

DOI: doi.org/10.21009/0305020214

## KARAKTERISASI DAN ANALISIS UKURAN KRISTALIT PADA PROSES PEMADUAN Mg-Zn DENGAN METODE ULTRASONIK

Henni Sitompul<sup>1,2,\*</sup>, Kiagus Dahlan<sup>3</sup>, Deni Noviana<sup>4</sup>, Sulistioso<sup>5</sup>, Marzuki Silalahi<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Megister Biofisika MIPA IPB, Jl. Meranti Kampus IPB Darmaga, Bogor 16680

<sup>2</sup>Prodi Pend Fisika STKIP SURYA, Jl. Scientia Boulevard Blok U7 Gading Serpong, Tangerang 15810

<sup>3</sup>Departemen Fisika FMIPA IPB, Jl. Meranti Kampus IPB Darmaga, Bogor 16680

<sup>4</sup>Departemen Klinik Reproduksi Patologi FKH IPB, Jln. Agatis Kampus IPB Dramaga, Bogor 16680

<sup>5</sup>Pusat Sains dan Teknologi Bahan Maju BATAN, Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang Selatan 15310

Email:<sup>\*</sup> henni\_stpl@gmail.com

### Abstrak

Magnesium merupakan logam yang sedang dikembangkan dalam bidang biomaterial khususnya sebagai implan biodegradable. Paduan MgZn memiliki sifat mekanik dan ketahanan korosi yang lebih baik dari paduan biner Mg lainnya. Proses pemaduan Mg-Zn pada penelitian ini dilakukan dengan menggunakan gelombang ultrasonik yang dialirkan pada toluen sebagai media. Gelombang ultrasonik akan menghasilkan kavitasi pada media dan ledakan kavitasi tersebut akan menghasilkan suhu dan tekanan yang tinggi sehingga dapat memadukan Mg dengan Zn. Karakterisasi menggunakan XRD menunjukkan bahwa perlakuan ultrasonik selama 50 jam dapat meningkatkan ukuran kristalit dari Mg dan Zn namun belum dapat menghasilkan paduan MgZn. Hal ini dipengaruhi oleh adanya lapisan Mg(OH)<sub>2</sub> pada partikel Mg. Dari hasil SEM/EDS diketahui bahwa perlakuan ultrasonik 50 jam dapat membersihkan Mg dari lapisan Mg(OH)<sub>2</sub>.

**Kata Kunci:** *Ultrasonik, Kavitasi, MgZn, Biodegradable*

### Abstract

Magnesium is a metal that is being developed in the field of biomaterials, especially as biodegradable implants. MgZn alloy has mechanical properties and corrosion resistance that are better than other Mg binary alloys. The process of conducting the MgZn integration in this study, used the ultrasonic waves that flows in toluene as a medium. Ultrasonic waves will generate the cavitation to the medium, and the explosion of the cavitation will produce a high temperature and pressure in order to combine Mg with Zn. The characteristic of using XRD showed that the ultrasonic treatment for 50 hours can increase the crystallites size of Mg and Zn. However, it is not yet able to produce the MgZn alloy. This is affected by the presence of the Mg(OH)<sub>2</sub>'s layer on the Mg particles. SEM/EDS result showed that 50 hour ultrasonic treatment can clean the Mg from the layer of Mg(OH)<sub>2</sub>.

**Keywords:** *Ultrasonic, Cavitation, MgZn, Biodegradable*

## 1. Pendahuluan

Magnesium (Mg) merupakan bahan logam yang banyak diteliti dan dikembangkan selama 15 tahun terakhir dalam bidang biomaterial terutama bidang orthopedi [1]. Mg memiliki sifat biokompatibilitas yang tinggi namun sangat reaktif dengan lingkungan biologis sehingga laju korosinya sangat tinggi [2]. Salah satu upaya untuk meningkatkan ketahanan Mg terhadap korosi adalah dengan memadukannya dengan elemen lain [3].

