkat sebanding dengan jumlah doping ion Mn. Kondisi optimum dicapai pada suhu sintering 1100°C dengan nilai $x = 0,1$, menghasilkan densitas $= 4,77 \text{ g/cm}^3$ dan porositas $= 15,4\%$. Dari hasil foto SEM/EDX terlihat adanya cacat berupa retakan berbentuk garis dengan lebar $2,05 \text{ \mu m}$ dan berpori yang memiliki diameter sebesar $2,88 \text{ \mu m}$. Dari hasil analisis unsur menunjukkan bahwa kandungan Fe $= 53,11\%$, Ba $= 11,94\%$, O $= 28,97\%$, Al $= 3,38$ dan C $= 2,6\%$ (wt%).

Kata Kunci: Magnet permanen, Barium M-Heksaferit, MnO, sintering, densitas, porositas, mikrostruktur

ABSTRACT

Barium M-Hexaferite permanent magnet doped by Mn ions have been made with the variation of $x = 0.1 - 1.5$ (mol%) by using mechanical alloying method. The preparation raw material process of Barium Carbonate (BaCO_3), Hematite (Fe_2O_3) and Manganese Oxide (MnO) were done by wet milling mixing for 20 hours using distilled water. Then it is dried at a temperature of 100°C for 24 hours, calcined at a temperature of 1000°C for 2 hours, and analyzed by using XRD. The results of XRD analysis showed that the crystal structure of Barium M-Heksaferit ($\text{BaFe}_{12-x}\text{Mn}_x\text{O}_{19}$) has been formed with the lattice parameters of $a = b = 5.865$, $c = 23.099 \text{ \AA}$ and $V = 794,25 \text{ \AA}^3$. The calcined powders were then crushed and sieved to pass the size of 400 mesh, mixed with 3% wt adhesive Celuna WE-518 and compacted with a pressure of 1.3 tonf/cm^2 to form a pellet with a diameter of 20 and a thickness of 10 mm. The samples that have been pressed, then sintered using a Thermolyne electric furnace with a heating rate of $30^\circ\text{C}/\text{minutes}$ and the variation of temperature sintering are 1100°C , 1150°C , and 1200°C and hold for 2 hours. The characterizations was conducted on the physical properties, such as density and porosity by using Archimedes method, shrinkage using a dilatometer, morphology and microstructure analysis using SEM/EDX and XRD. Based on the density and porosity measurement, it can be concluded that $\text{BaFe}_{12-x}\text{Mn}_x\text{O}_{19}$ magnet have a density values that tend to decrease and the porosity values increase as the increasing of doping Mn ions. The optimum condition is achieved at 1100°C with a value of $x = 0.1$, where the density value $= 4.77 \text{ g/cm}^3$ and the porosity $= 15.4\%$. Based on the photos of SEM/EDX, it is obtained a line crack defect with a width of 20.96 \mu m and pores with a diameter of 42 \mu m . The elemental analysis shows that the compound of Fe $= 53,11\%$, Ba $= 11,94\%$, O $= 28,97\%$, Al $= 3,38$ dan C $= 2,6\%$ (wt%).

Keywords: Permanent magnet, Barium M-Heksaferit, MnO, sintering, density, porosity, microstructure

