

ANALISIS ALUMINIUM BULK NON TEXTURE DENGAN METODE DIFRAKSI NEUTRON

Tri Hardi Priyanto, Andon Insani, Hery Mugirahardjo.

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir, BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan
E-mail : thardi@batan.go.id

ABSTRAK

ANALISIS ALUMINIUM BULK NON TEXTURE DENGAN METODE DIFRAKSI NEUTRON. Telah dibuat cuplikan aluminium bulk dari aluminium serbuk. Aluminium serbuk ditekan pada tekanan maksimum 6000 psi (41.4MPa) sehingga berbentuk pelet dengan diameter 15mm dan tinggi 10 mm. Data difraksi neutron diperoleh dari difraktometer neutron resolusi tinggi (DN3) dan dianalisis menggunakan perangkat lunak FullProf. Dari pola difraksi neutron tidak teramati adanya orientasi kristalit (tekstur) pada bulk aluminium. Hal ini ditunjukkan pada intensitas relatif (I/I_0) untuk puncak-puncak Bragg (111), (200), (220), (311) dan (222) yang relatif sama pada kedua cuplikan tersebut. Ukuran butir dihitung dengan metode Scherrer. Akibat pengaruh tekanan ukuran butir mengecil dari 330 Å menjadi 293 Å. Tidak terjadi perubahan parameter kisi setelah tekanan diberikan. Dari analisis pola difraksi diperoleh reliabilitas faktor Bragg (R_B) untuk cuplikan serbuk dan bulk masing masing 16,4% dan 11,8 % dan reliabilitas faktor profile dengan pembobotan (R_{wp}) untuk cuplikan serbuk dan bulk masing masing adalah 26,3% dan 21,9%.

Katakunci: difraksi neutron, aluminium, tekstur

ABSTRACT

ANALYSIS OF NON TEXTURE BULK ALUMINUM USING NEUTRON DIFFRACTION METHOD. A bulk aluminum sample was made from powder aluminum, it was pressed at 6000 psi (41.4 MPa). Neutron diffraction data were collected using high resolution powder diffractometer (DN3) and it was analyzed using FullProf software. From neutron diffraction pattern, crystallite orientation (texture) is not observed from bulk sample. It is shown from relative intensity (I/I_0) that Bragg peaks of (111), (200), (220), (311) and (222) are relatively the same between powder and bulk sample. Grain size was calculated using Scherrer method, due to pressure effect grain size reduce from 330 Å to 293 Å. Lattice parameter is not changed after given pressure. It is obtained Bragg reliability factor (R_B) for powder and bulk aluminum are 16,4% and 11,8 %, respectively and R_{wp} for powder and bulk are 26,3% and 21,9%, respectively

Keywords : neutron diffraction, aluminum, texture

PENDAHULUAN

Difraktometer neutron DN2 adalah difraktometer neutron yang digunakan untuk penelitian tekstur bahan menggunakan teknik difraksi neutron. Berbagai pengembangan baik secara perangkat lunak maupun secara perangkat keras terus dilakukan untuk meningkatkan unjuk kerja peralatan. Untuk meningkatkan intensitas neutron di cuplikan telah dilakukan modifikasi DN2 dengan menambah *flight tube* diantara monokromator dan cuplikan [1]. Dengan menambah *flight tube* intensitas neutron di posisi cuplikan meningkat lebih dari dua kali lipat. Hal lain untuk meningkatkan unjuk kerja adalah melakukan koreksi data akibat pengaruh *defocusing*. Untuk melakukan koreksi tersebut harus dibuat cuplikan berbentuk bulk yang tidak memiliki sifat tekstur (tidak mempunyai preferred orientation pada kristalit) sehingga mempunyai sifat dan karakteristik yang mirip dengan cuplikan serbuk.

Dalam pembuatan bulk material terdapat beberapa prosedur untuk menghasilkan *bulk solids*

dengan ukuran butir dari sub mikrometer sampai nanometer. Prosedur tersebut antara lain *high-pressure torsion* (HPT), *equal-channel angular pressing* (ECAP), *accumulative roll bonding* (ARB). Dari beberapa prosedur yang paling menarik adalah HPT karena secara umum menghasilkan ukuran butir yang sangat halus (*ultrafine grain size*) yang lebih kecil dari metode yang lain [2]. Dalam pembuatan cuplikan bulk tidak diperlukan prosedur pembuatan cuplikan seperti di atas karena tekanan hanya diperlukan agar cuplikan serbuk berubah menjadi bulk dengan menghindari terjadinya orientasi kristalit.