Elemen yang dapat dipadukan dengan Mg harus dapat meningkatkan sifat mekanik dan mengontrol laju korosinya di dalam lingkungan biologis namun tidak mengurangi sifat biokompatibelnya. Zn adalah logam yang lebih mulia daripada magnesium yang diketahui

berdampak positif terhadap ketahanan korosi dan kekuatan Mg [3-6]. Paduan Mg-Zn juga menghasilkan gas hidrogen yang lebih rendah dibandingkan dengan elemen paduan Mg lainnya [5,7].

Metode yang sedang dikembangkan dalam pembuatan paduan saat ini adalah dengan menggunakan metode vibrasi ultrasonik. Pada metode ini, gelombang ultrasonik akan menghasilkan siklus tekanan pada spasi molekular media cairan yang dilaluinya yaitu kompresi (tekanan tinggi) dan regangan (tekanan rendah) secara bergantian. Pada saat tekanan menurun (regangan) maka jarak molekul pada cairan akan ditarik melebihi jarak maksimum molekul utuh sehingga molekulnya rusak dan terbentuk gelembung kosong yang disebut kavitasi [8]. Pada intensitas gelombang yang tinggi (>10 W/cm<sup>2</sup>)

akan terbentuk kavitas transient yang akan mengembang minimal dua kali ukuran awalnya hingga akhirnya meledak membentuk mikro reaktor, mikrojet dan gelombang kejut [8]. Ledakan kavitas ini menghasilkan energi yang menaikkan suhu hingga 5000K dan tekanan 2000 atm yang terjadi dalam sesaat [9] sehingga dapat membentuk paduan mikro [10]. Ledakan kavitas ini secara signifikan mempengaruhi mikrostruktur dan memodifikasi sifat paduan yaitu ukuran butiran [8], dan meningkatkan homogenisasi paduan[11].

## 2. Metode Penelitian

Bahan dan alat yang dibutuhkan dalam penelitian ini adalah serbuk Mg dan serbuk Zn sebagai prekursor, Toluena sebagai media, satu set alat ultrasonik, air sebagai pendingin, gelas ukur sebagai wadah sampel, X-Ray Diffraction (XRD) dan SEM.

### 2.1 Sintesa MgZn

Pembuatan paduan dilakukan dengan mencampurkan 6% serbuk Zn kedalam serbuk Mg dengan total massa campuran 20 gram. Mg6Zn dicampur dengan Toluena dengan perbandingan 1:5 dimana toluena dalam hal ini berfungsi sebagai media. Mg6Zn diultrasonik dengan frekuensi 20 kHz dan amplitudo 40% dari maksimum. Suhu sampel dijaga tidak terlalu panas dengan menggunakan air sebagai pendingin yang diganti setiap 30 menit. Hal ini dilakukan untuk memaksimalkan pembentukan kavitas pada media. Proses ultrasonik dilakukan dengan beberapa variasi waktu yaitu 15 jam, 30 jam, 40 jam dan 50 jam.