I. PENDAHULUAN

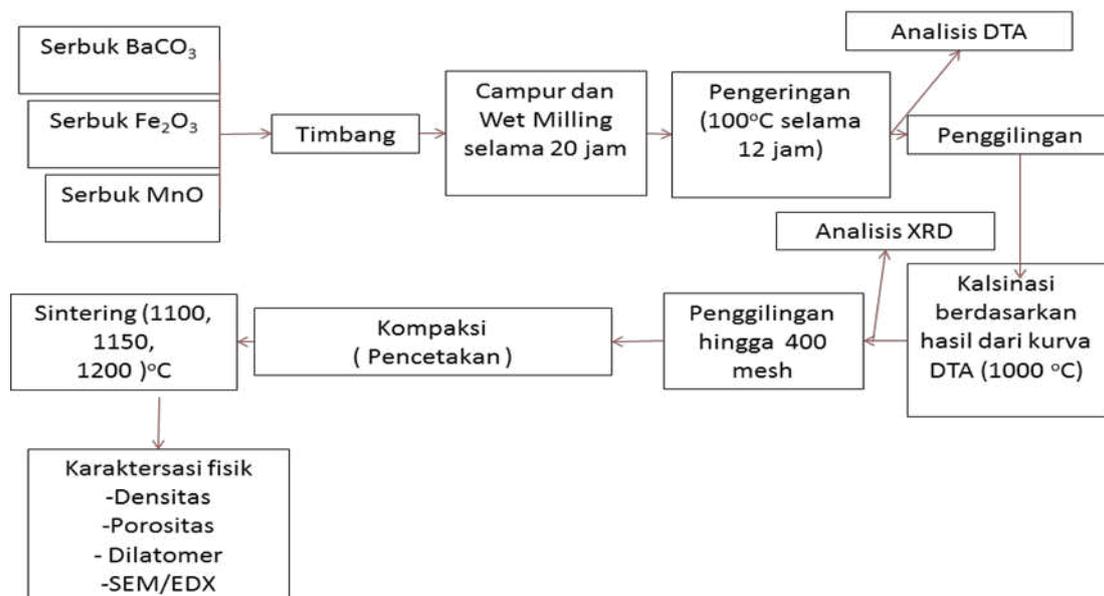
Material magnet oksida $\text{BaO}(\text{6Fe}_2\text{O}_3)$ merupakan jenis keramik yang banyak dijumpai disamping material magnet lain, seperti $\text{SrO} \cdot 6(\text{Fe}_2\text{O}_3)$ dan $\text{PbO} \cdot 6(\text{Fe}_2\text{O}_3)$. Pengembangan material $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (M-type ferit hexagonal) sebagai bahan magnetik sangat dibutuhkan dalam berbagai bidang aplikasi, karena memiliki karakteristik : temperatur Curie yang relative tinggi, nilai koersifitas, saturasi magnetik dan anisotropi magnetik tinggi pula serta stabilitas kimia yang sangat baik [1-5]. Salah satu aplikasi material magnet permanen barium heksaferit yang menjadi perhatian saat ini adalah sebagai alat penyerap gelombang mikro (RAM). Hal ini karena sifat listrik dan magnetik dari material ferrimagnetik ini sangat mendukung dalam aplikasi tersebut, yaitu memiliki permeabilitas dan resistivitas yang tinggi [6].

Material oksida magnet tersebut memiliki sifat mekanik yang sangat kuat dan tidak mudah terkorosi. Namun material tersebut sangat rentan terhadap proses perlakuan panas sehingga mempunyai pengaruh yang cukup signifikan dan memiliki dampak negatif terhadap sifat kemagnetan, tetapi proses ini tidak dapat dihindarkan dalam proses metallurgi serbuk untuk membuat magnet menjadi kuat dan dapat dimanfaatkan dalam teknologi [7]. Pada penelitian ini akan membahas tentang pengaruh doping Mn dan temperatur sintering terhadap karakteristik fisis dalam mensistesis *hard magnet* menjadi *soft magnet*. Melalui metoda *solid state doping* sifat magnetik barium ferit, ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) dapat dioptimalkan untuk aplikasi RAM. Reaksi biasanya menggunakan bahan Al, Co, Zr, Mn, Zn, Sm dan Sn untuk pembuatan barium berbasis hexaferit, sebagai pengganti ion Fe [9-12]. Namun dalam peneitian ini hanya menggunakan ion Mn sebagai doping ion Fe.

Ghasemi et.al, (2006) menganalisis dan mengkarakterisasi sifat elektromagnetik barium heksaferit yang diberikan bahan *doping* sebagai penyerap gelombang mikro. Hasil yang didapat menunjukkan bahwa ukuran butir ferit hampir tergantung pada komposisi kimia. Sampel tersebut memiliki *suseptibility* dan permeabilitas yang lebih tinggi dan dapat diaplikasikan sebagai penyerap gelombang mikro pada frekuensi 15GHz. Kemampuan material tersebut untuk menyerap gelombang mikro (*reflection loss*) yang tinggi pada ketebalan 1.8 mm dengan mensubsitusikan ion Mn, Cu dan Ti pada barium ferit [13].

