

PENGARUH DOPING ION Zn DAN ION Sn PADA SISTEM $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Sn_{0,01})O_3$ TERHADAP PEMBENTUKAN FASA $MgTiO_3$

Novyanti N. Firdausi¹, Frida U. Ermawati²

Jurusan Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Surabaya

Email: novyantifirdausi@mhs.unesa.ac.id¹, frida.ermawati@unesa.ac.id²

Abstrak

Telah dilakukan sintesis serbuk $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Zn_{0,01})O_3$ (disingkat MZTS) dengan menggunakan metode pencampuran larutan, dengan bahan awal berupa serbuk logam Mg, Zn, Ti, dan Sn (*Merck*). Serbuk MZTS dikalsinasi pada suhu 550 °C dan ditahan selama 2 jam. Hasil uji XRD menunjukkan bahwa serbuk MZTS mempunyai struktur yang terdiri dari fasa $MgTiO_3$ sebagai fasa utama dan TiO_2 sebagai fasa sekunder. Selanjutnya, hasil uji XRD dari sampel MZTS dibandingkan dengan hasil uji XRD sampel $MgTiO_3$ tanpa doping (disebut MT) yang juga dikalsinasi pada suhu yang sama. Hasil perbandingan tersebut menunjukkan bahwa fasa $MgTiO_3$ terbentuk lebih sempurna pada sampel MZTS dibandingkan pada sampel MT. Puncak difraksi milik fasa TiO_2 (*Rutile*) dan puncak difraksi milik fasa MgO (*Periclase*) masih ditemukan secara signifikan pada pola XRD sampel MT. Keberadaan kedua fasa tersebut menandakan bahwa keduanya belum bereaksi secara sempurna untuk membentuk fasa $MgTiO_3$. Berbeda dengan pola XRD MT, pada pola XRD sampel MZTS, puncak difraksi milik fasa MgO sama sekali tidak ditemukan. Sedangkan puncak difraksi milik fasa TiO_2 tidak signifikan. Dapat disimpulkan bahwa penambahan ion Zn dan Sn pada sistem $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Zn_{0,01})O_3$ mampu membentuk larutan padat MZTS. Pada suhu kalsinasi yang sama, penambahan ion Zn dan Sn pada sistem tersebut mampu mempercepat pembentukan fasa $MgTiO_3$ sehingga fasa $MgTiO_3$ terbentuk lebih stabil.

Kata Kunci: Metode pencampuran larutan, Uji Struktur, Hasil uji XRD serbuk MZTS.

Abstract

Powder synthesis $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Zn_{0,01})O_3$ has been carried out (abbreviated MZTS) by using a solution mixing method, with the initial material in the form of metal powder Mg, Zn, Ti, and Sn (*Merck*). MZTS powder is calcined at a temperature of 550 °C and stored for 2 hours. The XRD test results show that MZTS powder has a structure consisting of the phase $MgTiO_3$ as the main phase and TiO_2 as the secondary phase. Furthermore, the XRD test results from the MZTS sample were compared with the XRD test results of the $MgTiO_3$ without doping (called MT) which was also calcined at the same temperature. The results of this comparison indicate that the $MgTiO_3$ phase was formed more perfectly in the MZTS sample than in the MT sample. The diffraction peaks belonging to TiO_2 (*Rutile*) and the diffraction peaks belonging to the MgO (*Periclase*) phase were still found significantly in the XRD pattern of the MT samples. $MgTiO_3$. Unlike the XRD MT pattern, in the XRD pattern of the MZTS sample, the diffraction peaks belonging to the MgO phase were not found at all. While the diffraction peaks belonging to the TiO_2 phase are not significant. Can be removed from this amount Zn and Sn on the system $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Zn_{0,01})O_3$ is able to fulfill the needs of MZTS. At the same calcination temperature, add Zn and Sn ions to this system which support the increase of the $MgTiO_3$ phase so that the $MgTiO_3$ phase is formed more stable.

