

## Investigasi Proses Kristalisasi Logam Paduan *Amorphous* $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$

A. Idhil Ismail<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Teknik Mesin, Institut Teknologi Kalimantan

\*a.idhil@itk.ac.id

### Abstract

*Bulk Metallic Glass (BMG) gains attractions as a candidate for future material in various applications due to its physical and mechanical properties. The fundamental characterization of the crystallization of  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  has been performed using in-situ synchrotron radiation technique complemented with differential scanning calorimeter (DSC). The glass transition temperature was detected and the occurrence of two step crystallization found during the process. The existence of  $Mg_2Cu$  and other more complex compound is suggested.*

*Keywords: bulk metallic glass (BMG), synchrotron radiation, crystallization,*

### Abstrak

Logam paduan *Bulk Metallic Glass*(BMG) berbasis Mg mendapatkan perhatian sebagai kandidat material masa depan untuk berbagai aplikasi karena sifat-sifat fisik dan mekanis yang dimiliki. Karakterisasi dasar pada proses kristalisasi  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  telah dilakukan dengan menggunakan teknik in-situ radiasi synchrotron yang dilengkapi oleh metode *differential scanning calorimeter* (DSC). Temperatur *glass transition* telah terdeteksi dan proses kristalisasi dua tahap ditemukan selama proses tersebut. Pertumbuhan kompon  $Mg_2Cu$  menyertai proses kristalisasi disertai oleh kompon-kompon kompleks.

Kata kunci: *Bulk Metallic Glass*(BMG), radiasi synchrotron, kristalisasi

### 1. Pendahuluan

Paduan amorphousous berbasis Mg telah mendapatkan perhatian serius karena berbagai sifat-sifat unggul yang dimiliki oleh logam tersebut. Berbagai penelitian yang dilakukan atas dorongan ekonomi yang kuat disebabkan karena adanya keuntungan-keuntungan yang terkandung dalam logam ini seperti ringan, tahan korosi [1], serta cadangan yang melimpah. Sebagian besar bulk metallic glass (BMG) yang ada dibuat didasarkan pada sistem ternary atau pseudo ternary [2,3] dimana elemen-elemen tambahan atau substitusi ditambahkan ke dalam paduan tersebut, dengan demikian mempelajari

paduan sistem ternary merupakan hal yang penting untuk dilakukan terutama mencari dan menemukan komposisi glass-forming terbaik sebelum melanjutkan penelitian pada paduan dengan elemen yang lebih kompleks. Paduan BMG berbasis Mg, dengan glass forming ability (GFA) yang baik dan temperatur supercooled yang luas telah dikembangkan dengan memadukan dengan berbagai elemen dimana Mg-TM-RE (TM = *Transition Metal*, seperti Ni, Cu, dan Zn), merupakan system yang paling banyak dikembangkan. Beberapa system paduan dari Mg-Cu-RE (RE = rare earth element seperti La, Ce, Er, Gd, Te, Nd, Pr, Dy, Yb, dan Sm) juga telah dikembangkan

[4,5]. Sintesis BMG pertama berhasil dilakukan oleh Inoue [6] dimana paduan logam BMG berbasis Mg-Cu-Y dapat diproduksi dengan baik dimana paduan  $Mg_{65}Cu_{25}Y_{10}$ , juga disebut paduan Inoue, merupakan paduan paling baik karena dapat diproduksi dengan ukuran yang relative besar dengan diameter sekitar 4 mm. laju pendinginan kritis paduan ini diperkirakan sekitar  $50 Ks^{-1}$ . Selain itu para peneliti telah berhasil menunjukkan pengembangan berbagai paduan BMG berbasis Mg seperti yang telah dilakukan oleh Liu dan Lu [7] yang mengkaji pengaruh penambahan sedikit elemen paduan terhadap GFA. Penambahan sejumlah kecil elemen Si akan memperbaiki GFA, dimana tanpa adanya Si, ketebalan logam amorphous hanya mencapai 4 mm yang ditandai dengan munculnya bragg peak di dalam pita difraksi amorphous yang lebar. Akan tetap dengan penambahan 0.5% Si logam BMG mampu mencapai ketebalan 5 mm yang ditandai oleh tidak terlihatnya *bragg peak* tajam yang merupakan ciri sebuah kristal.

