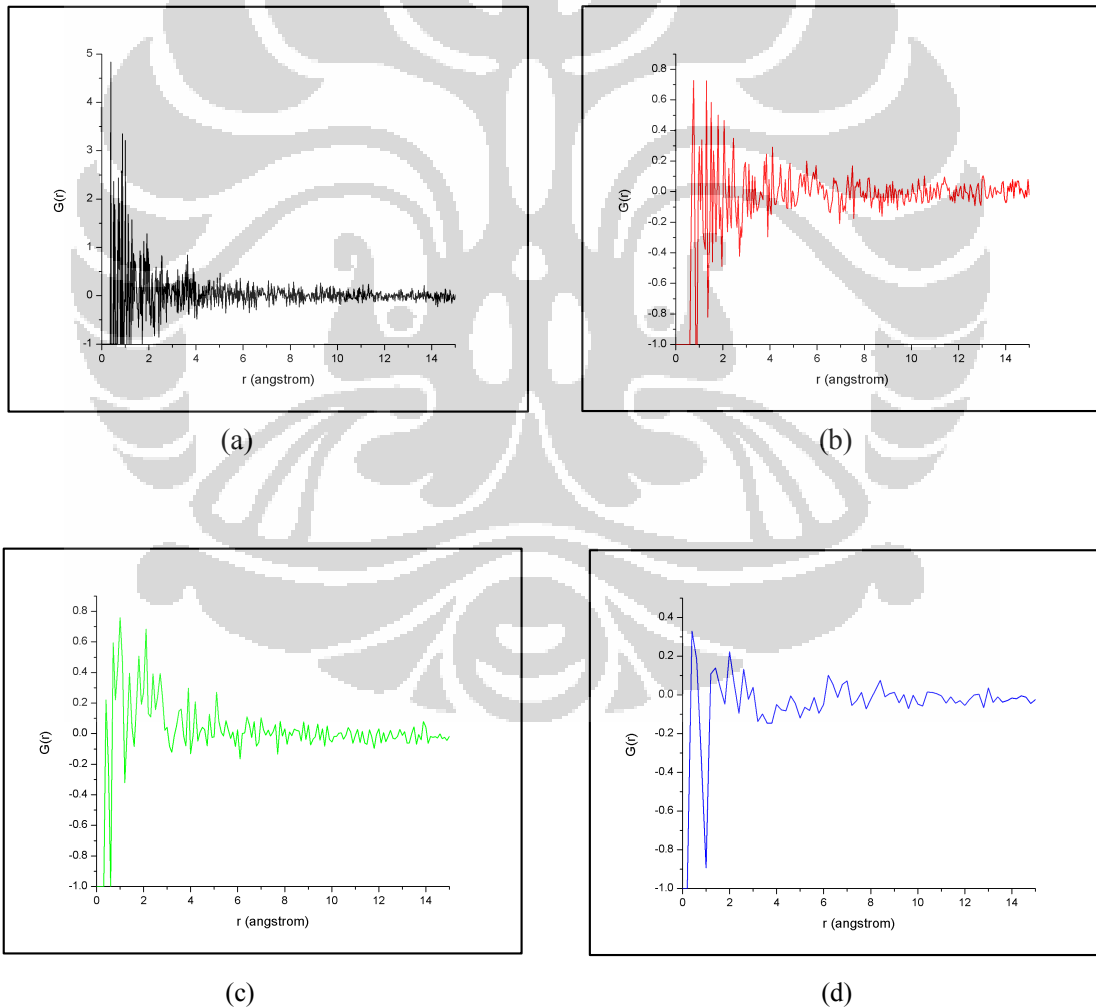


BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Hasil Permodelan

4.1.1 Hasil Fungsi Distribusi Pasangan Total Simulasi

Gambar 4.1 merupakan salah satu contoh hasil fungsi distribusi pasangan total simulasi 1 jenis atom dengan jumlah atom awal adalah 2000 atom. Jari-jari bola model yang digunakan adalah 15 Å, dengan panjang hamburan 1.

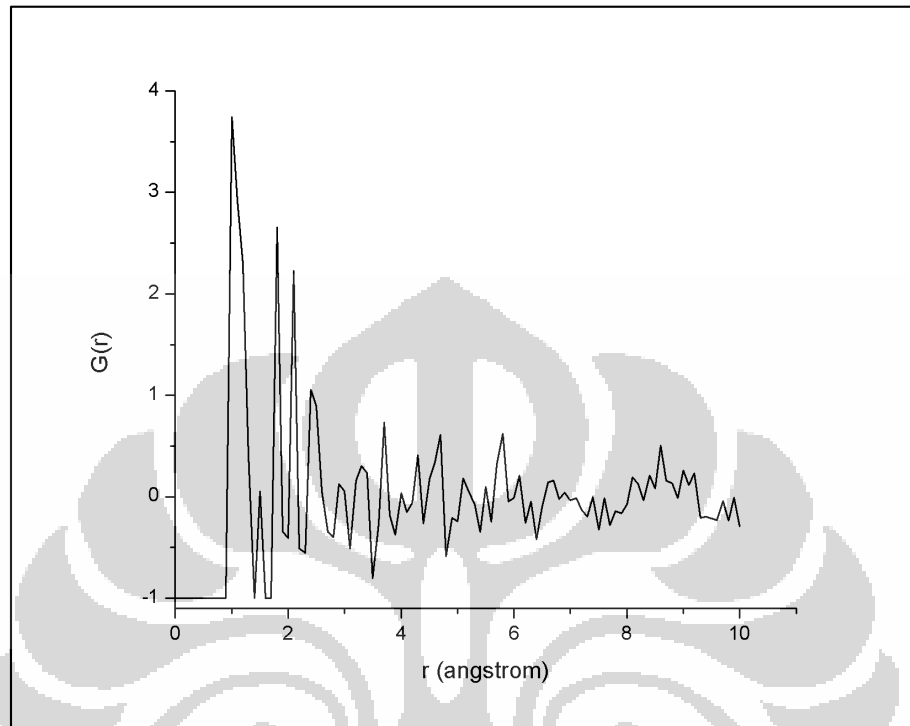


Gambar 4.1 Hasil fungsi distribusi pasangan total, $G(r)$ simulasi dengan variasi dr : (a) $dr = 0.02$, (b) $dr = 0.05$, (c) $dr = 0,1$ dan (d) $dr = 0,2$.