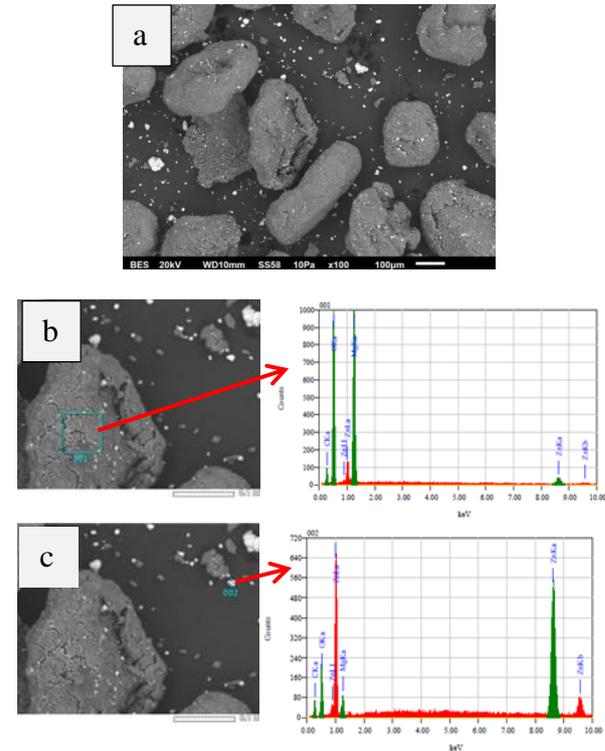
### 2.2 Karakterisasi MgZn

Sampel yang telah diultrasonik kemudian dikarakterisasi menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) yang dilengkapi dengan *Energy-dispersif Spectrometry* (EDS) untuk mengetahui morfologi dan mengidentifikasi komposisi unsur dari sampel. Sedangkan *X-ray Diffraction* (XRD) digunakan untuk mengidentifikasi fasa dan analisis butir yang terbentuk akibat perlakuan ultrasonik. Karakterisasi XRD dilakukan setiap  $0,03^\circ$  pada rentang  $2\theta$  dari  $10^\circ$ - $90^\circ$ . Karakteristik XRD dan SEM-EDS dilakukan di Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) Serpong, Tangerang Selatan.

## 3. Hasil dan Diskusi

Gambar 1 menunjukkan mikrostruktur dari campuran MgZn sebelum diultrasonik. Ukuran serbuk Mg jauh lebih besar dibandingkan dengan ukuran serbuk Zn. Permukaan Mg terlihat retak dan keropos. Hal ini menunjukkan bahwa partikel Mg telah terkontaminasi dengan lingkungan dan membentuk lapisan hidroksida ( $Mg(OH)_2$ ). Lapisan ini terjadi secara alami dan dapat menghentikan proses korosi lebih lanjut pada partikel Mg [12]. Keberadaan lapisan

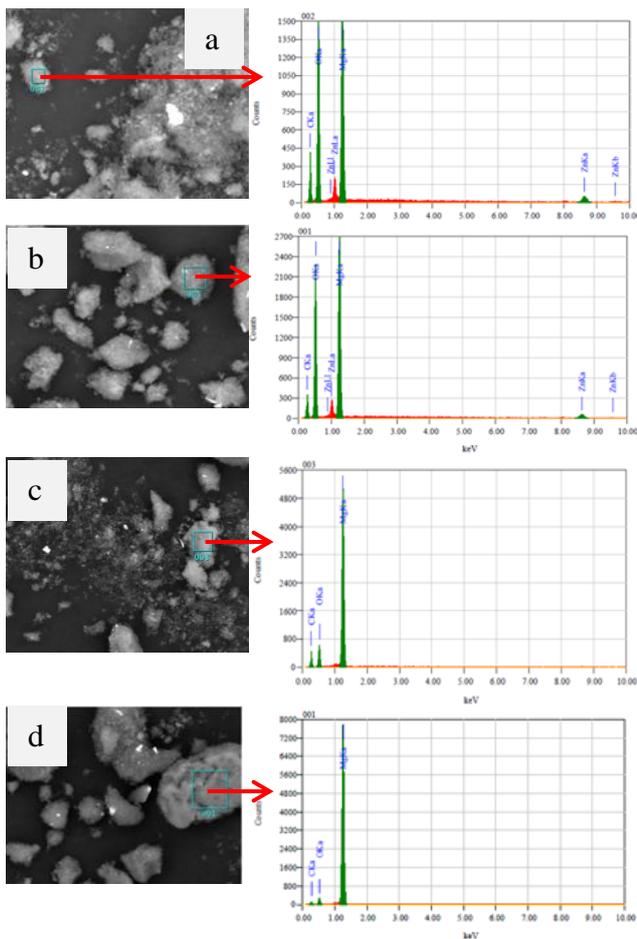
ini dikonfirmasi juga melalui pola difraksi sinar X dari sampel yang digunakan sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 2.