Key Words: liquid mixing method, structure test, XRD test result of MZTS powder.

PENDAHULUAN

Dalam kehidupan sehari-hari, teknologi dalam bidang komunikasi seluler telah berkembang dengan pesat. Salah satu bahan dasar dari bidang komunikasi seluler yaitu bahan dielektrik keramik. Bahan dielektrik merupakan bahan yang sejenis bahan isolator, namun bahan dielektrik ini mampu menyimpan energi listrik apabila diberikan medan listrik luar. Bahan dielektrik keramik berbasis $MgTiO_3$ telah dikenal sebagai bahan yang potensial untuk aplikasi sistem komunikasi seluler dan satelit (ponsel, pemancar, filter, resonator, multilayer pada kapasitor tipe 1 dan *global positioning system* (GPS)) yang bekerja pada daerah frekuensi gelombang mikro (3 GHz – 300 GHz) (Wu et al., 2013). Selain itu sifat utama dari bahan dielektrik keramik berbasis $MgTiO_3$ yaitu memiliki faktor kualitas yang tinggi (Q_f ~160.000) pada frekuensi 7 GHz, nilai permitivitas

relatif (ϵ_r) tinggi yaitu ~17 (Hsu et al., 2015), Koefisien suhu mendekati nol pada frekuensi resonansi (τ_f) yaitu -50 ppm/°C (Hsu et al., 2015). Atas dasar potensi tersebut, maka riset dan pengembangan fabrikasi bahan dielektrik keramik $MgTiO_3$ telah berkembang pesat guna menjawab kebutuhan dalam bidang telekomunikasi seluler. $MgTiO_3$ memiliki nama mineral *Geikelite* dan *space group* R-3 serta file difraksi serbuk (*Powder Diffraction File*, PDF) pada database dengan No. 6-494.

$MgTiO_3$ dapat dihasilkan melalui proses sintesis dengan beberapa macam metode. Salah satu diantaranya adalah metode *Co-precipitation* yang dilaporkan oleh Cheng et al., (1997). Cheng et al., mendeteksi fasa $MgTiO_3$ sebagai fasa utama, TiO_2 dan $Mg(OH)_2$ sebagai fasa sekunder setelah serbuk dikalsinasi pada suhu 900 °C. Berikutnya adalah metode *solid state reaction* (Zhou et al., 2007). Diperoleh bahwa fasa $MgTiO_3$ mulai

Pengaruh Doping Ion Zn Dan Ion Sn Pada Sistem $(\text{Mg}_{0,6}\text{Zn}_{0,4})(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$ Terhadap Pembentukan Fasa MgTiO_3

terbentuk pada suhu kalsinasi 950 °C. Diperoleh fasa MgTiO_3 sebagai fasa utama dan MgTi_2O_5 sebagai fasa sekunder. Dari beberapa metode tersebut masih terlihat bahwa suhu pembentukan fasa MgTiO_3 yang tinggi.

Upaya untuk menurunkan suhu pembentukan fasa MgTiO_3 telah dilaporkan dalam metode lain yaitu dengan menggunakan metode pencampuran larutan. Metode pencampuran larutan ini pertamakali dilaporkan oleh Pratapa et al., (2012) dimana suhu pembentukan fasa MgTiO_3 terbentuk pada suhu kalsinasi 800 °C. Selanjutnya Ermawati et al., (2015) juga mensintesis sampel yang sama dengan mendoping kation Mg dengan ion Zn dan fasa MgTiO_3 terbentuk pada suhu 550 °C dengan tingkat kemurnian yang tinggi yaitu (98,5 % molar). Ditahun berikutnya Ermawati et al., (2016) mencoba memvariasi doping ion Zn pada kation Mg pada sistem $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)\text{TiO}_3$ dengan variasi doping $x=0-0,5$ mol ion Zn dengan hasil yang diperoleh adalah konsisten, dimana fasa MgTiO_3 dengan tingkat kemurnian yang tinggi terbentuk pada suhu 550 °C.