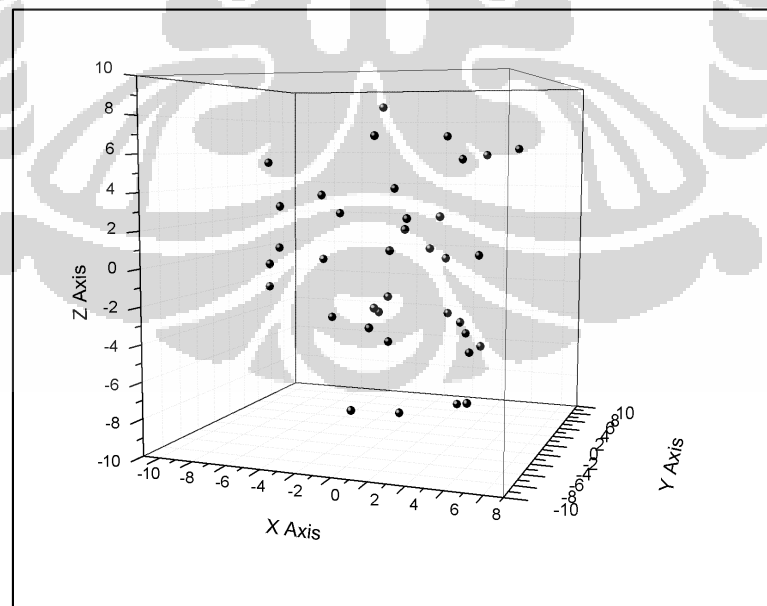
Dari hasil tersebut dapat terlihat bahwa nilai fungsi distribusi pasangan total akan bernilai $\sum_v \sum_\mu c_v c_\mu \overline{b_v b_\mu}$ pada jarak r yang sangat kecil ($r \rightarrow 0$) yang menunjukkan bahwa tidak mungkin terdapat atom tetangga pada jarak yang sangat dekat dengan atom acuan. Hal tersebut disebabkan karena adanya pengaruh gaya *repulsive* yang sangat kuat antara kedua inti atom, sehingga atom acuan dengan atom yang lainnya tidak mungkin memiliki jarak yang sangat dekat. Nilai fungsi distribusi pasangan akan naik pada jarak ditemukannya atom terdekat, atau yang biasa disebut tetangga terdekat. Kemudian, nilai fungsi distribusi pasangan total juga akan cenderung menuju angka nol untuk jarak r yang besar. Hal tersebut menunjukkan bahwa untuk jarak yang cukup besar, nilai rata-rata kerapatan atom pada jarak tertentu dari suatu atom acuan akan mendekati nilai kerapatan atom total.

4.1.1 Validasi Proses Fitting/Optimasi Terhadap Data Simulasi

Untuk menguji kemampuan program yang digunakan dalam proses optimasi, maka perlu dilakukan validasi dengan cara melakukan *fitting* terhadap data simulasi. Data simulasi yang digunakan merupakan hasil perhitungan fungsi distribusi pasangan dengan parameter-parameter sebagai berikut: jumlah atom total adalah 350 atom (jumlah atom dalam bola model ≈ 40 atom). Variabel dr bernilai 0,1 sementara bola model yang digunakan memiliki jari-jari 10\AA , serta panjang hamburan bernilai 1. Hasil fungsi distribusi pasangan total simulasi yang akan menjadi input dalam proses validasi ditunjukkan pada gambar 4.2. Sedangkan struktur atomnya akan divisualisasikan dalam koordinat kartesian, sehingga plot akan dilakukan dalam bentuk kubus.



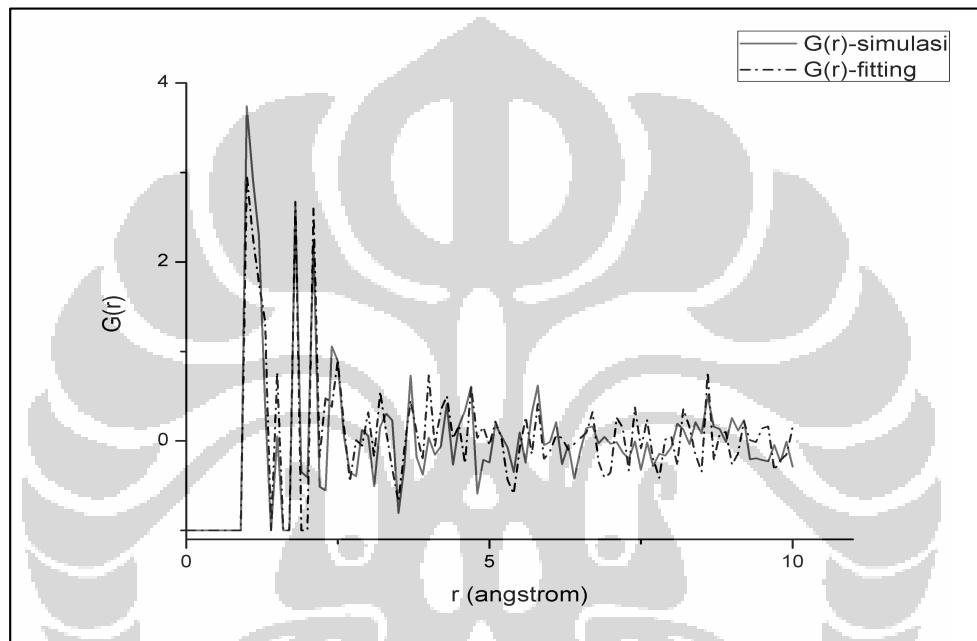
Gambar 4.2 Fungsi distribusi pasangan awal permodelan



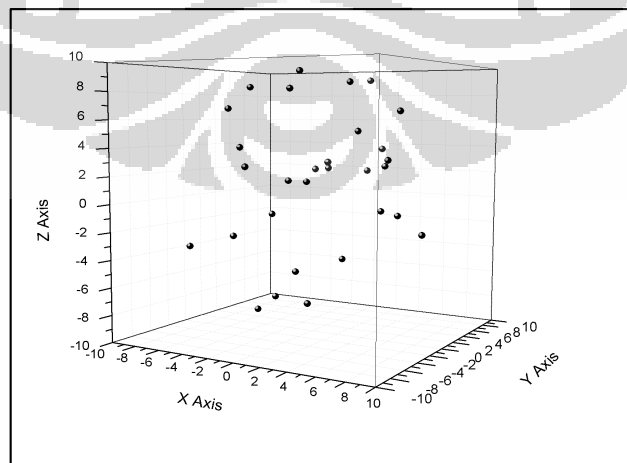
Gambar 4.3 Konfigurasi atom awal permodelan

Proses optimasi dilakukan menggunakan parameter yang sama dengan ketika membuat fungsi distribusi pasangan diatas. Proses ini dilakukan dalam waktu ≈ 110

menit, dan telah tercapai 800.000 generasi dengan fungsi objektif (*cost function*) terbaik yang diperoleh dalam proses tersebut adalah 3,45. Adapun perbandingan fungsi distribusi pasangan simulasi dengan hasil optimasi serta struktur atom hasil fitting ditunjukkan pada gambar 4.4 dan 4.5.



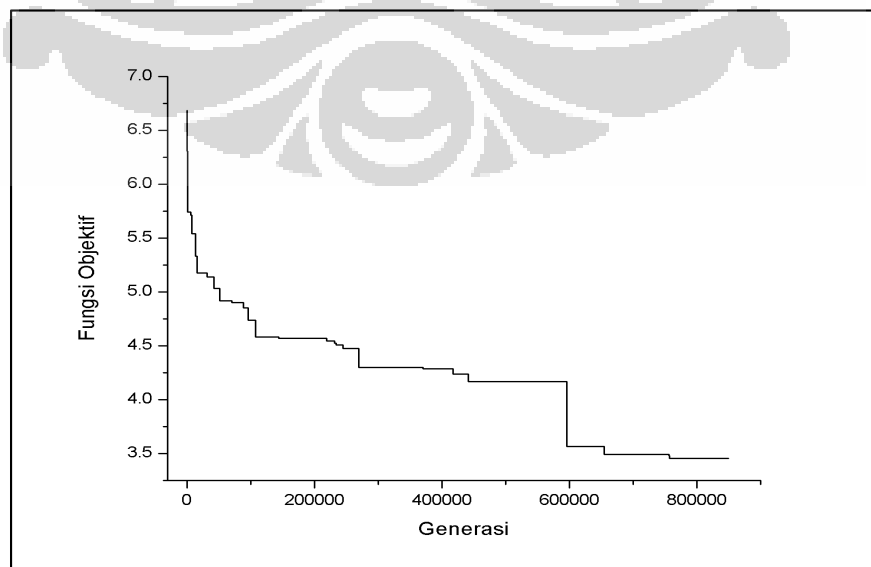
Gambar 4.4 Fungsi distribusi pasangan hasil optimasi data simulasi