TEORI

Difraksi dari radiasi pada materi berhubungan dengan transformasi Fourier dari ruang nyata (*real space*) ke ruang momentum, karena itu pola difraksi neutron dari suatu cuplikan merepresentasikan pemetaan lengkap dari strukturnya dan mikrostruktur dalam ruang momentum yang sering disebut dengan

kisi resiprok (*reciprocal lattice*) dalam struktur periodik. Dalam banyak penelitian, informasi struktural diekstrak dari pola difraksi sinar x atau neutron, katakanlah posisi sudut dan intensitas puncak-puncak Bragg. Secara umum lebar garis dari sebuah puncak Bragg terkait dengan lebar instrumental dari difraktometer, pelebaran puncak terkait dengan sel kecil atau domain dan mikrostrain di dalam domain. Analisis bentuk garis (*lines shape*) dapat digunakan untuk mengkarakterisasi struktur mikro secara menyeluruh secara *microstrain* dan ukuran domain rata-rata. Metode pelebaran sederhana (*the simplified breadth method*) menggunakan pemodelan fungsi Voigt untuk menganalisis puncak tunggal. Metode Rietveld yang dimodifikasi (*modified Rietveld Method*) menggunakan teknik *fitting* seluruh pola serbuk dan metode Scheffer untuk menentukan ukuran butir yang memiliki kemiripan dengan *simplified breadth method*.

Simplified Breadth Method

Dalam metode ini^[4], setiap puncak difraksi di fitting dengan fungsi Voigt jika faktor bentuk ϕ (dinyatakan oleh FWHM/ integral pelebaran) dari puncak difraksi bernilai antara 0,63 dan 0,94, dimana FWHM adalah *Full Width at Half Maximum*. Disini, komponen Cauchy dari fungsi Voigt dihubungkan dengan ukuran volume domain terbobot; D_v (volume weighted domain size) yang dinyatakan sebagai

$$D_v = \frac{\lambda}{\beta_C \cos \theta} \quad (1)$$

dimana β_C merepresntasikan komponen Cauchy dari pelebaran puncak terintegrasi.

Metode Rietveld modifikasi

Dalam teori difraksi neutron, posisi puncak bragg ditentukan oleh sistem kristal, simetri grup ruang, simetri translasi, dimensi sel satuan, identifikasi fasa kualitatif. Intensitas puncak ditentukan oleh kandungan sel satuan, simetri titik, fraksi fasa kuantitatif dan tekstur (*preffered orientation*). Bentuk puncak dan lebar puncak ditentukan oleh ukuran kristalit, mikrostrain tak uniform dan *extended defect* misalnya *stacking fault*, *antiphase boundary*

Dalam metode ini, profil difraksi dimodelkan dengan sebuah fungsi pseudo-Voigt (*pV*) yang merupakan kombinasi linier dari fungsi Cauchy atau Lorentzian (*L*) dan fungsi Gaussian (*G*) dengan bentuk puncak (*peak shape*) menggunakan model Thomson-Cox Hasting, pseudo Voigt^[5].

$$pV = \eta L + (1 - \eta)G$$

$$\Gamma_k^2 = U \tan^2 \theta_k + V \tan \theta_k + W \quad (2)$$

dimana fungsi Gauss :

$$G = \frac{\sqrt{C_0}}{\Gamma_k \sqrt{\pi}} \exp \left[-\frac{C_0}{\Gamma_k^2} (2\theta_i - 2\theta_k)^2 \right]; \quad C_0 = 4 \ln 2 \quad (3)$$

dan fungsi Cauchy (Lorents) :

$$L = \frac{2\sqrt{C_0}}{\pi \Gamma_k} \frac{1}{1 + \frac{C_0}{\Gamma_k^2} (2\theta_i - 2\theta_k)^2}; \quad C_0 = 4 \quad (4)$$

Refinement menggunakan model penghalusan pembobotan (*refinement weighting model*) dengan asumsi model faktor termal bersifat isotropik selanjutnya parameter kisi, ukuran domain, lebar dan bentuk puncak dipakai secara simultan selain cacahan latar belakang, dan faktor instrumental dipakai sebagai parameter fitting untuk mendapatkan hasil fitting terbaik.