Selanjutnya Ahfa dan Ermawati juga mensintesis sampel yang sama tetapi dengan mendoping kation lain, dalam hal ini adalah kation Ti yang didoping oleh Sn pada sistem $\text{Mg}(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$ dan menghasilkan fasa MgTiO_3 pada suhu kalsinasi 800 °C. Tetapi sejauh ini upaya untuk menurunkan suhu kalsinasi dengan mendoping kedua kation tersebut belum pernah dilaporkan.

Berdasarkan uraian latar belakang di atas Penulis bermaksud untuk mempelajari pengaruh pemberian doping ion Zn dan Sn untuk kedua kation sekaligus yaitu kation Mg dan kation Ti pada sistem $(\text{Mg}_{0,6}\text{Zn}_{0,4})(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$ dengan membandingkan sampel MgTiO_3 tanpa doping.

METODE

A. Material

Pada penelitian ini, bahan awal yang digunakan adalah serbuk logam Mg, Zn, dan Ti (*Merck*) dan HCl 37 % 12 M.

B. Preparasi Sampel

Serbuk MZTS disintesis menggunakan metode pencampuran larutan (*liquid mixing method*). Serbuk logam Mg, Zn, dan Ti dilarutkan ke dalam pelarut HCl. Proses pelarutan serbuk logam dengan HCl menghasilkan larutan MgCl_2 , ZnCl_2 , TiCl_4 , dan SnCl_4 dan TiCl_4 yang kemudian semuanya dicampur dan diaduk secara konstan selama 2 jam hingga homogen, kemudian dilakukan pengeringan di atas *hot plate* pada rentang suhu 100-110 °C hingga sampel menjadi kerak kering berwarna putih.

C. Karakterisasi Sampel

Serbuk MZTS hasil sintesis dikalsinasi pada suhu 550 °C selama 2 jam. Selanjutnya dilakukan karakterisasi XRD pada sampel MZTS hasil kalsinasi 550 °C untuk mengetahui fasa-fasa apa saja yang ada di dalam sampel menggunakan alat *Bragg-Brentano Philips X'pert Diffractometer* dengan radiasi Cu-K α dengan rentang sudut 15-70 ° dengan langkah 0,02 °/menit dan posisi *zero detector* 0,023.

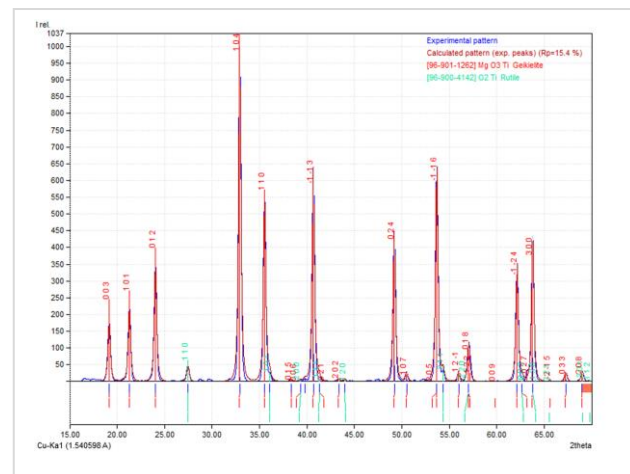
HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Analisis Kualitatif

Analisis kualitatif dilakukan menggunakan program *Match!* dengan tujuan untuk mengetahui fasa-fasa yang teridentifikasi pada sampel uji.