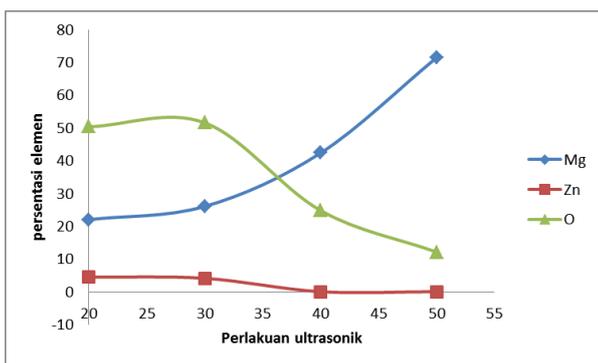
**Gambar 1.** (a) Mikrostruktur dari serbuk Mg6Zn sebelum perlakuan ultrasonik, (b) EDS partikel Mg, (c) EDS partikel Zn

Gambaran mikrostruktur dari Mg6Zn setelah diultrasonik dari hasil SEM/EDS ditunjukkan pada Gambar 2. Perlakuan ultrasonik selama 20 jam menunjukkan lapisan  $Mg(OH)_2$  mulai terkikis dari permukaan Mg dan ukuran partikel semakin kecil. Permukaan Mg (warna lebih cerah di bawah permukaan  $Mg(OH)_2$  mulai terlihat setelah perlakuan ultrasonik 30 jam, artinya lapisan  $Mg(OH)_2$  sudah semakin menipis pada permukaan Mg. Partikel Mg yang hampir bersih dari lapisan  $Mg(OH)_2$  diperoleh setelah perlakuan ultrasonik pada 40 dan 50 jam. Persentasi elemen berdasarkan hasil EDS ditunjukkan pada Gambar 3. Dari Gambar 3 dapat dilihat bahwa persentasi elemen O semakin kecil dan persentasi elemen Mg semakin besar untuk perlakuan ultrasonik yang lebih lama. Hal ini mengindikasikan proses penguraian lapisan  $Mg(OH)_2$ .

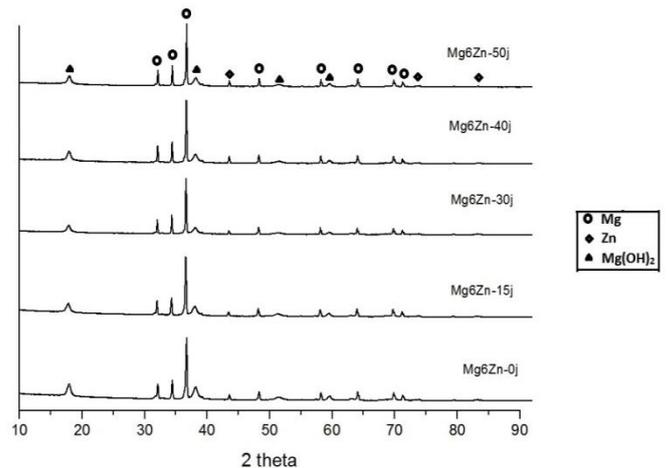
Penguraian  $Mg(OH)_2$  terjadi akibat ledakan kavitas yang terjadi di dekat permukaan partikel Mg. Kavitas tersebut membentuk mikrojet dengan kecepatan hingga 100 m/s yang muncul karena penurunan tekanan pada permukaan Mg yang tidak rata [11]. Mikrojet ini menumbuk permukaan dan menghasilkan pancaran dengan tekanan yang sangat tinggi, oleh karena itu sangat efektif dalam proses pembersihan permukaan [13].



**Gambar 2.** Mikrostruktur dan EDS dari Mg6Zn setelah perlakuan ultrasonik (a) 20 jam, (b) 30 jam, (c) 40 jam dan (d) 50 jam.