III. METODOLOGI

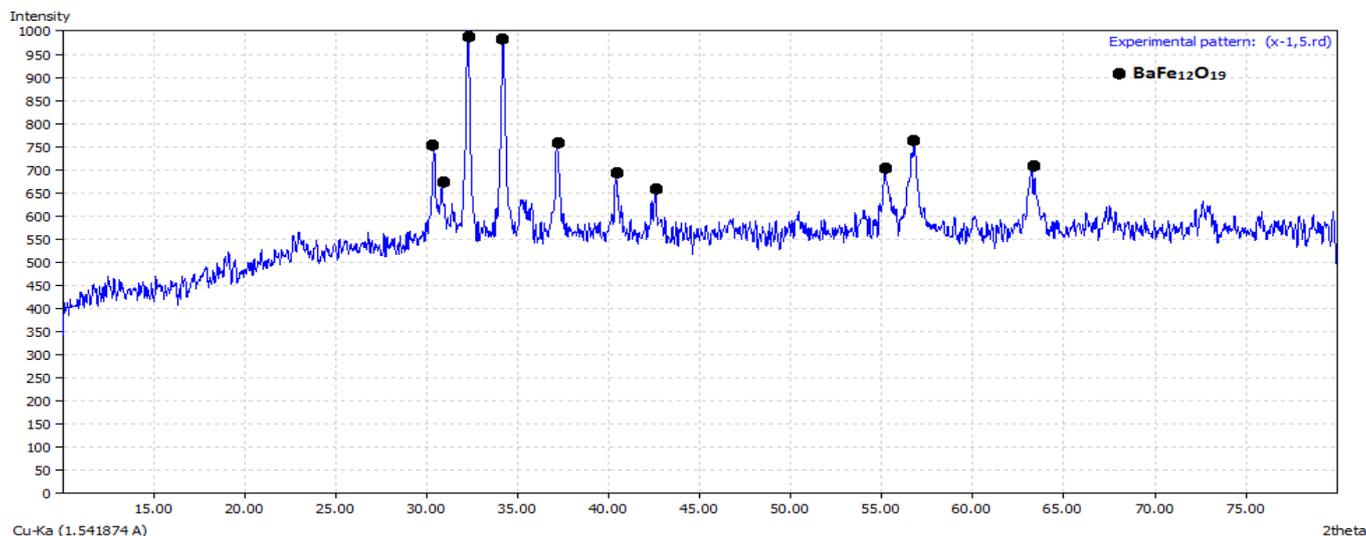
Preparasi sampel bahan magnet barium heksaferit yang di doping dengan ion Mn menggunakan bahan baku serbuk BaCO_3 , Fe_2O_3 dan MnO, dicampur dengan metoda *mechanical alloying* secara basah (*wet milling*). *Mixing* dilakukan dengan menggunakan *ballmill* dengan media aquades selama 20 jam. Setelah itu serbuk dikeringkan pada suhu 100°C selama 24 jam, dan dikalsinasi pada suhu 1000°C . Serbuk yang telah dikalsinasi tersebut kemudian digerus dan diayak hingga lolos 400 mesh ($38\ \mu\text{m}$), dicampur dengan perekat polimer Celuna WE – 518 sebanyak 3% (berat), dan dicetak dengan tekanan $1,3\ \text{tonf/cm}^2$. Proses selanjutnya adalah sintering pada suhu 1100, 1150 dan 1200°C (ditahan selama 2 jam). Uji karakterisasi yang dilakukan meliputi : uji XRD, uji densitas dan porositas, uji susut dengan dilatometer dan analisa morfologi dan unsur menggunakan SEM/EDX. Diagram alir proses pembuatan Barium M-Heksaferit dan analisisnya diperlihatkan pada gambar 1.