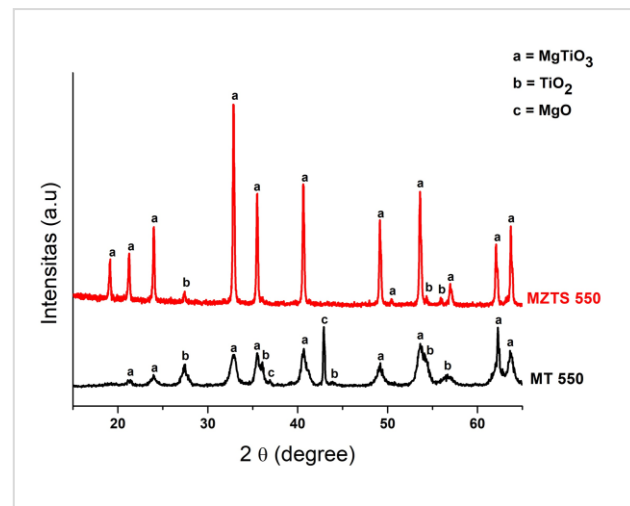
Identifikasi Fasa Serbuk MZTS 550 °C

Identifikasi fasa untuk sampel MZTS hasil kalsinasi 550 °C ditunjukkan pada Gambar 1 dimana sampel telah diinput ke program *Match!*. Proses identifikasi fasa dilakukan dengan cara mencocokkan puncak-puncak difraksi yang sesuai yang ada pada *database Powder Diffraction File (PDF) Match!*



Gambar 1. Hasil identifikasi fasa untuk serbuk MZTS hasil kalsinasi pada suhu 550 °C.

Seperti yang terlihat pada gambar, sampel MZTS strukturnya terdiri dari fasa utama yaitu fasa MgTiO_3 (Gieckelite) dengan No. PDF 06-0494 dan fasa sekundernya yaitu TiO_2 (No. PDF 448-453) dimana intensitas puncak difraksi dari fasa TiO_2 yang terbentuk relatif rendah.



Gambar 2. Perbandingan pola difraksi serbuk MZTS dengan pola difraksi serbuk MgTiO_3 tanpa doping setelah kedua serbuk dikalsinasi pada suhu 550 °C

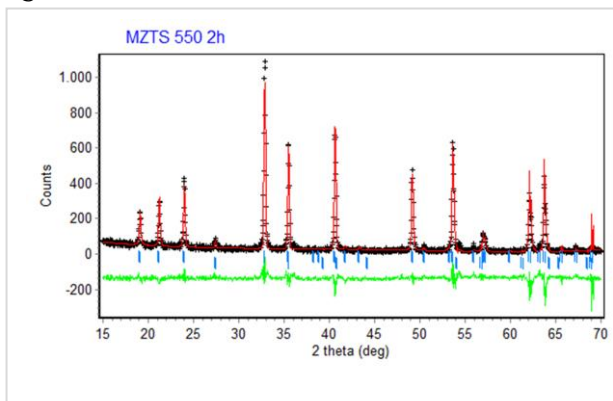
Pengaruh Doping Ion Zn Dan Ion Sn Pada Sistem $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})(Ti_{0,99}Sn_{0,01})O_3$ Terhadap Pembentukan Fasa $MgTiO_3$

Seperti yang terlihat pada gambar, dimana kedua sampel tersebut yaitu sampel MZTS dan sampel MT dikalsinasi pada suhu yang sama yaitu pada suhu 550 °C. Seperti yang terlihat bahwa fasa $MgTiO_3$ telah terbentuk sempurna pada sampel MZTS. Hal ini ditandai dengan tidak adanya puncak difraksi milik fasa MgO (No. PDF 45-0946). Berbeda dengan sampel tanpa doping (sampel MT) yang masih terlihat puncak difraksi milik fasa MgO. Hal ini menunjukkan bahwa fasa MgO belum bereaksi sempurna membentuk $MgTiO_3$.

B. Analisis Kuantitatif

Setelah sampel dianalisis secara kualitatif dengan menggunakan program *Match!* selanjutnya sampel di analisis secara kuantitatif dengan menggunakan metode *Rietveld* tujuan untuk mengetahui komposisi fasa yang ada pada sampel MZTS hasil kalsinasi 550 °C.

