

SINTESIS DAN KARAKTERISASI MATERIAL MAGNETIK *BARIUM HEXAFERRITE* TERSUBSTITUSI MENGGUNAKAN TEORI SOL- GEL UNTUK APLIKASI SERAPAN GELOMBANG MIKRO PADA FREKUENSI X-BAND

Sulistyo, Indras Marhaendrajaya dan Priyono

Laboratorium Fisika Material Jurusan Fisika FSM Universitas Diponegoro

Abstract

The Barium hexaferrite well known by permanen magnet which have prime properties for microwave application. The properties of Barium hexaferrite modified by substitution of Mn-Co and Ti have been investigated. Material was produced by sol-gel processing. Analysis of composition, crystal structure, refinement, microstructure and grain size, hysteresis and microwave characteristic respectively done by means of EDX, XRD, GSAS, SEM, magnetometers and wave guide at frequency 1-17 GHz. The formed crystal structure were hexagonal with the grain size is 500 nm, saturation magnetisation M_s , field of coercivities H_c , and remanen induction respectively is 0.32 T, 3.8 kA/m and 0.04 T. The substitution of Fe^{3+} ion, resulted on decreasing the value of M_s , H_c , B_r , and range of microwave absorbtion respectively. The maximum absorbtion of microwave occured on frequency 13.6 GHz.

Keywords : barium hexaferrite, permanen magnet, sol-gel method, microwave

Abstrak

Barium hexaferrite merupakan magnet permanen yang memiliki sifat-sifat unggul untuk aplikasi pada gelombang mikro. Sifat karakteristik barium hexaferrite yang dimodifikasi dengan substitusi ion Mn-Co dan Ti telah diamati. Sintesis dari ferrit dilakukan dengan metode sol-gel. Analisis komposisi, struktur kristal, refinement, mikrostruktur dan ukuran bulir, histerisis dan karakteristik gelombang mikro masing-masing menggunakan EDX, XRD, GSAS, SEM, magnetometer dan network vector analyzer pada frekuensi 1-17 GHz. Struktur kristal yang terbentuk heksagonal dengan ukuran bulir 0,34 μm mempunyai nilai saturasi magnetisasi M_s , medan koersivitas H_c , dan induksi remanen B_r masing-masing adalah 0,32 T, 3,8 kA/m dan 0,04 T. Penggantian ion Fe^{3+} menurunkan nilai M_s , H_c , B_r , dan daerah serapan gelombang mikro. Penyerapan efektif gelombang mikro terjadi pada frekuensi 13,6 GHz.

Kata kunci: barium hexaferrite, magnet permanen, sol-gel, gelombang mikro

Pendahuluan

Penggunaan perangkat elektronik dewasa ini jumlahnya semakin meningkat, mulai dari perangkat telepon portable, handphone [1], local area network (LAN), intelligent transport system (ITS) [2], dan masih banyak yang lainnya. Hal ini berakibat semakin banyak gelombang elektromagnetik dalam bentuk radiasi gelombang mikro yang teradiasi ke lingkungan. Radiasi

gelombang elektromagnetik yang melebihi batas dosis yang diijinkan (*safe limit*) akan mengganggu lingkungan terutama kesehatan manusia [1].

Jumlah radiasi gelombang mikro ke lingkungan perlu untuk dikurangi. Untuk tujuan tersebut sekarang telah dikembangkan teknologi penyerapan terhadap radiasi gelombang mikro ke lingkungan. Jenis material tertentu dapat digunakan untuk teknologi tersebut.

Material yang sering digunakan adalah golongan ferrit, seperti *barium hexaferrite*, BaM yang tersubstitusi, dan masih banyak yang lainnya.