Kualitas hasil fitting dinyatakan oleh beberapa faktor reliabilitas *R* yang dinyatakan dalam bentuk persamaan (5) sampai dengan (10) di bawah ini[6]:

Reliabilitas faktor profil (R_p)

$$R_p = \frac{\sum_i |y_{io} - y_{ic}|}{\sum_i y_{io}} \quad (5)$$

Reliabilitas faktor profil dengan pembobotan (R_{wp}) :

$$R_{wp} = \left[\frac{\sum_i w_i (y_{io} - y_{ic})^2}{\sum_i w_i y_{io}^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

Reliabilitas faktor struktur (R_F) :

$$R_F = \frac{\sum_i |F_{ko} - F_{kc}|}{\sum_i F_{ko}} \quad (7)$$

Reliabilitas Faktor Bragg (R_B) :

$$R_B = \frac{\sum_i |I_{ko} - I_{kc}|}{\sum_i I_{ko}} \quad (8)$$

Reliabilitas faktor yang diharapkan (R_{exp})

$$R_{exp} = \left[\frac{N - P}{\sum_i w_i y_{io}^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (9)$$

The goodness of fitting :

$$Chi2 = \frac{\sum_i w_i (y_{io} - y_{ic})^2}{N - P} = \left(\frac{R_{wp}}{R_{exp}} \right)^2 \quad (10)$$

Metode Scherrer

Ukuran kristalit diukur dengan metode Scherrer diberikan oleh

$$\langle L \rangle_{vol} = \frac{K \cdot \lambda}{B_{1/2} \cos \theta_B} \quad (11)$$

dimana $\langle L \rangle_{vol}$ adalah ukuran volume – terbobot (*volume-weighted size*), θ_B adalah sudut Bragg, λ adalah panjang gelombang sinar-x dan K adalah tetapan bergantung geometri sel satuan, biasanya antara 0,85 dan 0,99. $B_{1/2}$ adalah FWHM dari puncak difraksi setelah koreksi untuk pelebaran puncak yang disebabkan oleh difraktometer. Satu cara untuk merepresentasikan $B_{1/2}$ adalah

$$B_{1/2}^2 = B_{obs}^2 - B_m^2 \quad (12)$$

dimana B_{obs} adalah lebar puncak terukur dan B_m adalah pelebaran puncak yang disebabkan oleh peralatan

METODOLOGI PENELITIAN

Cuplikan aluminum serbuk berukuran 100 mesh dibuat oleh Cerac Incorporated dengan kemurnian 99,9%.. Untuk membuat cuplikan dalam bentuk bulk, serbuk aluminum dimasukkan kedalam cetakan berbentuk silinder dan di tekan dengan tekanan maksimum 6000 psi (41.4Mpa) Cuplikan aluminum yang dihasilkan berbentuk silinder berdiameter 15 mm dan tinggi 10 mm. Data pola difraksi diperoleh dengan menggunakan difraktometer neutron resolusi tinggi, DN3. Hasil pola difraksi neutron dianalisis dengan perangkat lunak FullProf.

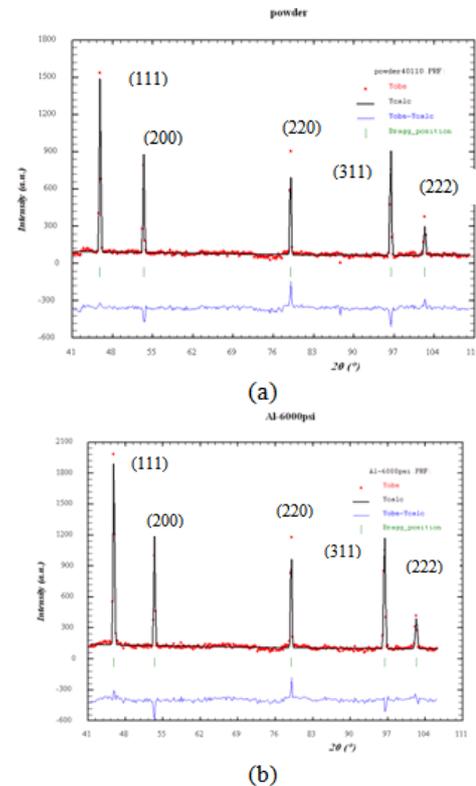
HASIL DAN PEMBAHASAN

Aluminum mempunyai struktur kristal FCC dengan grup ruang $F-m\bar{3}m$ dan mempunyai parameter kisi $a = 4,05337 \text{ \AA}$. Data pola difraksi neutron untuk cuplikan aluminum diperoleh dengan difraktometer neutron resolusi tinggi (DN3) pada panjang gelombang neutron $\lambda = 1,82 \text{ \AA}$. Gambar 1 menunjukkan pola difraksi neutron untuk cuplikan serbuk dan bulk .