Pengembangan lebih lanjut dari BMG dilakukan pada sistem Mg-Cu-Y dimana sebagian atom Cu disubstitusi oleh Zn dan Ag seperti pada paduan  $Mg_{65}Cu_{20}Zn_5Y_{10}$ [8,9], dan  $Mg_{65}Cu_{15}Ag_{10}Y_{10}$  [10]. Hasil percobaan mengindikasikan bahwa penambahan paduan atom yang berdiameter kecil dengan diameter  $< 0.12$  nm seperti Si atau atau besar dengan diameter  $> 0.16$  nm seperti Y efektif dalam meningkatkan GFA yang memungkinkan fabrikasi BMG yang berdiameter sampai 8 mm dengan menggunakan metode Cu mold casting. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh perbedaan konfigurasi elektronik antara Y (4d 15s2) dan Gd (4f 75d 16s2). Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari perilaku kristalisasi dari Mg-Cu-Gd khususnya  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$ .

## 2. Metoda Penelitian

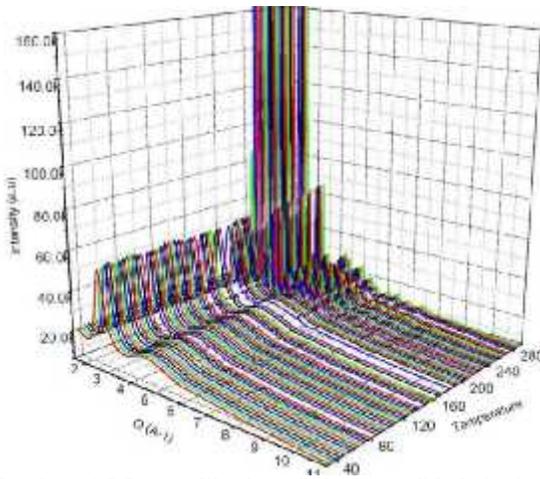
Penelitian ini mempelajari  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$ . Paduan BMG difabrikasi dengan menggunakan metode Cu mold casting. Investigasi struktur paduan hasil

dilakukan dengan menggunakan difraksi sinar X baik dengan menggunakan difraksi sinar X konvensional skala laboratorium atau dengan memanfaatkan sinar X energi tinggi atau yang lebih dikenal dengan synchrotron. Analisa mikrostruktur menggunakan *Scanning electron microscope* (SEM) yang dipadukan dengan *energy dispersive spectrometry* (EDS) sebagai alat untuk mengetahui komposisi material. Selain itu penelitian ini juga memanfaatkan metode differential scanning calorimeter (DSC). Mg adalah element yang mudah menguap oleh karena itu sebanyak 6 wt% Mg ditambahkan untuk memastikan bahwa material memiliki komposisi yang tepat. Sebelum memulai proses pelelehan, gas argon harus dipompa ke dalam dapur busur listrik untuk menurunkan kadar oksigen di dalam dapur dan menjamin Mg terhindar dari kontaminasi oksigen. Proses ini harus dilakukan berulang-ulang untuk menciptakan ruang dapur dengan tingkat vakum yang tinggi. Untuk menghasilkan laju pertukaran panas yang baik maka air dingin harus dialirkan ke bawah cetakan. Paduan elemen akan dilelehkan oleh tegangan tinggi dalam lingkungan argon dan dasar cetakan yang berpendingin air. Proses ini harus diulang beberapa kali untuk mendapatkan komposisi yang homogen. Metode melt spinning digunakan untuk menghasilkan paduan amorphous dalam bentuk lembaran tipis. Proses solidifikasi akan terjadi pada roda yang berputar yang akan menghasilkan paduan dalam bentuk lembaran tipis atau pita yang mudah terlepas dari permukaan cetakan akibat perbedaan kontraksi termal. Struktur amorphous material dikonfirmasi dengan menggunakan Teknik difraksi sinar X sedangkan perilaku kristalisasi diuji melalui teknik differential scanning calorimetry (DSC) dengan laju pemanasan  $20$  °C/menit. Spesimen untuk pengujian in-situ synchrotron radiation memiliki ketebalan sebesar 1 mm. Spesimen tersebut harus ditempatkan dalam lingkungan vakum yang berisi lapisan Zr getter untuk meningkatkan kondisi vakum. Energi photon yang digunakan sekitar 90 KeV setara dengan

Panjang gelombang 0.10947 nm. Temperature specimen diukur dan dimonitor menggunakan infrared pyrometer sampai temperature 297 °C.