Keefektifan terhadap kamufase radar bergantung pada seberapa besar energi gelombang elektromagnetik yang diserap oleh material *absorber* yang digunakan. Faktor dominan yang mempengaruhi performa material *absorber* adalah sifat magnetik dan dielektriknya. *Barium hexaferrite* yang memiliki sifat *lossy* material, mempunyai faktor *loss* dielektrik dan *loss* magnetik yang tinggi sehingga membuat material tersebut mempunyai sifat yang baik untuk absorpsi gelombang elektromagnetik. *Barium hexaferrite* memiliki anisotropi uniaxial. Magnetisasi membuat bulir-bulirnya terorientasi secara teratur sepanjang sumbu-c. Medan anisotropi yang tinggi membuatnya sesuai untuk digunakan pada frekuensi yang lebih tinggi [3].

Barium hexaferrite sebagai magnet ferrit, disamping memiliki permeabilitas, permitivitas dan magnetisasi spontan yang relatif tinggi, juga tersusun oleh komponen-komponen oksida sehingga juga memiliki resistivitas listrik yang tinggi atau isolator yang baik. Kombinasi sifat intrinsik antara sifat magnetik dan sifat listrik dari ferrit seperti itu menempatkan material magnet ferrit sebagai penyanggah gelombang-gelombang mikro termasuk gelombang dengan frekuensi yang digunakan dalam RADAR [4].

Ion-ion *ferric* pada barium hexaferrite sebagian dapat disubstitusi oleh ion-ion divalen seperti Co^{2+} , Ti^{4+} dan Mn^{2+} . Substitusi dapat mengubah anisotropi magnetik dari uniaxial menjadi planar. Selain itu, substitusi juga mengubah permitivitas dielektrik dan permeabilitas magnetiknya [3].

Teknologi *microwave absorber* tidak hanya berguna untuk hal-hal yang

tersebut di atas. Sekarang, teknologi tersebut juga digunakan dalam bidang kemiliteran seperti untuk tujuan mereduksi tampang lintang radar (*radar cross section*), dan kamufase pesawat tempur dan misil dari deteksi radar [5].

Metode Percobaan

Bahan-bahan yang perlukan ditimbang sesuai dengan stoikiometri dari fasa $\text{BaFe}_{2-2x}(\text{MnCo})_x\text{Ti}_x\text{O}_{19}$ untuk $x = 1,5$. Semua bahan kemudian dicampur dan ditambahkan dengan asam sitrat. Campuran tersebut dimilling menggunakan HEM supaya menjadi larutan asam yang homogen. Penambahan basa kuat NH_4OH bertujuan supaya terjadi pengendapan dari ion-ion logam-logam yang diperlukan pada pH antara 7 – 9.

Larutan yang terbentuk kemudian dievaporasi secara perlahan dengan suhu 180°C sampai larutan menjadi serbuk kering dengan warna coklat kemerahan. Serbuk hasil evaporasi kemudian *difiring* pada temperatur 450°C bertujuan untuk memecah barium nitrat menjadi BaO dan melepaskan gas-gas hasil reaksi dari larutan. Pembentukan fase kristal barium heksaferrit dilakukan dengan kalsinasi pada suhu 850°C dan suhu 1050°C .

Stoikiometri, mikrostruktur, kristalisasi, kemagnetan dan karakteristik gelombang elektromagnetik dilakukan masing-masing dengan SEM EDX, *X-Ray Diffractometer* (XRD) dan *General Structure Analysis Sistem* (GSAS), magnetometer dan *wave guide network vektor analyzer* pada frekuensi 1-17 GHz.

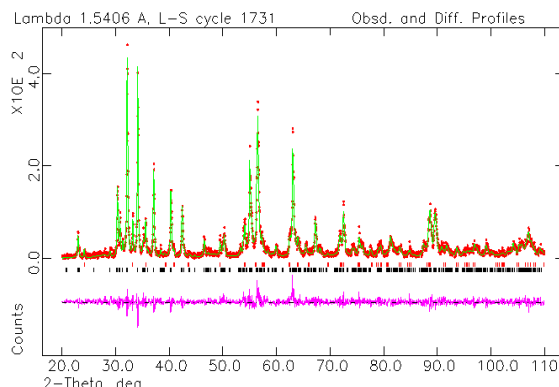
Hasil Dan Pembahasan

Hasil *refinement* menggunakan *software* GSAS-EXPGUI menunjukkan bahwa parameter *chi square* untuk $\text{BaFe}_9(\text{MnCo})_{1,5}\text{Ti}_{1,5}\text{O}_{19}$ memberikan nilai pencocokan yang baik. Proses

refinement dihentikan ketika parameter *chi square* menunjukkan nilai yang kecil yaitu 1,242. Kecilnya nilai *chi square* menggambarkan telah tercapai suatu kesesuaian yang bagus antara sampel yang *dirrefinement* dan perhitungan *software* GSAS.