Gambar 4.5 Konfigurasi atom hasil optimasi data simulasi

Dari gambar 4.4 dapat dilihat bahwa beberapa titik/ puncak dari fungsi distribusi pasangan data berhasil disamakan oleh fungsi distribusi pasangan hasil optimasi. Namun untuk nilai r yang besar grafik fungsi distribusi pasangan hasil optimasi masih memiliki perbedaan dengan fungsi distribusi pasangan data. Walaupun begitu, secara keseluruhan, *trendline* grafik fungsi distribusi pasangan hasil optimasi hampir sama dengan fungsi distribusi pasangan data. Untuk hasil konfigurasi atom, hasil konfigurasi atom hasil optimasi terlihat berbeda dengan konfigurasi atom awal, namun jarak antar atom pada konfigurasi atom hasil optimasi tidak jauh berbeda dengan konfigurasi atom awal, sebab puncak-puncak pada fungsi distribusi pasangan yang terbentuk dari hasil optimasi sudah berada pada r yang sama dengan fungsi distribusi pasangan awal.

Hasil fungsi objektif terhadap generasi ditunjukkan pada gambar 4.6. Dari gambar tersebut dapat terlihat bahwa nilai fungsi objektif, yang merupakan selisih antara data dengan hasil fitting, semakin kecil seiring dengan bertambahnya generasi. Nilai minimum yang diperoleh untuk 850.000 generasi adalah 3,45, namun tidak menutup kemungkinan nilai fungsi objektif akan semakin kecil, jika waktu jalan program ditambah. Hal tersebut membuktikan bahwa program ini sudah cukup baik untuk digunakan dalam proses optimasi data yang sesungguhnya.

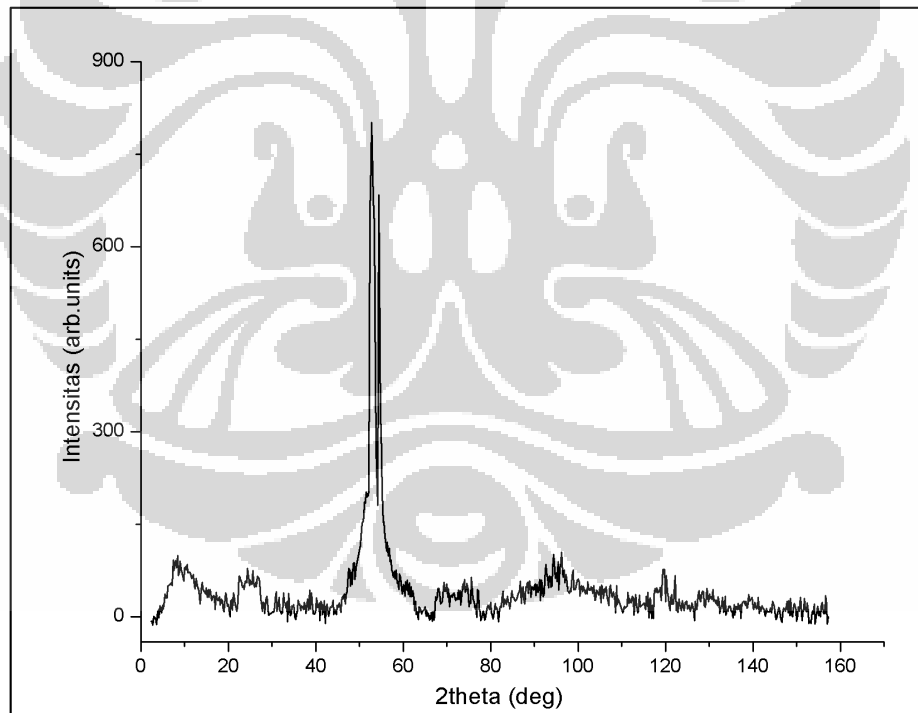


Gambar 4.6 Grafik fungsi objektif

4.2 Pembahasan

4.2.1 Hasil Difraksi Neutron Material Amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$

Gambar 4.7 menunjukkan hasil difraksi neutron dari $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ pada temperatur ruang. Dari pola difraksi tersebut dapat terlihat adanya beberapa puncak Bragg dengan satu puncak dominan pada sudut $2\theta \approx 53.19^\circ$. Adanya puncak-puncak tersebut menunjukkan bahwa material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ tidak sepenuhnya amorph. Puncak-puncak tersebut menunjukkan adanya fase kristalin yang sangat kecil dengan jumlah yang juga sangat kecil, sehingga tidak terdeteksi oleh XRD walaupun material amorph ini telah dianil dengan metode *Joule Heating* (lampiran A).



Gambar 4.7 Hasil difraksi neutron material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ pada temperatur ruang. Hasil tersebut menunjukkan terdapat puncak Bragg dominan pada sudut $2\theta \approx 53.19^\circ$

4.2.2 Identifikasi Fase

Mizushima, et al (T. Mizushima, A. Makino & A. Inoue, 1998) melalui pengamatan proses kristalisasi dengan mempergunakan Differential Scanning

Calorimetry (DSC), melaporkan bahwa proses kristalisasi yang terlihat pada kurva DSC paduan logam amorph Fe-(Al,Ga)-(P,C,B,Si) dengan substitusi atom Si terhadap atom P akan menghasilkan fase kristalin antara lain α -Fe, Fe₃B, Fe₃C, Fe₃P, dan Fe₂B. Hasil yang sama juga didapat oleh Mustain (Mustain, 2004) melalui hasil difraksi sinar-x pada sampel yang telah mengalami Joule Heating dengan rapat arus 15,6 A/mm² (lampiran B). Berdasarkan hasil-hasil tersebut, maka identifikasi puncak dilakukan dengan cara mencocokkan puncak-puncak baik puncak Bragg maupun puncak-puncak yang berukuran kecil dari hasil difraksi pada gambar 4.7 dengan data JCPDS-PDF 1995, khusus untuk kelima fase diatas. Hasil identifikasi ditunjukkan pada tabel 4.1.