Gambar1. Diagram alir proses pembuatan Barium M-Heksaferit dan analisisnya

IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil XRD pada Gambar 2 menunjukkan bahwa telah terbentuk fasa tunggal kristalin dari barium heksaferit yang telah dikalsinasi pada suhu 1000 °C dengan penahanan (*holding time*) selama 2 jam. Hasil pengamatan menunjukkan bahwa $BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$ memiliki struktur *hexagonal – closed packed* dengan parameter kisi $a = b = 5,865\text{\AA}$, $c = 23,099\text{\AA}$ dan volume sel = $794,25\text{\AA}^3$. Ternyata dari hasil yang diperoleh terdapat perubahan yang cukup signifikan dilihat dari nilai konvensional ($a=b= 5,8573\text{\AA}$ dan $c= 23,258\text{\AA}$) [14]. Penurunan parameter kisi ini disebabkan karena adanya perbedaan ukuran atom antara Fe dengan atom Mn [6].

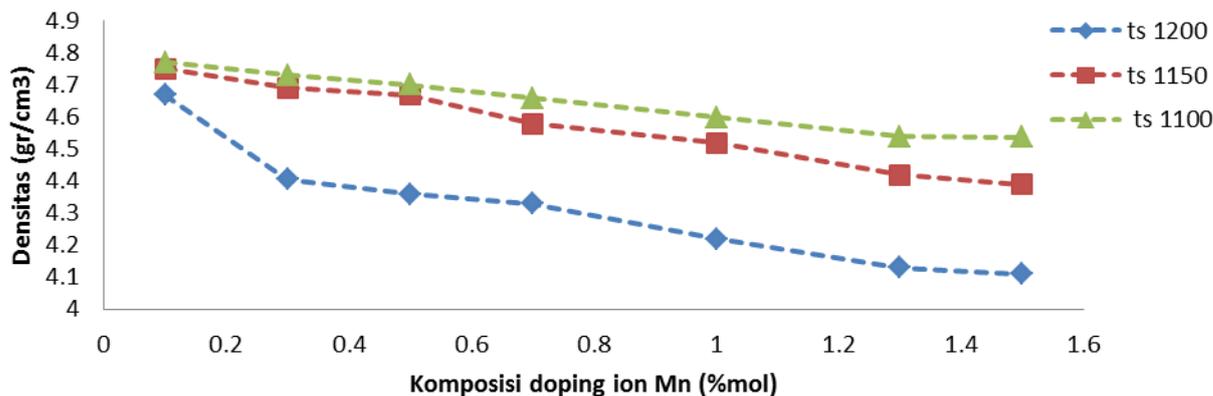


Gambar2. Hasil XRD magnet barium heksaferit yang disubstitusi dengan bahan mangan oksida (MnO)

Dari Gambar 3, menunjukkan perubahan nilai densitas sebagai fungsi komposisi doping ion Mn. Dari hasil tersebut terlihat adanya korelasi berbanding terbalik antara penambahan ion Mn dengan nilai densitas. Variasi suhu sintering juga memiliki pola yang sama, artinya semakin tinggi suhu sintering nilai densitas semakin menurun. Kondisi optimum dicapai pada suhu sintering 1100 °C dengan menghasilkan densitas $4,77\text{ g/cm}^3$ pada komposisi $x = 0,1$ (mol %). Hal tersebut terjadi karena pada suhu ini terjadi proses densifikasi maksimum. Sedangkan pada suhu 1150 °C dan 1200 °C terjadi penurunan densitas. Hal tersebut disebabkan terjadinya perbesaran butir pada saat proses sintering. Perbesaran tersebut memicu terjadinya cacat berupa retakan (*cracking*) dan bertambahnya ukuran pori pada sampel.

Hasil penelitian Didieket.al, (2012) menyatakan selama proses reaksi dan densifikasi dapat terjadi proses sintering reaktif yang biasanya menghasilkan porositas tambahan. Berbagai reaksi yang mungkin terjadi pada saat sintering reaktif seperti reaksi oksidasi - reduksi dan tahap transisi. Dengan cara ini reaksi yang disebabkan oleh kotoran, aditif atau produk lainnya terbentuk selama proses sintering [15].