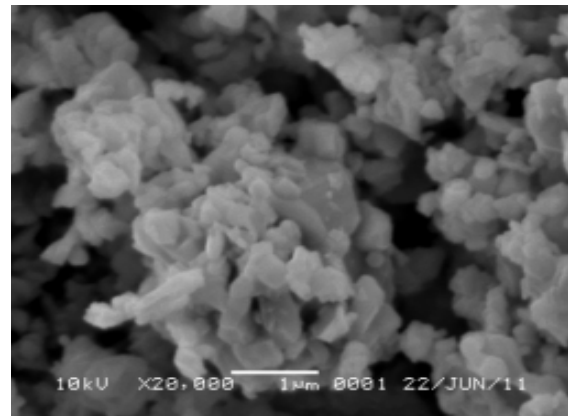
Hasil *powplot* menggunakan EXPGUI dapat dilihat pada gambar 1. Kurva bagian atas merupakan hasil pencocokan antara kurva eksperimen dan kurva teoritis, sedangkan bagian bawah merupakan kurva hasil residu.

Kurva warna merah merupakan kurva yang diperoleh dari data observasi. Kurva warna hijau merupakan kurva teoritis hasil penghitungan GSAS yang didapat dari data COD (*Crystallography Open Database*). Garis-garis hitam merupakan nilai dari indeks miller. Gambar 1 menunjukkan tingkat kesesuaian yang baik antara kurva observasi dengan kurva teoritis. Hal ini dapat dilihat dengan berhimpitnya kedua kurva tersebut. Fasa yang dominan pada kurva adalah $BaFe_9(MnCo)_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$. Pada kurva residu terlihat semua puncak telah teridentifikasi. Selisih antara kurva observasi dengan kurva teoritis ditunjukkan oleh kurva berwarna pink (kurva residu) jika kurva pink mendekati lurus (linear) berarti kedua pola telah sama.



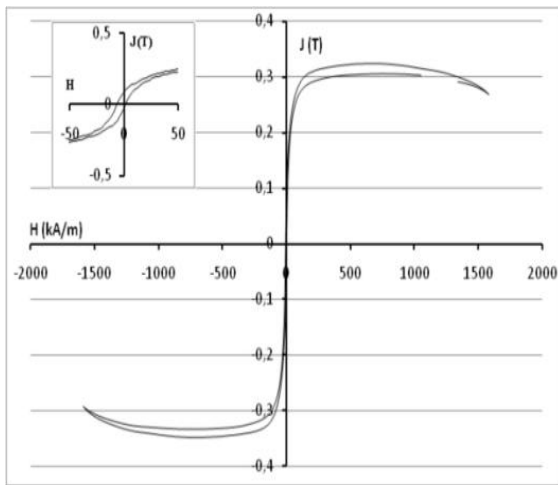
Gambar 1. *Powplot*
 $BaFe_9(MnCo)_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$
 $\chi^2=1,242$; $W_{rp} = 21,54\%$; $R_p = 15,53\%$

Gambar 2 menunjukkan citra SEM dari fase $BaFe_9(MnCo)_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$ pada suhu $850^\circ C$ dengan perbesaran 20.000 kali. Pada gambar tersebut menunjukkan bahwa telah terbentuk kristal-kristal berbentuk heksagonal dengan ukuran bulir rata-rata sekitar $0,34 \mu m$. Diduga, pada suhu ini sudah mulai terbentuk sebagian fase $BaFe_9(MnCo)_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$. Menurut Paimozd et al. (2008), pembentukan fase primer mulai terjadi pada suhu di atas $800^\circ C$.