Tabel 4.1 Hasil identifikasi fase puncak sampel

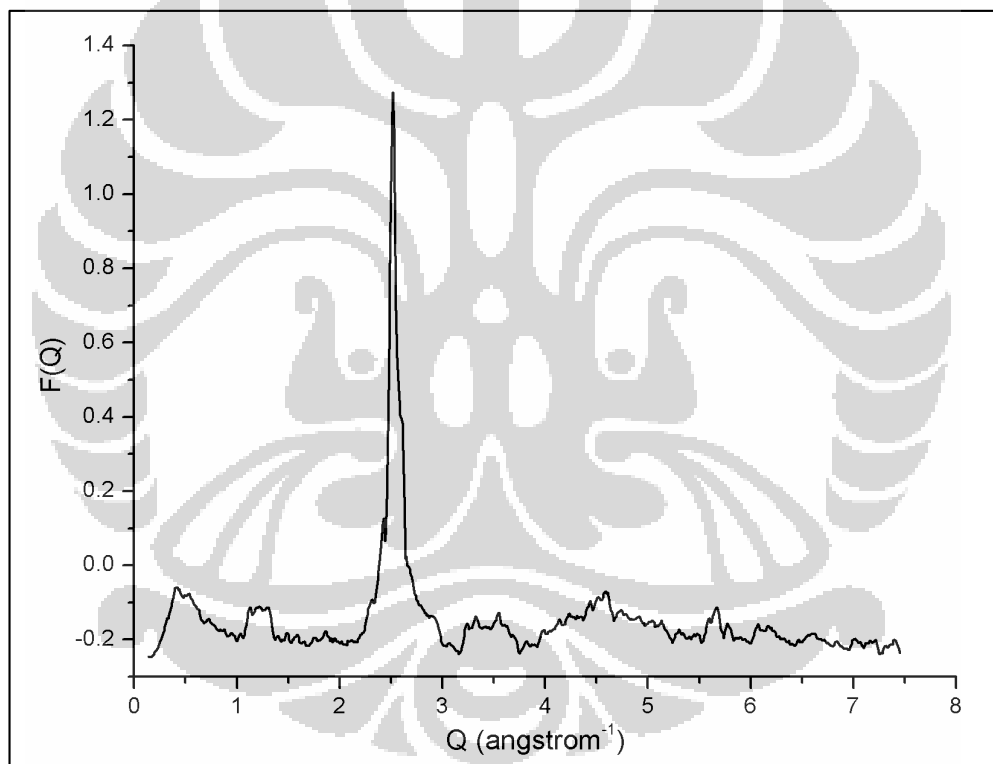
2θ	d-observasi (Å)	d-data (Å)	(hkl)	Fase
24,83	4,239	4,267	(002)	Fe ₂ B
38,592	2,758	2,74	(310)	Fe ₃ B
52,997	2,043	2,026	(110)	α -Fe
52,997	2,043	2,03	(420)	Fe ₃ P
52,997	2,043	2,0318	(220)	Fe ₃ C
69,584	1.5973	1.621	(310)	Fe ₂ B
69,584	1.5973	1.5896	(301)	Fe ₃ C
74.206	1.5108	1.5119	(222)	Fe ₃ C
96.218	1.2242	1.2256	(401)	Fe ₃ C
128.031	1.0137	1.0134	(220)	α -Fe

Hasil tersebut menunjukkan bahwa kelima fase yang telah disebutkan diatas yaitu α -Fe, Fe₃B, Fe₃C, Fe₃P, dan Fe₂B muncul. Hal tersebut menunjukkan bahwa terdapat keteraturan jangka pendek (*short range order*) yang terdapat pada material

amorph ini yang tidak terdeteksi oleh XRD, karena jumlah maupun ukuran fase-fase tersebut sangat kecil.

4.2.3 Fungsi Struktur serta Fungsi Distribusi Pasangan Eksperimen

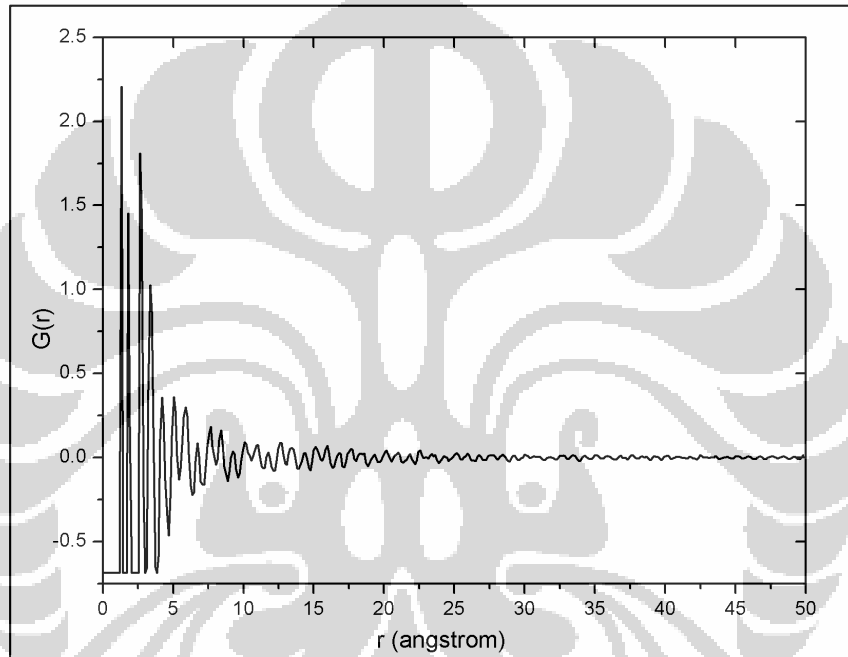
Dengan menggunakan persamaan (3.1), hasil difraksi diatas dinormalisasi agar diperoleh fungsi struktur total, $F(Q)$. Hasil fungsi struktur total setelah dilakukan proses *smoothing* ditunjukkan oleh gambar 4.8.



Gambar 4.8 Fungsi struktur total, $F(Q)$ material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$.

Proses transformasi Fourier dari fungsi struktur total, $F(Q)$ menjadi fungsi distribusi pasangan total, $G(r)$ sesuai persamaan (3.2) dilakukan dengan menggunakan program MCGR. Input yang diberikan adalah kerapatan atom total (ρ_0), yang merupakan jumlah atom total per satuan volume (dalam satuan atom/ \AA^3), serta besaran $\sum_v \sum_\mu c_v c_\mu \overline{b_v b_\mu}$ yang akan memberikan kontribusi pada batas bawah

nilai fungsi distribusi pasangan untuk nilai r yang mendekati nol. Nilai kerapatan atom total yang diperoleh melalui perhitungan adalah $0.0315 \text{ atom}/\text{\AA}^3$ (lampiran C), serta nilai $\sum_v \sum_\mu c_v c_\mu \overline{b_v b_\mu}$ adalah 0.688. Dengan menggunakan kedua nilai tersebut, maka diperoleh fungsi distribusi pasangan total yang ditunjukkan pada gambar 4.9.