Berdasarkan hasil penelitian Agus Sukarto (2013) menyatakan bahwa semakin tinggi suhu penahanan, kecepatan penyusutan juga semakin tinggi. Kecepatan penyusutan dimungkinkan mempengaruhi karakteristik fisik dari produk hasil sintering, dimana distribusi suhu *sinter* yang kurang merata dapat menimbulkan tegangan *residu* yang menjadi sumber keretakan [16].

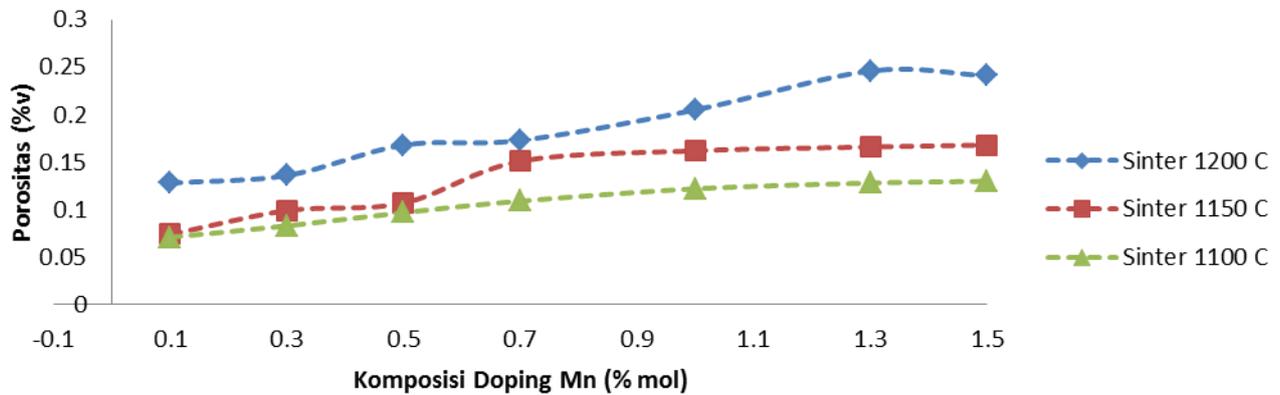


Gambar3. Grafik densitas barium heksaferit yang

Disubstitusi dengan bahan mangan oksida (MnO) dan variasi suhu sintering (1100,1150dan1200) °C.

Pengukuran densitas dan porositas merupakan salah satu karakteristik fisis yang diperlukan terutama untuk mendukung data spesifikasi teknis benda jadi bahan padatan hasil proses maupun green body sebelum diproses.

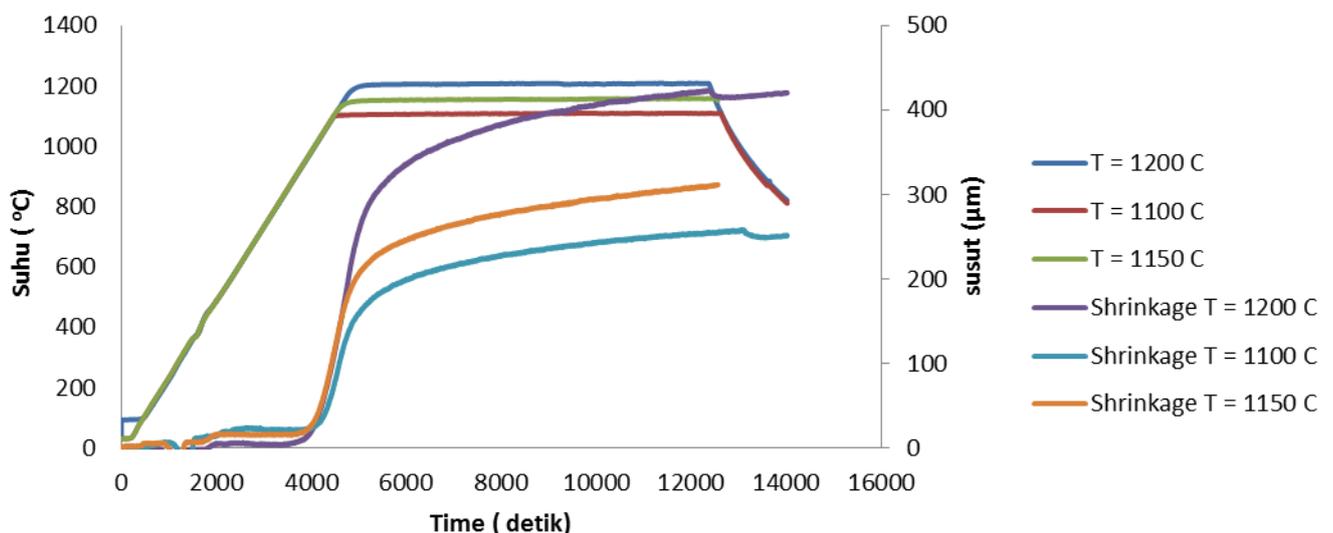
Dari Gambar 4 terlihat bahwa nilai porositas berbanding terbalik dengan komposisi doping ion Mn. Nilai porositas tertinggi pada pembuatan barium heksaferit ($BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$) adalah terdapat pada penambahan doping ion Mn yang paling banyak (1,5% mol). Suhu 1200 °C merupakan suhu tertinggi pembentukan porositas terbesar pada sampel, karena adanya efek coarsening dan pelepasan atau terjadinya perubahan fasa.