**Gambar 3.** Persentasi elemen pada setiap perlakuan ultrasonik.

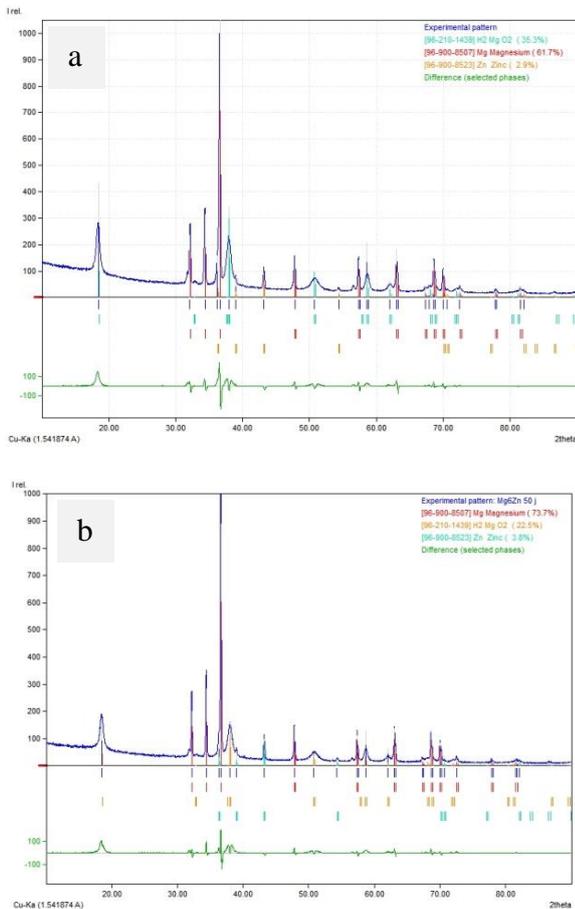


**Gambar 4.** Pola XRD MgZn sebelum dan sesudah perlakuan ultrasonik

Pola difraksi MgZn dengan menggunakan metode XRD ditunjukkan oleh Gambar 4. Identifikasi fasa dilakukan dengan pencocokan pola difraksi eksperimen dengan Crystallography Open Database (COD) menggunakan software Match 3.1 (Gambar 5). Berdasarkan pencocokan tersebut diketahui bahwa sampel terdiri dari tiga fasa Mg (COD 9008507), fasa Zn (COD 9008523) dan fasa Mg(OH)<sub>2</sub> (COD 2101439). Dari analisis Match 3.1 diketahui bahwa perlakuan ultrasonik 50 jam meningkatkan persentasi Mg dan Zn masing-masing 12% dan 0,9% serta menurunkan persentasi Mg(OH)<sub>2</sub> sebesar 12,8%.

Pola difraksi sampel setelah perlakuan 50 jam menunjukkan pola yang hampir sama dengan pola difraksi sebelum diultrasonik. Tidak ada puncak kristal baru yang timbul ataupun hilang akibat perlakuan ultrasonik. Hal ini mengindikasikan bahwa paduan MgZn belum terbentuk selama proses ultrasonik. Beberapa faktor yang mungkin mempengaruhi belum terbentuknya paduan ini adalah adanya lapisan Mg(OH)<sub>2</sub> di permukaan Mg. Mg(OH)<sub>2</sub> merupakan material jenis keramik yang dihasilkan oleh interaksi antara logam Mg dengan molekul air. Material ini tidak akan dapat berinteraksi dengan Zn membentuk paduan. Keberadaannya pada permukaan Mg juga dapat menghalangi Zn berinteraksi dengan Mg hal ini dapat dilihat dari Gambaran SEM (Gambar 2) bahwa Zn berada pada lapisan Mg(OH)<sub>2</sub>. Yang berikutnya Energi yang dihasilkan oleh gelombang ultrasonik masih digunakan untuk menguraikan lapisan Mg(OH)<sub>2</sub> dari permukaan Mg, oleh karena itu dibutuhkan perlakuan lebih lama sehingga partikel Mg dapat berinteraksi dengan Zn. Kemungkinan lain adalah energi ultrasonik yang digunakan terlalu kecil sehingga tidak cukup untuk menghasilkan paduan MgZn. Butuh waktu yang lebih lama atau daya listrik yang lebih tinggi untuk menghasilkan energi yang cukup membentuk paduan MgZn. Energi rata-rata yang ditransfer oleh sonic vibra cell dalam rentang

waktu 30 menit adalah 80296 Joule dengan rata-rata kenaikan suhu horn 5° C .