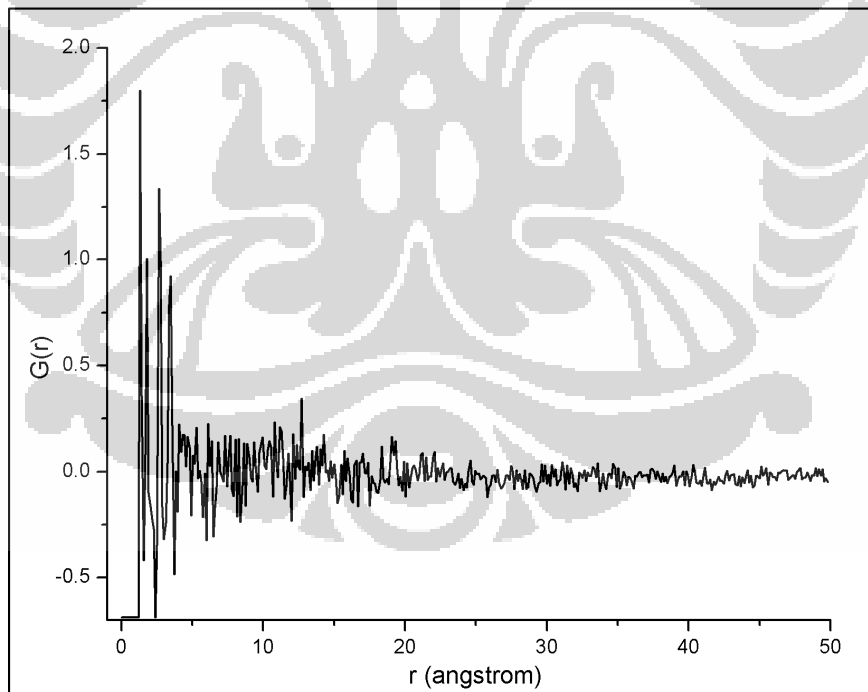


Gambar 4.9 Fungsi distribusi pasangan total, $G(r)$, material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$.

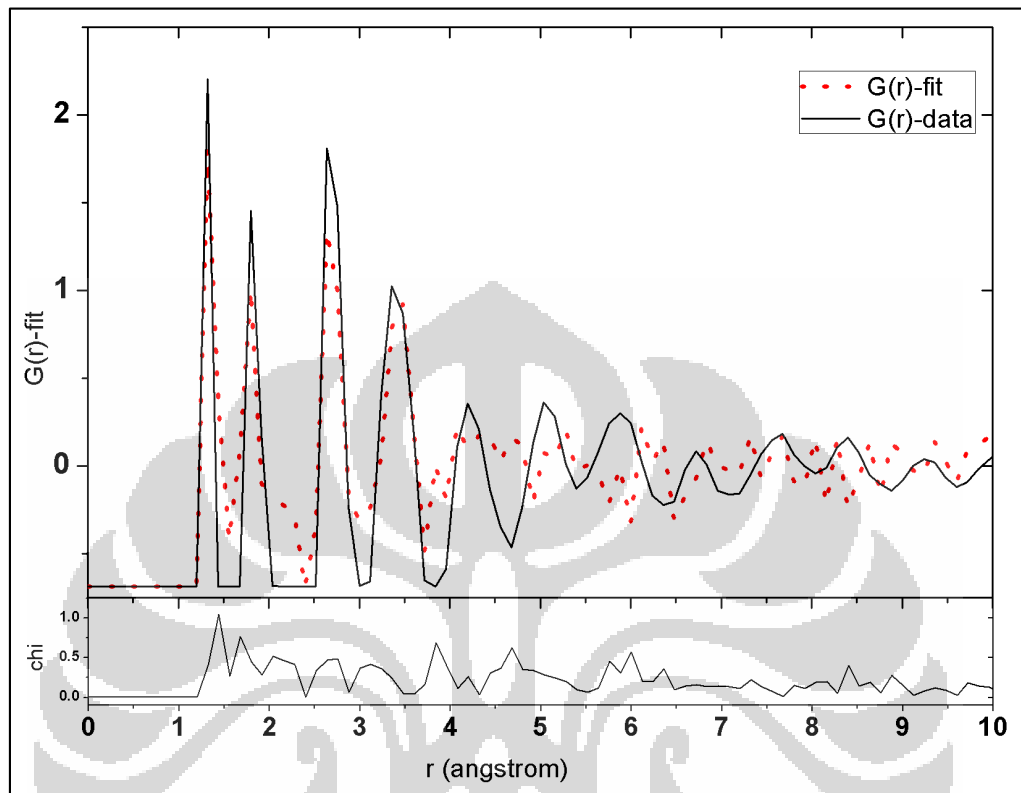
Dari gambar 4.9, dapat dibuktikan bahwa material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ memiliki keteraturan jangka pendek (*short range order*). Hal tersebut ditandai dengan munculnya puncak-puncak tajam seperti terlihat pada hasil fungsi distribusi pasangan tersebut yang disebabkan karena adanya konfigurasi atom yang hamper teratur dan periodik. Selain itu, dari gambar tersebut juga dapat terlihat bahwa puncak-puncak tajam tersebut muncul hanya sampai jarak tertentu ($r \approx 20 \text{ \AA}$), pada jarak $r > 20 \text{ \AA}$, nilai fungsi distribusi pasangan cenderung memiliki nilai yang mendekati nol. Hal tersebut menjelaskan bahwa keteraturan jangka pendek pada material amorph ini hanya berlaku sampai dengan jarak $r \approx 20 \text{ \AA}$.

4.2.4 Hasil Optimasi Fungsi Distribusi Pasangan Simulasi dan Eksperimen

Proses optimasi fungsi distribusi pasangan eksperimen dilakukan dengan parameter-parameter sebagai berikut: jumlah atom total adalah 5000 atom (jumlah atom dalam bola model ≈ 500 atom), variable $dr = 0,12$ (sesuai dengan selisih dua data yang berurutan), jari-jari bola model 50 \AA (diperoleh dari jarak terjauh dalam data). Jumlah atom total untuk tiap jenis atom serta panjang hamburan masing-masing jenis atom ditunjukkan pada lampiran D. Proses ini dilakukan selama $\approx 3,5$ jam dan tercapai 2200 generasi, dengan fungsi objektif terbaik yang diperoleh adalah 2,96. Hasil fungsi distribusi pasangan hasil optimasi ditunjukkan pada gambar 4.10, sementara perbandingan fungsi distribusi pasangan simulasi dan eksperimen untuk jarak $r \leq 10 \text{ \AA}$ ditunjukkan pada gambar 4.11.