Gambar4.Hubungan porositas barium heksaferit ($BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$) terhadap komposisi doping ion Mn

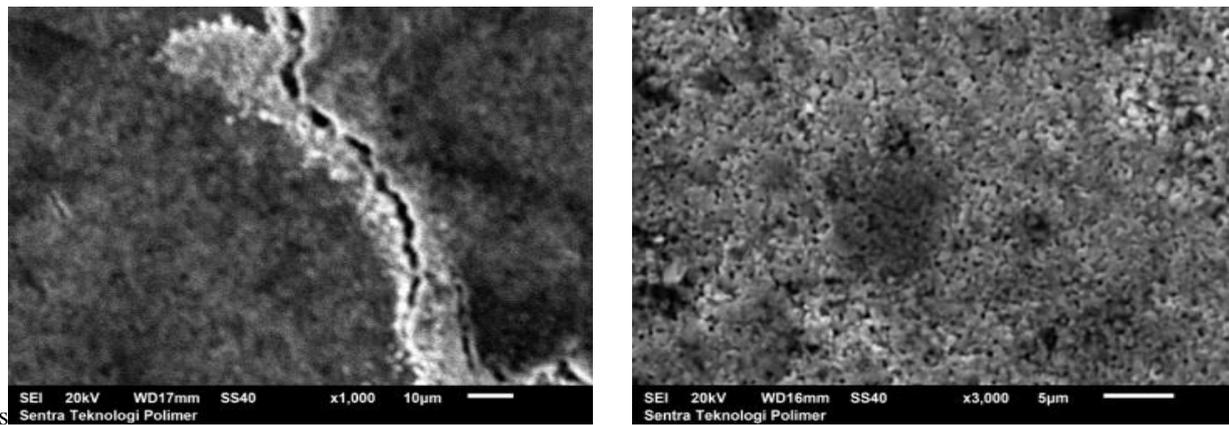
Dari Gambar5, hasil analisis penyusutan dengan dilatometer diketahui bahwa waktu penahanan (holding time) akan semakin singkat untuk mencapai kondisi maksimum seiring dengan kenaikan suhu sintering. Hasil analisis didapatkan pada suhu sintering 1100, 1150 dan 1200°C hanya memerlukan waktu penahanan masing – masing sebesar 93,89 dan 85 menit untuk mencapai titik jenuh (susut maksimum). Berdasarkan penahan waktu sintering (*holding time*) yang dilakukan selama 2 jam juga diduga sebagai salah satu penyebab turunnya proses densifikasi.

Berdasarkan penelitian sebelumnya oleh Asyer Paulus (2007) menganalisa tentang pengaruh variasi holding time 30, 60, dan 90 menit pada suhu sinter 1000 °C dalam pembuatan iron soft magnetic dari serbuk besi. Hasil yang diperoleh pada kondisi suhu sintering 1000 °C dan holding time 30 menit, iron soft magnetic memiliki induksi remanensi = 8,5 gauss dan pada saat holding time 90 menit induksi remanensi = 6 gauss. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa proses densifikasi pada holding time 30 menit lebih baik jika dibandingkan dengan holding time 90 menit[17].