**Gambar 5.** Proses Pencocokan data Eksperimen dengan database menggunakan Match 3.1 (a) tanpa ultrasonik, (b) Ultrasonik 50 jam

Ukuran kristalit dihitung menggunakan Persamaan Scherrer :

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (1)$$

Dimana L menunjukkan ukuran kristalit. K merupakan konstanta yang berkaitan dengan bentuk kristal, nilai yang digunakan adalah 0.9. Lamda ( $\lambda$ ) adalah panjang gelombang X-Ray yang digunakan, pada Cu = 1.5418 Å, dan  $\beta$  adalah nilai FWHM di setiap bidang kristal.

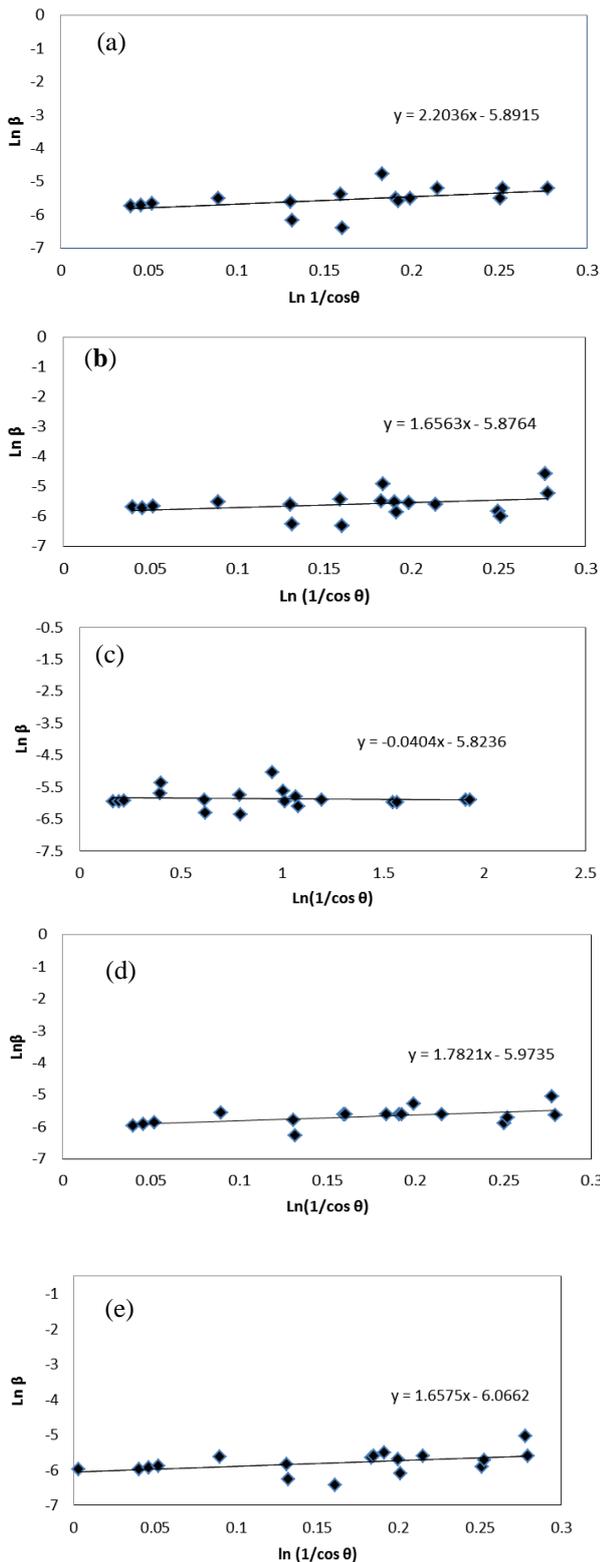
Untuk perhitungan ukuran kristalit yang lebih akurat digunakan modifikasi Persamaan Scherrer sebagaimana ditunjukkan pada Persamaan 2 [14] . Jika  $\ln \frac{1}{\cos \theta}$  diplotkan terhadap  $\ln \beta$  maka akan membentuk suatu persamaan garis lurus dengan titik potong di  $\ln \frac{K\lambda}{L}$ . Dengan demikian maka ukuran kristalit dapat dihitung dengan Persamaan 3.