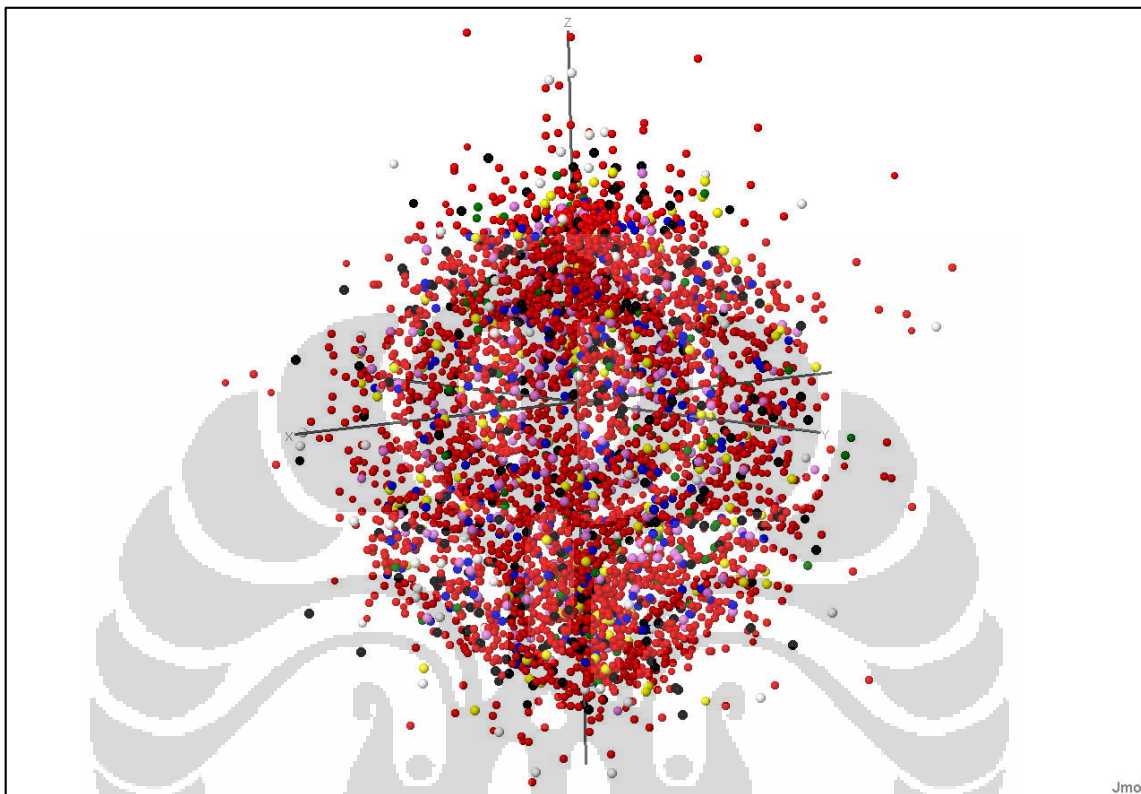


Gambar 4.10 Hasil fungsi distribusi pasangan hasil optimasi

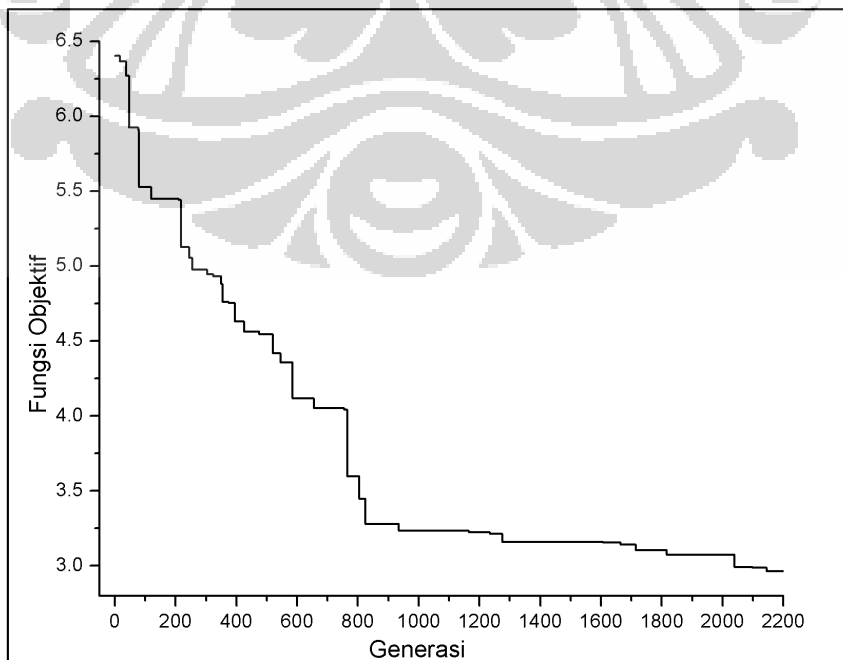


Gambar 4.11 Perbandingan fungsi distribusi pasangan hasil optimasi dan eksperimen

Dari gambar 4.11, dapat terlihat bahwa untuk puncak-puncak pada fungsi distribusi pasangan untuk $r \leq 10 \text{ \AA}$ sudah berhasil disamakan oleh fungsi distribusi pasangan optimasi. Hal tersebut dapat terlihat dari inset yang menunjukkan selisih antara fungsi distribusi pasangan data dengan fungsi distribusi pasangan hasil optimasi. Konfigurasi atom terbaik kemudian diplot dengan menggunakan program *Jmol*. Adapun konfigurasi atom hasil optimasi serta grafik fungsi objektif terhadap generasi ditunjukkan pada gambar 4.12 dan 4.13. Grafik fungsi objektif mengalami penurunan seiring bertambahnya generasi, yang menunjukkan bahwa pada generasi yang semakin besar, konfigurasi atom yang diperoleh dari hasil optimasi semakin mendekati konfigurasi atom sesungguhnya (sampel).



Gambar 4.12 Konfigurasi atom hasil optimasi. Konfigurasi atom berada pada bola model.



Gambar 4.13 Hasil fungsi objektif proses optimasi terhadap generasi

Warna merah pada konfigurasi atom gambar 4.12 menunjukkan atom Fe, ungu menunjukkan atom Al, hijau menunjukkan atom Ga, hitam menunjukkan atom P, biru menunjukkan atom C, kuning menunjukkan atom B, serta warna putih menunjukkan atom Si. Dari gambar 4.12 juga terlihat bahwa konfigurasi atom yang terbentuk seakan-akan berbentuk bola, hal tersebut karena proses inialisasi atom seperti dijelaskan pada bab sebelumnya dilakukan dalam suatu bola, sehingga konfigurasi atom yang dihasilkan akan berada dalam bola.

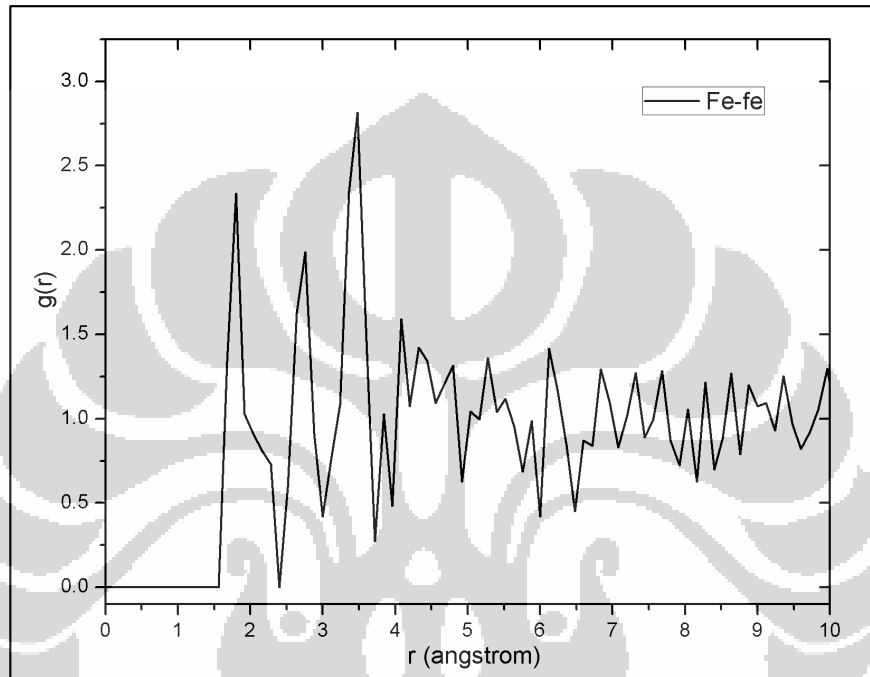
4.2.4 Analisis Struktur

Mengacu pada hasil identifikasi fase yang dibahas pada bagian 4.2.2, maka identifikasi struktur atom dilakukan untuk kelima fase yang terbentuk, yaitu α -Fe, Fe₃B, Fe₃C, Fe₃P, dan Fe₂B. Analisis struktur atom dalam hal ini dilakukan dengan mengamati fungsi distribusi pasangan parsial atomik dari kelima fase tersebut.