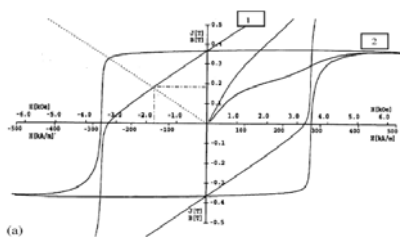
Gambar 2 Citra SEM dari fase sampel $BaFe_9(MnCo)_{1,5}Ti_{1,5}O_{19}$ pada suhu $850^\circ C$

Morfologi kristal yang ditunjukkan oleh gambar 2 terbentuk adanya aglomerasi dan *porhus*. Aglomerasi yang terbentuk terjadi karena kuatnya gaya elektrostatis pada partikel-partikel sampel [7]. *Porhus*, terjadi karena pelarut yang digunakan adalah asam sitrat. Asam sitrat dalam reaksi pemanasan akan menghasilkan gas CO maupun CO_2 sehingga meninggalkan *porhus* pada morfologi kristal. *Porhus* akan menyebabkan difusi atom menjadi sulit dan energi thermal banyak yang hilang sehingga keduanya akan mengurangi laju pertumbuhan partikel selama proses pemanasan [8].

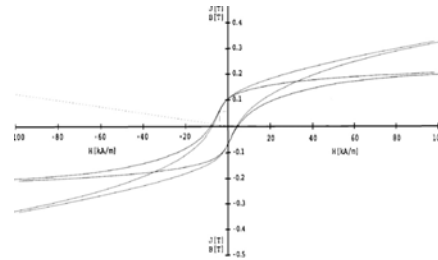


Gambar 3 Grafik kurva histerisis H-J dari $\text{BaFe}_9(\text{MnCo})_{1.5}\text{Ti}_{1.5}\text{O}_{19}$ dengan $J = 4\pi M$

Gambar 3 menunjukkan Grafik histerisis H-J dari $\text{BaFe}_9(\text{MnCo})_{1.5}\text{Ti}_{1.5}\text{O}_{19}$. Nilai B_r dan H_c yang diperoleh masing-masing adalah 0,04 Telsla dan 3,8 kA/m dan nilai saturasi magnetik M_s adalah 0,32 Tesla. Besarnya nilai tersebut telah sesuai dengan referensi bahwa substitusi ion Mn-Co dan Ti menyebabkan turunnya nilai induksi remanen dan koersivitas dari *barium heksaferrite*.



(a)



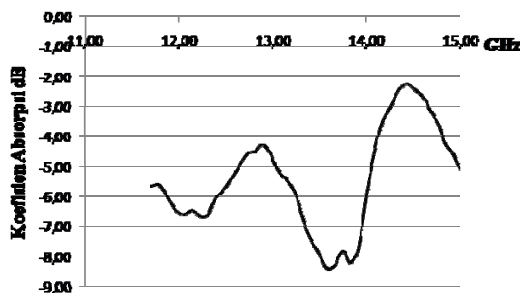
(b)

Gambar 4 Grafik histerisis H-J dari
(a) $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$
(b) $\text{BaCo}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Ti}_{1.0}\text{Fe}_{10}\text{O}_{19}$
dengan $J = 4\pi M$

Menurunnya nilai koersivitas menyebabkan turunnya anisotropi kristal. Koersivitas *barium hexaferrite* murni tanpa tersubstitusi besarnya adalah 258,7 kA/m [9] seperti yang ditunjukkan oleh gambar 4, sedangkan koersivitasnya setelah tersubstitusi oleh Mn-Co dan Ti turun drastis menjadi 3,8 kA/m seperti pada gambar 5. Penurunan nilai koersivitas membuat grafik histerisis menjadi lebih ramping daripada kurva histerisis *barium hexaferrite* yang tidak tersubstitusi. Semakin besar konsentrasi ion pensubstitusi (Mn, Co dan Ti) membuat nilai koersivitas semakin kecil. Hal ini ditunjukkan oleh gambar 4.6a yaitu grafik histerisis dari fase $\text{BaCo}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Ti}_{1.0}\text{Fe}_{10}\text{O}_{19}$ yang mempunyai nilai medan koersivitas sebesar 7,9 kA/m sedangkan pada gambar 5 yang merupakan grafik histerisis dari fase $\text{BaFe}_9\text{Mn}_{0.75}\text{Co}_{0.75}\text{Ti}_{1.5}\text{O}_{19}$, mempunyai nilai medan koersivitas sebesar 3,8 kA/m.