Analisis Komposisi Fasa Serbuk MZTS Kalsinasi 550 °C



Gambar 3. Hasil penghalusan *Rietveld* dengan program *Rietica* untuk sampel MZTS pada suhu kalsinasi 550 °C (FoM: $GoF= 1,62$; $R_p= 10,81$; dan $R_{wp}= 12,78$; $R_{exp}= 9,74$).

Seperti yang terlihat pada Gambar 2, simbol “+” menunjukkan pola difraksi terukur (eksperimen), sedangkan garis merah menunjukkan pola difraksi terhitung (model), garis hijau menunjukkan selisih intensitas antara pola difraksi terukur dengan pola difraksi terhitung. Garis- garis tegak kecil berwarna biru menunjukkan posisi puncak-puncak *Bragg* untuk semua fasa yang telah teridentifikasi berdasarkan program *Match!*. Tabel 1 menunjukkan rekapitulasi hasil penghalusan *Rietveld* untuk sampel MZTS hasil kalsinasi 550 °C.

Tabel 1. Data komposisi fasa pada serbuk MZTS 550 °C

Parameter		Fasa Yang Teridentifikasi Pada Sampel	
		$MgTiO_3$	TiO_2
Parameter Kisi (Å)	a=b	5,052	4,580
	c	13,894	3,022
Volume sel satuan (Å ³)		307,177 ± 0,02	63,389 ± 0,01
% molar		97,91 ± 1,51	2,09 ± 0,47

Densitas (g.cm ⁻³)	3,582	4,184
--------------------------------	-------	-------

Dapat dilihat pada Tabel 1 bahwa serbuk MZTS 550 °C tersusun atas fasa $MgTiO_3$ dan TiO_2 . Adapun persentase molar untuk fasa $MgTiO_3$ adalah sebesar $(97,91 \pm 1,51)$ %, sedangkan persentase molar untuk fasa TiO_2 adalah sebesar $(2,09 \pm 0,47)$ %. Besarnya persentase molar fasa $MgTiO_3$ mengindikasikan bahwa pada suhu kalsinasi 550 °C telah mampu dihasilkan $MgTiO_3$ hampir tunggal.

PENUTUP

Simpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa sintesis serbuk $MgTiO_3$ dengan penambahan ion Zn dan Sn pada sampel MZTS pada suhu 550 °C dengan menggunakan metode pencampuran larutan mampu membentuk fasa $MgTiO_3$ lebih cepat dan lebih sempurna dibandingkan dengan sampel $MgTiO_3$ tanpa doping.

Saran

Perlu dilakukan sintesis serbuk MZTS dengan memvariasi doping yang diberikan pada sampel.

DAFTAR PUSTAKA

- Ahfa, M, H., Ermawati, F, U. 2018. Analisis komposisi fasa serbuk $MgTiO_3$ hasil preparasi dengan metode pencampuran larutan, *Jurnal Inovasi Fisika Indonesia (IFI)*,07(02),67-70.
- Beiser, A. 2003. Arthur Beiser. In A. Beiser, Arthur Beiser pp. 7275. North America: McGraw-Hill Companies, Inc.
- Callister, William D. 2007. Materials Science and Engineering: An Introduction. 7th ed. New York: John Wiley & Sons.
- Cheng, H., Xu, B., Ma, J. 1997. Preparation of $MgTiO_3$ by an improved chemical co-precipitation method, *Journal of Materials Science Letters*, 16, 1570-1572.
- Chiang, Y. M., Birnie, D. P., Kingery W. D. 1997. Principles for Ceramic Science and Engineering. New York: Canada John Willey & Sons, Inc, Toronto.
- Cullity, B. D., Stock, S. R. 2014. Elements of X-Ray Diffraction (Edisi ke-3). England and Associated Company, Inc.
- Cullity, B. D. 1956a. *Elements Of X-Ray Diffraction*. America: Addison-Wesley Publishing Company, Inc.
- Cullity, B. D. 1956b. *Elements Of X-Ray Diffraction*. America: Addison-Wesley Publishing Company, Inc.
- Ermawati, Frida U. 2017. Fisika Bahan Keramik. Surabaya: Unesa University Press.