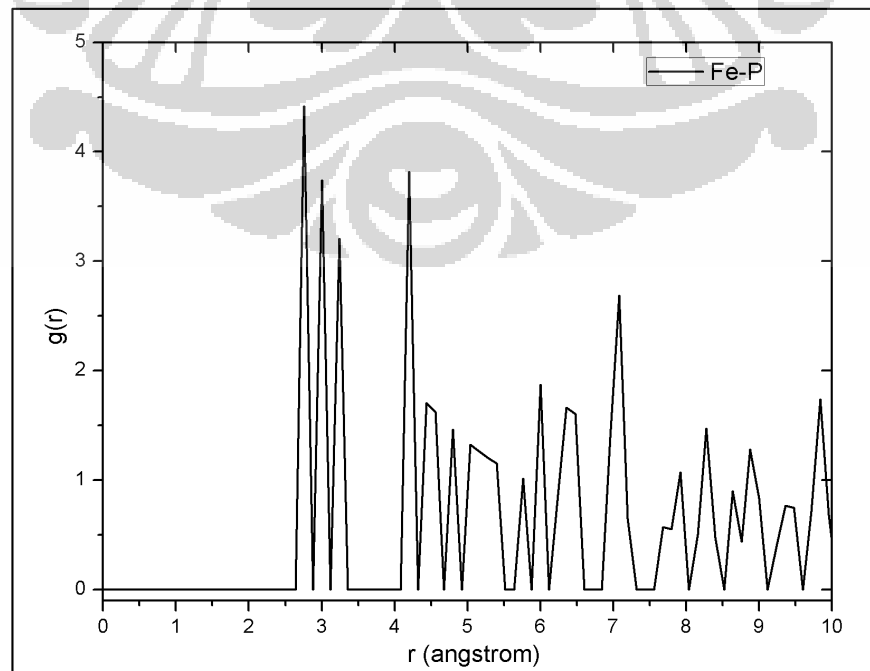
Dari hasil optimasi, selain diperoleh fungsi distribusi pasangan total yang memiliki nilai fungsi objektif minimum, juga diperoleh fungsi distribusi pasangan parsial untuk seluruh pasangan atom yang mungkin terbentuk. Karena sampel yang digunakan dalam hal ini terdiri dari 7 jenis atom, maka fungsi distribusi pasangan parsial yang mungkin terbentuk adalah 21 pasangan. Berkaitan dengan kemunculan kelima fase dominan diatas, maka hanya akan dibahas fungsi distribusi pasangan parsial yang berkaitan, yaitu $g_{\text{Fe-Fe}}$, $g_{\text{Fe-C}}$, $g_{\text{Fe-B}}$, $g_{\text{Fe-P}}$. Keempat fungsi distribusi pasangan parsial tersebut ditunjukkan pada gambar 4.14.

Salah satu hal yang perlu diperhatikan adalah fungsi distribusi pasangan total eksperimen pada gambar 4.9 menunjukkan adanya puncak-puncak yang tidak memiliki makna fisis yaitu puncak pertama ($r \approx 1,2 \text{ \AA}$) serta puncak kedua ($r \approx 1,7 \text{ \AA}$). Kedua puncak tersebut tidak memiliki makna fisis, sebab dari keempat pasangan atom yang mungkin terbentuk (Fe-Fe, Fe-P, Fe-C, Fe-B) tidak ada yang memiliki jarak tetangga terdekat lebih kecil dari 2 \AA . Kedua puncak tersebut muncul disebabkan karena proses Transformasi Fourier yang sering memunculkan puncak-puncak yang tidak bermakna seperti itu. Walaupun demikian, proses optimasi tetap

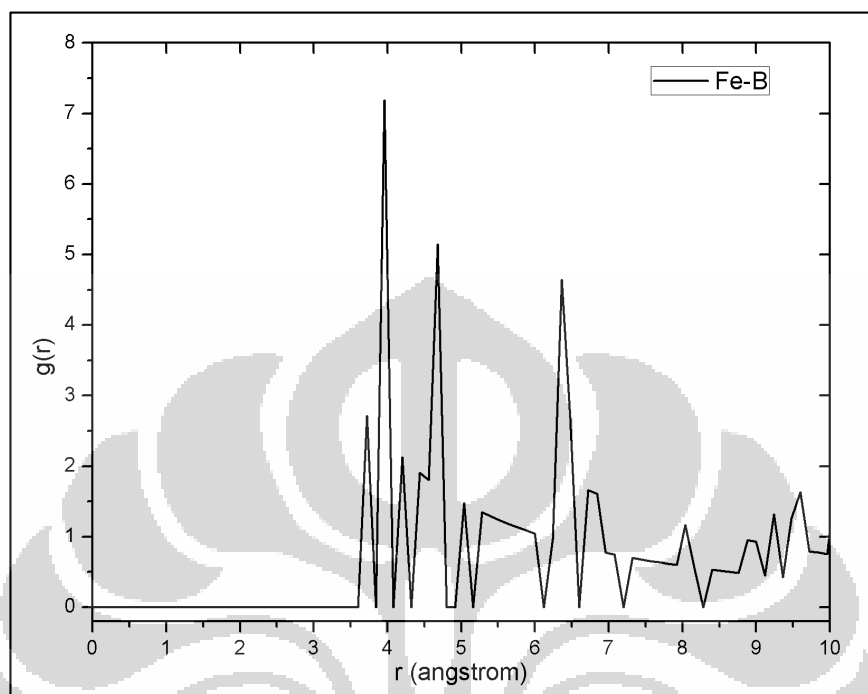
dilakukan dengan mengikutkan kedua puncak tersebut, dan sebagai konsekuensinya akan dilakukan pemotongan puncak-puncak pada keempat fungsi distribusi pasangan parsial diatas sampai pada jarak yang mencerminkan jarak antar atom sesungguhnya.



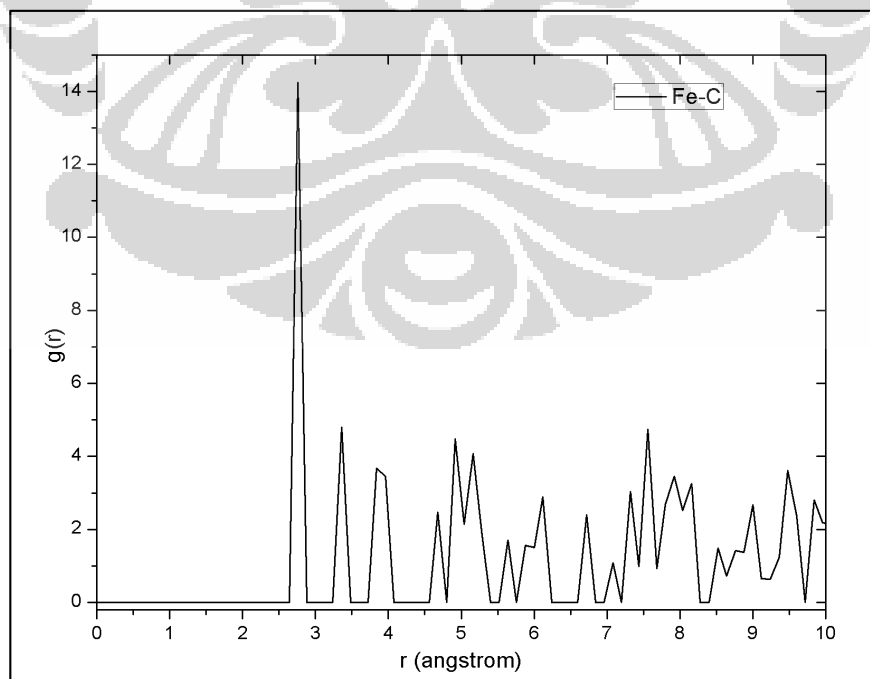
(a)



(b)



(c)



(d)

Gambar 4.14 Fungsi distribusi pasangan parsial untuk pasangan atom: (a) Fe-Fe, (b) Fe-P, (c) Fe-B, (d) Fe-C.