### 3. Hasil dan Pembahasan

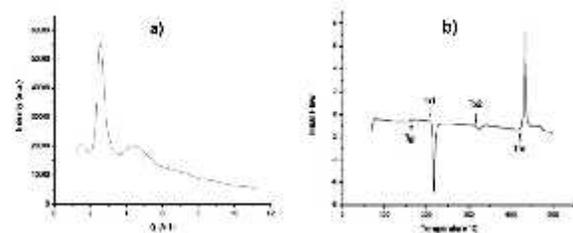
Gambar 1 memperlihatkan beberapa difraksi sinar X dari material  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  yang direkam dengan mode transmisi selama proses pemanasan sampai temperatur 297 °C. Struktur kaca dari  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  dapat diidentifikasi secara jelas pada urutan-urutan bentuk difraksi yang memiliki puncak yang lebar menandakan absennya struktur kristal pada material tersebut.



Gambar 1. Memperlihatkan beberapa difraksi sinar X dari material  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  yang direkam dengan mode transmisi selama proses pemanasan sampai temperatur 297 °C. Struktur kaca dari  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  dapat diidentifikasi secara jelas pada urutan-urutan bentuk difraksi yang memiliki puncak yang lebar menandakan absennya struktur kristal pada material tersebut.

Pada grafik tersebut perbedaan antara phase amorphous dan kristal dapat dilihat dengan jelas. Sumbu X mewakili wave vector  $Q$ , yang dinyatakan dalam formula  $Q = (4 / \lambda) \sin \theta$ . Pada gambar evolusi difraksi tersebut juga dapat diketahui gambaran umum proses transformasi fasa pada material tersebut. Dari gambar tersebut dapat ditentukan bahwa proses kristalisasi pertama terjadi pada temperature 220 °C, di bawah temperature tersebut terdapat bentuk halo yang lebar pada vector difraksi rendah atau kecil. Beberapa pola halo mungkin datang dari quartz yang merupakan dukungan sampel sedangkan pola-

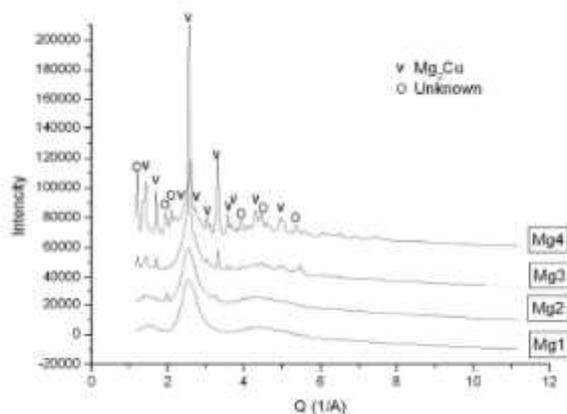
pola halo yang lain berasal dari fasa amorphous. Fasa amorphous murni dapat dilihat dengan jelas pada temperature 30 °C – 160 °C seperti yang diwakilkan pada gambar 2a. Dari pola difraksi tersebut juga dapat diketahui bahwa fasa utama memulai proses presipitasi yang ditandai oleh munculnya refleksi yang intens dan tajam seiring dengan peningkatan temperature. Perlu diketahui bahwa saat ini laporan penelitian atau referensi yang membahas mengenai perilaku kristalisasi paduan sistem Mg-Cu-Gd masih belum tersedia. Meskipun demikian penelitian mengenai Mg-Cu-Y dan Mg-Cu-Nd telah dilakukan sehingga dapat dijadikan referensi perbandingan dengan Mg-Cu-Gd karena memiliki elemen paduan yang masuk dalam satu golongan. Hal ini dapat menjadi titik awal untuk mempelajari proses kristalisasi Mg-Cu-Gd. Soubeyroux et al [11] memproduksi  $Mg_{65}Cu_{25}Gd_{10}$  dan mendeteksi kehadiran fasa  $Mg_2Cu$  dengan ukuran kristal sekitar 100 nm. Peak-peak kecil dengan intensitas yang lemah juga terlihat pada difraksi tersebut. Untuk mengidentifikasi lebih lanjut mengenai fasa intermetallic yang terkandung dalam  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$ , spesimen dipanaskan di dalam DSC sampai titik leleh kemudian eksperimen XRD dilakukan dimana pola difraksi dengan intensitas rendah semakin banyak ditemukan. Gambar 2b mendemonstrasikan hasil pengukuran DSC dari logam  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  dengan laju pemanasan 20 °C/min.



Gambar 2. Gambar pola kristalisasi selama proses pemanasan, a) Pola difraksi fasa amorphous b) Kurva Differential Scanning Calorimetry (DSC) DSC untuk paduan  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  pada pemanasan dengan laju 20 °C/min.

Dalam pengukuran tersebut ditemukan hadirnya grafik exothermic yang mengindikasikan titik awal kristalisasi terjadi pada temperatur 220 °C. Lebih jauh lagi pada grafik DSC dapat ditemukan juga puncak grafik exothermic kecil lain pada temperatur sekitar 320 °C. Hal ini berhubungan erat dengan kristalisasi dan juga mengkonfirmasi proses kristalisasi berlangsung dalam dua tahap yaitu  $T_{X1}$  dan  $T_{X2}$ .