Turunnya nilai magnetisasi, dari 0,48 Tesla [4] menjadi 0,32 Tesla, disebabkan oleh adanya substitusi ion-ion Mn-Co dan Ti pada ion Fe^{3+} yang menyebabkan momen magnetik total molekul menjadi berkurang. Menurut Priyono dan Manaf [4] masuknya ion Ti^{4+} menggantikan ion Fe^{3+} pada sisi oktahedral sehingga akan mempengaruhi pada nilai momen magnet totalnya

sedangkan ion Mn dan Co dengan fraksi yang sama menggantikan ion Fe^{3+} pada sisi tetrahedral (Toyoda et al., 2004). Mekanisme magnetisasi yang terjadi lebih didominasi oleh pergeseran dinding domain dan sampel merupakan *soft magnetik* [10], karena nilai medan koersivitas dan *anisotropi* kristal yang rendah.



Gambar 5 Grafik koefisien absorpsi A terhadap frekuensi

Pada gambar 5 menunjukkan bahwa koefisien absorpsi bernilai efektif pada frekuensi 13,6 GHz dengan intensitas koefisien serapan sebesar -8,4 dB.

Perbandingan hasil pada gambar 4 terhadap penelitian yang dilakukan oleh Choopani [9] menunjukkan bahwa dengan konsentrasi ion-ion substitusi yang lebih besar ternyata memberikan dampak frekuensi serapan yang lebih kecil yaitu dari 18,6 GHz dan 14,6 GHz menjadi 13,6 GHz. Fase murni *barium hexaferrite* tanpa tersubstitusi adalah bersifat magnet keras sehingga ia mempunyai koersivitas yang tinggi. Koersivitas yang tinggi menyebabkan energi anisotropi magnetik menjadi tinggi sehingga berpengaruh pada besarnya frekuensi resonansi alami yang menjadi semakin tinggi. Frekuensi resonansi alami yang dimiliki oleh *barium hexaferrite* tanpa substitusi sekitar 47,6 GHz [10]. Substitusi ion Mn, Co dan Ti dapat menurunkan nilai koersivitas *barium hexaferrite* sehingga nilai energi anisotropi magnetik dan frekuensi resonansi alami juga menjadi semakin kecil. Kecilnya nilai koersivitas membuat

grafik histerisis magnetik menjadi lebih ramping sebagaimana gambar 3. Hal ini menunjukkan bahwa substitusi ion Mn, Co dan Ti membuat *barium hexaferrite* menjadi bersifat *soft magnet*.

Penggantian sebagian ion Fe^{3+} oleh ion-ion Mn, Co dan Ti dapat menggeser daerah serapan menjadi lebih kecil. Penurunan daerah serapan dikarenakan oleh nilai koersivitas $\text{BaFe}_9\text{Co}_{0,75}\text{Mn}_{0,75}\text{Ti}_{1,5}\text{O}_{19}$ yang kecil sehingga membuat konstanta anisotropi kristal dan frekuensi resonansi alami semakin kecil. Karena medan anisotropi kristal magnetik dengan partikel multiorientasi besarnya sebanding dengan medan koersivitas, maka penurunan nilai koersivitas berpengaruh terhadap nilai resonansi alami yang nilainya juga menjadi semakin kecil.