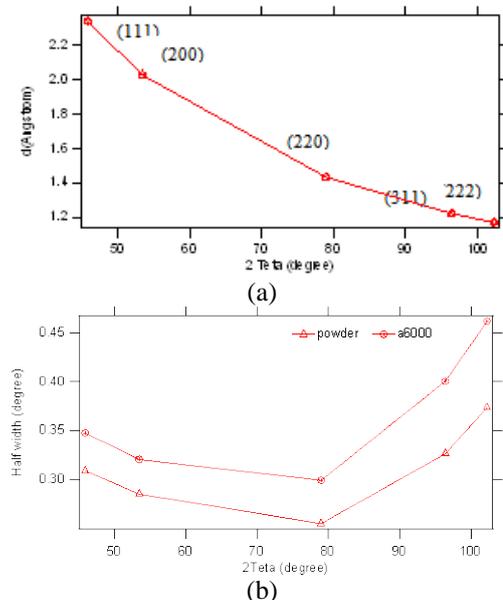
Dari pengamatan intensitas ternormalisasi yakni intensitas untuk puncak Bragg yang tertinggi bernilai satu. Kedua pola difraksi tersebut menunjukkan, kelima puncak Bragg (111), (200), (220), (311) dan (222) mempunyai intensitas relatif yang hampir sama.

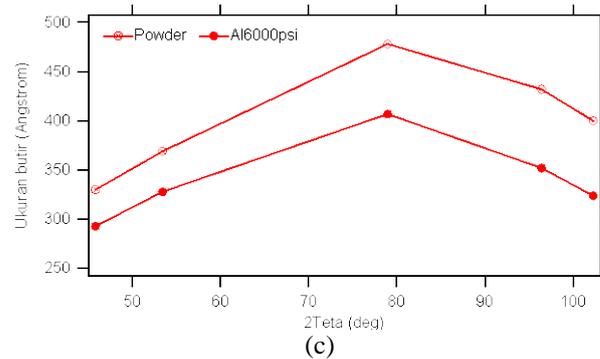
Dari analisis ke dua pola difraksi tersebut dapat ditunjukkan bahwa cuplikan serbuk dengan tekanan 6000 psi (41.4 Mpa) tidak mengubah arah orientasi kristalit secara dominan pada arah tertentu sehingga tidak terbentuk tekstur pada cuplikan. Akibat tekanan juga tidak menimbulkan perubahan parameter kisi pada cuplikan bulk. Tekanan hanya mengubah ukuran butir menjadi lebih kecil yang

meningkatkan intensitas terintegrasi. Ukuran butir dihitung dengan metode Scherrer yang diaplikasikan untuk difraksi neutron menggunakan rumus Pers (11) $K = 0,9$, λ adalah panjang gelombang neutron dalam Angstrom dan $\beta_{1/2}$ adalah FWHM untuk puncak Bragg



Gambar 1. Pola difraksi neutron diperoleh dengan difraktometer neutron untuk (a) aluminum serbuk 100 mesh (b) bulk dengan tekanan 6000 psi (41,4 MPa).





Gambar 2 (a) Jarak antar bidang (d_{hkl}) terhadap sudut difraksi 2θ , (b) FWHM vs 2θ untuk cuplikan serbuk and bulk (c) Ukuran butir aluminum serbuk dan aluminum bulk.

Tabel 1. Nilai FWHM, d_{hkl} dan I/I_0 serta ukuran kristal untuk cuplikan aluminum powder dan aluminum bulk 6000 psi.

| 2θ | hkl | I/I ₀ calc | Bulk 6000 psi | | | Powder 100 mesh | | | Ukuran kristal(Å) | | |
|-----------|-------|--------------------------|---------------|-----------|------------------|-----------------|-----------|------------------|-------------------|--------|--------------------|
| | | | FWHM | d_{hkl} | I/I ₀ | FWHM | d_{hkl} | I/I ₀ | bulk | powder | Reduksi ukuran (%) |
| 45.827 | (111) | 1.000 | 0.347429 | 2.340215 | 1.0 | 0.308727 | 2.340215 | 1.0 | 293 | 330 | 11 |
| 53.433 | (200) | 0.548 | 0.320295 | 2.026685 | 0.4 | 0.284845 | 2.026685 | 0.4 | 328 | 369 | 11 |
| 78.958 | (220) | 0.504 | 0.299026 | 1.433083 | 0.6 | 0.254621 | 1.433083 | 0.6 | 407 | 478 | 15 |
| 96.411 | (311) | 0.716 | 0.400502 | 1.222137 | 0.5 | 0.326155 | 1.222137 | 0.6 | 352 | 432 | 19 |
| 102.281 | (222) | 0.217 | 0.461831 | 1.170107 | 0.2 | 0.373575 | 1.170107 | 0.2 | 324 | 400 | 19 |
| R_p | | 26.6 | | | | 29.8 | | | | | |
| R_{wp} | | 21.9 | | | | 26.3 | | | | | |
| R_e | | 12.4 | | | | 14.0 | | | | | |
| R_B | | 11.8 | | | | 16.4 | | | | | |
| R_F | | 6.61 | | | | 9.48 | | | | | |
| χ^2 | | 3.11 | | | | 3.51 | | | | | |