Gambar 5.Hubung anantara holding time terhadap suhu sintering dari bahan $BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$

Hasil pengujian SEM/EDX diperlihatkan seperti pada Gambar 6a Dari gambar tersebut menunjukkan terdapatnya crack (kerusakan/retakan) berbentuk garis dengan lebar 2,05µm pada morfologi permukaan sampel. Sedangkan Gambar 6b pada permukaan sampel menunjukkan terdapatnya distribusi dan ukuran pori berdiameter 2,88 µm



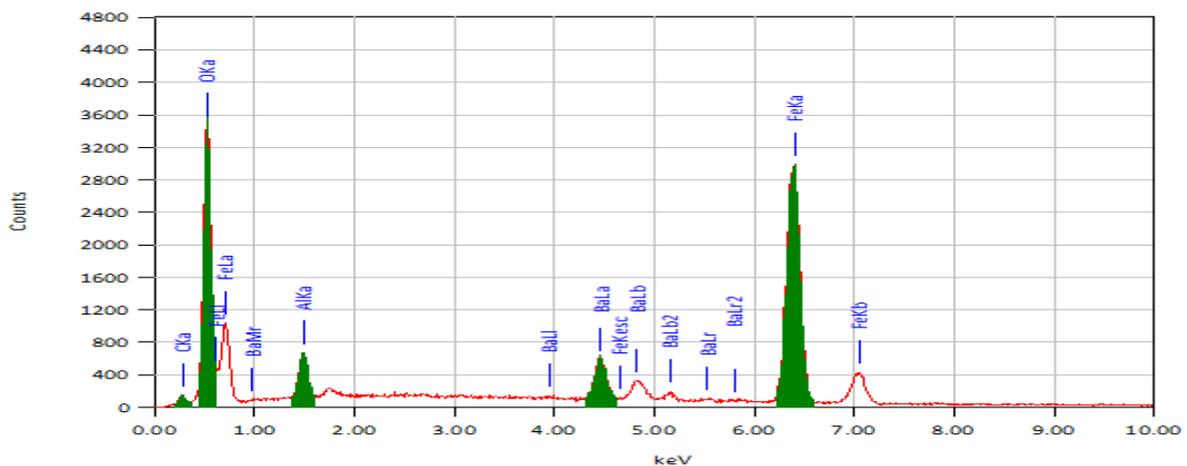
(a)

(b)

Gambar 6.a) Gambar retakan pada morfologi permukaan sampel $BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$ (perbesaran 1000x). b) distribusi dan ukuran pori pada permukaan sampel (perbesaran 3000x).

Dari pengujian SEM/EDX juga didapatkan hasil komposisi unsur yang dapat dilihat pada Gambar 7 dari hasil tersebut ternyata dalam pembentukan magnet barium heksaferit terdapat unsur Fe = 53,11%, Ba = 11,94%, O = 28,97%, Al=3,38 dan C=2,6% (wt%). Munculnya unsur Al pada sampel bersumber dari bola-bola keramik alumina pada saat proses ballmill sebagai pengotor, dan unsur C berasal dari sisa - sisa hasil pembakaran.

Cho et al., (2000) dan Sone et al., (2001) melakukan penyelidikan dan menunjukkan bahwa bahan pengotor dalam homogeneities alumina juga akan menghasilkan pertumbuhan butir tidak normal. Jadi, untuk mendapatkan sifat material yang diinginkan maka struktur mikro harus dapat dikontrol dengan baik. Hal ini karena perubahan mikrostruktur adalah masalah utama di bidang teknik material. [18-19].