Kecilnya nilai atenuasi bila dibandingkan terhadap referensi Ghasemi yang mempunyai nilai atenuasi antara 25 – 50 dB [10], diduga karena masih terdapatnya fase sekunder atau *intermediat* yang non heksagonal. Hal ini ditunjukkan dengan masih besarnya R_{wp} dan R_p yang diperoleh dari *refinement* menggunakan *software* GSAS. Fase non heksagonal ini diduga memiliki frekuensi serapan tidak pada range frekuensi diuji sehingga intensitas serapan yang diperoleh kecil.

Kesimpulan

Dari hasil penelitian yang telah didiskusikan di atas dapat diambil kesimpulan bahwa $\text{BaFe}_9(\text{MnCo})_{1,5}\text{Ti}_{1,5}\text{O}_{19}$ dapat sintesis dengan metode sol-gel pada suhu 1050 °C. Substitusi ion Mn, Co, dan Ti mengakibatkan meningkatnya ukuran konstanta kisi kristal karena perbedaan jari-jari ionik antara ion Mn, Co, Ti dan Fe. Masuknya ion Mn, Co dan Ti juga mengakibatkan turunnya nilai magnetisasi total dan koersivitas sehingga daerah serapan gelombang mikro juga bergeser ke daerah X-band.

Daftar Pustaka

- [1] Karkirde, A., Sinha, B. dan Sinha, S.N., 2008, *Development and Characterisation of Nickel-Zinc Spinel Ferrite for Microwave Absorption at 2-4 GHz*, Bull Matter Sci. Vol. 31 No. 5, Indian Academi Science pp 767 -770.
- [2] Ebara, H., Inoue, T. dan Hashimoto, O., 2006, *Measurement Method of Complex Permittivity and Permeability for a Powdered Material Using a Waveguide in Microwave Band*, Science and Technology of Advanced Materials 7(2006)77-83.
- [3] Gurkan, N., 2008, *Studies on Interaction of Electromagnetic Waves With Barium Hexaferrite Ceramics*, Metallurgical and Materials Engineering Department, Middle East Technical University.
- [4] Priyono, K., Manaf, A., 2004, *Subtitusi Mn dan Ti Pada Struktur Fasa Magnetik Barium Hexaferrite Melalui Teknik Pemasukan Mekanik (Mechanical Alloying)*, Indonesian Journal of Materials Science, edisi khusus Oktober, hal: 144-147.
- [5] Meshram, M.R., Nawal K. Agrawal, Sinha, B. dan Misra, P.S., 2002, *A Study on The Behaviour of M-Type Barium Hexagonal Ferrite Based Microwave Absorbing Paints*, Bull. Matter. Sci., Vol. 25, No. 2, pp. 169-173.
- [6] Paimozd, E., Ghasemi, A., Jafari A., Sheikh, H., 2008, *Influence of Acid Catalysts on The Structural and Magnetik Properties of Nanoctystalline Barium Ferrite Prepared by Sol-Gel Method*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 320 (2008) L137-L140.
- [7] Johan, A., Ridwan, Mujamilah, Ramlan, 2007, *Magnetik Nanokristalin Barium Heksaferit (BaO 6Fe2O3) Hasil Proses High Energy Milling*, Indonesian Journal of Materials Science, edisi khusus Oktober, hal: 120-125.
- [8] Ataie, A., Mali, A., 2004, *Influence of the Metal Nitrates to Citric Acid Molar Ratio on the Combustion Process and Phase Constitution of Barium Hexaferrite Particles Prepared by Sol- Gel Combustion Method*, Ceramic International 30, 1979-1983.
- [9] Choopani, S. , Keyhan, N.,Ghasemi, A., Sharbathi, A., Maghsoudi, I., Egbbali, M., 2009, *Static dan Dynamic Magnetic Characteristics of BaCo_{0,5}Mn_{0,5}Ti_{1,0} Fe₁₀O₁₉*, J. Magn. Magn. Mater..
- [10] Ghasemi, A., Saatchi, A., Salchi, M., Hossienpour, A., Marisako, A., Liu, X., 2006, *Influence of Matching Thickness on the Absorption Properties of Doped Barium Ferrites at Microwave Frequencies*, phys. Stat. Vol. (a) 203, No. 2, 358-365.