KESIMPULAN

Dari pola difraksi neutron untuk kedua cuplikan tersebut tidak teramati adanya orientasi kristalit. Hal ini ditunjukkan oleh intensitas relatif (I/I_0) untuk puncak-puncak Bragg yang diamati yaitu puncak (111), (200), (220), (311), (222) metode Scherrer. Untuk satu puncak Bragg tunggal dengan intensitas tertinggi (111), ukuran butir untuk cuplikan serbuk sebesar 330 Å turun menjadi 293 Å setelah mendapat tekanan 6000 psi (41,4 Mpa). Dari analisis pola difraksi diperoleh Reliabilitas faktor Bragg (R_B) untuk cuplikan serbuk dan bulk masing masing sebesar 16,4 % dan 11,8 % . Reliabilitas faktor profile dengan pembobotan (R_{wp}) untuk cuplikan serbuk dan bulk masing masing anadah 26,3 % dan 21,9 %

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada para teknisi Bidang Spektrometri Neutron atas kerjasamanya dalam sistem dukung hamburan neutron sehingga penelitian ini dapat berlangsung.

DAFTAR PUSTAKA

1. TRI HARDI PRIYANTO, NADI SUPARNO, SAIRUN, RIFAI MUSLIH, *Pengaruh flight tube terhadap peningkatan fluks neutron pada diffractometer tekstur DN2 (FCD/TD)*, Tri Dasa Mega, Jurnal Teknologi Reaktor Nuklir, Vol 11, No2, Juni 2009, 107-114.
2. A.P. ZHILYAEV, K. OH-ISHI, T.G. LANGDON, T.R. MCNELLEY, *Microstructural evolution in commercial purity aluminum during high-pressure torsion*, Materials Science and Engineering A 410-411 (2005), 277-280.
3. P.S. CHOWDHURY, A. SARKAR, P.MUKHERJEE, N. GAYATHRI, M. BHATTACHARYA, P. BARAT, *Studies of microstructural imperfections of powdered Zirconium-based alloys*, Materials characterization 61 (2010), 1061-1065
4. DE KEIJSER THH, LANGFORD JI, MITTEMEIJER EJ, VOGELS ABP. *Use of the*

Voigt function in single-line method for the analysis of X-ray diffraction line broadening. J.Appl Cryst 1982;15:308-14

5. DAVOR BALZAR, *Voigt Function model in diffraction line broadening analysis, To appear in Microstructure Analysis from Diffraction*, edited by R. L. Snyder, H. J.Bunge, and J. Fiala, International Union of Crystallography, 1999.
6. DANIEL CHATEIGNER, *Combined Analysis: Structure-texture-microstructure-phase-stresses-reflectivity determination by x-ray and neutron scattering*, 2007

TANYA JAWAB

Suprpto

- Apa hubungan penelitian ini jika dikaitkan dengan litbang yang harus dapat diaplikasikan dari hulu hingga hilir sesuai arahan ristek?
- Jika arahnya pada kekuatan mekanik, apakah tidak lebih baik langsung uji mekanik?

Tri Hardi

- Penelitian ini bagian dari riset insentif yang pada hilirnya pemanfaatan difraktometer neutron untuk tekstur wadah minuman. Memang pada penelitian ini tidak tampak aplikasi industri karena hanya sebagai "Tool" untuk menghitung faktor defocusing.
- Mencoba alternative lain dengan metode difraksi neutron untuk menganalisis kekuatan dan tegangan sisa..

Tjipto Sujitno

- Secara teori apakah suatu serbuk jika ditekan akan mengalami perubahan texture?

Tri Hardi

- Tergantung tekanan jika sampai orde GPa maka dapat menimbulkan tekstur, Tekstur adalah orientasi kristalit. Tapi dalam penelitian ini jangan sampai terjadi orientasi kristait karena factor korelasi harus benar.