$$\ln \beta = \ln \frac{K\lambda}{L} + \ln \frac{1}{\cos \theta} \quad (2)$$

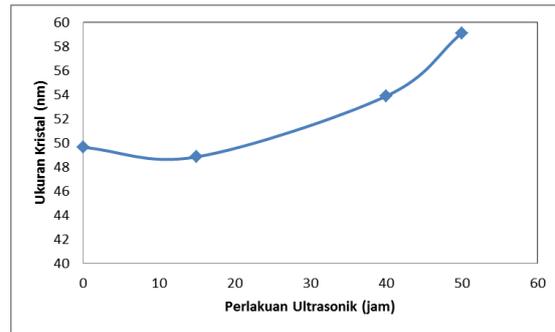
$$e^{\ln \frac{K\lambda}{L}} = \frac{K\lambda}{L} \quad (3)$$

Perhitungan ukuran kristalit dilakukan untuk setiap Fasa, dimana nilai  $\theta$  dan FWHM diperoleh dari analisis fasa menggunakan Match 3.1 yang kemudian dikonversi kedalam satuan radian. Gambar 5 menunjukkan plot data  $\ln \frac{1}{\cos \theta}$  terhadap  $\ln \beta$  dari fasa Mg untuk setiap periode perlakuan ultrasonik. Dengan menggunakan Persamaan 3 ukuran kristalit fasa Mg di setiap perlakuan ultrasonik dapat dihitung. Perubahan ukuran kristal Mg terhadap perlakuan ultrasonik ditampilkan pada Gambar 6. Perhitungan yang sama dilakukan juga terhadap fasa Mg(OH)<sub>2</sub> dan fasa Zn. Ukuran kristalit masing-masing fasa ditunjukkan pada Tabel 1 dan Tabel 2.

Berdasarkan Gambar 7 dan Tabel 2 dapat dilihat bahwa ukuran kristalit Mg dan Zn semakin besar ketika mendapatkan perlakuan ultrasonik selama 50 jam. Biasanya peningkatan ukuran kristalit terjadi akibat proses perlakuan panas [14]. Oleh karena itu, peningkatan ukuran kristalit Mg dan Zn menunjukkan bahwa ledakan kavitasi yang mengenai elemen Mg dan Zn tersebut menghasilkan suhu yang tinggi sehingga dimungkinkan dapat memadukan Mg dengan Zn untuk perlakuan lebih lanjut.



**Gambar 6.** Grafik modifikasi Scherrer pada Fasa Mg untuk perlakuan ultrasonik (a)0 jam (b) 15 jam, (c) 30 jam, (d) 40 jam dan (e) 50 jam.



**Gambar 7.** Ukuran kristalit Mg untuk setiap perlakuan ultrasonik

**Tabel 1.** Ukuran kristalit Mg(OH) untuk setiap perlakuan ultrasonik

Perlakuan ultrasonik	$\ln \frac{K\lambda}{L}$	$\frac{k\lambda}{L}$	L (nm)
0	-4,8231	0,008042	17,049
15	-5,8893	0,002769	49,516
30	-6,0793	0,00229	59,877
40	-5,7192	0,003282	41,77
50	-5,7777	0,003096	44,287

**Tabel 2.** Ukuran kristalit Zn untuk setiap perlakuan ultrasonik

Perlakuan ultrasonik	$\ln \frac{K\lambda}{L}$	$\frac{k\lambda}{L}$	L (nm)
0	-5,041	0,004449	30,81
15	-5,5532	0,003875	35,38
30	-5,6426	0,003544	38,69
40	-5,3775	0,004619	29,68
50	-5,6733	0,003437	39,89

#### 4. Simpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa perlakuan ultrasonik 50 jam dapat mereduksi lapisan Mg(OH)<sub>2</sub> yang terbentuk pada lapisan Mg namun belum dapat membentuk paduan MgZn. Ukuran kristalit Mg maupun Zn semakin besar ketika mendapatkan perlakuan ultrasonik 50 jam, hal ini diakibatkan oleh adanya peningkatan suhu yang tinggi ketika terjadi ledakan kavitas pada proses perlakuan ultrasonik.