Gambar 4.14 dapat dikelompokkan menjadi dua fungsi distribusi pasangan berdasarkan jenis pasangannya, yaitu pasangan logam-logam, dan pasangan logam-non-logam. Pasangan logam-logam dalam hal ini adalah fungsi distribusi pasangan antara atom Fe-Fe. Fungsi distribusi pasangan yang lain merupakan pasangan logam-non-logam.

Gambar 4.14a menunjukkan fungsi distribusi pasangan antar atom Fe yang merupakan pasangan logam-logam. Dari gambar tersebut puncak-puncak pada fungsi distribusi pasangan sudah dapat terlihat pada jarak 1,8 Å, yang menandakan pada jarak tersebut sudah ditemukan atom tetangga. Jarak berikutnya yaitu pada 2,64 Å. Jarak pertama mungkin tidak dapat diterima sebagai jarak pasangan atom Fe-Fe, sebab seandainya atom Fe dengan jari-jari atom 1,25 Å saling berhimpit, maka jarak minimum terbentuknya pasangan atom Fe-Fe adalah 2,5 Å. Hal tersebut disebabkan karena program yang dibuat tidak memperhitungkan adanya batasan-batasan seperti seperti jarak antar atom yang seharusnya, program dibuat atas dasar distribusi random, sehingga kemungkinan terdapat jarak antar atom yang lebih kecil dari seharusnya bisa saja terjadi. Sebagai solusinya, jarak tetangga terdekat yang akan digunakan dalam analisis kali ini adalah jarak munculnya puncak kedua ($r \approx 2,7$ Å).

Mengacu pada pembahasan sebelumnya, bahwa pasangan atom Fe-Fe diturunkan dari adanya struktur kristal α -Fe dalam jumlah yang sangat sedikit pada material amorph ini, maka dapat dibandingkan jarak tetangga terdekat antar atom Fe dari fungsi distribusi pasangan gambar 4.14a dengan kristal α -Fe seperti terlihat pada tabel 4.3.

Tabel 4.2 Perbandingan jarak antar atom serta bilangan koordinasi Fe terdekat

	r (Å)	n
Material Amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$	2,64	3
Kristal α -Fe*	2,48	8

* Wyckoff, W. G. (1981). *Crystal Structure* (2nd ed). Krieger

Jarak tetangga terdekat Fe-Fe dari material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ lebih besar 6% dibandingkan dengan jarak tetangga terdekat Fe-Fe pada kristal α -Fe, namun masih bisa dikatakan bahwa jarak antar atom Fe pada material amorph ini mendekati jarak antar atom Fe pada kristal α -Fe.

Untuk ketiga fungsi distribusi pasangan yang lain telah dilakukan pemotongan puncak seperti telah disebutkan di atas, sehingga grafik distribusi pasangan parsial pada gambar 4.14b-4.14d dapat langsung dianalisis. Tiga fungsi distribusi pasangan parsial pada gambar 4.14b-4.14d termasuk pasangan logam-non-logam. Fungsi distribusi pasangan pertama yaitu Fe-P yang diturunkan dari fase Fe_3P (gambar 4.14b). Perbandingan jarak tetangga terdekat pasangan atom Fe-P dengan jarak tetangga terdekat atom Fe-P pada struktur kristal Fe_3P diringkas pada tabel 4.4.

Tabel 4.3 Perbandingan jarak antar atom serta bilangan koordinasi Fe-P terdekat

	r (Å)	n
Material Amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$	2,76	1,5
Kristal Fe_3P^*	2,34	3

*Rundquist, S. (1962). *Acta Chem Scand.*, vol. 16, 1.

Jarak tetangga terdekat atom Fe-P pada material amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$ adalah 2,76 Å, memiliki perbedaan 11% daripada jarak tetangga terdekat Fe-P pada kristal Fe_3P . Lalu untuk pasangan Fe-B yang diturunkan dari fase Fe_2B (gambar 4.14c), perbandingan jarak tetangga terdekat pasangan atom Fe-B dengan jarak atom pada kristal Fe_2B ditunjukkan pada tabel 4.4.

Tabel 4.4 Perbandingan jarak antar atom serta bilangan koordinasi Fe-B terdekat

	r (Å)	n
Material Amorph $\text{Fe}_{73}\text{Al}_5\text{Ga}_2\text{P}_8\text{C}_5\text{B}_4\text{Si}_3$	3,72	1,9
kristal Fe_2B^*	2,1	4

*Wever, F & Mueller, A. (1930). *Zeitschrift fuer Anorganische und Allgemeine Chemie.*, 317-336.

Sementara untuk pasangan Fe-C yang diturunkan dari fase Fe₃C (gambar 4.15d) memiliki perbandingan jarak tetangga terdekat pasangan atom Fe-C dengan jarak tetangga terdekat atom Fe-C pada kristal Fe₃C

Tabel 4.5 Perbandingan jarak antar atom serta bilangan koordinasi Fe-C terdekat

	r (Å)	n
Material Amorph Fe ₇₃ Al ₅ Ga ₂ P ₈ C ₅ B ₄ Si ₃	2,64	3,1
kristal Fe ₃ C*	2,02	6

* Hendricks, S.B. (1930). *Z. Krist.*, vol. 74, 534.

Dari keseluruhan perbandingan jarak tetangga terdekat material amorph Fe₇₃Al₅Ga₂P₈C₅B₄Si₃ terhadap fase-fase kristal α -Fe, Fe₃B, Fe₃C, Fe₃P, dan Fe₂B dapat terlihat bahwa jarak tetangga terdekat pasangan atom Fe-Fe, Fe-P, Fe-B, serta Fe-C pada material amorph lebih besar dibandingkan jarak tetangga terdekat pasangan atom tersebut pada fase kristalnya. Hal tersebut disebabkan karena volume bebas (*free volume*) pada material amorph yang lebih besar daripada material kristal, sehingga jarak antara atom yang satu dengan atom yang lain akan memiliki jarak yang lebih besar daripada jarak antar atom pada kristal. Keteraturan pada kristal mengharuskan atom-atom tersusun secara lebih rapat satu sama lain, sedangkan pada material amorph tidak demikian, hal tersebut juga yang menyebabkan bilangan koordinasi pasangan Fe-Fe, Fe-P, Fe-B, serta Fe-C memiliki nilai yang lebih kecil dibandingkan bilangan koordinasi pasangan atom-atom tersebut dalam kristal, yang berarti bahwa jumlah tetangga terdekat pada material amorph ini lebih sedikit daripada material kristal.