Gambar 7. Komposisi unsur pada $BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$

V. KESIMPULAN

Barium heksaferit ($BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$) dengan substitusi ion Mn dengan metoda *mechanical alloying* telah berhasil dibuat. Telah diperoleh fasa tunggal $BaFe_{12-x}Mn_xO_{19}$ yang memiliki struktur *hexagonal – closed packed* dengan parameter kisi $a = b = 5,865\text{\AA}$, $c = 23,099\text{\AA}$ dan volume sel = $794,25\text{\AA}^3$. Suhu sintering optimum $1100\text{ }^\circ\text{C}$ dengan nilai $x = 0,1$ (mo%) menghasilkan nilai densitas $4,77\text{ gr/cm}^3$ dan porositas 15,4%. Penambahan ion Mn dan suhu sintering menyebabkan penurunan nilai densitas dan memicu terjadinya *cracking* dan pori pada permukaan sampel.

VI. DAFTAR PUSTAKA

- [1] V.N. Dhage, M.L. Mane, A.P. Keche, C.T. Birajdar, K.M. Jadhav, Phys. B: Condens. Matter 406 (2011) 789.
- [2] A.S. Dehlinger, M. Le Berre, B. Canut, J.P. Chatelon, D. Albertini, S. Perrot, D. Givord, J.J. Rousseau, J. Magn. Magn.Mater.322 (2010) 3293.
- [3] U. Topal, H.I. Bakan, J. Eur. Ceram. Soc. 30 (2010) 3167.
- [4] H. Xu, W. Zhang, B. Peng, W. Zhang, Appl. Surf. Sci. 257 (2011) 2689.
- [5] B. Birs " oz, A. Baykal, H. S" ozeri, M.S. Toprak, J. Alloys Compd. 493 (2010) 481.
- [6] Priyono. Karakteristik Magnetik dan Absorpsi Gelombang Mikro Material Magnet Berbahan Dasar Barium Hexaferite. (2010).Universitas Indonesia: Jakarta.

- [7] Priyono, Arianto, Wibowo. dan Nur. Preparasi Serbuk Barium Ferrite Untuk Menghasilkan Medan Koersive Tinggi : Tinjauan pada Proses Sintering. ISSN : 1410 – 9662 Vol. 4, No.2, (2001) Hal 45 – 48.
- [9] Y. Liu, M.G.B. Drew, J. Wang, M. Zhang, Y. Liu, J. Magn. Mater. 322 (2010) 366.
- [10] Y. Liu, M.G.B. Drew, J. Wang, M. Zhang, Y. Liu, J. Alloys Compd. 322 (2010) 814.
- [11] J. Xu, H. Zou, H. Li, G. Li, S. Gan, G. Hong, J. Alloys Compd. 490 (2010) 552.
- [12] L. Wang, J. Song, Q. Zhang, X. Huang, N. Xu, J. Alloys Compd. 481 (2009) 863.
- [13] A. Ghasemi, X. Liu, E. I. Morisako, J. Magn. Mater. 316 (2007) e105.
- [14] Priyono K, Musni Ahyani, prosiding pertemuan ilmiah XXIV HFI Jateng, (2010) 1-4.
- [15] R. Didiek, Sukarsono. Prosiding Nasional ke –13 Teknologi dan Keseamantan PTN serta fasilitas Nukir. (2007) ISSN: 0854-2910
- [16] Agus, Sukarto. Pengembangan Dilatometer Untuk Analisa Karakteristik Sintering Magnet Basis Ferrite. (2013). Pusat Penelitian Fisika - LIPI : Jakarta.
- [17] Asyer, Paulus. (2007). Pengaruh Tekanan Kompaksi dan Waktu Penahanan Temperatur Sintering Terhadap Sifat Magnetik dan Pada Pembuatan Iron Soft Magnetic dari Serbuk Besi. Institusi Teknologi Sepuluh Nopember : Surabaya.
- [18] Cho, S.-J., Kim, K.H., Kim, D.J and Yoon, K.J. Abnormal Grain Growth at the Interface Centrifugally Cast Alumina Bilayer during Sintering, *J. Am. Ceram. Soc.*, (2000). No. 83, pp. 1773-1776.
- [19] Sone, T.-W, Han, J.-H., Hong, S.-H and Kim, D.-Y. (2001). Effect of Surface Impurities on the Microstructure Development during Sintering of Alumina. *J. Am. Ceram. Soc.*, (2001). Vol. 84, pp. 1386-1388.