#### Ucapan Terima Kasih

Penulis menyampaikan ucapan terima kasih kepada PSTBM-BATAN yang telah memberikan fasilitas sehingga penelitian ini dapat dilakukan.

## Daftar Acuan

- [1] Huafang Li, Yufeng Zheng, Ling Qin. Progress of biodegradable metals, *Progress in Natural Science:Materials International*. 24 (2014), 414–422.
- [2] Emeer Marina Salleh, Hussain Zuhailawati, Sivakumar Ramakrishnan, Mohamed Abdel-Hady Gepreel, A statistical prediction of density and hardness of biodegradable mechanically alloyed Mg–Zn alloy using fractional factorial design, *Journal of Alloys and Compounds*. 644 (2015), 476–484.
- [3] Yongjun Chen, Zhigang Xu, Christopher Smith, Jag Sankar, Recent advances on the development of magnesium alloys for biodegradable implants, *Acta Biomaterialia*. 10 (2014), 4561–4573.
- [4] Hui Li, Qiuming Peng, Xuejun Li, Kun Li, Zengsheng Han, Daqing Fang, Microstructures, mechanical and cytocompatibility of degradable Mg-Zn based orthopedic biomaterials, *Material and Design*. 58 (2014), 43-51.
- [5] S.M. Abd El Hallem, I. Ghayad, M. Eisaa, N. Nassif, M.A. Shoeib, H. Soliman, Effect of Ultrasonic and Mechanical Vibration on the Corrosion Behavior of Mg-3Zn-0.8Ca Biodegradable Alloy, *Int. J. Electrochem. Sci*. 9 (2014), 2005 – 2015.
- [6] Adela Helvia Martinez Sanchez, Bérengère J.C. Luthringer, Frank Feyerabend, Regine Willumeit, Mg and Mg alloys: How comparable are in vitro and in vivo corrosion rates? A review, *Acta Biomaterialia*. 13 (2015), 16–31.
- [7] Xuenan Gu, Yufeng Zheng, Yan Cheng, Shengping Zhong, Tingfei Xi, In vitro corrosion and biocompatibility of binary magnesium alloys. *Biomaterials*. 30 (2009), 484–498.
- [8] Yeong-Jern Chen, Wen-Nong Hsu, and Jhih-Ren Shih, The Effect of Ultrasonic Treatment on Microstructural and Mechanical Properties of Cast Magnesium Alloys, *Materials Transactions*. 50 (2009), 401- 408.
- [9] T. Y. Wu et al, *Advances in Ultrasound Technology for Environmental Remediation, SpringerBriefs in Green Chemistry for Sustainability*. (2013), 5-12.
- [10] Marzuki Silalahi, Arbi Dimiyati, Sri Harjanto, Pudji Untoro, Bambang Suharno, Microalloying Of Fe-Cr By Using Ultrasonic Irradiation, *International Journal of Technology*, 2 (2014) 169-182.
- [11] Marzuki Silalahi, Pudji Untoro, Bambang Suharno dan Sri Harjanto, Metode Ultrasonik Pada Pembentukan Bongkah Paduan Fe-Cr Melalui Sintering Dua Tahap, *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 15 (2014) 158-165.
- [12] Andrej Atrens, Guang-Ling Song, Fuyong Cao, Zhiming Shi, Patrick K. Bowen, Advances in Mg corrosion and research suggestions, *Journal of Magnesium and Alloys*. 1 (2013), 177-200.
- [13] Timothy J. Mason. *Sonochemistry*. Oxford University Press Inc.(1999), 18-20
- [14] Ahmad monshi, Mohammad Reza Foroughi, Mohammad Reza Monshi, Modified scherrer equation to estimate more accurately nanocrystallite size using XRD, *World journal of nano science and engineering*, 2 (2012), 154-160.