Proses kristalisasi kedua dapat disebabkan oleh fasa amorphous sisa yang belum bertransformasi pada tahap pertama. Kristalisasi dua tahap ini juga dapat dideteksi oleh pola difraksi synchrotron ESRF seperti yang ditunjukkan pada gambar 3. Gambar 3 tersebut dengan jelas memperlihatkan evolusi dari transformasi fasa pada saat percobaan in-situ di ESRF Grenoble. Pola difraksi Mg1 kembali mengklarifikasi fasa amorphous kemudian setelah itu beberapa puncak difraksi dengan intensitas rendah yang diberi indeks Mg2 timbul di dalam paduan tersebut. Puncak difraksi ini diidentifikasi sebagai kompon  $Mg_2Cu$  berdasarkan perhitungan dengan menggunakan powdercell. Puncak difraksi Mg2 tetap bertahan dan bahkan menampilkan intensitas yang lebih tinggi pada pola Mg3, hal ini dipengaruhi oleh pemanasan sampai temperature 178 °C.



Gambar 3. Perbedaan pola difraksi dari bentuk amorphous penuh, kristalisasi sebagian, dan kristalisasi penuh. Pada kristalisasi penuh terdapat kompon  $Mg_2Cu$  dan kompon yang belum teridentifikasi.

Pada saat temperature mencapai 297.7 °C, paduan tersebut berubah total menjadi fasa berstruktur kristal secara penuh yang ditandai dengan hilangnya lingkaran amorphous (*amorphous halo*) pada temperature tersebut seperti yang ditunjukkan pada pola difraksi dengan indeks Mg4. Meskipun demikian, timbulnya pola difraksi kristal juga diikuti oleh *halfwidth* yang lebar, hal ini dapat dipengaruhi oleh heterogenitas kimiawi di dalam paduan tersebut akibat dari perbedaan jarak difusi dari elemen-elemen paduan. Lebih jauh lagi tumbuhnya kristal dalam paduan menciptakan interface atau batas butir yang normalnya mempunyai tingkat stress tinggi karena perbedaan arah tumbuh kristal atau geometri kristal.

#### 4. Kesimpulan

Penelitian inital telah mempelajari proses kristalisasi pada paduan amorphous  $Mg_{58}Cu_{31}Gd_{11}$  telah berhasil dilakukan dengan menggunakan radiasi synchrotron, konvensional sinar X, dan DSC. Proses kristalisasi berlangsung dalam dua tahap, yang pertama pada temperature 220 °C dan temperature kedua adalah 320 °C. Selain itu glass transition temperature diidentifikasi terjadi pada temperature 174 °C. Pada proses kristalisasi tersebut meliputi munculnya kompon  $Mg_2Cu$  serta beberapa kompon lain yang belum berhasil teridentifikasi. Hal membutuhkan kajian kompleks yang meliputi diagram ternary.

#### 5. Daftar Pustaka

- [1] G. Yuan and A. Inoue, J. Alloys Compd., 387 (2005), pp. 134-138.
- [2] W.L. Johnson. Mater. Sc. Forum, 35:225, 1996.
- [3] D.B. Miracle. Nat. Mater., 3:697, 2004.
- [4] X.K. Xi, D.Q. Zhao, M.X. Pan and W.H. Wang, Intermetallics, 13 (2005), pp.638-641.
- [5] X.K. Xi, R.J. Wang, D.Q. Zhao, M.X. Pan and W.H. Wang, J. Non-Cryst. Solids, 344 (2004), pp. 105-109.
- [6] A. Inoue, A. Kato, T. Zhang, S.G. Kim and T. Masumoto, Mater. Trans. JIM,

- 32 (1991), pp. 609-616.
- [7] C.T. Liu and Z.P. Lu, *Intermetallics*, 13 (2005), pp. 415-418.
- [8] H. Men, Z.Q. Hu and J. Xu, *Scripta Mater.*, 46 (2002), pp. 699-703.
- [9] G. Yuan, T. Zhang and A. Inoue, *Mater. Lett.*, 58 (2004), pp. 3012-3016.
- [10] E.S. Park, H.G. Kang, W.T. Kim and D.H. Kim, *J. Non-Cryst. Solids*, 279 (2001), pp. 154-160.
- [11] J.-L. Soubeyroux, S. Puech, and J.-J. Blandin. *Mater. Sc. Eng. A*, 449-451:253, 2007.