Pengaruh Doping Ion Zn Dan Ion Sn Pada Sistem $(\text{Mg}_{0,6}\text{Zn}_{0,4})(\text{Ti}_{0,99}\text{Sn}_{0,01})\text{O}_3$ Terhadap Pembentukan Fasa MgTiO_3

- Ermawati, Frida U. 2018. *Difraksi Sinar-X: Teori dan Analisis Data Eksperimen*. Surabaya: Unesa University Press.
- Ermawati, Frida U., Pratapa S., Suasmoro, Hübert T., and Banach U. 2016. Preparation and Structural Study of $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x\text{TiO}_3$ Ceramics and Their Dielectric Properties from 1 Hz to 7,7 GHz. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, **27**, 6637-6645.
- Ermawati, Frida U., Suasmoro, and Pratapa S. 2015. A Simple Dissolved Metals Mixing Route to Prepare Nanostructured $\text{Mg}_{0,8}\text{Zn}_{0,2}\text{TiO}_3$ Solid Solution. *Advanced Materials Research*, **1112**, 47-52.
- Haryani, L. I., Pratapa, S. 2011. Sintesis Serbuk MgTiO_3 dengan Metode Pencampuran Larutan dan Penggilingan Serbuk.
- Hsu H. C., Chang H. C. 2015. A temperature-stable and high-Q microwave dielectric ceramic of the $\text{MgTiO}_3\text{-(Ca}_{0,8}\text{Sr}_{0,2})(\text{Zr}_{0,1}\text{Ti}_{0,9})\text{O}_3$ system. *Science Direct: Ceramics International*, **41**, 6965-6969.
- Hunter B. (1998a). Rietica – A Visual Rietveld Program Newsletter of International Union of Crystallography, Commission on Powder Diffraction 21.
- Hunter B. A., Howard, C. J. (1998b). LPHM: A computer program for Rietveld analysis of x-ray and neutron powder diffraction patterns. A. Lucas Heights Research Laboratories. Menai, NSW, Australia.
- Kanna Rajesh R., Dhineshabu, N. R., Paramasivam, P., Rajendran, V., Yuvakkumar, R. 2016. Synthesis of Geikielite (MgTiO_3) Nanoparticles via Sol-Gel Method and Studies on Their Structural and Optical Properties. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*. **16**, 7635-7641.
- Krisnadewi P. 2017. Teori Koordinasi dan Teori Ikatan Kimia. Surakarta. Universitas Sebelas Maret (UNS). 1
- Lestari R., Pratapa S. 2011. Sintesis Magnesium Titanat (MgTiO_3) dengan metode pencampuran larutan dari serbuk magnesium dan titanium terlarut dalam HCl. Surabaya. Institut Teknologi Surabaya (ITS).
- Nugroho W. A. 2012. *Scanning Electron Microscope (SEM)*. Malang.
- Pratapa S., Riyan A. 2012. Sintesis MgTiO_3 dengan variasi temperatur kalsinasi menggunakan metode pencampuran larutan. *Jurnal Sains dan Seni ITS*, **1**(1), ISSN: 2301-928X.
- Rietveld H. M. 1969. A profil refinement method for nuclear and magnetic structures. *Journal of Applied Crystallography* 2(2): 65-71.
- Wechsler, Barry A., and Robert B Von Dreele. 1989. "Structure Refinement Of Mg_2TiO_4 , MgTiO_3 and MgTi_2O_5 by Time-of Flight Neutron Powder Diffraction," 542–549.
- Zhou, Xiaohua, Ying Yuan, Longcheng Xiang, and Yong Huang. 2007. "Synthesis of MgTiO_3 by Solid State Reaction and Characteristics with Addition." *Journal of Materials Science* 42 (16): 6628–32.